



JAEA-Research

2006-019



JP0650466

**陽子 RBS を用いたリチウム-6 濃縮チタン酸
リチウム表面の定量分析(協力研究)**

Quantitative Analysis on the Surface of Lithium-6
Enriched Lithium Titanate using Proton RBS
(Cooperative Research)

久保田 直義 藤原 祥生* 奥村 一貴* 落合 謙太郎
北村 晃* 古山 雄一* 谷池 晃* 西谷 健夫

Naoyoshi KUBOTA, Yoshio FUJIWARA*, Kazutaka OKUMURA*, Kentaro OCHIAI
Akira KITAMURA*, Yuichi FURUYAMA*, Akira TANIIKE* and Takeo NISHITANI

核融合研究開発部門
核融合中性子工学研究グループ

Fusion Neutronics Group
Fusion Research and Development Directorate

June 2006

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Research

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に刊行している研究開発報告書です。
本レポートの全部または一部を複写・複製・転載する場合は下記にお問い合わせ下さい。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課

Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

This report is issued by Japan Atomic Energy Agency irregularly.

Inquiries about the copyright and reproduction should be addressed to :

Intellectual Resources Section,

Intellectual Resources Department

2-4, Shirakata-shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, JAPAN

Tel.81 29 282 6387, Fax.81 29 282 5920

©日本原子力研究開発機構, Japan Atomic Energy Agency, 2006

陽子 RBS を用いたリチウム-6 濃縮チタン酸リチウム表面の定量分析
(協力研究)

日本原子力研究開発機構 核融合研究開発部門

核融合エネルギー工学研究開発ユニット

久保田 直義*, 藤原 祥生*, 奥村 一貴*, 落合 謙太郎, 北村 晃*,
古山 雄一*, 谷池 晃*, 西谷 健夫

(2006 年 1 月 31 日受理)

トリチウム増殖候補材の一つである⁶Li濃縮チタン酸リチウム(Li₂TiO₃)の95%及び40%⁶Li濃縮試料表面近傍の⁶Li密度を調べるために、2.6 MeVの陽子を用いたラザフォード後方散乱分光(RBS)分析を行った。両試料とも熱中性子輸送を評価する上で十分な深さ分解能をもって、深さ2.0 μmまでの領域を分析することができた。⁶Li密度は、両試料ともに、誤差27%の精度で測定する事ができたが、トリチウム増殖評価に必要な誤差5%の精度には達しなかった。また、試料の組成比はLi₂TiO₃に一致していることが確認でき、Li/Ti及びO/Tiの測定誤差は、それぞれ、30%及び15%程度であった。誤差の原因は、主に複合核弾性散乱断面データの精度であり、より信頼性の高い断面データが求められれば、RBSがトリチウム増殖材料の高精度分析手法の一つとして、十分適用できることがわかった。

本研究は神戸大学との協力研究のもと実施された
那珂核融合研究所(駐在): 〒319-0193 茨城県那珂市向山 801-1
※ 博士研究員
* 神戸大学

Quantitative Analysis on the Surface of Lithium-6 Enriched Lithium Titanate using Proton RBS
(Cooperative Research)

Naoyoshi KUBOTA[※], Yoshio FUJIWARA*, Kazutaka OKUMURA*, Kentaro OCHIAI,
Akira KITAMURA*, Yuichi FURUYAMA*, Akira TANIIKE* and Takeo NISHITANI

Division of Fusion Energy Technology
Fusion Research and Development Directorate
Japan Atomic Energy Agency
Naka-shi, Ibaraki-ken

(Received January 31, 2006)

Surface analysis of lithium-6 (⁶Li) was performed for both 95% and 40% ⁶Li-enriched lithium titanate (Li₂TiO₃) samples as the candidate tritium breeding material using 2.6 MeV-proton Rutherford Backscattering Spectroscopy (RBS). The depth resolution of this method was enough to measure the ⁶Li depth profile in terms of the evaluation of thermal neutron transportation. The atomic density of ⁶Li could be measured within the error of 27 % for both samples although the accuracy of 5 % was not achieved for the evaluation of tritium breeding. It was confirmed that the sample atomic compositions agreed with Li₂TiO₃ within errors of 30 % for Li / Ti and 15 % for O / Ti. The whole errors were caused by the data accuracy of scattering cross sections predominately. Providing more accurate cross section data can lead to the utilization of the RBS method for tritium breeding materials analysis.

Keywords: Rutherford Backscattering Spectroscopy, Non-Rutherford Scattering Cross Section, Tritium Breeding Materials, Ion Beam Analysis.

This research was conducted as a cooperative research with Kobe University.

※ Post-Doctoral Fellow

* Kobe University

目 次

1. はじめに	1
2. ラザフォード後方散乱分光法の分析原理	1
3. 実験方法	3
3.1. RBS 分析条件の決定	3
3.2. 実験体系	4
4. 標準試料の分析	5
4.1. Ti 及び TiO ₂ 試料の RBS 分析	5
4.2. ⁷ LiOH 試料の RBS 分析	5
5. Li ₂ TiO ₃ 試料の組成分析	6
6. まとめ	7
参考文献	8

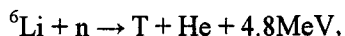
Contents

1. Introduction	1
2. Principle of Rutherford Backscattering Spectroscopy	1
3. Experimental Procedure	3
3.1 Estimation of RBS Analysis Condition	3
3.2 Experimental Setup	4
4. Standard Sample Analysis	5
4.1 RBS Analysis of Ti and TiO ₂ Samples	5
4.2 RBS Analysis of ⁷ LiOH Sample	5
5. Atomic Composition Analysis of Li ₂ TiO ₃ Sample	6
6. Conclusion	7
References	8

This is a blank page.

1. はじめに

D + T → n + He 反応を利用する DT プラズマ核融合炉では、燃料であるトリチウムの増殖を行う必要があるため、ブランケット材料の一部にリチウム化合物を用いる。リチウムによるトリチウム生成核反応を以下に示す。



両反応を比較すると、リチウム 6 (${}^6\text{Li}$) 反応は熱中性子領域で核反応断面積が大きくなるのに対して、リチウム 7 (${}^7\text{Li}$) 反応は高速中性子領域でしか起こらず、断面積も ${}^6\text{Li}$ 反応の方が 3 桁以上大きい。よって、現在の水冷却型固体増殖ブランケット設計では、数 10% 程度まで ${}^6\text{Li}$ 濃度を濃縮したリチウム化合物の使用が考えられている。 ${}^6\text{Li}$ 反応を利用する設計では熱中性子輸送評価が重要となる。熱中性子の平均自由行程は 1mm 以下であることを考えると、増殖ブランケット材の表面状態、特に表面近傍の原子密度を正確に知る必要がある。トリチウム増殖評価の観点から、その測定には誤差 5% 以内の精度が要求される。

材料表面近傍の原子密度分布を測定する方法の一つとして有用なのは、ラザフォード後方散乱分光法 (RBS : Rutherford Backscattering Spectrometry), 弾性反跳粒子検出法 (ERDA : Elastic Recoil Detection Analysis), 核反応分析法 (NRA : Nuclear Reaction Analysis) 等のイオンビーム分析法である。これらは、原子密度分布の絶対測定が可能であり、同位体も含めたあらゆる元素を測定することができる。一般に、リチウムのような軽元素分析には ERDA が適用されるが、反跳 ${}^6\text{Li}$ と ${}^7\text{Li}$ のエネルギー分離が困難であり、分析精度が悪い¹⁾。また、NRA は、例えばリチウム同位体のみの分析といったように、分析対象を限定した場合には非常に有用な方法であるが、核融合炉材料分析のような多元素同時測定を目的とする場合には適さない。一方、RBS は多元素同時測定が可能であり、一般にスペクトル解析を考えると中重元素の分析に適しているが、複合核弾性散乱の寄与が大きくなる場合は軽元素分析も可能である。

