

JAERI-M

5 5 6 7

“重イオンによる原子力の研究”
に関する研究会報告

1974年3月

(編集者代表) 原 田 吉之助

日 本 原 子 力 研 究 所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

“重イオンによる原子力の研究”に関する研究会報告

日本原子力研究所東海研究所物理部

編集者代表 原 田 吉之助

(1974年1月24日受理)

“重イオンによる原子力の研究”に関する研究会が1973年10月25日から27日まで原研 東海研究所で開催された。研究会には原研および所外の研究者約150名が参加し、次の3部について討論がなされた。

第1部：重イオン照射損傷，チャネリング，イオンインプランテーション，重イオン放射線化学，
重イオン原子物理

第2部：大型重イオン静電加速器，重イオン源，荷電変換，ビーム利用技術

第3部：重・超重元素の核特性，重・超重元素の化学，重イオンによるRI生成

本報告書は第1，第2，第3部において発表された総合報告，ショート・トーク，コメント52篇をまとめたものである。

研究会世話人

原 田 吉之助，竹 腰 英 子，田 中 茂 也
丸 山 倫 夫，菊 池 武 雄，土 井 健 治
出 井 数 彦，大 野 新 一，上 野 馨
馬 場 宏，長 崎 隆 吉，天 野 恕

編集者

原 田 吉之助，田 中 茂 也，竹 腰 英 子
丸 山 倫 夫，菊 池 武 雄，大 野 新 一
上 野 馨，馬 場 宏

Proceedings of Meeting on Atomic Energy Research with Heavy Ions

Editor in Chief: Kichinosuke HARADA
Division of Physics, Tokai, JAERI
(Received January 24, 1974)

A meeting on Atomic Energy Research with Heavy Ions was held at the Tokai Research Establishment of the JAERI during three days, October 25, 26 and 27, 1973.

In the meeting, about one hundred fifty researchers of JAERI and other institutes participated, and following three parts were held.

- Part I : Irradiation Damage with Heavy Ions, Channeling, Ion Implantation, Radiation Chemistry with Heavy Ions and Atomic Physics with Heavy Ions.
- Part II : Large Heavy-Ions Electrostatic Accelerator, Heavy Ion Source, Charge Exchange Process and Technique on Beam Utilization.
- Part III: Nuclear Properties of Heavy and Super-Heavy Elements, Chemistry of Heavy and Super-Heavy Elements and Production of Radioisotopes with Heavy Ions.

This report is a collection of 52 papers of review talks, short talks and comments, which are presented in the Parts I, II and III.

Organizing Committee

Kichinosuke Harada, Eiko Takekoshi, Shigeya Tanaka,
Michio Maruyama, Takeo Kikuchi, Kenji Doi,
Kazuhiko Izui, Shin-ichi Ohno, Kaoru Ueno,
Hiroshi Baba, Ryokichi Nagasaki and Hiroshi Amano

Editors

Kichinosuke Harada, Shigeya Tanaka, Eiko Takekoshi,
Michio Maruyama, Takeo Kikuchi, Shin-ichi Ohno,
Kaoru Ueno, Hiroshi Baba

ま え が き

日本原子力研究所物理部長 塚 田 甲子男

原子力開発の要請に応じて、中性子による原子力工学、核物理、物性物理、放射化学、生物、医学の広範囲にわたる、いわゆる中性子科学はめざましく進展した。最近、中性子に加えて“重イオンによる原子力分野における研究”すなわち、重イオン科学の開発が急に重要視されてきている。この理由は、大きな電荷と質量をもつ種々の重イオンが現在および将来への原子力開発に大きな貢献をすることが明らかにされつつあることに基づいている。

重イオン科学を総合的に効率よく進展させるために、米国、ソビエトをはじめとして西ドイツ、フランス、英国などでは大型重イオン加速器の稼動をスタートし、あるいは建設を進行中である。これらは核子あたり約10MeVをこえる加速重イオンをうる大型器であり、そのエネルギーは物質中に深く浸透して相互作用を起させることが出来、また、種々の原子核の高いクーロン障壁をこえる位に十分大きい。

わが国においても、大型重イオン加速器設置と重イオン科学を積極的に進めようという動きが各地で活発化しつつある現状であり、46年度原子力学会に“重イオン研究専門委員会”が設けられ今後の重イオン科学の進め方の討論がもたれて、これら重イオン科学振興についてのまとめが近日中に原子力学会誌に提示される予定である。また、重イオン科学進展のための大学関係の科学研究費による調査班もスタートしている。このような状況下で、原子力開発に密接した“重イオンによる原子力の研究”に関する研究会が、原子力研究所東海研究所で開催され、その重要性を所内外から参加された各分野の各位と共に議論出来たことは非常に幸であった。特に、従来の学問枠を取除いた学際的研究が必要であることを相互に認識出来たことは大きな成果といえる。すみやかに大型重イオン加速器の設置が原子力研究所にも実現し、原子力開発分野において重イオン科学への貢献が近いことが切望される。

研究会の概要および個々の論文の詳細は以下参照されたい。

研究会が盛会で、みのり多かったことについて、所内外参加者、世話人各位に厚く感謝の意を表します。

本研究会の趣旨と概要

原研核物理第1研究室長 原 田 吉之助

本研究会は、研究会としては内容や参加者の顔ぶれなどの点で新しい型式のものである。基礎から応用にわたる広範な分野の学者、研究者が一堂に会するような研究会は今までには行われなかったと思う。そこで、本研究会を企画した一員として、開催の趣旨およびプログラムの概要について、簡単に述べることにする。

現在、「重イオン科学」の振興が強く叫ばれているが、それは重イオンのもつ優れた特性とその多面的有用性によるものと思われる。重イオンビームは他の放射線にない優れた特性をもつため、理学、工学、生物学、医学など広範な分野の研究を従来の研究手段を用いては到底究明できない領域まで比較的容易に探究できる。また、応用範囲の広いことから境界領域の学問を推進させ、二つ以上の分野の研究者が協同して行ういわゆる学際的研究を促進させるのに役立つ。

このような背景の下に、「重イオン科学」の重要性はしきりに指摘されているが、実際には違った分野の研究者が重イオンによる研究について具体的に問題を提出しあい、討議し、情報と研究手段を交換し研究推進に役立てるような協力研究体制はまだ確立されていない。

「重イオン科学」の推進には、研究設備の充実など重要な課題が残されているが、本研究会は原子力研究に関係する重イオン科学を上 に述べたような体制で実際にスタートさせるのに役立つ目的で企画されたものである。原子力研究においては、重イオンを用いることにより極めて効率よく進められる部分が多く、また基礎および応用の研究の緊密な連繫が強く要求されるからである。

本研究会で討議された項目は、重イオン科学の一部分であるが、それでもかなり広範囲にわたっている。第1図は、重イオン加速器を中心において、研究会で討議された事柄の相関関係を示したものである。重イオン線の幅広い有用性、諸研究の相互関係が一目瞭然にしてわかる。

重イオン研究の根幹をなす重イオンの加速技術はまだ完成されたものでなく、まだまだ開発研究を続けねばならない段階にある。加速器と関連して、重イオン源、荷電変換のセッションを設けた理由もここにある。ビーム利用技術についても、重イオンの特有性にもとづく技術開発を必要とするのでこの方面の講演も数人の方に依頼した。

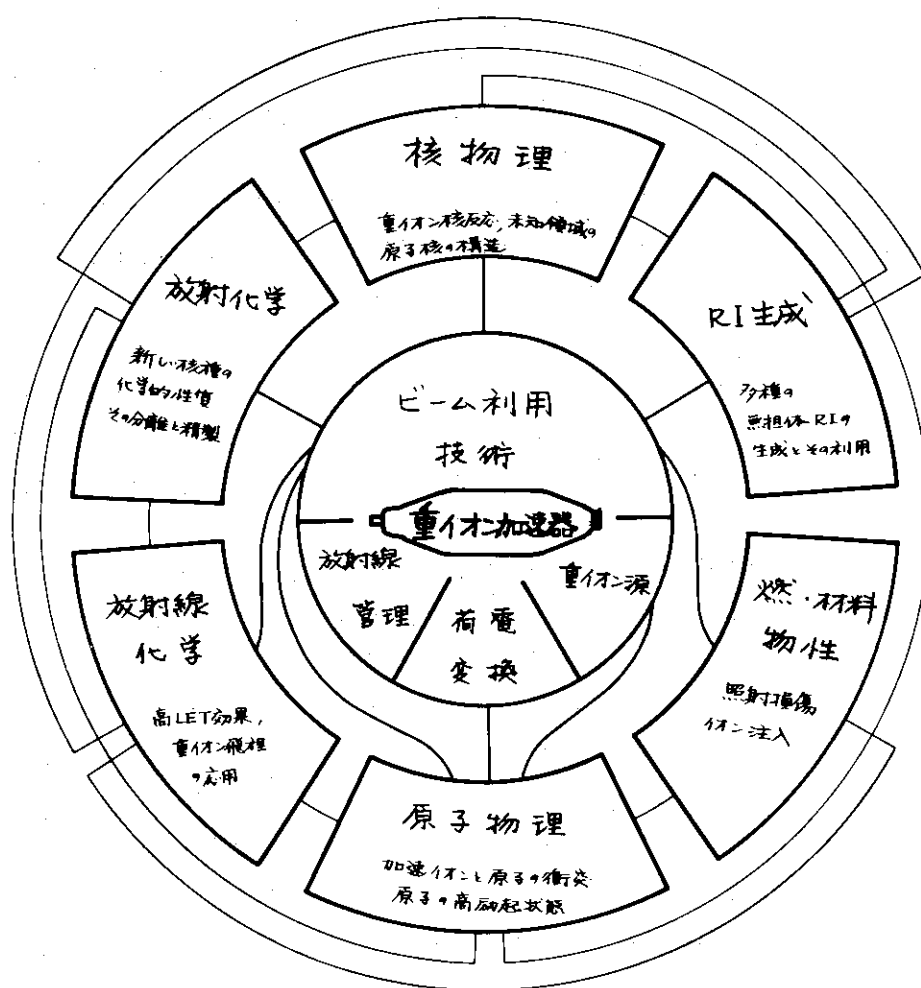
さて、重イオンによる諸分野の研究であるが、重イオンと物質との相互作用の巨大な効果は極限状態に近い物質を作りだし、その性質を探究することを可能にしているといえよう。極限状態とは、ミクロな原子および原子核の場合には陽子数の非常に大きいもの、陽子数と中性子または殻外電子数とのバランスのくずれたもの、高励起、高密度状態にいるものなどが該当し、これらは核物理、原子物理、放射化学、RI生成の新しい研究対象となる。重イオンが物質を通過する際に標的物質に付与するエネルギーが大きいこと、そのエネルギー密度が局所的に大きいことなどはマクロなもののある種の極限状態を作るのに利用され、これの研究は燃・材料、物理、放射線化学および生物、医学に画期的な進展をもたらす。

従来の科学では、物質が平衡状態もしくはそこからわずかにずれたところにある時の性質が主に

調べられてきたが、重イオン科学は上に述べたような意味での極限状態を容易に作り出しその性質を調べることにより、われわれの物質の性質に対する理解を一層深め、実用面では有益な新技術の創造、発明に導くことを可能にする。

本研究会のプログラムはこのような観点に立って、関連の強いテーマをなるべく近接させるようにして作成された。各研究分野での現状の紹介や問題点の指摘などについては、各セッションの冒頭にある優れたレビューを参照して頂きたい。

幸い、多数の参加者のご協力により、研究会は終始熱心な討議が続けられ活況を呈した。わが国の重イオン研究はようやく緒についたところであり、この研究会報告が重イオン研究の促進に少しでも役立てば幸いである。



第1図

目 次

第 I 部

1. 重イオンによる照射損傷	(座長:長崎隆吉)	
1.1 重イオンを利用した材料の照射損傷	石野 栗	1
1.2 重イオンによる材料の損傷	白石健介	11
1.3 加速器照射による原子炉材料のスウェリング・シミュレーション	寺沢倫孝	15
1.4 原研 2MV V.d.G. による重イオン照射損傷の研究	土井健治	22
1.5 重イオン研究のセラミックス燃料への応用	那須昭一	26
2. チャネリング	(座長:橋口隆吉)	
2.1 重イオン粒子のチャネリング現象	小沢国夫	36
2.2 ヨーロッパ, アメリカにおけるチャネリングの現状	藤本文範	51
2.3 チャネリング自動測定系	西島俊二・梨山勇・寺西英三	53
3. イオン・インプランテーション	(座長:土井健治)	
3.1 イオン注入の現状について	升田公三	59
3.2 Ion Implantation 技術の ^{85}Kr 固定への適用	木谷 進	63
4. 重イオン放射線化学	(座長:塩川孝信)	
4.1 高 LET 放射線化学 - その目的と問題点	今村 昌	68
4.2 希ガスイオンによるメタノール衝撃反応	新井栄一・高橋 詢	74
4.3 重イオン照射によって生ずる有機化合物結晶中のラジカルの空間分布	木村一字	81
4.4 放射線の LET 効果に関する一考察	松浦辰男	87
4.5 重イオンによる気体のイオン化収量 (放射線作用の古典力学的理解, 2)	大野新一	95
4.6 重イオンによるプラスチック膜フィルターの作製	辻村重男・古牧睦英	99
5. 重イオン原子物理	(座長:大野和郎)	
5.1 重イオン原子物理	浜田達二	103
5.2 重イオン衝撃による内殻電離 - 特に, K 殻電離における入射粒子の電荷依存性について	俵 博之	109
5.3 理研における内殻電子励起の実験	栗屋容子	116
5.4 Zn, Sn, Ta, Pb の数 MeV プロトンと ^3He 粒子による特性 X 線の励起	森田 右・石井慶三・鍛冶東海・俵 博之	123

第 II 部

1. 大型重イオン静電加速器	(座長:武藤二郎)	
1.1 大型重イオン・タンデム・バンデグラフ加速器	田中茂也	133
1.2 九大タンデム加速器の規模と特徴について	磯矢 彰	145
2. 重イオン源	(座長:三浦 岩)	
2.1 重イオン源	福沢文雄	153
2.2 タンデム型加速器用の直接引出し型負イオン源	野上耀三	167
2.3 PIG 型イオン源による窒素, アルゴン・イオンの加速	小林千明・神田 将・吉田紘二	170

2.4	タンデム静電加速器の重イオン源	山内幹雄	174
2.5	理研重イオン源とサイクロトロンでの重イオン加速	河野 功	179
2.6	レーザーによる多重電離イオンの発生	山中龍彦・山中千代衛	185
2.7	京都ビーム・プラズマ型イオン源	高木俊宜・山田 公・石川順三	192
3.	荷電変換	(座長：小寺正俊)	
3.1	重イオンの荷電変換過程	俵 博之	198
3.2	固体中での重イオン平衡電荷分布の測定	尾崎譲治・中田章久・城戸 明・浅利正俊・福沢文雄	210
4.	ビーム利用技術	(座長：久武和夫)	
4.1	東工大バンデにおけるオンライン実験	足立 実・芦部楠夫・新井栄一・小川雅生	215
4.2	電場、磁場を併用した粒子分析器とスピン回転装置の理論	池上栄胤	219
4.3	重イオン核反応実験におけるターゲット調整技術	馬場澄子	231
4.4	多重発熱照射	野崎 正	236
4.5	短半減期核種照射技術 — 特に化学処理について	福島昭三	240

第 III 部

1.	重・超重元素の核特性	(座長：江尻宏泰・上坪宏道)	
1.1	"IAEA 第3回核分裂の物理・化学に関するシンポジウム(1973)" からのトピックス	竹腰英子	247
1.2	重核に対する重イオン核反応	志田嘉次郎	262
1.3	重核の核化学	馬場 宏	267
1.4	重イオンによるクローン励起	杉山康治	284
1.5	広いアクチノイド核の低い励起状態	鹿取謙二	290
1.6	核分裂におけるポテンシャル・エネルギー面の研究	末包昌太・山路修平・岩本 昭・原田吉之助	294
1.7	超重核の安定性	山田勝美・宇野正宏・富永俊夫	300
1.8	超重核生成断面積の計算	今西信嗣・西 朋太・藤原一郎	306
2.	重・超重元素の化学	(座長：音在清輝)	
2.1	重・超重元素の化学	上野 馨	312
2.2	重・超重元素の酸化状態	原 光雄・佐藤明子・三頭聡明・川筋伊佐務・鈴木 進	324
2.3	ろ紙電気泳動による重元素の相互分離	池田長生・木村 幹・市川五朗	333
2.4	重イオンによる核反応生成物の分離化学	梅沢弘一	338
3.	重イオンによる RI 生成	(座長：岩田志郎)	
3.1	重イオンによる RI 生成	吉沢康和	342
3.2	重イオンによる反応断面積計算	古田島久哉・武田 靖・篠塚 勉・竹腰英子	350
3.3	重イオンによる新しい RI 等の生成	橋爪 朗・天道芳彦・加藤武雄・熊谷秀和	354
3.4	重イオン生成 RI の利用	田中吉左右	360

Contents

Part I

1. Irradiation Damage with Heavy Ions (Chairman: Ryukichi NAGASAKI)	1
1.1 Radiation Damage Studies of Reactor Materials by Using Heavy-Ion Accelerators	Shiori ISHINO 1
1.2 Heavy Ion Irradiation Damage in Metals	Kensuke SHIRAISHI 11
1.3 Simulation Study of Void Swelling in Reactor Materials by Low-Energy Ion Irradiation	Michitaka TERASAWA 15
1.4 Damage Studies by Heavy Ion Irradiation with JAERI 2 MV Van de Graaff Accelerator	Kenji DOI 22
1.5 The Application of Heavy Ion Research to Ceramic Fuels Investigations	Shoichi NASU 26
2. Channeling (Chairman: Ryukiti HASIGUTI)	
2.1 Channeling Phenomena of Heavy Ions in Crystal	Kunio OZAWA 36
2.2 Some Problems on the Channeling Study	Fuminori FUJIMOTO 51
2.3 An Automatized Goniometer System for Channeling Experiments	Toshiji NISHIJIMA, Isamu NASHIYAMA, and Eizo TERANISHI 53
3. Ion Implantation (Chairman: Kenji DOI)	
3.1 Present Status on the Ion Implantation Study	Kohzoh MASUDA 59
3.2 Application of Ion Implantation Technique to a Fixation of ^{85}Kr	Susumu KITANI 63
4. Radiation Chemistry with Heavy Ions (Chairman: Takanobu SHIOKAWA)	
4.1 Radiation Chemistry in the High LET Region - Some Aspects of Heavy Ion Radiolysis	Masashi IMAMURA 68
4.2 Reaction of Methanol with Accelerated Rare Gas Ions	Eiichi ARAI and Makoto TAKAHASHI 74
4.3 Spatial Distribution of Free Radicals Produced in Heavy Ion Radiolysis of Organic Crystals at 77°K	Kazuie KIMURA 81

4.4	Some Aspects of LET Effect on Radiation-Chemical Reactions	Tatsuo MATSUURA	87
4.5	Ionization Yield Produced in Gases by Heavy Ions (Classical Mechanical Understanding of Radiation Action on Matter.2)	Shin-ichi OHNO	95
4.6	Formation of Submicron Holes in Irradiated Polyethylene-telephthalate Films by Chemical Etching	Shigeo TSUJIMURA and Yoshihide KOMAKI	99
5.	Atomic Physics with Heavy Ions (Chairman: Kazuo ŌNO)		
5.1	Accelerated Heavy Ions as a Tool for Researches on Atomic Physics	Tatsuji HAMADA	103
5.2	Innershell Ionization by Heavy Ion Impact - Dependence of K-Shell Ionization on the Projectile Charge	Hiroyuki TAWARA	109
5.3	Experimental Studies on the Inner-Shell Excitation	Yohko AWAYA	116
5.4	Characteristic X-Ray Excitation of Zn, Sn, Ta and Pb by Several MeV Protons and Helium-3	Susumu MORITA, Keizo ISHII, Harumi KAJI, Takanobu Shiokawa and Hiroyuki TAWARA	123

Part II

1.	Large Heavy-Ion Electrostatic Accelerator (Chairman: Jiro MUTO)		
1.1	Large Heavy-Ion Tandem Van de Graaff Accelerators	Shigeya TANAKA	133
1.2	Design and New Features of a Three-Stages Tandem at Kyushu University	Akira ISOYA	145
2.	Heavy Ion Source (Chairman: Iwao MIURA)		
2.1	Heavy Ion Source	Fumio FUKUZAWA	153
2.2	Direct Extraction Negative Ion Source for Tandem Accelerator.....	Yozo NOGAMI	167
2.3	Acceleration of Nitrogen and Argon Ions from PIG Ion Source	Chiaki KOBAYASHI, Susumu KANDA and Genji YOSHIDA	170

2.4	Ion Sources for Negative Heavy Ions	Mikio YAMANOUCI	174
2.5	Performance of Multiply-Charged Heavy Ion Source and Acceleration of Heavy Ions in the IPCR Cyclotron	Isao KOHNO	179
2.6	Production of Multiply Charged Ions by Laser Beams	Tatsuhiko YAMANAKA and Chiyoe YAMANAKA	189
2.7	Kyoto Beam-Plasma Type Ion Source	Toshinori TAKAGI, Isao YAMADA and Junzo ISHIKAWA	192
3.	Charge Exchange Process (Chairman: Masatoshi ODERA)		
3.1	Charge Change Processes in Energetic Heavy Ions	Hiroyuki TAWARA	198
3.2	Measurement of Equilibrium Charge Distribution with a Thick Target	Joji OZAKI, Akihisa NAKATA, Yoshiaki KIDO, Masatoshi ASAI and Fumio FUKUZAWA	210
4.	Technique on Beam Utilization (Chairman: Kazuo HISATAKE)		
4.1	On-Line Experiments at the V.d.G. Accelerator of Tokyo Institute of Technology	Minoru ADACHI, Kusuo ASHIBE, Ei-ichi ARAI and Masao OGAWA	215
4.2	A First-Order Theory for the Design of Charged Particle Spectrometers and Spin Rotors with Crossed Electric and Magnetic Field	Hidetsugu IKEGAMI	219
4.3	The Target Preparation Technique in Heavy-Ion Experiments	Sumiko BABA	231
4.4	Bombardment Accompanied with a Large Heat Evaluation	Tadashi NOZAKI	236
4.5	Techniques for Short-Lived Isotopes - with Emphasis on Chemical Treatments	Shouzow FUKUSHIMA	240

Part III

1.	Nuclear Properties of Heavy and Super-Heavy Elements (Chairmen: Yasuhiro EJIRI and Hiromichi KAMITSUBO)		
1.1	Some Topics on IAEA Third Symposium on the Physics and Chemistry of Fission (IAEA - SM -174) (1973)	Eiko TAKEKOSHI	247

1.2	Heavy Ion Reactions for Heavy Nuclei.. Kajiro SHIDA	262
1.3	Nuclear Chemistry of Heavy Nuclides .. Hiroshi BABA	267
1.4	Coulomb Excitation with Heavy Ions Yasuharu SUGIYAMA	284
1.5	Low-lying Excited States in Wide Actinide Nuclei Kenji KATORI	290
1.6	Potential Energy Surface of Nuclear Fission Shota SUEKANE, Shuhei YAMAJI, Akira IWAMOTO and Kichinosuke HARADA ...	294
1.7	Stability of Super-Heavy Nuclei Masami YAMADA, Masahiro UNO and Toshio TOMINAGA	300
1.8	Calculated Production Cross Section of Super-Heavy Nuclei Nobutsugu IMANISHI, Tomota NISHI and Ichiro FUJIWARA	306
2.	Chemistry of Heavy and Super-Heavy Elements (Chairman: Kiyoteru OTOZAI)	
2.1	The Chemistry of Heavy and Super-Heavy Elements Kaoru UENO	312
2.2	The Oxidation States of the Heavy and Super-Heavy Elements .. Mitsuo HARA, Akiko SATO, Toshiaki MITSUGASHIRA, Isamu KAWASUJI and Shin SUZUKI	324
2.3	Mutual Separation of Aqueous Heavy Ions by Paper Electrophoresis Nagao IKEDA, Kan KIMURA and Goro ICHIKAWA	333
2.4	Separation Chemistry of Various Elements Produced by Heavy-Ion Irradiation Hirokazu UMEZAWA	338
3.	Production of Radioisotopes with Heavy Ions (Chairman: Shiro IWATA)	
3.1	Radioisotope Production by Heavy Ions Yasukazu YOSHIKAWA	342
3.2	An Evaluation for the (HI,xn) Reaction Cross Section Kyuya KOTAJIMA, Yasusi TAKEDA, Tsutomu SHINOZUKA and Eiko TAKEKOSHI ...	350
3.3	On the Production of New Radioisotopes by Heavy-Ion Bombardment .. Akira HASHIZUME, Yoshihiko TENDOW, Takeo KATOU and Hidekazu KUMAGAI	354
3.4	The Preparation of Radioisotopes by Heavy-Ion Bombard- ment and the Use	360

第1部：重イオン照射損傷，チャネリング，イオン
インプラメンテーション，重イオン放射線化学，
重イオン原子物理

Part I : Irradiation Damage with Heavy Ions, Channeling,
Ion Implantation, Radiation Chemistry with Heavy
Ions and Atomic Physics with Heavy Ions.

1. 重イオンによる照射損傷

1.1 重イオンを利用した材料の照射損傷

東京大学工学部 石 野 榮

(東京都文京区本郷 7-3-2)

Radiation Damage Studies of Reactor Materials
by Using Heavy-ion Accelerators

Shiori ISHINO

(Dept. of Nuclear Engineering, University of Tokyo,
Bunkyo-ku, Tokyo)

Use of accelerators in radiation damage studies is reviewed historically and the significance of the use of heavy-ion irradiation in various aspects of radiation effect studies at the present time and in the near future is pointed out. Major problems to be overcome in the critical materials of fast breeder and controlled thermonuclear reactors are summarized and a discussion is made of how these problems are solved by the use of heavy-ion accelerators. Merits and demerits of the heavy-ion irradiation are summarized from the stand point of simulation of heavy irradiation with fast neutrons.

1. まえがき

本報告では材料の照射損傷に関して主としてイオン加速器を利用した研究について述べ、その中で重イオン加速器の利用がどのような特質をもっているかに注目することにした。

そこでまず原子炉材料と加速器とがいかに係わってきたかについての歴史的考察から始めよう。第1図は筆者なりに照射損傷研究の歴史をたどってみたものであるが⁽¹⁾、照射ということが意識的に捉えられていないいわば“pre-historical”なI期を除くと、照射損傷研究の歴史は加速器照射によって始まったと云って過言でない。第二次大戦が始まった直後Wignerが原子炉材料における照射損傷の重要性を予言し、この研究のため有名なマンハッタン計画において米国中の既存の加速器が動員されたらしい。⁽²⁾加速器照射の損傷形成速度がきわめて大きいということは早くから自覚されていたようである。この傾向は戦後もつづき1960年以前には、サイクロトロン等を使った陽子、重陽子、 α 粒子の照射研究が多くみられる。1960年頃からは照射効果の研究も広範になり、(i)材料側からは原子炉を用いた中性子照射によるデータの蓄積が進み、(ii)基礎側ではより高純度の物質でより単純な欠陥をとの意図からバンデグラフなどの電子線を用いた研究が多く行なわれるようになった。一方これらには別に(iii)低エネルギー重イオンを用いた飛程の研究、同位体分離器、イオン注入などの分野が発展し、1963年を中心に種々の結晶性効果が認識されるとともに非常に大きな発展をして今日に至っている。

(i)については1960年代後半よりボイドの問題を中心とする高温・重照射に特有な問題が生じ、

ふたたび加速器照射が注目されるようになる。(ii)の流れについても超高圧電子顕微鏡 (HVEM) の発展に伴って新たな発展の活路を見出しつつある。このように考察すると、加速器照射は照射効果のいかなる分野を問わず現代の中心的問題と云うことができる。

2. 材料に対する照射効果

さて本題に入るが、材料の照射効果にも種々の効果が存在する。第1表はこれをその効果の持続の程度から分類して示した。⁽¹⁾ 金属の場合電子的励起は何も後に残る変化を与えない。しかし粒子のエネルギー損失機構としては重要で、最近の高速中性子や重イオンの照射では、原子のはじき出しに関連してもこれを正しく評価することが必要になってきている。^{(3),(4)}

しかし何といっても材料の照射効果の中心的なものはいわゆる照射損傷と呼ばれる原子のはじき出しである。本報でもこれを中心に述べる。なお近時高速増殖炉 (Fast Breeder Reactor: FBR) や核融合炉 (Controlled Thermonuclear Reactor: CTR) で問題とされていることには、単なるはじき出し損傷の効果でなく、核変換の効果も同時に考えざるを得ない問題が多い。これらについても述べることにする。

材料とは筆者の考えでは“目的をもたされた物質あるいは物質のシステム”である。原子炉材料としてはいろいろの種類があるが、目的に対応してもっとも苛酷な使用条件を課せられるものとしてFBR燃料被覆材、CTR真空壁材料を取りあげることができよう。これら材料はそれぞれの炉型でのもっとも重要な材料 (critical material) と考えられるが、第2表に主としてFrost⁽⁵⁾ にしたがって使用条件の典型例を示した。これからも明らかなようにCTR材料の方がFBR材料よりもよりきびしい条件で使われることになる。このような使用条件から想定される問題点となる事項をまとめて第3表に示す。以下にこれら各点につき少しくわしく述べる。

(i) 高温・高照射

上記いずれの材料も高温で高フルエンスの照射をうける。数年前までは低温側の照射効果の研究の外挿から、高温でははじき出しの効果は次第になまされて $T_m/2$ (T_m : 融点) 以上では照射損傷は問題にならないと考えられていた。しかし最近の研究では、高温の照射に特有の効果があることが知られるようになってきた。

表中に dpa とあるのは高照射に対して便利であるので近年よく用いられる照射損傷単位 (displacement per atom) の略である。形式的には

$$\text{dpa} = \int_0^{t_0} \int_0^\infty \int_{E_d}^{E_p(\text{max})} \varphi(E, t) \sigma_d(E) W_d(E, E_p) \nu(E_p) dE_p dE dt$$

$\varphi(E, t)$: フラックス

$\sigma_d(E)$: 全一次はじき出し断面積

$W_d(E, E_p)$: エネルギー E の入射粒子による一次はじき出しのスペクトル関数

E_p : 一次はじき出し原子のエネルギー

$\nu(E_p)$: E_p なる一次はじき出しにより作られるはじき出しの総数 (いわゆる損傷関数⁽⁶⁾)

と表わされる。これは、照射量がわずかな場合で、極低温照射のようにアニールが無視できる条件でのフレンケル対濃度 C_d を示す。そのような意味づけの場合は当然 $C_d \ll 1$ であるが、平均として

原子が何回はじき出されるかという dpa という意味づけを与えると上式の値が 1 以上になることはおかしくない。最近の FBR, CTR 材料では 100~1000dpa の高照射領域が問題となる。

このような高温、高照射で問題となる現象としてはボイドの形成とそれに伴うスエリング、附加応力下で照射の場合、照射クリープ、高照射による脆性等がある。

第 2 図には融点 T_m で規格化した温度スケールの上にどのような現象がおこるかを主として Motteff⁽⁷⁾ にならって表わした。

これら諸現象の中でボイドスエリングは現在 FBR 燃料被覆管でもっとも頭を悩ませている問題である。ボイドとは、照射温度が通常 0.35~0.5 T_m であるときに生じる空格子点が集ってできる穴であり、空格子点と対になってできた格子間原子は転位や自らつくるループに消滅するのでボイドの分だけの体積膨脹（スエリング）がおこる。現在 FBR 燃料被覆材ステンレス鋼ではフルエンスが $10^{23}/\text{cm}^2$ にも達した場合、ボイド量 dV/V は 10% にも達することが懸念されている。

(iii) 核変換

FBR や CTR では中性子エネルギーが高いので、おもにしきい型の発熱反応である (n, p) や (n, α) 反応がおこるようになる。とくに (n, α) 反応ではヘリウムが生じることになるが、ヘリウムは固体中への溶解度はほとんどないことから“析出”していろいろの現象をひきおこす。中でも重要なのは、a) 高温照射脆性と b) 気泡スエリングであろう。高温照射脆性は高温で照射した材料にみられる粒界脆性であり、ヘリウムが粒界の結合力を何らかの形で損うことが原因となる。気泡スエリングは通常 $T > 0.5 T_m$ 位で顕著になるが、He 量が多いときにはさらに低温でもヘリウム気泡が問題となる。

(iv) 表面現象

核融合炉真空壁材料で問題となる事として表面現象がある。真空壁材料では 14 MeV の中性子の照射以外にも 3.5 MeV の α 粒子や燃料である D^+ や T^+ その他中性原子の照射を受けるが、とくに後者の比較的低エネルギーの軽イオン照射によって表面から原子がとび出したり（スパッタリング）、また表面直下の層にたまったガス原子により“めくれ”（blistering）がおこる。スパッターされた原子はプラズマから制動輻射によってエネルギーを吸収してプラズマの温度を下げ、又自らは高いエネルギーの中性又は荷電粒子となって再び壁に衝突しさらにスパッタリングをひきおこす可能性があるので二重に好ましくない。またブリスタリングは局所的にかなり深い剝離がおこるので、スパッタリングと共に壁厚を減少させる機構となるので真空壁材料の寿命をきめる決定要因となる可能性がある。

ブリスタリングに関しては ANL の Kaminsky らが 0.5 MeV および 1.5 MeV の $^4\text{He}^+$ をニオブやバナジウムに打込み走査型電子顕微鏡（SEM）などでくわしく調べている。⁽⁸⁾

(v) 水素透過

CTR や HTGR（高温ガス炉）では水素透過が問題である。とくに CTR ではトリチウムの有効な隔離、分離、保存などが重要であり、CTR 体系からのトリチウム漏洩量はきわめて低いレベルに抑えることが要求されている。材料に侵入したトリチウムの透過や再放出はきわめて重要であるが最近はやはり加速器を用いてこの方面の研究がなされるようになった。

3. 重イオン照射

以上述べてきた材料に対する照射効果の問題点と重イオン照射がどのように関係するかを述べよ

う。

(i) dpa シミュレーション

中性子による照射損傷形成速度は、もっともはげしい照射条件の下でも 10^{-8} dpa/sec の程度である。このことはFBRでもCTRでも変らない。そして 10^3 dpa ほどの大量照射を既存の材料試験炉や高速炉で与えようとする⁽⁹⁾と100年～30年もの照射時間が必要となる。現在やっと手に入るようになった高速中性子 10^{23} /cm² オーダーの照射も数年前に挿入した試料についてのものである。しかし加速器を用いると損傷形成速度については $10^3 \sim 10^4$ 倍の加速ができる。第3図に今迄に得られている代表的な実例についての dpa/sec を示した。⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾ 断っておくが、この図は特定の加速器たとえば20MeV CイオンについてはハーウェルのVEC (Variable energy cyclotron) Ni, Ta についてはBMI-PNLのタンデム型加速器についてのものである。(粒子1コあたりの dpa/sec については第7図参照)これからわかるように重イオン加速器によって最高 10^{-1} dpa/sec 位までの加速照射が可能であり、数年～数十年間のはげしい中性子照射によって生じる損傷さえも僅か数十分～数時間の照射でシミュレートすることができる。照射イオンが不純物にならないという点では自己イオン (Ni を照射する場合にはNiイオンで照射する) による照射が理想的である。

中性子照射を dpa をそろえたイオン照射で如何にシミュレートできるかについてはかなりの研究があるが、ボイドの生成の様子などは少くとも定性的にはきわめて類似している。スエリングについても、やや古い例だが第4図にKulcinski⁽¹²⁾らがCuイオン照射と中性子照射とで比較した例を示す。ボイド密度やスエリング量が、dpaを合わすことによって大体シミュレートされていることがわかる。温度についてはAISI 316, 321鋼についてのC⁺⁺照射とDFR照射を比較したWilliamsらの例では重イオン照射の方が高温側に 100° 程ずれて現われる他は温度依存性は両者でよく一致していることがわかる。この温度スケールのずれは dpa/sec が $10^3 \sim 10^4$ 倍ちがうことに起因している。このことによって主として空格子点の過飽和度が影響をうけることがずれの原因である。

以上で dpa をそろえることによるシミュレーションの可能性があることを述べたが、照射効果に関連する他のパラメータも分離してシミュレートできるのが加速器照射の大きな特長である。以下にそのことに触れよう。

(ii) 照射効果に関連するパラメータ

中性子の照射効果に関連するパラメータとしては

- 1 照射温度
- 2 高速中性子フルエンス～はじき出し損傷量 (dpa)
- 3 高速中性子フラックス～はじき出し損傷形成率 (dpa/sec)
- 4 核変換生成原子、とくにヘリウム量

などがあげられる。加速器照射ではこれら因子を単独に、あるいはいくつかを組み合わせる⁽⁹⁾て変化できる。

1, 2, 3については大体上述したので4に関連したことについて述べよう。 (n, α) 反応などによって生ずるヘリウムの効果については古くから α 粒子照射によるシミュレーションなどが行なわれているが、⁽¹⁴⁾FBRの高温照射脆性に関連しては1967年頃からサイクロトロン等による α 線照射が行なわれるようになってきた。

第5図には42MeVの α 粒子を照射したAISI 304 ステンレス鋼の高温引張試験によるのびの変化を示す。⁽¹⁵⁾

同じく第6図には44 MeVの α 線を照射したV-15Cr-5Ti合金の伸びの変化を示す。⁽¹⁶⁾

高温中性子照射によるボイドスエリングにはヘリウムが一役かっていることはたしかであるが、これをシミュレートするにはよくヘリウムの前打込 (pre-implantation) が行なわれる。また所要の dpa を与える主加速器とヘリウム打込を主目的とする小型加速器から二種の粒子を同時に照射する試みもなされている。⁽¹⁷⁾

(iii) 材料の中性子照射シミュレーションからみた重イオン照射の長所と欠点

第4表に重イオン照射の長所と欠点をまとめて示した。長所については1, 2についてはすでに触れた通りである。3については、軽いイオンの照射の場合には照射中や直後にはかなりの放射能をもつが、短寿命のものが主であり、大がかりなホットラボ作業は要しない。このことから、きめのこまかい実験が可能となる。さらに重いイオンでは、クーロン障壁をこえるような大型重イオン加速器を用いる場合を別とすれば、誘導放射能の生成はなく、照射中のX線励起や、その副次的効果を考えておけばよい。

費用の点も今迄の説明から想像される通り、きわめて少なくてすむ。たとえば材料試験炉での数年の照射に対比し得るある種のデータは、数千万円の設備投資と僅かな人員の1年以内の努力で得られるであろう。しかしこのことは中性子照射研究を軽視するという意図は全くない。以下に述べるように、シミュレーションは必ずしも完全ではないしまた確性試験やある種の照射挙動実験は中性子照射によらざるを得ない。特に強調したかったのは、照射効果の素過程に関連した実験を行なうには重イオン照射がきわめてすぐれた特長を有しているということである。

イオン照射の最大の欠点はイオンの飛程が短いことである。このことはエネルギー損失が大きいと云うことであり、必ずしも直截的な対応ではないが、dpa/sec が大きいということと裏腹のことである。第7図に表面からの深さの関数としての入射粒子フラックス当りの dpa を示した。表中にあげた項目のうち、均一化への工夫や表面加熱の問題は克服し得る、あるいは逆に利用し得る点であるが、実験の種類に対する制約と云う点は、さけ難い欠点である。

第8図にはターゲットとして鉄を想定して、種々の入射粒子に対するエネルギー・飛程関係を示し、飛程に対応してどのような実験が可能であることを示した。このことから、重照射による機械的性質を調べようとする損傷形成速度の比較的小さいがビーム電流が大量にとれるような陽子加速器などを用いるかあるいは高エネルギーの重イオン加速器が必要になる。現在普通に得られる程度の小型の重イオン加速器では透過電子顕微鏡観察 (TEM) が主流となる。試料を照射しながら損傷を観察できる点では超高圧電子顕微鏡 (HVEM) はきわめて有力な手段であるが、これ以外にも⁽¹⁸⁾ "in-situ" な損傷観察のために重イオン加速器と透過電子顕微鏡をくみ合わせた例は二三ある。

数十 keV から数百 keV の自己イオンの照射は中性子照射損傷の基礎研究として特有の地位を占める。これは、表面効果など面倒な問題はあるが、中性子による一次はじき出し原子 (primary knock-on atom: PKA) の挙動、すなわち衝突カスケードを調べるよい手段だからである。第9図にこの間の事情を模式的に示した。このような低エネルギー重イオン照射の場合は測定手段はさらに制約を受けるが電界イオン顕微鏡 (FIM) を用いてカスケード構造を調べた例がある。⁽¹⁹⁾

欠点として表にあげた2, 3の点については、ある程度克服することができる。2については自己イオン照射を行なうことによりさけられるし、3についてもエネルギーを変えて照射することによりかなり中性子照射をシミュレートできる。CTRの14 MeV 中性子の照射をシミュレートするには⁽²⁰⁾ 16.4 MeV の陽子照射がよいと云うような報告もある。しかし時間や温度に対して非線型な現象が

共存するような場合にはシミレーションには限界があることも事実であり、たとえば加速拡散や析出等の活性化過程が複雑にからまっておこる場合には、シミレーション照射の結果を解釈するにもそれなりの注意が必要である。

4 む す び

以上述べてきたように、重イオン加速器による材料照射研究は現在および将来の原子炉材料研究にきわめて重要である。とくにFBRやCTRの材料評価はおそらくそれなしには不可能であろう。とくに機械的性質を調べるには自己イオンが高いエネルギーまで加速できるような大型重イオン加速器が必要である。

重イオン照射による材料研究が、中性子照射に比較して安価に有用な基礎的知見が得られる点も強調しておきたい。又材料研究の立場からは超大型の重イオン加速器から数十keVの小型の加速器までそれぞれ異ったユニークな利用価値があることも一言付け加えておきたい。

References

- 1) 石 野 榮; 日本金属学会会報, 7, 437 (1973)
- 2) Billington D. S. and Crawford Jr. J. H.: "Radiation Damage in Solids", Princeton University Press (1961)
- 3) Lindhard J., Scharff M. and Schiott H. E.: Mat.-Fys. Medd. Dansk. Vid. Selsk. 33 no.10 (1963)
- 4) Robinson M. T.: Proc. B.N.E.S. Nuclear Fusion Reactor Conference at Culham Laboratory, Paper 4.3, p.369 (1960)
- 5) Frost B. R. T.: IEEE NS 19-3 230 (1973)
- 6) Thompson M. W.: "Defects and Radiation Damage in Metals", Cambridge Univ. Press (1969)
- 7) Motteff J.: USAEC Report, WASH-1206, p.46 Apr. (1972)
- 8) Kaminsky M. and Das S. K.: Paper presented at Int. Conf. on Ion-Surface Interaction-Sputtering, Garching, Sept. (1972)
Das S. K. and Kaminsky M.: J. Appl. Phys., 44 25 (1973)
- 9) 石 野 榮; 原子力工業, 18 no. 6 33 (1972)
- 10) Kulcinski G. L. らによる, Ref. (11) より引用
- 11) Norris D. I. R.: Radiation Effects, 14 1 (1972)
- 12) Kulcinski, G. L. Laidler J. J. and Doran D. G.: Radiation Effects, 7 195 (1971)
- 13) Williams T. M. and Walters G. P.: cited in Ref. (11)
- 14) 総説として, Barnes R. S. and Nelson R. S.: "Radiation Effects" Metallurgical Society Conf. Vol. 37 225, Gordon & Breach, (1967)

- 15) Kramer D., Brager H. R., Rhodes C. G. and Pard A. G.:
J. Nucl. Mat. 25 231 (1970)
- 16) Santhanam A. T., Taylor A. and Harkness S. D.: "Defects
and Defect Clusters in BCC Metals and Their Alloys" Nuclear
Metallurgy vol.18 ed. by Arsenault R. J., p.302 Aug. (1973)
- 17) Goode P. D.: AERE-R 6401 (1970)
- 18) たとえば Nelson R. S.: "Radiation Damage and Defects in
Semiconductors", Proc. Int. Conf. on Defects in Semiconductors,
Reading. 1972. Institute of Physics (London) (1973)
- 19) Wilson K. L. and Seidman D. N.: "Defects and Defect
Clusters in BCC Metals and Their Alloys" Nuclear Metallurgy,
vol.18 ed by Arsenault R. J., p.216 Aug. (1973)
- 20) Logan C. M. and Anderson J. D.: ibid. p.383

Table 1 Classification of radiation effects

分 類	機 構	効 果
過渡的効果	電子励起 イオン化	熱的効果 (γ 加熱など)
可逆的効果	原子のはじき出し	電子的欠陥(トラップ) はじき出し過程への影響 いわゆる照射損傷 ボイド
永久的効果		ヘリウム損傷 (ヘリウム脆性・気泡スエリング) 合金化

Table 2 Operating conditions for fuel cladding
of a FBR and first-wall material of
a CTR,

	ビーク 中性子束 ($n/cm^2 \cdot sec$)	想定寿命 (年)	フルエンス (n/cm^2)	温 度 ($^{\circ}C$)	その他の 使用環境
FBR	7×10^{15} (全中性子束)	2~3	$3 \sim 4$ $\times 10^{23}$	600	内(UPu)O ₂ 外 Na
CTR	4×10^{16} (14MeV)	20~30	$\sim 10^{24}$	1000	内 高真空 外 Li D ⁺ , T ⁺ , 3.5MeV α 照射

Table 3 Problems arising from severe service conditions of critical materials of fission and fusion reactors.

問 題 点		主要な現象・結果
高 温 高 照 射	$\sim 0.5 T_m$ $\geq 10^{-6} \text{ dpa/sec}$ $\geq 10^2 \text{ dpa}$	ボイドスエリング 照 射 脆 性 照射下クリープ
核 変 換	$\sim 10^3 \text{ ppm He}$	ヘリウム脆性 気泡スエリング 合 金 化
表 面 現 象	D^+, T^+, α 自己イオン	スパッタリング ブリスタリング
水 素 透 過	H, T	透過・再放出

Table 4 Merits and demerits of simulation experiments with accelerator.

長 所	短 所
1. 照射効果を規定する因子； i) 照射温度 ii) はじき出し損傷量 (dpa) iii) はじき出し損傷速度 (dpa/sec) iv) 核変換生成原子 を単独または組合せて変えられる 2. 短時間の照射で済む 3. 誘導放射能少ない (ホットラボ不要) 4. 費用 (設備・経常費とも) 少ない	1. 飛程短い； i) 実験の種類に対する制約 ii) 均一な損傷をおこすための工夫を要する。 iii) 表面加熱に対する配慮 (容易に数 kW/cm^2 になる) 2. 打込イオンが不純物になる 3. 完全なシミュレーション難しい (PKAエネルギースペクトルなど)

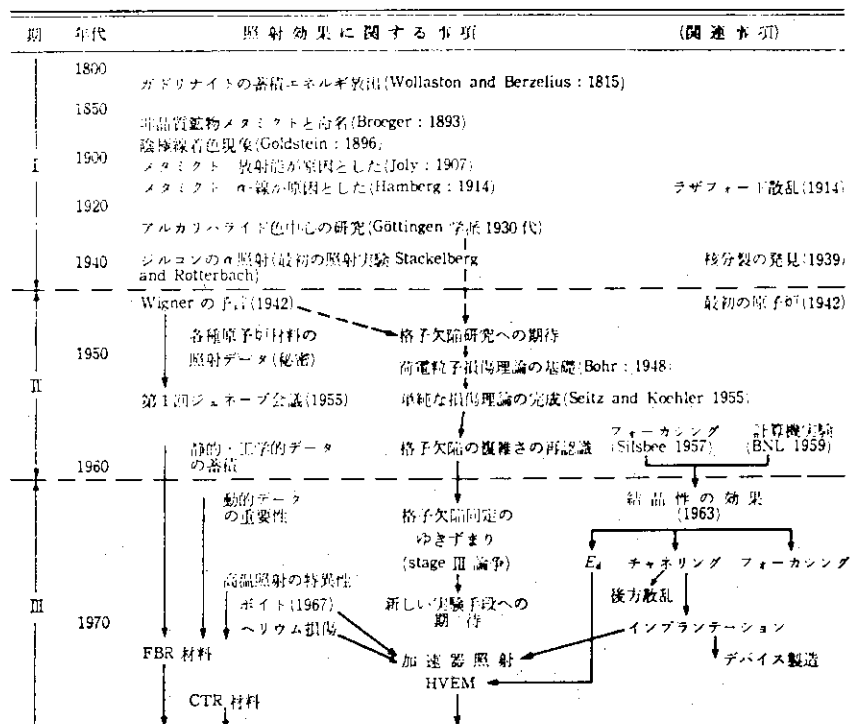


Fig. 1 History of Radiation Damage Studies

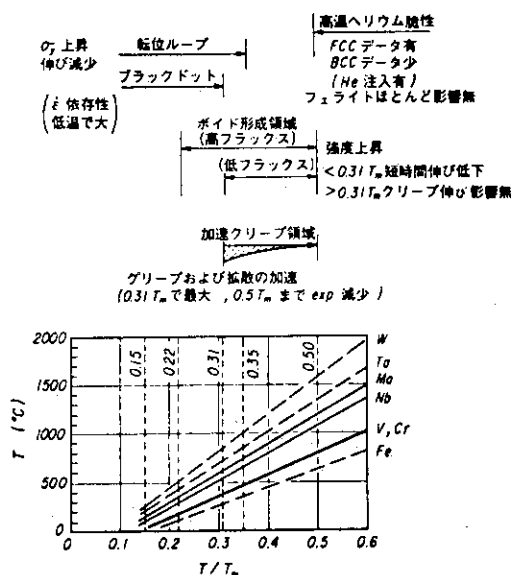


Fig. 2 Effect of irradiation temperature on various radiation effects at high temperature.

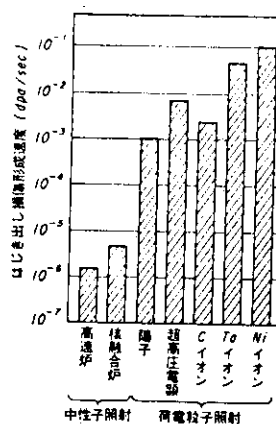


Fig. 3 Comparison of effective damage production rate (dpa/sec) for various presently-available radiation sources.

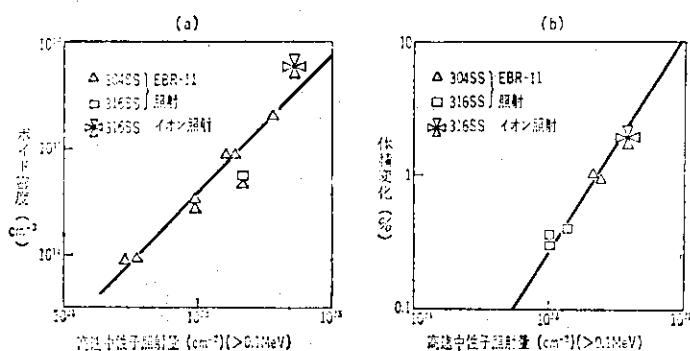


Fig. 4 Comparison of void density and void swelling produced by fast neutron and heavy ion irradiations (after Kulcinski et al¹²)

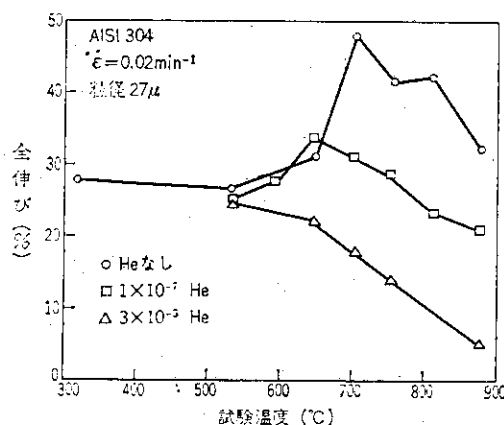


Fig. 5 Total elongation as a function of test temperature in AISI 304 stainless steel after implantation of helium from a cyclotron (after Kramer et al¹⁵)

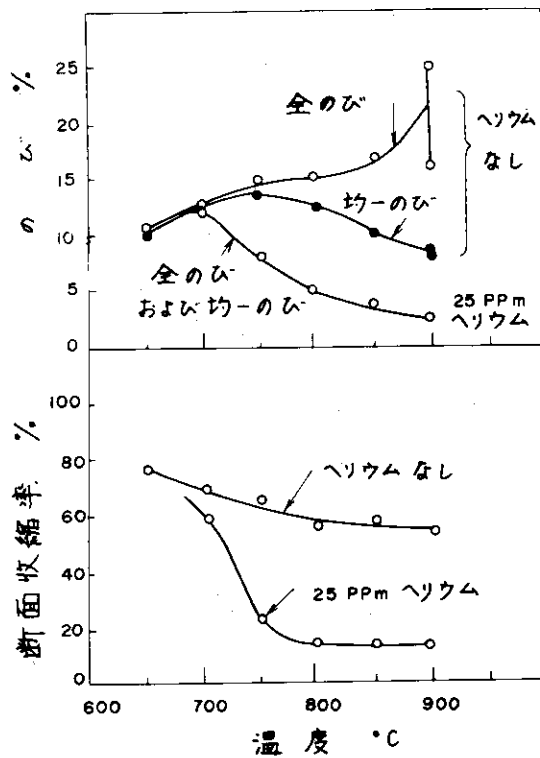


Fig. 6 Ductility of V-15Cr-5Ti alloy at high temperature after implantation of helium from a cyclotron (after Santhanam et al¹⁶⁾)

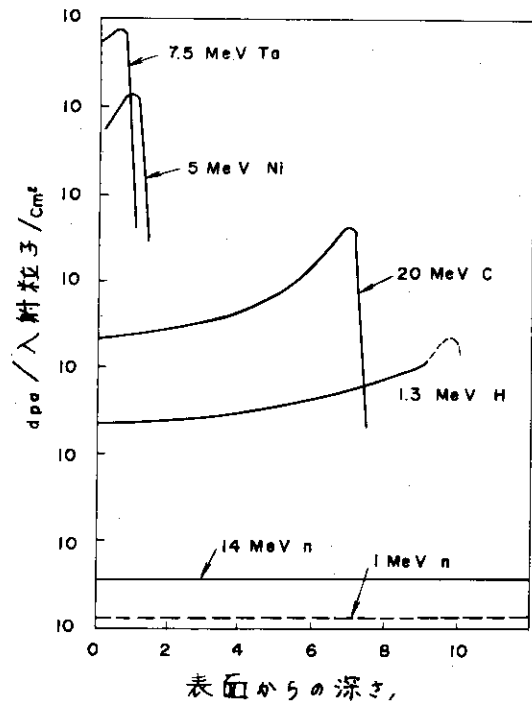


Fig. 7 dpa per incident particle per cm² for various particles as a function of depth from surface

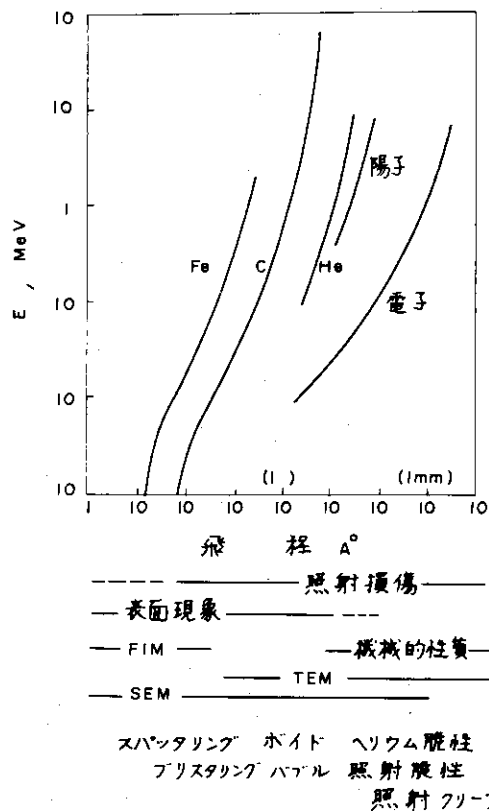


Fig. 8 Range-energy relation of various charged particles in iron and possible experiments in relation to their ranges

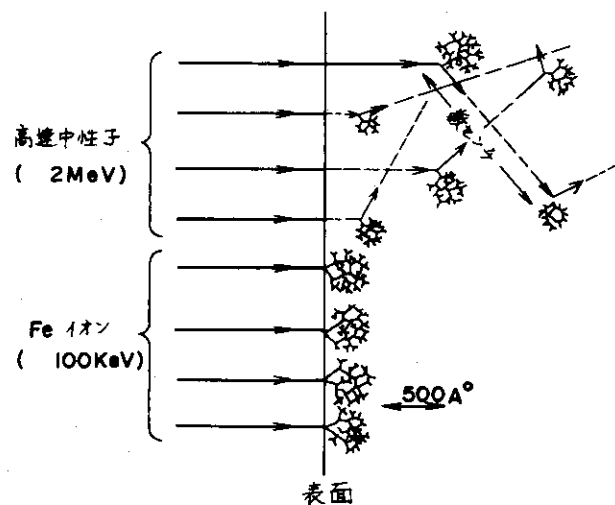


Fig. 9 Defect production by fast neutron and heavy (self) ion irradiations in iron

1.2 重イオンによる材料の損傷

日本原子力研究所 白石 健 介
(茨城県那珂郡東海村)

Heavy Ion Irradiation Damage in Metals

Kensuke SHIRAISHI
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki)

Experimental investigation with heavy ion irradiation are useful for evaluation of irradiation damage in fusion reactor materials. Ion energies required for the investigation are discussed based on LSS theory and energy-range relationship. Well-controlled ion energy in the range from 10 to 300 keV is demanded for the study on surface phenomenon (sputtering), while high energy of about 100 MeV is favorable for simulation for fast neutron irradiation damage in the materials.