本研究では RBS を用いて、トリチウム増殖候補材の一つである ${}^6\text{Li}$ 濃縮チタン酸リチウム (Li_2TiO_3) の実機材料表面近傍を分析し、Li 含有化合物試料に対する RBS 分析の精度と問題点を明らかにすることを目的とした。

2. ラザフォード後方散乱分光法の分析原理

ラザフォード後方散乱分光法は、主に MeV 程度のイオンビームを試料に照射し、弾性散乱された粒子のエネルギーとその収量から試料中の元素深さ分布を得る方法である^{2,4)}。

入射粒子を a 、標的粒子を B とし、 $B(a,a)B$ 散乱を利用した RBS 分析原理図を図 1 に示す。入射粒子 a はエネルギー E_0 、入射角 θ_0 で試料へ入射する。そして、試料深さ x 、すなわち表面から距離 $d = x/\cos\theta_0$ まで進む間に $dE_1(x)$ だけエネルギーを失い、次式で表されるエネルギー $E_1(x)$ で標的粒子 B と衝突する。

$$E_1 = E_0 - dE_1(x). \quad (1)$$

この時のエネルギー損失 $dE_1(x)$ は、入射粒子 a に対する試料母材の阻止能 $(-dE/dx)_a$ を用いて、

$$dE_1(x) = \int_0^{x/\cos\theta_0} \left(-\frac{dE}{dx} \right)_a dx, \quad (2)$$

と表される。衝突した入射粒子 a のうち、散乱角 θ に設置した検出器で測定される散乱粒子 a の検出エネルギー E_d は、

$$E_d = E_s(E_1(x), \theta) - dE_2(x). \quad (3)$$

ここで、 E_s は粒子 a の散乱直後のエネルギーであり、運動学的に、

$$E_s = K_s E_1(x) \quad (4)$$

と決定される。ここで、 K_s は、

$$K_s = \frac{E_2}{E_1} = \left\{ \frac{M_1 \cos\theta + (M_2^2 - M_1^2 \sin^2\theta)^{1/2}}{M_1 + M_2} \right\}^2 \quad (M_1 < M_2) \quad (5)$$

とあらわされる粒子質量と散乱角にのみ依存する量である。ここで、 M_1 は入射粒子の質量、 M_2 は標的要素の質量、そして θ は散乱角である。また、 dE_2 は散乱粒子 a が試料内を通過して表面に達するまでの間に失うエネルギーであり、(2)式と同様、散乱粒子 a に対する試料母材の阻止能 $(-dE/dx)_a$ を用いて次式で表される。

$$dE_2(x) = \int_0^{x/\sin(\theta-\phi)} \left(-\frac{dE}{dx} \right)_a dx. \quad (6)$$

ただし、 $\phi \equiv \pi/2 - \theta$ である。なお、本研究では(2)及び(6)式における阻止能の計算に、Ziegler の経験式を用いた⁵⁾。

一方、深さ x と $x+dx$ の間で散乱された粒子のうち、微小な検出器立体角 $d\Omega$ 内に放出される収量 dY は以下の式で表される。

$$dY = Q \frac{d\sigma_s(E_1(x))}{d\Omega} N \frac{dx}{\cos\theta_0} d\Omega. \quad (7)$$

ここで、 Q は入射粒子数、 N は標的粒子密度である。 $d\sigma_s(E_1(x))/d\Omega$ は微分散乱断面積であり、基本的に実験室系でのラザフォード散乱断面積、

$$\frac{d\sigma_s(E_1(x))}{d\Omega} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E_1(x)} \right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left[\sqrt{1 - \{(M_1/M_2)\sin\theta\}^2} + \cos\theta \right]^2}{\sqrt{1 - \{(M_1/M_2)\sin\theta\}^2}}, \quad (8)$$

が適用できる。以上のように、(2)式から深さは求められるので、(7)式の未知数は N ただ一つとなり、ある深さにおける密度を求める事ができる。ただし、次節で述べるように、核反応が寄与するようなエネルギー領域では、(8)式からのずれが生じてくるために散乱断面積の実測値が必要である。

表面から分析限界深さまで同様に計算を行えば、原理的には正確な深さ分布を得ることができる。しかし、実際には分析体系の幾何学的な広がり、検出器固有のエネルギー分解能や荷電粒子エネルギーのストラグリング等によって深さ分解能が有限な大きさを持つため、得られた深さ分布は近似的な分布となる。

3. 実験方法

3.1. RBS 分析条件の決定

RBS は散乱粒子を測定するため、比較的解析が容易である半面、 Li_2TiO_3 中の Li 分析のように、複数の元素からなる厚い試料中の軽元素分析は原理的に困難である。前節の(5)式に示したように、散乱粒子の運動エネルギーは標的粒子質量に対して増加関数となる。これは、重い元素の深部からの散乱スペクトルが、より軽い元素の散乱スペクトルに表面成分から重畳することを意味する。さらに、ラザフォード散乱断面積は原子番号 Z の 2 乗に比例するため、相対的に軽元素の散乱スペクトルは収量が少なく、重い元素のスペクトルに覆い隠されてしまう。

しかし、軽元素の場合、数 MeV の入射エネルギー領域では核反応チャンネルが開き始め、複合核弾性散乱の寄与により、後方では全弾性散乱断面積が大きくなる。陽子(p)ビームに対する ${}^6\text{Li}$ や ${}^7\text{Li}$ 標的の、後方で ${}^6\text{Li}(p,p){}^6\text{Li}$ 及び ${}^7\text{Li}(p,p){}^7\text{Li}$ 散乱断面積は、ラザフォード散乱断面積より数 10 倍大きくなり、中重元素のラザフォード散乱断面積と同程度になる。 ${}^6\text{Li}(p,p){}^6\text{Li}$ 、 ${}^7\text{Li}(p,p){}^7\text{Li}$ 、 ${}^{16}\text{O}(p,p){}^{16}\text{O}$ 及び ${}^{48}\text{Ti}(p,p){}^{48}\text{Ti}$ に対する非ラザフォード因子(散乱断面積とラザフォード断面積との

比)を図2に示す⁶⁾。例えば、2.6 MeV付近の非ラザフォード因子は⁴⁸Tiが1であるのに対して、⁶Li、⁷Li及び¹⁶Oは、それぞれ、13、38及び6程度である。よって、Li₂TiO₃の組成比も考えると、各元素からの散乱スペクトル収量は同程度になることが予想され、Li₂TiO₃試料のRBS分析は収量の点では十分可能である。

各元素からの収量が十分であれば、Li₂TiO₃の散乱スペクトルは、以下に示すような手順で⁶Li、⁷Li、O及びTiの成分に分離することが可能となる。すなわち、各元素について原子密度が一樣の標準試料を分析し、実験的に散乱スペクトルの成分分離を行う。Li₂TiO₃試料に対する散乱スペクトルの各成分スペクトルへの分離手順を図3に示す。まず、Ti試料に対する散乱スペクトルを測定する。次に、Oの散乱スペクトルを分離するために、酸化チタン(TiO₂)試料分析で得られた散乱スペクトルからTi試料の散乱スペクトルを差し引く。さらに、このOの散乱スペクトルを使って、同様に、⁷LiOH試料の散乱スペクトルから⁷Liの散乱スペクトルを分離する。⁶Liの散乱スペクトルは、Li₂TiO₃散乱スペクトルからこれら全て(Ti、O、⁷Li)の散乱スペクトルを使って分離することができる。

また、データ解析上、散乱断面積の鋭い共鳴領域を避けることが望ましい。図2より、O(p,p)Oは2.660 MeVの周りに鋭い共鳴をもつ。よって、実験では陽子の入射エネルギーを2.6 MeVに設定した。

スペクトルから密度分布を計算するには、RBS/ERDA/NRA統合分析プログラム TranScatを用いた。TranScatでは、文献(6)の非Rutherford因子 σ/σ_R を用いている。

3.2. 実験体系

図4に実験体系を示す。実験には神戸大学海事科学部附属の1.7 MV タンデム・バンデグラーフ型静電加速器(PELLETRON 5SDH-2, 米国 NEC 社製)を使用した。加速器本体で2.6 MeVまで加速され、M30 ビームラインに導かれた陽子は、分析用真空容器へ入射する前に $\phi 0.5$ mmのアーチャーにより絞られ、試料へ入射角75°で入射する。試料からの散乱粒子は、検出角165°に設置した立体角 0.87×10^{-3} srのシリコン表面障壁型検出器(SSD)で検出される。SSDからの出力信号は前置増幅器、主増幅器で増幅され、多重波高分析器(MCA)で計測した。試料への入射陽子数は、ビーム電流値から求めた。試料から放出される二次電子は、試料の周りに設置した二次電子吸収管で回収した。また、アーチャーに+100 Vのバイアスを印加し、アーチャーからの二次電子の試料への入射を防いだ。

分析を行ったLi₂TiO₃試料(密度: 1.590×10^{28} /m³)は、95%⁶Li濃縮Li₂TiO₃試料(95LT)及び40%⁶Li濃縮Li₂TiO₃試料(40LT)である。両試料ともに粉末を圧縮固化したものであり、形状は直径12 mm、厚さ30 mmの円柱である。

また、標準試料としてTi、TiO₂及び⁷LiOHの分析も行った。Ti(天然存在比⁴⁶Ti: 8.25%, ⁴⁷Ti: 7.44%, ⁴⁸Ti: 74.72%, ⁴⁹Ti: 5.41%, ⁵⁰Ti: 5.18%)は純度99.5%の板である。また、TiO₂試料には粉末のルチルTiO₂(Oの天然存在比¹⁶O: 99.76%, ¹⁷O: 0.04%, ¹⁸O: 0.2%)を用いた。TiO₂粉末をAl製の試料ホルダーのくぼみ($\phi 8$ mm × 深さ1 mm)へ詰め込み、乳棒で押し固めて試料とした。⁷LiOH試料も、粉末状のものをTiO₂試料と同様に押し固めて試料とした。⁷LiOH粉末は、

純度 99.9 % 固体 ${}^7\text{Li}$ (天然存在比 ${}^7\text{Li}$: 92.41, ${}^6\text{Li}$: 7.59) を Ar 雰囲気中で水蒸気にさらして酸化させ、それらを乳鉢ですりつぶして作製した。

4 標準試料の分析

4.1. Ti 及び TiO_2 試料の RBS 分析

Ti 単独及び O 単独の散乱スペクトルを得るために、Ti 及び TiO_2 試料の RBS 分析を行った。これらの試料から得られた散乱スペクトルを図 5(a)及び(b)に示す。図 5(a)において、2.36 MeV 付近のスペクトルエッジが表面に対応し、エネルギーが低くなるにしたがって、より深部からの散乱に対応する。なお、散乱スペクトルが表面エッジを中心に ± 0.10 MeV 程度広がっているのは、分析体系が有限のエネルギー分解能を持つためであり、深さ分布を求める時の深さ分解能に対応する。なお、Ti 同位体質量の違いに散乱エネルギーの広がり最大で 9 keV と、エネルギー分解能に比べて十分小さく、収量も同位体比を考えると少ないため無視した。図 5(b)では、2.4 MeV から Ti 散乱スペクトルに加えて、2.03 MeV に表面エッジをもつ O の散乱スペクトルが観測されている。同様に、O 同位体による散乱エネルギーの広がり最大で 56 keV となるが、同位体比を考えると収量は十分少ないため無視した。O 散乱スペクトルの分離には、 TiO_2 散乱スペクトルの Ti 表面エッジに一致するように Ti 散乱スペクトルの収量を規格化し、差し引きを行った。このスペクトルの統計誤差は 2 % 程度であるが、この操作により 5 % 程度の誤差となる。

4.2. ${}^7\text{LiOH}$ 試料の RBS 分析

${}^7\text{Li}$ 単独の散乱スペクトルを得るために、 ${}^7\text{LiOH}$ 試料の RBS 分析を行った。 ${}^7\text{LiOH}$ 試料の散乱スペクトルを図 6 に示す。2.03 MeV が O の表面エッジであり、1.48 MeV が ${}^7\text{Li}$ の表面エッジである。これらに加えて、1.51~1.88 MeV にもスペクトルが観測されている。この原因として、(a) 表面から 4 μm 以上の深さにわたって ${}^{12}\text{C}$ が存在する、(b) 1 μm 以上の深さに窒素 N が存在する、(c) 酸素の分布が実際そのようになっている、などが考えられる。

(b)の場合、散乱エネルギーから計算すると、表面から 1 μm まで N が全く存在しないということと同時に仮定せねばならず、考えにくい。また、(c)の場合は、散乱エネルギーとスペクトル収量から、 LiOH の阻止能を支配する元素が他ならぬ O 自身であることを考えると、母材が非常に大きな x をもった Li_xOH 化合物を仮定しなければならず、同様に考えにくい。さらに、 LiOH をバルクとして約 6 μm の Li_2O 層が表面側に存在しているという可能性もあるが、予想される収量の不連続(1.15 倍)が、観測されている 1.33 倍と一致しないこと、及び LiOH の方が化学的に安定であることから考えにくい。従って、最も可能性が高いのは(a)であり、この場合、炭素を含む層の厚さは 10 μm 以上となる。

${}^{12}\text{C}$ が試料に存在する原因としてまず考えられることは、ビーム照射によって誘起された炭素堆積であるが、現在までに観測されている堆積率に比して桁違いに大きい堆積率を仮定せねばな

らず、現実的ではない。測定された散乱スペクトルの O:C: ^7Li 収量比 9:3:7 から試料の組成比を計算すると Li_2CO_3 に近く、試料は作製過程で Li_2CO_3 になった可能性が考えられる。したがって、新たにグラファイト試料を分析して、同様に、C 散乱スペクトルの分離を行い、 ^7Li の散乱スペクトルを分離した。なお、得られた ^7Li 単独の散乱スペクトルを用いて表面付近の深さ分布を求め、その妥当性は確認した。

5 Li_2TiO_3 試料の組成分析

40LT 試料の RBS 分析で得られた典型的なエネルギースペクトルを図 7(a)に示す。Ti, O, ^7Li 及び ^6Li スペクトルの表面エッジが、それぞれ、2.37 MeV, 2.06 MeV, 1.48 MeV 及び 1.33 MeV に観測されている。なお、1.91~1.60 MeV 付近に見られる散乱スペクトルは、収量から、上述したビーム照射による堆積炭素からの ^{12}C 散乱スペクトルと考えられる。このエネルギースペクトルを、標準試料から得られた結果を用いて、それぞれの散乱スペクトル成分に分離した結果を図 7(b)に示す。