重イオンによる金属材料の放射線損傷について、重イオンを核融合炉の真空壁材料の放射線損傷に関係した実験的研究に利用しようという立場で考えてみたい。真空壁材料の放射線損傷はプラズマからの種々のイオンによる表面の損傷と中性子による材料全体の損傷に大別できる。材料表面の損傷では、例えば D-T 炉であれば重水素、三重水素、ヘリウムなどのイオンによるスパタリングやブリスタリングが大きな問題になっているが、プラズマ中に不純物として入った重イオンによるスパッタリングも無視することはできない。核融合炉の炉心材料は、高速中性子炉に比べて大きなエネルギーでしかも線束の大きな中性子で長時間照射されることになる。高速中性子による金属材料の損傷は、核変換の効果を考えないとすれば、中性子によってはじき出された一次ノックオン原子によるものである。また、重イオンによるスパッタリングも試料表面での重イオンと金属原子の衝突によるものである。したがって、真空壁材料の照射損傷のうち原子のはじき出しによるものは重イオンで照射された材料の損傷であるといえる。ここでは、真空壁材料としてモリブデンを例にとって、核融合炉材料の放射線損傷のうち原子のはじき出しによる損傷の実験研究に必要とする重イオンのエネルギーについて考察する。

固体に照射したイオンのエネルギー損失率は、Lindhard¹⁾によると、原子との衝突によるもの $\left(\frac{d\varepsilon}{d\rho}\right)_n$ と電子の励起によるもの $\left(\frac{d\varepsilon}{d\rho}\right)_e$ とに分けられる。重イオン照射によってはじき出されるモリブデン原子の数は $\left(\frac{d\varepsilon}{d\rho}\right)_n$ に比例すると考えてよい。モリブデンに照射したモリブデンイオンのエネルギー損失率のイオンエネルギーに対する変化を Fig. 1 に示す。この図から $\left(\frac{d\varepsilon}{d\rho}\right)_n$ はイオンのエネルギーが 100 KeV 程度のとき最も大きく、イオンのエネルギーの減少と共に急激に小さくなることが分る。このことは真空壁材料表面のスパタリングを定量的に評価するための実験では照射するイオンのエネルギーを比較的小さなところで精度よく制御する必要があることを意味する。また、プラズマから真空壁表面に照射されるモリブデンイオンのエネルギーは 10 KeV から 100 KeV 程度の範囲に分布していると考えられる。一方、14 MeV の高速中性子によってはじき出されるモ

リブデンのエネルギーの最大値は 600 KeV であるが、このエネルギーをもった一次ノックオン原子が生じる確率は非常に小さい。中性子によってはじき出された一次ノックオン原子のスバタリングへの寄与を考えるにしても、一次ノックオン原子のエネルギー分布と 100 KeV 程度のエネルギーをもったイオンによるはじき出しの効果が大きいことから、照射するイオンのエネルギーの最大値は 300 KeV 程度としてよい。以上のことから、真空壁表面の重イオンによるスバタリングの程度を評価するための実験では 10 KeV から 300 KeV 程度の範囲のエネルギーが重要であることが理解される。このことは重イオン以外の重水素、三重水素、ヘリウムなどのイオンによるスバタリングやブリストリングの程度の評価を行なうための実験についても全く同様である。

Fig. 2 はモリブデンイオンの飛程の終端からの距離に対するイオンのエネルギー (E)、原子のはじき出しによるエネルギー損失率 $\left(\frac{dE}{dX}\right)_n$ 、および電子の励起によるエネルギー損失率 $\left(\frac{dE}{dX}\right)_e$ の変化を示したものである。この図から照射イオンの飛程の終端近くでは原子のはじき出しによる損傷が大きいことが分かる。このことは、先に述べた材料表面のスバタリングではエネルギーの小さいイオンによる効果が大きいことの別の表現である。モリブデンイオンの飛程の終端近くの $\left(\frac{dE}{dX}\right)_n$ が $5.5 \times 10^{10} \text{ eV/cm}$ (Fig. 2) であることは、モリブデンのはじき出しのエネルギーを 40 eV とすると $1 \mu\text{A/cm}^2$ の電流密度の照射で 1 秒当りに $7 \times 10^{-2} \text{ dpa}$ ($\approx 5.5 \times 10^{10} \text{ eV/cm} \times 6.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} / (2 \times 40 \text{ eV} \times 6.4 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3})$) のモリブデン原子のはじき出しがおこることを意味する。一方、高速中性子の照射では、中性子束を $2 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 一次ノックオン原子 1 ケによってはじき出されるモリブデン原子の数を 1200 ケとすると、1 秒当りのはじき出し数は $5 \times 10^{-6} \text{ dpa}$ ($\approx 2 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec} \times 1200 \times 2 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$) である。これらの数値を比較することによって、イオン照射では、飛程のばらつきや損傷の大きい領域を広くしようとするために幾分効率が悪くなるにしても、高速中性子照射に比べて材料に損傷を与える能力が大きいことが分かる。実際に、原子炉材料の照射損傷の実験を短時間で効率よく行うために、原子炉による中性子照射に代って重イオン照射が行なわれている。

中性子による真空壁全体にわたる損傷の程度を短時間の実験で評価するために重イオン照射を行なうことは有効である。材料全体にわたる損傷の実験で重イオン照射を行うばあい、まず考えなくてはならないのはイオンの飛程である。例えば、Fig. 2 で、3 MeV のモリブデンイオン照射で損傷が起るのは試料表面から $0.5 \mu\text{m}$ 程度の深さの範囲に過ぎない。このような狭い領域から損傷の様子を知ることは容易なことではない。金属材料の機械的性質を引張試験によって調べるためには $100 \mu\text{m}$ 程度以上の厚さの試料が必要である。Fig. 3 にモリブデンに照射するイオンのエネルギーと飛程の関係を示す。²⁾ この図から、ヘリウムおよび炭素イオンではそれぞれ 20 MeV および 100 MeV より大きなエネルギーで照射すればイオン照射による機械的性質の変化を引張試験によって調べることができることが分かる。しかし、金属中にヘリウムが入ると高温での脆化が起り、モリブデンのような体心立方金属に炭素などの非金属不純物が入ると機械的性質が著しく変化する。このために、中性子照射損傷の時間を短縮した模擬実験のためにヘリウムや炭素イオンを使うことができない。この模擬実験に使用するイオンは材料を構成する元素のイオンであることが望ましいが、このような金属イオンを飛程が $100 \mu\text{m}$ を越えるように加速することはできない。すなわち、真空壁材料の重イオンによる照射損傷の程度を直接引張試験によって確かめることはできない。金属材料の放射線損傷による機械的性質の変化の程度は、照射による金属組織の変化を電子顕微鏡で観察することによって知ることができる。電子顕微鏡の試料の厚さは、重イオン照射の後電解研磨をすると

しても、 $5\mu\text{m}$ 程度であれば充分である。したがって、Fig. 3 から真空壁材料の高速中性子照射損傷の模擬実験に必要とする重イオンのエネルギーは 100MeV もあればよいし、照射するエネルギーの精度はそれほど重要な因子ではないことが分かる。

以上のことをまとめると、核融合炉の真空壁材料の放射線損傷の実験に必要な重イオンのエネルギー範囲は2つに分けられる。すなわち、材料表面の損傷（スパタリング）の実験のためには $10\sim 300\text{KeV}$ 程度の範囲のエネルギーが重要であり、照射イオンのエネルギーを精度よく制御する必要がある。また、高速中性子照射損傷の模擬実験のためには 100MeV 程度の高いエネルギーを必要とするが、照射イオンのエネルギーの精度はそれ程重要ではない。

References

- 1) J. Lindhard, et al. ; Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 33 (1963) No. 14.
- 2) L. C. Northcliffe and R. F. Schilling ; Nuclear Data Tables A7 (1970) 233.

から計算

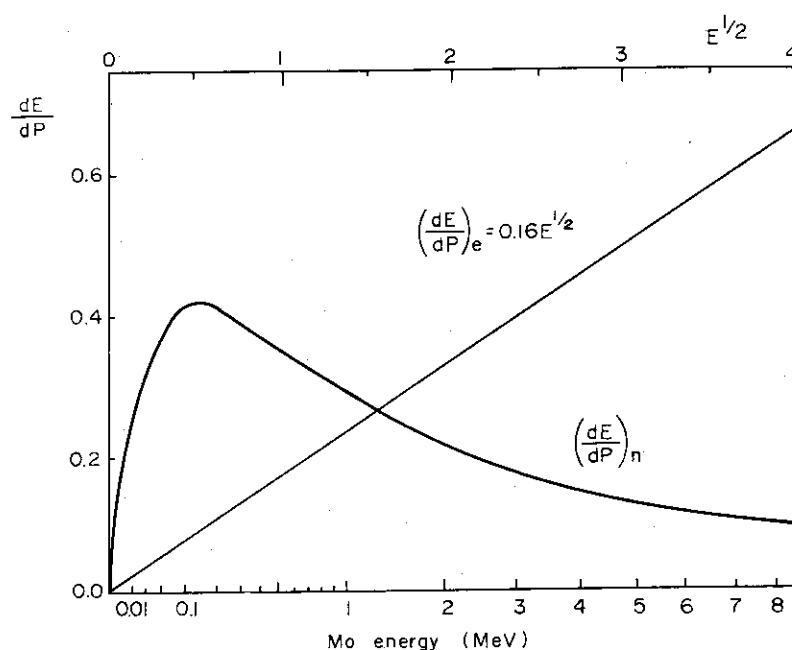


Fig. 1. Nuclear $(\frac{dE}{dP})_n$ and electronic $(\frac{dE}{dP})_e$ stopping powers of molybdenum-ion in molybdenum

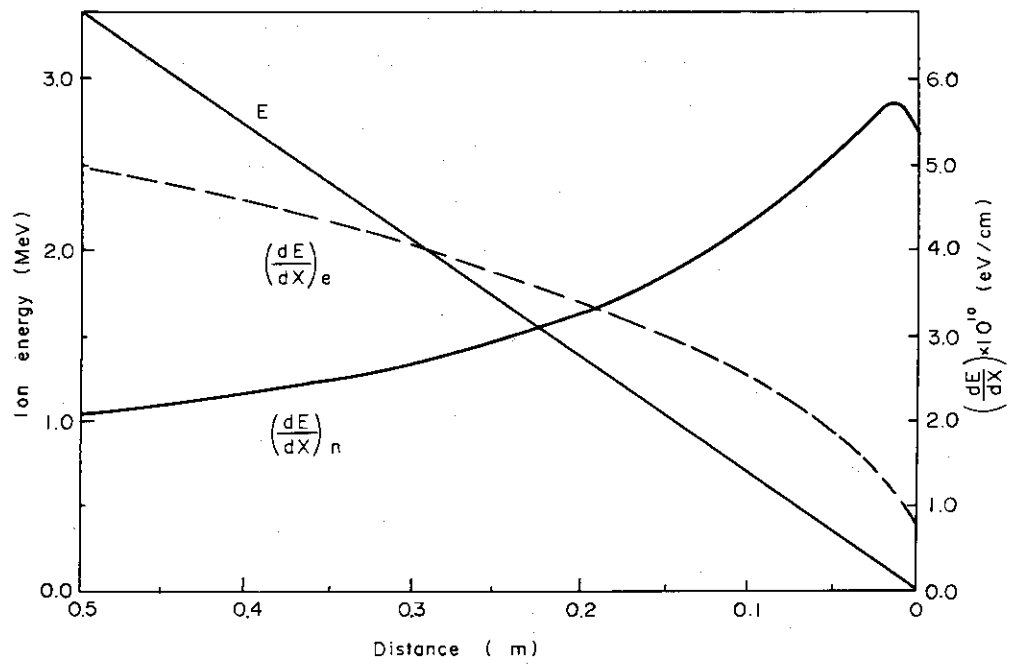


Fig. 2. Changes in energy (E), nuclear $(\frac{dE}{dX})_n$ and electronic $(\frac{dE}{dX})_e$ stopping power of molybdenum-ion with depth in molybdenum

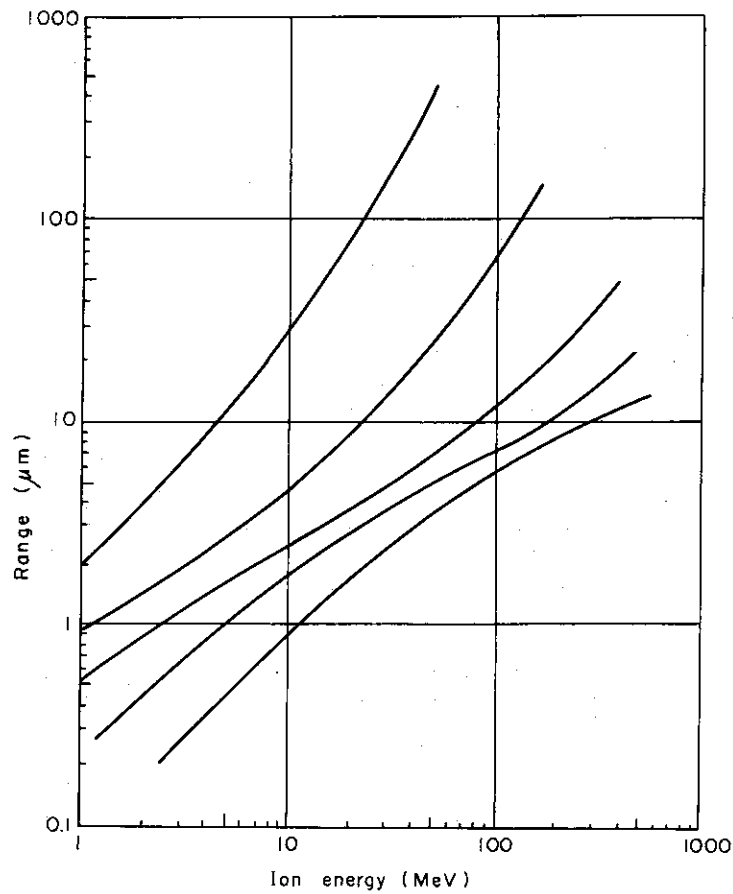


Fig. 3. Ion ranges in molybdenum

1.3 加速器照射による原子炉材料のスウェリング・シミュレーション

東芝総研 寺 沢 倫 孝
(川崎市川崎区末広町 250)

Simulation Study of Void Swelling in Reactor Materials by Low-Energy Ion Irradiation

Michitaka TERASAWA

(Toshiba R & D Center, Tokyo Shibaura Electric Co., Ltd.,
1 Komukai Toshiba-cho, Saiwai-ku, Kawasaki)

Recently the volume change of reactor materials caused by fast neutron irradiation is recognized to be important matter for reactor design. There is a possibility to obtain easily and in short time the material state irradiated up to high neutron fluence using accelerated heavy ions. The purpose of this study is to develop the simulation technique for fast neutron irradiation effects by a 200-keV accelerator. Austenitic stainless steels, SUS304, SUS316 and AISI321, are examined. To take into account the helium atoms produced as a result of (n, α) nuclear reaction, helium ions are implanted prior to heavy ion irradiation at elevated temperature. C^+ are chosen as heavy ions. Irradiated samples are observed by transmission electron microscope. By the bombardment of 200-keV C^+ ions the dependence of void formation on irradiation temperature was studied from 400°C to 700°C. The irradiation dose dependence was also studied at 625°C. As a result it was found in this work that the temperature dependence shifted about 150°C higher compared to fast neutron irradiation as it is expected theoretically, and the dose dependence showed similar behavior to reactor data if pre-injected helium dose was controlled properly. Similar trend to fast neutron irradiation was obtained taking into consideration of the nature peculiar to ion irradiation experiment and the possibility was shown of quantitative estimation for swelling by low-energy ion bombardment.

高速炉および核融合炉では従来の熱中性子炉と比べ10倍以上の中性子束で運転されるため炉の構成材料は高線量の高速中性子照射をうけ照射損傷が重要な問題となる。すでに高速炉開発の初期の段階で高温照射されたステンレス鋼燃料被覆管が密度変化をうけることがDFRにおいてCawthorneおよびFultonにより発見された¹⁾。この密度変化は材料内で小さなボイドが発生し、成長することに因るものでありボイドスウェリングと呼ばれている。このボイドの発生、成長の機構はまだ十分わかっていないが、高速あるいは遅い中性子の核変換反応で不可避免的に発生するヘリウムおよび水素がボイドの核発生に関与しているものと考えられている。実際には炉照射では照射損傷とヘリウムまたは水素発生個々の効果を分離して調べることはできないし、何よりも中性子の高線量照射を照射線量率、照射温度の条件を一定に制御して実施することはきわめて困難で、長時間を要する。これらの制約は加速器を使用して中性子照射効果をシミュレートすることによって克服できる。たとえば材料中で生成されるヘリウムは高速の He^+ イオンを照射することにより一様に注入できる。さらに重要なことは炉中で長年月を要する照射損傷状態が高速の重イオン照射により時間の

単位で実現できることである。加速器照射では誘導放射能が残らないことも材料の取扱いを容易にして大きな利点となる。ボイドスウェリングを加速器照射によって調べる研究は1969年Nelsonら^{2,3)}によつてはじめられて以来、多くの研究が主として数MeVから数10MeVの高エネルギー加速器で行なわれ興味ある結果が得られている。^{4)~8)}これらの研究が低エネルギーでも実施できれば上述した加速器照射の利点はさらに強調される。しかし低エネルギー重イオンは飛程が短いためターゲット材料のうける損傷は表面近傍に限られ、材料の深部でできる損傷と同じ性質のものであるかどうかは低エネルギー加速器照射では十分検討する必要がある。われわれは低エネルギー重イオンによるボイド生成を調べスウェリングシミュレーションの可能性を検討している。この実験は現在継続中であるが今まで200keV C^{+} イオン照射によって得られた結果について述べる。

高速の中性子または重イオンの照射によって金属材料中には多数のフレンケル対が生じるが高温条件下ではじき出された格子間原子は移動消滅し、残された原子空孔の濃度が高まって過飽和状態になると原子空孔が集まってボイドに成長する。加速器照射によるスウェリングシミュレーションでは基本的には重イオンによって生じるはじき出し原子数を高速中性子によるはじき出し原子数に一致するように重イオン照射量を調整することによって同等のボイド生成を実現しようとするものである。Fig. 1は鉄200keV C^{+} イオンで照射した場合のはじき出し原子数の分布状態を示す損傷曲線である。この曲線は C^{+} イオンの照射によって鉄中に生じるはじき出し原子数がKinchin-Peaseモデルに従いイオンの弾性衝突によるエネルギー損失 $(dE/dx)_n$ に比例するとし、またイオンのエネルギー損失および飛程はLSS理論に従い、飛程のばらつきはガウス分布すると仮定して計算により求めたものである。計算ではじき出しのしきいエネルギーを24eVとした。図の縦軸のdisplacement per atom (以下dpaと略す)は入射イオンによってはじき出される原子数のもとの格子原子数に対する割合である。図から200keV C^{+} イオンの入射方向に沿った飛程は約1600Åであり、1200Å近傍を中心に照射損傷が起きることが予想される。

高速中性子によるはじき出し原子数をKinchin-Peaseモデルに従い高速実験炉「常陽」の炉心のエネルギースペクトルに対して計算すると、 1.6×10^{-21} dpa/neutron/cm²が得られる。一方Fig. 1からわかるように C^{+} イオンによるはじき出し原子数の最大値は約 10^{-15} dpa/ion/cm²であり、中性子の 10^6 倍近い。高速炉の炉心で約3年かかる 1×10^{23} n/cm²の照射量に相当するはじき出し原子数は160dpaで、200keV C^{+} イオンの照射では3μA/cm²のビーム電流で約2.5時間で達成できることになる。

イオン照射には東芝200KVイオン加速器を使用した。照射ははじめにHe⁺イオンの注入を行ない、続いて試料を高温に加熱した状態で C^{+} イオンを照射する。照射後試料は電解研磨し透過型電子顕微鏡により観察する。観察されたボイドの大きさ(直径)および密度から体積膨張率 $\Delta V/V$ を計算する。 ΔV はボイドの全体積であり、 V は最初の体積である。

3種のオーステナイト系ステンレス鋼SUS 304, SUS 316, AISI 321の熔体化処理材をHe⁺イオン注入した後 C^{+} イオン照射した結果いずれの試料にも多数の顕著なボイドが観察された。Fig. 2は代表的な各種ステンレス鋼の透過型電子顕微鏡写真である。参考のためSUS 304の未照射材の写真を(d)に示した。各試料とも C^{+} イオン照射量53.5dpa, 温度625℃で同一条件である。3種のステンレス鋼のボイド平均径を比較するとSUS 304が250Åであるのに対しSUS 316が282Åでやや大きくAISI 321は81Åときわめて小さく、組成の違いがボイドの成長に大きな影響もっていることが示唆される。

ポイドは一般に多角形の形状を示し、低指数方向からの観察によりポイドは基本的には(111)面で囲まれ、(100)面で角をとられた八面体で構成されていることがわかる。Fig. 3(a)は(100)面に直角に、また(b)は(110)面に直角に電子ビームを当てて撮った透過電顕写真でそれぞれ四角形および六角形のポイドが観察された。これらはしばしば角がとれたりあるいは特定方向に成長して変形する。またときにはほぼ円形に近いポイドになることもある。

生じたポイドの分布状態を調べるとFig. 2に見られるように結晶粒内に一様に分布しているもののほか、ポイドが転位や転位網と結合しているもの、結晶粒界に沿ってポイドの denuded zone をつくっているものなども見られる。双晶のつくる粒界はポイドの分布に影響せず、denuded zone はあらわれない。

観察されたポイドは照射温度による顕著な依存性を示す。Fig. 4(a), (b)はSUS304についてそれぞれ平均ポイド径およびポイド密度の温度依存性を調べた結果である。照射条件は He^+ イオン 1.9×10^{16} ions/cm², C^+ イオン178 dpaである。ポイド径は400°C~500°Cでは100Å以下で小さいが、温度の上昇とともに粗大化し、700°Cでは400Å以上になる。一方ポイド密度は温度とともに減少していく。この結果、Fig. 5に示したようにポイドの発生による体積膨張率は500°C以下では1%以下であるが、温度が上昇するにしたがって増大し600°C前後で最大値(ピークスウェリング)、18%をとり、さらに高温では減少する典型的なスウェリングの温度特性を示す。この特性は304鋼の高速炉照射のデータよりBrager⁹⁾により与えられている実験式と比較すると、ピークスウェリング温度が高温側へ約150°Cずれている以外は良く似た傾向を示している。照射の際の原子変位の生成率によってスウェリング温度が変化することは理論的に予測されることで、典型的な高速炉の中性子照射においては 10^{-6} dpa/sec, 加速器照射では通常 $10^{-3} \sim 10^{-2}$ dpa/secの生成率であることを考慮すればピークスウェリング温度のずれは定量的にも理解できる。すなわちこの温度のずれはBulloughおよびPerrinにより理論的に次式で与えられる¹⁰⁾。

$$\Delta T = T_i^2 \left(\frac{k}{E_v} \frac{1}{1 + \frac{kT_i}{E_v} \ln \left(\frac{K_i}{K_n} \right)} \right) \ln \left(\frac{K_i}{K_n} \right)$$

ここで、 T_i : イオン照射温度, k : Boltzman 常数, E_v : 原子空孔の拡散エネルギー, K_i : イオン照射時の原子変位生成率, K_n : 中性子照射時の原子変位生成率である。この式により本実験における200 keV C^+ イオン照射と高速炉照射を比較すると $\Delta T \approx 180^\circ\text{C}$ が得られ実験結果とほぼ一致している。

重イオン照射のときヘリウム原子を注入しない場合でもポイドの生成は認められているが、ヘリウムの注入によりポイドの密度は著しく増大し体積膨張も大きくなることも事実である。あらかじめ He^+ イオンを 1.9×10^{16} ions/cm² 注入した後625°Cで178 dpaの200 keV C^+ イオン照射したSUS304はポイド平均径320Å, ポイド密度 7.8×10^{15} /cm³であり約18%の体積膨張率が得られたが、 He^+ イオンを注入しただけで上記 C^+ イオン照射に相当する2時間の間625°Cに加熱した試料では多数の小さいヘリウムガス気泡が観測された。ガス気泡は結晶粒内、粒界に一様に分布し粒界近傍にdenuded zoneは認められない。この気泡は平均径70Åで密度 8.1×10^{17} /cm³であり気泡の占める体積は2.1%になる。 C^+ イオン照射によってポイド径は大きくなり、逆に密度は減少することが判明した。この結果ははじめ注入された個々のヘリウム原子が集合して小さな集合体で

あるガス気泡ができ、そこへ C^{+} イオン照射によって多数にできた原子空孔が流入して大きなボイドに成長するボイド発生、成長機構を示唆している。

200 keV C^{+} イオン照射ではヘリウムの注入量のボイド生成およびスウェリングに対する効果はきわめて直接的で、体積膨張率はヘリウム注入量にほぼ比例して増大する。Fig.6に2条件の He^{+} イオン注入量に対して、200 keV C^{+} イオンの照射量による体積膨張率をSUS304鋼について測定した結果を示す。照射温度は625°Cである。図には高速炉照射によるデータ（照射温度500°C前後）を併記した。 C^{+} イオン照射量とともにボイド平均径は大きくなり、密度は減少するが全体としての体積膨張率は図に示すように増大する。照射量依存性はヘリウム量で少し異なっていて、 $1.9 \times 10^{18} He^{+}/cm^2$ では飽和する傾向を示すのに対し、 $5.7 \times 10^{18} He^{+}/cm^2$ では $(C^{+}照射量)^{1 \sim 2}$ に比例する。後者のヘリウム量は $10^{21} \sim 5 \times 10^{22} n/cm^2$ で高速炉照射のデータと良い一致を示している。一方 $5 \times 10^{22} n/cm^2$ 以上になると炉照射の体積膨張率も急激に増大する傾向を示し、ヘリウム量の多い場合の方が近い値をとるようになる。この結果から、200 keV C^{+} イオン照射によるボイド生成では照射量に応じて注入ヘリウム量を調整することにより高速炉照射におけるスウェリングをシミュレートすることができると考えられる。ヘリウム量の詳細な定量的評価は今後さらに検討を要するが、 (n, α) 反応により材料中に蓄積されるヘリウム量は当然中性子照射量に比例して増大する筈であり、上記ヘリウム注入量依存に関する結果は妥当なものと考えられる。

本研究は昭和47年度科学技術庁平和利用研究の委託をうけ、東芝総合研究所島田将之、中東重雄、飯村正志各氏の協力を得て実施した。

References

- (1) Cawthon C. and Fulton E. J.: Nature 216 (1967) 515.
- (2) Nelson R. S. and Mazey D. J.: Radiation Damage in Reactor Materials, Vol. II (IAEA, Vienna, 1969).
- (3) Nelson R. S., Mazey D. J. and Hudson J. A.: J. Nucl. Mater., 37 (1970) 1.
- (4) Kulcinski G. L., Brimhall J. L. and Kissinger H. E.: Radiation Induced Voids in Metals, Ed. by Corbett J. W. and Ianiello L. C. (USAEC, 1972) P.449.
- (5) Armijo J. S. and Lauritzen T.: *ibid*, P.479.
- (6) Keefer D. W., Pard A. G. and Kramer D.: *ibid*, P.511.
- (7) Hudson J. A., Mazey D. J. and Nelson R. S.: J. Nucl. Mater., 41 (1971) 241.
- (8) Mazey D. J., Hudson J. A. and Nelson R.S.: *ibid*, 41 (1971) 257.
- (9) Brager H. R., Straalsund J. L., Holmes J. J. and Bates J. F.: USAEC Report, WHAN-FR-16, WADCO (1970).
- (10) Bullough R. and Perrin R. C.: Voids Formed by Irradiation of Reactor Materials, Ed. by Pugh S. F., Loretto M. H. and Norris D. I. R. (BNES, Harwell, 1971) P.79.

- (11) Bates J. B. and Straalsund J. L.: Nucl. Tech., 14 (1972) 292.
- (12) Claudson T. T., Holmes J. J., Straalsund J. L. and Brager H. R.: Radiation Damage in Reactor Materials, Vol. II (IAEA, Vienna, 1969) P.165.
- (13) Harkness S. D. and Yu-Li Che: *ibid*, P.189.
- (14) Harkness S. D. and Yu-Li Che: Met. Trans. 2 (1971) 1457.
- (15) Comprelli F. A., Oldberg S. and Sandusky D.: GEAP-13517 (1969).

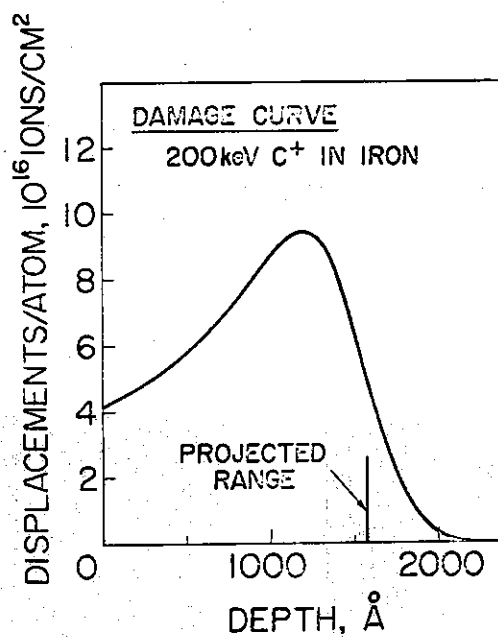


Fig.1. Damage Curve for Stainless Steel irradiated by 200-keV C^+ ions. LSS theory and Kinchin-Pease model are used. Threshold energy of 24 eV is adopted.

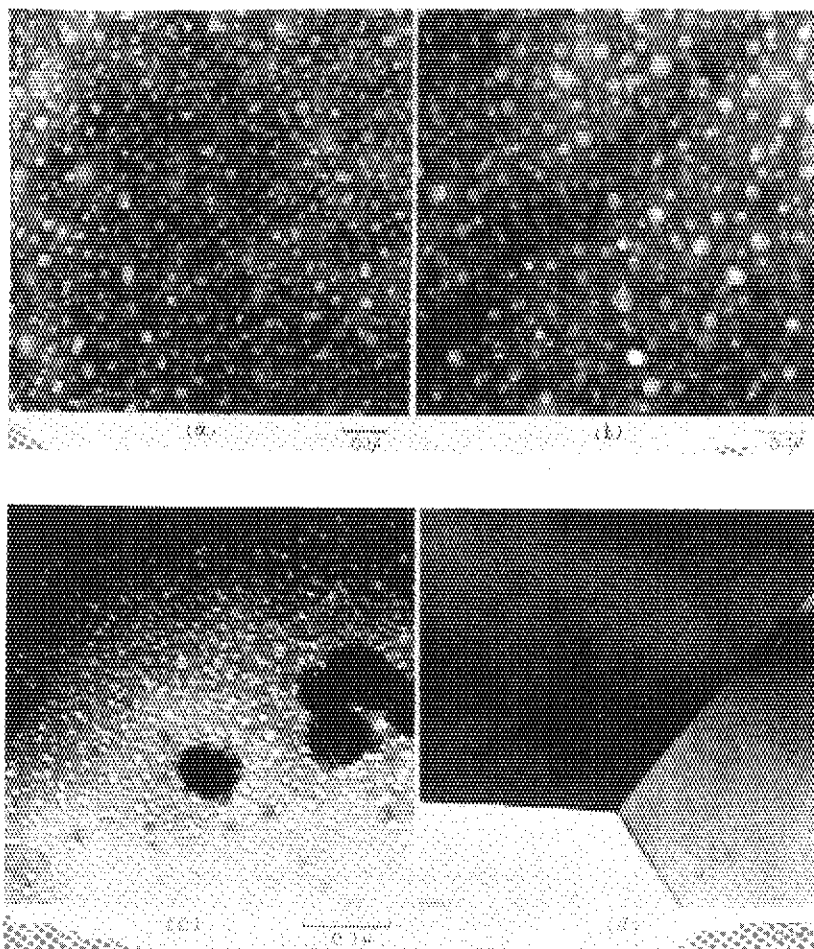


Fig.2. Representative transmission electron micrographs showing the distribution of voids in (a) SUS304, (b) SUS316 and (c) AISI321. (d) is unirradiated SUS304.

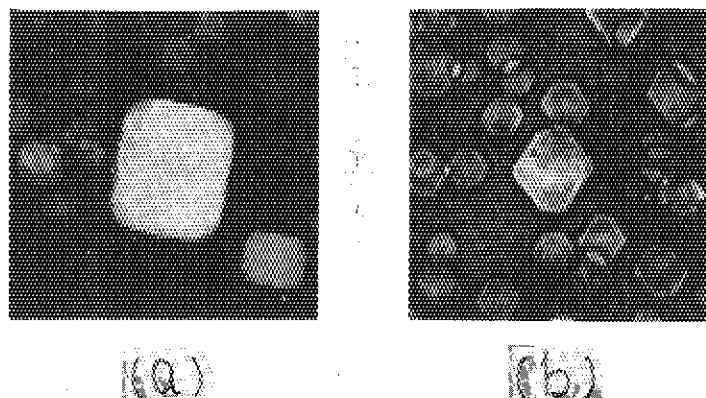


Fig.3. Transmission electron micrographs showing shape. (a) incident electron beam normal to (100) plane. (b) incident electron beam normal to (110) plane.

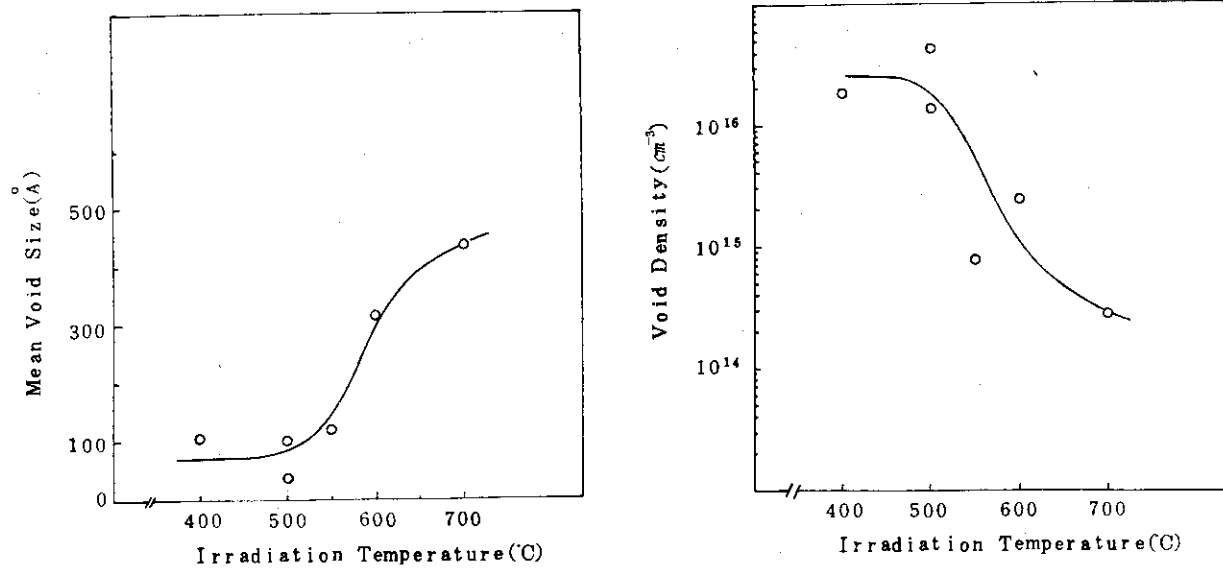


Fig.4. Temperature dependence of (a) mean void diameter and (b) void density for SUS304.

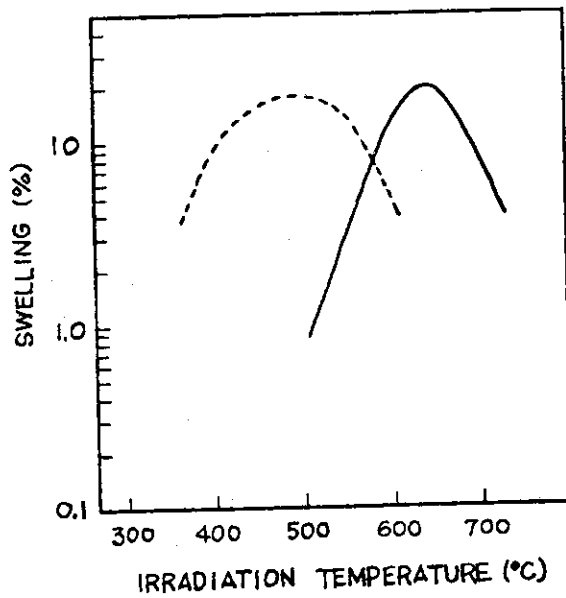


Fig.5. Temperature dependence of volume increase. Solid-line curve represents heavy ion-induced voidage, and dashed-line curve neutron induced voidage.

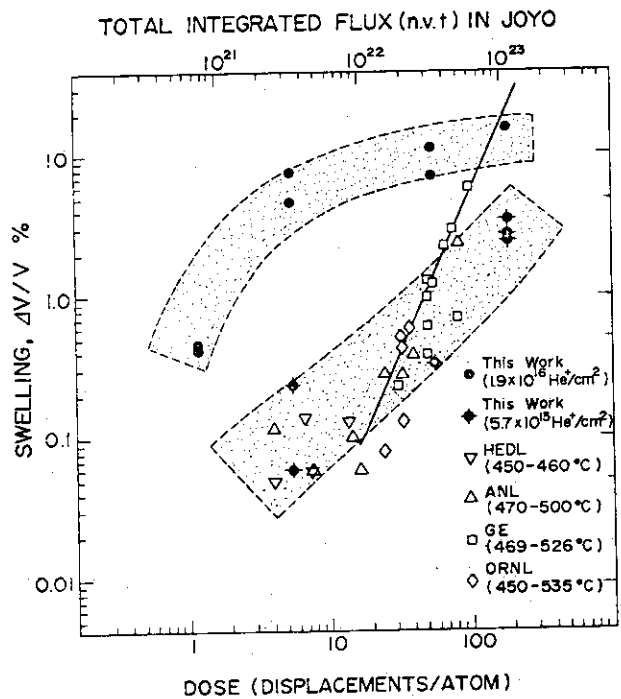


Fig.6. Dependence of void increase on C⁺ ion dose for two kinds of helium pre-injection. Solid curve is calculated by the empirical equation of Brager et al. Neutron data are quoted from References (11), (12), (13), (14) and (15).

1.4 原研 2 MV V.d.G.による重イオン照射損傷の研究

日本原子力研究所 土井 健治
(茨城県那珂郡東海村)

Solid State Physics Studies with Heavy Ions
from JAERI 2 MV Van de Graaff Accelerator

Kenji DOI
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki)

Solid state studies recently carried out at JAERI with heavy ions from 2 MV Van de Graaff accelerator are described. They are: 1. Studies of color center formation in LiF and NaF crystals with N^{2+} ion bombardement. 2. Channeling measurements with H^+ and He^+ ions along $[00,1]$ axis of pyrolytic graphite.

原研 2 ミリオンボルト・バン・デ・グラフ加速器よりの重イオンビームを用いて最近行なわれた照射実験及びビーム実験について報告する。

1. 窒素イオン照射によるイオン結晶の色中心の生成¹⁾

0.7 MeV の N^{2+} イオンを LiF, NaF 結晶に照射し、結晶の吸収スペクトルを照射量の関数として測定した。LiF において 250 nm, NaF において 342 nm にあらわれる、いわゆる F・中心による吸収の強さを測定した、照射電流は約 0.05 μA 、照射量はカレント・インテグレーターで測定した。照射後、結晶面の光学顕微鏡観察を行なった。

結果を Fig. 1 に示す。陽子を用いて同様の実験結果が Fig. 2 に示されている。ここで R, M, N 等の中心は F 中心がそれぞれ 2, 3, 4 個 集合して作った複合中心であり、F 中心より 2 次的に生成されたものである。

これらの結果を比較すれば重イオン照射効果の特徴として次のことが結論される。

- 1 次的に生成した色中心の最大密度 (Fig. 1, 2 の極大点に対応する) が重イオン照射によるものの方が大きい値を示す。NaF において 0.7 MeV N^{2+} 照射においてこの値は $3.8 \times 10^{19}/cm^2$ であるのに対し、1 MeV の陽子照射においては $2.7 \times 10^{19}/cm^2$ であった。
- Fig. 1, 2 の曲線の原点近くの傾斜から F 中心の生成エネルギーが見積られる。この値を他の文献値と共に Table 1 に示す。陽子による値と N^{2+} 等の重イオンによる値との間には顕著な系統的な相異が見られる。
- Fig. 3 に示すように、照射の最終段階で析出する金属原子は結晶表面上に特異な島状の構造を形造っていることが観察される。

以上 a, b, c で述べた諸効果は、本実験では 2 価のイオンを用いたためイオン質量の効果に荷電の効果が重畳している可能性がある。この点を明らかにするため、同じエネルギーの 1 価イオンによる照射実験が進行中である。

2. パイロリティック黒鉛結晶のチャネリングにおける重イオン効果²⁾

パイロリティック黒鉛のような層状結晶の原子図に垂直な方向に 0.9 MeV 陽子を入射したときのチャネリング・パターンを Fig. 4 に示す。同様のチャネリング・パターンは 1.8 MeV の He^+ を用いても得られるが、パターンのディップの深さ $\chi_{\min}$ 及びその照射量、照射温度への依存の様子は陽子と He^+ との間でかなり顕著な相異を示す。その様子を Fig. 5 に示す。横軸は照射量、縦軸が $\chi_{\min}$ の値である。ここに見られるように He^+ による照射による格子間原子の生成は陽子によるものに比べてはるかに速い、横軸を dpa 尺度に規格化すると陽子による曲線と He^+ による曲線とは殆んど一致する。この差は照射イオンの質量の効果をあらわすものと思われる。

200°C で照射した試料において損傷が回復していることは、ウィグナー効果に対応するものである。

References

- 1) Kubo, Kazumata & Tomimitsu : J. Phys. Soc. Japan 34 (1973), 1536
- 2) 岩田, 小牧, 富満, 川面, 小沢, 土井: 物理学会分科会, 1973, 横浜

Table 1 Formation energies of an F-center (eV).

	LiF	NaF	Ref.
^{14}N ions (0.7 MeV)	232	578	
^{40}Ar ions (3 MeV)	1150		(1)
^3He ions (3 MeV)	666		(1)
protons (1 MeV)	420	1050	
electrons (2 MeV)	3000		(1)
X-rays	620	1300	(2)
X-rays (50 keV)	1800		(1)
(15 keV)	850		
(10 keV)	3800		

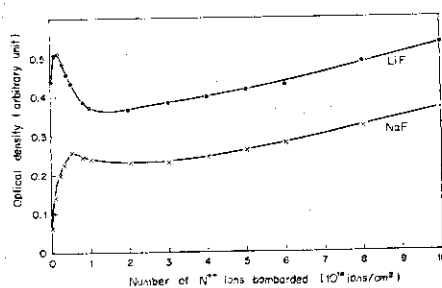


Fig. 1. Growth curves of F-light absorption produced by 0.7 MeV N^{++} ions in LiF (---) and NaF (-x-).

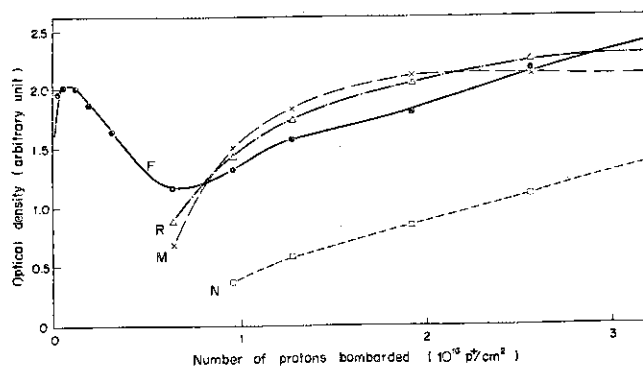


Fig. 2. Growth curves of F-, M-, R- and N-light absorption produced by 1 MeV protons in NaF, represented by (---), (-x-), (-Δ-) and (-□-), respectively.

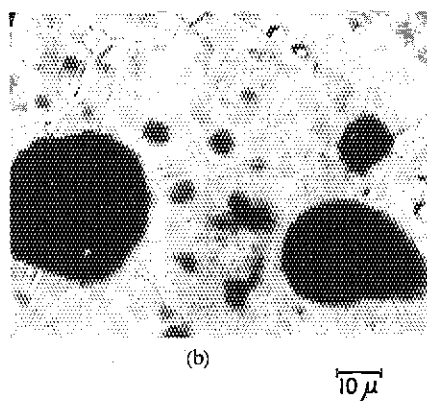
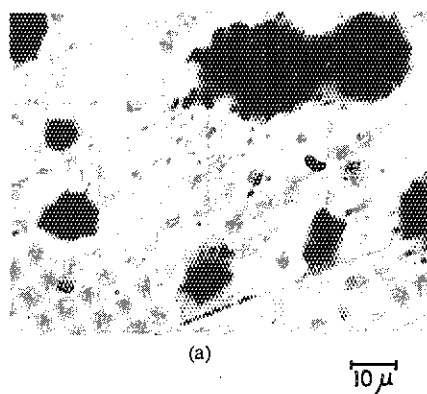


Fig. 3. Metallic films formed by N^{++} ion bombardment: ($10^{15} N^{++}/cm^2$): (a) Li-film on LiF crystal, and (b) Na-film on NaF crystal.

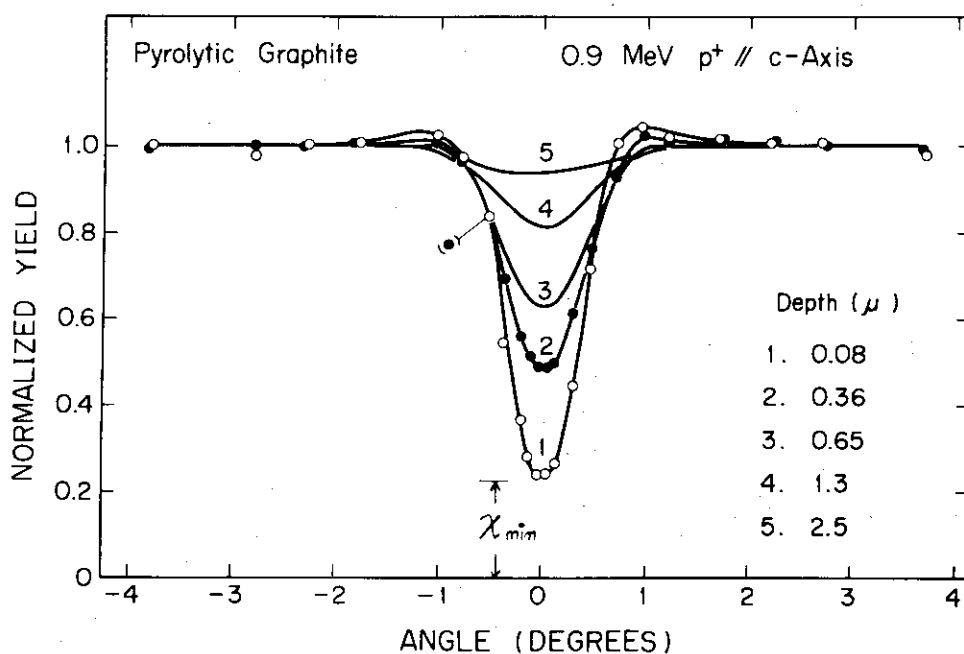


Fig. 4. Yield of backscattered protons when 0.9 MeV protons are incident nearly parallel to the $[00,1]$ axis of pyrolytic graphite.

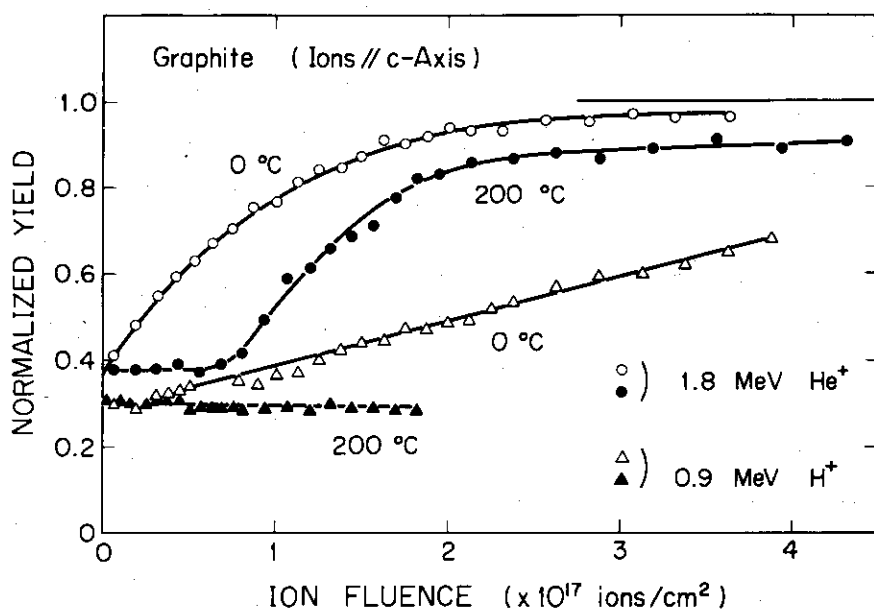


Fig. 5. Variation of minimum yield χ_{min} with fluences. Data with 0.9 MeV H^+ and 1.8 MeV He^+ are represented for irradiation temperatures of 0°C and 200°C.

1.5 重イオン研究のセラミックス燃料への応用

日本原子力研究所 那 須 昭 一

(茨城県那珂郡東海村)

The Application of Heavy Ion Research to Ceramic Fuels Investigations

Shoichi NASU
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naga-gun, Ibaraki)

Summaries of experimental results on the migration of gas bubbles, the heavy-ion damage, the study of the surface oxidation using the channeling technique and Mössbauer-effect observations following Coulomb excitation are briefly presented, and some general trends are pointed out as the application of heavy-ion research to ceramic fuels investigations.

多くの解説にみられる原子炉材料に対する加速器実験の効能書はセラミックス燃料に対してもそのまま通用する。効能書には、照射効果を短時間におこさせる、重要な因子をとりだした実験ができる、炉外実験ができる、などが強調されている。しかし、慎重な考慮をしないと、これら長所は簡単に欠点にかわることも充分可能である。以下に、セラミックス燃料に対する加速器実験の応用例について簡単に紹介する。

1. 気泡の生長と移動

一核分裂あたり約0.25の割合いで生成するKrとXeは、原子半径が大きく、化学的に不活性であるために、これら希ガス原子は固体の中に溶けにくい。核燃料中のKrやXe原子は、数多くの気泡として生長し、生長した気泡は燃料中を移動し、結晶粒界などに捕獲されたりする。これらの気泡の挙動は、核燃料のスエリングと密接な関係にあるので、核燃料の健全性と安全性を評価するにあたって、希ガス気泡の挙動は充分に解明されなければならない。これを目的とした、これまで文献上にあらわれた加速器実験の概略を表1に示す。なおチャンネリング現象やブロッキング現象を用いて、KrやXeを含む核分裂原子の結晶格子中での位置の同定に関する実験例は、菊池による解説(1)に含まれているので省略する。

表1からわかるように、セラミックス燃料に対する加速器実験の例はきわめて少い。これはセラミックス燃料が比較的新しい物質であり、照射効果の極め手になるのは、やはり照射前のいわゆる物性といわれている物理的・化学的性質の把握が重要であったことを物語っている。

ところで気泡の挙動を解明するために行なわれてきた実験手順は、どれも本質的には同じで、独創的あるいはゲリラ戦法的実験例は見当らない。その方法は、加速器で希ガスを打ちこんだ試料の熱処理を行ない、気泡を発生させて、電子顕微鏡の直接観察やレプリカ法による観察を行ない、気泡の移動速度と半径との関係、気泡の分布状態などを調べて、気泡の移動の機構を推定する方法である。

気泡の移動は、その物質の体積拡散、表面拡散および蒸発の各過程によって支配され、駆動力は温度勾配である。温度 T における、半径 r の気泡の速度は、各過程に対応して、それぞれ次式によって与えられる。

$$v_B = \{ D_v Q_v^* / (kT^2) \} \Delta T, \quad (\text{体積拡散}) \quad (1)$$

$$v_B = \{ 2 D_s \delta Q_s^* / (kT^2 r) \} \frac{3}{2} \Delta T, \quad (\text{表面拡散}) \quad (2)$$

$$v_B = \{ D_g \Omega P_v \Delta H_v / (k^2 T^3) \} \frac{3}{2} \Delta T, \quad (\text{蒸 発}) \quad (3)$$

$$D_g = \frac{2kT}{3P\sigma} \sqrt{\frac{2kT}{\pi} \left(\frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2} \right)}, \quad (4)$$

ここで ΔT は温度勾配、 P は気泡内のガス圧で $P = 2\gamma/r$ であらわされ、他の記号の定義および UO_2 の場合の概略の数値を表 2 に示す。これらの各式の定性的な特徴として、気泡の移動速度は体積拡散では半径に無関係、表面拡散では半径に逆比例、蒸発では半径に比例する。

図 1 に Williamson と Cornell (2) による Kr を注入した UO_2 薄片中の気泡の電子顕微鏡観察像のスケッチを示す。矢印は気泡の移動した方向と大きさをあらわす。小さい気泡の方が大きい気泡よりはやく温度の高い方へ移動しているので気泡の移動は表面拡散過程が支配的であることを示唆している。図 2 および図 3 に、おのおの表面拡散過程および体積拡散過程が支配的であると考えられる UC (3) および UN (4) における気泡の移動速度と半径との関係の各例を示す。

(2) から (6) までの仕事は不確定因子が多く、定量性にとぼしいが、最近、Buescher と Meyer (7) は UO_2 試料の温度勾配の温度を正確に測定し、 $100\text{\AA}$ から $1\mu\text{m}$ までの広範囲にわたる半径をもつ気泡の挙動を比較的定量的に研究した。温度勾配のある場合に発生した気泡の分布は、温度勾配のない場合に発生したそれとほとんど差はなく、図 4 に示すように、気泡の半径の大きさは約 $100\text{\AA}$ から $1\mu\text{m}$ にまでに分布している。次に温度勾配 $1030^\circ\text{C}/\text{cm}$ で、 1940°C における気泡の移動速度と半径との関係を図 5 に示す。移動速度は半径に依存していないから、体積拡散過程が支配的であるようであるが、①式と表 2 の値を使って移動速度を評価すると、実験値の方が約 6 桁大きい。また 1800°C における気泡の拡散係数と半径との関係を求めてみると図 6 のようになり、気泡の拡散係数は、体積拡散過程や蒸発過程から予測される値より大きく、表面拡散過程から予測される値よりも小さい。そこで彼等は、気泡内のガスと、 UO_2 ガスの衝突が気泡の移動速度を支配するという新しい機構を提案し、実験事実をうまく説明することに成功した。

加速器実験では、核分裂スパイクによって生じる過剰の空孔が気泡の生成や挙動に与える効果を無視していることに注意しなければならない。

なおセラミックス燃料中に希ガスを注入する別の方法として、希ガス雰囲気中のスパッタリングにより薄片試料を作成する方法がある⁽⁸⁾。この方法の特徴は、希ガス原子が試料全体に均一に注入されることである。

2. 重イオン照射損傷

セラミックス燃料はそれ自身を構成している原子が核分裂をおこし、質量数にして 72 から 161 までの広範囲にまたがる核分裂片、すなわち重イオンによる複雑な照射損傷を受ける。しかし加速器を使った、セラミックス燃料に対する重イオン照射損傷の研究例はほとんどない。Matzke (9) は UO_2 薄片試料に 40keV の Xe イオンを $2 \times 10^{18} \text{ ions}/\text{cm}^2$ 程度打ちこみ、透過電子顕微鏡観察を行

ない、1000℃で5分間熱処理した試料に、数多くの黒い斑点を観測している。またMatzke と Whitton (10) は、 UO_2 、 ThO_2 、 UC を含む立方晶結晶体に40 KeVのKrやXeのイオンを 2×10^{19} ions/cm²程度打ち込み、反射電子回折像の変化を調べていった。しかし彼等はこの程度のエネルギーや照射量では、反射電子回折像にはほとんど変化がなかったと報告している。しかし最近の塩沢ら(11)の予備実験によると、 UO_2 エピタキシャル膜を10 KeVのArで約 10^{18} ions/cm²照射した場合の電子顕微鏡像および制限視野回折像は、照射前のそれらとくらべて、図7に示すように、いちぢるしく変化している。

3. 表面酸化

核分裂ガス放出は、表面状態に依存すると考えられるので、セラミックス燃料の表面状態の研究は重要である。Matzke (12) は、チャンネリング技術を利用して、 UC の表面酸化反応を研究した。図8に、単結晶 UC に対する1 MeVのHeイオンの後方散乱スペクトルを示す。炭素原子による衝突断面積はウランによるそれにくらべて、約1%であるので、炭素原子による後方散乱スペクトルは検出されていない。 χ_{min} は約3%で、 UC の結晶性はよい。空气中に長時間さらすと、表面附近のウラン原子による散乱に対応するピークが大きくなっている。これは UC の表面が酸化された結果、表面近くのウラン原子の位置が乱れて、チャンネリングするイオンの数が減少していくことに対応している。この結果から、表面酸化層の厚さを評価し、酸化層の厚さと、空气中にさらした時間との関係を示したのが図9である。酸化層の厚さは時間の平方根に比例しているので、 UC の表面酸化反応は、体積拡散が支配的であることを示唆している。

原研においても、那須ら(13)により、 UN 単結晶の表面酸化反応を目的とした同様な実験が試みられつつある。結果の一部を図10から12にかけて示す。図12には、1.8 MeVの He^+ イオンを UN 単結晶の $\langle 100 \rangle$ 方向に平行に照射した場合の χ_{min} と照射量との関係を示す。実験の都合上、 8×10^{18} ions/cm²程度しか照射していないが、チャンネリング方向にこの程度照射したかぎりではウランの格子はあまり乱されていないようである。

4. メスbauer効果

アクチナイド原子は、低い励起状態のクーロン励起断面積が大きいので、クーロン励起によるメスbauer効果の実験にとって、好都合な核種である。アクチナイド原子には、通常のメスbauer効果に利用できる核種として、 Np^{237} 、 U^{238} および Am^{243} が存在するが、これらの核種に対応する線源核種はすべてグローブ・ボックス内で取扱わなければならないという致命的欠点がある。

図13に、アイオワ大学におけるクーロン励起によるメスbauer効果の実験装置のクライオスタットの上面図を示す。アクチナイド化合物に対しては、現在までのところ、 Th 金属、 ThO_2 、 ThN 、および ThC_2 中の Th^{232} の第一励起状態からの γ 線によるクーロン励起によるメスbauer効果の研究報告がある。図14に吸収体 ThO_2 、線源 Th 金属の実験結果を示す。 ThO_2 に対する Th 金属のアイソマーシフトは、 $+0.08 \pm 0.09$ mm/secで、分解能はよくない。この種の実験では、重イオンの打ちこみがおこなわれるために、非晶質に近い固体中の原子とか、照射損傷を受けて正規の格子位置に存在しない原子の問題を取りあつかっていることになる点に特に留意しなければならない。

References

- (1) Kikuchi T.: IPCR Cyclotron Progress Report. Supplement 2 76 (1972) (in Japanese)
- (2) Williamson G. K. and Cornell R. M.: J. Nucl. Mater, 13 278 (1964)
- (3) DeCrescente M. A. and Selleck E. G.: Pratt and Whitney Aircraft (USA) Report PWAC-476 (1965)
- (4) Weaver S. C.: Oak Ridge National Laboratory (USA) Report ORNL-TM-2016 (1967)
- (5) Cornell R. M. and Bamister G. H.: Proc. Brit. Ceram. Soc. 7 355 (1967)
- (6) Ervin, G. Jr.: Atomic International (USA) Report No. AI-AEC-12984 (1971)
- (7) Buescher B. J. and Meyer R. O.: J. Nucl. Mater, 48 143 (1973)
- (8) Marlowe, M. O.: NEDO-12290 (1972)
- (9) Matzke, HJ.: Nucl. Applications, 2 131 (1966)
- (10) Matzke, HJ. and Whitton, J. L.: Can. J. Phys. 44 995 (1966)
- (11) Shiozawa, K., Nasu, S., and Kurasawa, T. (unpublished)
- (12) Matzke, HJ.: J. Appl. Phys. 40 3819 (1969)
- (13) Nasu, S., Komaki, K., Ozawa, K., Shiozawa, K., Kurasawa, T., Kawazura, S., Takada, T. and Kikuchi, T.: (unpublished)
- (14) Jacobs, C. J. and Hershkowitz, N.: Phys. Rev. B 1 839 (1970)
- (15) Hershkowitz, N., Jacobs, C. G., Jr., and Murphy, K. A.: Phys. Letters 27B 563 (1968)
- (16) Durkee, P. and Hershkowitz, N.: Phys. Rev. B 3 3607 (1971)

Table 1. Summary of reported bubble migrations in nuclear fuel materials.

Reference	Temperature gradient ($^{\circ}\text{C}/\text{cm}$)	Temperature range ($^{\circ}\text{C}$)	Bubble size range (diameter)	Material	Injected ion	Accelerator	Dose
Williams or Cornell (2)	unknown	$\sim 1250-1450$	$\sim 50-250\text{\AA}$	UO_2 (Thin film)	Kr^+ 100KeV	LINAC	4×10^{15} ions/ cm^2
DeCrescente Selleck (3)	500	750	100-2000 $\text{\AA}$	UC (Sintered)	He^+ 100KeV	Cockcroft-Walton	$1 \sim 2 \times 10^{19}$ ions/ cm^2
Weaver (4)	75-880	985-1585	200-1400 $\text{\AA}$	UN (Sintered)	He^+ 250KeV	Cockcroft-Walton	1.1×10^{19} $\sim 3.2 \times 10^{16}$ ions/ cm^2
Cornell Bannister (5)	0	1500-1600	60-220 $\text{\AA}$	UO_2 (Thin film)	Kr^+ 100KeV	LINAC	4×10^{15} ions/ cm^2
Ervin (6)	1000	800-1500	$\sim 200\text{\AA}$	UC (Zone-melted)	He^+ $^{299}\text{He}^+$ $\sim 30\text{MeV}$	Cyclotron	3.5×10^{18} $\sim 1.4 \times 10^{19}$ ions/ cm^2
Buescher Meyer (7)	1030 1038	1940-2020	$\sim 200\text{\AA}-2\mu\text{m}$	UO_2 (Single crystal)	H^+ 14MeV	Cyclotron	10^{17} ions/ cm^2

Table 2 Definition of quantities used in calculations (7)

Symbol		
D_v	Volume-self-diffusion coefficient	$6.8 \times 10^{-5} \exp(-98\,300/RT) \text{ cm}^2/\text{sec}$
Q_v^*	Volume-diffusion heat of transport	50 000 cal/mole
D_s	Surface-self-diffusion coefficient	$5.4 \times 10^5 \exp(-108\,000/RT) \text{ cm}^2/\text{sec}$
Q_s^*	Surface-diffusion heat of transport	100 000 cal/mole
δ	Depth of surface diffusing layer	$\Omega^{1/3} = 3.4 \times 10^{-8} \text{ cm}$
p_v	Total equilibrium vapor pressure	$4.11 \times 10^8 \exp(-143\,100/RT) \text{ atm}$
ΔH_v	Heat of vaporization	143 100 cal/mole
Ω	Molecular volume in solid	$4.09 \times 10^{-23} \text{ cm}^3$
σ	Collision cross section	$38.5 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$
m_1	Molecular mass of gas in bubble	$0.664 \times 10^{-23} \text{ g}$ (4 g/mole, helium) $16.6 \times 10^{-23} \text{ g}$ (100 g/mole, fission gas)
m_2	Molecular mass of UO_2	$44.8 \times 10^{-23} \text{ g}$ (270 g/mole)
γ	Surface energy	626 erg/ cm^2

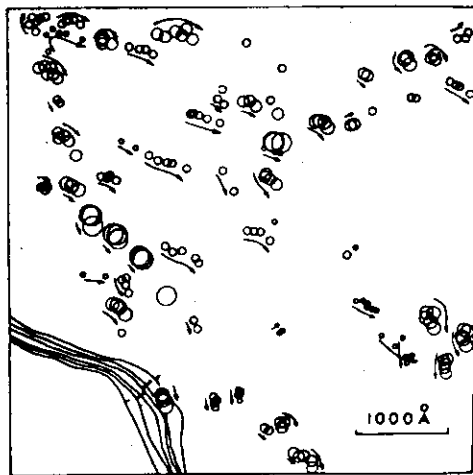


Fig. 1. This is a schematic sketch showing the movements made by the various bubbles, during the fifteen minute annealing period. For each bubble, the circle drawn shows its positions on successive plates taken about three minutes apart (2).