これらを用いて、原子密度深さ分布を計算した結果を図 8 に示す。(7)式において使用した微分散乱断面積の文献値のうち、 $^{16}\text{O}(\text{p,p})^{16}\text{O}$ 及び $^{48}\text{Ti}(\text{p,p})^{48}\text{Ti}$ については 165° の断面積データがなく、検出角度(実験室系)が、それぞれ、異なった角度の 170° 及び 160° の値を用いている。理論的な補正は不可能ではないが、そもそも、両者ともに文献間の違いが最大 30%程度もあるため、解析にはこれらの値をそのまま用いた。また、表面付近の分布の広がり、前述したエネルギー分解能に起因する広がりであって、実際の分布ではない。まず、表面付近の各分布の広がりから深さ分解能を評価すると、Ti, O, ^7Li 及び ^6Li に対して、それぞれ、0.57, 0.27, 0.17 及び $0.25\mu\text{m}$ となった。よって、熱中性子輸送評価に対して、十分な深さ分解能で母材の密度分布を測定する事ができている。

各元素は、すべて表面からほぼ一様に分布していた。 Li_2TiO_3 試料中の公称密度は、Ti: $1.19 \times 10^{28} / \text{m}^3$, O: $4.76 \times 10^{28} / \text{m}^3$, ^7Li : $1.91 \times 10^{28} / \text{m}^3$ 及び ^6Li : $1.27 \times 10^{28} / \text{m}^3$ である。Ti, O, ^7Li 及び ^6Li 平均原子密度はそれぞれ、 $1.28 \pm 0.16 (\times 10^{28} / \text{m}^3)$, $4.40 \pm 0.39 (\times 10^{28} / \text{m}^3)$, $1.35 \pm 0.33 (\times 10^{28} / \text{m}^3)$ 及び $1.09 \pm 0.29 (\times 10^{28} / \text{m}^3)$ であり、Li に関しては公称密度より低い結果を得た。また、原子密度比は、散乱スペクトルの立ち上がり部分に相当するため単純に比較できない領域を除いた、 $0.5 \sim 1.5 \mu\text{m}$ の領域で求めた。それらは、 $^6\text{Li} / (^6\text{Li} + ^7\text{Li})$ が平均 0.45 ± 0.16 , $(^6\text{Li} + ^7\text{Li}) / \text{Ti}$ が平均 1.86 ± 0.72 , O / Ti が平均 3.32 ± 0.51 であった。組成比はいずれも公称値と誤差の範囲内で一致していることから、分析を行った表面領域では ^7Li の密度が実際に低く、 ^6Li の割合も高くなっていると考えられる。O / Ti については、化学量論的組成比の 3.0 よりも 10 % 大きいことから、大気中の水分を取り込むことで O の原子密度が増加した可能性がある。

同様に、95LT 試料の原子密度深さ分布を図 9 に示す。各元素とも表面から一様に分布していた。試料中の Ti, O 及び ^6Li 平均原子密度はそれぞれ、 $1.37 \pm 0.17 (\times 10^{28} / \text{m}^3)$, $4.47 \pm 0.40 (\times 10^{28} / \text{m}^3)$, $2.42 \pm 0.57 (\times 10^{28} / \text{m}^3)$ であり、公称密度と誤差の範囲内で一致していた。なお、Li 中の含有率が 5 %

と少ないため、 ${}^7\text{Li}$ は確認できなかった。したがって、スペクトルから計算された ${}^6\text{Li}$ の深さ分布には分離できなかった ${}^7\text{Li}$ の寄与も含んでいるが、公称密度と断面積の積を考慮し、深さ分布に 0.85 倍の補正を行っている。また、 $0.5\sim 2.0\ \mu\text{m}$ の領域において、平均原子密度比は ${}^6\text{Li}/\text{Ti}$ が 1.77 ± 0.47 、 O/Ti が 3.26 ± 0.51 であり、公称値と誤差の範囲内で一致していた。

6 まとめ

トリチウム増殖候補材の一つである ${}^6\text{Li}$ 濃縮チタン酸リチウム(Li_2TiO_3)の 95% ${}^6\text{Li}$ 濃縮(95LT)及び 40% ${}^6\text{Li}$ 濃縮(40LT)試料表面近傍の RBS 分析を行った。両試料とも熱中性子輸送を評価する上で十分な深さ分解能をもって、深さ $2.0\ \mu\text{m}$ までの領域を分析することができた。また、分析の結果、試料の組成比が誤差の範囲内で Li_2TiO_3 に一致していることを確認し、組成比 Li/Ti 及び O/Ti の誤差は、それぞれ 30 %及び 15 %程度であった。 ${}^6\text{Li}$ 密度は、95LT 及び 40LT 試料とも誤差 27 %の精度で測定する事ができたが、目的である誤差 5%の精度には達しなかった。誤差の原因は、主に散乱断面積の精度であり、より信頼性の高い断面積が求められれば、RBS がトリチウム増殖材料の高精度分析手法の一つとして、十分適用できることがわかった。イオンビーム関連の核データは材料分析のみならず、核燃焼プラズマ計測にも有用であり、より一層の充実が望まれる。

参 考 文 献

- (1) 土肥正二郎：“核融合材としての種々のリチウム化合物の組成分析”，神戸商船大学修士論文 (2004)。
- (2) W. K. Chu, J. W. Mayer, et al. : “Principles and applications of ion beam techniques for the analysis of solids and thin films”, *Thin Solid Films* 17, 1 (1973).
- (3) Y. Itoh, T. Maeda, et al. : “Simulation of RBS spectra for a surface with a periodic roughness”, *Nucl. Instrm. & Meth. B117*, 161 (1996).
- (4) N. Kubota, A. Taniike, et al. : “RBS analysis of deuterium distribution with coincidence detection of recoil particles”, *Nucl. Instrm. & Meth. B149*, 469 (1999).
- (5) J. F. Ziegler, et.al. : “Stopping Powers and Ranges in All Elements Vol.3 Hydrogen”, Pergamon Press, New York, pp. 5(1977).
- (6) Joseph R. Tesmer *et al.* : “Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis”, MATERIALS RESEARCH SOCIETY, Pittsburgh, Pennsylvania, pp. 481-508(1995).

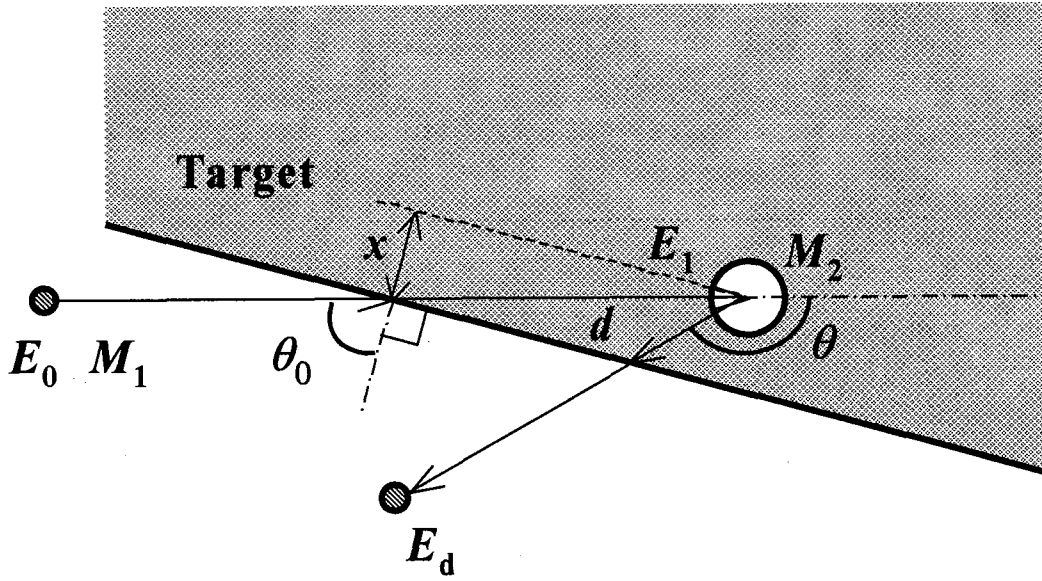


図 1. RBS 原理図

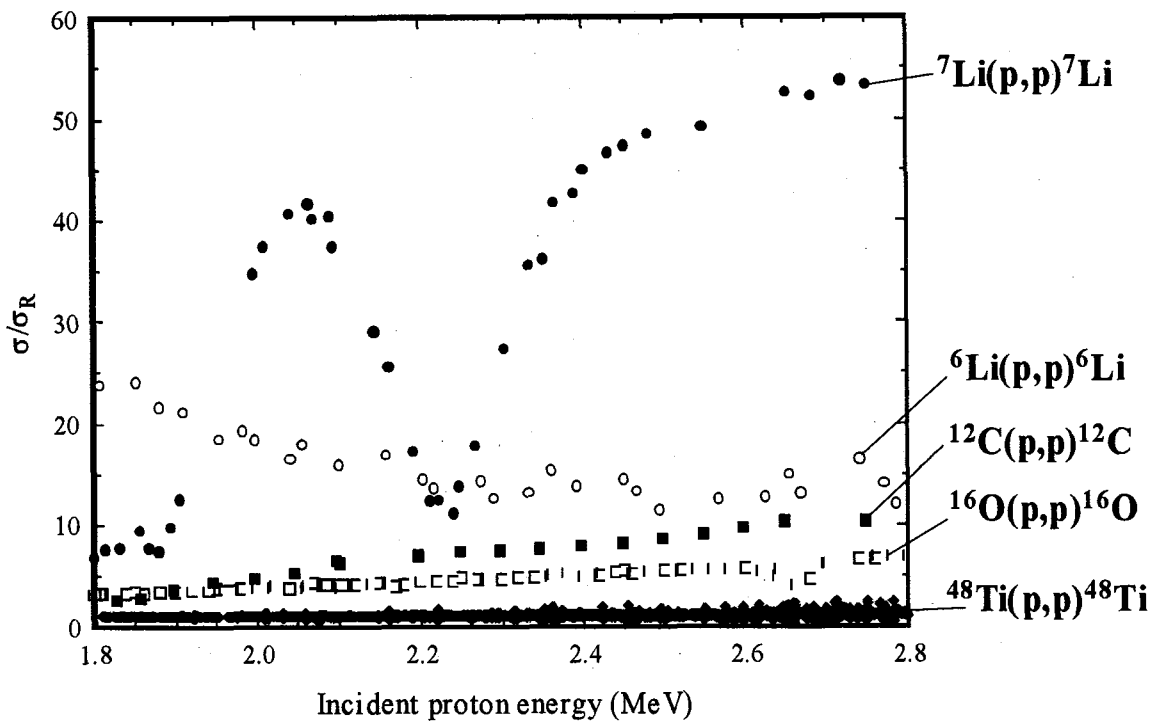


図 2. Li_2TiO_3 試料分析に使用する各元素の非ラザフォード因子

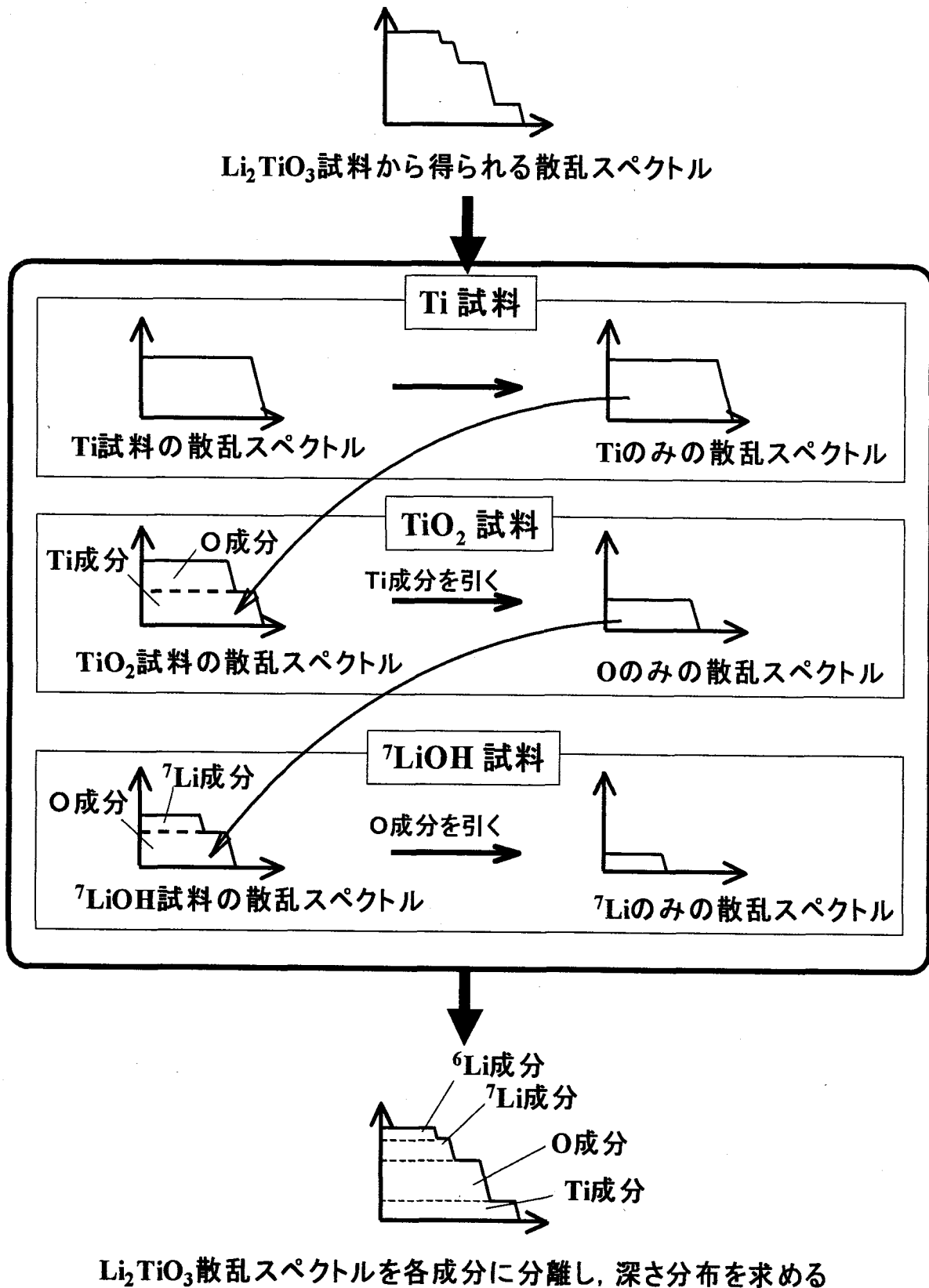