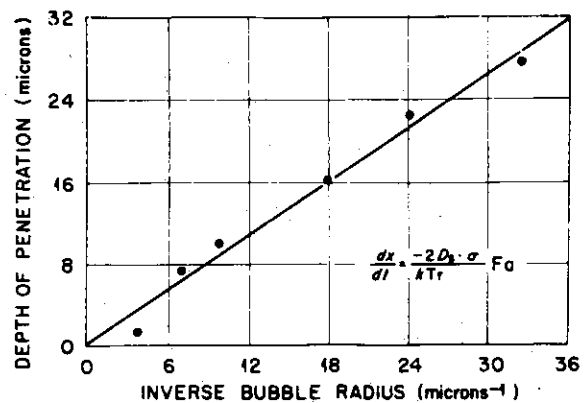


Fig. 2. Helium bubble migration distance in uranium monocarbide as a function of average reciprocal bubble radius (3).

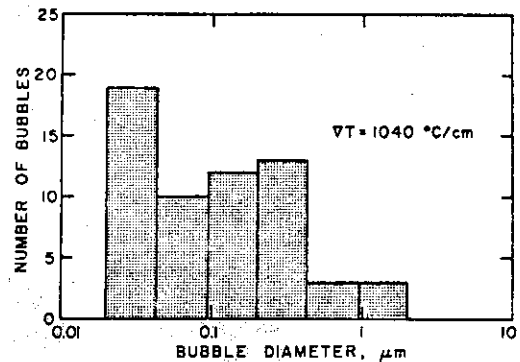


Fig. 4. Histogram that shows bubble-size distribution observed on fractured surface of a sample, which was annealed in a temperature gradient (7).

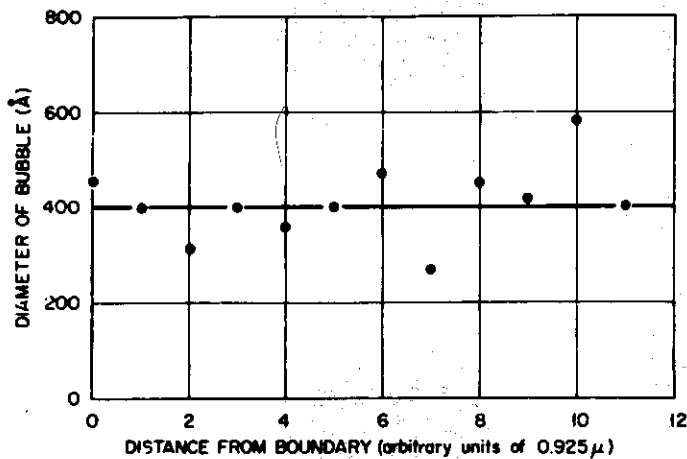


Fig. 3. Helium bubble migration distance in uranium mononitride as a function of bubble radius (4).

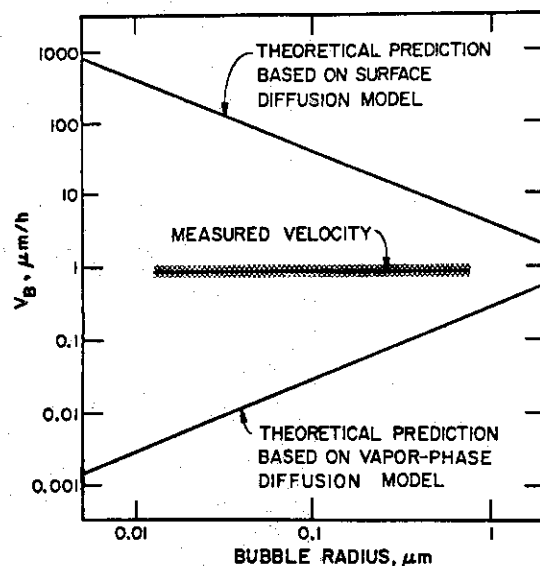


Fig. 5. Size dependence of bubble velocities in a temperature gradient of 1030 °C/cm at 1940 °C compared with calculated model predictions for the same annealing conditions (7).

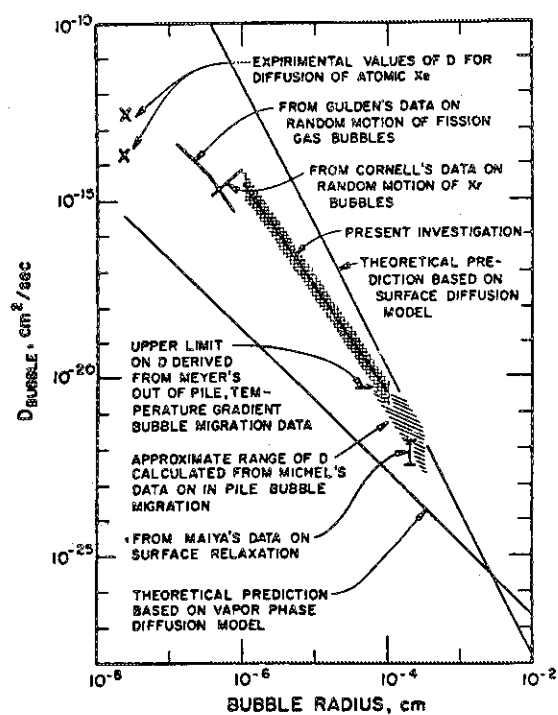


Fig. 6. Bubble-diffusion coefficient as a function of bubble radius at 1800 °C (7).

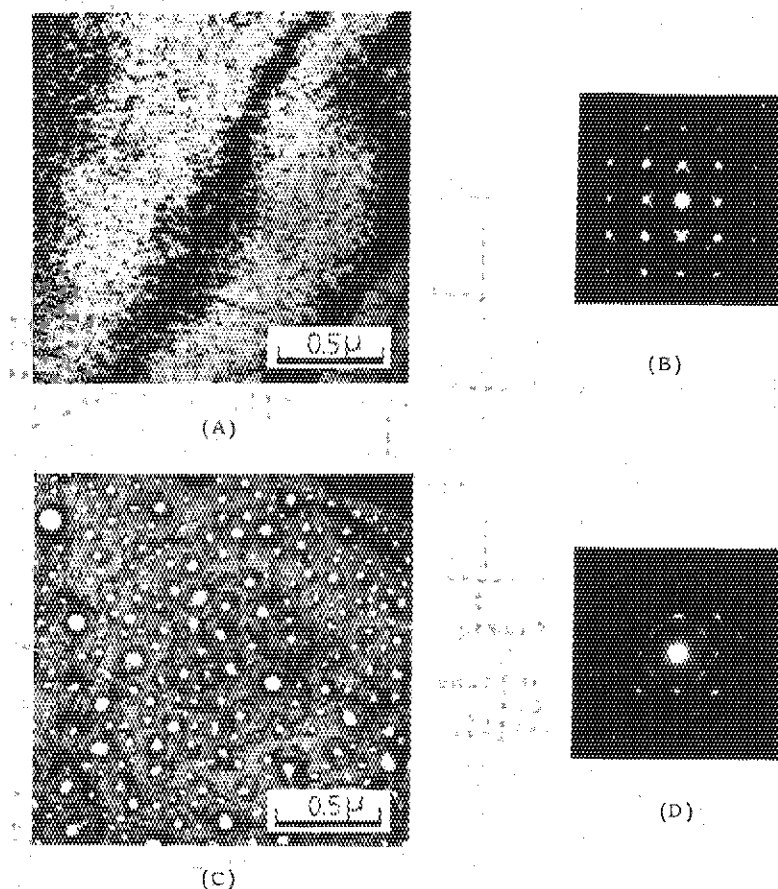


Fig. 7. Micrographs and diffraction patterns of UO_2 films (100 Å) deposited on NaCl (11).
(A) and (B): before irradiation.
(C) and (D): after irradiation up to Ar^+ dose of about 10^{16} ions/cm².

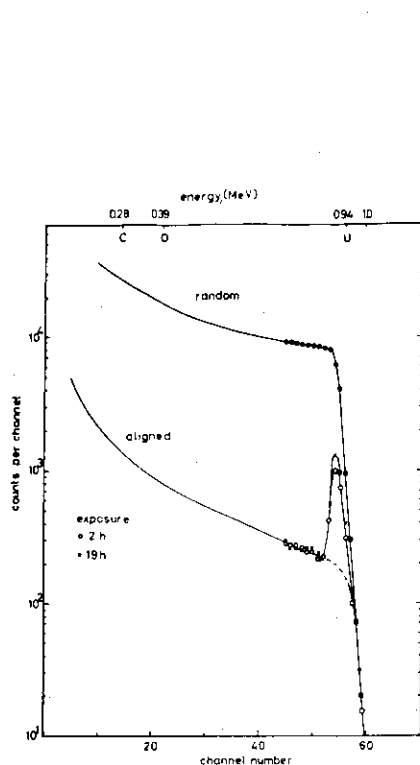


Fig. 8. Energy spectrum of 1-MeV He^+ ions scattered 150° in UC. The lower curve is for aligned crystals that had been exposed to air at 21°C for 2 h, and 19 h, respectively. The upper curve is for random incidence and is roughly identical for both runs. The dashed curve shows the spectrum expected for an oxide free sample (12).

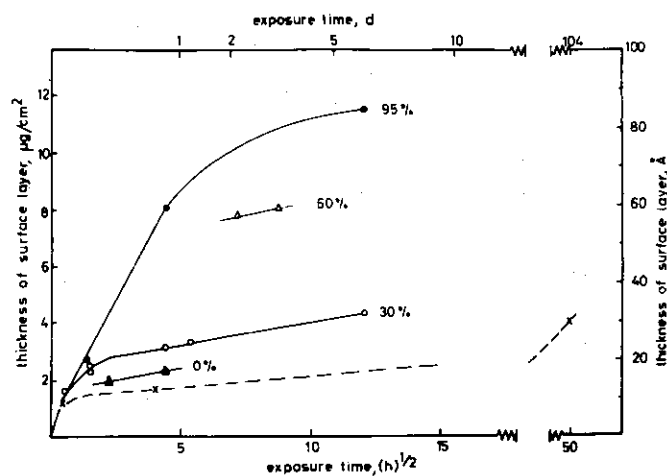


Fig. 9. Plot of the average oxide thickness formed on $\langle 100 \rangle$ faces of UC single crystals versus the square root of the exposure time, for exposure at $21^\circ\text{C} \pm 1^\circ\text{C}$ and various degrees of humidity (0%, 30%, 60% and 95%). The dashed curve is for a preliminary run without control of temperature and humidity and analysis with a proton beam (12).

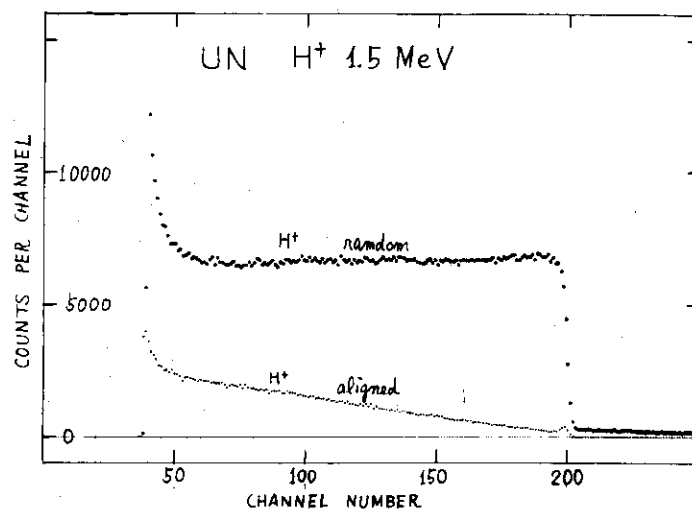


Fig. 10. Energy spectrum of 1.5-MeV protons backscattered from UN single crystals. The small surface peaks in the aligned spectra indicate the existence of thin oxide layers on the UN surfaces (13).

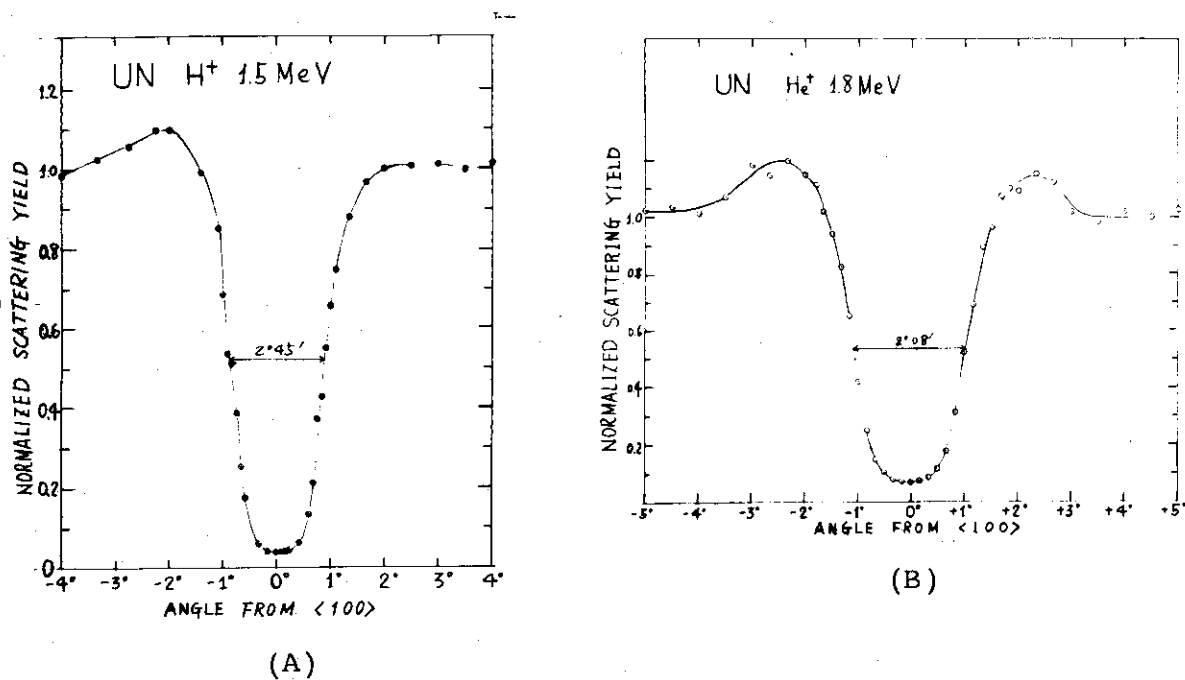


Fig.11. Orientation dependence of the Rutherford scattering yield of 1.5-MeV protons (A) and 1.8-MeV He⁺ ions (B) (13).

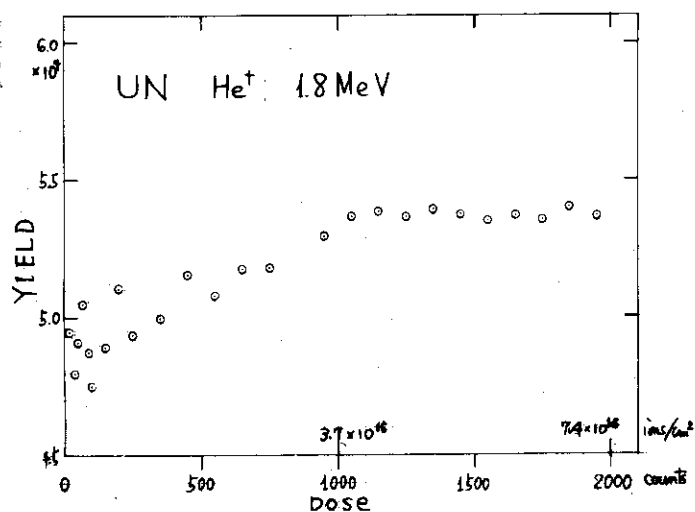


Fig.12. Aligned yields as a function of radiation dose of the <100> direction in UN (13).

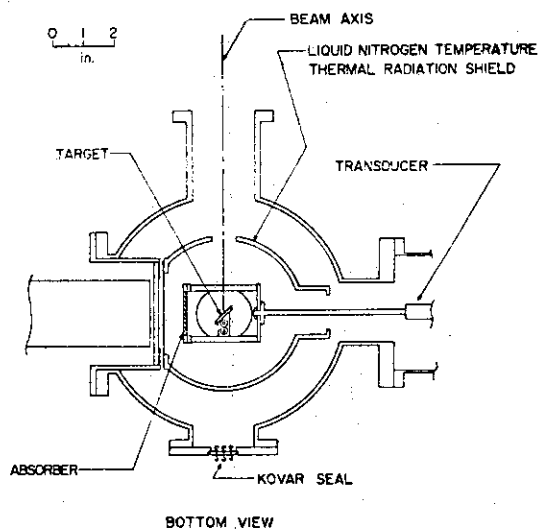


Fig.13. Schematic representation of a "cut-away" view of the Mössbauer cryostat system (14).

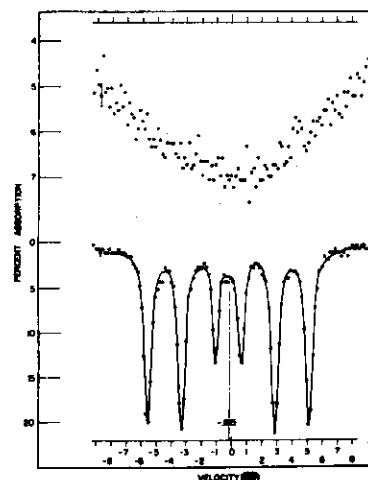


Fig.14. Bottom portion of a Th-ThO₂ (73.9-mg/cm²) Mössbauer absorption dip. The simultaneous Fe⁵⁷ calibration spectrum is also shown (16).

2. チャネリング

2.1 重イオン粒子のチャネリング現象

日本原子力研究所 小 沢 国 夫
(茨城県那珂郡東海村)

Channeling Phenomena of Heavy Ion in Crystal

Kunio OZAWA
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki)

The channeling effects of heavy ions in crystal are reviewed on the following four topics: i) the stopping power of heavy ions and the Z_1 oscillations of the electronic stopping power, ii) charge changing collisions of heavy ions channeled in crystal, iii) oscillation frequencies of heavy ions in planar channeling in thin crystals and screening parameters of the interaction potentials and iv) hyper channeling and ion-atom potentials in solids.

1. はじめに

重イオン粒子を用いた固体結晶のチャネリング効果は、Tandem Van de Graaff 加速器による I, O らの重イオンビームの加速技術や、薄膜単結晶作成法の進歩と共に急速の進歩を見せたが、今日の問題点を次の 4 トピックに分けてレビューする。i) 重イオン阻止能と Z_1 振動効果 ii) 荷電変換とチャネリング効果 iii) 面チャネルにおける打込みイオンの振動軌道と結晶ポテンシャル iv) hyperchanneling と結晶ポテンシャル。

2. 重イオン阻止能と Z_1 振動

荷電粒子のチャネリング効果の重要な性質に、ランダム粒子の値と異なる阻止能がある。粒子はこのエネルギーを Coulomb 相互作用で主に失って行くが、Fig. 1 は結晶中のランダム方向に進行するイオン阻止能の速度依存を示してある。入射粒子速度が軌道電子速度より大きい場合粒子が target 媒質に入るにつれ、イオンは十分な電子のはぎ取りが行われるので、Region I の速度では、速度の関数として阻止能は減少し、完全な電子衝突によっている。(核阻止能による寄与は $1/1000$ 程度)。イオン速度が減少し、電子捕獲確率が増加すると、ターゲット原子の固く結している内殻は、阻止能に対する減少の役割を演じ初める。Bohr によれば、若しイオン速度が、結合状態の電子軌道速度より小さいなら、電子はイオン粒子に束縛され、1s 電子に対してこの臨界速度は $\sim Z_1 v_0$ (但し $v_0 = e^2/\hbar = 2.2 \times 10^8$ cm/sec の Bohr 速度 = 25 KeV/nucleon) 最外殻電子に対しては $\sim v_0$ 、電荷 Q_1 のイオンに対して $Q_1 v_0 / Z_1^{1/3}$ を与えた。阻止能曲線は一般に $v_0 Z_1^{2/3}$ なる Thomas - Fermi 速度を越えた所で最大値を示し、速度 v なるイオンの平均荷電数が $\bar{Q}_1 / Z_1 \approx v / (v_0 Z_1^{2/3})$ で求まる。入射イオン速度が更に減少し、Fig. 1 の III の領域に入ると、電子阻止能

は減少し且つイオン荷電数の低下が起り、低速の重イオンでは、核阻止能が電子阻止能と拮抗して、電子阻止能のイオン速度比例領域となる。チャネリングが起れば、impact parameter が小さい衝突を問題にする核阻止能は大巾に減少し、低エネルギーチャネリング粒子の阻止能は完全に電子的エネルギー損失にのみ基因させることが出来る。かくてチャネリングの手法は阻止能の2因子を分離させた。

重イオンの非弾性エネルギー損失は Lindhard, Scharff¹⁾ により、Thomas - Fermi モデルと速度比例の電子阻止能 S_e に基礎づけられ、 $v \ll v_0 Z_1^{2/3}$ なる入射速度では次式で示される。

$$S_e = \frac{1}{N} \frac{dE}{dx} = \xi 8 \pi e^2 a_0 \frac{Z_1 Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{2/3}} \left(\frac{v}{v_0} \right) \quad (1)$$

但し、 Z_1 : 入射粒子イオンの原子番号、 $\xi = Z_1^{-1/2}$ 、 Z_2 : ターゲット原子の原子番号。

又 Firsov²⁾ は、2原子間の衝突でのエネルギー損失を impact parameter の関数として次式で示した。

$$\Delta E(p) = \frac{(Z_1 + Z_2)^{5/3} \times 4.3 \times 10^{-8} v}{\{1 + 0.31 (Z_1 + Z_2)^{1/3} p\}^5} \quad (2)$$

式(1)、(2)の何れに従っても S_e は定速入射イオン Z_1 に関しては単調に変化する。

Fig. 2 は W の $\langle 100 \rangle$ に沿った Xe イオンに対する全阻止能が示してある³⁾ 速度に比例する S_e が約 4 KeV 迄支配的で $E^{1/2}$ 依存性を示し、核阻止能は無視してよい。他方 LSS 理論は W に対する Xe ランダムビームの核-電子間阻止能の転移エネルギーとして、2.7 MeV の値を与える。それ故核阻止能が優勢を示すランダム方位と反対に、等エネルギーのチャネル粒子では重イオン粒子が軽質量粒子より深く浸入する。更に核阻止能因子を無視出来るイオンチャネルの条件下では、一定速度の加速イオンの電子阻止能 S_e が加速イオン原子番号 Z_1 の関数として振動する " Z_1 -oscillation" が明かになる。Fig. 3 は Au $\langle 110 \rangle$ に対する種々のチャネル重イオンの S_e 値が測定され、 $-\frac{dE}{dx} = R \cdot E^p$ 依存性が示されている⁴⁾。これより 1.5×10^8 cm/sec の定速イオン速度 $v = 0.68 v_0 = 17$ KeV/nucleon に対する $S_e - Z_1$ 曲線が Fig. 4 に算出される。著しい Z_1 -oscillation が見られる。Fig. 5 は W の $\langle 110 \rangle$ に対する Z_1 依存性で観測された S_e は無形定に対し約 1/3 に減少しており、また $\langle 100 \rangle$ と $\langle 110 \rangle$ 方向に沿った最大飛程の差にも Z_1 -oscillation が見られる。この Z_1 依存は最初無定形物質の阻止能で見出されたが、チャネル粒子に対する Au, W の S_e 測定の最大および最小値の Z_1 位置の良好一致や、振動の位相、大きさがターゲット物質に依存しないことは、 S_e 過程が支配的であることを示した。最小値の Z_1 値は $\sim 11, 30$ および 50 、最大値の Z_1 は $\sim 8, 20$ および 42 で生ずる。更に Z_1 を固定して Z_2 を変える実験でも、同様 Z_2 -oscillation が確められた。Figs. 4, 5 で "Firsov" とラベルされた曲線は impact parameter を選んで、式(2)の速度比例阻止能方程式から計算されたもので、 S_e の p 依存性を示す。Firsov の取扱は無定形から、チャネルに移行するにつれ生ずる S_e の平均的減衰をよく近似している。最近幾つかの理論グループはこれらチャネル粒子の Z_1 -oscillation の問題を取扱い、動径距離の大きな値の所で示す電子密度の Z_1 周期性を計算に採り入れた修正型 Firsov 方程式で説明を試みている。結果は、イオンサイズと緊密に関係した電子的殻構造を反映していることを示した。Fig. 6 は B から Ar までの +1 価イオンに対し、動径方向の電子密度を Hartree-Fock-Slater 方程式から Harrison によりコンピュータ

計算したものである。 $r = 2.5 a_H$ (a_H : Bohr 半径) で実験値に示された Z_1 周期性が定性的に理解出来る。

イオン粒子速度 $v \ll$ 電子軌道速度の条件下では、衝突により軌道電子に mv なる運動量移行が起る。Table 1 は HFS モデルで計算された軌道電子の rms 速度が Bohr 速度 v_0 の単位で示してある。外殻電子の速度は N, O 原子では約 $2 v_0$ であり, Na, Sc では v_0 である。比較的大きい速度をもつ内殻電子は S_0 に殆んど寄与しない。 $v \ll$ 電子軌道速度の条件は $v \leq v_0$ 即ち $E \leq 25 \text{ keV/amu}$ と記述出来て、具体的には、Se に対する速度比例性は、陽子に対し 25 keV , α 粒子で 100 keV , U イオンで 6 MeV より小さい加速エネルギーで成立することを示している。

3. 荷電変換とチャネリング効果

重イオンが固体中で起す荷電変換衝突に対するチャネル効果は、イオンの電子捕獲と損失断面積の確率に影響する因子を含む。Fig. 7 は ORNL における実験装置である⁶⁾。高速イオンが無定形結晶中に入射した場合、イオンの荷電状態の平衡分布は入射初期の荷電状態に独立に、通常数百 Å 程度侵入した後に到達し、電子捕獲と損失断面積のバランスで成立するから、可能な荷電状態は両者の断面積の等しい条件が期待される。荷電状態の高いイオンでは電子捕獲断面積が優勢を示し、また低荷電状態では電子損失過程が主となる。一方チャネル条件下では、イオンビームはターゲット結晶中の局在電子密度、ならびに軌道電子速度の低い領域を運動するから、その結果両断面積の減少と荷電平衡に到達する飛行距離を増大させる。Fig. 8 は Lutz et al.⁷⁾ により $60 \text{ MeV } ^{127}\text{I}$ イオンの Au 単結晶 (100) 面チャネルの結果を示す。 $+10$ 価の入射荷電イオンは約 1200 Å で荷電平衡に達し、最適荷電状態はランダム方位の $+21$ 価から (100) 面チャネルの $+18$ 価に減少している。チャネル効果は、大きな impact parameter と、チャネル内の低電子密度に基づいて、荷電粒子の電子への運動量移行に伴う電子損失断面積の減衰ファクターとして作用している。

最近 Datz et al.⁸⁾ は Au 単結晶をチャネルする $4.45 \sim 40 \text{ MeV } ^{16}\text{O}$ イオンの荷電分布を研究し、入射エネルギー 20 MeV 以上では 6000 Å のチャネル飛程でも真の荷電平衡が得られなかった。Fig. 9 に示す結果は、ランダム方位の荷電分布が飛程 ($1430 \sim 6630 \text{ Å}$) と入射イオンの荷電状態 (6^+ , 7^+ , 8^+) に依存せず荷電平衡を示すが、チャネル粒子の荷電分布は非平衡を示す。4 節で述べる様な重イオンの面チャネリングにおける振動効果を用いて、イオン運動の振巾を増大させると荷電分布は、ランダムの値に接近する。Fig. 10 は Au (100) 面チャネルの $34 \text{ MeV } ^{16}\text{O}$ イオンに対する荷電変換断面積を示す。O イオンは K と L 殻の間に $\sim 500 \text{ eV}$ の大きなエネルギーギャップを持つ殻構造を示し、この K, L 殻間の転移に伴う電子捕獲断面積の減少が、 7^+ , 8^+ 荷電イオンに反映しており、チャネル ^{16}O イオンが高い荷電状態を示すことが理解出来る。

4. 面チャネリングの重イオン振動軌道とポテンシャル

チャネル実験で検出粒子の軌道が結晶内通過で統計的平衡に達しない様な薄膜透過実験では、透過粒子の射出角度とエネルギーロススペクトル測定から、チャネリング運動を支配するポテンシャルパラメータの決定を可能にした。Fig. 11 に実験方法の概要を示す。⁸⁾ ターゲット結晶はセルフサポートした $0.5 \mu\text{m}$ 程度の Au または Ag 単結晶で 2 軸回転可能なゴニオメータにセットし、イオンの通過距離はゴニオメータの回転角の調節で変化させて、透過イオンのエネルギースペクトルおよび一定 E の角度分布が測定された。ターゲットの距離 z 通過によるエネルギー損失は

$$-\frac{dE}{dz} \propto E^p \quad (3)$$

で示され p は低エネルギーの $1/2$ から高エネルギーの -1 まで変るパラメータである。(3)式の積分から初期阻止能およびチャンネル内のイオン通過時間が求まる。⁹⁾

$$-\left(\frac{dE}{dz}\right)_{E=E_0} = \begin{cases} \{E_0^p / (1-p) z\} (E_0^{1-p} - E^{1-p}), & p \neq 1 \\ (E_0/z) \ln(E_0/E), & p = 1 \end{cases} \quad (4)$$

$$t = \begin{cases} (2m)^{1/2} (1-p) z (E_0^{1/2-p} - E^{1/2-p}) / (1-2p) (E_0^{1-p} - E^{1-p}), & p \neq \frac{1}{2}, 1 \\ (2m)^{1/2} z [\ln(E_0/E)] / 4 (E_0^{1/2} - E^{1/2}), & p = \frac{1}{2} \end{cases} \quad (4)$$

m : イオン質量でパラメータ p は実験から求まる。

Fig.12 は 60 MeV ^{127}I の Au 単結晶の (111) 面チャンネルを透過したビームのエネルギースペクトルで E_{rand} は 44 MeV であるから、このエネルギースペクトルは面チャンネルイオンに対応しており、かつ 4 グループに分類されるエネルギーロスから成立っている。⁸⁾ このスペクトルの構造は Fig.13 に示されたイオン軌道の考察から理解出来る。チャンネル粒子の運動は非調和ポテンシャルの影響を与える原子面で規制され、振動の振巾に依存する波長の横振動を受け、かつターゲットの電子励起によりイオンはチャンネル壁に接近するにつれロス・レートが増加する様なエネルギー損失を受ける。かくてチャンネル内を通過する際ある整数値の振動を行うイオンは、イオンの入射角と同方向の角度で結晶から射出して検出器に計測される。Fig.13 の A, C 軌道は各々、1 および 2 回振動を受けた場合であり、B の様な A, C の中間的軌道を採用の場合は、粒子は検出器方向には飛来しない。このモデルに従うと Fig.12 の各ピークは結晶通過の際に固体内で整数回の振動を受けたイオンに対応することが判った。大振巾、短波長の振動の粒子は、小振巾、長波長のものより格子原子との近接衝突を行うから、エネルギー分散は、前者が大きいエネルギーロスに対応する。

Fig.14 は結晶の通過距離依存を示したもので、各スペクトルグループは振動数 n が固定されているから、距離増加は、波長増加と振巾減少を意味してロス・レートの低い値へのシフトを示す。Fig.14 の各 n のスペクトル最大値に対応する阻止能を Eq. (4) を用い補正した初期阻止能 $(\frac{dE}{dz})_{E=E_0}$ をターゲットの厚さに対しプロットすると n をパラメータとする一連の曲線が Fig.15 に得られる。 S_0 と印された最小のエネルギー・ロスレートは Fig.14 の A_0 に対応し、ターゲットの厚さに依存しない、チャンネル中心における最小のエネルギー阻止能を与える。一方 Eq. (5) で与えられる時間 t を用いて表わされる振動数 ω

$$\omega = n (2m)^{1/2} / t \quad (6)$$

の関数としてプロットされた初期阻止能は

$$-\left(\frac{dE}{dz}\right)_{E=E_0} = \alpha + \beta \omega \quad (7)$$

なる直線関係を各結晶面チャンネルに対して示す^{9,10)} (Fig.16)

Robinson¹¹⁾ はチャンネル高速イオンの原子衝突を軌道の偏りを規定する擬弾性衝突項とエネルギーロスに効く電子励起に分けて理論的取扱を進めた。

イオンが面チャンネルで相互作用する連続ポテンシャルを

$$V_1(\bar{x}) = 4\pi\kappa\rho\ell \int_{\bar{x}}^{\infty} r V(r) dr \quad (8)$$

但し, $\bar{x}$: イオンから原子面までの距離, ℓ : 面チャンネルの半値巾,

ρ : ターゲットの原子密度

で表して, チャンネルイオンは

$$V_2(x) = V_1(\ell + x) + V_1(\ell - x) \quad (9)$$

なる2平面間を振動して進行すると ω は

$$\omega^{-1} = 2 \int_0^{x_m} [V_2(x_m) - V_2(x)]^{-1/2} dx, \quad 0 < x < x_m, \quad (10)$$

で定義される。一方阻止能は

$$S(x, E) = S_0 + S_1 [\sigma(x) - 1] \quad (11)$$

と仮定すると S_0 は Fig. 15 から求まり, Fig. 16 の α, β は各々次式で与えられる。

$$\alpha = S_0 - S_1$$

$$\beta = 2 S_1 \int_0^{x_m} \sigma(x) [V_2(x_m) - V_2(x)]^{-1/2} dx, \quad (12)$$

一方 β は常数であるなら Eq (12) から Eq (11) の

$$\sigma(x) = \frac{d}{dx} \left\{ \frac{2}{V_2'(0)} [V_2(x) - V_2(0)] \right\}^{1/2} \quad (13)$$

が求まる。Eq (13) は $\sigma(x)$ がイオン阻止能 S のみならず面チャンネルポテンシャルの非調和性の目安となることを示す。即ち $\sigma(0)$ では 1 に規格化され $V_2(x)$ の調和性が保たれる。この様な Robinson の解析法は実験データ S_0, α , および β の値からポテンシャルの曲率パラメータ y を導出する。

$$y = 2\pi^2 (S_0 - \alpha)^2 / \beta^2 \ell \quad (14)$$

$$\left. \begin{aligned} &= V_2''(0) / \ell = 2 V_1''(\ell) \cdot \ell \\ &= -8\pi\rho\kappa [V(\ell) + \ell V'(\ell)] \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

Eq (14) は実験式であり Eq (15) は理論式であるから, 実験的に直接チャンネル中心における面チャンネルポテンシャルの曲率を決定出来る。Table II は実験データから決定された曲率パラメータが示され、¹⁰⁾ 次の点が明になった。i) パラメータ y はポテンシャル関数に関する仮定に無関係に実験データから直接求められた。ii) y はイオン種やそのエネルギーに強く依存する。iii) y の変化の多様性にも拘わらず y_{111}/y_{100} は大体一定である。若しイオン・格子原子間の相互ポテンシャルを

$$V(r) = (z_1 z_2 e^2 / r) \phi(r/a) \quad (16)$$

の Screened Coulomb 型と仮定するならチャンネル中心での曲率パラメータは

$$y = -(8\pi\rho z_1 z_2 e^2 / a) \phi'(\ell/a) \quad (17)$$

で示される。但し $\phi(r/a)$ は Screen 関数, a : Screening length である。かくて曲率パラメータに関する2チャンネルの比 y_{111}/y_{100} は Au 単結晶の a を決定出来るわけであり, 物理的には, 面チャンネルングではチャンネル間のイオン位置に無関係にイオン核の電荷は常に同数の電子で Screen されており, またこの Screen が大巾に減少する程にはイオン粒子はターゲット原子への接近を起していない事を示唆している。

5. Hyperchanneling

Fig. 17 はチャンネルング効果を初めて Robinson と Oen がコンピュータ・シミュレーションで予測した Cu の $\langle 100 \rangle$ 方向の Cu イオンの運動軌跡の (100) 面への投影である。¹²⁾ 通常の軸チャンネルで

はチャンネルイオンの大部分は Fig. 17 の中央や右隅の軌跡の様に、ある軸チャンネルから他の軸チャンネルへと放浪しながら進行するが、若し隣接する原子列間のポテンシャル障壁に比して、軸チャンネルイオン粒子の transverse エネルギーが小さい場合には左上隅の軌跡に示す様な単一軸チャンネル内に限定された粒子軌道が期待される。この現象は hyperchanneling または、proper axial channeling と呼ばれ、既に予想されていたものである。

最近 ORNL のグループによる非常に薄い Ag 単結晶膜を用いた透過チャンネルイオンの角度分布測定でこの hyperchanneling が実証された。^{13,14)} 当然この種の実験は大きな impact parameter を必要とするから通常の軸チャンネルよりも小さな入射角と、低いエネルギーロス値を期待する。実験は 0.05° FWHP のモザイク拡がりを持つ $0.8 \mu\text{Ag}$ 単結晶の $\langle 011 \rangle$ 軸への $\leq 0.01^\circ$ 以下にコリメートされた 21.6 MeV I^+ イオンで行われた。Fig. 18 に $\langle 011 \rangle$ 軸と (111) 面に平行な透過 I^+ イオンのエネルギーロス・スペクトルが示されている。ランダム方位に対する dE/dx は $9.4 \text{ MeV}/\mu\text{m}$ で明らかに軸チャンネルイオンには相当の割合で面チャンネルイオンよりも低いエネルギーロスを示す成分が存在する。かくて (111) 面内 $\langle 011 \rangle$ 方向に関して入射するビームの角度依存性の一連の測定スペクトルが Fig. 19 に示してある。 $\frac{dE}{dx} = 3.15 \text{ MeV}/\mu\text{m}$ に相当する狭い角度範囲の際立ったスペクトル群は hyperchanneling に基づくものであり、また全スペクトルの $(\pm 0.45^\circ)$ の角度範囲は通常の軸チャンネルに対する計算値 ($\phi_{1/2} \sim 1.2^\circ$ Barrett) と良い一致を示す。また (111) 面内の $\langle 011 \rangle$ から $5 \sim 10^\circ$ の傾きの面チャンネルスペクトルは $\langle 011 \rangle$ に対し $(\pm 0.45^\circ)$ の範囲の通常の軸チャンネルスペクトルと殆んど等しく、低指数方向に平行に入射するビーム中 $0.25\phi_1$ 程度の入射角では透過イオンの大部分は面チャンネル分布のスペクトルを示す。しかし入射角が更に減少し $\sim 0.30^\circ$ 以下では (111) 面チャンネルの特徴は消滅し、 $\langle 110 \rangle$ に対し $\sim 0.12^\circ$ 以内で hyperchannel イオンから期待される、2成分よりなる低エネルギーロスのピークが測定される。hyperchanneling に対する臨界角や生成率の解析のために $\frac{dE}{dx}$ の一定値以下のイオン数の割合が入射角に対してプロットされた (Fig. 20)。エネルギー E のイオンが結晶軸に ϕ_i で入射すると、イオンは

$$\tau_i = E \phi_i^2 \quad (18)$$

なる運動エネルギーと、更に Fig. 21 の等高線で示される様なポテンシャルエネルギー ϕ_i をその粒子入射点に依存して保有する。それ故イオンが結晶中に侵入すると、この合計エネルギーに対応した等高線内の空間を運動する。しかし結晶内の運動に際して、イオンは更に電子や、格子振動や欠格による多重散乱を受け、この附加的 transverse energy ϵ_a を必要とするので Fig. 21 の臨界等高線 $\phi_h \sim 60 \text{ eV}$ より小さい全 transverse energy を持つイオンが hyperchannel として取扱われる。 $\phi_h \sim 60 \text{ eV}$ 以下で囲れた面積比 f_h は 0.30 でこれらの値を用いた計算は Fig. 20 と定性的には一致する曲線を与えるが、ピーク値は 3 倍高く底辺巾が約 25% 狭い。 ϕ_h は底辺巾、 ϵ_a はピーク値に関係し、結晶のモザイク巾 ϕ_M は両者に関係する。 $\phi_h 120 \text{ eV}$, $\epsilon_a 54 \text{ eV}$ の計算は $0 - 3.7 \text{ MeV}/\mu\text{m}$ のデータ点と完全な一致を示し、Fig. 20 の実線で示されている。この ϕ_h の値は Fig. 21 の等高線からの値の 2 倍であり、イオン-原子ポテンシャルに対する格子構造の効果を示唆している。Robinson は自由原子ポテンシャルの代り Wigner-Seitz ポテンシャルを用いると、前節の面チャンネル実験とも適合し、かつ hyperchannel の結果をもよく記述する事を見出した。一方 3.0 MeV ^4He イオンの様な軽イオンを用いた Au 単結晶に対する透過スペクトルが Fig. 22 に示してある。 $\langle 011 \rangle$ 軸スペクトルと $(1\bar{1}1)$ 面スペクトルの立上り端における差異は微かで、hyperchannel 成分は少なく、Fig. 18 とのコントラストは著しい。かくて hyperchanneling は重イオン 効果の大きな

特徴と考えられるがその原因として、次の2つが挙げられる。i) ^{127}I イオンは ^4He に比較して多重散乱が少ない。(例えば電子衝突に対する多重散乱 $\bar{\sigma}_e$ は3 MeV ^4He では21.6 MeV ^{127}I の約4倍である。) ii) impact parameter の大きな値に対するエネルギーロス機構の差がある。21.6 MeV I イオンはAg結晶中では速度比例阻止能領域における部分的に電子を剥ぎ取られた重イオン粒子を形成し、一方Au結晶中の3 MeV ^4He はBethe-Bloch 阻止能領域の裸の核を形成している。

hyperchanneling の実験においては、その強度はビーム dose の時間と共に減少して行き、通常の軸チャンネルに比較して、その放射線損傷の感度は約2桁高い。これは hyperchannel 効果が通常の軸チャンネルに対する臨界角 ϕ_1 より約 $\frac{1}{14} \sim \frac{1}{40} \phi_1$ の角度偏りで崩壊することによる。以上の様に hyperchanneling はイオン・固体相互作用の研究の道具として非常に有望であり、impact parameter の大きな値でのイオン・原子ポテンシャルに敏感な為、面チャンネル等の他の手法で導入されたポテンシャルのチェックや多重散乱の放射線損傷研究に対する新しい手法を提供した。

References

- 1) Lindhard J. and Scharff M.: Phys. Rev., 124, 128 (1961).
- 2) Firsov O. B.: Sov. Phys. JETP, 9, 1076 (1959).
- 3) Eriksson L., Davies J. A., and Jespersgaard P.: Phys. Rev., 161, 219 (1967).
- 4) Bøttiger J. and Bason F.: rad. effects, 2, 105 (1969).
- 5) Harrison D. E.: Appl. Phys. Letters, 13, 277 (1968).
- 6) Datz S., Martin F. W., Moak C. D., Appleton B. R. and Bridwell L. B.: rad. effects, 12, 163 (1972).
- 7) Lutz H. O., Datz S., Moak C. D. and Noggle T. S.: Phys. Letters, 33A, 309 (1970).
- 8) Datz S., Moak C. D., Noggle T. S., Appleton B. R., and Lutz H. O.: Phys. Rev., 179, 315 (1969).
- 9) Robinson M. T.: Phys. Rev., 179, 327 (1969).
- 10) Appleton B. R., Datz S., Moak C. D. and Robinson M. T.: Phys. Rev. B 4, 1452 (1971).
- 11) Robinson M. T.: Phys. Rev. B 4, 1461 (1971).
- 12) Robinson M. T. and Oen O. S.: Phys. Rev., 132, 2385 (1963).
- 13) Appleton B. R., Moak C. D., Noggle T. S. and Barrett J. H.: Phys. Rev. Letters, 28, 1307 (1972).
- 14) Appleton B. R., Barrett J. H., Noggle T. S. and Moak C. D.: rad. effects, 13, 171 (1972).

Table I Calculated velocity of the orbital electrons with HFS model in units of v_0

Atom Z	1s	2s	2p	3s	3p	3d	4s
N 7	6.71	2.25	2.01				
O 8	7.7	2.61	2.36				
Na 11	10.7	3.7	3.5	0.83			
Sc 22	20.6	8.6	8.5	3.89	3.62	2.72	1.25

Note that $V(1s) = 0.96 v_0 Z$

Table II Curvature parameter and screening length deduced from various ions in Au, Ag and Si (from Ref. 10)

Target	Ion	Energy (MeV)	Curvature parameter (eV/A ³)		y_{111}/y_{100}	Screening length (a)(A)
			y_{111}	y_{100}		
Au	⁴ He	3	64	108	0.59	0.31
	¹⁶ O	10	154	253	0.61	
	¹²⁷ I	15	837			
		21.6	915	1600	0.57	
		60	1288	2077	0.62	
Ag	¹²⁷ I	21.6	833	1420	0.59	0.31
		60	1042	1696	0.62	
Si	¹ H	0.4	14.5	30.1		0.45
			10.9			

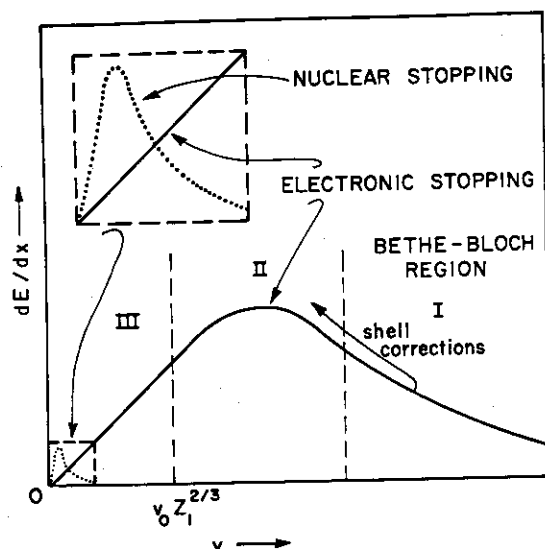


Fig.1. Schematic classification of the regions of stopping. The solid curve represents electronic stopping and the dotted curve represents the nuclear stopping for a typical heavy ion. (from Ref. 1)

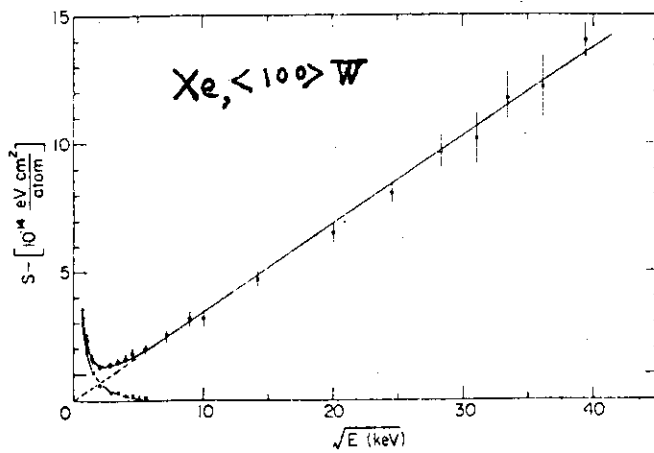


Fig.2.

Experimentally derived values of the total stopping cross section versus energy for well-channeled Xe ions along the $\langle 100 \rangle$ direction in tungsten. The dotted line is an extrapolation of the electronic contribution to lower energies. Crosses indicate the nuclear stopping obtained by subtracting the extrapolated electronic stopping from the measured total values. (from Ref. 3)

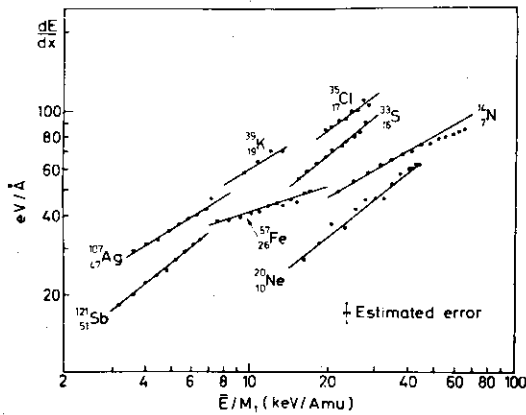
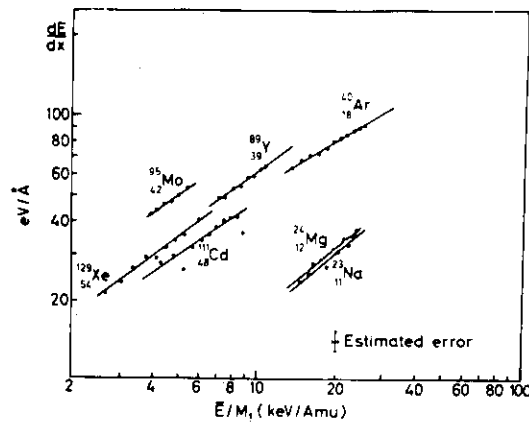
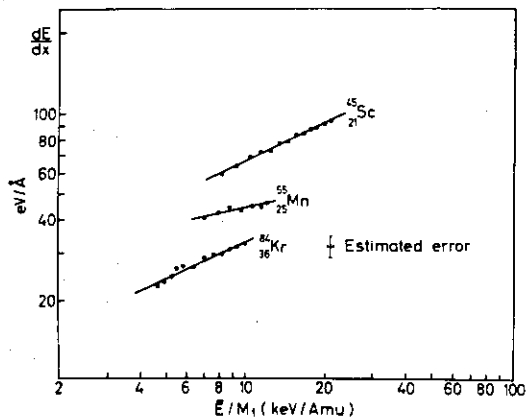


Fig.3. The electronic stopping powers for the $\langle 110 \rangle$ direction in Au for different well-channeled ions. (from Ref. 4)



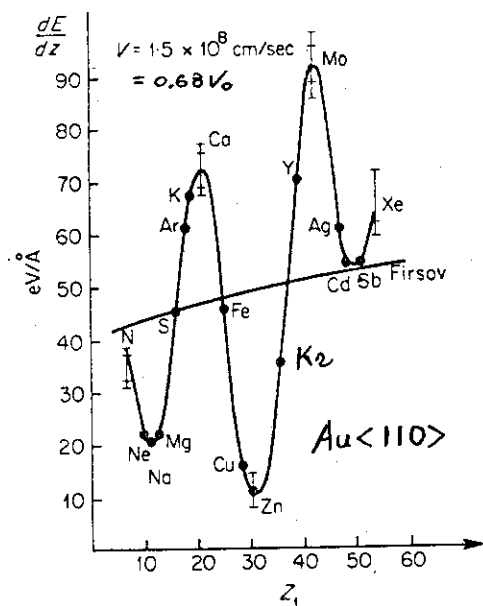


Fig. 4. Z_1 oscillation in stopping power for various heavy ions channelled with velocity $0.68 v_0$ in the $\langle 110 \rangle$ axial direction of Au. The curve labelled "Firsov" is found from Eq. (2) using impact parameter $p = 2.03 \text{ \AA}$. (from Ref. 4)

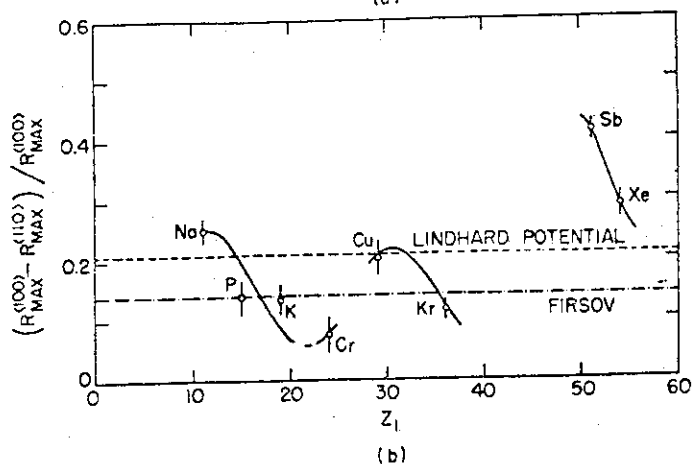
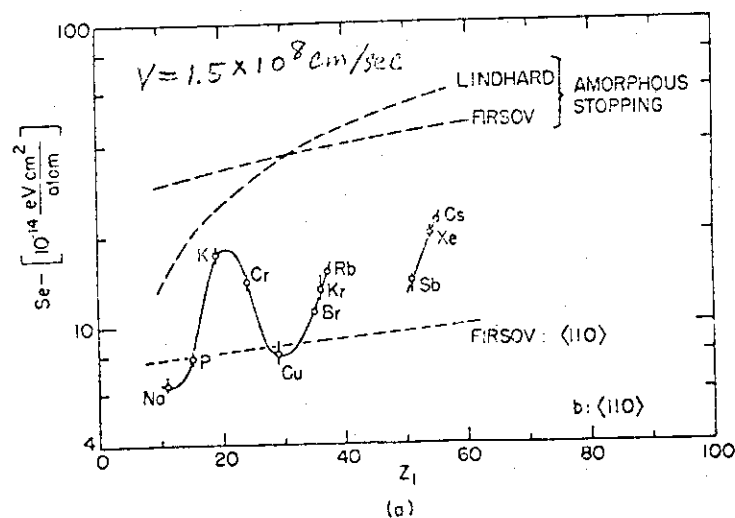


Fig. 5.

Electronic stopping cross sections (measured at a constant velocity $v = 1.5 \times 10^8$ cm/sec) versus the atomic number of the projectile for the $\langle 110 \rangle$ direction in tungsten. (b), Relative difference in maximum range along the $\langle 100 \rangle$ and $\langle 110 \rangle$ directions in tungsten as a function of the atomic number of the projectile. (from Ref. 3)

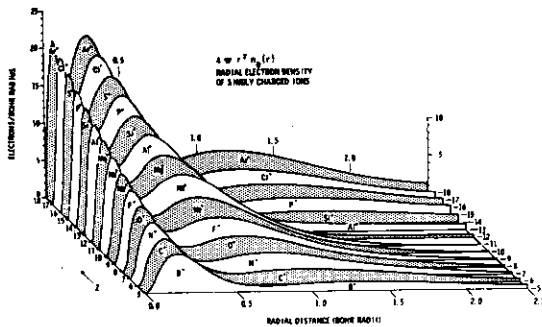


Fig. 6. The radial electron densities, $4\pi r^2 n_e(r)$ for singly charged ions from B to Ar. Periodicity of the type required to explain channeling data is readily apparent at large radial distances. (from Ref. 5)

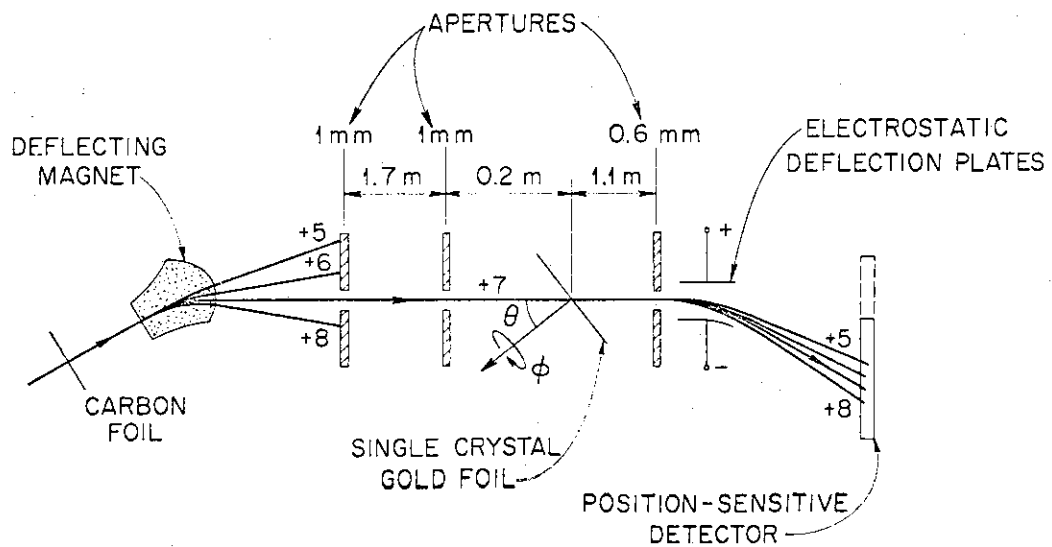


Fig. 7. Experimental arrangement for charge-changing of heavy ions in crystal. (from Ref. 6)

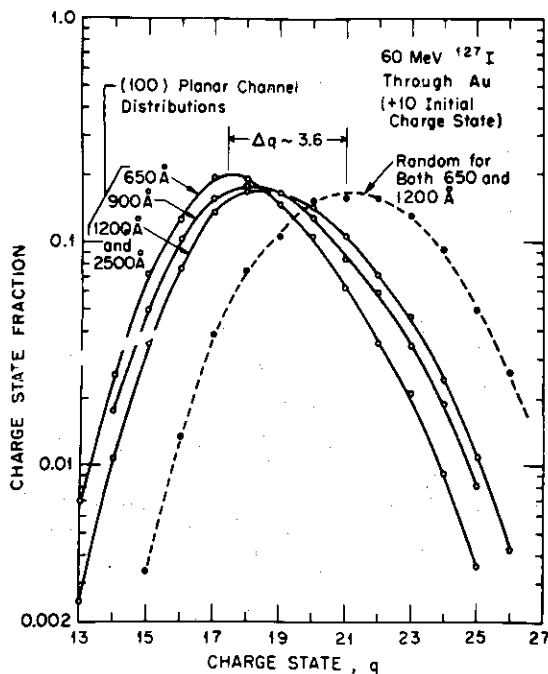


Fig. 8. Charge state distributions of I ions emerging from Au crystal in random and channeled (100) directions. (from Ref. 7)

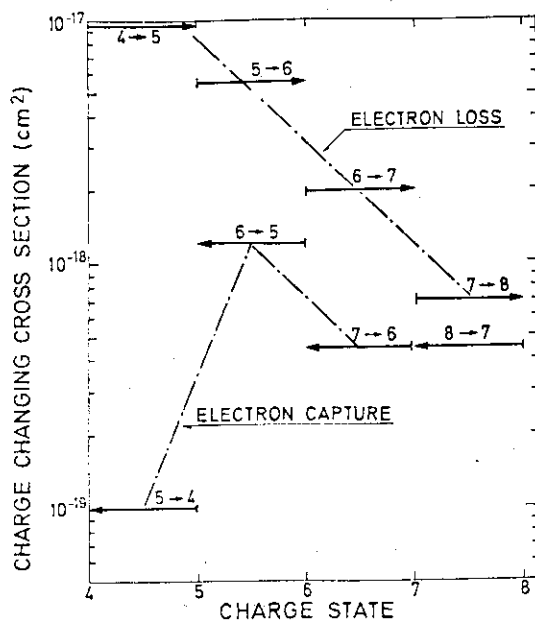


Fig. 9. Charge changing cross sections derived for 34 MeV O ions in (100) channels of Au. (from Ref. 6)

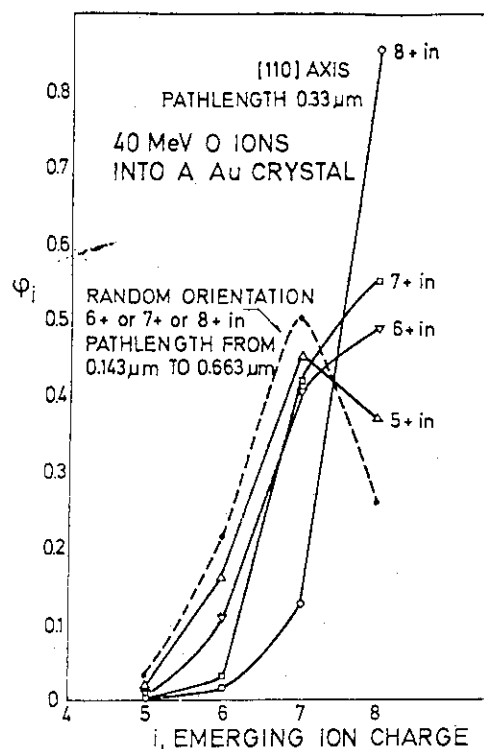


Fig. 10. Emergent charge state distributions obtained for random and $\langle 110 \rangle$ channeled oxygen ions with an input energy of 40 MeV. Input charges and pathlengths indicated. (from Ref. 6)

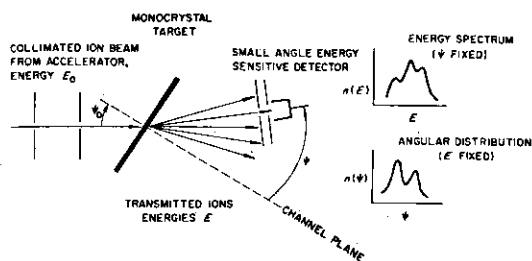


Fig. 11. Experimental arrangements for studying the energy losses of ions in thin single crystal targets. (from Ref. 8)

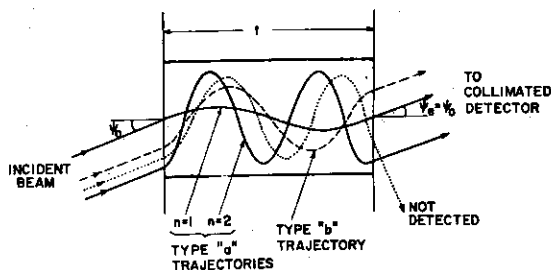


Fig. 13. Determination of the wavelengths of oscillation of planar channeled ions in a collinear detector. (from Ref. 8)

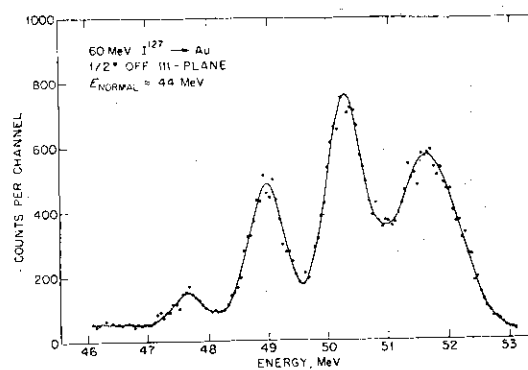


Fig. 12. The energy spectrum observed in 60 MeV ^{127}I ions transmitted through a (111) planar gold crystal in a 0.7- μm -thick gold crystal. The beam was incident 0.5 degree from the plane. The detector was collinear with the incident beam. (from Ref. 8)

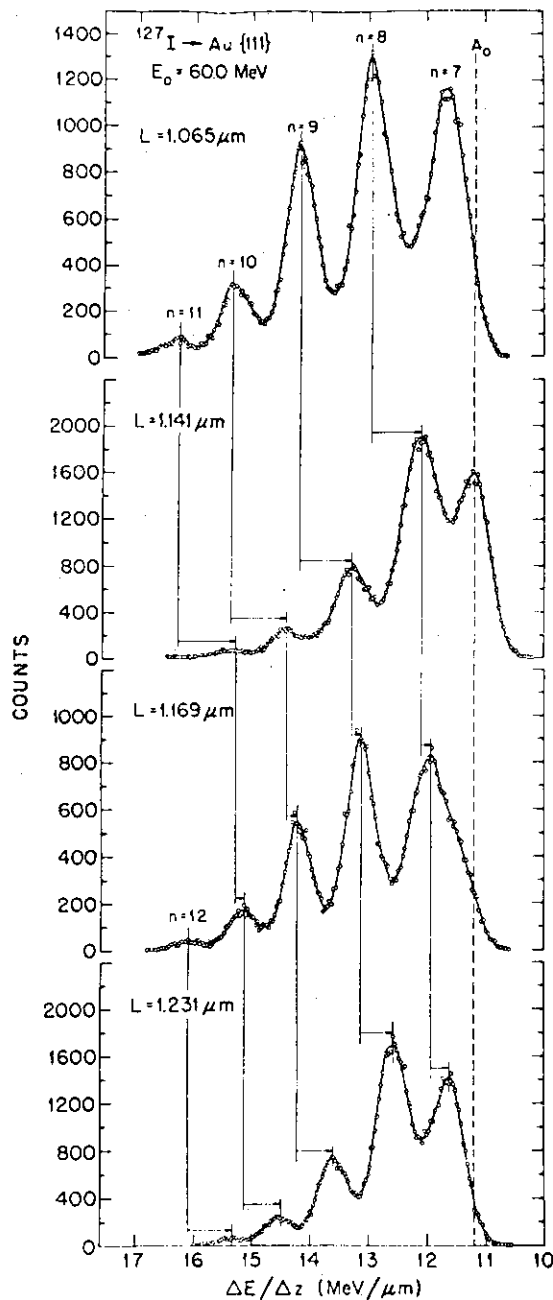


Fig.14. Energy spectra observed in ^{127}I ions transmitted through (111) channels of Au crystal as a function of the pathlength. (from Ref. 8)

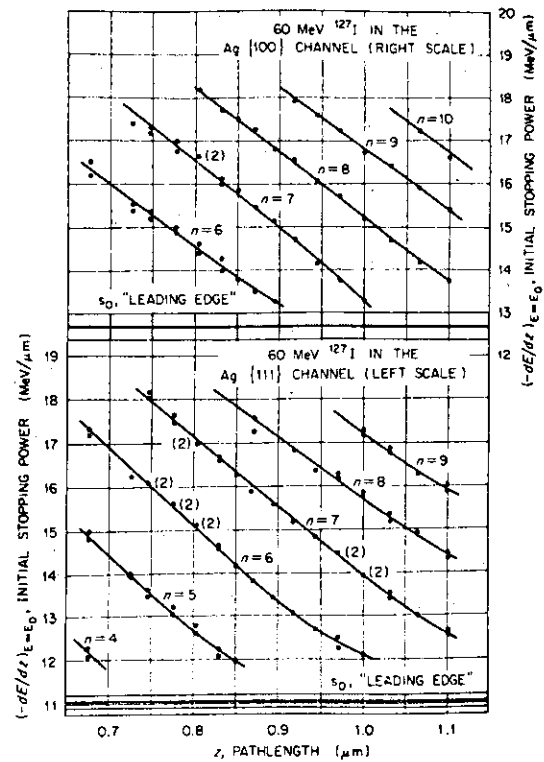


Fig.15. The dependence of the energy loss rate spectra of 60 MeV ^{127}I ions on their pathlength through Ag crystals. (from Ref. 9)

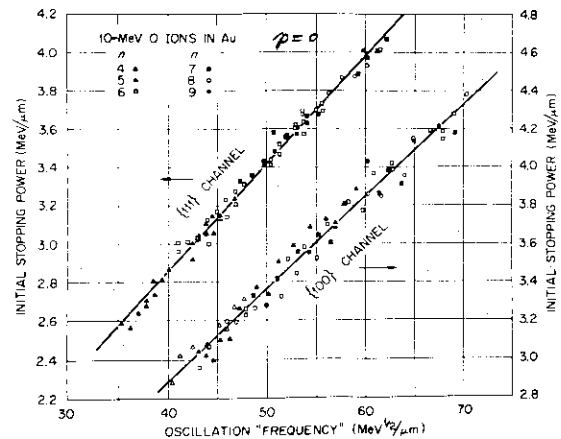


Fig.16. The dependence of the stopping power of 10 MeV ^{160}I ions on their transverse oscillation frequencies in 2 planar channels of Au. (from Ref. 9)



Fig.17. Projection of some $\langle 001 \rangle$ channel trajectories out the (001) face of Cu. The trajectories are for 5-keV Cu ions injected at the points marked by crosses. (from Ref. 12)

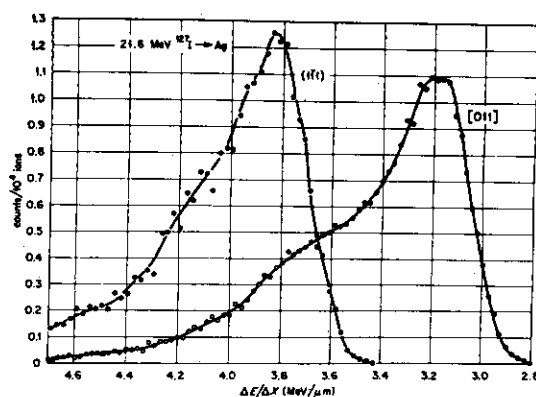


Fig.18. Energy loss spectra for 21.6 MeV ^{127}I ions transmitted through a Ag single crystal parallel to the (111) planar and $\langle 011 \rangle$ axial channels. The pathlength for the (111) data was $0.74 \mu\text{m}$ and $0.8 \mu\text{m}$ for the $\langle 011 \rangle$. (from Ref. 14)

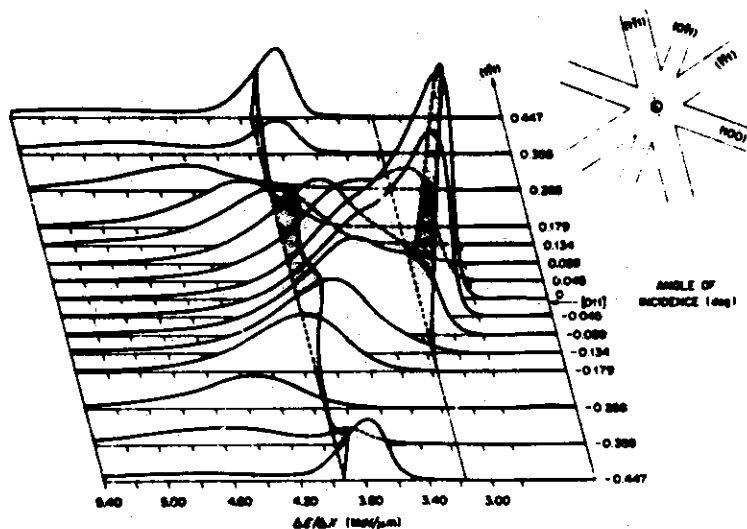


Fig.19. Normalized energy loss distributions at various incidence angles to $\langle 011 \rangle$ for 21.6 MeV I ions transmitted through $0.85 \mu\text{m}$ of Ag. The insert shows the angular extent of the measurements (dotted line) and the hyperchanneling region (shaded central spot). (from Ref.13)

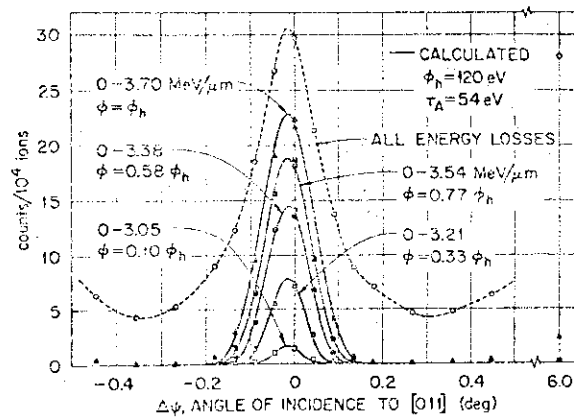


Fig.20. Comparison of measured (data points) and calculated (solid lines) fractions of the beam reaching the detector as a function of angle of incidence to $\langle 011 \rangle$. (from Ref. 13)

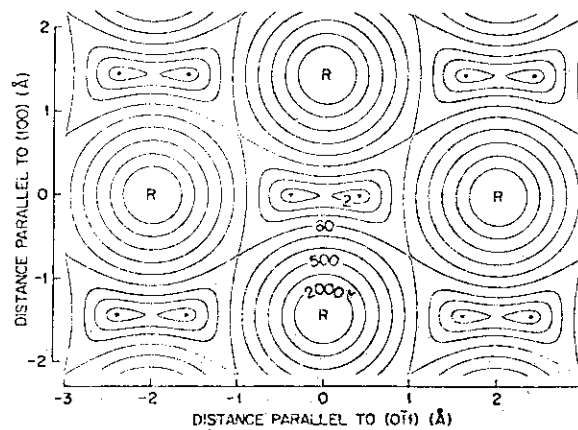


Fig.21. Potential energy contours for I ions in the continuum potentials of $\langle 011 \rangle$ rows (R) of Ag atoms. All values are in eV and are relative to the minimum (dots), which has an absolute value of 72 eV. (from Ref. 13)

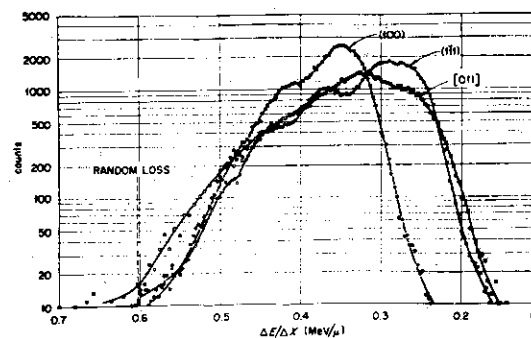


Fig.22. Energy loss spectra for 3.0 MeV ^4He ions transmitted through a Au single crystal parallel to the (100) and (111) planar and the $\langle 011 \rangle$ axial channels. The pathlength for the (100) and (111) data was $0.88 \mu\text{m}$ and $0.95 \mu\text{m}$ for the $\langle 011 \rangle$. (from Ref. 14)

2.2 ヨーロッパ・アメリカにおけるチャネリング研究の現状

東大教養 藤本文範

(東京都目黒区駒場)

Some Problems on the Channeling Study

Fuminori FUJIMOTO

(College of General Education, University of Tokyo,
Komaba, Meguro-Ku, Tokyo)

Several interesting papers read in the "5th international conference on atomic collision in solids" held at Gatlinburg, 24 - 28, September, 1973 are reported.

著者は九月末アメリカ、テネシーの Gatlinburg で開催された第5回「固体における原子衝突についての国際会議」に出席し、その前後ドイツ、アメリカおよびカナダの二三の研究所を視察した。この会議で特に感じたことは、前回(1971年, Gausdal)においてチャネリングに関する問題が主要な議題であったが、今回は、チャネリングの他、重イオンによるX線励起、荷電変換、および照射損傷等の問題が多く報告された。これはチャネリングの重要性が減ったのではなく、その応用および実用性が一般化されたことを示している。事実この会議の直後に Albuquerque における「イオンビームの金属への応用の国際会議」および、7月にIBMで開催されたイオンビームの会議においても数多くのチャネリング現象を利用した研究が発表されている。

Gatlinburg の会議では先に述べたようなテーマにつき約90篇の論文が発表された。そのうち招待講演は次のようであった。

1. Tulinov : 「ブロッキング法を用いた原子核反応時間」
測定についての諸問題や複合核の寿命とレベル密度の問題等について話された。
2. Saris : 「内殻電子励起における固体効果」
重イオンによるX線励起に関する Fano-Lichten モデルの実験的検証等についての報告
3. Molchanov : 「重イオンの結晶における表面散乱」
重イオンが結晶表面で散乱した時の角度分布等についての報告
4. Brandt : 「固体におけるイオン遮蔽」
荷電変換についての諸問題についての報告
5. Appleton : 「ハイパーチャネリング」
チャネリングの中でも特に結晶の一つのチャンネルだけを進むハイパーもしくはスーパーチャネリング現象についての報告
6. Jackson : 「固体中の原子衝突についての計算機実験」
照射損傷を計算機実験を用いて行なった結果についての報告
7. Jung : 「照射損傷における原子のズレのエネルギー」
体心、面心立方結晶の原子の移動に必要なエネルギーの方向依存性についての研究報告
8. Dettmann : 「イオンの電子による阻止能についての新理論」

イオン阻止能の原子番号依存性の振動についての理論的研究の紹介

9. Schnopper : 「高速イオンによる放射電子捕獲」

高速イオンで固体に照射した時に出るX線のうち、入射イオンエネルギーに大きく依存する部分〔REC (Radiative Electron Capture) と呼ばれる〕の発生機構の研究報告

以上の他に Dechanneling について Kumakhov の招待講演が予定されたが、取消された。その他各個の論文にも興味あるものも報告された。いずれも会議報告が出版される筈であるので、細かいことはそれに譲ることにし、ここに紹介した招待講演から、この方面の研究の動向について些かでも分っていただければ幸いである。

2.3 チャネリング自動測定系

電子技術総合研究所 西 島 俊 二
梨 山 勇
寺 西 英 三
(東京都田無市向台町 5 - 4 - 1)

An Automatized Goniometer System for Channeling Experiments

Toshiji NISHIJIMA, Isamu NASHIYAMA and Eizo TERANISHI
(Electrotechnical Laboratory
Mukodai-cho, Tanashi-shi, Tokyo)

A two-axes goniometer is prepared for channeling experiments in use of pulse-motor driving systems. The driving systems are linked with a particle detecting and a data storing systems, and measurements of channeling effect can be carried out automatically following to a preset scanning step angle in a set up scanning angle region. The step angle is 0.005° per pulse, and the accuracy of the angle setting is better than 0.02° , which is limited by the uncertainty of the gear mechanism in go-and-back motion. Several samples can be mounted on a movable sample holder and an appropriate sample or sample position can be selected out by sliding the holder with a pulse motor driving mechanism. The vacuum in the scattering chamber containing the goniometer is about 7×10^{-7} Torr during experiments. Some examples of channeling measurements performed with this automatized system are also shown.

1. はじめに

数 MeV プロトンおよびヘリウム粒子線によるチャネリング等の実験では、チャネリング効果を起こすために必要な臨界角が非常に小さいため、試料への粒子の入射角度を精密に決定してやらねばならない。ちなみに、Si の単結晶を用いた場合その臨界角は 1 度以下で、したがって 0.1 度以下の開き角をもつビームと 0.1 度以上の精度をもつ非常に精密なゴニオメータが要求される。従来使用されている大部分のゴニオメータは真空系外から回転を導入し操作するため、角度精度の向上に限界があり、また遠隔操作や角度読み取りに不便な点が認められた。しかも、結晶軸を入射ビームに合わせる操作は単純作業の繰り返しで、長時間にわたることが多く、測定の自動化が強く望まれるところである。これらの点を解決するために、パルス駆動精密ゴニオメータを基本とするチャネリング実験の自動測定系を試作したので、その構成、“機能”，使用例について報告する。

2. ゴニオメータ

このゴニオメータは $10^{-6} \sim 10^{-7}$ Torr の真空中において、従来のような回転導入機等を使うことなく、制御室でオートマテックにその角度を制御でき、しかもその移動角度をデジタル表示で読み取ることができることを目標にした。その機構は水平回転と垂直回転の二軸回転機構、ならびに数個の試料を真空を破らずに交換できる可動試料台、およびビーム・センタリング機構からなっている。

いる。水平および垂直の二軸回転はパルスモータを使用し、1ステップ当たり0.005度を容易に得ることが出来る。また、そのゴニオメータの精度についてはレーザを用いて光学的に調べた結果、一方向回転においては0.005度、正逆の両方向回転に対しては0.02度の精度であることを確認した。この水平および垂直回転には、トルク $3 \text{ kg} \cdot \text{cm}$ 200ステップ/回転のパルスモータを使用し、回転化に360のウォームギヤを使用することによって、その一回転を72000ステップに分け、1ステップ当たり0.005度を得た。また、このパルスモータは真空中での放出ガスをできるだけ少なくするよう特別に製作し、また摩擦係数を少なくするためホイルギヤのベアリングは極薄形X接点特殊ベアリングを使用している。ウォームギヤはゴニオメータの精度を決定する心臓部分であるので、組み立て時の変心等の誤差を極力小さくするため、ギヤとシャフトを一体で製作し、特に吟味したラジアルベアリングおよびスラストベアリングをそれぞれ2個使用して、その遊びを最少限におさえた。可動試料台は垂直回転ホイルに装置され、ボールプッシュベアリングで40mmの範囲をトルク $200 \text{ g} \cdot \text{cm}$ の小型パルスモータによって移動でき、試料は $20 \times 60 \text{ mm}$ の範囲に数個装置され、 $1 \text{ mm} / 288$ ステップのギヤ比で真空を破ることなく次々と試料を交換できる。ビームセンタリング機構は、真空系外から真空中のゴニオメータを上下、左右（入射ビームに対し）に $\pm 10 \text{ mm}$ 移動を行なうことができ、入射ビーム軸合わせを容易にした。これらの回転軸およびビーム中心は試料の表面で直交している。また、その組み立て精度は100ミクロン以下に製作した。これらの材質としては、モータのトルクおよび慣性モーメント等の関係から、なるべく軽くしかも摩耗が少なく、真空中で不要なガス等を出さないものが望ましい訳であるが、こういった条件を考慮してホイルギヤ等できるだけアルミ材を使用した。また、摩耗および摩擦係数を改善するためにホイルギヤのかみ合わせ部分には厚さ30ミクロンの特殊処理を行ない、ギヤの潤滑材として微量の二硫化モリブデン粉末を使用することを試みた。また、パルスモータ用リード線はテフロン被膜電線を使用している。

3. 絞 り 系

チャネリング実験では、いかに開き角の少ないビームを取り出すかは非常に重要なポイントである。第2図はその配置を示したものであり、第1絞りは、直径14 cm ϕ の円板に6個の絞りを装着でき、実験に応じ回転導入機を用いて交換できる。覗き窓にてパーニアを合わせることににより、その位置を正確に合わせることができ、点接点を使ったロック機構を備え完全に固定できる。この交換用絞りとして、直径30 mm ϕ 厚さ70ミクロンのタンタル板に0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5 mm ϕ の絞り穴を設けたものを用いた。第2絞りは、80 mm $\times$ 20 mmのタンタル板（厚さ70ミクロン）に0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5 mm ϕ の穴を設け、ビームに対し上下方向に回転導入機を用いて交換できるもので、覗き窓からパーニアを合わせ適当な絞りを選び出すことができる。ビームに対し、左右に $\pm 10 \text{ mm}$ の移動も可能であり、ダクトの中心よりビームがずれていても容易に調整できる機構を備えている。両絞り系にはコオルツビューワー20 mm ϕ が設けてあり、ビーム位置を確認することが出来るとともに、絞り系をビームから完全に外しすることも可能な機構になっている。この絞り系を使用することにより、ビームの広がり角を最少0.02度まで押えることが出来る。

4. コントローラ系

ゴニオメータおよび測定系を集中指令回路にて制御でき、照射量、測定角度範囲、測定角ステップ幅の三つの設定を行なうことにより自動的に測定を行ない、測定値はマルチスケラーにて計数

され、X、Yプロッターにて結果が描きだされる。チャネリング自動測定系の作動順序は次の通りである。

①測定角度範囲と測定角度ステップ幅の設定回路の指示を受けながらゴニオメータの角度を変える。②ゴニオメータが動作し終ると指令回路はマルチスケーラーのチャンネルを一つ進める。③次に指令回路は照射量設定回路をリセットする。④ビームモニター（カーレント・インテグレータ）がビーム積算を開始すると同時に、指令回路はゲートを開けS・S・Dからのシグナルをマルチ・スケーラーにて計数する。⑤ビームモニターが照射量設定値になると指令回路はゲートを閉め、ゴニオメータを回転させ次のサイクルに入る。

以上を測定角度範囲設定値になるまで繰り返し行なう。そのタイムシーケンスを第3図に描いた。第3図でパルスモータの電源を1サイクルごとに切っているのは、パルスモータの発熱を最少限度におさえることにより、アウトガスの量を極力おさえる必要があるからである。

5. 真 空 系

第2図はその真空系を示す。ゴニオメータ用キャタリング・チャンバー及び第2絞り系のガスケット類は、メタル・ガスケットを極力用いる設計とし有機物等のアウトガスを避け、できるだけクリーンな真空領域を作り出すよう設計した。しかしながら、加速器およびダクトの真空系に油拡散ポンプ（ $\sim 2000\ell/\text{sec}$ ）を使用していること、同じダクトを他の実験で使用する必要がある等の事情もありクリーンバキュームという点では、尚充分ではない。

また、パルスモータは動作時の温度上昇があり、そのために放出ガスが非常に多い。しかし、この特性を逆に利用して放出ガスを最小限におさえた。普通、パルスモータは動作時には温度上昇（2時間で80℃程度）があるので、比較的低真空領域でパルスモータを動作させ一種の焼出し法にて処理する。また、実験中の動作時間は約5秒たらず通電させるシステム（第3図参照）にしてありパルスモータの温度上昇はほとんどない。このような前処理（焼出し法）を行なうことにより、パルスモータ駆動による放出ガスはあまり問題にならない。現在、パルスモータの動作時で真空度は 7×10^{-7} Torr程度まで上げることができた。

6. 結 果

第4図はヴァンデグラフ加速器を用い、14MeV陽子線でシリコン〈111〉のチャネリングディップを測定したものの一例である。1ステップ当たり0.05度で測定を行ない、X・Yプロッターで打たせた結果である。この結果にみられるディップは（110）面の面チャネリングと〈111〉軸の軸チャネリングのオーバーラップを示すものとみられ、測定点は160点程度あるが、約100分程度で測定を終了した。この結果、今までの2～3倍の能率をあげるとともに、実験精度の向上も可能となった。

7. む す び

パルス駆動ゴニオメータを用いることにより、比較的容易にチャネリング測定の自動化をはかることができた。このシステムでは一度に5試料程度まで試料台に装置し、実験者が照射量、測定範囲角度および測定角度ステップ幅の三つを設定すれば、後は指令回路からの指令により測定が行なわれ、これらが終了するとオート・ストップで作動が停止する。このシステムを使って、チャネリ

ング実験の能率および実験精度は著しく向上することも可能になった。

しかしながら、今後に残された問題として、現在のゴニオメータは二軸であるが三軸にすることにより、結晶軸をより簡単に合わせ得るようにすること、その回転動作をパルスモータで行なっているのでそのアウトガスの問題があり、クリーンバキューム領域を作り出すために真空系に改良を要する等の点がある。

おわりに、ゴニオメータを製作するにあたり御協力いただきましたトヤマ株式会社、およびパルスモータの改造で御協力いただきました山洋電気株式会社担当諸氏、ならびに当研究所放射線物性研究室室員諸氏に厚く感謝の意を表する。

References

- 1) Gemmell D. S. and Worthington J. N. : Nuclear Instruments and Methods 91 15-28 (1971).
- 2) Engelmohr G. O., Mueller R. M. and White W. : Nuclear Instruments and Methods 83 160-164 (1970).
- 3) Durisch J. E., Neumann W. and Rossel J. : Nuclear Instruments and Methods 80 1-12 (1970).
- 4) Holland R. E. and Gemmell D. S. : Physical Review 173 No. 2 344-357 (1968).
- 5) 西島, 他 : 日本物理学会分科会 1971年10月
- 6) 西島, 他 : 応用物理学会分科会 1973年10月

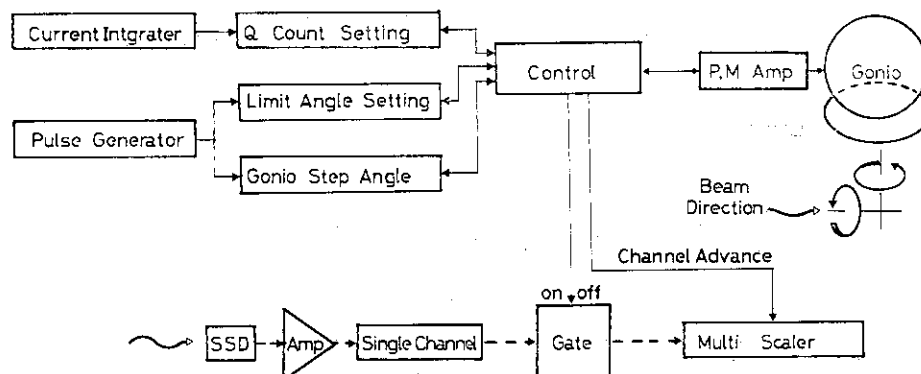


Fig. 1 Block diagram of the automatized goniometer system for channeling experiments.

Measurements are performed automatically following to the preset value of the incident particle quantity, scanning angle step and scanning angle region. The data are stored in a multi-channel analyzer and they are read out and plotted on a X-Y plotter after the measurement.

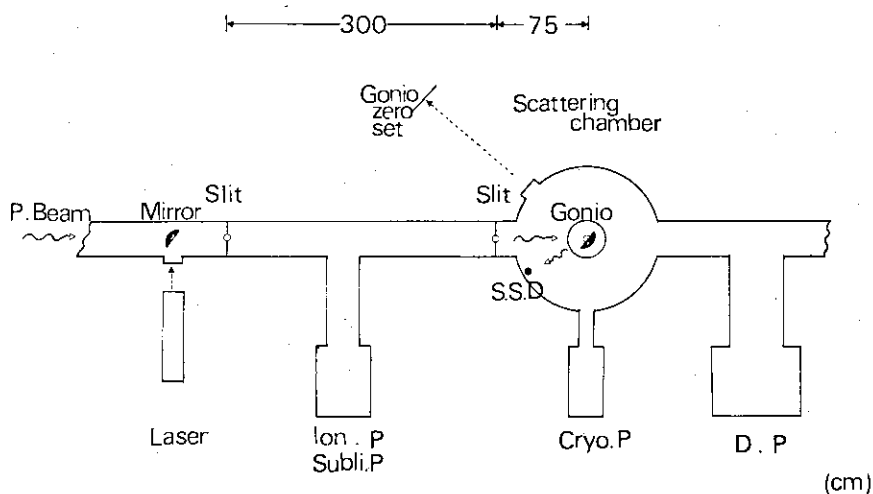


Fig. 2 Arrangement of the goniometer, the angle checking system in use of a laser beam, diaphragms for incident particles and vacuum pumps.

The diaphragms are made of tantalum plates of $70\ \mu\text{m}$ thickness having beam holes of $0.5\sim 2.5\ \text{mm}$ in diameter. An appropriate diaphragm can be selected by sliding the holder. Alignments of the diaphragms can be carried out easily in use of the laser beam.

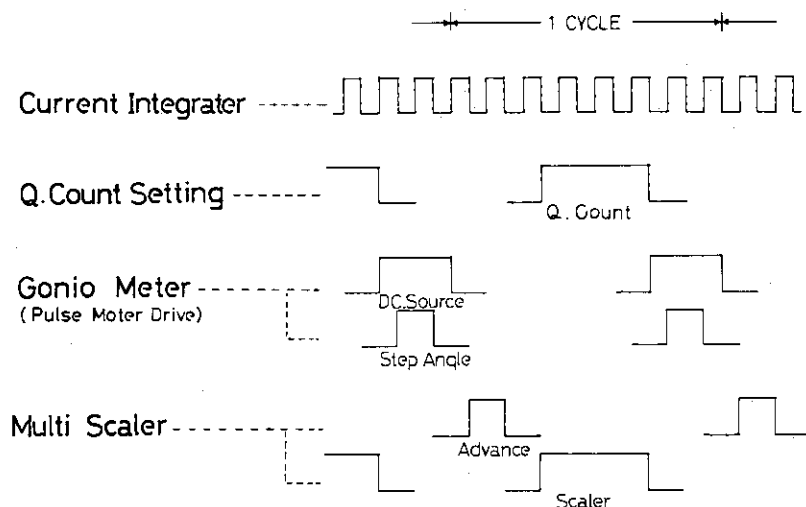


Fig. 3 The time sequence of the automatized measurement system.

The power supply for the pulse motors are cut out each time after every step drive of the goniometer in order to minimize the temperature rise of motors and hence the out-gas from them.

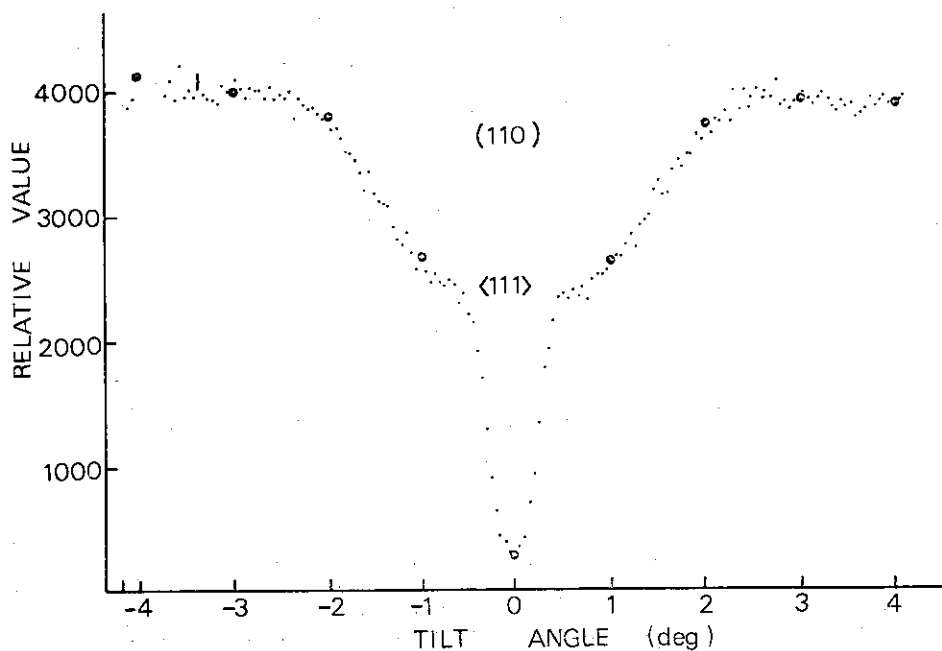


Fig. 4 A channeling dip observed in the back scattering of 1.4 MeV protons from a Si single crystal having the aligned $\langle 111 \rangle$ axis in parallel with the incident proton beam.

The step angle of scanning is 0.05° . Measurement with a 0.005° step angle is also possible in use of this goniometer.

3. イオン・インプランテーション

3.1 イオン注入の現状

大阪大学基礎工学部 升 田 公 三
難 波 進

(大阪府豊中市待兼山町1-1)

Present Status on the Ion Implantation Study

Kohzoh MASUDA and Susumu NAMBA
(Faculty of Engineering Science, Osaka University,
Toyonaka, Osaka)

Recent activities in the field of ion implantation are reviewed. Most of these have been presented at the third international conference on Ion Implantation in Semiconductors and other Materials. New results on atom location of Cd and Te in GaAs at hot implantation condition is also reported.

イオン注入の現状を忠実にReviewする最も公平な方法として前回の国際会議¹⁾での話題を中心として話を進めることにしたい。

Session 1に於てはRadiation Damageが取上げられた。イオン注入においては、注入された原子自身の効果と、注入イオンが衝突することによって発生した格子欠陥の効果の両方が関与するのは当然のことである。注入された原子に関する研究に於ては、格子欠陥の存在は、考察を複雑にするのみであり、格子欠陥の存在しないように処理を行う。又一方格子欠陥の研究に際しては、電子線照射等を用いることにより異種物質の添加を極力防いだ。従ってこれらに関する研究発表の場としては、従来別々のグループによって行われた。このSessionにおいては従来主として格子欠陥の研究を行っていた人達を中心になって話を進めている。

Max-Planck-Institut のW. F. J. Frankによるintroductionがあり、これまでに得られている結果及びこゝ数年の間にESR, 赤外スペクトルの研究による多くのDataの積重ねを行うことが重要であることを指摘した。

次にCorbett-Bourgoinにより発表されている、スプリット・インタースティシャルの存在が、注入原子の異状拡散の原因を解くかもしれないという可能性を示した。これらは原子の電荷状態の変化によって熱励起を必要としない運動をするというものである。

セルフ・インタースティシャルの問題につづいて注入された不純物のインタースティシャルの考察がなされるべきであるが、まだ実験事実との比較が出来るようなものは現われていない。HeイオンのBackscattering法で測定すると増速拡散部分の原子はサブスティチュショナルの位置でもなくテトラヘドラル・インタースティシャルの位置でもない²⁾。従って先のスプリット・インタースティシャルと注入原子の相互作用又は注入原子のインタースティシャル位置がテトラヘドラル位置

からずれているといったことが判明すればこの分野の発展に非常に寄与することと思う。

Vook がこれに関して結晶中の格子欠陥の影響が非常に大きいことを指摘し先述の原子の電荷状態の変化による原子の早い移動という事実も結晶中の格子欠陥密度に大きく左右されることを示した。

一般にイオン注入という場合は添加不純物の濃度は非常に低い場合から溶解度限度を越える程度の高濃度の場合まで考えられるため、格子欠陥等も複合型が多く出現し従来考えていた格子欠陥の理論をそのまま利用することは困難である。従って今後の問題として高濃度注入の場合、特にアモルファス状態が生成された場合についてESRその他の方法により総合的に研究を展開する必要がある。³⁾⁴⁾

Session 2 に於てはシリコンと題して、主として注入イオンの原子分布についての検討が発表された。デンマークのLindhard が注入イオンの飛程に関して一般的な場合に関して計算結果を発表して以来、この理論は原報の共著者の名前を共にして LSS 理論として多くの人達に引用されている。LSS では多項式展開を用いているため計算結果は近似的に求まるわけでどの程度の近似が適当であるかが問題になる。そこで最近の問題は 1) どの項までとって実験と比較するのが良いか。2) LSS に用いられている以外の原因による Range ののびはないか。3) LSS には結晶軸方向依存性が入らないが事実はどうか。の3点にまとめられる。1) は次の理論の Session に於て取扱われ、2) はハーウェルの G. Dearneley¹⁾、チョークリバー J. Davies⁵⁾ 及東工大 S. Furukawa¹⁾、阪大 S. Namba¹⁾ 等によって目下検討されていて、2, 3 年後には決論が出ると思われる。現在提案されている増速拡散の機構 (LSS で取扱われていないもの) としては次の3種類がある。i) 移動の活性化エネルギーの低いインターstitial が動く、ii) 結晶軸方向以外の方向に進んでいた原子が何らかの原因で結晶軸方向を向きそのままチャンネル成分として深く浸入する、iii) 空格子点の増加によっていわゆる拡散係数が増大する、等がこの3種類の機構である。3) については全く今後の問題であり、結晶方向による異方性の明確な事実が整理される必要がある。

Session 3 に於ては先述の如く LSS の理論に対する新しいアプローチが次々と出されている。これは、プロファイルの測定技術が急速に発達したことと、デバイス製作に伴ってかなり正確なプロファイルが要求されてきたためであろう。

プロファイルの測定法にしても電気的な p-n 接合の測定のみでなく、放射化分析、Backscattering 法、p- α 反応法更にイオン・マイクロアナリシスの方法等を総合して行えるようになった。それぞれ利害損失があるので、どの方法が best であるかは言えない。

Session 4 においては、新しい応用ということで新しい測定技術を中心として発表された。新しい方法として注目をあびたものは $^{10}\text{B}(n, ^4\text{He})^7\text{Li}$ 反応を利用した、ボロンの分布測定法であってボロンは半導体工業において重要であるにもかかわらず、従来の方法では測定精度が上がらなかったものが、中性子反応を利用して感度、精度とも桁ちがいに上昇した。

この他イオン衝撃により発生する K-X 線を利用した原子位置の決定等も上げられる。

又国際会議には出されなかったが、その後チョークリヴァー等で行われている、注入原子が結晶から backscatter される量を測定して LSS の補正を行う研究等も新しい発展をもたらすものとして注目してよい。

Session 5 では II-VI 化合物におけるルミネッセント中心及びクエンチング中心に関する研究が発表された。

イオン注入に関しては、Si、Ⅲ-V化合物、Ⅱ-VI化合物の順で困難さが増大しⅢ-V族についてはかなり明確になってきたが、Ⅱ-VI化合物に関してはまだまだ実験事実の集積が足りないように思える。

Session 6では金属に関する発表であり、主として原子炉材料における放射線効果を中心に発展しつつある分野である。即ち原子炉における放射線損傷に関する研究を行うに際して、重イオン加速器を用いて行えば、そのビーム強度から考えて、原子炉で行えば数十年必要なDataも直ちに得ることが出来る点が特徴である。これらの観点より主としてハーウェルのG. Dearneley等によって各種の重イオン照射が行われて表面状態の研究が行われている。現在の所あまり正確なDataは得られていないが、将来発展する分野であろう。

Session 7ではその他の材料と題していわゆる半導体、金属以外のものが取扱われた。ハイライトは磁気記憶素子であるマグネチックバブルの素材であるフェライトへの注入結果であった。動き得るバブルの道を設定できることは電子工業の分野においては重要な発見と言えよう。この点に関しては日本でも電総研等⁶⁾で行われているが、当日の発表はなかった。

Session 8ではⅢ-V族化合物が取扱われた。Ⅲ-V族化合物においてはストイキオメトリーよりのずれがかなり重要な問題とされる。

Ⅲ-V族化合物では高温注入法と称して、サンプルを室温よりやや高温に保って注入すると最終的な電気的特性が良いことがわかっている。このことに関してEisen等は400℃程度での成功を示し阪大では550℃を示したが、その後この最適温度はかなり広範囲であることがわかり⁶⁾ Backscatteringによる裏付けがわかったので次に特定の研究室の報告であるが、我々の研究結果を補足しておく。

70 KeVに加速したTe及びCdを試料温度を室温より600℃までの条件で注入した。これらの試料は注入後550℃で20分間アニールしている。これらの試料を用いてそれぞれの原子の格子に関する原子位置を求めた結果をFig.1に示す。これは横軸に注入温度を示し、縦軸にチャネリグ測定におけるPercent attenuationを示してある。

即ちTeの場合<111>及び<110>に関するPercent attenuationが共に200℃～600℃の範囲で上昇していることは、この温度範囲で原子が格子位置を占めていることを示している。

又同様にCdに関しては200℃～300℃において原子が格子位置を占めていることが判明する。

従って先に求めたEisenによる400℃、我々の550℃は共に一点を求めたのみであったが、この値はすべて200℃～600℃の範囲に入っており両者は一致を見たと言ってよい。又Cdに関しては同図に点線でχ_{min}を示したが、それよりCdの場合に結晶性が悪くなっていることがわかり、Teと異なる結果をもたらしたものと思われる。更にCdの場合はAsの外部拡散によって影響される効率が多いとも考えられるが、原因はまだ判明していない。

今後イオン注入においてはSiに関しては、基礎的研究は更に精度の向上に努力が払われることになり、デバイス関係に大きな発展が見られるものと思われる。Ⅲ-V族、Ⅱ-VI族化合物については基礎的な面でもまだ不明な点が多い。結晶性の制御がかなり困難である。又新しい材料として金属、絶縁物が考えられるが、あまりに広範囲にわたりすぎるため、原子炉材料の如く具体的モードのはっきりしたものが先にスタートするものと思われる。現状をレビューして重イオン科学の一端として発展したイオン注入は開化はかなり早かったが今後も更に広い範囲で定着した研究方法となるのであろう。

終りに今年8月26～30日大阪で第4回国際会議が行われることをお知らせしておく。

References

- 1) B. Crowder ed: "Ion Implantation in Semiconductors and Other Materials" (Plenum Press. New York-London, 1973).
- 2) Masuda, K., Gamo, K., Imada, A. and Namba, S.: Proc. of the US-Japan Seminar on Ion Implantation in Semiconductors, Kyoto, Japan Aug. (1971).
- 3) Morehead, F. F., Crowder, B. L. and Title, R. S.: J. Appl. Phys. 43 1112 (1972)
- 4) Murakami, K., Masuda, K., Gamo, K. and Namba, S.: Japan. J. Appl. Physics 12 1307 (1973).
- 5) Davies, J. A. and Jespersgard, P.: Can. J. Phys. 44 1631 (1966).
- 6) Takai, M., Gamo, K., Masuda, K. and Namba, S.: J.J.A.P. 12 1926 (1973).

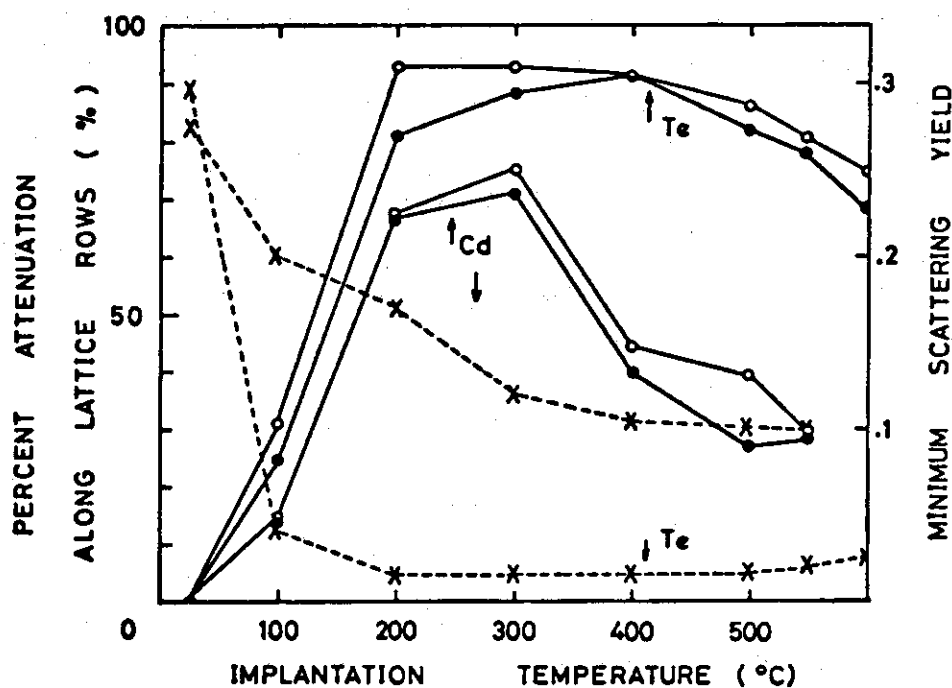


Fig. 1 Percentage attenuation along the $\langle 111 \rangle$ or the $\langle 100 \rangle$ lattice rows (open circle) and along the $\langle 110 \rangle$ lattice rows (solid circle) as a function of impurities (Cd or Te) on or nearby the lattice rows. Minimum scattering yield $\chi_m(x)$ is also shown.

3.2 Ion Implantation技術の ^{85}Kr 固定への適用

日本原子力研究所 木谷 進

(茨城県那珂郡東海村)

Application of Ion Implantation Technique to a Fixation of ^{85}Kr

Susumu KITANI

(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken)

Ion implantation of ^{85}Kr into aluminum has been estimated for β -ray utilization and deactivation of the radioactivity. The penetration of ^{85}Kr into aluminum is dependent on the crystal structure of the target. The stability of ^{85}Kr by heating was also discussed. For the deactivation of the radioactivity of ^{85}Kr by nuclear transmutation the high level neutron flux is necessary, for example the rate of deactivation by flux of 10^{15} n/cm²·sec is estimated to be ten times compared to that of natural decay.

1. はじめに

核分裂収率が大きく燃料中に蓄積されていた希ガスは燃料再処理に際し放出される。この希ガスのうち、 ^{85}Kr だけが放射性核種である。 ^{85}Kr は半減期 10.6yと長寿命であるため、原子力発電量の増加を見込むと、将来には地球規模の汚染につながるとして放出低減技術の開発が必要と考えられている。溶媒吸収法、吸着法、隔膜法や深冷分離法などによる回収法が種々研究されている。

回収技術とともに重要な課題は、回収した ^{85}Kr を今後どう利用し、あるいは永久処分するかである。その手段の一つとして Ion implantation技術^{注1)}を適用して ^{85}Kr をアルミニウム箔に固定する場合について検討してみよう。

2. ^{85}Kr の利用と処分

再処理廃ガス中の希ガスはKrとXeよりなり、このうちKrはXeの1/5に過ぎない。さらに ^{85}Kr は全Kr核種のうちの11.5%に過ぎない。従って、低濃縮ウラン燃料を1 ton/day処理する再処理工場から放出される ^{85}Kr のガス量は約6 ℓ/dayに過ぎない。クリプトンからの ^{85}Kr の同位体濃縮は熱拡散法などにより可能と考えられる。

得られた ^{85}Kr は、一つには β 線源(最大 β 線エネルギー: 0.67 MeV)として積極的に利用を試みるか、または永久貯蔵するかである。最近中性子吸収による消滅処理が検討されている。いずれの場合にも、安定な ^{85}Kr の固定法が必要である。Fig. 1にこれらのプロセスのフローシートを示す。

注1) Ion implantationに関する最近の文献サーベイはDanielle K. Seagerにより "Ion implantation: A Selective bibliography", SC-B-710148(1973)にまとめられている。

3. アルミニウム金属への implantation

アルミニウム金属への⁸⁵Krイオン注入はPiercy (Chalk River) ら¹⁾により報告されている。純粋な⁸⁵Krイオンを40 KeVで加速し、 4×10^{14} ions/cm²で多結晶アルミニウムと、非晶質のAl₂O₃に注入が行なわれた。Fig. 2 (a)に示されたように、厚さ方向の⁸⁵Kr分布はこれら2種類の物質において特徴的である。Al₂O₃の場合には、random structureに対するMonte Carlo解析によって得られる分布が認められる。一方、アルミニウムの場合にはその面心立方結晶の構造と関係のある tailing が認められる。^{注2)}

アルミニウム単結晶を用い、Krイオンビームに対する結晶方位とペネトレーションとの関係についても実験が行なわれた。Fig. 2 (b)に見られるように、ペネトレーションは $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ および $\langle 110 \rangle$ 方向によって大きく異なっている。結晶構造に基づく単純な考察から、⁸⁵Krのペネトレーションは $\langle 111 \rangle$, $\langle 211 \rangle$, $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ の順に増加すると予想されるが、実験結果はこの予想と良い一致を示している。

結晶固体に対するイオンビームのペネトレーションを調べる計算コードが作成されている。アルミニウムの如く面心立方結晶では上述のような順序にペネトレーションが大きいことが算出されるが、定量的な計算には至っていないようである。

以上の実験から、⁸⁵Krをアルミニウムに注入するには、二つの点に留意すべきである。一つは金属表面に形成されている酸化被膜の除去であり、他は表面上に $\langle 110 \rangle$ 結晶を優先するような金属箔の製造である。

4. ⁸⁵Kr 固定箔の機械的 熱的安定性

Ion implantationによるKrイオンのアルミニウムへのペネトレーションは加速エネルギーが 10^3 KeV程度では7 μ m以下に過ぎない。そのため、大量のKrを注入するにはそれに相当する面積が必要である。実用的には薄い層に注入した後箔を圧着し、その体積を減少させる方法がとられるものと考えられる。このような機械的加工に伴うKrの放出について知見が必要である。

熱的安定性も同様に重要な課題である。Matzkeは²⁾ゲルマニウムおよびシリコンにXeを加速エネルギー40 KeVで 1×10^{11} ions/cm²注入し、加熱に伴う放出について実験を行なっている。これらの固体はダイヤモンド型結晶で、Fig. 3に見られるように融点T_mを基準に0.5 T_mを熱的安定性の一つの目安として与えている。この温度は放出率が10%に相当する温度であり、放射性気体の閉じ込めという見地からはさらに100°C低い温度上限値が必要であろう。Fig. 4に見られるように高い密度で、またFig. 5に見られるように高エネルギーで注入した場合、結晶表面に乱れが生じることやより大きいペネトレーションが生ずることによって加熱による放出率は高温側にシフトすると考えられる。また、面心立方結晶はダイヤモンド型結晶と比較し放出率が一般に小さいことが知られている。このことは⁸⁵Kr固定の目的にとってはプラスに作用する。

アルミニウムに対する⁸⁵Krイオンの注入密度はどの程度まで許されるか明らかではない。かりに 5×10^{16} ions/cm²まで可能とすれば、放射能の量は2.7 mCi/cm²に相当する。再処理工場の規模を1 ton/dayにとれば、⁸⁵Krの放出は 8×10^3 Ci/dayであるから、注入速度は5.6 Ci/min、換言

注2) 注入量の50%をストップさせるに要するmedian rangeおよびmost probable rangeとBohr-Nielsen式による理論値との比較がアルカリ金属イオンのアルミニウムへの注入実験について報告されている(J. A. Davies, et al.: Canad. J. Chem. 38, 1535 (1960)).

すれば $3.6\text{cm}^3/\text{min}$ (NTP) が要求される。注入密度を考慮すると、 300m^3 のアルミニウム箔が必要ということになる。

β 線の利用という点では、面線源は自発光性の照明工学や放射線工学への応用にとって有用と考えられる。

5. 中性子照射による放射能消滅

Table 1 に ^{85}Kr をアルミニウムに固定し、中性子吸収を行なう場合の熱中性子吸収断面積、生成核種を示す。放射能の点では ^{85}Kr は安定核種である ^{86}Kr に変換され、さらに中性子吸収があったとしても短寿命の ^{87}Kr を生成するに過ぎない。また、アルミニウムについては、天然に存在するのは ^{27}Al のみであり、これは中性子吸収断面積が小さく、しかも生成する ^{28}Al は短寿命の核種で放射能的には新たな問題は生じない。^{注3)}

アルミニウム金属中の不純物の寄与については、川崎³⁾ のデータが直接参考となる。Table 2 にアルミニウム試料片 A (純度 99.0%)、B (純度 99.9%) および C (純度 99.99%) について、照射に伴い生成する放射核種が示されている。長時間の照射とともに長寿命核種 ^{125}Sb が生成している。この他の不純物としては鉄の混入は望しくない。

以上の核データのうち、 ^{85}Kr 自身の中性子断面積がそれほど大きくない点が放射能消滅技術にとって有利ではない。従って、大きい中性子束が必要となる。いま、中性子束 $10^{15}\text{ n/cm}^2\cdot\text{sec}$ が得られると仮定すれば、中性子吸収による ^{85}Kr の消滅半減期は約 1 y に短縮される。

以上の記述は、多くの仮定のうえにたって ^{85}Kr を ion implantation によってアルミニウムに固定し、その利用ないし中性子吸収により放射能を消滅することについて言及した。放射能消滅という課題は実用的にはかなり難しい今後の問題であることがうかがわれる。Ion implantation 技術の開発という見地からは放射線工学や照明工学への応用がより実際的であるように思われる。そのためには効率の高い気体分子に対するイオン化技術や注入材料については任意の結晶面を表面に持たせる金属圧延技術の進歩が望まれる。

References

- (1) Piercy G. R., Brown F., Davies A. and McCargo M.: Phys. Rev. Letters, 10, 399 (1963)
- (2) Matzke HJ.: Radiation effects, 3, 93 (1970)
- (3) Kawasaki M., Nomura S. and Ito N.: Denki Kagaku (Electrochem. Soc. Jap.) 26, 624 (1958)

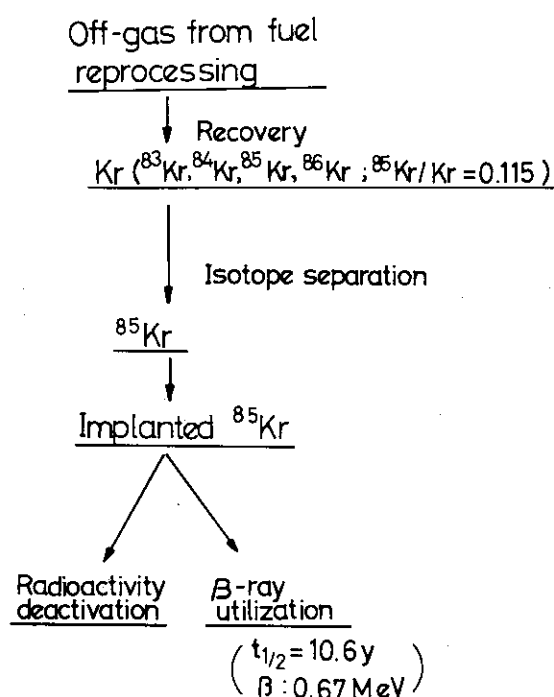
注3) さらに厳密には high flux 炉の場合、高速中性子による ^{27}Al の核変換についても検討されなければならない。

Table-1 Neutron absorption of ^{85}Kr implanted in aluminum

核種	中性子断面積	中性子吸収生成物	半減期
^{27}Al	230 mb	^{28}Al	β^- 2.3 min
^{85}Kr	15 b	^{86}Kr	stable
^{86}Kr	2 b	^{87}Kr	β^- 78 min

Table-2 Radioactivity of aluminum irradiated in nuclear reactor

アルミニウム試片	時期	半減期(実測)	核種
A	初期	12.8 h	^{64}Cu (12.8 h)
"	中期	28~30 h	^{76}As (27 h)
"	後期	2.5 d	^{122}Sb (2.75 d)
"	" (M社)	4.5 d	?
B,C	初期	30 h	^{76}As (27 h)
"	中期	2.75~3.0 d	^{122}Sb (2.75 d)
"	後期(M社)	4.0 d	?

Fig. 1 Recovery, isotope separation and implantation of ^{85}Kr from off-gas of spent fuel reprocessing.

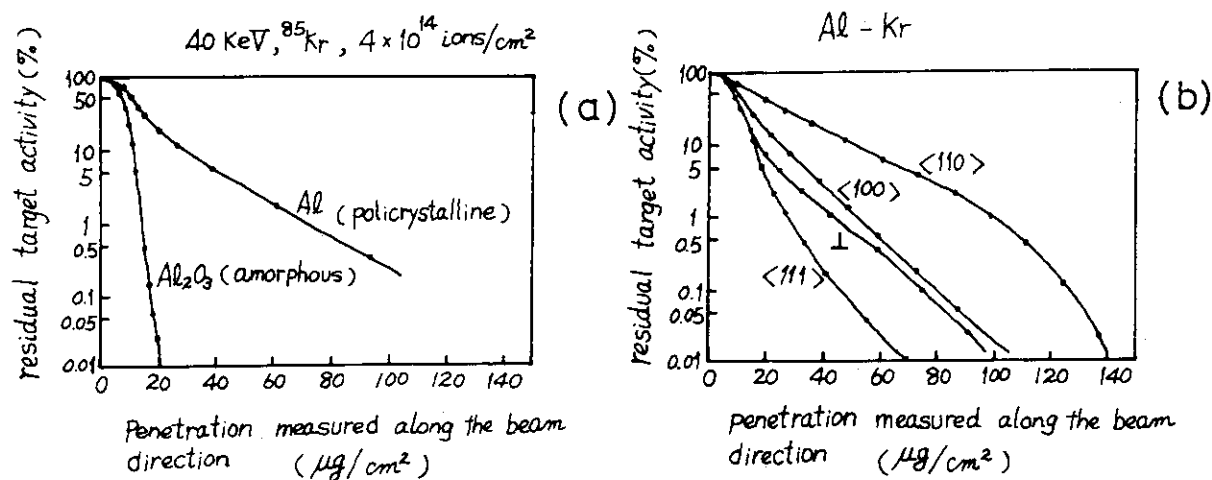


Fig. 2 Experimental range curves showing the residual target activity (percentage of ions not yet stopped) plotted against the penetration distance.

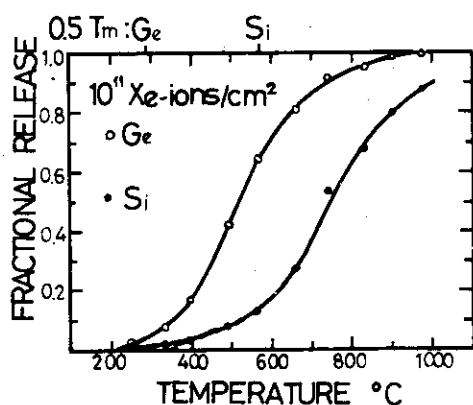


Fig. 3 Isochronal release of xenon from Ge and Si following bombardment with 40 keV ions to a low dose of $1 \times 10^{11} \text{ ions}/\text{cm}^2$.