図3. データ処理手順

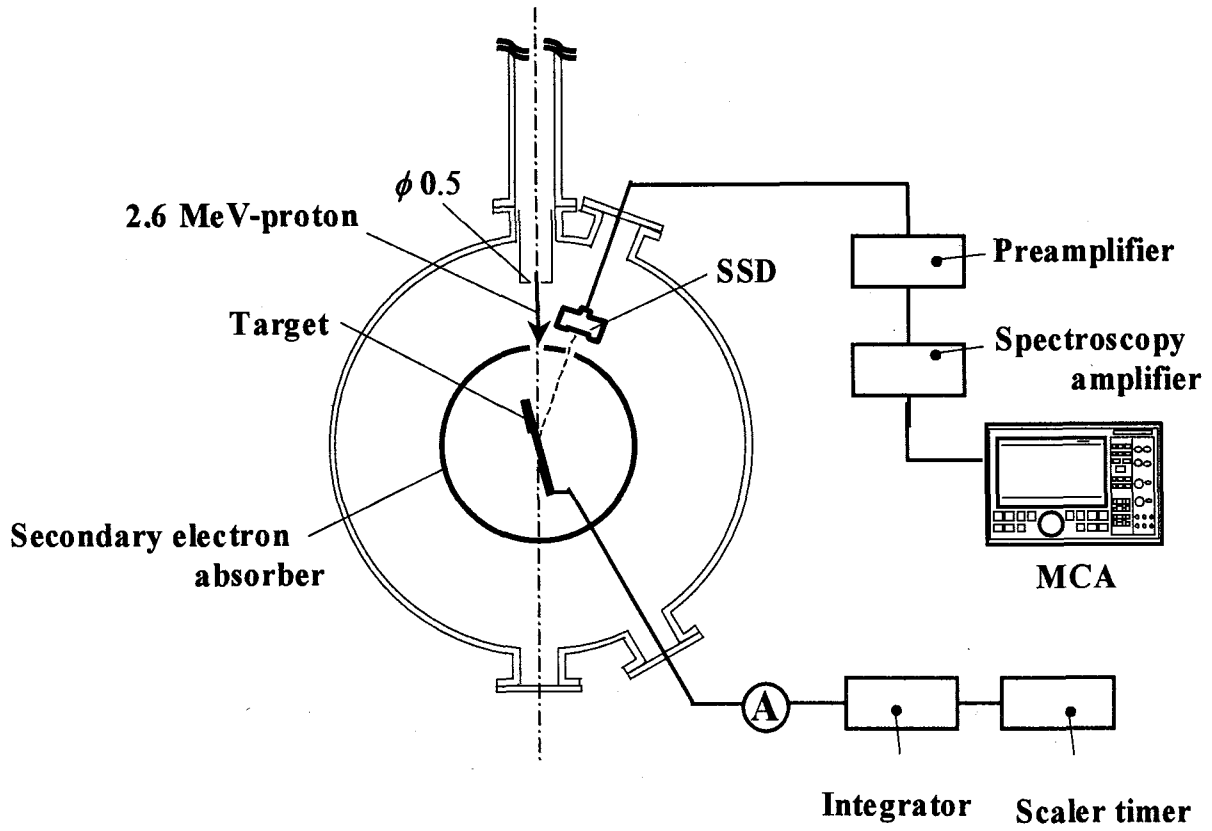


図 4. RBS 分析実験体系

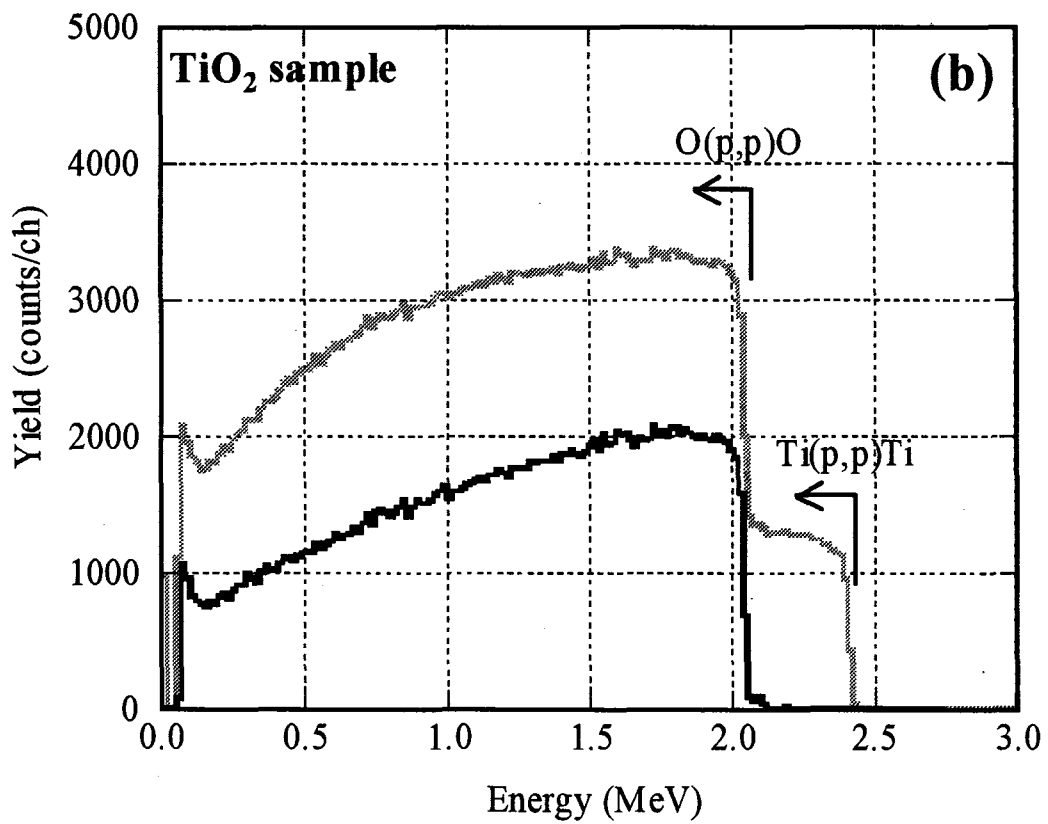
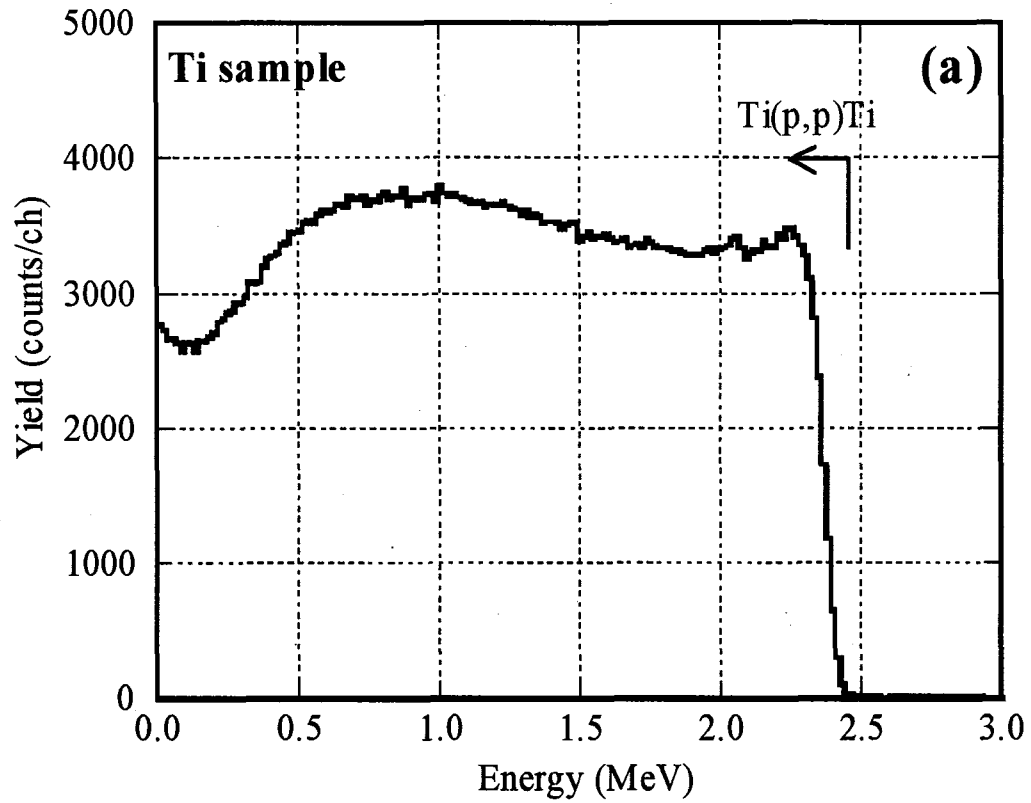