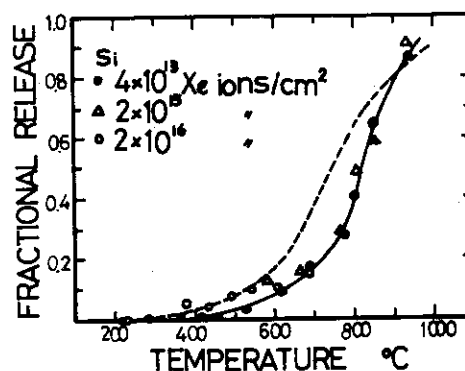


Fig. 4 Isochronal release of xenon from Si following bombardment with 40 keV ions to intermediate or high doses of 4×10^{13} , 2×10^{15} , or $2 \times 10^{16} \text{ ions}/\text{cm}^2$. The corresponding release for low dose bombardment ($1 \times 10^{11} \text{ ions}/\text{cm}^2$) is shown by the dashed curve taken from Fig. 3.

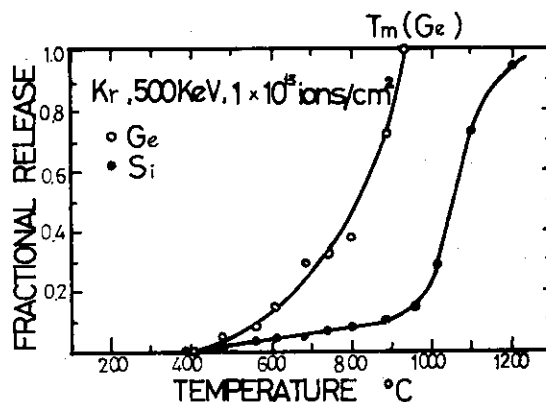


Fig. 5 Isochronal release of krypton from Ge and Si following bombardment with 500 keV ions to an intermediate dose of $1 \times 10^{13} \text{ ions}/\text{cm}^2$.

4. 重イオン放射線化学

4.1 高LET放射線化学——その目的と問題点——

理化学研究所 今 村 昌
(埼玉県和光市広沢 2-1)

Radiation Chemistry in the High LET Region — Some Aspects of Heavy-Ion Radiolysis —

Masashi IMAMURA
(The Institute of Physical and Chemical Research,
Wako-shi, Saitama)

Some aspects of the heavy-ion radiolysis studies are reviewed from a viewpoint of the LET effect in the radiation chemistry. Discussions are given of the track structure of heavy ions and the results for aqueous solution and liquid organic substances including aliphatic ketones.

1. 緒 言

放射線化学は電離放射線と物質の相互作用によって引き起こされる化学反応をしらべるという目的をもつ化学の一分野である。その比較的浅い歴史にもかかわらず、放射線化学は多彩な発展をとげ、いまでは化学の他分野のみならず、物理学や生物学とも多くのかかわり合いをもつに至ったと放射線化学者は考えている。放射線化学の研究はしかしながら、いままでほとんどが ^{60}Co を線源とする γ 線と加速器などによる電子線を用いて行われて来た。放射線と言うからには当然より重い粒子も含まれるわけであるが、実験的な困難さから重粒子を用いた研究は極めて微々たるものに過ぎない。本稿では、重粒子線を用いる実験の目的と問題点を、放射線化学全般の発展と成果の中で考え、筆者の二三の私見を述べることにする。

2. 放射線化学の研究目的と成果

2.1 研究の変遷

放射線化学の研究は、生物体に対する放射線の影響、そしてまた生物体の主要構成成分である水の放射線分解を明らかにすることから始まったといつてよいであろう。まず水に放射線が吸収されたとき H_2 と H_2O_2 の生成することが確認された。次の段階はこれらの安定生成物がつくられる過程を明らかにすることであった。

このためまず多くの化学的手段、たとえば H_2 や H_2O_2 の前駆体と考えられるH原子やOHラジカルと反応性に富むいわゆるラジカル捕獲剤 (scavenger) を加えてその濃度と生成物収率の間の関係をしらべ、中間体の種類や反応経路について実験事実と矛盾しない推論を行う、といった方法が極めて盛んに行われた。1950年代に行われたこの方法は、水以外の有機化合物にも多く適用された。

さらに次の段階は、これらの中間体を単なる推論ではなく、直接物理、化学的な方法によって検知することであった。その有力な一つの方法はパルス電子線照射法である。この方法では、時間幅の短い ($\leq \mu\text{sec}$) 強い単発パルス電子線照射によって短時間に多量の中間体をつくり、それらの物理的および化学的性質を光吸収の変化からしらべることができる。1960年初頭より全盛を極めたこの方法によって多くの中間体の吸収スペクトルとその反応速度が実測され、その成果によって放射線化学は他分野と広いかかわり合いをもつようになったのである。

2.2 反応中間体の研究

パルス電子線照射法はまず水の放射線分解で放出された電子が水和されて準安定化した状態、水和電子、をみつけた。700nm附近に強い吸収極大をもち、可視部から紫外部にかけて大きな吸収帯をもつ水和電子の吸収スペクトルの測定にひきつづき、その反応速度が数百種の化合物について実測された。パルス法はまた水以外の有機化合物にも適用され、いままで単に想像的であった中間体の多くを直接に検知することができた。このようにして得られた知見は電子、イオンのみならず、フリーラジカルや励起分子にまで及んでいる。

短寿命中間体はまた液体窒素温度でガラス状になる有機化合物中に安定に捕捉され、吸収スペクトル、ESRなどの方法によってそれらの物理化学的性質をしらべることができる。放射線化学はこのようにして、他の化学的方法では容易につくりえない多くの中間体をつくり、その性質をしらべるのに極めて有効な手段であることを実証したのである。

2.3 放射線化学初期過程

以上述べた花やかな成果は放射線化学の一側面である。何故ならばそれらは放射線のエネルギーが付与されてからはかなりの間 ($> 10^{-8}\text{sec}$) 経った後の熱平衡に達した中間体の姿をみているからである。たしかに放射線化学は多くの中間体を研究するのに恰好な方法であるに違いないが、放射線化学に特有な反応はすでにこの時間よりはるか前に終了していると考えられる。

放射線化学の研究のもう一つの側面は、放射線からのエネルギー付与でできるもっと寿命の短い活性種と、放射線の飛跡に沿ってできるこれら活性種の挙動である。たとえば、放射線のエネルギーの大部分は電子的な励起に用いられると考えられるが、励起といっても種々の様式のものがある。励起エネルギーについて言えば、どんなEをもつ励起がどのような頻度で起こるのだろうか？現在のところ、多くの分子について多くの励起はかなり大きなE (10~50 eV)をとまうと言うことができる。光化学的励起状態に比べると、このような高い励起状態が全く新しい研究対象になることは明らかである。

2.4 LET効果

放射線のエネルギーが付与されて一定時間が経過すると、熱平衡に達した準安定中間体は系内に均一に分布し、パルス法などによる直接観測の対象になるのであるが、この一定時間内の活性種の種類や反応については現在のところわれわれは直接うかがい知る手段をもっていない。ただ熱平衡に達した中間体がエネルギー付与点のごく近傍に一群となり、いわゆる spur を形成すること、および時間とともにこれら spur が拡散し、その間に中間体同士の相互作用が生ずるということは理論的に推論され、実験的にも裏づけられている。

放射線の種類やエネルギーによって、この spur 間の距離も変化することになり、従って反応も生成物収率も変化する。放射線化学ではこれを linear energy transfer (略して LET) 効果と呼んでいる。いままでにかなりの実験的研究が γ 線のほかプロトン、 α 粒子などを用いて行われ、結果

の多くは spur 拡散理論によって説明されている。^{1), 2)} この LET 効果の研究は、放射線化学初期過程に関して新たな知見を提供する一つの有力な方法であると考えられるのであるが、 $10 \sim 20 \text{ eV}/\text{\AA}$ 程度の LET 領域の結果からはあまり多くの知見は得られなかった。

しかし LET がさらに大きくなると実験結果は spur 拡散理論のみによって説明しえない因子を含むようになり、放射線と物質の相互作用の本質的な問題のみならず、放射線生物学、放射線物理学との関連も多くなってくることがわかった。高 LET 領域の実験的研究から得られる知見がどの程度低 LET 領域の初期過程の解明に貢献しうるかは明らかではないが、未だほとんど開拓されていない放射線化学の新しい分野の一つであることはたしかである。

重イオンを用いた放射線化学はいまやと緒についたばかりであるが、以下わずかな実験結果を基に将来の展望と問題点のいくつかを挙げてみよう。

3. 重イオン放射線化学における問題点

3.1 重イオントラックの構造

重イオンは極めて大きい LET をもっているから、エネルギー付与によって生ずる励起、イオン化はトラックに沿ってほとんど連続的に起るとみなして差しつかえない。したがって初期生成物は円柱状トラックを形成することになる。

この円柱状トラックの半径は max. impact parameter によって計算できると考えよう。たとえば水の最低電子励起エネルギーを $E_1 = 5 \text{ eV}$ とすると、 $10 \text{ MeV}/\text{nucleon}$ のエネルギーをもつ入射粒子では半径約 $30 \text{ \AA}$ 程度になる。入射粒子のエネルギーが減少すると半径も小さくなるが、glancing collision で生成する電子のエネルギーを 100 eV とすると、その水中での飛程 $\sim 15 \text{ \AA}$ が半径の最低限になると考えられる。Mozumder³⁾ はこのような半径をもつものをトラック core と呼んでいる。

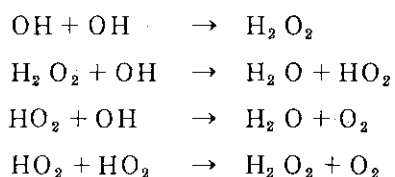
相対論的速度以下の粒子は、ほぼ等量づつのエネルギーを glancing と knock-on collision によって失うが、後者によって放出される二次電子のエネルギーは $E_e = 2mv^2 \cos^2 \theta$ (θ : 散乱角) で与えられる。したがって、粒子のエネルギーの増大とともに 100 eV 以上のエネルギーをもつ電子はトラック core の外に blob および short track と呼ばれる比較的低 LET の分枝をつくることになる。⁴⁾

このような重イオンのトラック構造のモデルは少くとも定性的には実験結果をよく説明する。すでに前回の研究会で^{5), 6)} 議論したので詳細については述べないが、空気飽和 Fricke 線量計の $G(\text{Fe}^{3+})$ の LET 依存性はこのモデルを支持するものである。しかしこのモデルに基づく計算値と実測値の一致は余り良いとは言えない。とくに二次電子のつくる core 外のトラックの寄与を見積るのが極めて困難である。今後、理論面からも実験面からもこの点の検討が必要である。

3.2 Fricke 線量計の極限収率

空気飽和 Fricke 線量計の $G(\text{Fe}^{3+})$ の値は LET の増大とともに減少するが、重イオンのエネルギーに対応する instantaneous $G(\text{Fe}^{3+})$ の値を求め、 $\text{LET} \rightarrow \infty$ にまで外挿すると 2.9 という値が得られる。⁷⁾ この値はトラック core 内における $\text{Fe}^{2+} \rightarrow \text{Fe}^{3+}$ の極限収率であると同時に、無限大 LET の core 内における水の放射線分解収率 $G(-\text{H}_2\text{O})$ の極限值であるともみなすことができる。この実験値は $G(-\text{H}_2\text{O})$ が LET とともに連続的に減少することを明瞭に示すものであり、水の放射線分解初期過程に対し重要な手がかりの一つとなる。

水の高LET放射線分解において未だ解明されていない問題の一つに酸素分子の生成の可能性がある。酸素分子はトラック core 内の次のような反応によって生成するものと予想されている。



高LET領域における酸素分子の生成は放射線生物学における酸素効果ともまたRBE (relative biological effectiveness) とも関連して重要な問題である。

3.3 液体有機化合物の放射線分解

炭素-炭素および炭素-水素を多く含む有機化合物の放射線分解の反応機作は極めて複雑であるが、主生成物である水素の収率を一つの目安にするとLET効果の一面が明らかにされる。

比較的低LET領域では、水素収率 $G(\text{H}_2)$ はLET増加とともに減少するもの(アルコール、シクロヘキサンなど)と増加するもの(芳香族炭化水素)との二つの範ちゅうに分けることができる。しかしLETがある程度以上になると、その属する範ちゅうの如何にかかわらず $G(\text{H}_2)$ はLETとともにかなり急激に増加することがわかった。⁷⁾ Schuler⁸⁾ はこれに対する理由として、トラック末端で起こる荷電交換などを挙げているが、Mozumder らの計算³⁾でもそのような寄与はそれほど大きくないことが示されており、他に理由を求めるのが妥当であろう。

3.4 脂肪族ケトンの放射線分解

液体のアセトン、メチルエチルケトン、ジエチルケトンについても3.3で述べたような $G(\text{H}_2)$ についてのLET効果がみられる。^{9), 10)} またこれらの化合物からのもう一つの気体生成物である一酸化炭素の収率 $G(\text{CO})$ も $G(\text{H}_2)$ と同様なLET効果を示す。しかしケトン類の重要な特徴は、 $G(\text{H}_2)$ および $G(\text{CO})$ が、ケトンの種類により $50 \sim 70 \text{ eV}/\text{\AA}$ のLETにおいてそれぞれ極大値をとることである。この現象は、あるLET以上では付与されるエネルギーに対してケトン分子の分解が“飽和”することを示すものである。すなわち、付与されるエネルギーの量がある一定値を超えると、トラック単位長当たりある一定数までの分子は分解されるが、それ以上の分解は起こらず、エネルギーは“浪費”されることになる。

ケトン分子1個より1個づつしか生成することのないCOについて“飽和”の現象はとくに明らかであり、飽和値を単位トラックについてのCO分子数でみつめると $1 \pm 0.2 \text{ 個}/\text{\AA}$ になる。以上は純ケトンについてであるが、少量の水を加えると“飽和”現象は消失する。¹¹⁾ この結果はトラックの大きさ、およびトラックよりのエネルギー移動の見地から大へん興味深いものである。

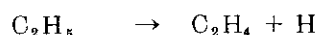
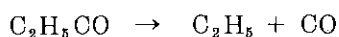
純ケトンの場合に戻ろう。上述したようにCO生成には明らかに“飽和”現象がみられるが、 H_2 については完全な“飽和”はみられず、CO飽和後もなおいくらか生成が引きつづき起こっていることがわかった。また $G(\text{H}_2)/G(\text{CO})$ の比はLETとともに増加する傾向を示している。COはケトン分子1個より1個しか生成しないが、 H_2 はアルキル基から数個生成することを考慮すると、CO生成の“飽和”後もアルキルラジカルの分解が起こっていると考えざるを得ない。この原因の一つに挙げられるのがThermal spike 効果である。

3.5 Thermal Spike 効果

高LETトラックで大量のエネルギーが付与されると、その一部は分子の励起、イオン化に用いられるが、残りは熱エネルギーとして散逸する。ケトン類のように、分子の分解があるLET以上では

一定の領域内でしか起こらないとすると熱として散逸する量はかなりの額に達すると思われる。初期の局部的温度が高く、熱の散逸速度が遅い場合には、この熱は分解のエネルギーに用いられる可能性が大きくなる。²⁾

ジェチルケトン为例にとれば、たとえば C_2H_5CO ラジカル分解の活性化エネルギー (13~18 kcal/mol) に比べ C_2H_5 ラジカルのそれ (約 30 kcal/mol) は約 2 倍大きい。したがって後者の反応の寄与が LET とともに大きくなることは当然である。¹⁰⁾



このような Thermal spike の効果はいままでに何度か LET 効果の一つの原因として指摘されたことがあったが、まだ十分立証された段階であるとは言い難い。

3.6 励起状態の生成と反応

イオン化密度の高い高 LET 放射線トラック内では、一たん生成したイオン、電子の間で中和、再結合によって励起状態の生成する確率は大きくなると予想される。また最初の励起過程および上述の中和、再結合過程でできた励起分子相互間の反応でより高い励起状態の可能性も否定することはできない。

高 LET トラック内での励起分子同士の反応は、ベンゼンなどの放射線分解において H_2 、 C_2H_2 などの生成物収率が LET とともに増加する原因として指摘されている。¹²⁾ また放射線照射にともなう発光収率の LET 増加にともなう減少の理由としても挙げられている。¹³⁾

もし何らかの過程で、高 LET トラック内で高い励起状態の生成が起これば、有機化合物によって生成物の種類に LET 効果がみられることになる。生成物収率の LET 依存性は実験的にかなり多く知られているが、生成物の種類についてははっきりした LET 依存性は知られていない。今後取り上げるべき問題の一つと考えられる。

3.7 固体内反応

低温または常温の固体を放射線照射すると熱平衡に達した中間体 (イオン種、フリーラジカル) は安定にトラップされ、ESR、光吸収スペクトルの測定が可能である。われわれはすでに二三の化合物についてこのような実験を重イオンを用いて行い、フリーラジカルの空間分布と昇温効果、および生成するラジカルの種類の LET 依存性などをしらべた。^{14), 15)} まだ予備的実験の域を出ないが、かなり興味ある結果がえられている。この種の実験はヘリウムイオンなどについては二三行われているが、それよりも重いイオンについては行われていないのが現状である。

4. おわりに

以上重イオンを用いる放射線化学の意義と問題点のいくつかをわれわれの行った実験結果をもとにして述べた。実験そのものは比較的簡単なことが多いが、結果の解析の際に直面するのは基礎データの不足である。LET の極めて高い重イオンによる化学反応は、従来の LET 効果だけを基にした考えでは説明できないことも多く、かなり異なった立場から考察する必要があるように思われる。基礎、理論面からは物理学者の、新しい現象面からは生物学者のより強い協力が要望される。

本稿中で述べられた実験は放射線化学研究の松井正夫博士によって主になされたものである。また実験に当ってはサイクロトロン研究室の唐沢孝博士はじめ多くの方々の協力を得たことを記し、感謝の意を表する。

References

- (1) Burns W. G. and Barker R.: in "Progress in Reaction Kinetics", Porter G., ed., Pergamon Press, 303 (1965)
- (2) Burns W. G. and Barker R.: in "Aspects of Hydrocarbon Radiolysis", Hoigne J., ed., Academic Press, 33 (1968)
- (3) Mozumder A., Chatterjee A., and Magee J. L.: Adv. Chem. Ser., 81, 27 (1968) ; Mozumder A.: Adv. Radiat. Chem., 1, 1 (1969)
- (4) Mozumder A. and Magee J. L.: Radiat. Res., 20, 203 (1966); J. Chem. Phys., 45, 3332 (1966)
- (5) Imamura M. and Matsui M.: IPCR Cyclotron Progr. Rep. Suppl. 2, 143 (1972)
- (6) Imamura M., Matsui M., and Karasawa T.: Bull. Chem. Soc. Japan, 43, 2745 (1970)
- (7) Schuler R. H.: Trans. Faraday Soc., 61, 100 (1965)
- (8) Matsui M., Imamura M. and Karasawa T.: IPCR Cyclotron Progr. Rep., 5, 90 (1971)
- (9) Matsui M. and Imamura M.: Bull. Chem. Soc. Japan, to be published.
- (10) Matsui M. and Imamura M.: IPCR Cyclotron Progr. Rep., 7, (1973), to be published.
- (11) Burns W. G.: Trans. Faraday Soc., 58, 961 (1962)
- (12) Voltz R.: Proc. Int. Discussion on Progr. and Problems in Contemporary Radiat. Chem., Prague, 1, 45 (1971)
- (13) Kimura K. et al.: IPCR Cyclotron Progr. Rep., 6, 110 (1972); *ibid.*, 7, (1973), to be published.

4.2 希ガスイオンによるメタノール衝撃反応

東京大学教養部 新井栄一, 高橋 詢

(東京都目黒区駒場 3-8-1)

Reaction of Methanol with Accelerated Rare Gas Ions

Eiichi ARAI and Makoto TAKAHASHI

(College of General Education, University of Tokyo,
Komaba, Meguro-Ku, Tokyo)

In order to study the chemical reaction of accelerated ions, an apparatus for ion impact was constructed. Rare gas ions (Ar, Xe and Kr) are generated by electrical discharge of 70 MHz radio wave, extracted and accelerated up to 2-6 kV, and injected into a reaction chamber of glass tube. Methanol is used as target in the present experiment. The products, H_2 , CO and CH_4 are collected and analysed by g.l.c. It is found that the yields of the products per ion (Y_j) are proportional to the logarithm of the initial energy of ion (E_i) as expressed by the following equation: $Y_j = (p_j/\alpha) \ln(E_i/E_f)$, where p_j is the probability for the j -th process and α is average logarithmic energy loss per collision. It is proposed that the "billiard model" is applicable to the ion impact process as well as hot atom chemistry.

1. 序

気相でのイオンと分子の反応に関する研究は、主に質量分析計によってなされている。質量分析計でのイオン・分子反応の研究では、観測する対象は通常一次イオン、二次イオンなど荷電粒子に限られる。また、この場合にはイオン電流が小さく反応生成物を化学分析に可能な程度の量を得るのは困難である。

放射線化学の分野でもイオン・分子反応は重要な過程であるが、実験室内で加速したイオンを使った例は少ない。¹⁾

一方、低エネルギーでのイオンのビームを使った実験は、Henglein,²⁾ Mahan,³⁾ Wolfgang⁴⁾ らによって詳しく研究されており、生成物イオンや入射イオンのエネルギー分布、角度分布について詳しい情報が得られるが、今のところ標的分子は簡単な分子の場合が主になっている。

われわれは簡単なイオンビーム源を用い、あまり研究例のないエネルギー範囲(数 keV)で、イオンと中性分子の衝撃反応を行ない、その最終生成物を化学的分析手段によって定量することを試みた。ここでイオンとしては希ガスを、標的分子としては、放射線化学,⁵⁾ 光化学,⁶⁾ 質量分析計⁷⁾などで反応が詳しく研究されているメタノールを選んだ。

2. 実 験

Fig.1 にわれわれの用いた装置^{8,9)}を示した。イオン源としては、70 MHz の高周波放電を採用した。この方式によると、数十 μA のイオン電流が容易に得られる。放電管はパイレックスガラス製である。放電用のリングの位置は微妙であり、位置の取り方によってはイオンが出ない場合もある。全

般的に、管の中央から互いに離しておく場合がもっとも安定で最大のイオン電流が得られる。放電をしている時の放電管内の圧力は測定していないが、通常 10^{-1} Torr 程度と思われ、放電を保つ最小限度位で最大イオン電流が得られる。この時の希ガスの消費量は約 $10\text{ m}\ell(\text{S.T.P.})/\text{hr}$ である。イオン電流は放電管内の圧力によって大いに左右される。

イオンは 2~6 kV の電圧をかけて取り出される。加速されたイオンはアインツェルレンズで集束されて反応管に入る。このレンズ電圧によってイオンビームの集束状態は大いに影響を受ける。加速電圧とレンズ電圧とを最良に設定すると、イオンは径が約 10mm のビームとなり、長さ 30cm の反応管内で大きく拡がることはない。このイオンビームの状態は、イオンとメタノールとの反応による発光現象によって観測され、集束の一番良い条件で反応を行なう。なお、この発光は主に水素の Balmer 線である。

反応管は長さ 30cm, 径 5cm のパイレックスガラス製である。標的分子のメタノールは Pirani gauge で圧力を測定しながら流す。反応管に付けられた液体窒素トラップは、メタノールおよび condensable product (エチレングリコール, ホルムアルデヒド) を捕集するためのものである。メタノールは低圧ではこのトラップではほぼ完全に捕集されて、イオンレンズその他の部分に拡散することはない。また、このトラップの前後に予備の電極が埋め込んであるが、メタノールが高圧 (約 30mTorr) になるとメタノール分子によるイオンの散乱のためにこの電極に数 μA 程度の電流が流れることが観測されている。しかし、通常の実験条件 (10mTorr) ではそのようなことはなく、イオンはほぼ完全に Faraday cup に到達する。

系内 (イオンレンズの周辺) の圧力は電離真空計で測定されるが、放電管に希ガスを流さない時はほぼ 1×10^{-8} Torr, 希ガスを流している状態では $2 \sim 5 \times 10^{-5}$ Torr である。メタノールを流しても電離真空計の圧力はほとんど変化しない。生成物のうち液体窒素でトラップされない生成物 (H_2 , CO , CH_4) は反応中コック V を閉じて水銀拡散ポンプ (Edwards 製 Model 2M4B) で 300ml のガラス容器に汲み込まれる。水銀拡散ポンプはガラス容器内の圧力が数 10Torr になるまで逆流を起こさずに作動する。汲み込まれた生成物はテブラーポンプで圧縮してガスクロマトグラフで定量分析される。ガスクロマトグラフィーは、活性炭 3m, Ar キャリヤーである。

3. 実験結果および考察

3.1 反応装置の信頼性についての基礎的検討

全生成量を知るために、われわれの用いている装置での捕集効率を測定した。あらかじめ量のわかっている CH_4 を反応管下部 C から反応管内に拡散し、それを前述したように定量する。その結果、われわれの装置での捕集効率は約 90% であった。以下の値は捕集効率の補正をしていない。

(1) 反応生成物分布

反応生成物の分布を Table 1 に示した。今回は液体窒素でトラップされない生成物についてのみ定量した。比較のために気相でのメタノールの γ 線照射⁵⁾、遠紫外光照射⁶⁾の結果を Table 1 にあげておいた。この表の値は 5kV- Ar^+ によるもので、メタノールの圧力は 10mTorr である。後述するようにイオンあたりの生成分子数はイオンの初期エネルギーによって変化するが、5kV 位のエネルギーでは、 Ar^+ , Kr^+ , Xe^+ でほぼ同程度の値を与える。

(2) H_2 , CO , CH_4 の「ブランク」について

反応装置の作動条件について詳しく検討したところ、メタノールを流さない状態でもイオンを出

すと無視できない量の H_2 , CO , CH_4 が得られることが見出された。しかし、単なる放電だけで高圧をかけてイオンを引出さなければ、無視できる量の H_2 , CO しか得られない。したがってこれはイオンを出したためであることは明らかであり、おそらく、装置内の壁に付着していたメタノールあるいは水とイオンとの反応による H_2 , CO , CH_4 , また、壁に吸着している H_2 , CO がイオン衝撃によって出て来るためであろう。(この点については、現在より焼出しのよくできる装置に改造中である。) この値はメタノールを流した時に得られる全生成量に対して H_2 で約 20%, CO で約 30%, CH_4 で約 10% であるが、イオン種やイオンのエネルギー、イオン電流によらずほぼ一定である。われわれは、この値をブランクとして差引くことにした。なお前述したように、反応管についたトラップの前後に埋め込んである電極に電流が流れていないことから、トラップに捕集された固体メタノールへのイオン衝撃反応は起こっていないと思われる。

(3) イオン照射時間、イオン電流とイオンあたり収量との関係

われわれはまず収量の再現性や装置の信頼性を確立するために、照射時間と収量の関係を検討した。その結果、収量は照射時間に比例して増加することが確かめられた。

また同様の目的で、単位時間に得られる収量とイオン電流との関係を検討した。この場合用いたイオンは Ar^+ であり、エネルギーは 5 kV である。われわれの装置において、イオン電流を調節する方法は 2 通り考えられる。第 1 はレンズ電圧を変える方法である。しかし、前述したようにこれはビームの集束を悪くするので反応管全体にビームが拡がり、管壁で衝突する可能性があるので、この方法は今回は用いていない。第 2 の方法として、前述したように、放電管内の圧力によってイオン電流が変化することを利用する方法がある。すなわち、 Ar の流量を変えてイオン電流を調節する方法である。今回はこの方法を用いた。Fig. 2 にイオン電流と Ar の流量(放電管内の圧力)の関係を示す。この図で示されている圧力とは電離真空計で測定した圧力であり、放電管内の圧力あるいは Ar の流量を直接表わしているわけではないが一応比例するものとする。このように、イオン電流が小さい時は圧力はかなり広い範囲に変化させ得る。すなわち、高圧でも低圧でも同じイオン電流が得られる。

Fig. 3 にイオン電流と単位時間あたり収量の関係を示した。ここで示した値は、Fig. 2 の実線で示されている圧力で得られたものである。点線で示されている圧力で実験を行なうと、得られる反応生成物収量は、(たとえば $20\mu A$ の場合) 実線で示されている圧力において得られる収量の約 1.5 倍になる。このことから、 Ar の流量が大きくなり、放電管内の圧力が高くなると、反応に何らかの変化が起きていると予想される。

Hurley¹⁰⁾ は r.f. イオン源でつくったイオンについてエネルギースペクトルを測定し、流量を変えた場合イオンのエネルギースペクトルに変化のあることを報告している。(Fig. 4) 図からわかるように、流量が大きい場合、イオンのエネルギースペクトルは小さいエネルギーのところに第 2 のピークを持っている。したがって、流量の大きい場合には平均のエネルギーが低くなって収量は減少することが期待される。しかし、われわれの実験では Ar の流量が大きい場合に収量が増大しているので、イオンのエネルギースペクトルからは直接説明することはできない。この点に関しては今後検討していかなばならない。

3.2 反応収量の初期エネルギー依存性

われわれはメタノールと希ガスイオンの衝撃反応に対して、ホットアトム化学でよく用いられる

"billiard model" を適用することを提案した。すなわち、イオンはメタノールと衝突して運動量を移動し、多数回の衝突をする。この場合、Miller-Dodson¹¹⁾ のホットアトムの反応における収量の式が適用できると考えられる。

$$N_j = N_s \int p_j(E) n(E) dE \quad (1)$$

N_s は反応にあずかるホットアトムの数、 $p_j(E)$ は衝突で反応が起こる確率、 $n(E)$ はエネルギー E での単位エネルギーあたりの平均衝突数 (collision density) である。われわれの場合のように、希ガスイオンを用いる実験では、反応によってイオンが消失してしまうことがないとしてよいので、 $n(E)$ は次式で表わされる。¹²⁾

$$n(E) dE = (\alpha E)^{-1} dE \quad (2)$$

この α は平均対数エネルギー損失で、剛体球同士の衝突の場合は、

$$\alpha = 1 + \frac{\beta \ln \beta}{1 - \beta}, \quad \beta = \left(\frac{M - m}{M + m} \right)^2 \quad (3)$$

で表わされる。そこで、もし p_j と α がエネルギーに依らないと仮定できるとすると、(1) 式の積分として、

$$N_j = N_s \frac{p_j}{\alpha} \ln \left(\frac{E_i}{E_f} \right) \quad (4)$$

が得られる。 E_i はイオンの初期エネルギーであり、 E_f はイオンが Faraday cup に到達した時のエネルギーである。ここで E_f が E_i に比べて小さく、ほぼ一定であるとする、イオンあたり収量はイオンの初期エネルギーの対数に対して直線関係が得られるはずである。

われわれは(4)式に基づいてエネルギーに対する依存性を検討するため、イオンあたり収量と初期エネルギーの関係を実験的に調べた。また、剛体球の衝突を仮定すると、(3)式により α は衝突する粒子の質量比にだけ依存する。そこでイオンの種類を変えて質量に対する依存性を検討した。結果を生成物別に Fig. 5, 6, 7 に示した。図の直線の傾きから p_j/α の値が計算される。その逆数 α/p_j の値をまとめて Table 2 に示した。表の値を比較してみると、イオンの質量が大きくなるにつれて α/p_j の値は小さくなるという傾向が H_2 , CO , CH_4 について共通してみられる。なお、この表の値は α そのものではなく、反応確率 p_j で割った値であるから、 p_j が分らなければ α の値は求まらないが、 p_j は一般に 1 よりも小さいと考えられるので、 α 自体は表に示した値よりは小さいと思われる。(ただし、水素については生成の機構によっては 1 よりも大きい場合が考えられる。)

剛体球衝突に対する、(3)式による α の計算値を Table 3 に示した。Table 2 と Table 3 の値を比較すると、イオン種 (質量) の違いに対する傾向がほぼ一致する。以上のことから、希ガスイオンと衝突するメタノールは、全体の質量 32 と考えるよりはその一部と考えた方がよい。すなわち、希ガスイオンとメタノールの衝突で、運動量の移動はメタノール分子全体ではなく分子の一部と行なわれると考えられる。

References

- (1) Lemmon R. M.: Acc. Chem. Res., 6, 65 (1973)
- (2) Henglein A., Lacmann K., Jacobs G.: Ber. Bunsenges. Phys. Chem., 69, 279 (1965)
- (3) Gentry W. R., Gislason E. A., Lee Y. T., Mahan B. H., Tsao C.: Discuss. Faraday Soc., 44, 137 (1967)
- (4) Hermann Z., Kerstetter J., Rose T., Wolfgana R.: Discuss. Faraday Soc., 44, 123 (1967)
- (5) Baxendale J. H., Sedgwick R. D.: Trans. Faraday Soc., 57, 2157 (1961)
- (6) Hagege J., Leach S., Vermeil C.: J. Chim. Phys., 62, 736 (1965)
- (7) Wilmenius P., Lindholm E.: Arkiv Fysik, 21, 97 (1962)
- (8) Kotoyori T., Takahashi M., Ichinose A.: Bull. Chem. Soc. Jap., 44, 2893 (1971)
- (9) Kotoyori T., Takahashi M.: Mass Spectrometry, 17, 619 (1969)
- (10) Hurley R. E.: J. Phys. E: Sci. Instrum., 5, 1025 (1972)
- (11) Miller J. M., Dodson R. W.: J. Chem. Phys., 18, 865 (1950)
- (12) Placzek G.: Phys. Rev., 69, 423 (1946)

Table 1 Product distribution in the reaction of methanol with 5 kV-Ar⁺ at 10 m Torr of methanol. Radiolysis and photolysis of methanol for comparison.

	H ₂	CO	CH ₄	(CH ₂ OH) ₂	HCHO
5kV-Ar ⁺ molecule/ion	7.7	1.5	0.65	—	2.0
Co γ -ray G-value	10.4	0.84	0.26	3.1	5.6
1849 Å mole/cc sec 10 ⁻¹³	86	2	1.5	60	16

Table 2 Values of α/p_j calculated from slopes in Fig. 5, 6, 7.

	H ₂	CO	CH ₄
Ar ⁺	0.26	1.31	3.41
Kr ⁺	0.09	0.32	0.81
Xe ⁺	0.061	0.21	0.57

Table 3 Calculated α values for several sets of collision pair in the case of isotropic scattering.

	Ar	Kr	Xe
H	0.05	0.02	0.02
Ne	0.73	0.23	0.16
Ar	1.00	0.70	0.50
Kr	0.70	1.00	0.85
Xe	0.50	0.85	1.00
CH ₃ OH	0.94	0.60	0.41

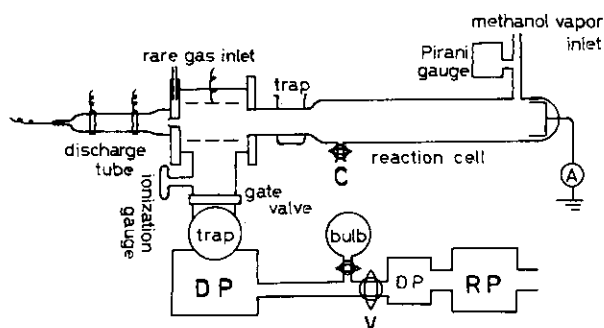


Fig. 1 Diagram of apparatus for ion impact chemistry.

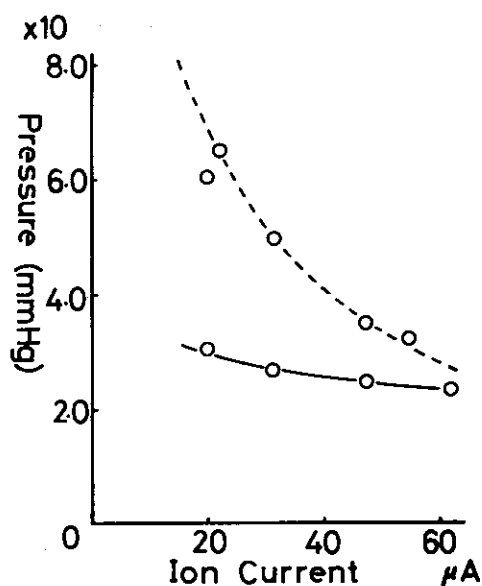


Fig. 2 Relationship between ion current and pressure (flow rate) for Ar⁺ at 5 kV.

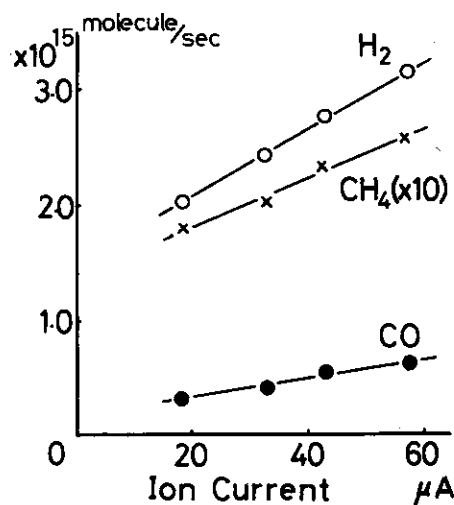


Fig. 3 Relationship between product yields and ion current for Ar⁺ at 5 kV.

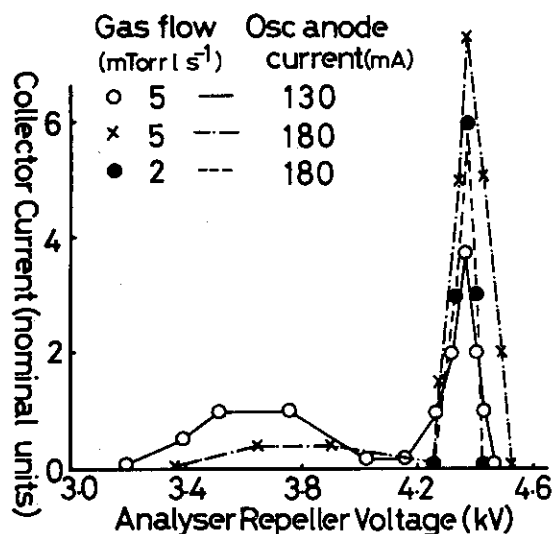


Fig. 4 Energy spectra of Ar⁺ extracted from r.f. source. (by R.E. Hurley)

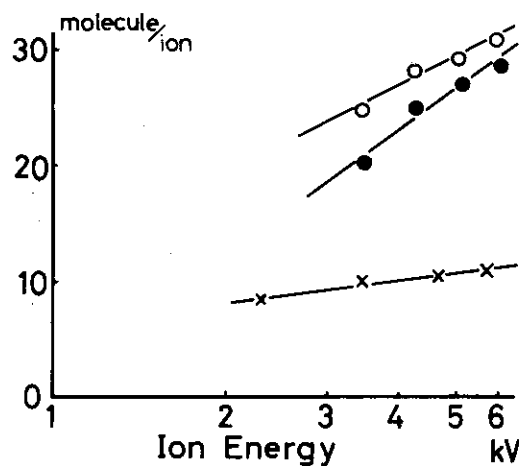


Fig. 5 Plots of product yields against logarithm of initial energy of Ar⁺(x), Kr⁺(o) and Xe⁺(●); H₂

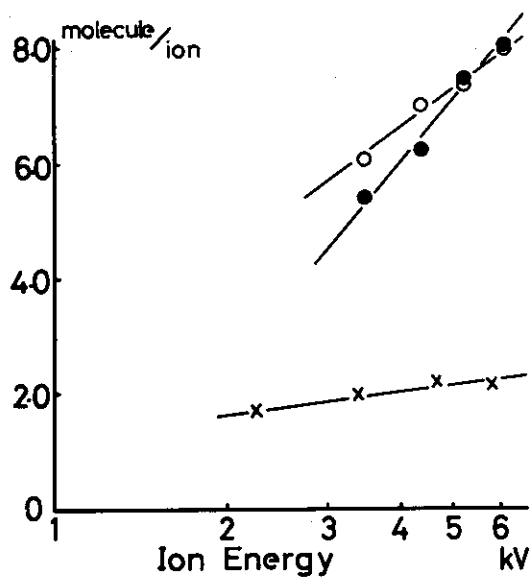


Fig. 6 Plots of product yields against logarithm of initial energy of Ar⁺(x), Kr⁺(o) and Xe⁺(•); CO

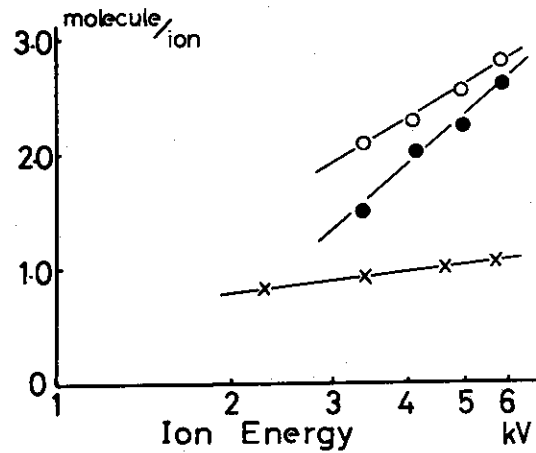


Fig. 7 Plots of product yields against logarithm of initial energy of Ar⁺(x), Kr⁺(o) and Xe⁺(•); CH₄

4.3 重イオン照射によって生ずる有機化合物結晶中のラジカルの空間分布

理化学研究所 木村 一字

(埼玉県和光市広沢 2-1)

Spatial Distribution of Free Radicals Produced in Heavy Ion Radiolysis of Organic Crystals at 77°K

Kazuie KIMURA

(The Institute of Physical and Chemical Research,
Wako-shi, Saitama)

Spatial distributions of trapped fragment free radicals were studied by measuring the linewidths and power saturation in ESR spectra after the irradiation with ^4He , ^{12}C , and ^{14}N ions at 77°K. The irradiating particles were accelerated with IPCR cyclotron. The single crystals subjected to the radiolysis were n-eicosane ($\text{C}_{20}\text{H}_{42}$) (I), malonic acid (II), and trihydrated sodium acetate (III). ESR spectra observed under the given conditions are easy to analyze, since the produced radicals have simple molecular structures and most of them were already assigned in the case of γ -radiolysis by many investigators. It was found that the radicals produced in heavy ion radiolysis of (I) and (II) can be assignable to the same one as in γ -radiolysis and have broader ESR line widths and show difficulty for power saturation. These facts mean that the spin-spin interaction of the radicals trapped in the heavy ion radiolysis is stronger than that in the γ -radiolysis, namely higher spatial distribution of radicals are expected. As for (III), the characteristic reactions were considered in the vicinity of heavy ion tracks by comparing the ESR spectra measured in the γ - and heavy ion radiolysis.

物質が放射線照射によってどのような変化を受けるかということを研究目的とする放射線化学にとって、初期過程あるいは放射線による直接過程は最も興味のある課題である。残念ながらこの過程は現在のエレクトロニクス技術で達しうる限界を越す時間内に終了することが多いため、直接観測は未だ成功していない。ただ、近年の精力的な研究によって、この過程を経た後の問題、すなわち化学的過程については数多くの物質についてかなり明らかにされてきた。したがって、あらためて初期過程の問題に取りくむ時代に入ってきたと考えることができる。

初期過程を研究するにあたって、その方向を2つに分けるとすれば、1つは孤立系の問題——放射線の作用により分子の達する高い励起状態の研究など、1つは凝縮系での問題——1分子の励起というよりは、集団としての励起状態の問題、あるいはエネルギーの拡散にともなう化学変化の問題——であろう。著者は後者に興味を持つものであるが、この方向の研究に放射線源としては重イオンを用いることが有利と考えている。というのは、 γ 線、電子線などに比し、重イオンは LET が非常に大きい、いいかえれば局所的に落すエネルギーは後者の方が桁違いに大きいからである。すなわち、局所的な現象は重イオンを用いれば顕著であろうと期待される。

このような観点から、著者らは理研サイクロトロンで加速された α 粒子、炭素イオン、窒素イオンを低温(77°K)に冷した有機結晶に照射し、生じたラジカルの空間分布をESR測定により調べた。得られた空間分布は γ 線照射の場合に比し、著しく密度の高いことが後に示される。これに加

え、酢酸ソーダ単結晶を用いると、 γ 線では見られない反応が、重イオン照射では起こることが認められた。ESRを用いた上記のような研究は、最近 Henriksen⁽¹⁾, Kevan⁽²⁾, Raitsimring⁽³⁾ によって試みられたが、炭素イオン以上の重イオンにおいて明確な結果を得た例は未だ無いようである。

1. 実験

物質としては、n-eicosane ($C_{20}H_{42}$)、マロン酸、3水和酢酸ソーダの単結晶を用いた。これらの単結晶から $4\text{ mm} \times 4\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ の板状に試料を切り出し、照射用試料とした。厚さを 1 mm としたのは、試料を伝導で冷却するためできるだけ薄い方が好ましいからである。放射線は理研サイクロトロンからの α 粒子、炭素イオン、窒素イオンでエネルギーはそれぞれ 23, 85, 82 MeV であった。試料に吸収された放射線のエネルギーは $10^{18} \sim 10^{20}\text{ eV}$ の範囲である。これらのイオンの他、比較のため、 γ 線照射をも行なった。

77°K で照射するために次のような装置を用いた。試料は金メッキした銅製試料棒 (1 mm の長さ 10 mm 、その一端に $4\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ の試料取り付け用の板が取り付けられている) に取り付け、これをガラス製円筒型ジュワーに宙づりにし、試料部を残し液体窒素に浸した。円筒型ジュワーの側壁には重イオン照射用の孔が空けてあり、照射はこの窓を通して行なった。照射後の試料は、温度が上らないよう注意しながら、ESR 測定用のジュワーびんに移した。このジュワーびんは石英ジュワーと、その中に入るステンレス製円筒容器とから成っていて、液体窒素はステンレス容器およびそれと石英ジュワーとの間の空間と両方に入っている。ステンレス容器は試料棒がその底に差し込めるように作られている。このジュワーにより 77 K の ESR 測定は液体窒素を各部に満したまま、それ以上の温度の測定の際はステンレス容器の中を除き液体窒素を気化させ、ステンレス容器からの伝導による試料棒の冷却を、それにあらかじめ取り付けあったヒーターに流す電流で制御して温度を設定した。

使用した ESR は日本電子 JES-3 型で、100 kHz 変調、飽和の測定はバランスドミキサーを組み込んだブリッジを用いた。ESR シグナルは全て AD 変換器により紙テープに穿孔し、電子計算機を使ってシグナル強度等を計算した。

2. 測定手段

ESR を用いてラジカルの空間分布を測定する手段としては、線幅の測定、飽和法、スピンエコー法等が考えられる。これについて述べる前に、ここで対象とした有機化合物結晶中のラジカルの ESR スペクトルについて考えることにする。まずスピンハミルトニアンは次式と考えて良い。

$$\mathcal{H} = g\beta H_0 S + IAS + \mathcal{H}' \quad (1)$$

(1) 式の右辺第 1 項はゼーマン項、第 2 項は hyperfine splitting を示し、第 3 項の $\mathcal{H}'$ は分子間相互作用で、双極子-双極子相互作用であるが、時にはスピン交換項が含まれることがある。そして今取扱っている固体状態におけるラジカルの電子スピンは隣接した同種スピンによって作られる局部磁場の影響を受ける。また同種スピンであるからラーモア周波数が同じであり、 H_0 に垂直な面内にあるスピンの回転成分は共鳴的に相互作用し合う。したがって $\mathcal{H}'$ が存在すると、緩和時間は大きな影響をこうむりラジカルの ESR シグナルの線幅が広げられ、また飽和しにくくなる。このようにして、ラジカルの空間分布はスピンスピン相互作用の大きさから求めることができる。

一方(1)式の右辺第2項の hyperfine 項は等方的なフェルミ項と核スピン-電子スピンとの間の双極子相互作用項が含まれる。この異方性項と第1項の g テンソルの異方成分によって、固体状態の ESR シグナルは共鳴点が分布し、吸収線は重なりのため幅を生ずる。これがいわゆる不均質幅といわれるもので、 $\mathcal{H}'$ によるものは均質幅である。

ラジカルの空間分布は均質幅から求まるものなのでシグナルの全線幅から不均質幅成分を取り除く工夫が、実際には必要となる。しかしここでは、重イオン照射で生じたラジカルの空間分布が予想通り γ 線照射の場合に比し密度が高いかどうかを確かめることを主目的とするので、ESR 線幅や飽和曲線が LET によってどのように違うかを観測することに止める。 γ 線照射で生じたラジカルの ESR シグナルには均質幅の他に、そのラジカルが受けるべき不均質幅が全て含まれるので、重イオン照射のときそこからどの位幅が広いか、また飽和しにくいが見れば γ 線との比較においては不均質幅に悩まされることはない。

3. 結果

γ 線照射された n-eicosane の ESR シグナルを Fig. 1 に破線で示す。これは $-\text{CH}_2-\dot{\text{C}}\text{H}-\text{CH}_2-$ による超微細構造であることは、試料の測定角度の変化に伴うスペクトルの観測および理論的考察から明らかである。また同図上点線が α 粒子、実線が炭素イオン照射によって得られた n-eicosane 中のラジカルのスペクトルである。これが γ 線の場合と同様 $-\text{CH}_2-\dot{\text{C}}\text{H}-\text{CH}_2-$ によることは明らかであろう。これらのスペクトルから、 γ 線、 α 粒子、重イオンと LET が大きくなるにつれ線幅の増加することが示された。このことは先に述べたように、重イオン照射で生ずるラジカルは γ 線の場合に比し、近接していることを意味している。一方、試料温度を 77 K から上げていくとスペクトルは Fig. 2 のように、またその強度は Fig. 3 に示す変化を行う。Fig. 3 には比較のため γ 線照射した試料についてもプロットした。Fig. 2 のスペクトル変化を見ると 77°K での幅広のスペクトルは 198°K に昇温すると強度が減少し、同時に線幅が狭まり Fig. 1 に示した γ 線の場合と同程度の幅になる。これは、昇温によって最も近接したラジカルが再結合して消え、遠く離れたものが残ったと解釈される。このことは、Fig. 3 により確かめられる。重イオン照射の場合は 110~120°K に昇温するとシグナル強度は急激に減少しその後は γ 線照射のものと減少のカーブはほぼ一致する。重イオン照射のものは、変化カーブが速いものとより遅いものと 2 段階あること、すなわちラジカルは近接した集団とまばらなものがあるとことが判明した。

次にマロン酸単結晶を試料とし ESR の飽和の様子を調べてみる。Fig. 4 に γ 線照射のものと、炭素イオン照射のものを示す。n-eicosane で見られたと同様、重イオン照射のものの線幅は γ 線照射のものに比しかなり広いことがわかる。次に 77°K に測定温度を保ったまま、マイクロ波強度の増加に伴う ESR シグナルの強度をプロットしてみると Fig. 5 を得る。明らかに、重イオン照射のものは γ 線に比し飽和しにくいことが示されている。これらの事実は、重イオン照射で生じたラジカルは近接して存在するため、スピンスピン相互作用が強く、ESR 線幅は広がりまた飽和しにくくなることを示している。

酢酸ソーダの 3 水和物の結晶を試料としても同様の現象が観測されるが、このものについては γ 線と重イオンとで著しく異なったスペクトルが得られたのでそれについて簡単にふれておきたい。Fig. 6 に γ 線、 α 粒子、炭素イオンを照射したときのスペクトルを示す。 γ 線照射のものは良く知られているように $\cdot\text{CH}_3$ が選択的に生ずる。ところが、LET の高い粒子線を照射すると、この選

活性がくずれ $\cdot\text{CH}_2\text{COO}^-$ が LET の大きさにしたがって生ずることが同図に示されている。このことは、重イオンのトラック内あるいはその近傍での反応は、 γ 線の場合と異なることを意味し興味もたれる。

References

- (1) Henriksen T, Horan P. K., and Snipes W.: Radiat. Res.: 43, 11 (1970)
- (2) Kaul W. and Kavan L.: Proceedings of Third Tihany Symposium on Radiation Chemistry (1971)
- (3) Raitsimring A. M., Tsvetkov Yu. D., and Moraev V. M.: Int. J. Radiat. Phys. Chem., 5, 249 (1973)

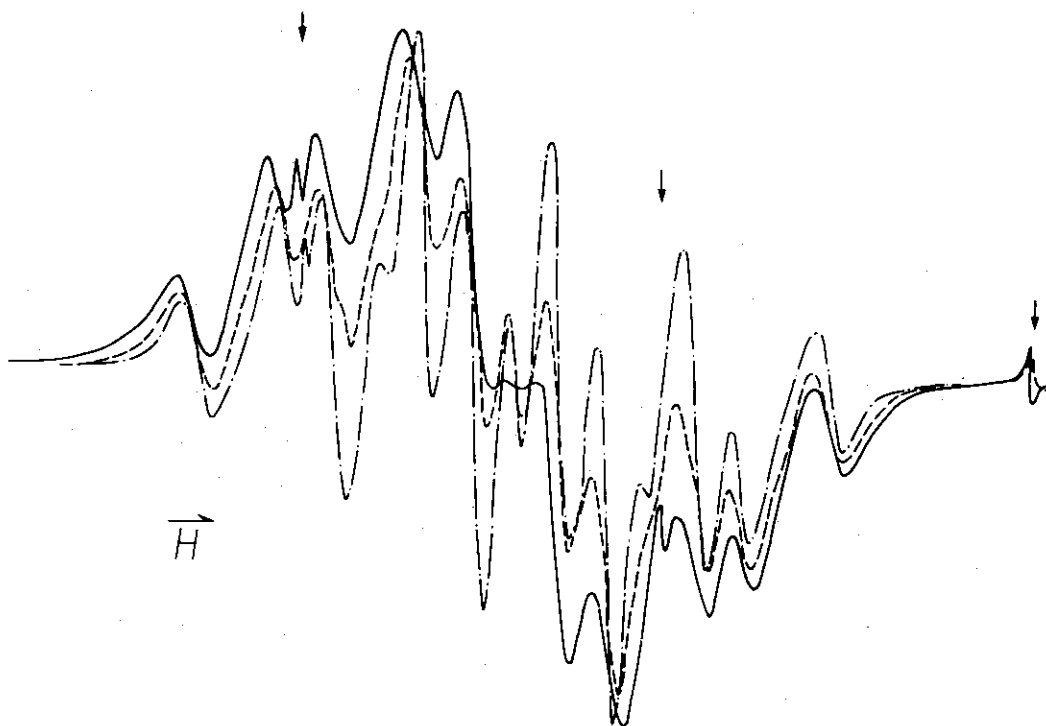


Fig. 1 ESR spectra of irradiated n-eicosane. Irradiated with γ (---), ^4He (....), and ^{12}C (—). Dose: 1.68×10^{21} eV for γ ; 2.3×10^{19} eV for ^4He ; 2.7×10^{19} eV for ^{12}C . Spectra recorded at 77°K. Absorption lines due to Mn^{2+} are indicated by arrows.

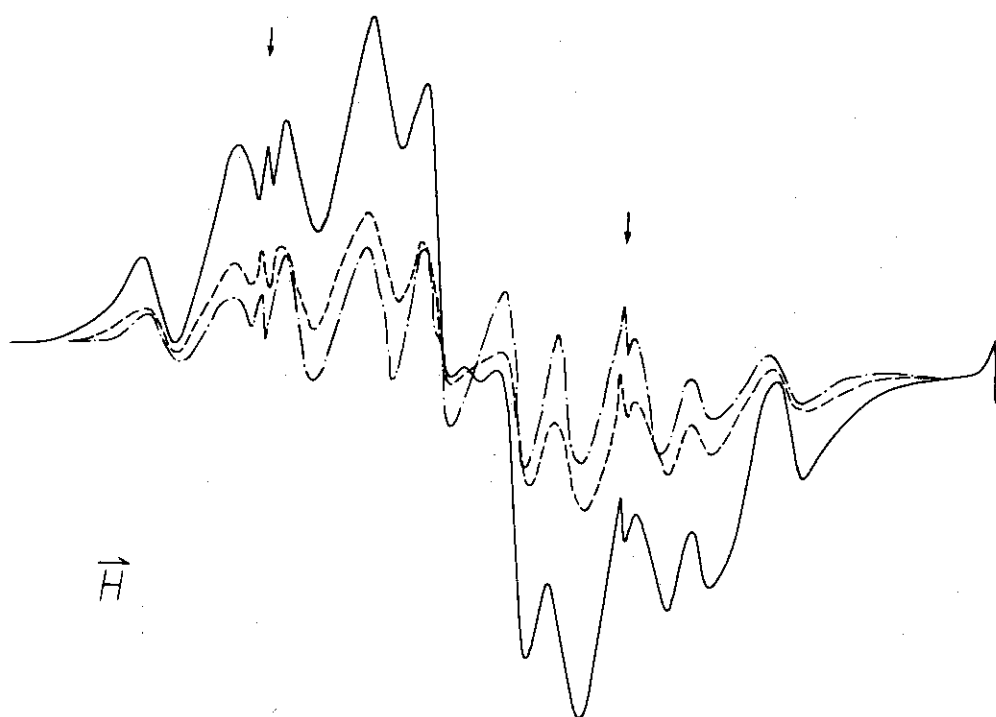


Fig. 2 Variations of ESR spectra with increasing temperature. Irradiated with ^{12}C to a dose of $2.7 \times 10^{19} \text{ eV}$. Temperature: —, 77°K ; ---, 116°K ; - · - ·, 198°K .

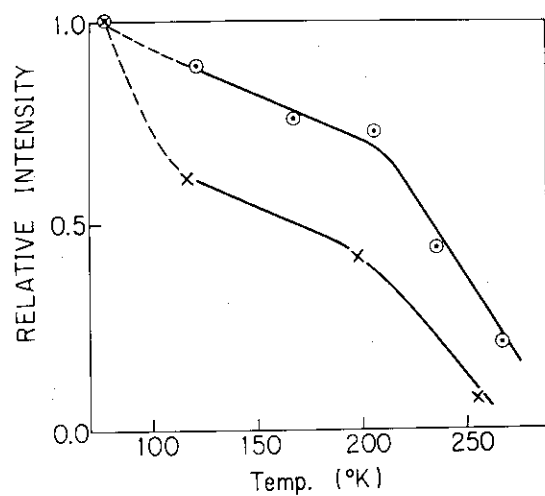


Fig. 3 Variation of ESR signal intensity with increasing temperature. Irradiated with r (⊙), ^{12}C (×).



Fig. 4 ESR Spectra of irradiated malonic acid. Irradiated with ^{12}C (upper spectra), r (lower). Spectra recorded at 77°K .

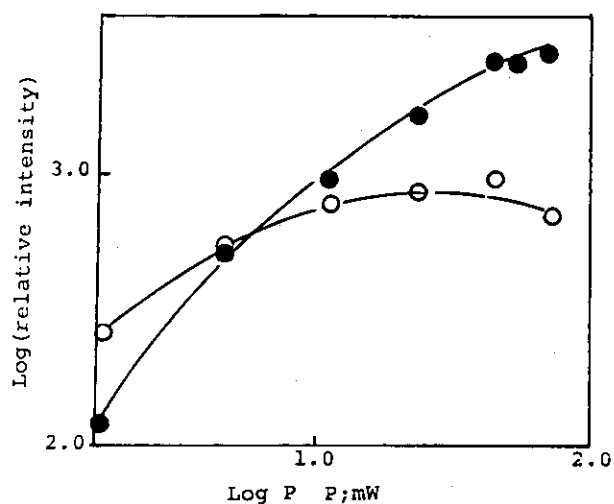


Fig. 5 Variation of signal intensity of irradiated malonic acid with increasing microwave power at 77°K. Irradiated with ^{13}C (○), ^{12}C (●).