図5. O スペクトル分離のための (a) Ti 試料, および(b) TiO₂ 試料の RBS スペクトル

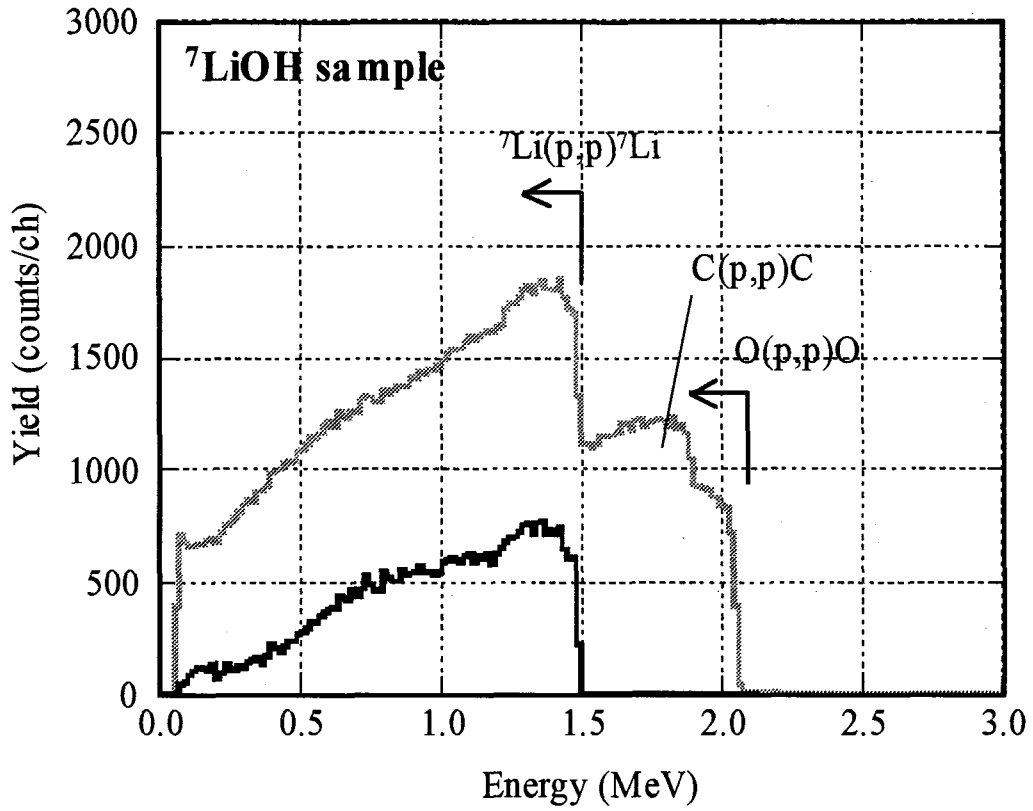


図 6. ${}^7\text{LiOH}$ 試料の RBS スペクトルから ${}^7\text{Li}$ スペクトルの分離

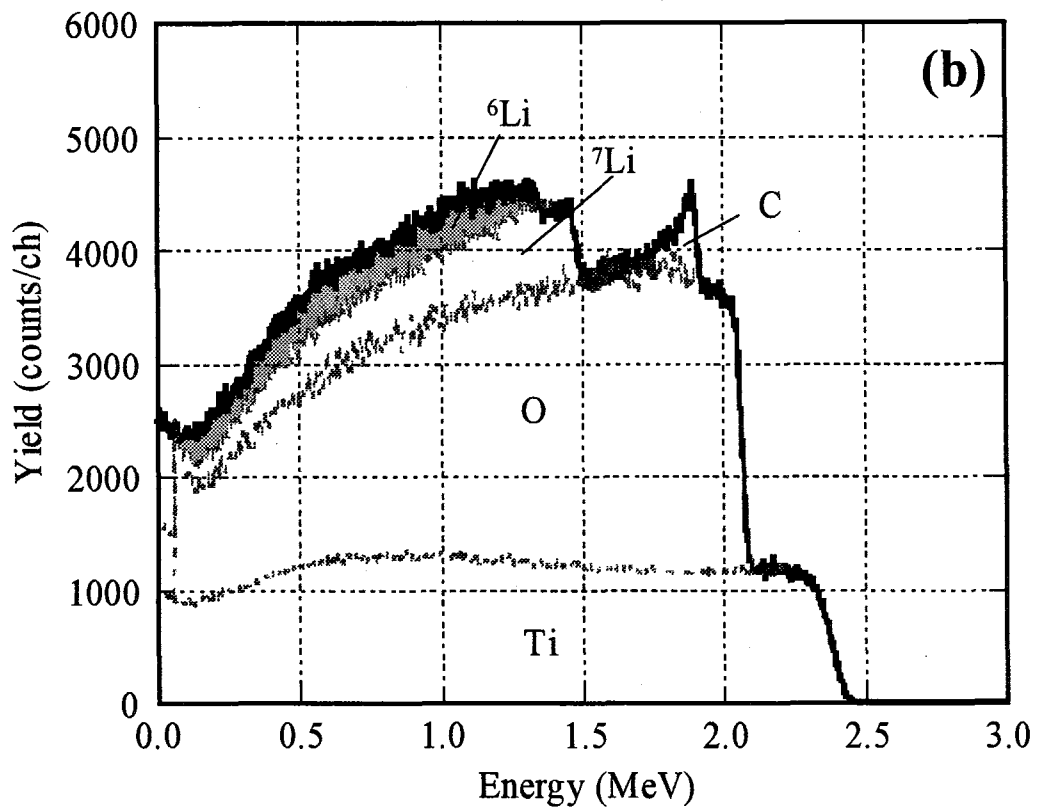
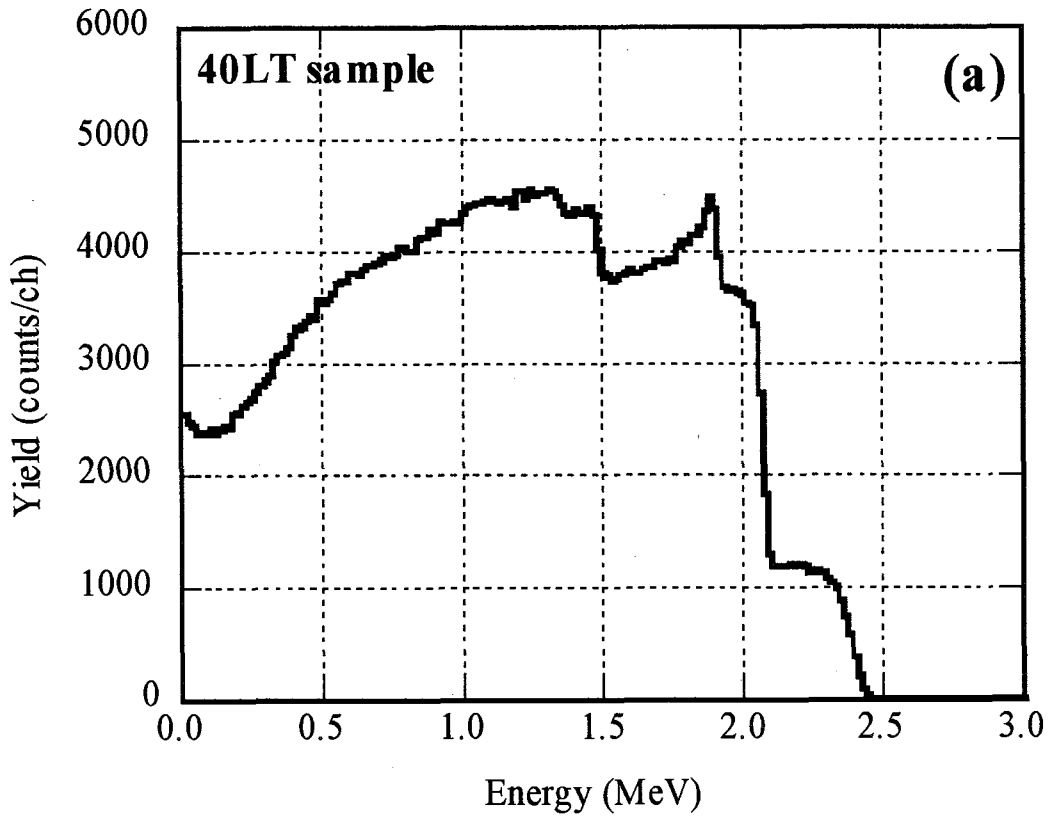