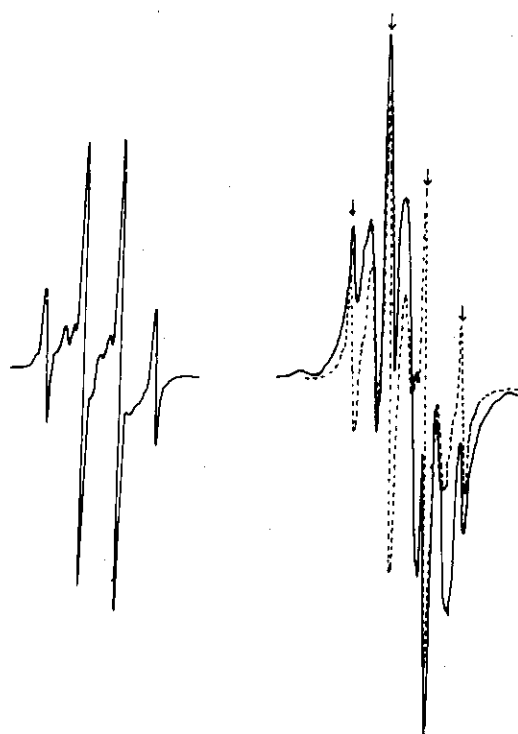


Fig. 6 ESR spectra of irradiated trihydrated sodium acetate at 77°K. Irradiated with ^{13}C (left side), ^4He (---- in right side), ^{12}C (— in right side). The arrows show the positions of ESR spectra of $\cdot\text{CH}_3$.

4.4 放射線のLET効果に関する一考察

立教大学原子力研究所 松浦辰男
(横須賀市長坂2-5-1)

Some Aspects of LET Effect on Radiation-Chemical Reactions

Tatsuo MATSUURA
(Institute for Atomic Energy, Rikkyo University,
Nagasaka, Yokosuka)

Three new aspects are proposed in the aim of understanding the LET effect on various radiation-induced reactions. (1) The scope of radiation-chemical reaction considered should be extended to include the photographic reactions, solid state track detector reaction, and even the scintillation and thermoluminescence phenomena; (2) Various patterns of LET effect are shown and discussions were made on the origin of these effects, i.e., while the higher LET radiation may only possibly favor the reactions of high threshold, it should favor the reactions of high activation energies; (3) In this respect, the role of hot atoms — the kinetically excited atoms — should be considered in radiation-chemical reactions especially induced by high LET radiations such as by heavy ions.

1. はじめに

放射線のLET効果すなわち放射線の種類による放射線化学的収率にたいするLET依存性を理解するため、次のような三つのポイントについて考察をすべきであると提案する。(1)放射線化学の対象として考察すべき化学反応の範囲について。(2)LET効果のパターンとその原因について。(3)高LET放射線化学におけるホットアトムの役割について。

2. 放射線化学反応として考察すべき範囲について

通常、放射線化学の研究対象として考えられている化学反応は、その収率がG値(吸収エネルギー100eVあたりの変化した分子数)あるいは最近では光化学との関連が深くなり量子収率(吸収された光子の数にたいする変化した分子数)として測定されあるいは定義される反応に限られているように思われる。

今回ここで提案したいのは、放射線のLET効果を問題とする場合、上記の反応のほか、Fig.1に示すように本質的には放射線にあってある化学種が励起状態となりそれが脱励起する反応であるが、その時発光あるいは発熱するのみで最終の化学的状態が変わらない現象、例えばシンチレーションやサーモルミネッセンスや、その他写真作用や固体飛跡検出器のような、放射線化学的現象に属するが第一次的な放射線効果(固体中の放射線飛跡)を更に何らかの物理化学的手段特に化学的処理(還元剤または溶解剤による現象)によって増幅して観察しやすい形にして研究がなされ、その応用的な重要さの故にそれぞれ一つの専門分野として発展し通常放射線化学者がほとんど関心をはらわなかったものをも考察の対象にすべきだということである。

Fig.1についていえば、(5)→(1)→(4)、(2)→(1)→(4)がそれぞれ放射線化学反応および光化学反応であり、(5)→(1)→(2)がシンチレーションであり、サーモルミネッセンスは一たん放射線により(5)→(1)

(4)とおこった反応が熱によりトリガーされて化学発光(4)→(1)→(2)反応)がおこったものである。¹⁾

3. LET効果のパターンとその原因について

G値として示される通常の放射線誘起化学反応と、その他の諸反応におけるLET効果をTable 1に示す。放射線のLETが増加するとともにその単位吸収エネルギーあたりの収率が減少する場合、変化のない場合、および増加する場合を、それぞれLET効果が負、変化なし、および正の場合として分類してある。

Fig.2には写真エマルジョン中における放射線によるハロゲン化銀の還元作用においてLETと共に収率が低下することを示す。⁹⁾シンチレーションの場合⁷⁾と同様、これらの系ではその反応のメカニズムは電子の移動が主であってその反応の誘起に必要なエネルギーが少なく、LET値が大となると放射線のエネルギーが無駄に消費されて(熱となって放散して)化学的效果としてあらわれる収率が少なくなる。サーモルミネッセンスの場合もこれと同様の傾向を示すが、この場合重イオンで照射したときには複雑な excited state によると思われる異なったグロークーブを生ずる。⁸⁾

絶縁性固体中の荷電粒子による化学的エッチング可能な飛跡の生成については、現在ではその生成のメカニズムは ion explosion model が最も有力であってそれぞれの物質について一定の一次イオン化率 (Fig.3に示すように $dI/dx \approx -dE/dx$) のしきい値をもった放射線に対してのみ飛跡が生成する。²⁵⁾ また紫外線やγ線では飛跡が生じないことから正のLET効果を持っているといえる。

Fig.4には一般的なLET効果のパターンを示すために種々の生物学的系におけるRBE値のLET依存性を示す。²⁶⁾ 化学反応の例では水の分解や Fe^{++} の酸化におけるLET効果のパターンはこの図でのT-1 phageに相当する。さて化学反応の種類によりLET効果に正または負の作用がある原因について、Fig.1の(5)→(1)→(4)の過程についてやや詳細に考察をすすめると次のようになる。すなわち、被照射物質Mが放射線エネルギーの一部の賦与を受けて励起状態となり、直ちに脱励起してラジカル対 $[A+B]$ またはイオン-電子対 $[M^+ + e]$ となり、これらはまだ cage または spur 中にあるが、これが逆反応(R)でMにもどるか、または正反応(F)で新物質(遊離し、拡散したフリーラジカルを含む) — この場合は当然何等かの物質にスカベンジされるであろう) になるかのいずれかをとることになり、後者がいわゆる放射線化学反応となる。

ここでLET効果は如何にこの後者の反応の収率に影響するであろうか。まず初期の励起反応すなわち $A \rightarrow A^*$ の反応の収率すなわち量子収率の大きいものほど、準安定種 $[A+B]$ などの生成量が多く、したがって正反応の収率が増すであろうことはまず予想される。この反応に必要なエネルギーは通常光学反応のオーダーであって例えば写真反応の場合AgBrで2.80eV⁹⁾であり、金属中の knock on に必要なエネルギーでも約25eV²⁷⁾であるから通常の放射線のエネルギーに比し著しく小さいから、LET値の大小はほとんど影響はないと考えられるが、やはり重イオン等の高LET放射線では knock on 現象が起りやすいから、初期励起反応のしきいエネルギーの高い反応にたいし正のLET効果を持つと考えるべきであろう。^{註)}

註)この点に関し、LET効果を問題にする場合、Betheの式

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right) = 4\pi z^2 e^4 N Z / m v^2 \ln(2mv^2/I) = (AZ^2/E_s) \log(BE_s)$$

(ここでA, Bは恒数, Z' および E_s はそれぞれ荷電粒子の荷電およびエネルギー)が通常もちいられるが、²⁸⁾ 果して Z'^2 / E_s すなわち荷電粒子の荷電数の2乗と粒子のエネルギーの比さえ同一ならば、例えば極端に小さいエネルギーのγ線、β線等と電荷数は大きい重イオンとで全く同一な効果を期待してよいのか疑問を感じるものである。

次に cage または spur 内で生成したラジカルまたはイオン対が正の方向すなわち放射線化学反応に進む効率を考えると、高 LET 放射線の場合通常いわれていることは 1) その spur または track 内のイオン対等の濃度が高いことと、2) その中で局部的により高温になるということである。前者の効果は、Fig. 5 についていえば、forward の放射線化学反応中では F_2 のような分子収率が增加すると同時に²⁹⁾、当然 spur 内のラジカル対同士の再結合の確率が質量作用の法則の原理により増加するから、逆反応の起こる割合も多くなり、結果としてもこの substrate M の分解の G 値の低下をもたらすことは水の場合を見ても明らかである。

第 2) の、高 LET 放射線中での spur というよりほとんど連続した track 中では低 LET 放射線による個々の、独立した spur 等におけるよりも高温になるであろうことは明白であって、この結果としては、一般的に Fig. 6 に示すように、中間の準安定状態に関与する正および逆反応の活性化エネルギーの大小の様子に 2 つの場合の考えられ（生成物が多種の場合は勿論こんな二次元的なものでは表現できないが）³⁰⁾ Fig. 6 (i) に示すように生成物への活性化エネルギーの大なるものほど局部的高温の作用は有利になるであろうことは当然予想される。前述のように高濃度の効果は被照射物質の分解量に関するきざり常にマイナス作用するであろうから、LET 効果が正の場合は常に Fig. 6 の (i) の場合に限るといってよいであろう。

さて、ここでマイカ、高分子等絶縁性物質における固体飛跡検出器における場合について考察してみる。この場合は、その物質の如何を問わず、放射線、特に重イオンの照射により Fig. 5 の Cage 内の $[M^+e^-]$ イオン対が dE/dx （正確には dI/dx ）の大小に応じて生ずるが、^{24) 註)} その濃度はこの値に依存し、さらにその物質の電気的性質によって、導電性のものならばたとい濃度の高いイオン対も直ちに中和され reverse 反応で元物質にもどり、一方絶縁性のものならばはじきとばされた電子が再結合する前にすでに有機物気体についてその事実が実証されている³¹⁾ ion explosion model により爆発的にイオンがトラックの周辺へ移動することにより、化学的に etch 可能な永久的損傷を生ずるものであり、物質の電気的性質にもよるが、Fig. 5 の cage 中のイオン対の増加が逆に正の LET 効果となってあらわれていることになる。

4. ホットアトムの役割について

ホットアトム化学³¹⁾とは、通常放射線化学と放射化学の中間領域であって、通常核反応によりあるいは最近では人工加速器によって高エネルギーをもって生じかつそれ自体放射性核種である（例えばトリチウム）ため、分析化学的には放射線化学で対象とするものよりもはるかにミクロな量であるにもかかわらず、その最終的な化学的形態の検出同定が容易であってしかもこの高エネルギー原子が種々の特異な化学反応をするので多くの研究があり放射性核種標識化合物の合成法としても利用されるので最近では隔年の国際会議³³⁾も開かれている研究領域である。

放射線化学においても、数年前から被照射物質の励起状態のひとつとしてホットな原子の存在が多く研究者により指摘されているが、³⁴⁾ しかしそれらでのホットな原子とは、本来ならばイオン化されるべきエネルギーを持った原子がイオン化されずに、いわゆる superexcited state として存在するという意味でもちいられているが、いずれにしても、このようなホットアトムは、水素引きぬき反応、あるいは置換反応（この場合放射線化学ではもとの物質と同一とみなされその生成がわからないが）といった特殊な反応をし、近時放射線化学反応の解釈にこのものの役割りが、 γ 線とか光化学といった低エネルギー放射線化学においてももはや無視できなくなったことは事実のよ

うである。

今回ここで特にのべたいことは、この様なホットアトム、すなわち電子的励起状態でなく、運動学的に励起された高エネルギー原子が、特に重イオンの様な高LET放射線により、被照射物質中に Knock on 現象によって、低エネルギー放射線によるよりもより多く生じ、これが放射線化学的效果に重大な役割を演じていることは当然であり、今後はこのものの役割について重大な考慮を払うべきであると主張するものである。

ただし、上述の置換反応の例の如く、放射性核種を取扱うホットアトム化学と異なり、他のメカニズムとの区別等が非常に困難な点に問題があるが、通常のホットアトム化学におけるスカベンジャー効果、モデルエータ効果、温度効果等の手法を駆使して何とかしてこのものの放射線化学における役割りを定量的につきとめたいものである。

References

- 1) Brocklehurst B.: Radiat. Res. Rev., 2, 149 (1970)
- 2) 津田 覚: 重イオン科学研究会報文集, P151, IPCR Cyclotron Progress Report, Supplement, 2, 1972
- 3) Draganić G.: Nucleonics, 21, (2), 33 (Feb., 1963)
- 4) Imamura M. and Seki H.: Bull. Chem. Soc. Japan, 40, 1116 (1967)
- 5) Wendenburg J. and Henglein A.: Z. Naturforschg., 196, 995 (1964)
- 6) Fock J., Henglein A. and Schnabel W.: J. Phys. Chem., 68, 310 (1964); Tabata Y., Shu S. and Oshima K.: 高分子化学会年会, (1964)
- 7) a) Birks J. B.: Proc. Phys. Soc. (London): A64, 874 (1951)
b) Ganguly S. C. and Chaudhury N. K.: Rev. Mod. Phys. 31, 990 (1959); c) Physical Aspects of Irradiation, Recommendations of ICRU, Handbook 85, U.S. NBS (1964); d) Voltz R.: Proc. Int. Discussion on Progress and Problems in Contemporary Radiat. Chem., Prague, 1, 45 (1971).
- 8) Harasawa S.: Private Communication; Harasawa S., Kitahara A. and Saitoh M.: Jap. J. Appl. Phys., 9, 1552 (1970)
- 9) Beiser A.: Rev. Mod. Phys., 24, 273 (1952); Bradt H. L. and Peters B.: Phys. Rev., 80, 943 (1950); Fowler P. H. and Perkins D. H., Fundamental Mechanisms of Photographic Sensitivity, Mitchell J. W., ed. (Butterworths Scientific Publications, London, 1951), p.159; Kenneth Mees C. E.: The Theory of the Photographic Process, (The Macmillan Co., New York, revised ed. 1954); 科学写真便覧, 上, 丸善, 昭35

註) このメカニズムに関し、単に放射線による電離作用と簡単に片づけるべきでなく、今回そのレビュー報告のあった重イオンによる被照射物質構成原子の内殻電離とそれにもなうオージェカスケードによる多重荷電と考えるのが自然であり、ここに、このレビューをされ、その後筆者と討論の機会を持った九大工学部の俵博之氏に感謝する。

- 10) Holroyd R. A.: Fundamental Processes in Radiation Chemistry, Ausloos P. ed. (Interscience Pub., N. Y. (1968)
- 11) Boyl J. W. and Mahlman H. A.: Nucl. Sci. Eng., 2, 492 (1957)
- 12) Hochanadel C. J.: Rad. Res., 16, 286 (1962)
- 13) Matsuura T.: Intern. J. Appl. Radiat. Isotopes, 18, 697 (1967).
- 14) Hall D. and Walton G. N.: J. Inorg. Nucl. Chem., 10, 215 (1959)
- 15) 長谷川園彦: 日化誌, 92, 62 (1971)
- 16) Boyd G. E. and Cobble J. W.: J. Phys. Chem., 63, 919 (1959)
- 17) 長谷川園彦: 日化誌, 92, 207 (1971)
- 18) Melton C. E.: J. Chem. Phys., 45, 4414 (1966)
- 19) Toi T., Peterson D. B. and Burton M.: Rad. Res., 17, 399 (1962)
- 20) Lampe F. W., Weiner E. R. and Johnston W. H.: Intern. J. Appl. Radiat. Isotopes, 14, 231 (1963)
- 21) Landsman D. A. and Nobb1 C. M.: AERE-M 921 (1961)
- 22) Cusack G. H.: 第8回日本アイソトープ会議報文抄録集, C/P-5, p.177 (1967); Cusack J. H. and King P. A.: AGN-8196 (1966)
- 23) Matsui M., Imamura M. and Karasawa T.: IPCR Cyclotron Progress Report, 4, 126 (1970)
- 24) Parkinson W., Bopp C., Binder D. and White J.: J. Phys. Chem., 69, 828 (1965)
- 25) Fleischer R. L., Price P. B., Walker R. M. and Hubbard E. L. Phys. Rev., 156, 353 (1967)等; 阪上正信: 粒子トラックとその応用, 南江堂, 1973
- 26) Linear Energy Transfer, ICRU Report, 16, p.15 (1970)
- 27) Billington D. S. and Crawford J. H.: Radiation Damage in Solids, Princeton (1961)
- 28) 例えば Imamura M.: IPCR Cyclotron Progress Report (1967)
- 29) R. Voltz, "International Discussion on Progress and Problems in Contemporary Radiation Chemistry," Vol.1, Prague 1971, p.139
- 30) 例えば Wolfgang R. Sci. American, 214, 82 (1966)
- 31) 例えば Carlson T. A., White R.: Chemical Effects of Nuclear Transformations, "Proceedings of Symposium, Vienna 1964, Vol. 1, 23 (1965)

- 32) 総説は多くあるが例えば Willard J. E.: Ann. Rev. Nucl. Sci., 3, 193 (1953); Wolfgang R.: Progress in Reaction Kinetics, 3, 97 (1965); 松浦辰男: 化学 25, 24 (1970)
- 33) 最近は西ドイツ Jülich において第7回国際ホットアトム会議が開催された (1973年9月)
- 34) 例えば Hatano Y., Shida S. and Sato S.: Bull. Chem. Soc. Japan, 41, 1120 (1968)

TABLE 1 Classification and Examples of LET Effect

(1) Negative LET Effect

Phase	Reaction	G Value* (Low LET-High LET)	References
Aq.	$G(-H_2O)$ in $H_2O \xrightarrow{\gamma} H, OH, H_2, H_2O_2$		
Aq.	$G(H, OH)$ in $H_2O \xrightarrow{\gamma} H, OH$		
Aq.	$G(e_{aq}^-)$ in Aq. soln. $\xrightarrow{\gamma} e_{aq}^-$	$G_T = 2.8 \rightarrow G_B = 0.24$	2)
Aq.	$G(Fe^{++})$ in Fe^{++} aq. $\xrightarrow{\gamma} Fe^{+++}$	$G_{Li} = 0.46$	
Aq.	$G(-(COOH)_2)$ in $(COOH)_2$ aq. $\xrightarrow{\gamma} CO_2, H_2O, COOH$ etc.	$G_T = 4.9 \rightarrow G_p = 0.3 \sim 0.7$	3)
Org. Liq.	$G(e_{solv}^-)$ in $CH_3OH \xrightarrow{\gamma} e_{solv}^-$	$G_T = 2.0 \rightarrow G_{Li} = 0.2$	4)
Org. Solid.	$G(e_{tr}^-)$ in glassy system $\xrightarrow{\gamma} e^-$ (trapped)	$G_T > G_B$	5)
Org. Liq. & Solid	$G(\text{polymeriz.})$ from monomer (vinyl or methacrylonitrile)	$G_T > G_B$	6)
Org. Solid	Scintillation in benzene		7)
Inorg. Solid	Thermoluminescence in LiF		8)
Inorg. Solid	AgBr $\xrightarrow{\gamma} Ag + Br$ in Emulsion		9)

(2) No Effect

Inorg. Gas	$N_2O \xrightarrow{\gamma} N_2, O_2, NO_x$	$G(-N_2O) = 10 \sim 13$	10)
Inorg. Gas	$CO_2 \xrightarrow{\gamma} CO + O$	$G(CO) = 2 \sim 12$	10)

(3) Positive LET Effect

Aq.	$H_2O \xrightarrow{\gamma} H_2, H_2O_2,$		
Aq.	$Ce(IV)_{aq} \xrightarrow{\gamma} Ce(III)_{aq}$		11)
Aq.	$Th(NO_3)_4 \xrightarrow{\gamma} N_2$	$G_T = 0.001 \rightarrow G_{pile} = 0.006,$ $G_{ff} = 0.06$	12)
Aq. (Ion Exchanger)	$Co(NH_3)_6^{3+} \xrightarrow{\gamma} Co^{2+}$	$G_T = 2.4 \sim 3.3 \rightarrow G_{fn} = 5^{**}$	13)
Inorg. Solid	$Na(K)NO_3 \xrightarrow{\gamma} Na(K)NO_2 + \frac{1}{2} O_2$	$G_T = 0.27 \rightarrow G_a = 1.3,$ $G_{ff} = 6.0$	14)
Inorg. Solid	$LiClO_4 \xrightarrow{\gamma} LiClO_2, O_2,$ etc	$G_T = 3.15 \rightarrow G_{a,T} = 4.46$	15)
Inorg. Solid	$KBrO_3 \xrightarrow{\gamma} KBr + \frac{3}{2} O_2$	$G = 1.3 \rightarrow G_{fn} = 23 \sim 30$	16)
Inorg. Solid	$LiIO_3 \xrightarrow{\gamma} LiI, O_2,$ etc	$G_T = 0.94 \quad G_{a,T} = 2.85$	17)
Inorg. Gas	$NH_3 \xrightarrow{\gamma} N_2H_4$	$G_e = 0.03 \quad G_{ff} = 1.11 \quad 1.2$ $G_{D+} = 0.5 \quad G_{ff} = 1.11 \quad 1.2$	18, 19, 20, 21, 22)
Org. Liq.	Benzene $\xrightarrow{\gamma} H_2$		10)
	Cyclohexane $\xrightarrow{\gamma} H_2$		10)
	THF $\xrightarrow{\gamma} H_2$		23)
Org. Solid	Polymer $\xrightarrow{\gamma}$ Crosslinking	$G_T = 0.034 \quad G_{fn} = 0.096$	24)
Inorg. and Org. Solid	Mineral or Polymer $\xrightarrow{\gamma}$ Etchable Defect		25)

*) $G_T, G_B, G_a, G_{D+}, G_{aLi}, G_{aT}, G_{pile}, G_{fn}, G_{ff}$ represent the G values due to the γ, β and α rays, deuteron rays, recoil particles from $^{10}B(n, \alpha)Li$ and $^6Li(n, \alpha)T$ reactions, pile radiations, fast neutrons and fission fragments, respectively.

**) Estimated value

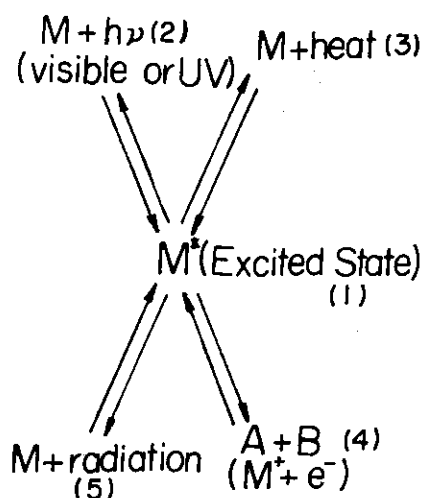


Fig. 1 Transfer of excited energy

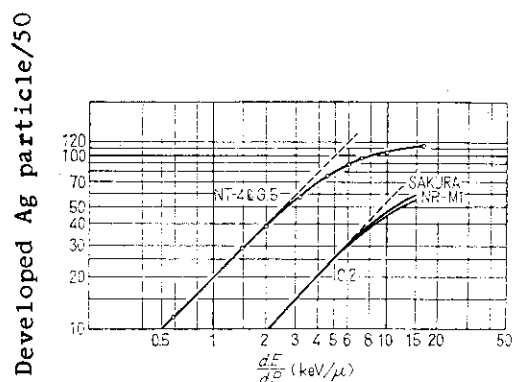


Fig. 2 LET effect in photographic reaction

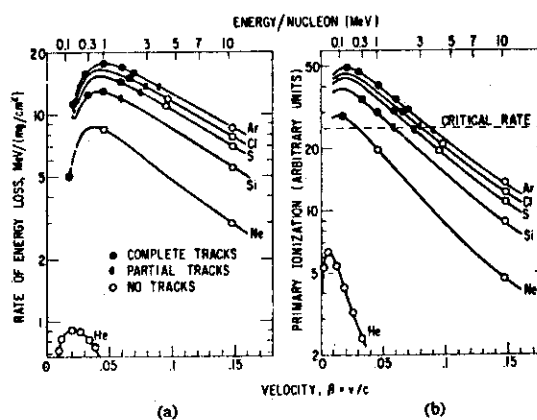


Fig. 3 LET effect in solid state track detectors

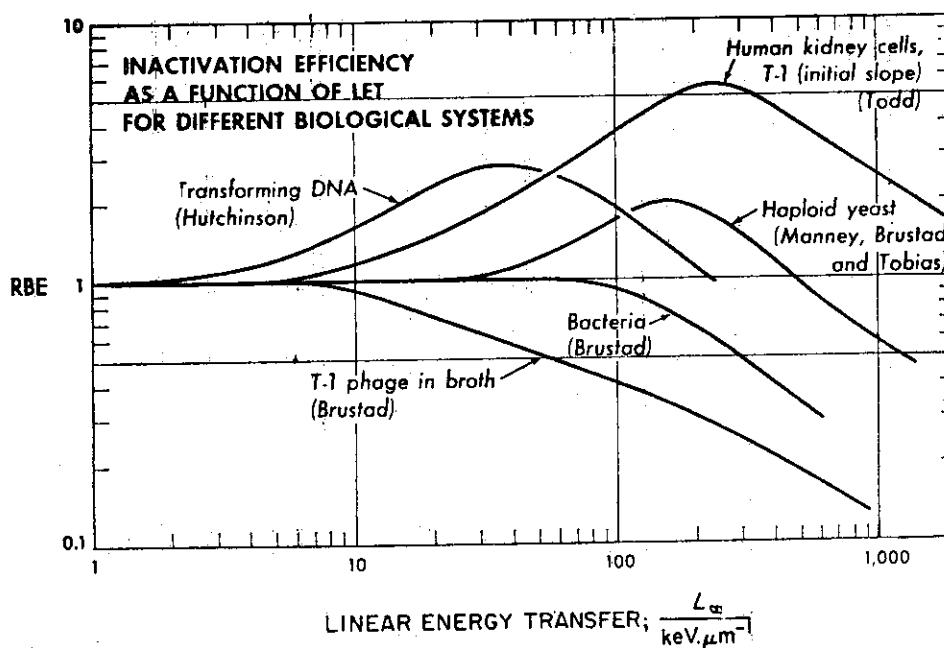


Fig. 4 General patterns of LET effect in biological systems

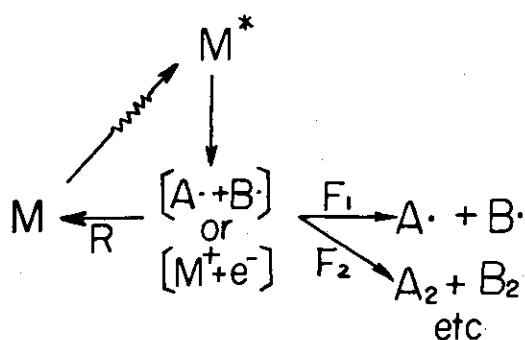


Fig. 5 Scheme of radiochemical reaction.
Brackets represent the cage or spur.

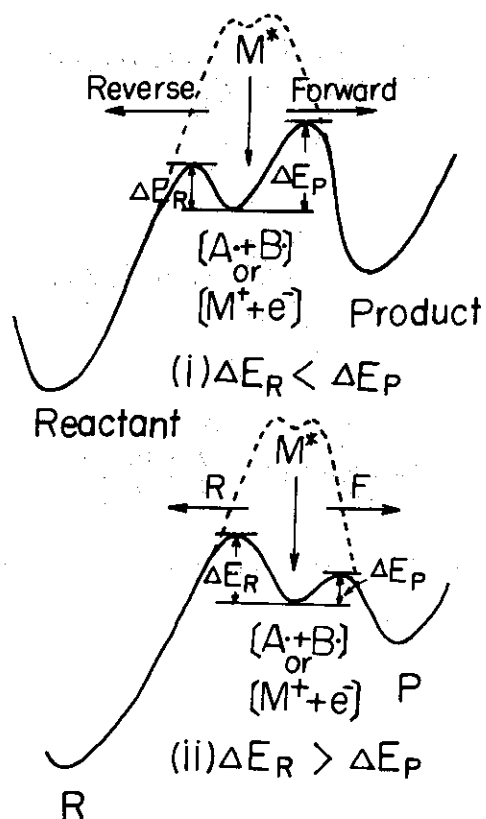


Fig. 6 Relation between LET effect and activation energies of the reaction.

4.5 重イオンによる気体のイオン化収量(放射線作用の古典力学的理解. 2)

日本原子力研究所 大野 新一
(茨城県那珂郡東海村)

Ionization Yield Produced in Gases by Heavy Ions
(Classical Mechanical Understanding of
Radiation Action on Matter. 2)

Shin-ichi OHNO
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki)

Ab initio calculation of the ionization yield produced in He by 1 or 0.1 MeV-Ar⁺ and -protons was made on the basis of the classical collision theory developed by Thomas in 1927. The ionization yield due to the direct action of the incident ion and that caused by the secondary electrons were calculated separately.

重イオン通過の飛跡は、(i)重イオンのクーロン作用によって直接できる生成物と(ii)イオン化で飛びだした二次電子による間接作用でできる生成物が構成要素となる。いわゆる重イオン飛跡の二重構造は、両過程による生成物が空間的に異なる分布をとることに関係している¹⁾。われわれは、その理論的考察の第一段階として、(i)および(ii)の両過程による生成物収量を求めることを検討している。今回は、1および0.1 MeVアルゴンイオンおよびプロトンのそれぞれが標準状態(0°C, 1 atm)のヘリウム気体中に入射して停止するまでに、(i)および(ii)の過程で生成されるHe⁺の個数を計算した。参考のために、0.1 MeV電子が入射したときのHe⁺生成個数も求めた。

1. 計算方法

軌道電子運動を考慮した古典衝突論²⁾に基づく非経験的計算を試みた。すなわち入射荷電粒子と原子・分子の相互作用を荷電粒子と原子・分子内電子の二体衝突(基本的にはラザフォード散乱)として取扱う。この方法は、入射粒子の低エネルギー領域をも含めて、ボルン近似と同程度に良い近似を与え、また計算が容易である³⁾。

荷電Ze, 質量Mの粒子が速さV₁で標的電子と衝突し、その結果、速さがV₂に変化する。標的電子の質量はmであらわし、衝突前の速度(軌道運動)v₁が衝突によりv₂に変わったとする。このときの運動エネルギー移行量 $\epsilon = (1/2)m(v_2^2 - v_1^2)$ が標的電子のイオン化エネルギーIをこえるとき、イオン化が起こり、運動エネルギー $\epsilon - I$ の電子が放出される。

衝突断面積 q_ϵ をつぎに示す³⁾。

(i) $2V_1 \geq v_2 + v_1$, $\epsilon \leq 2mV_1(V_1 - v_1)$ のとき,

$$q_\epsilon = \frac{2\pi Z^2 e^4}{mV_1^2} \left(\frac{1}{\epsilon^2} + \frac{2mv_1^2}{3\epsilon^3} \right) \quad (1)$$

(ii) $v_2 - v_1 \leq 2V_1 \leq v_2 + v_1$, $2mV_1(V_1 - v_1) \leq \epsilon \leq 2mV_1(V_1 + v_1)$ のとき,

$$q_\epsilon = \frac{\pi Z^2 e^4}{3V_1^2 v_1 \epsilon^3} \left\{ 4V_1^3 - \frac{1}{2}(v_2 - v_1)^3 \right\} \quad (2)$$

(iii) $\epsilon/V_1 \geq m(v_2 + v_1)$ のとき,

$$q_\epsilon = 0 \quad (3)$$

まず入射粒子 (入射エネルギー T_0) が He 中でつぎつぎに衝突をして減速するさいのエネルギースペクトル $y(T)$ を求める。 $y(T)$ は Spencer-Fano によって定義されたもの⁴⁾で, stopping power の逆数 (cm/eV の次元) であらわされる。 stopping power は, $\epsilon \cdot q_\epsilon$ の積分から得られる:

$$S = N \int_{E_1}^{\epsilon_{\max}} \epsilon q_\epsilon d\epsilon \quad (4)$$

N は He の密度, E_1 は第 1 励起エネルギー 21.2 eV である。 $y(T)$ が決まれば, 入射粒子による He^+ の全生成数は,

$$N_{\text{ion}} = N \int_I^{T_0} Q_{\text{ion}}(T) y(T) dT \quad (5)$$

で計算される。 I はイオン化エネルギー 24.6 eV, $Q_{\text{ion}}(T)$ は入射粒子 (エネルギー T のとき) と He の衝突により He^+ ができる確率である。 $Q_{\text{ion}}(T)$ も q_ϵ の式から得られる。 また G 値 (放射線エネルギーの 100 eV が吸収されたときの生成物個数) は,

$$G_{\text{ion}} = 100 \times N_{\text{ion}} / T_0 \quad (6)$$

つぎにイオン化で飛びだした電子によるイオン化収量を求める。イオン化で飛びだすさいのエネルギー $\epsilon - I$ は, (1), (2), (3) 式と $y(T)$ からその頻度とともに求めることができる。さらに二次電子, 三次電子等によるイオン化もすべて計算に含める⁵⁾。

なお, ここで使用した衝突モデルの妥当性は, (i) 100 keV 電子が He ないしは H_2 気体中に入射するときのイオンおよび励起収量の計算に適用して実験値と良い一致が得られること⁵⁾, また(ii) 100 keV プロトンと He の衝突のさい放出される二次電子のエネルギー測定値⁶⁾が(1)式から得られるスペクトルとよく一致する (Fig. 1) ことから示される。

2 結 果

計算結果を Fig. 2 に示す。横軸は T の対数であらわし, 縦軸はエネルギー範囲 dT 内で起こるイオン化の個数に T を乗じたものであらわされている。こうすると, あるエネルギー範囲 $T_1 \sim T_2$ 内の入射イオン (または電子) によるイオン化の量は, その範囲内の図の曲線によって囲まれる面積であらわされる。つまりあるエネルギー範囲のイオンないし電子からの寄与が明瞭に示される⁷⁾。 Fig. 2 からつぎのことがわかる。0.1~1 MeV アルゴンイオンの場合は, 入射イオンによる直接イオン化に対して二次電子によるイオン化は無視できる。0.1 MeV プロトンの場合でも二次電子によるイオン化は少ないと言えるが, 1 MeV プロトンになると直接および間接作用によるイオン化はほぼ同程度になる。このときの二次電子等のスペクトルは, 0.1 MeV 電子を入射させたときに得られるスペクトルに近いものである。

入射イオンによる直接イオン化 (primary ionization) および二次電子を通じての間接イオン

化 (secondary ionization) の G 値を Table に示す。実測値が存在するのは 0.1 MeV 電子の場合だけである。計算値の 2.42 に対して実測値 2.36 である。

3. 結 論

異なる放射線 (linear-energy-transfer: LET が異なる) を用いれば, 放射線化学反応の収率も異なるのが通例である。それは放射線初期過程でできる生成物の空間的な分布状態が LET の値によって異なるためであるとして説明されている。すなわち, 高 LET 放射線の場合の初期生成物は密集して生成する。そのため相互に反応する割合が増大し, 観測される最終生成物の量が変ってくるのである。しかしながら, 今回の計算は初期生成物の収量を対象とし, 生成物の空間分布の効果は考えていないものである。それにもかかわらず, 放射線の種類による収量の大幅な相異がみられた。LET 効果の内容は, (i) 生成物の分布状態だけでなく, (ii) 初期生成物の収量自体も考慮に入れなければならない。これが本計算結果から得られた結論である。

References

- 1) 今村 昌: 本報告書.
- 2) Thomas L.H.: Proc. Camb. Phil. Soc., 23, 829 (1927)
- 3) Vriens L.: "Case Studies in Atomic Collision Physics I", McDaniel E. W. 編, North-Holland (1969), P. 335
- 4) Spencer L.V., Fano U.: Phys. Rev., 93, 1172 (1954)
- 5) Ohno S.: Chem. Lett., 817 (1973)
- 6) Rudd M.E., Sautter C.A., Bailey C.L.: Phys. Rev., 151, 20 (1966)
- 7) Platzman R.L.: Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 10, 116 (1961)

Table G_{ion}-values in He by different radiations.
 "Primary" refers to ionization due to the direct action of the incident particles and "Secondary" refers to ionization caused by ejected electrons.

Incident Particle	Energy	Primary	Secondary	Total
Ar ⁺	1 MeV	0.59	0.02	0.61
Ar ⁺	0.1 MeV	0.016	0	0.016
p ⁺	1 MeV	1.75	1.04	2.79
p ⁺	0.1 MeV	1.35	0.15	1.50
e ⁻	0.1 MeV			2.42

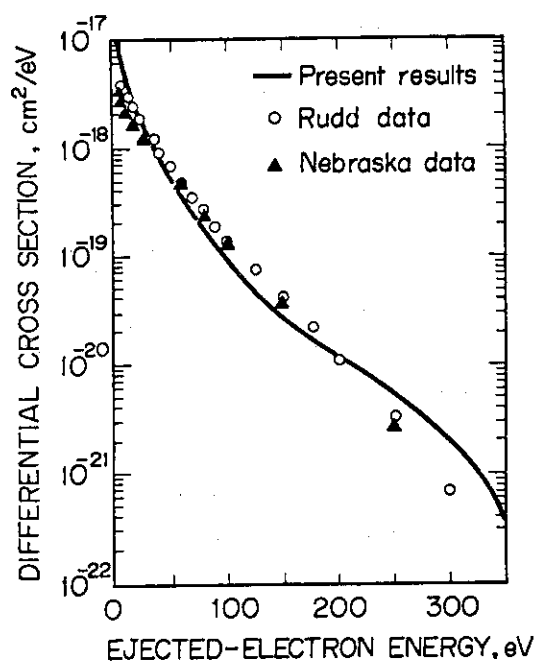


Fig. 1 Differential cross section for ejection of electrons by 100-keV protons in helium.

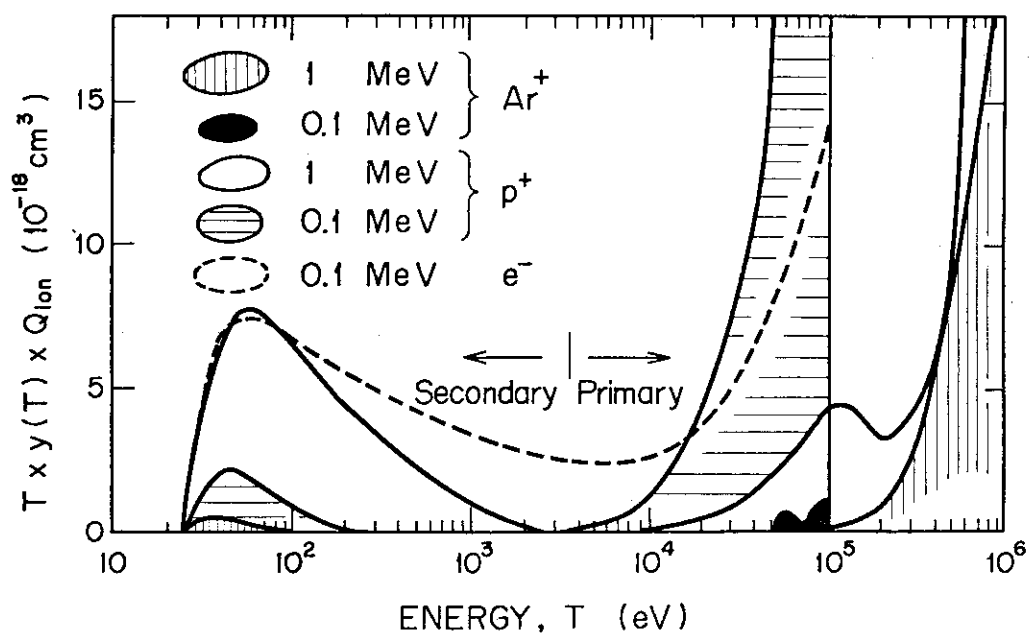


Fig. 2 Contribution of different portions of the slowing-down spectra of the incident particles ("Primary") and the ejected electrons ("Secondary") to the total ionization of He. Coordinate values for 1 MeV-incident particles should be multiplied by 10.

4.6 重イオンによるプラスチック膜フィルターの作製

日本原子力研究所 辻 村 重 男, 古 牧 睦 英
(茨城県那珂郡東海村)

Formation of Submicron Holes in Irradiated Poly- ethyleneterephthalate Films by Chemical Etching

Shigeo Tsujimura and Yoshihide Komaki
(Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken)

Thin polyethyleneterephthalate films exposed to fission fragments of U-235 were chemically etched by NaOH solutions and the growth of holes was followed by measuring gas flow through the films. Frontal and lateral etching rate of holes were determined under etching temperature of 45-65°C and NaOH concentration of 1-5 N.

1. はじめに

1959年, E.C.H.Silk と R.S.Barnes¹⁾ は, 雲母中の核分裂片のトラックを電子顕微鏡で観察することに成功した。それ以来, 多くの研究者がトラックの研究をはじめたが, 1962年に P.B.Price と R.M.Walker²⁾ は, エッチング処理によってトラック巾が拡大されることを見出した。この結果, 重イオントラックの光学顕微鏡による研究が可能になると同時に, 重イオン照射による微細な孔径のフィルター作製³⁾ など, 多くの応用面が開かれた。フィルター作製への応用はその後発展し⁴⁾, 核分裂片を利用した孔径 0.1 ~ 数 μm のポリカーボネート製のフィルターが Nuclepore Filter⁵⁾ という名称で市販されるに至った。

しかしながら, 重イオン照射・エッチング方式による微細な孔の生長過程を詳細にしらべた報告は少なく, 雲母について研究がなされた程度である⁶⁾。よって微細な孔の生長過程をとくにプラスチックについてしらべることを目的として, ポリエチレンテレフタレートを対象とし核分裂片を用いて実験を行った。

2. 実 験

ポリエチレンテレフタレートフィルムをウランとともに原子炉で照射し, ウランから出る核分裂片(以下 F.F. と称する)がフィルムを貫通するようにした。孔の数はフィルムを貫通する F.F. 数に等しく, 次式で与えられる。

$$n = 2N\sigma\phi tAB \quad (1)$$

n : 孔数, N : U-235 原子数, σ : 熱中性子にたいする U-235 の核分裂断面積, ϕ : 熱中性子束, t : 照射時間, $A = (\text{フィルムに入射する F.F. 数}) / (\text{生成 F.F. 数})$, $B = (\text{フィルムを貫通する F.F. 数}) / (\text{フィルムに入射する F.F. 数})$

A は生成 F.F. にたいするフィルム入射 F.F. の割合を示すもので, ウランとフィルムの距離など幾何学的条件で定まる数である。 B は F.F. のフィルム貫通率で, F.F. の飛程, フィルムの厚さなどに

よってきまる数である。

照射キャプセルの構造を Fig. 1 に示す。フィルムは厚さ $9\text{ }\mu\text{m}$ のものを用いた。F.F. 源はアルミニウム箔に真空蒸着した厚さ約 $1000\text{ }\text{\AA}$ のウランである。フィルムとウランの間にコリメータをおき、F.F. 入射方向とフィルム面垂線のなす角を最大約 30 度に制限した。これらの条件のもとで、(1) 式の A は $1/60$ 、 B は 1 となる。

図 a のウラン、コリメータ、フィルムを重ね合せたものを 1 組とし、同じものを約 10 組積み重ねて、b のように組立てた。これを石英管に入れ、真空に引いて溶封し、さらにアルミニウム容器に入れて原子炉で照射した。原子炉は JRR-4 を用い、孔密度が大体 $10^5/\text{cm}^2$ になるように照射条件を選定した。

照射したフィルムは NaOH 溶液でエッチング処理した。エッチング温度は $45, 55, 65^\circ\text{C}$ 、NaOH 濃度は $1, 3, 5\text{N}$ とし、溶媒としても、水の代りに水とエタノール等容混合のものも用いた。エッチングを終了したフィルムは、水洗ののち空气中で乾燥させた。

孔の大きさは気体透過係数の測定から求めた。Ar を用いて分子流の領域で測定、次の Knudsen の式を適用して孔径を算出した。

$$K = \frac{\pi d^3}{3l} \sqrt{\frac{1}{2\pi MRT}} \cdot \frac{n}{S} \quad (2)$$

K : 気体透過係数 (単位圧力差, 単位面積, 単位時間当り透過する気体のモル数), M : 気体の分子量, R : 気体定数, T : 絶対温度, d : 孔の直径, l : 孔の長さ, n : 孔の数, S : フィルム面積

3. 結 果

エッチング時間と孔径の関係を Fig. 2 に示す。たて軸は気体透過係数から (2) 式によって求めた直径で、もし孔の大きさがすべて均一で、かつ孔の形が円筒状ならば、正しく直径をあらわすが、実際には孔の大きさには分布があり、孔の形も完全な円筒とは考えられないので、ある等価な値を示していることになる。

図の曲線は、すべて誘導時間を経てから、ほぼ直線的に立ち上っている。孔の生長が一番おそい 55°C 、 1N 水溶液では、エッチング時間にたいして、孔の大きさがやや不規則に変化するが、そのほかの条件では、孔は規則的に増大している。

エッチング条件と孔の生長の関係をみると、NaOH 濃度が一定で温度が上ると、誘導時間が短くなり、同時に勾配が大きくなって、短時間に孔が大きくなる。温度一定で NaOH 濃度を大きくしたときも、同様の変化が認められる。エタノール添加の効果は非常に大きく、 55°C 、 1N 水溶液は本実験の範囲で最も生長がおそいののに、エタノールを加えると最も生長が速くなる。

4. 考 察

Fig. 2 の曲線を見ると、既述のように、いずれのエッチング条件においても誘導時間の存在が認められる。エッチングによる孔の生長はフィルムの表面からはじまり、F.F. 通路にそって次第に孔が深くなると同時に、孔径も大きくなって行くと思われる。F.F. 通路にそってフィルム両面から生長する孔が接続しないうちは気体は流れず、(2) 式から求めた孔の直径、すなわち図のたて軸の

値はゼロである。このように考えると、誘導時間はエッチングによって孔がフィルムを貫通するのに必要な時間であると解釈できる。したがって、孔の深さ方向のエッチング速度を v_1 、フィルムの厚さを l 、誘導時間を τ とすると $v_1 = (l/2)/\tau$ なる関係が成立する。

次に孔の半径方向のエッチング速度 v_2 と、フィルム表面のエッチング速度 v_3 を考えると、このうち v_2 は Fig. 2 の曲線の勾配から求められる。 v_3 は、孔密度が余り大きくなければ、重イオン通過とは関係なくプラスチック本体が浸蝕される速さで、フィルムの重量減少から算出される。

以上のようにして求めた v_1 、 v_2 、 v_3 を Table 1 に示す。表を見ると v_2 と v_3 の差は比較的小さく、孔の半径方向のエッチング速度はプラスチック本体の浸蝕速度に大体等しいことがわかる。それにたいして v_1 はずっと大きい値をとっており、 v_2 の 25～35 倍大きい。

プラスチックでは一般に孔は円錐形になって生長するといわれており、このモデルにしたがうと v_1/v_2 から頂角を求めることができる。表の値を用いて計算すると、頂角は 3～5 度である。

5. まとめ

F.F. で照射したポリエチレンテレフタレートフィルムを、NaOH 溶液でエッチング処理し、F.F. 通路を中心とした微細な孔の生長過程を、気体透過係数の測定から求めた。

孔の大きさは、エッチング時間とともにおおむね規則的に増大した。エッチング温度が 45～65℃、NaOH 濃度が 1～5 N の範囲では、温度が高いほど、また濃度が大きいほど、孔の生長は速くなった。またエタノールの添加は生長を著しく促進することがわかった。

孔の半径方向のエッチング速度は、プラスチック本体の浸蝕速度に大体等しい。それにたいして孔の深さ方向のエッチング速度は、半径方向のエッチング速度にくらべ 25～35 倍大きい。

References

- 1) Silk E.C.H., Barnes R.S.: Phil. Mag. 4, 970 (1959)
- 2) Price P.B., Walker R.M.: J. Appl. Phys. 33, 3407 (1962)
- 3) Fleischer R.L., Price P.B., Walker R.M.: Rev. Sci. Instr. 34, 510 (1963)
- 4) Fleischer R.L., Price P.B., Symes F.M.: Science. 143, 249 (1963)
- 5) G.E. 社カタログ
- 6) Bean C.P., Doyle M.V., Entine G.: J. Appl. Phys. 41, 1454 (1970)
- 7) Fleischer R.L., Price P.B.: Science. 140, 1221 (1963)

重イオントラックおよびエッチングの解説として次の成書がある。阪上正信：粒子トラックとその応用，南江堂（1973）

Table 1 Dependence of Etching Rate on the Temperature and Concentration of NaOH

Etching Conditions		Etching Rate ($\text{\AA}/\text{min.}$)		
Temp. ($^{\circ}\text{C}$)	NaOH (N)	frontal v_1	lateral v_2	bulk v_3
55	1	2.9×10^2	8.0	1.3×10
45	3	1.3×10^3	3.7×10	3.7×10
55	3	2.0×10^3	9.0×10	6.5×10
65	3	4.6×10^3	1.3×10^2	1.4×10^2
55	5	4.2×10^3	1.5×10^2	1.2×10^2
55	1(ethanol)*)	6.7×10^3	1.9×10^2	2.8×10^2

*) see foot note of Fig. 2.

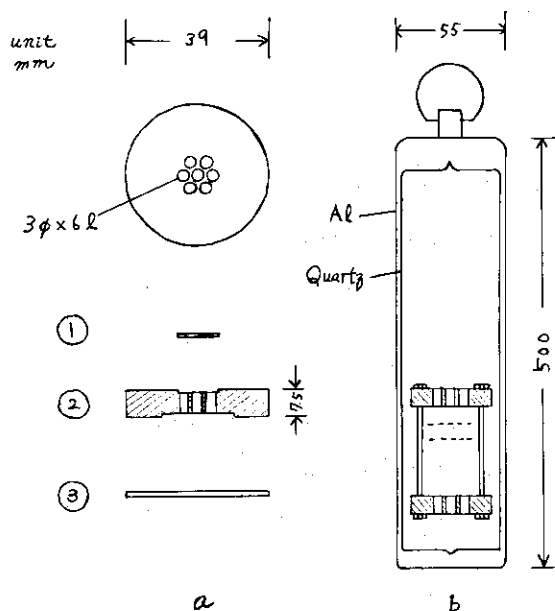
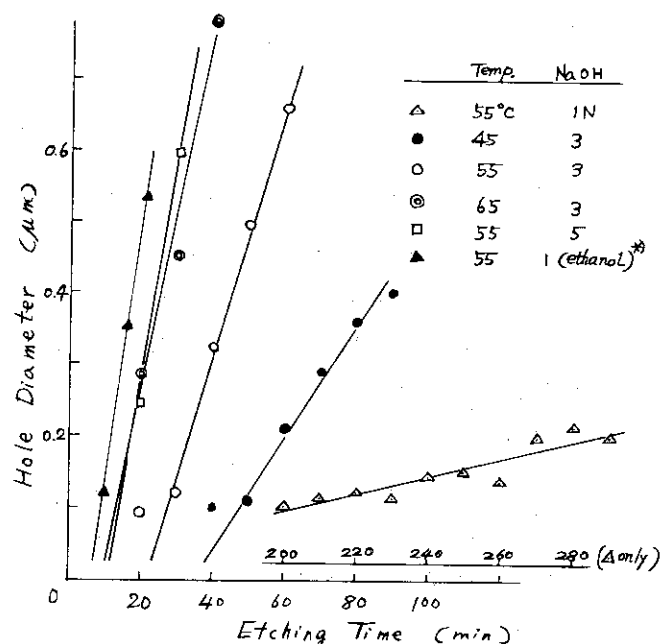


Fig. 1. Irradiation Capsule

- 1 uranium, 1000 $\text{\AA}$ thickness deposited on Al foil,
- 2 collimator with $3\phi \times 6\ell$ channels,
- 3 polyethyleneterephthalate film, $9\mu\text{m}$ thickness.

Fig. 2. Growth of Etched Holes
Polyethyleneterephthalate film, $9\mu\text{m}$ thickness, hole density, $\sim 10^6/\text{cm}^2$, *) 1 mol of NaOH in 500 ml water + 500 ml ethanol.

5.1 重イオン原子物理

理化学研究所 浜田 達二

(埼玉県和光市広沢2の1)

Accelerated Heavy Ions as a Tool for Researches on Atomic Physics

Tatsuji HAMADA
(Institute of Physical and Chemical Research,
Wako-shi, Saitama)

Recent advances in the field of atomic physics where accelerated heavy ions are used as a tool for research are reviewed. A brief description on experimental techniques, results obtained, as well as information sources is given.

1930年代に研究され尽したかに見えた原子物理の分野における研究が今日のようなリバイバルを招いた理由としては、宇宙物理および核融合の研究の発展に伴う基礎データの不足と理論の精密化が挙げられる。この両分野において扱われる粒子は多くの場合、水素またはヘリウムであり、それらを衝撃粒子としたイオン・原子衝突現象の解明が研究の主流をなしていた。

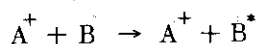
一方、1965年あたりから重イオンの加速が行なわれるようになるとともに、重イオン・原子衝突の研究が始められ、今日の隆盛を見ることになった。この裏には、原子核専攻の研究者が続々とこの分野に乗り込み、その得手とする実験技術を駆使したことを見逃がすことはできない。その推移は、1964年に Nuclear Data Sheets および Tables を刊行した Academic Press が、69年には Atomic Data の出版も始めたことから窺うことができよう。

標題に示されている「原子物理」は非常に広い内容を包含しているが、ここではターゲットが独立した原子として取り扱われるような場合に限って述べることにする。そのほかの場合、たとえば分子状ターゲットの解離などの、いわゆるイオン・分子反応については1971年の重イオン科学研究会に発表があり、また結晶をターゲットとした場合のチャネリングや放射線損傷については別稿に述べられている。

1. イオン・原子衝突に伴って起こる現象

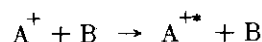
重イオンと原子との衝突の結果起こる現象は複雑であるが、これを一応つぎのようにまとめることができる。すなわち、Aを衝突粒子、Bをターゲット原子として、

i) ターゲット原子の直接励起

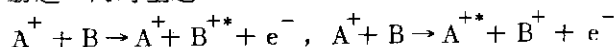


(*は励起状態にあることを表わす)

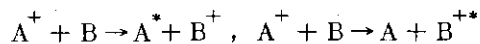
ii) 衝撃粒子の直接励起



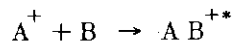
iii) 電離と励起の同時生起



IV) 励起を伴う荷電移動



V) 準分子 (quasi-molecule) の生成



実際には、励起の「深さ」やイオンの荷電数にいろいろの場合があるので、上に示すよりも遙かに事情は複雑である。また、V) は重イオン衝突の場合とくに問題となる現象であって、内殻励起断面積の異常を説明する electron promotion model の基礎になっており、その存在は、いわゆる MO (molecular orbital) X線の観測によって証明された。

2. 観測の対象

上に述べた諸現象において実際に観測の対象となるのは、つぎのようなものである：

i) 励起されたターゲット原子から放出される光子またはオージェ電子の数およびエネルギー分布。励起断面積を測るためには、光子とオージェ電子を同時に観測するか、あるいは別に蛍光収率を推定する必要がある。重イオンを衝撃粒子として用いた場合、一般に多重励起がおこるので、通常の蛍光収率の値とは異なったものになる。衝突過程をもっと詳しく調べるため、光子と散乱イオンの同時測定を行なったり、それらの偏りを測定した例もある。

ii) 衝撃粒子から放出される光子の数およびエネルギー分布。これは重イオンを衝撃粒子として用いた場合に特有のことである。いわゆるビームフォイルスペクトロスコープでは、ターゲット通過後の励起された衝撃粒子からの放出光子を、ターゲットから放出位置までの距離の関数として観測し、一種の飛行時間法のように、特定の励起状態の寿命（すなわち、転移確率）を求めることができる。この場合には、ターゲットの物質の如何はあまり問題とならない。

iii) 以上のほか、ターゲット通過後の衝撃粒子の荷電分布は荷電交換現象として種々の面で重要であるが、これについては別稿に述べられている。ターゲット通過中のエネルギー損失、散乱の角度分布なども観測の対象となる。

3. 実験の手法

実験装置は一般に、衝撃粒子源、ターゲット、および放出粒子の検出器から成っている。

3.1 衝撃粒子源

イオン源部分、加速部分およびビーム分析部分に分けられる。イオン源は、観測する現象の断面積が一般に大きいので、強力なものである必要はない。これまでのこの方面の仕事には、イオン源の困難を逃れるため、希ガス、アルカリ金属、ハロゲンなどのイオンを用いたものが多いが、今後は気化しにくい元素のイオンも使用することが必要となろう。

衝撃粒子のエネルギーは、ターゲット原子との非弾性衝突のおこりはじめる 10 eV あたりから、核反応のおこりはじめる数 MeV/amu に及ぶ広い範囲にわたり、高エネルギー領域では、いわゆる加速器が必要になる。

衝突粒子の荷電数の効果を調べる場合には多価重イオン源あるいはストリッパーを用いる必要があるが、この場合には特定荷電数のイオンのみを取り出すため、ビーム分析系を使用するのがふつうである。

3.2 ターゲット

ターゲット原子が独立した原子として扱われるためには、ターゲットは気体であることが望ましい。一方、重イオンは衝突によって容易にその荷電数を変えるから、衝突が2回以上はおこらないような薄いターゲットが望ましく、この点からもガスターゲットは好都合である。実際には 10^{-3} Torr 以下のガス圧で用いる。固体の自立フォイルでは高エネルギーの場合を除き、この条件を満たすことはほとんど不可能である。しかし、多くの元素についてガスターゲットを用いることは不可能か、あるいは不可能ではないにしても極めて困難なので、止むを得ず固体ターゲットを使用している例は非常に多い。このような場合には、実験結果の解釈に当たって、衝撃粒子の荷電数の変化や固体の効果を考慮しなければならないことは当然である。

ターゲットとして遊離状態の原子、励起原子あるいはイオンなどを使うときは、ふつういわゆるビーム交叉法を利用する。

3.3 放出粒子の検出器

放出粒子は電子または光子であるが、後者のほうが測定が容易なので、ほとんどの研究では光子が測定されている。光子のエネルギーは可視光から重元素の特性X線、すなわち $10^0 \sim 10^5$ eV の広い範囲におよび、それぞれのエネルギー領域に応じて、プリズム、回折格子、回折結晶および低エネルギー光子用半導体検出器が用いられる。光源の強度は一般にかなり大きくすることができるので、スペクトロメーターの明るさはあまり問題とならない。また、分解能に対する要求は目的によっていろいろであるが、たとえばエネルギーシフトを測る場合には当然、分解能および測定値の再現性に対する要求は厳しくなる。検出感度のエネルギー依存性も十分わかっている必要がある。

3.4 2, 3の例

Fig. 1は固体ターゲットからの低エネルギー特性X線の測定に用いられた装置¹⁾であって、回折結晶と比例計数管が使用されている。回折結晶はステアリン酸鉛またはKAPで、測定範囲は150~1000eV。分解能は炭素のKX線(277eV)でFWHM14eV。明るさ 10^{-2} である。この装置を用い、100keVの Ne^+ で銅ターゲットを照射した場合に得られたX線スペクトルをFig. 2に示す。

Fig. 3は ^{252}Cf からの核分裂反跳原子を用いてニッケルはくを照射した場合に放出されるNi KX線の測定装置²⁾であり、検出器としてSi(Li)半導体検出器(6.4 keVにおけるFWHM300eV)が使用されている。この場合にはエネルギー標準線源が別に必要であり、 ^{57}Co および ^{241}Am からのX線および γ 線によって検出器のエネルギー較正が行なわれた。この装置は、重イオン照射による特性X線のエネルギーシフトの研究に用いられ、Niの K_α について~70eV、 K_β について210eVに及ぶシフトが報告されている。

Fig. 4はビームフォイルスペクトロスコープ装置の概念図³⁾であって、分析磁石を通ったイオンビームがターゲット(この場合、薄さと耐久性の点からカーボン膜が用いられることが多い)を通過することによって励起され、さらに真空中を進行するあいだに放出する光子を、ターゲットからの距離を変えながら測定するように作られている。Fig. 5は検出部の詳細⁴⁾を示す。

Fig. 6はビーム交叉法の例で、 He^+ と中性Hビームの交叉によって発生するLyman α を計数管で検出するように作られたものである。⁵⁾

4. 成 果

最近の技術を用いたこの分野における研究の成果は、1961年から隔年に開かれている原子衝突

国際会議 (Intern. Conf. on the Physics of Electronic and Atomic Collisions) の proceedings に報告されており、また得られたデータ (励起断面積, 転移確率, polarization など) については、米国における NSRDS (National Standard Reference Data System) の作業の一環として、critical review⁶⁾ が刊行されている。しかし、いずれも重イオン ($A > 2$) に関するものはまだあまり多くない。

とくに、重イオンによる内殻励起の研究については、1972年4月に第1回国際会議 (Intern. Conf. on Inner Shell Ionization Phenomena and Future Applications) が開かれ、その proceedings⁷⁾ 刊行されており、また寺沢の解説⁸⁾ がある。

ビームフォイルスペクトロスコピーに関しては、やはり国際会議 (Intern. Conf. on Beam-Foil Spectroscopy) が3年ごとに開かれ、proceedings が刊行されている。^{9, 10, 11)}

成果のうち、内殻励起については別稿に述べられているので、それ以外の分野における目ぼしいものを二、三簡単に紹介しよう。

重イオン衝撃の特色の一つは、衝撃粒子またはターゲット原子の多重励起あるいは多重電離が起ることである。多重励起原子のなかには、ただちに autoionization を起すものもあるが、そうでないものも多いので、そのような多重励起原子の転移確率が調べられている。たとえば doubly excited の Li I, B III, C IV, O VI, F VII, Cl XV, Ar XVII。

また、多重イオン生成によって、多くの原子について hydrogen like または helium like atom が作られるが、このような原子はそのエネルギー準位の計算が比較的容易であり、理論値と実験値との比較が行なわれた。例えば Ar XVII, Ar XVIII。最近では、このような hydrogen like atom のラムシフトを測定しようとする試みがある。¹²⁾

同様に、たとえば Al II 型の原子 (Si II - Ar VI) の特定準位間の転移確率について、理論値と実験値の比較が行なわれているが、一致はあまり良くない。

5. 終りに

わが国においても、原子衝突に関する研究は多くのグループによって精力的に行なわれているが重イオンに限って言えば決して盛んではない。これは、ひとえに重イオン源の不足によるものと思われる、なるべく近い将来にこの困難が除かれ、研究人口の増すことが望まれる。この分野にまだまだ十分に研究の余地があることは、3rd Intern. Conf. on Beam-Foil Spectroscopy の冒頭に述べられた講演の終りの、つぎの言葉が端的に物語っている：

A few years ago a sophist might have remarked, with a touch of irony, that, "beam-foil spectroscopy exists partly because there is not much else you can do with old, obsolete Van de Graaffs". As a contrast to this we now all know that BFS is one important motivation for constructing new, powerful heavy ion accelerators.

References

- (1) Der, R. C. et al. : Rev. Sci. Instrum., 41, 1797 (1970)
- (2) Watson, R. L. and T. K. Li : Phys. Rev., A4, 132 (1971)

- (3) Bashkin, S, ed.: "Beam-Foil Spectroscopy" Gordon and Beach, Inc., Vol. 1, p. 6 (1968)
- (4) *ibid.* p. 22
- (5) Young, R.A. et al.: Phys. Rev., 171, 85 (1968)
- (6) Thomas, E.W.: "Excitation in Heavy Particle Collisions", Wiley Interscience (1972)
- (7) Fink, R.W., ed.: Proc. Int. Cont. on Inner Shell Ionization Phenomena and Future Applications", CONF-720404 (1973)
- (8) 寺沢倫孝: 応用物理, 41, 1319 (1972)
- (9) Bashkin, S, ed.: "Beam-Foil Spectroscopy", Gordon and Beach, Inc. (1968)
- (10) Bashkin, S, ed.: Nucl. Instr. and Meth., 90, 1 (1970)
- (11) Bashkin, S, ed.: Nucl. Instr. and Meth., 110, 1 (1973)
- (12) Leventhal, M.: *ibid.* 343

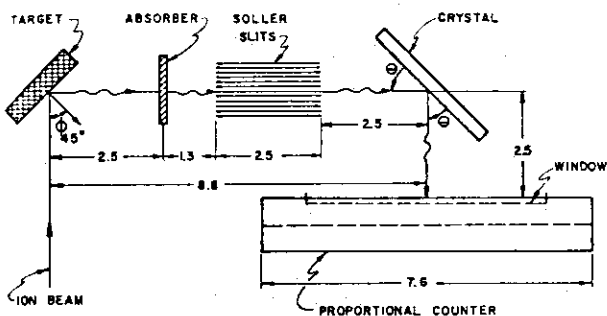


Fig. 1 Geometrical arrangement for typical ion-atom collision experiment. Dimensions are in centimeters.

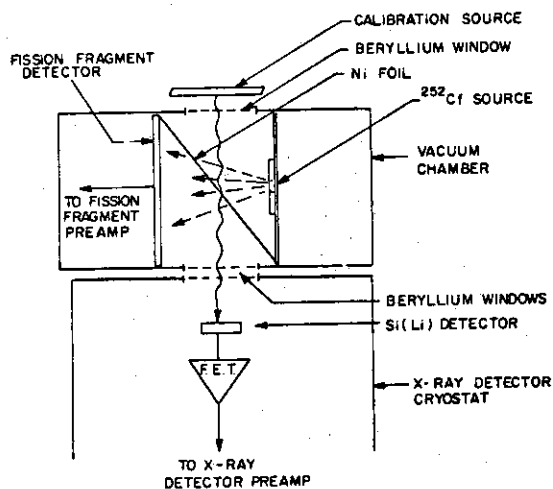


Fig. 3 Schematic diagram of an experimental arrangement for ion-atom collisions, where Ni target is bombarded with light fission recoils from ^{252}Cf .

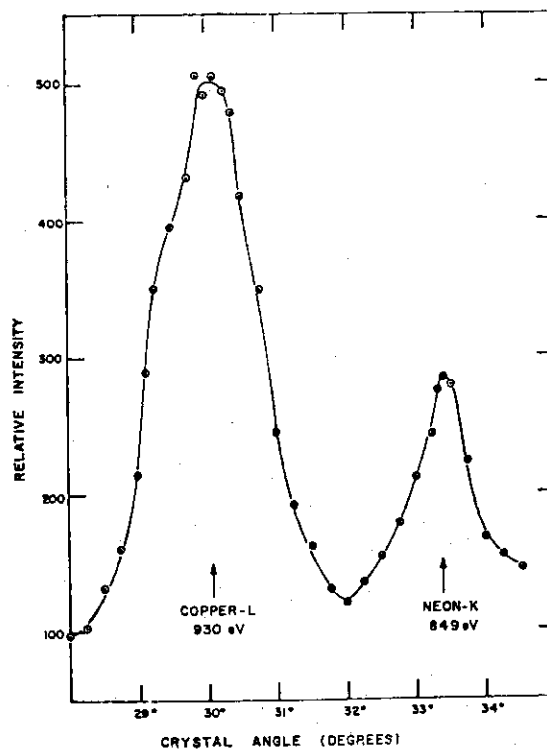


Fig. 2 Spectra of X rays from Xe^+ to Cu collisions at 100 keV.

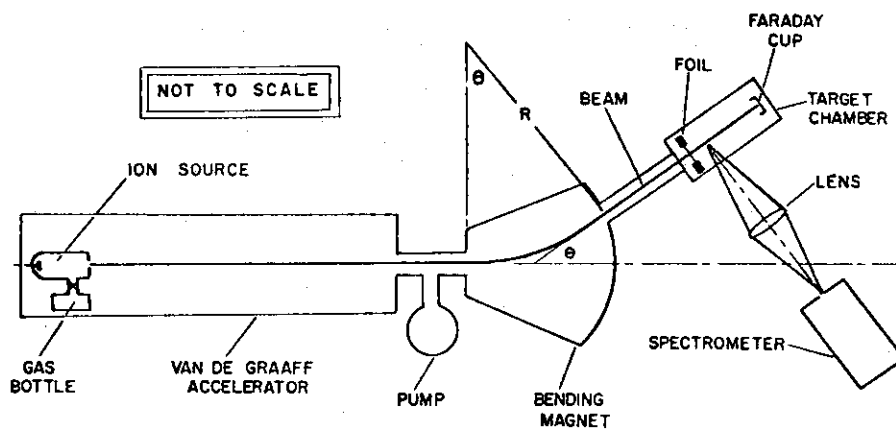


Fig. 4 Typical experimental arrangement for the beam-foil spectroscopy.³⁾

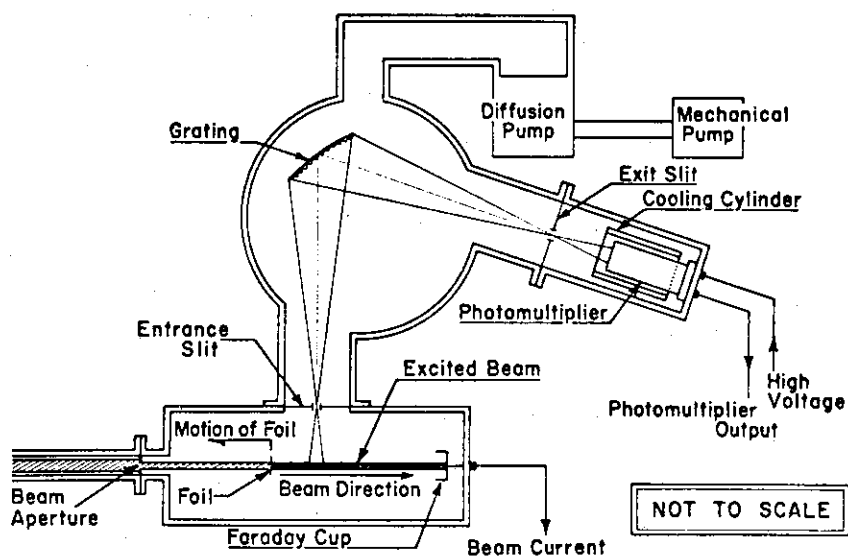


Fig. 5 Details of a detection unit in the beam-foil spectroscopy.⁴⁾

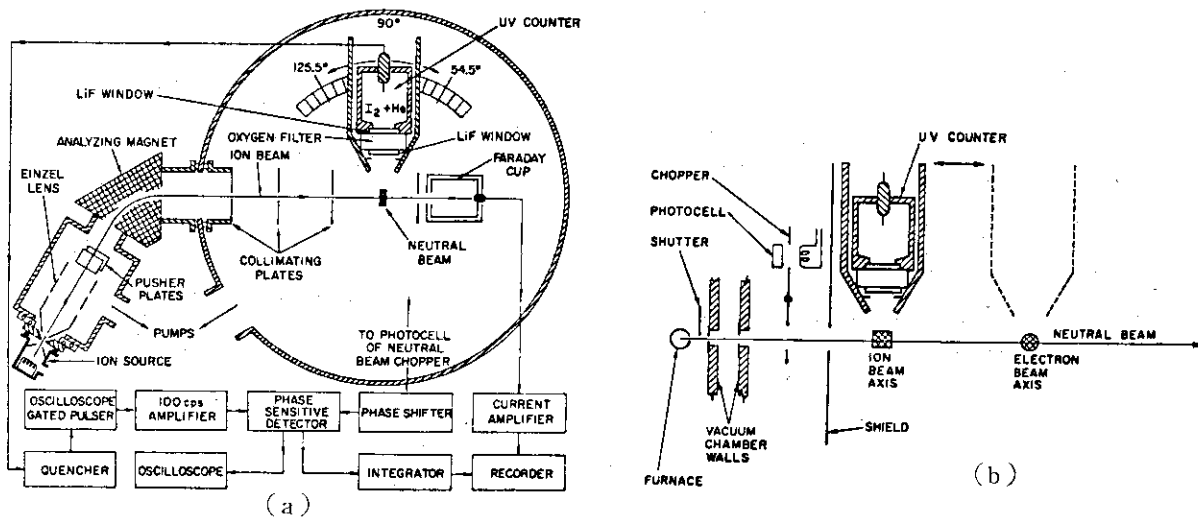


Fig. 6 Diagram of a crossing beam apparatus.⁵⁾
 (a) Sectioned through ion beam axis;
 (b) Sectioned through H-atom beam axis.

5.2 重イオン衝撃による内殻電離——特に、K殻電離における入射粒子の電荷依存性について

九州大学工学部 俵 博 之
(福岡市箱崎町)

Innershell Ionization by Heavy Ion Impact
-Dependence of K-shell ionization on the projectile charge

Hiroyuki TAWARA
(Nuclear Engineering Department,
Kyushu University, Fukuoka)

It is shown that the K X-ray production cross sections in low energy heavy ion impact are strongly dependent on the ionic charge of a projectile and the number of vacancy in the 2p shell, but not on the nuclear charge, as expected from the electron promotion model. Meanwhile, at high energies the K X-ray production cross sections are strongly dependent on both the projectile ionic and nuclear charge, which is not predicted by the simple Coulomb interaction mechanism.

1. はじめに

イオン衝撃による内殻電離現象は、Chadwick の頃から研究されているが、最近重イオン加速器の出現で、重イオン衝撃による内殻電離の研究に新たな興味がよびおこされつつある¹⁾。

プロトンのような軽いイオンとの衝突による内殻電離は、クーロン作用によると考えられ、理論的にはボルン近似 (PWBA) あるいはインパルス近似 (BEA) で記述され、内殻電離断面積 σ_I は、入射粒子の核電荷 Z_1 の2乗に比例する：
$$\sigma_I \propto Z_1^2 \quad (1)$$

一方、重イオン衝突による内殻電離機構は、軽イオンのそれとくらべて本質的に異なり、その電離断面積は、低エネルギーでは、プロトンにくらべ $10^3 \sim 10^5$ 倍大きい²⁾。

内殻電離がおこると、結果として、電子を放出するオージェ過程あるいはX線を放出する放射過程がおこる。X線放出がおこる確率は、蛍光収量 ω といわれ、次のように定義されている：

$$\omega = \sigma_X / \sigma_I, \quad \sigma_I = \sigma_A + \sigma_X \quad (2)$$

ここで、 σ_A 、 σ_X はオージェ電子、X線放出の断面積である。従って、オージェ電子あるいはX線を測定することによって、内殻電離についての情報がえられる。

ここでは、K殻電離の入射粒子のイオン電荷 (ionic charge) あるいは核電荷 (nuclear charge) 依存性について、固体ターゲットでは複雑な過程がおこるので、より基本的なデータを得るには、ガスターゲットでの実験が有用なことを強調する。

2. 低エネルギー重イオン衝撃

低エネルギー重イオン衝撃による内殻電離現象は、Fano-Lichten によって提案された electron promotion モデル³⁾ で定性的に説明される。すなわち、入射粒子がターゲット原子に充分近ずくと

両者は短寿命の準分子 quasi-molecule を形成し、その分子軌道 (MO) 間でのエネルギー準位交叉によって、内殻電子が空席のある外殻へ昇位 (promotion) し、その結果、内殻に空席が発生し、電離がおこる。Ne イオンが Ne ターゲットに衝突する対称衝突による Ne K 殻電離を例にとる。

Fig. 1 に Ne-Ne 系のエネルギー準位図を示す。入射 Ne イオンが、ターゲット Ne 原子に近づくとき K 殻電子は $2p\sigma$ MO にそって移動し、両者が充分接近すると準分子 (Ne)₂ すなわち Ca ($Z=20$) が形成される。衝突後両者が分離する時、 $2p\sigma$ MO にいた電子の一部は $2p\pi$ MO に沿って上昇し、完全に分離した後では、 $2p$ 殻に移動する。従って、Ne の K 殻には空席が発生し、そこへ外殻電子がおちこみ X 線あるいはオージェ電子が放出される。

2.1 ガスターゲットでの実験

Fig. 1 と上述の説明からわかるように、K 殻電離においては衝突前の $2p\pi$ MO の空席数が電離確率に大きな影響をもつ。Fig. 2 に、 Ne^+ , $\text{Ne}^{++} + \text{Ne}$ 衝突による X 線放出断面積を示す。⁴⁾ ここで入射 Ne イオンはターゲット Ne と 1 回だけ衝突するように、ガス圧を充分ひくくしてあり (single collision), 入射 Ne イオンの荷電変換の影響はほとんどない。 Ne^{++} (2 個) イオン衝突による Ne KX 線強度を比較すると、予想されるように、 Ne^{++} のそれは Ne^+ の約 2 倍になっている。すなわち、重イオン衝突による K 殻電離は、入射粒子のイオン電荷に依存する。

さらに、Fig. 2 をみると、 σ_X と σ_A の入射粒子エネルギー依存性がこたっている。両者の比から、Ne K 殻の蛍光収量 ω_K が入射粒子のエネルギーの函数として得られ、Table 1 に示すように、300 keV Ne 衝突での Ne の ω_K は、50 keV のそれの約 2 倍に増大している。今まで考えられていたように ω_K は一定でなく、入射粒子のエネルギーに依存する。 ω_K の増加の原因は、主として内殻電離と同時に起こる外殻電離の影響と考えられる。⁵⁾ L 殻の ω の変化はさらに著しい (Table 1 参照)。

electron promotion モデルは Barat-Lichten により非対称衝突にも拡張され、⁶⁾ 数多くの実験事実を説明出来る。Fig. 3 に、いろいろな重イオンでガスターゲットを衝撃した時の CKX 線放出断面積 σ_X を示す。⁷⁾ $\text{C}^+ \rightarrow \text{C}$, $\text{N}^+ \rightarrow \text{C}$, $\text{C}^+ \rightarrow \text{N}$, $\text{Ne}^+ \rightarrow \text{C}$, $\text{C}^+ \rightarrow \text{Ne}$ 衝突における $2p\pi$ MO の最大空席数は、それぞれ、4, 4, 3, 1, 0 で、 σ_X もこの順序で減少している ($\text{C}^+ \rightarrow \text{Ne}$ については文献参照⁷⁾)。この結果はグラファイトターゲットを用いた同種の実験とも定性的に一致する。さらに、非弾性エネルギー損失の実験でも、 $2p$ 殻の空席があるときのみ、K 殻電離がおこることが示された。⁹⁾

以上のことから、低エネルギー重イオン衝撃による K 殻電離において、1) 入射粒子の核電荷はあまり重要でない、2) σ_I は衝突前の $2p\pi$ MO の空席数につよく依存する、3) σ_I は入射粒子のイオン電荷に依存する、4) ω_K は一定でなく、入射粒子のエネルギーで変化する、などプロトン衝撃にくらべ大きな差違がみられる。

2.2 固体ターゲットでの実験

これまで行なわれた内殻電離の研究では、主に X 線が測定され、しかも厚い固体ターゲットが用いられていた。この場合、いわゆる solid state effect のため、非常に複雑な過程がおこる。充分厚い固体ターゲットから発生する X 線量 Y は次のように表わされる：¹⁰⁾

$$Y(R_0) = n \int_0^{R_0} \exp[-\mu(R_0-r)] \sigma_X[E(r)] dr \quad (3)$$

これを微分することによって X 線発生断面積 σ_X がもとめられる：

$$\sigma_X = S(E) \frac{dY}{dE} + \frac{\mu}{n} Y \quad (4)$$

ここで、 n : ターゲット原子数、 R_0 : 入射イオンの飛程、 $E(r)$: 残留飛程 r のイオンのエネルギー、 μ : ターゲットの X 線吸収係数、 $S(E)$: 阻止断面積である。(2) と (4) 式から、電離断面積 σ_I がとまる。(4) 式が成立するには、1) ω が一定である、2) σ_I がイオン電荷によらない、3) イオンは単一電荷である、4) イオンの行路が直線であるなどの条件が必要である。もともと (3) 式はプロトンのような軽いイオン衝突に対して導かれたもので、重イオン衝突では、上記条件がみたされない場合が多い。ガスターゲットでの単一衝突にくらべ、固体ターゲットでは連続多重衝突がおこるので、重イオン-固体ターゲットでの実験では次のような複雑な過程がおこる：

1. 入射粒子のターゲット内での電荷は単一でなく、ある分布を示す。その分布は粒子のエネルギーに関係し、固体内での分布はよくわかっていない。
 2. 連続多重衝突による外殻電子損失 electron stripping あるいは励起のため、入射粒子の 2p 殻の空席が増大する。
 3. 電子損失のため、内殻電子の結合エネルギーが増大し、入射粒子とターゲット原子の内殻のエネルギー準位の入れ替え (Swapping) がおこる。
 4. ω は一定でなく、入射粒子エネルギーに依存する。
 5. σ_I, σ_X は入射粒子のイオン電荷に依存する。
 6. 入射粒子のエネルギーゆらぎが大きい。
 7. 入射粒子の通路は直線ではなく、ガタガタしている。
 8. 反跳効果が大きい。 $\text{Ne}^+ \rightarrow \text{C}$ (グラフアイト) 衝突の場合、 Ne^+ イオンに反跳された炭素原子 C^* は他の C と衝突する。 $\text{C}^* \rightarrow \text{C}$ 衝突はいわゆる対称衝突で、反応断面積が大きい。しかも、多くの場合、 C^* は高い電離あるいは励起状態にある。
 9. 入射粒子、ターゲット原子のいずれの X 線にも属さない非特性 X 線が発生する場合がある。¹¹⁾
- (4) 式を用いて出した σ_X は、入射粒子の固体内での未知のイオン電荷についての平均であり、えられる σ_X は入射粒子のイオン電荷に無関係である。上記のことから、(3) 式は、大ざっぱに次のように修正されねばならないだろう：

$$Y(R_0) = n \sum_i \int_0^{R_0} \exp[-\mu(R_0 - r)] \cdot \omega[E(r)] \cdot F_i[E(r)] \cdot \sigma_I[i\{E(r)\}] dr \quad (5)$$

ここで F_i はイオン電荷 i の全体に対する割合で、 $\sum_i F_i = 1$ である。これから、 σ_I をきめるには、固体内でのイオン電荷分布、いろいろな電離励起状態に対する ω を前もって知る必要がある。

6. 7. 8) については、Taulbjerg-Sigmand¹²⁾ が理論的に検討し、特に、8) は低エネルギーで大きく、場合によっては σ_X が見かけ上、一桁も大きくなることもある。 $\text{Kr}^+, \text{Ne}^+, \text{N}^+, \text{C}^+ \rightarrow \text{C}$ 衝突において、グラフアイト (固体) とメタンガスターゲットとの σ_X をくらべると、前者が上記固体効果のため、一般的に後者より大きいことも実験的に確認された。⁷⁾

このような点を考えると、固体ターゲットを用いた測定結果から、基本的な内殻電離のデータを導き出すことはかなり困難であろう。

3. 高エネルギー重イオン衝撃

重イオン衝撃においても、エネルギーが充分たかくなると上記の electron promotion モデルは成立しなくなり、内殻電離はクーロン作用が支配的になると考えられ、プロトン衝撃でえられた結果を説明するために用いられている PWBA あるいは BEA 理論を用いて、 σ_I を計算出来るはずであ

る。しかし、重イオン衝突においては、内殻電離と同時に起こる外殻電離が大きい影響をおよぼすので、プロトンの場合とことなつた内殻電離機構があるにちがいない。

3.1 入射粒子のイオン電荷依存性

Fig.4に80 MeV Ar イオンでNe ガスターゲットを衝撃した際発生するAr-K, Ne-K X線強度を、入射Arのイオン電荷の函数として示す。¹³⁾ Si(Li)検出器ではかつたNe-K X線スペクトルは、Ar-K X線のそれより巾が広くいろいろな外殻電離をともなうK殻電離にもとづく数多くのX線よりなっていることを示している。Ne-K X線強度は、入射Arのイオン電荷とともにほぼ指数的に増大し、Ar¹⁷⁺ 衝撃の場合のX線強度はAr⁶⁺のそれの約60倍も大きくなる。一方、Ar-K X線強度は入射Arイオンが完全電離に近づくにつれ急激に増大し、Ar¹⁷⁺ 衝撃のAr-K X線量はAr⁶⁺のそれの数100倍にも達する。この増加の原因のひとつとして、外殻電離による ω の増大があげられる。Neの場合、K殻電子1個が電離された通常のK殻電離の ω_K は0.018であるが、外殻電子がほとんどなくなった時の ω_K は1に近い。すなわち、観測されたNe-K X線の増加の一部は、 ω_K の増大に関係しているといえる。一方、Ar-K X線の場合、 ω_K はそれぞれ0.122, 1で ω_K も増大しているが測定結果を説明するには十分でない。この急激なAr-K X線の増加は、ターゲット原子からの電子捕かく(electron capture)も寄与していると考えられる。すなわち、完全電離に近いArイオンには、すでにK殻空席が存在しているが、Arイオン自身に外殻電子がないため、この空席は崩壊することが出来ない。¹⁴⁾ そのイオンの内殻空席へ、直接あるいは外殻をへてターゲットの電子を捕かくすることによって、イオンはX線を放出することが出来る。事実、電子捕かく過程の断面積は一般にK殻電離断面積にくらべ一桁以上大きい。この荷電変換をともなう内殻電離がおこると、Ne-K X線強度も増大するはずで、観測された結果はこのことを裏書きしている。

3.2 完全電離重イオンの核電荷依存性

完全電離状態のC⁶⁺, N⁷⁺, O⁸⁺, F⁹⁺ イオンでArガスを衝撃した時のAr-K X線量を、入射粒子の速度の函数として、Fig.5に示す。¹⁵⁾ もし、クーロン作用が主であれば、(1)式が示すように、Ar-K X線量は入射粒子の核電荷 Z_1 の2乗で増大するはずである。Fig.5の縦軸は、プロトンに対する比として表わされており、この比はPWBAおよびBEA理論によると1である。しかし、入射粒子の核電荷が大きくなるにつれ、比は1から大きくずれてくる。この場合も、 ω の増大が考えられるが、完全電離入射イオンによるターゲット原子からの直接K殻電子捕かくが大きく寄与しているように思われる。

高エネルギーの完全電離あるいはそれに近い電離状態の重イオン衝突における内殻電離には、直接内殻電離の他に、ターゲット原子の内殻電子捕かくをともなう内殻電離が重大な役割をはたしていると考えられる。

3.3 実験の提案

内殻電離における上記2つの過程の寄与をしらべるために、次のような実験を行うのは興味があるろう。N⁷⁺ + Ar 衝突を例にとると、次の3つの過程がおこる(K殻に関係したもののみ)：

- | | | |
|----------------------|--|------------|
| N ⁷⁺ + Ar | 1. N ⁷⁺ + Ar _K ⁺ + e _K | σ_1 |
| | (純粋なK殻電離) | |
| | 2. N ⁶⁺ + Ar _K ⁺ | σ_2 |
| | (K殻電子捕かくをともなうK殻電離) | |
| | 3. N ⁶⁺ + Ar ⁺ | σ_3 |
| | (外殻電子捕かくによる荷電変換) | |

上述のX線測定においては、 $\sigma_1 + \sigma_2$ が観測され、一方、 $\sigma_2 + \sigma_3$ は通常の荷電変換の実験で測定されているので、Fig.6のように、X線-荷電変換イオンの同時計数実験で、 σ_2 すなわち、K殻電離における電子捕かく過程の寄与を知ることが出来る。

この種の実験はガスターゲットで単一衝突条件のもとで行うべきである。

4. おわりに

現状で、重イオン衝突による内殻電離について定量的な議論をするには、あまりにも実験データが少ない。内殻電離に関してより基本的なデータを得るには、固体ターゲットよりも（勿論、固体ターゲットを用いた興味深い実験も多い）、ガスターゲットを用いて単一衝突条件で各種の粒子-ターゲットの組合せで、上記のような実験を行うとともに、下記の測定は、内殻電離機構を理解する上で有用と思われる。

1. 高分解能結晶スペクトロメーターなどで、X線スペクトルを測定し、同時多重外殻電離状態をしらべる。
2. オージェ電子とX線両者を測定し、いろいろな電子配置に対する ω を決定する。
3. 電子捕かくをともなう内殻電離過程の寄与を定量的にしらべる。

一方、理論面では、electron promotion モデルにもとづいて低エネルギーでの対称衝突におけるK殻電離に関しては、一応の目安がつけられたが¹⁷⁾、非対称衝突に関してはまだ検討されていない。高エネルギーでは、直接K殻電離と、電子捕かくをともなうK殻電離とをBEA理論にもとづいての計算が試みられている。しかし、系統的な理論はまだ出ていない。

原子核実験にはエネルギーが低すぎる重イオン加速器でも、この分野ではまだまだ新しい興味あるデータが得られる可能性が多い。

References

- (1) Proc. Intern. Conf. Innershell Ionization Phenomena, Conf. 72040 (USAEC, Oak Ridge, Tennessee, 1973)
- (2) Garcia J. D., Fortner R. J., Kavanagh T. M.: Rev. mod. Phys., 45, 111 (1973)
- (3) Fano U., Lichten W.: Phys. Rev. Letters, 14, 627 (1965)
- (4) Tawara H., Collin F., de Heer F. J.: Phys. Letters, 43A, 266 (1973)
- (5) Larkins F. P.: J. Phys., B4, L29 (1971)
- (6) Barat M., and Lichten W.: Phys. Rev., A6, 211 (1972)
- (7) Tawara H., de Heer F. J.: Physica (in printing)
- (8) Der R. C., Fortner R. J., Kavanagh T. M., Khan J. M.: Phys. Rev., A4, 556 (1971)
- (9) Fastrup B., Herman G., Kessel Q. C.: Phys. Rev. Letters, 27, 771 (1971)

- (10) Merzbacher E., Lewis H. W.: Handbuch der Physik (Springer, Berlin), 34, 166 (1958)
- (11) Saris F. W., van der Weg W. F., Tawara H., Laubert R.: Phys. Rev. Letters, 28, 717 (1972)
- (12) Taulbjerg K., Sigmund P.: Phys. Rev., A5, 1285 (1972)
- (13) Mowat J. R., Sellin J. A., Pegg D. J., Peterson R. S., Brown M. D., McDonald J. R.: Phys. Rev. Letters, 30, 1289 (1973)
- (14) Schnopper H. W., Betz H. D., Delvaille J. P., Kalata K., Sohval A. R., Jones K. W., Hegner H. E.: Phys. Rev. Letters, 24, 898 (1972)
- (15) McDonald J. R., Winters L. M., Brown M. D., Ellsworth L. D., Chiao T., Pettus E. W.: Phys. Rev. Letters, 30, 251 (1973)
- (16) Tonuma T., Konno I., Miyazawa Y., Yoshida F., Karasawa T., Takahashi T., Konno S.: J. Phys. Soc. Japan, 34, 148 (1973)
- (17) Briggs J. S., Macek J. H.: J. Phys., B5, 579 (1973); B6, 982 (1973) Watanabe T., Koike M., Minami F.: J. Phys. Soc. Japan, 34, 781 (1973)

Table 1 Fluorescence yields of Ne-K-shell and Ar L₂₃-shell.

$$\omega_K(\text{Ne}) \times 10^{-2}$$

Ne ⁺ → Ne		e → Ne ⁺	理論
50 ^{keV}	2.0 ± 1.8	1.55	1.82
100	3.7 ± 1.9		
200	4.2 ± 2.1		
300	3.6 ± 1.8		

$$\omega_{L_{23}}(\text{Ar}) \times 10^{-4}$$

Ar ⁺ → Ar		e → Ar	理論
50 ^{keV}	17.6	2.40	1.9
100	31.7		
150	72.9		
200	121		

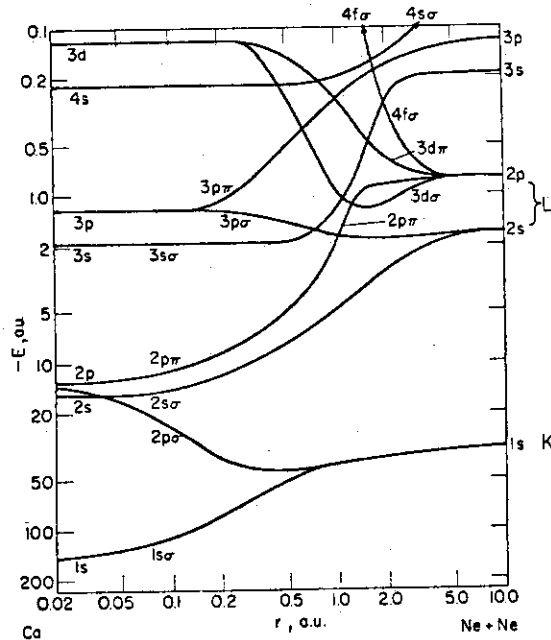


Fig. 1 Energy diagram for He-Ne system.

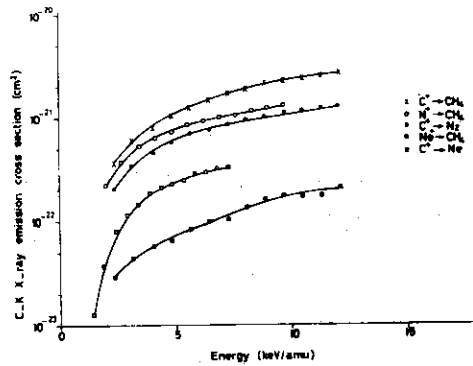
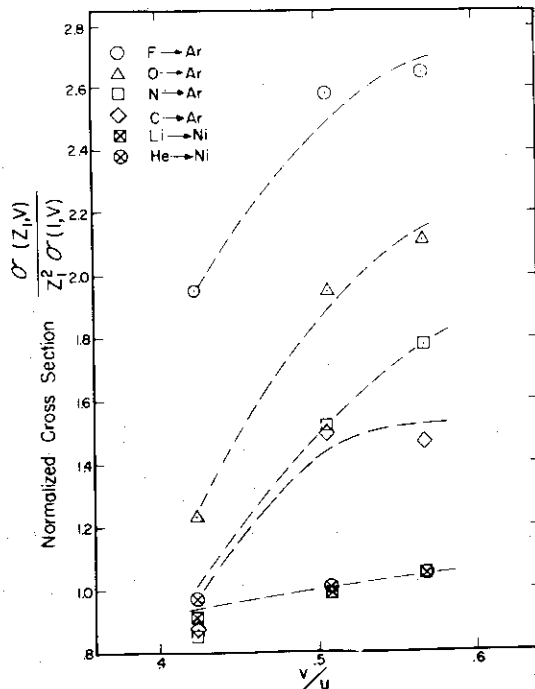
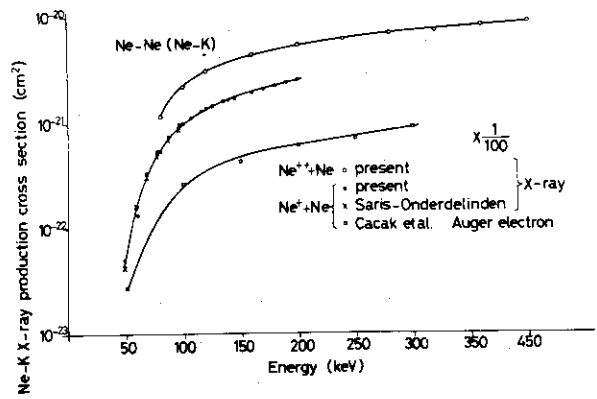
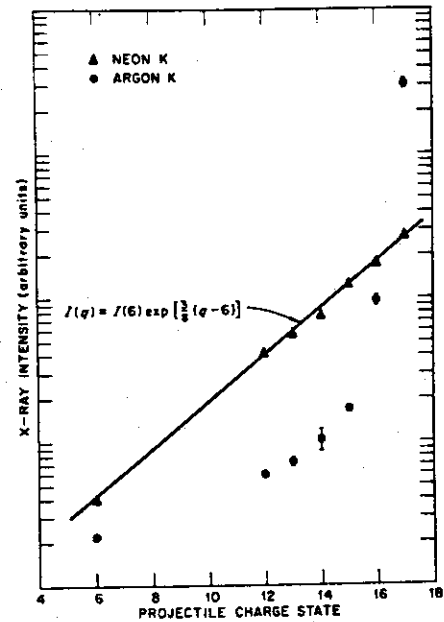
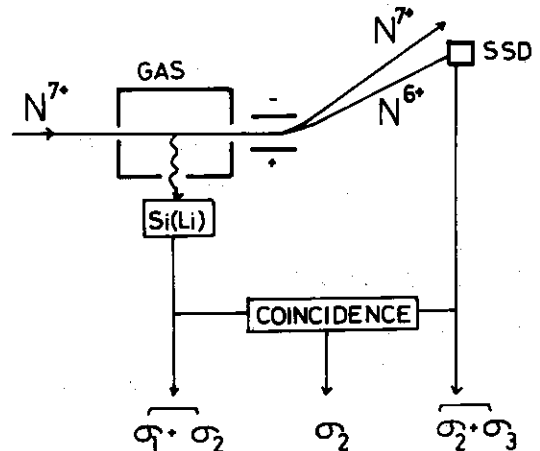
Fig. 3 C-K X-ray production in various collisions⁷⁾.Fig. 5 Ratios of X-ray production in completely ionized heavy ion impacts to that in proton impact¹⁵⁾.Fig. 2 Ne-K X-ray production in Ne^+ and N^{++} ion impact on Ne_4 .Fig. 4 Ne-K and Ar-K X-ray intensities as a function of the ionic charge of 80 MeV Ar incident on Ne_{13} .

Fig. 6 A proposed experiment to check the contribution of the K-shell electron capture process to the K-shell ionization process.

5.3 理研における内殻電子励起の実験

理化学研究所 栗屋 容子
(埼玉県和光市広沢 2-1)

Experimental Studies on the Inner-Shell Excitation

Yohko AWAYA
(The Institute of Physical and Chemical Research,
Wako-shi, Saitama)

X-rays from target atoms induced by 70 MeV N-ion and 20 MeV α -particle bombardments were studied. Target elements were ^{24}Cr , ^{26}Fe , ^{29}Cu , ^{38}Sr , ^{47}Ag , ^{56}Ba , ^{142}Nd , ^{71}Lu , ^{82}Pb and ^{83}Bi . Energy shift of K and L X-rays, the intensity ratio of K α and K β X-rays and the ratio of K and L X-ray yields for both bombardments was also obtained. The experimental results suggest that the multiple inner-shell ionization seems to originate mainly in the atomic direct Coulomb interaction in this incident energy region.

重イオンでターゲット原子を衝撃し、内殻電子励起に伴って放出されるX線を分解能数%の検出器を用いて測定すると、光子や軽い粒子(例えば陽子など)で励起した場合に比べてエネルギーシフト、ピークの半値幅の広がり、K α やK β 線といった各成分の強度比の変化等が観測される。これらの現象は、多重内殻電子励起に起因すると考えられている¹⁾。この多重内殻励起を惹起す機構に就いての研究は近年盛んに行なわれているが、その多くはFano-Lichtenのelectron promotion modelで可成良く説明できるエネルギー領域で行なわれている。入射重イオンのエネルギーが高く(2 MeV/nucleon)、ターゲット原子の原子番号が入射粒子に比べて大きい場合、分子軌道形成に依るelectron promotionの概念は考えにくい。この場合、atomic direct Coulomb interactionが重要になると思われるが、それに関する実験、理論的考察は数少ない^{2,3)}。

理研サイクロトロンでは、このエネルギー領域での重イオンの加速が可能なので、実験データの集積、ひいては励起機構の解明を目的として実験を計画し、第一段階のデータが得られたので、その結果に就いて報告する。^{注1)}

1. 実験条件

70 MeV N⁴⁺イオンと20 MeV α 粒子とでターゲット原子を衝撃し、発生するX線を高分解能Si(Li)検出器^{注2)}で測定した。

ターゲット原子は ^{24}Cr , ^{26}Fe , ^{29}Cu , ^{38}Sr , ^{47}Ag , ^{56}Ba , ^{142}Nd , ^{71}Lu , ^{82}Pb , ^{83}Bi である。これらの元素を選ぶ際には原子核のCoulomb励起から生じるX線を考慮し、原子核の第一励起準位がなるべく高いものを選び、やむを得ず低いものを選ばなければならない時には、その γ 線がSi(Li)検出器で測定可能であるようにして、補正を行った。また後述のエネルギー校正用線源の核種とも関連し

注1) 研究グループのメンバー: 栗屋容子, 浜田達二, 岡野真治, 高橋 旦, 出雲光一, 天道芳彦, 加藤武雄

注2) Princeton Gamma-Tech社製

て選んである。Cr, Fe, Cu, Ag, Pb, Bi のターゲットは真空蒸着法で、残りのターゲットは沈降法で作った。Ag ターゲットを除いて、いずれの方法の場合にも厚さ $4\text{ }\mu\text{m}$ のMylar をバックングに使用した。Ag に対しては薄いFormvar の膜を使った。ターゲットの厚さは、約 $20\text{ }\mu\text{g}/\text{cm}^2$ (Cr) $\sim 350\text{ }\mu\text{g}/\text{cm}^2$ (Bi) である。

Si(Li) 検出器の大きさは直径 1 cm 、厚さ 3 mm 、分解能は 6.4 keV に対し 300 eV FWHM 、窓に $50\text{ }\mu\text{m}$ のBe 箔が張ってある。ビームに対し 90° の位置に置かれ、立体角は約 1 msr である。ターゲットチェンバーの窓は $50\text{ }\mu\text{m}$ Be 箔からなり、検出器の窓との間に約 7 mm の空気層がある。ターゲットはビームと検出器に対し、共に 45° になるように置いた。検出器の relative efficiency curve は、これらの実験条件と同じ条件下で求めた。この測定には ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{66}Zn , ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{203}Hg が崩壊する際の K X 線と、可能な場合には γ 線とを使用した。求めた結果を Fig. 1 に示す。 5.4 keV 以下は実験点がないため誤差が大きい。誤差棒は、各点の誤差の大きさを示す目安で、任意の場所につけた。原子核のクローン励起や、各核反応に依り生成される放射性同位元素の崩壊からの影響をチェックするため、Ge(Li) 検出器を使った γ スペクトルの測定も並行して行った。

X 線のエネルギーシフトを測定する際、回路系の安定性が重要である。出来るだけ測定系からの誤差を小さくするために、各ターゲット元素に対応する X 線を放出する放射性同位元素を用意し、ターゲットからの X 線を測定する直前または直後に、その対応する線源に就いて測定しエネルギー較正を行なった。これらの線源は、前述のターゲット元素に対応して ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{66}Zn , ^{88}Y , ^{109}Cd , $^{143,144}\text{Pm}$, ^{176}Hf , ^{207}Bi で、Bi ターゲットに対する線源は適当なものがないため、使用していない。また Ag, Ba, Nd の L X 線との比較には、それぞれの厚いターゲットを $1\text{ mCi } ^{57}\text{Co}$ で照射し、発生する L X 線を用いた。

この実験のテストを行った際、Si(Li) 検出器で得たスペクトルのエネルギーの低い部分に、エネルギーの増加につれて強度が急速に減少する、連続スペクトルを示すバックグラウンドが観測された。この原因を調べるためのデータ集積も行った。エネルギー依存性を調べるため、前述の入射粒子の他に 40 MeV α 粒子も使用した。またターゲットにセルフサポートの Al, Ag 箔、 $4\text{ }\mu\text{m}$ Mylar 等を併用した。 40 MeV α 粒子で Al ターゲットを衝撃した時のスペクトルを Fig. 2 に示した。問題のバックグラウンドは $5\text{ keV} \sim 22\text{ keV}$ の連続スペクトルの部分である。実験データに対する理論的解析の結果、これは入射粒子により叩き出された反跳電子 (δ 線) がターゲット中で出す制動輻射線であるとの結論を得た。これについては別に報告がなされる予定である。⁴⁾

2. 実験結果

以下に示す実験結果は preliminary なものであり、まだこまかい補正が残されている。従って、誤差棒も上限が採られており、詳細な検討を未だ行う余地のあることを、お断りしておく。また、実験値に対し誤差が一部の点にしか付けていないが、この場合他の点についても同じ order の誤差があると考えていただきたい。

ターゲット原子からの X 線の測定は、検出器の窓その他の吸収があるため、Cr $\sim$ Sr に対しては K X 線のみ、Ag $\sim$ Bi に対しては K および L X 線に就いて行った。pile up に依る sum peak が出ないよう、ビームの強度には極力注意を払った。得られた K, L X 線スペクトルの一例を Fig. 3, Fig. 4 に示す。 α 粒子で衝撃した場合、各 X 線のエネルギーシフトは誤差の範囲内で認められないが、N イオンで衝撃した場合にはピークが高エネルギー側へずれ、かつ幅が広がっていることが

認められる。シフトの様子が見やすいよう、Nイオンで得られたピークに合せて縦線が入れている。シフト量は、それぞれのピークの型がガウス分布であると仮定して作られた χ^2 -fitのコード⁵⁾を使ってピークの位置を求め、線源からのX線に対して同様に求めたピーク位置を基準にして求めた。複合ピークの分解にもこのコードを使用した。Fig. 5はBaのLX線を分解した例である。特にLX線は多くの成分から成っているのので、その分解に際してはScofieldの遷移確率の計算値⁶⁾を参考にした。

Nイオンで各ターゲットを衝撃した場合のエネルギーシフトの結果を、Fig. 6, Fig. 7に示した。 $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ 線はBaより重い元素では分解可能であるが、この二本の線のシフト量は誤差の範囲で一致しているので、Fig. 6では $K\alpha$ として一括してある。 $K\beta_1$ 線については、Srの $K\beta_2$ 線が $K\beta_1$ 線と分解できないため、 $K\beta_1$ 線のシフトが実際より大きく評価されていると考えられる(単一空孔の場合、 $K\alpha_2$ 線の強度は $K\beta_1$ 線の13%弱)、しかし、 $Z \approx 38$ のあたりでシフトが最大になると考えて良さそうである。先にも述べたように、 α 粒子で衝撃した場合には、誤差の範囲でエネルギーのシフトは認められなかった。

Nイオン、 α 粒子で衝撃した場合の $K\alpha$ 、 $K\beta$ 線の強度比をFig. 8に、 KX 線と LX 線の強度比をFig. 9に示す。

また、この二種の入射粒子に対する KX 線の強度比をFig. 10に示してある。この場合、Faraday cupで計った電流積算値を入射粒子の筒数に変換するための有効電荷は、 α 粒子に対しては2、Nイオンに対しては6.9の値を使っている。特にNイオンに就いては、理研の戸沼達に依り行なわれた荷電変換の実験に基き⁷⁾、ターゲットを通過したイオンは平衡電荷分布をしていると考えた。平衡電荷分布になった際の有効電荷の値は、WittkowerとBetz⁸⁾の表より採った。

3. 検 討

以上の実験データの理論的解析として、エネルギーシフト量や $K\beta/K\alpha$ 等の値から、多重内殻励起が生じた場合の空孔の配位等を定めることを考えているが、その解析コードの開発を現在検討中である。従って、現段階では、多重内殻励起機構について定性的考察を行なうにとどめる。

Fig. 6に見られる様に、 $K\alpha$ 線のシフト量は原子番号 Z の増加に対し、やや減少の傾向はみられるが大きな差はない。一方、 $K\beta_1$ 、 $K\beta_2$ 線では最大になる Z がある。軽い入射粒子の場合、内殻励起機構は主として入射粒子と内殻電子との直接的クーロン相互作用に基づくと考えた取扱いが、実験データを良く説明している。その主なものに、Merzbackerの平面波ボルン近似(PWBA)⁹⁾やGarciaに依るBinary Encounter Approximation(BEA)¹⁰⁾がある。BEAに因ると、入射粒子のエネルギーを E 、質量を M 、電子の質量を m_e 、着目している殻の束縛エネルギーを u とした時、その殻に空孔を作る断面積は $Em_e/Mu \simeq 1$ の時最大になる。この条件を、この実験のNイオンの場合について、L殻電子に当てはめると、Srがそれに該当する。一方、 $K\alpha$ 及び $K\beta$ はK殻の空孔を、それぞれL及びM殻電子が埋める時に放出される。束縛電子のエネルギーに対しては、内側の殻の電子の遮蔽効果が大きいことを考えると、L殻の空孔の数の効果は $K\alpha$ 線のシフトより $K\beta_1$ 線のシフトによりはっきり現われるであろう。 $K\beta_1$ のシフトが $_{38}\text{Sr}$ の当りで最大になるということは、この実験条件下でBEAがある程度よい近似になっていることの裏付けと考えてよいと思う。さらに $K\beta_2$ 線については、M殻の空孔の数がさらに影響する。上記の条件に相当するのは $_{71}\text{Lu}$ の当りの元素であるが、L殻の空孔の数も当然影響するので、シフトの最大値が Z の小さい方へずれてもおかしくな

い。また Fig. 8 で $K\alpha$, $K\beta$ の強度比の実験点と共に, Hansen 達が放射性同位元素に対して求めた値を比較のために載せてあるが, この実験で得た値は Sr, Ag の所で Hansen 達の値より大きくなっている。これも L 殻の空孔の数に関連した事柄と考えられる。

次に Fig. 10 に示した, N イオンと α 粒子で衝撃した場合の K X 線の収量の比について考えてみる。多重内殻励起が生じた場合, 蛍光効率 ω の変化という問題があり, N イオンと α 粒子に対して ω を同じにしてよいという保証はない。しかし, 単一内殻励起の場合の ω の値は, Sr では 0.65, Ag では 0.80, Pb では 0.96 であるので, Sr ないし Ag より重い元素に対し同じ値を採ることは, それ程乱暴な近似ではないと考える。すると Y_N/Y_α は, それぞれの入射粒子で K 殻に空孔を作る断面積の比になる。PWBA, BEA いずれの場合にも, その断面積は入射粒子の電荷を Z_p としたとき, Z_p^2 に比例する。この場合, $Z_N^2/Z_\alpha^2 = 12.25$ となり, 大ざっぱな見積りではあるけれども, 実験値と合っている。

以上の事柄から, 70 MeV N イオンを入射粒子としたこの実験条件のもとでは, atomic direct Coulomb interaction が, 多重内殻電子励起を惹起す主要な機構になっていると考えて良さそうである。

L X 線のエネルギーシフト (Fig. 7) はデータの点が少ないので, これについての議論は難かしいが, M 殻から L 殻への遷移に伴う $L\alpha$, $L\beta_1$, $L\beta$ 線のシフト量と, N 殻から L 殻への $L\beta_2$, $L\gamma_1$, $L\gamma_{2,3}$ のシフト量とは大別できる。

K X 線の収量に対する L X 線の収量の割合 (Fig. 9) は, N イオンで衝撃した場合の方が α 粒子に依る場合より 2 倍以上大きい。これも N イオンの場合に多重内殻励起が起きていることの傍証であろうが, L X 線に対する ω の変化は K X 線に対するより大きい可能性があることを考えると, さらに検討の余地がある。

References

- (1) Garcia J. D. et al.: Rev. modern Phys., 45, 111 (1973) and references cited there.
- (2) Saltmarsh M. J. et al.: Phys. Rev. Lett., 29, 329 (1972).
- (3) Hansteen J. M. and Mosebekk O. P.: Phys. Rev. Lett., 29, 1361 (1972).
- (4) Izumo K. et al.: IPCR Cyclotron Progr. Rep., 8, to be published.
- (5) Katou T.: Reports of IPCR (in Japanese), 48, 166 (1972).
- (6) Scofield J. H.: Phys. Rev., 179, 9 (1969).
- (7) Tonuma T. et al.: J. Phys. Soc. Japan, 34, 1 (1973).
- (8) Wittkower A. B. and Betz H. D.: "Atomic Data", Academic Press, 5, 113 (1973).
- (9) Merzbacker E. and Lewis H. W.: "Handbuch der Physik", Springer-Verlag, 34, 166 (1958).
- (10) Garcia J. D.: Phys. Rev. A1, 280 (1970), A1, 1402 (1970), A4, 955 (1971).

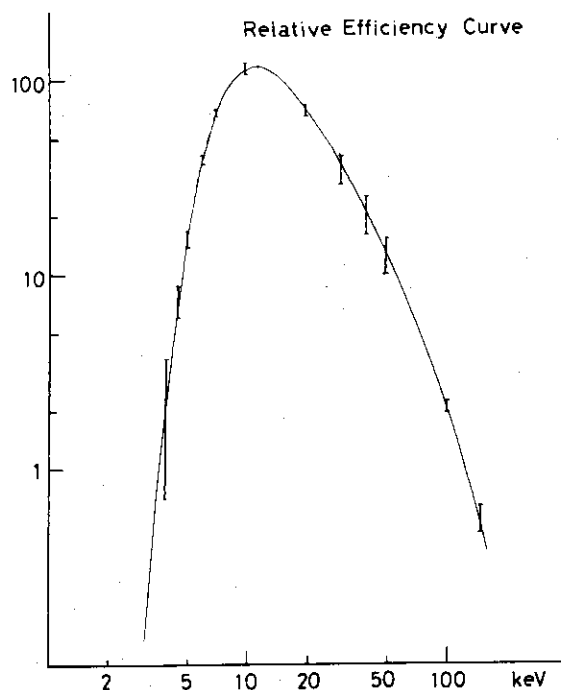


Fig. 1 Relative efficiency curve of the Si(Li) detector. Geometrical factors are included.

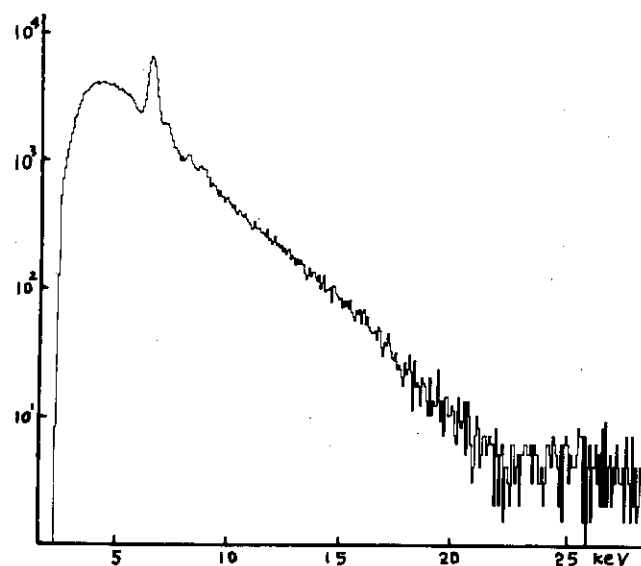


Fig. 2 A typical spectrum of bremsstrahlung induced by 40 MeV α -particle bombardment on an Al target.

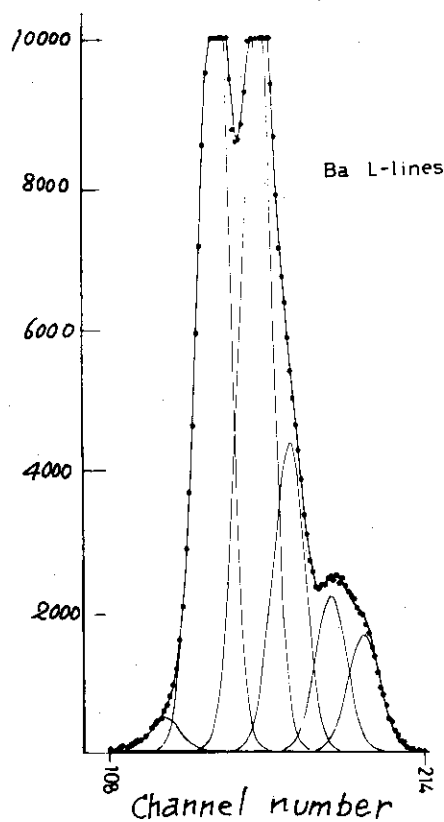


Fig. 3 An example of the Gauss fitting of a complex peak.

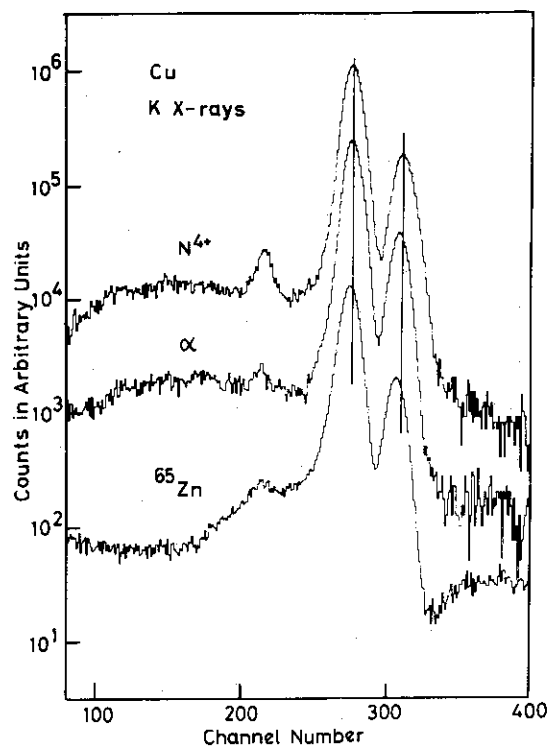


Fig. 4 Spectra of K X-rays obtained by N-ion and α -particle bombardments of Cu target and by the decay of ^{65}Zn .

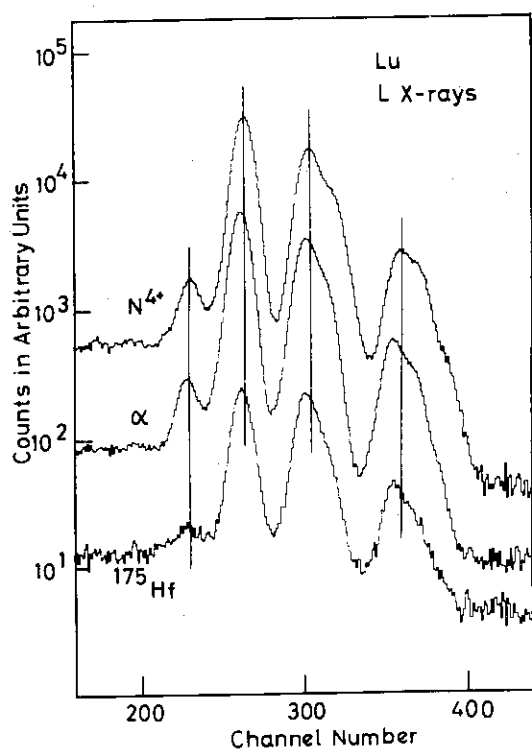


Fig. 5 Spectra of L X-rays obtained by N-ion and α -particle bombardments of Lu target and by the decay of ^{175}Hf .

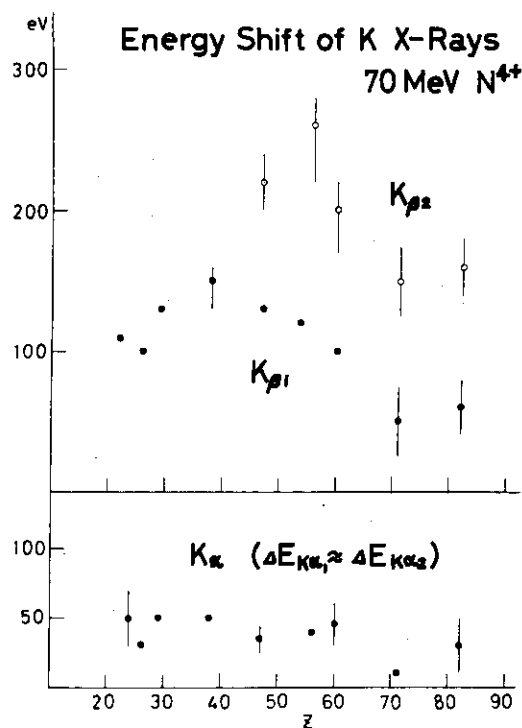


Fig. 6 Energy shift of $K\alpha$, $K_{\beta 1}$ and $K_{\beta 2}$ X-rays.

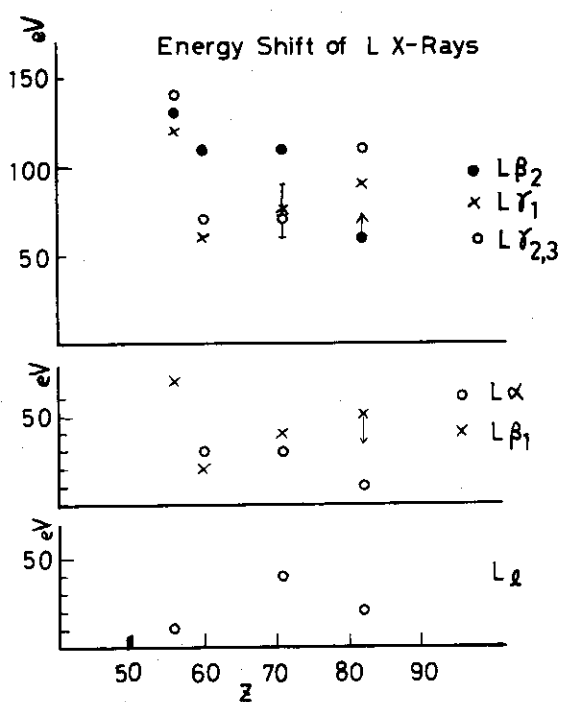


Fig. 7 Energy shift of L X-rays.