図 7. 40LT 試料の RBS 分析で得られた(a)エネルギースペクトル, および(b)その分離

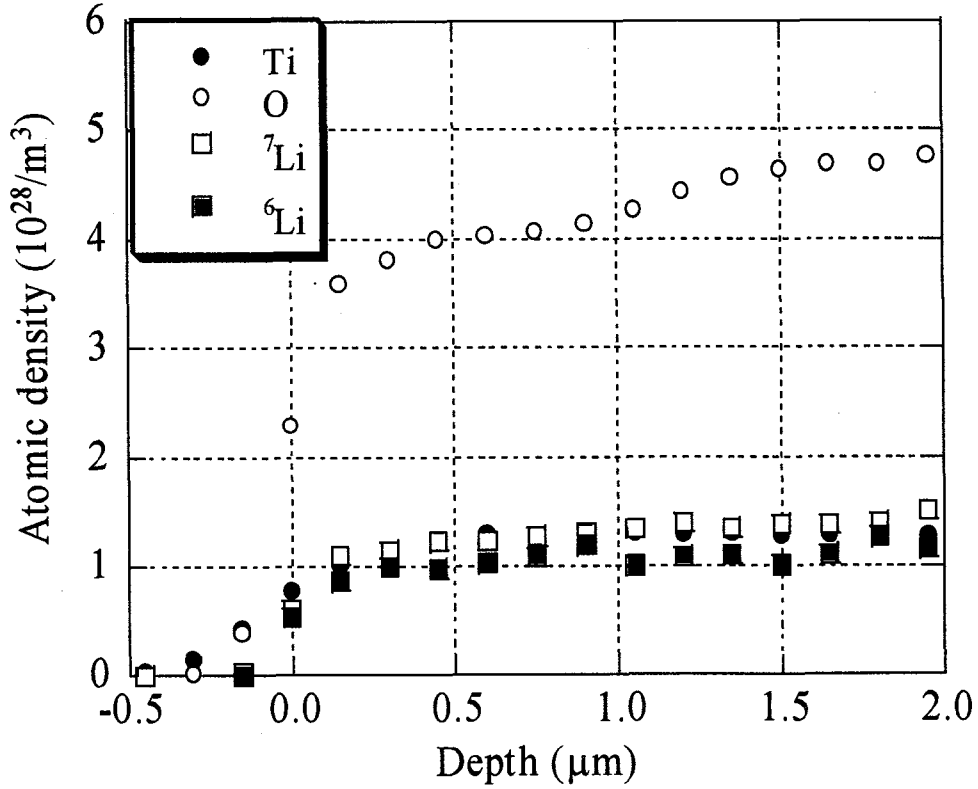


図 8. 40LT 試料の元素密度の深さ分布

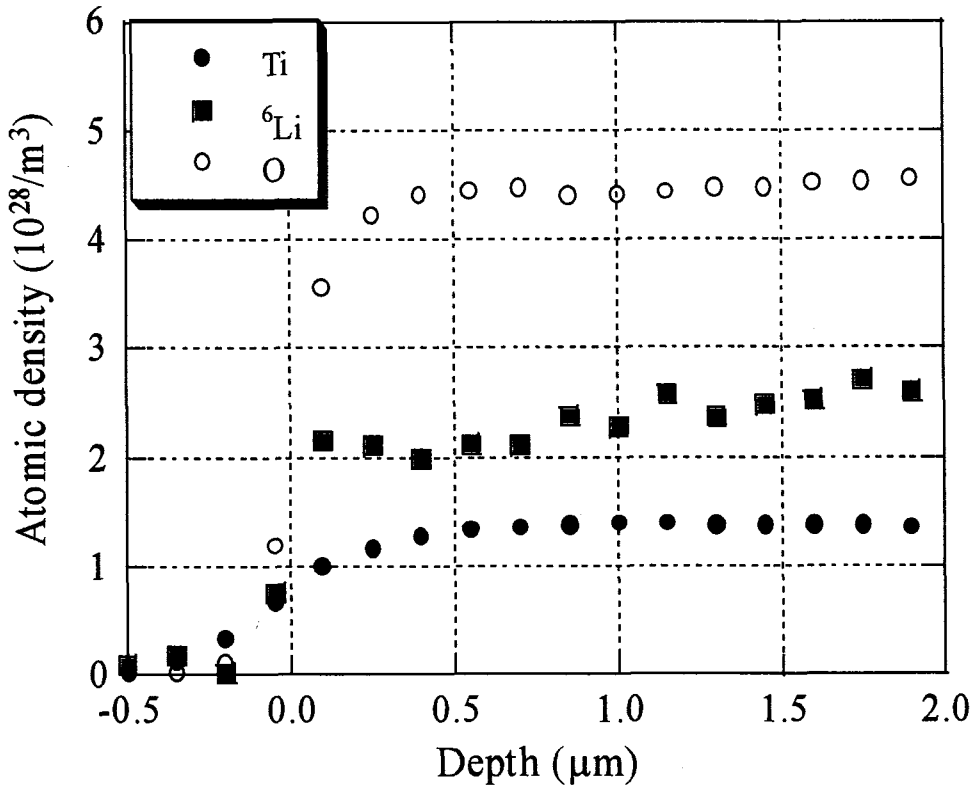


図 9. 95LT 試料の元素密度の深さ分布