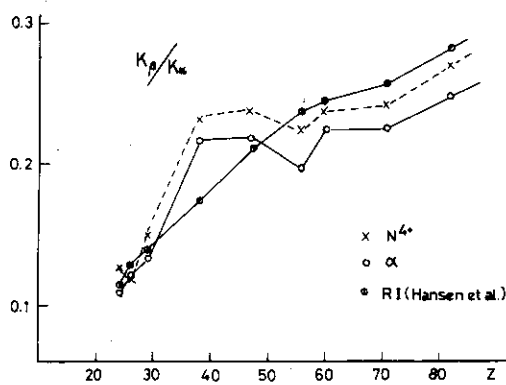


Fig. 8 K_{β}/K_{α} values obtained by N-ion and α -particle bombardments.

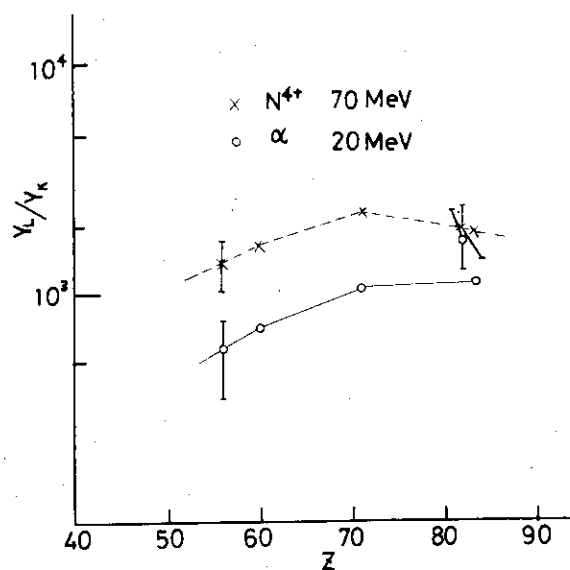


Fig. 9 Intensity ratio of K and L X-rays obtained by N-ion and α -particle bombardments.

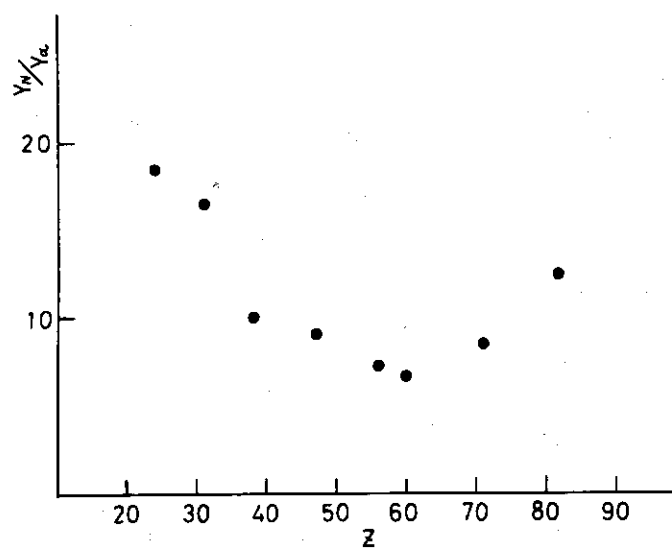


Fig. 10 Ratio of K X-ray yields obtained by N-ion and α -particle bombardments.

5.4 Zn, Sn, Ta, Pbの数MeVプロトンと ^3He 粒子による特性X線の励起

東北大学理学部 森田 右, 石井慶造,
鍛冶東海, 塩川孝信
俵 博之*

(仙台市片平町二丁目1-1)

Characteristic X-ray Excitation of Zn, Sn,
Ta and Pb by Several MeV Protons and Helium-3

Susumu MORITA, Keizo ISHII, Harumi KAJI,
Takanobu SHIOKAWA and Hiroyuki TAWARA*
(Faculty of Science, Tohoku University,
Katahira-cho, Sendai)

Absolute cross sections and excitation functions have been measured for Zn K, Sn K and L, Ta L X-ray production by proton impact and for Pb L X-ray production by proton and ^3He impacts over the bombarding energy range 1.4 - 4.4 MeV with a Si(Li) detector. The results are compared with BEA and PWBA calculations and with SCA calculation for Sn L X-ray production. Generally, a good agreement is obtained except for SCA. Ratios of X-ray production, such as K_α/K_β and L_α/L_β are also compared with BEA calculations. Cross-over behavior of Z_1 -dependence of X-ray production cross sections is studied for Pb L-lines.

1. 序

直接, 重イオンでおこなった実験ではないが, 重イオンにすすむことを目的に, まず陽子と ^3He 粒子でおこなった実験についてのべる。重荷電粒子による特性X線の励起は, K-X線については多くの元素について測定されているが, L-X線については非常に少ない。ここでは, ZnのK, SnのKとL, TaのL, PbのL-X線について, 主に1.4 - 4.4 MeV陽子と, 一部 ^3He 粒子で励起関数と, 強度比を測定し, PWBA理論とBEA理論と比べた結果についてのべる。

2. 実験方法

東北大5 MV VdGからの陽子または ^3He ビームを直径3 mmのグラフィットスリットをとおしてX線反応箱に入れる。反応箱をFig. 1に示す。図において, ターゲットは直径15 mmのものを4コ, 回転板Aにつけて交互に衝撃する。ターゲットは全部真空蒸着でつくったself-supportingのもので, 厚さは数 $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ から $2\text{mg}/\text{cm}^2$ で, ビームに対して 45° になる。ターゲットから 90° 方向へでたX線は $10\mu\text{m}$ mylar窓, 2.2 cmの空気層, $25\mu\text{m}$ Be窓をとってSi(Li)検出器に入る。必要に応じて $15\mu\text{m}$ のAlアブソーバーを挿入する。Si(Li)検出器の分解能は, 6.4 keVのFe-K α 線に対して205 eVである。ビームに対して 136° 方向に別の半導体検出器がセットしてあり, 弾性散乱された陽子や ^3He を測り, そのカウント数からビーム量を求めた(弾性散乱がCoulomb散乱であることは確めた)。X線発生の断面積は次式で与えられる,

* 九州大学工学部(福岡市箱崎町), Kyushu University, Fukuoka

$$\sigma_X = \frac{4\pi}{4\Omega} \frac{Y}{\epsilon n} \quad (1)$$

ここで 4Ω は X 線検出器の立体角, Y は入射粒子 1 コあたりの X 線収量でターゲット中での自吸収, mylar 窓, 空気層, Be 窓などによる吸収の補正が必要である。 ϵ は Si detector の検出効率で ^{57}Co と ^{241}Am の標準線源を用いて測定した (Fig. 2)。 n は単位面積あたりのターゲット原子数である。

このようにしてえられた X 線スペクトルの例を Fig. 3 に示す。図において, (a) は Zn-K, (b) は Sn-L, (c) は Pb-L X 線のスペクトルで Sn-L X 線では各ピークの分離はそれ程よくないが Ta, Pb-L X 線では L_{η} 線がはっきりと分離される。(b) 図の曲線は各ピークをガウス分布と仮定して, コンピューターによってピーク分離を行った結果である。

Pb の L X 線は, 陽子と ^3He 粒子衝撃で測定したが, 今の測定範囲内では X 線の energy shift は認められなかった。実験誤差は, 検出効率, 吸収の補正, 立体角の精度, ターゲットの厚さの誤差を考慮して $\sim 15\%$ と評価され, 統計誤差は通常 2% 以下だが, L_{ϵ} や L_{η} のような弱い成分では $5-25\%$ になる。

3. Zn および Sn の K-X 線

実験でえられた X 線発生断面を理論で計算された電離断面と比較するためには fluorescence yield ω の値が必要で, われわれは ω の値はすべて Bambynek ら¹⁾ の値を用いた。 ω の値は electron configuration によって変わることが分っているが, 陽子や ^3He などの軽イオンではほとんど変わらないと考えられている。実験結果と理論との比較を Zn について Fig. 4 に示した。Fahlenius ら²⁾ の測定はわれわれの結果と大体一致しているがエネルギーの高いところで不一致がみられる。Fig. 5 は Sn の K-X 線についてである。点線の PWBA は入射粒子の Coulomb 場による deflection の補正を考慮した計算で, BEA (Binary encounter approximation) は impulse 近似を用いた Garcia の計算³⁾ である。この領域では一般に PWBA, 特に補正した PWBA が実験とよく一致する。

第 1 表は $K\alpha/K\beta$ 比の値を今までの実験結果と比べたもので, 今の実験のエネルギー範囲内では一定で 7.04 となり, 制動輻射や電子衝撃でえられた値と一致しているが, Scofield の理論値より $10-20\%$ 小さくなる。しかし実験値の間にも $5-10\%$ のちがいがああり, これが励起方法のちがいによるものかも知れず, 重イオンでやってみることは興味がある。

4. Sn, Ta, Pb の L-X 線

4.1 L-X 線発生断面の全断面

Fig. 3 に示したように L_{α} , L_{β} などの成分は分離されるが, これらはさらにいくつかの line からなり, 検出器の分解能のために, 個々の subshell の電離断面を実験から求めることはできない。それで理論で計算される subshell 電離断面 $\sigma_i^{L_1}$, $\sigma_i^{L_2}$, $\sigma_i^{L_3}$ と fluorescence yield ω_1 , ω_2 , ω_3 と Coster-Kronig yield f_{12} , f_{13} , f_{23} から L-X 線発生断面 σ_X^L を求め実験結果と比較する。すなわち

$$\sigma_X^L = \omega_1^{\text{eff}} \cdot \sigma_i^{L_1} + \omega_2^{\text{eff}} \cdot \sigma_i^{L_2} + \omega_3^{\text{eff}} \cdot \sigma_i^{L_3} \quad (2)$$

ここで

$$\begin{aligned} \omega_1^{\text{eff}} &= \omega_1 + f_{12} \cdot \omega_2 + (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) \omega_3 \\ \omega_2^{\text{eff}} &= \omega_2 + f_{23} \cdot \omega_3 \\ \omega_3^{\text{eff}} &= \omega_3 \end{aligned} \quad (3)$$

$\sigma_i^{L_1}$ などは BEA と PWBA 理論で計算され、 ω_1 , f_{12} などは Bambynek らの論文¹⁾からとった。実験で求められる L-X 線発生断面積は

$$\sigma_X^L = \sigma_X^{L\alpha} + \sigma_X^{L\beta} + \sigma_X^{L\gamma} + \sigma_X^{L\ell} + \sigma_X^{L\eta} \quad (4)$$

ここで $\sigma_X^{L\alpha}$ などは、 L_α 線などに対する X 線発生断面積の測定値である。

第 6, 7, 8 図にそれぞれ Sn, Ta, Pb の結果を示す。いずれの場合にも PWBA での Coulomb 場による deflection の補正は計算してみたが小さい。Sn (Fig. 6) の場合の SCA 理論⁴⁾の実験との一致はわるく、PWBA と BEA は大体の傾向をよく再現しており、特に BEA 理論がよく一致している。

4.2 L-X 線発生の部分断面積,

L_α , L_β などの各成分には分解されない多くの line が含まれており、それぞれの部分断面積は次式で計算される,

$$\begin{aligned} \sigma_X^{L\alpha} &= [\sigma_i^{L_1} (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) + \sigma_i^{L_2} f_{23} + \sigma_i^{L_3}] \omega_3 \frac{\Gamma_{3\alpha}}{\Gamma_3}, \\ \sigma_X^{L\beta} &= [\sigma_i^{L_1} (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) + \sigma_i^{L_2} f_{23} + \sigma_i^{L_3}] \omega_3 \frac{\Gamma_{3\beta}}{\Gamma_3} \\ &\quad + (\sigma_i^{L_1} f_{12} + \sigma_i^{L_2}) \omega_2 \frac{\Gamma_{2\beta}}{\Gamma_2} + \sigma_i^{L_1} \omega_1 \frac{\Gamma_{1\beta}}{\Gamma_1}, \\ \sigma_X^{L\gamma} &= (\sigma_i^{L_1} f_{12} + \sigma_i^{L_2}) \omega_2 \frac{\Gamma_{2\gamma}}{\Gamma_2} + \sigma_i^{L_1} \omega_1 \frac{\Gamma_{1\gamma}}{\Gamma_1}, \\ \sigma_X^{L\ell} &= (\sigma_i^{L_1} (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) + \sigma_i^{L_2} f_{23} + \sigma_i^{L_3}) \omega_3 \frac{\Gamma_{3\ell}}{\Gamma_3}, \\ \sigma_X^{L\eta} &= (\sigma_i^{L_1} f_{12} + \sigma_i^{L_2}) \omega_2 \frac{\Gamma_{2\eta}}{\Gamma_2}. \end{aligned} \quad (5)$$

ここで例えば Γ_3 は L_3 -shell の理論的な total radiative rate で、 $\Gamma_{3\alpha}$ は L_3 -shell の vacancy をみたく transition のなかで L_α 線に含まれる transition の radiative rate であり、これらの値は Scofield の計算値⁵⁾を用いた。この計算は相対論的な Hartree-Slater 理論で retardation effect を含んでいる。

これらの部分断面積の理論値と実験結果を Fig. 6, 7, 9 図に示した。一般にエネルギーが高くなると BEA との一致はよくなるが、低いエネルギーでは計算値の方が systematic に小さい。

4.3 各X線グループの強度比

L_{α}/L_{β} など強度比の計算では、入射粒子のターゲット核による Coulomb deflection の effect や L-殻電子の波動関数の入射粒子による distortion の effect などは少くとも、部分的には cancel する。また実験的にもターゲットの厚さの inhomogeneity や、ビーム電流の不確定さなども cancel し、理論との比較に ambiguity がなくなる。Fig. 10 に Pb の場合の結果を示す。 L_{α}/L_{β} , L_{α}/L_{γ} はエネルギーの低いところでは BEA と一致するが、高くなってくると deviate する。 L_{α}/L_{ℓ} は理論では一定で 18.8 (両方のグループ共、initial vacancy は L_3 -殻だから) であるが、実験ではエネルギーによって変わる。このことは Busch らの測定⁵⁾とも一致しており、彼らはその理由を、 L_{α} と L_{ℓ} -transition では、simultaneous outershell ionization がちがうためだからといている。 L_{α}/L_{γ} 比は割合ちらばっているが全体として BEA 理論よりも大きい。

4.4 Pb の L-X 線発生 の Z_1 -dependence

PWBA でも BEA でも内殻電離の断面積は、入射粒子の電荷 Z_1 の 2 乗に比例するはずであるが、Basbas ら⁷⁾、Lewis ら⁸⁾ は p, d, He の衝撃による K-X 線の励起を調べて理論から相当ずれることを報告している。すなわち測定値 ($\sigma(\text{He})/\sigma(\text{p and d})$) は低い入射エネルギーでは理論値より小さく、エネルギーが増加するにつれて次第にふえて理論値よりも大きくなり、それから減少して理論値へ近づいていく。いわゆる "cross-over" behaviour で、その理由は、低いエネルギーでは入射粒子の Coulomb 場による deflection と、K 電子が感ずる effective nuclear charge が Z_2 から $Z_2 + Z_1$ にふえるためであり、高いエネルギーでは入射粒子による K 電子軌道の distortion が大きくなるためといわれる。

L 殻電離で Z_1 -dependence を調べた実験はなく、K 殻電離に比べて事情は複雑になるが、K 殻の場合と同じようにとりあつかうと、L 殻電離の cross-over point は

$$\frac{v_1}{v_2} = \frac{2U_L}{RZ_L^2} \quad (6)$$

となる。ここで v_1 , v_2 はそれぞれ入射粒子と L 電子の速度、 U_L は L 電子の結合エネルギー、 R は Rydberg 定数、 Z_L は effective target nuclear charge で ($Z_2 - 4.15$) で表わされる。

第 11 図は Pb の $\sigma_L(\text{He})/4\sigma_L(\text{H})$ を projectile energy (MeV/amu) の関数として表わしたもので低いエネルギーでは 1 より相当小さく、2.5 - 3.0 MeV/amu でほとんど 1、または 1 より少し大きくなる。 L_{β} と L_{γ} では 3 つの subshell (L_1 , L_2 , L_3) 全部がきいているので U_L がきまらない。それで L_{α} と L_{γ} だけを示した。(6)式からの cross-over point は ~ 2.6 MeV/amu となり実験値と大体一致する。

L 殻電離の Z_1 -dependence を systematic に調べることは興味あることと考えられる。

5. 結 論

1.4 - 4.4 MeV の領域で、Sn の K-X 線の励起曲線は PWBA、特に Coulomb 場による deflection の補正を考慮した PWBA が実験とよくあうが、Sn, Ta, Pb の L-X 線では BEA の方が実験結果をよく再現する。Sn の L-X 線の SCA 理論は実験とあわない。Zn の K_{α}/K_{β} 比はエネルギーに independent に 7.04 となり、制動輻射や電子衝撃による値と一致するが、理論値より $\sim 10\%$ 小さい。Pb の L_{α}/L_{ℓ} 比は理論のように一定にならず、Buch らの実験結果と一致して

～3 MeV で最大になる。Pb の L-X 線発生断面積の Z_1^2 - dependence においても cross-over behavior がみられ, cross over point は 2.5 - 3.0 MeV で理論値と一致する。Shafroth ら⁹⁾ が Au の L-X 線で見出している energy shift は, 陽子と ^3He 衝撃による Pb の L-X 線ではみられなかった。

References

- 1) BAYBYNEK W., CRASEMAN B., FINK R. W., FREUND H. U., MARK H., SWIFT C. D., PRICE R. E. and VENUGOPOLA PAO P.: Rev. Mod. Phys. 44 716 (1972)
- 2) FAHLENIUS A. and JAUHO P.: Ann. Acad. Sci. Fennice, A No. 367 (1971)
- 3) GARICA J. D.: Phys. Rev. A1 280 (1970)
- 4) HANSTEEN J. M. and MOSEBEKK O. P.: Nucl. Phys. A201 541 (1973)
- 5) SCOFIELD J. H.: Phys. Rev. 179 6 (1969)
- 6) BUSCH C. E., BASKIN A. B., NETTLES P. H., SHAFROTH S. M. and WALTNER A. W.: Phys. Rev. A7 565 (1970)
- 7) BASBAS G., BRANDT W., LAUBERT R., RATKOWSKI A. and SCHWARZCHILD A.: Phys. Rev. Letters 27 171 (1971)
- 8) LEWIS C. W., WATSON R. L. and NATOWITZ J. B.: Phys. Rev. A5 1773 (1972)
- 9) SHAFROTH S. M., BISSINGER G. A. and WALTNER A. W.: Phys. Rev. A7, 566 (1973)

Table 1 Comparison of K_α/K_β ratio of Zn in various experiments and theory.

	K_α/K_β	excitation
present	7.04	proton
Slivinsky-Ebert	6.59	bremsstrahlung
Mistry-Quarles	7.52	electron
Bambynek et al.	7.41	"most probable"
Nelson et al.	7.30	"most probable"
Scofield	8.06	theory

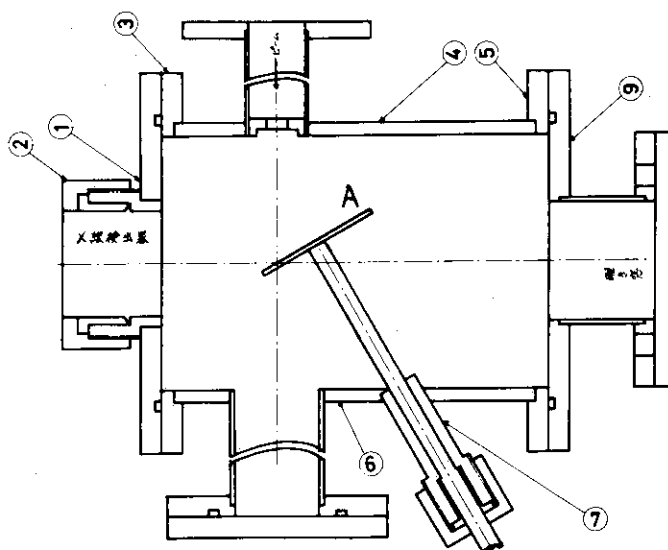


Fig. 1 X-ray reaction chamber.

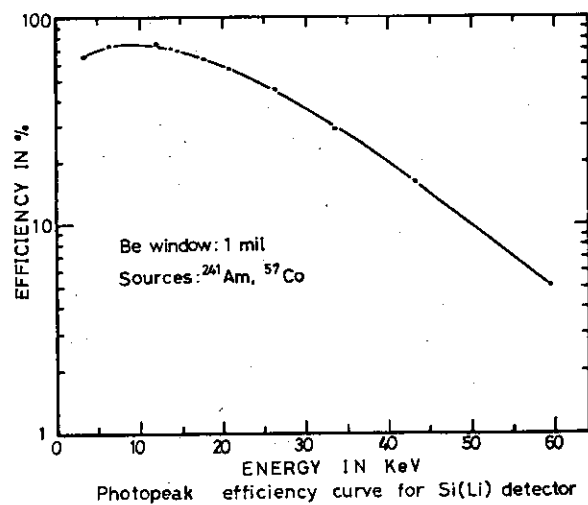
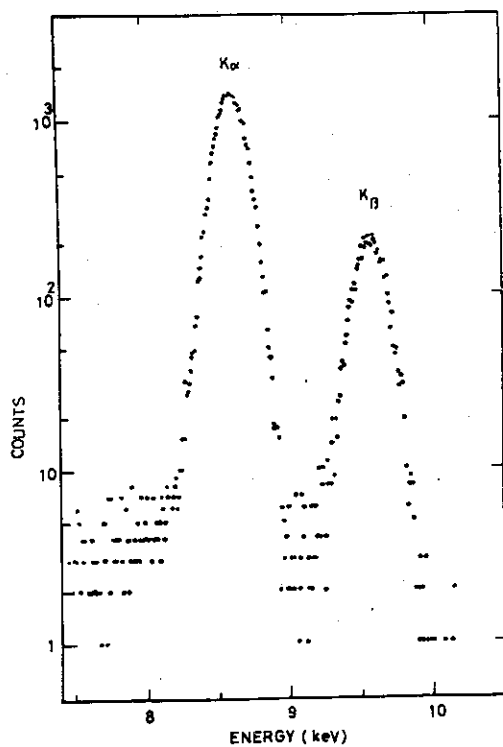
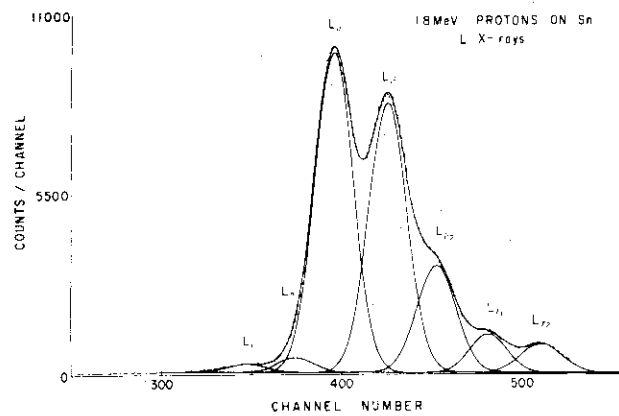


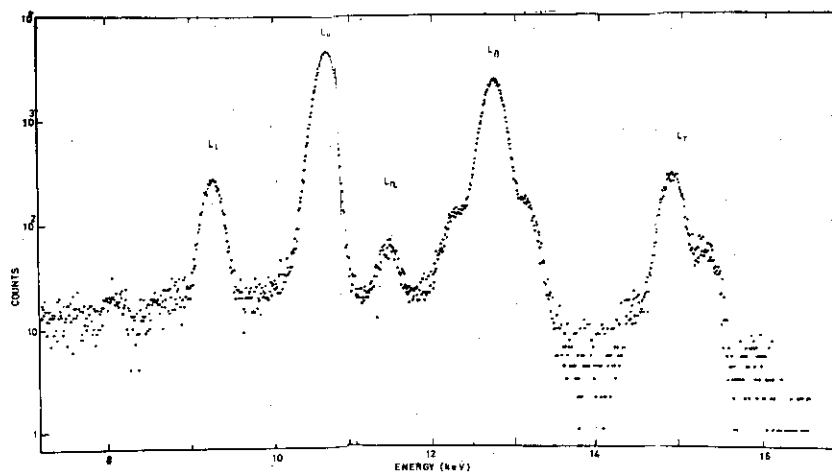
Fig. 2 Detection efficiency curve of the Si(Li) detector measured with ^{57}Co and ^{241}Am standard sources.



(a)



(b)



(c)

Fig. 3. Typical energy spectra of (a) Zn-K, (b) Sn-L and (c) Pb-L X-rays. In (b), the smooth curves show peak separations by gaussian distribution with a computer.

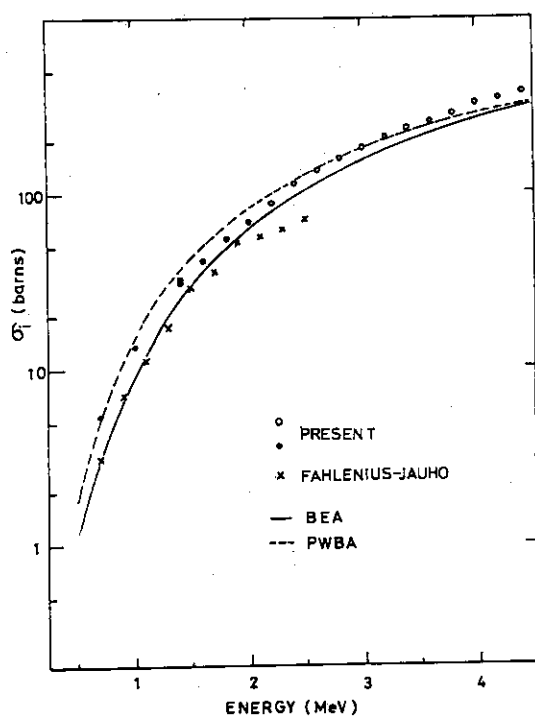


Fig. 4 Excitation curve of Zn-K shell ionization by proton impact. The curves show BEA and PWBA calculations.

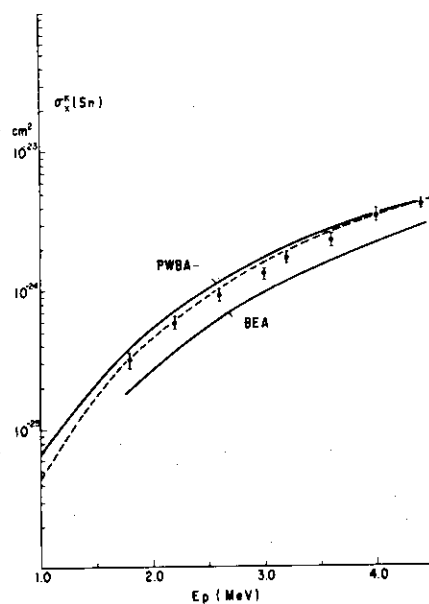


Fig. 5 Excitation curve of Sn-K X-ray production by proton impact. The curves show BEA and PWBA calculations. The dotted curve shows PWBA including the correction by Coulomb deflection.

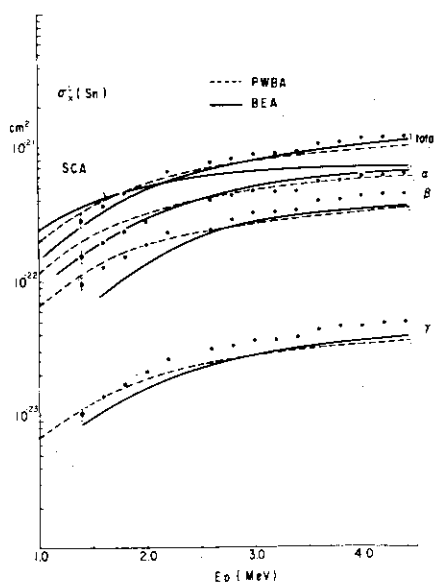


Fig. 6 Total and partial Sn-L X-ray production cross sections by proton impact. The curves show PWBA and BEA calculations and SCA calculation for total cross section.

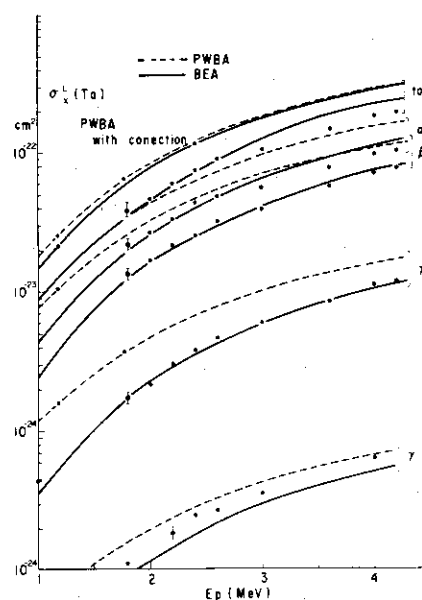


Fig. 7 Total and partial Ta-L X-ray production cross sections by proton impact. The curves show PWBA and BEA calculations.

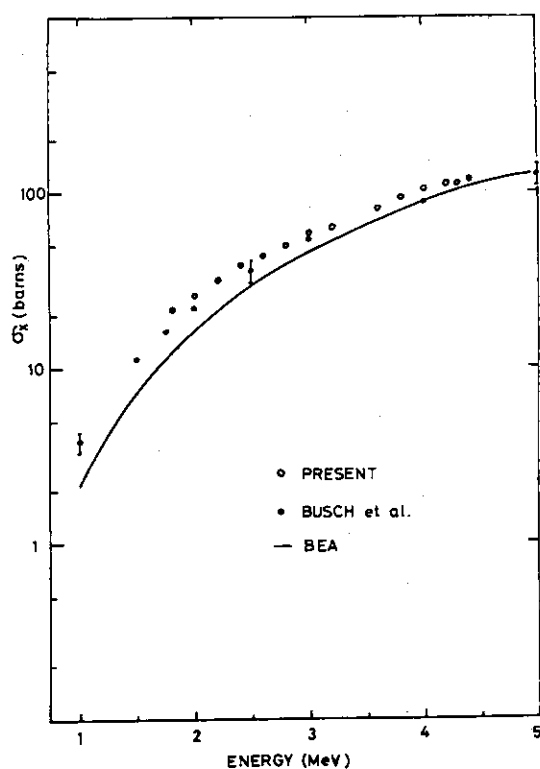


Fig. 8 Total Pb-L X-ray production cross section by proton impact. The solid curve shows the BEA calculation.

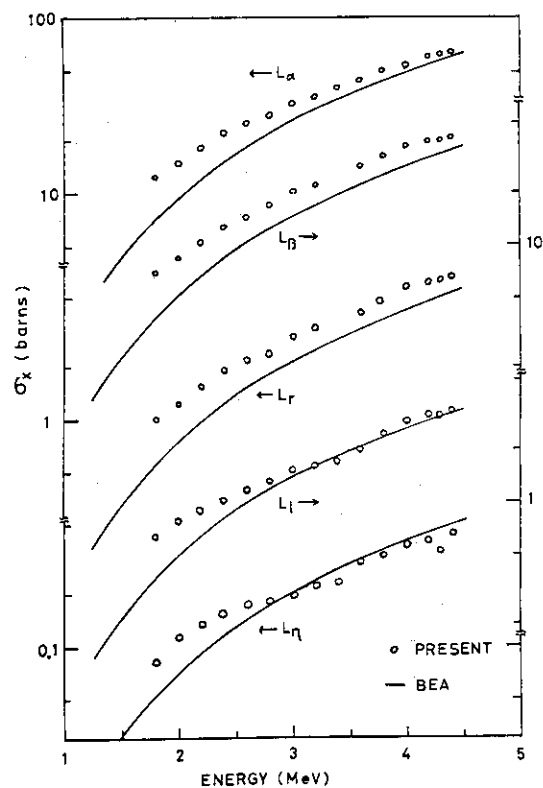


Fig. 9 Partial Pb-L X-ray production cross section by proton impact. The curves show BEA calculation.

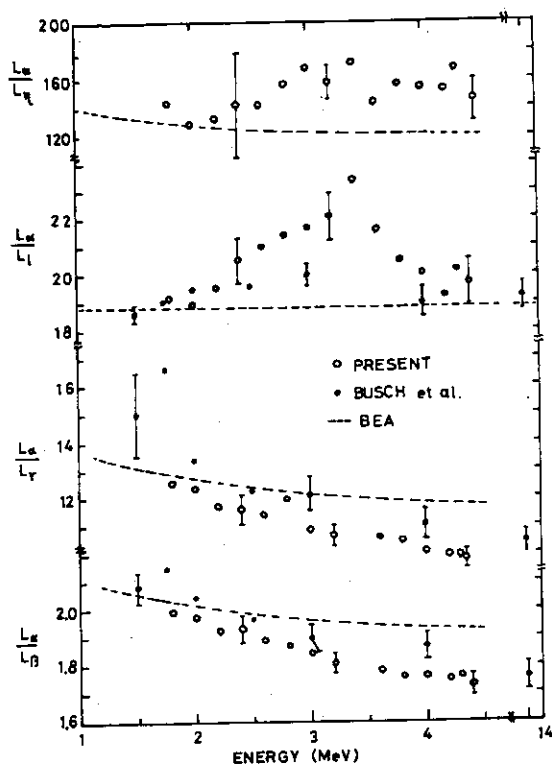


Fig. 10 Ratios of L_β , L_γ , L_δ and L_ϵ groups to L_α group of Pb by proton impact.

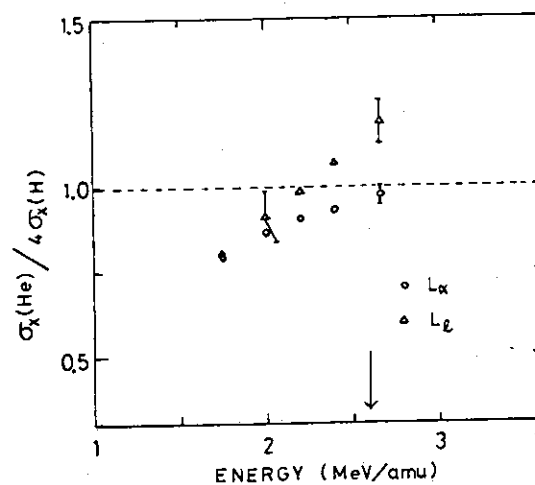


Fig. 11 Ratio of X-ray production of Pb-L groups in proton and helium-3 impact. The arrow shows the expected cross-over point for the L_3 -shell.

第2部：大型重イオン静電加速器，重イオン源，荷電
変換，ビーム利用技術

Part II : Large Heavy-Ion Electrostatic Accelerator, Heavy
Ion Source, Charge Exchange Process and Technique
on Beam Utilization.

1. 大型重イオン静電加速器

1.1 大型重イオン・タンデム・バンデグラーフ加速器

日本原子力研究所 田 中 茂 也
(茨城県那珂郡東海村)

Large Heavy-Ion Tandem Van de Graaff Accelerators

Shigeya TANAKA
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki)

Design parameters, special features, performances, etc. of three large tandem Van de Graaff accelerators, i.e. HVE 20 MV Tandem Van de Graaff, NEC 20UD Pelletron and Daresbury 20/30 MV Tandem Accelerator are compared to each other from the viewpoint of heavy-ion acceleration. The comparisons are made on the following items; (1) whole size, (2) column, (3) acceleration tube, (4) charging system, (5) high voltage terminal, (6) ion optics, (7) vacuum system, (8) seismic protection and (9) performances.

1. ま え が き

タンデム型バンデグラーフ加速器は(1)イオン・ビームのエネルギーを容易に変え得る, (2)ビームの素性がよい, すなわち beam emittance が小さい, flat な DC ビームであること, (3)エネルギーのふらつきが小さい, などの秀れた特徴を持っている。しかし, 加速管に直接大きな電場をかけるため, そして stripper を使用するため, ビームの電流強度は他の高周波を用いる加速器に比べてやや劣るようである。加速エネルギーに関しては, 加速器の大型化によって高圧端子電圧をあげ, 可成りの高エネルギーが得られるようになった。重イオン加速では, stripper への入射エネルギーを高くするほど, 荷電数の大きな重イオンに変換することができるから, 端子電圧に比例した量以上のエネルギーを持った重イオン加速が可能となる。さらに, タンデム加速器による加速では, 加速の条件に面倒な制約がないために, いかなる重イオンでも加速できる。これらの2つの長所によって, 最近計画中の大型タンデム(端子電圧 20~30 MV)にみられるように, 可成り重い重イオンに対して, クーロン障壁以上のエネルギーが得られるようになるはずである。

タンデム加速器によって得られるエネルギーについては, この話の最後にふれるつもりである。以下では大型タンデム加速器として, 米国HVE社の20MVタンデム, NEC社の20UDペレトロ⁺ンおよび英国Daresbury研究所で計画中の20/30MVタンデムについて, 設計値, 性能などの比較を行なうことにする。

* High Voltage Engineering Corporation, Burlington, Massachusetts 01803 U.S.A.

+ National Electrostatics Corporation, Graber Road, Middleton, Wisconsin 53562 U.S.A.

2 機種各部の比較

2.1 大きさなどの比較

Fig. 1, 2, 3はそれぞれHVE 20MV タンデム, 20UD ベレトロンおよび Daresbury タンデムの外観である。三者の中で大きな違いは HVE のものが横型であるのに対して、他のものは縦型であることである。Fig. 1は実はHVEの16MV タンデムの図であるが、20MVのものも、このような形をしている。Daresbury のタンデム計画でははじめ中間電極なしで端子電圧を20MVまであげ、後に中間電極を付けて30MVまであげる予定である。

Table 1に示すように、HVE, NECのもののいずれもタンクの長さは約30m、Daresbury タンデムは端子電圧に比例して、長くなり約45mである。HVEのものは葉巻型であるのに対し、NECのものは円筒状であるため、タンクの最大内径がNECのものの方がやや小さいにもかかわらず、体積はNECのものの方がHVEのものより大きい。

2.2 コラムの比較

Table 2に三者のコラムの比較を示す。HVEのものは横型であるため全体の構造を保持するために両側から加圧される。骨組みはトラス構造になっている。セクションの数は、加速管のセクションの数と同じく、5個で、それらは dead section (電場勾配ゼロのところ)をはさんで接続される。20UDベレトロンのコラムは、加速管もそうであるが、非常に短いユニットの積重ね、いわゆるモジュラー構造をなしている。コラムのユニットの数は20個、従って1個当り1MVの電圧がかかることになる。材質は、加速管もそうであるが、アルミナ・セラミックとチタン板とをメタル・ボンドで圧着したものである。ベレトロンの場合にはコラムおよび加速管にかかる電圧の分割に3"φの corona tube を用いる。高圧端子の電圧を大巾に変えたいときには、corona tube 内のガス圧を変えることによってコロナ電流を制御できるようになっている。Daresbury タンデムのコラム・ポストは borosilicate glass とステンレス鋼板から成っている。種々のガラスを用いた耐圧テストの結果、高純度の stress-free な borosilicate glass が最もよいと報告されている。

Fig. 4はHVE タンデムのコラムの写真である。Fig. 5はベレトロンのコラム板と支柱を示す。加速管はコラム板の中心の孔を貫くようになっている。1個のコラム板は写真にみるように間にスペースがあって、ここに decoupling のための diaphragm の加熱用、イオン・ポンプ用の電源などが設置される。

2.3 加速管の比較

Table 3に加速管の比較を示す。HVE 20MVのものと20UDのものとはいくつかの大きな違いがある。まず、20UDのものがモジュラー構造になっているため1ユニットが約15cmと非常に短いことがあげられる。つぎに管の外径に両者間で3倍以上の違いがある。これらの違いは両者間の electron loading 対策の違いに大いに関係がある。electron loading というのは加速管の中でおこる一種の電子なだれである。主に加速管の電極からの二次電子が次々と増巾されて行き、加速管の電圧上昇をさまたげ、ひいては絶縁破壊をおこす可能性を持っている。これを防ぐには電子の走る path を短くする方法が取られる。

HVEの加速管ではこのために inclined field を採用している。従って、電極の aperture は表にみるように $12.7\text{ cm} \times 2.86\text{ cm}$ の細長い矩形になっている。ベレトロンの場合には加速管のユニッ

ト間に decoupling section を設けている。これは $1\text{''}\phi$ の aperture を持った diaphragm から成っている。すでにコラムの比較のところでも述べたように、この加速管には有機物が使用されていないので、電極に電流を流すことによって適当な温度まで bake することができるようになっている。

Daresbury では現在加速管を開発中で、electron loading 対策として biased aperture system を持った有機物を用いない方式のものを採用するようである。

Fig. 6 に HVE の加速管の写真を示す。電極は傾きを持っていて、aperture が細長いこと、管のまわりに 8 条の spark gap がついていることなどがみられる。

2.4 荷電装置

HVE 20MV タンデムの荷電装置は他の FN や MP タンデムと同様に布引きゴムベルトによるものである。ここでは詳細な説明を省略する。荷電容量は 1 mA である。

Fig. 7 はベレトロンのチェーンおよびブリーの写真を示す。これは従来のベルト方式の欠点を除去するために NEC の Herb によって開発されたものである。ベルトではそのわずかの不均一さによって運搬される荷電量にふらつきを生じ、ひいては端子電圧のふらつきを生じる。高電圧端子などの電圧上昇に有害な dust の発生源になる。ベルトに電荷を着けたり取ったりするのにコロナ放電を用いているので、絶縁ガスを分解して有害物質を作り出す。特にこれは SF_6 ガスを用いたときによろしくない。そこで、ベレترونでは Fig. 8 のようにテフロンで絶縁された直径 1.2 インチの金属ペレット・チェーンを使用する。

荷電方式は荷電・集電とも静電誘導方式を用いることによって、運搬される荷電量のふらつきを少なくするとともに、ガス分解による有害物質の発生を防いでいる。Fig. 9 にこの方式の原理図を示す。(これは実は Daresbury タンデムの方式であるが、ベレترونの場合にもこれとほとんど同様である。) ペレット・チェーンによって運ばれる upcharge と downcharge を利用し、Power supply と抵抗 R_1 によって、図の左側に示すような電位 V_0, V_1, V_2 を作り出す。 V_2 の相対するペレット上に誘起された正の電気はペレットに乗って高圧端子に搬入される。そして Pulley wheel 2 から R_2 を通って高圧端子に蓄えられる。一方、idler wheel と R_2 によって電位 V_3, V_4, V_5 が作られ、 V_4 と V_5 の電位差によって負の電気がペレット上に誘起され、ペレットに乗っておりてくる。power supply に対しては電流負荷がないから小型のものでよいという利点がある。

荷電容量はチェーン 1 本当たり約 $100\mu\text{A}$ である。従って 1 本では荷電量が足りないから、20UD では 4 本使用することになっている。また端子内などの発電機の駆動にペレット・チェーンを使うことは強度的に無理があるので、別に直径 10 cm のルーサイトの絶縁シャフトを設けている。

荷電容量の不足をカバーするために、Daresbury タンデムでは Fig. 10 のような laddertron といわれるチェーンを開発している。2 本のペレット・チェーンを金属板で連結することによって、電荷の乗る表面積を大きくする。この電荷容量は約 $550\mu\text{A}$ である。Daresbury の計画では、これを高圧端子までと中間電極まで、それぞれ 1 本ずつ、合計 2 本使用する予定である。

2.5 高圧端子部の比較

Table 4 に高圧端子部の比較を示す。ここで、ドームの直径を Table 2 のコラム・リングの直径と比較してみると、HVE のものは同じ値であるが、20UD と Daresbury のものはコラム・リングよりドームの直径の方が大きい。この違いは高圧端子部近くの電場に関係がある。前者より後者の

場合の方が電場がより一様になるはずである。gas-stripper canalの太さについても、HVEのものと20UDとでは2倍以上の違いがある。この理由については2.6 イオン光学のところで述べる。Charge selectionの方法も違っている。HVEのものでは表に示したものの他に、静電型のdeflectorによるcharge selectorもある。20UDのcharge selectionの方法については、2.6 イオン光学のところでふれることにする。

HVEの3個のsector magnetによるcharge selectorをFig.11に示す。分解能は8~10程度である。Fig.12はDaresburyタンデムのcharge selectorを示す。イオン・ビームはlow energy tube側とhigh energy tube側とで同一軸上を通っていない。このようにすると、selector magnetの重量と電力が通常用いられるHVEの型のものに比べて約半分ですむという利点があるが、磁場をかけないとビームを取り出すことができないといった欠点がある。

2.6 イオン光学

イオン源と入射系の比較については、時間の都合で説明を省略する。ここでは加速管および高圧端子内でのイオン光学に話を限ることにする。2.3 加速管の比較のところで述べたように、HVEタンデムではinclined field tubeを用いているのが大きな特徴である。Fig.13は16MVタンデムに対するray traceを示す。object pointのところで中心軸より上の2本の線がx-成分（水平成分）、軸より下の2本の線がy-成分（垂直成分）に対応している。それぞれの2本はイオン・ビームの別の成分に対応している。若しinclined fieldがなければstripperのところで約3mmのビームの太さが、inclined fieldをかけた場合にはstripper canal (6mmφ) いっぱい広がる様子がみられる。

20UDベレトロンではFig.14に示すようにlow energy tubeの中央にtriplet lensを置いてstripperのところで径2mm程度にフォーカスさせている。（この図はray traceでなく、beam envelopeであることに注意）。この図は高圧端子内に2組のtripletをおいた場合の例であるが、NECではcharge selectionのために3組のレンズを置くことを推奨している。これをFig.15に示す。図は端子電圧20MVでウラン・イオンを加速した場合を示している。（stripperからのbeam divergenceはイオンのcharge stateのみならず、イオンの質量にも依存するので、high energy tube側でのray traceの計算にはイオンの種類も考慮する必要がある。）Stripperからのemittance 1mm×9.4mrのビームに対して、その内のcharge state 13のものがスリットSw1, Sx1, Sw2, Sx2 およびhigh energy tubeをうまく通過するように3組のtripletを調節した場合に、charge state 6および20のイオンがスリットSw1のところで拡がってしまう様子がbeam envelopeで示されている。このようにして、charge state 13以外のイオンはその一部がスリットSw1を通過することになるが、スリットSw2と加速管の入口のところで同様な減少を繰返すことによってcharge selectionが達成される。こうしてselectされた後のビームの電流値がTable 5に示されている。ここで5列目がhigh energy tubeに入るいろいろなcharge stateに対する電流値である。NECでははじめ静電型のdeflectorによるcharge selectorを計画していたが、最近上記の方法を推薦している。

Daresburyタンデムではhigh energy tube中にも最大2個所にstripperを置いた場合のイオン光学の計算をいろいろ行なっている。この場合にはhigh energy tubeの中途と出口のところにdoublet lensを用いることによってイオン・ビームの通過が可能となるようである。しかし、

Daresbury の報告では、第2、第3の stripper を出たあとの charge selection にはふれていない。

2.7. 真空系の比較

重イオン加速には軽いイオンの加速の場合より高真空が要求されることはいうまでもない。特に強い電場のかかる加速管の中では重イオンのイオン光学的見地からのみならず、loading の見地からも高真空が望まれる。

Fig. 16 に HVE 20MV タンデムと 20UD ベレトロンの真空系を示す。HVE のものは主なるポンプとしては、10 インチの polyphenyl ether の拡散ポンプ（コールド・トラップ付）を用いているのに対し、NEC のものはゲッター・イオン・ポンプを採用している。そして、イオン源のところにはターボ・モレキュラー・ポンプを用いている。その他、いずれも高電圧端子部と加速管のところにイオン・ポンプを用いている。到達真空度は図に記入してある通りである。Daresbury タンデムの真空系の説明は省略する。

2.8 地震対策

タンデム加速器の各部の比較すべき対象としては、イオン源、絶縁ガス取扱装置、ビーム分析電磁石、ビーム・パルス化装置などが残っているが、時間の都合で省略することにする。最後に、わが国では無視出来ないものとして、加速器の耐震性の問題に少しふれることにする。

われわれは HVE と NEC に、static strength としては 1g に耐え、dynamical に地震の共鳴から避けられるような natural frequency を持っているかどうかを質問した。HVE の機械は critical な点にあるらしく、まだ確定的な結論に至っていない。20UD ベレトロンでは、0.2g の地震に対して、コラムの受ける最大加速度が 1g になり得るという計算結果になった。ベレトロンのコラムはこれには耐えられないから、いちはやく予震を感知して、 $\leq 1/2$ sec でコラムを支えるための棒を打ち出すという方式を採ることになった。Fig. 17 は支持棒のデザインを示している。これを上、下それぞれのコラムの中央部と高電圧端子のところ、合計 3 個所に四方からとりつけることになっている。

3. 性能の比較

Table 6 は HVE 20MV タンデムと 20UD ベレトロンの性能の保証値を示す。端子電圧、電圧の安定度、陽子ビームのエネルギー範囲と強度については両者間に大差はない。NEC では重イオンのビーム強度の保証値をまだ公表していないので、表には Camberra の 14UD に対する塩素イオンのビーム強度を挙げておいた。Camberra の 14UD と 20UD とでは高電圧端子内のイオン光学が違うので、これらの値はあまり参考にならないかも知れない。

このクラスのタンデム加速器による重イオン・ビームの加速エネルギーを Fig. 18 に示す。Coulomb barrier との比較からどのあたりの重い重イオンまで核反応を起し得るかがわかる。MP タンデムで Cl + Cl あたりまで、20MV 級のタンデムで Br + Br あたりまで、これを double foil stripper にして Ag + Ag あたりまで、30MV タンデムに double foil stripper をつけて Ta + Ta あたりまでの核反応を起し得ることが期待される。

4. おわりに

HVE 20MV タンデムと NEC の 20UD ベレトロンとの機種の優劣をつけることは非常にむづかしい。HVE は永年バン・デ・グラーフを製作し続けて来た老舗であり、重イオン加速の経験を持っている。しかし MP 型タンデムの評判はあまりよくないようである。20MV タンデムのように大型のものを横型で作ることに急惧の念を捨てきれないところがある。

NEC の方は新しく誕生した会社なので、まだ重イオン加速の経験がないところが、何んといっても弱味である。しかし、ベレトロンでは上に述べたような、いままでのタンデム加速器になかったいくつかの特徴があり、加速器製作に意欲的なところがうかがえる。Cambera, Weisman Institute, 筑波大学などのベレトロンの performance をはやく知りたいところである。

この記事をもとめるに当り、次の資料を用いた。

- (1) High Voltage Engineering Corporation, タンデム加速器資料
- (2) Lewis F.A.: Private Communication
- (3) Chmara F.: Private Communication
- (4) National Electronics Corporation, ベレトロン資料
- (5) Herb R.G.: Private Communication
- (6) Ferry J.A.: Private Communication
- (7) Mourad W.G.: Private Communication
- (8) 小林千明・塚田甲子男: ベレトロン加速器第2版, Private Communication
- (9) 塚田甲子男・丸山倫夫・小林千明・神田将: 20MV タンデム・バンデグラーフと 20UD 型ベレトロン加速器の比較, Private Communication
- (10) National Nuclear Structure Facility (Daresbury) 20/30MV タンデム加速器資料

TABLE 1. Comparison Between Three Tandem Van de Graaff Accelerators

	HVE 20 MV Tandem	20 UD Pelletron	Daresbury Tandem
type	horizontal	vertical	vertical
tank length (m)	30.45	32.28	45.22
max. inner diameter (m)	7.61	7.31	8.14
volume (m ³)	0.94×10 ³	1.43×10 ³	(dia. of intermediate shield: 4.48) ...
pressure of SF ₆ gas (kg/cm ²)	8.45 (max.)	8.80 (max.)	7.45 (normally)
weight of tank (metric ton)	245	236	...
total weight (metric ton)	372	323	...

TABLE 2. Comparison of Columns

	HVE 20 MV Tandem	20 UD Pelletron	Daresbury Tandem
length of one column (m)	12.2	13.1	~18.0
length of one section (m)	2.44	0.457	2.64-5.12
number of sections	5	20	4
outer dia. of column ring (m)	1.93	2.29	2.3
pitch between column rings (cm)	7.62	2.54	7.2
materials of insulating post	glass and stainless steel (truss construction)	alumina ceramic and Ti-plate with metallic bond	glass and stainless steel with epoxy resin
voltage divider	resistor breeder of metal oxide	corona tube (3 inch ϕ) (gas pressure: variable)	resistor breeder

TABLE 3. Comparison of Accelerating Tubes

	HVE 20 MV Tandem	20 UD Pelletron	Daresbury Tandem
length of one section (m)	1.83	0.152	0.82
pitch of insulator (cm)	2.54	1.27	...
outer diameter (cm)	36.8	11.43	...
aperture	12.7 cm $\times$ 2.86 cm	6.68 cm ϕ	...
special feature	inclined field tube	bakeable (organic-free) with decoupling section of 1 inch ϕ aperture	under development of organic free tube biased aperture system at dead section
max. field strength (MV/m)	>2.20	>2.46	...

TABLE 4. Comparison of High-Voltage Terminals

	HVE 20 MV tandem	20 UD Pelletron	Daresbury Tandem
length of dome	3.05 m	3.05 m	4.50 m
diameter of dome	1.93 m	2.44 m	3.00 m
generator	6 kW, belt-drive	1.5 kW, insulator shaft drive	insulator shaft drive
gas-stripper canal	6.35 mm ϕ $\times$ 860 mm	3 mm ϕ $\times$ 750 mm	...
foil stripper	9.5 mm ϕ , 120 foils	50 or 115 foils	...
charge selection	three sector magnets ^{a)} and a magnetic Q- doublet	three electrostatic Q- triplets and slits	...

a) Option

TABLE 5. TRANSMISSION for $1\mu\text{A}$ U-BEAM in the 20 UD TERMINAL

荷電数	ストリッパからの 電流 (p-nA)	3-レンズ系に入る 電流* (p-nA)	レンズ系を通る 相対的な量	レンズ系を通る 電流 (p-nA)	高エネルギー管中で 衝突する電流 (p-nA)
8	24	14.4	.014	.202	0
9	45	24	.02	.54	0
10	79	47.4	.025	1.185	0
11	117	70.2	.033	2.317	0
12	141	84.6	.069	5.837	0
13	152	91.2	1	91.2	0
14	141	84.6	.026	2.2	0
15	117	70.2	.0058	.407	0
16	79	47.4	.002	.095	0
17	45	27	.001	.027	6.3×10^{-5}
18	24	14.4	.00056	.008	5.5×10^{-5}

* ストリッパからの電流の60%を仮定。

TABLE 6. Performance Specifications

	HVE 20 MV Tandem	20 UD Pelletron
Guaranteed		
Terminal voltage	0 - 20 MV	6 - 20 MV
Total voltage stability	± 2 kV	± 2 kV
Proton energy range	10 - 40 MeV	12 - 40 MeV
Analyzed beam intensity (proton)	$3\mu\text{A}$ at 10 MeV	$3\mu\text{A}$ at 12 MeV
	$6\mu\text{A}$ at 24 MeV	$5\mu\text{A}$ at 26 MeV
	$3\mu\text{A}$ at 40 MeV	$3\mu\text{A}$ at 40 MeV
(chlorine ion)	0.25 μA of the most probable charge state at 20 MV terminal voltage	100 nA at 6 MV* 50 nA at 10.5 MV*
Design values		
Terminal gradient	15 MV/m	...
Column and tube gradient	22 MV/m	...
Proton beam intensity	...	$20\mu\text{A}$: 12-40 MeV

* Guaranteed values for the 14 UD Pelletron at Australian Nat. Univ.

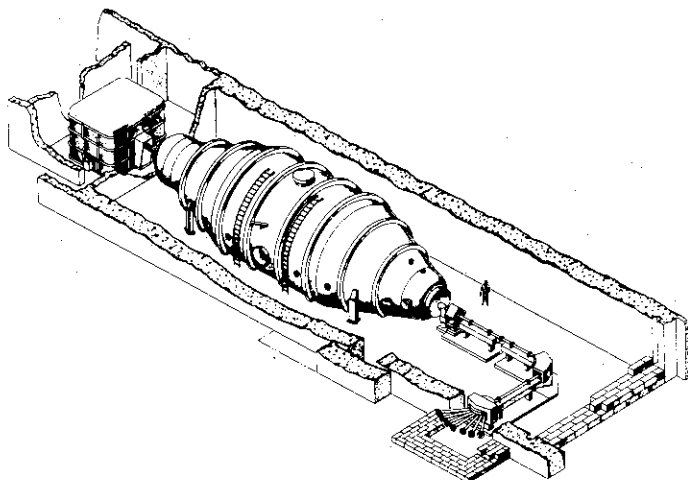


Fig. 1 General view of HVE 16 MV tandem Van de Graaff.

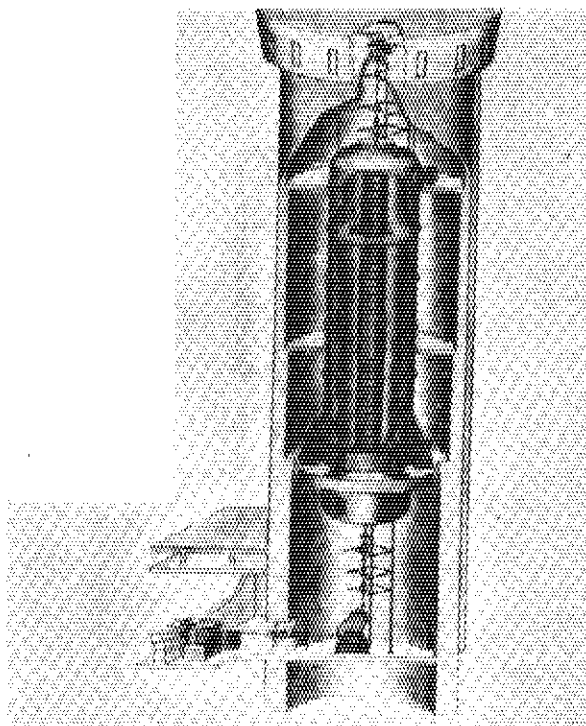


Fig. 2 General view of NEC 20 UD Pelletron accelerator.

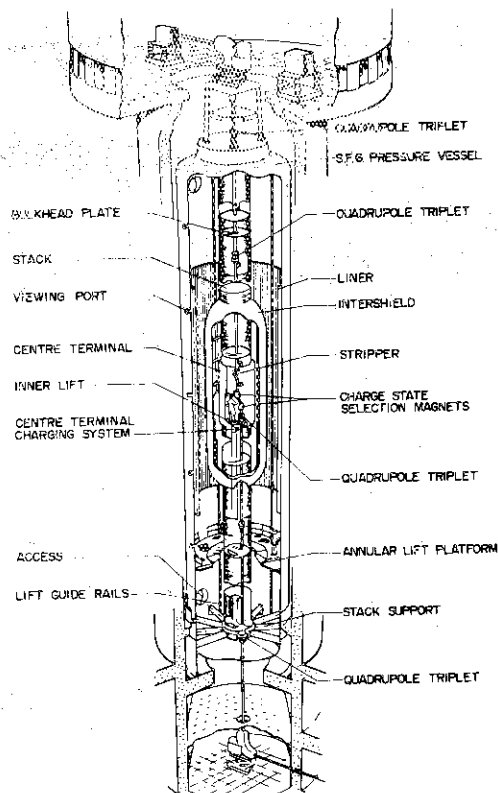


Fig. 3 General view of Darebury 20/30 MV tandem accelerator.

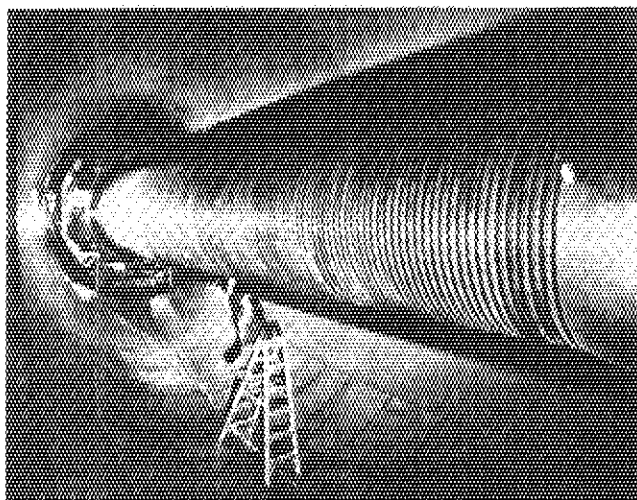


Fig. 4 Low energy column of HVE 16 MV tandem Van de Graaff.

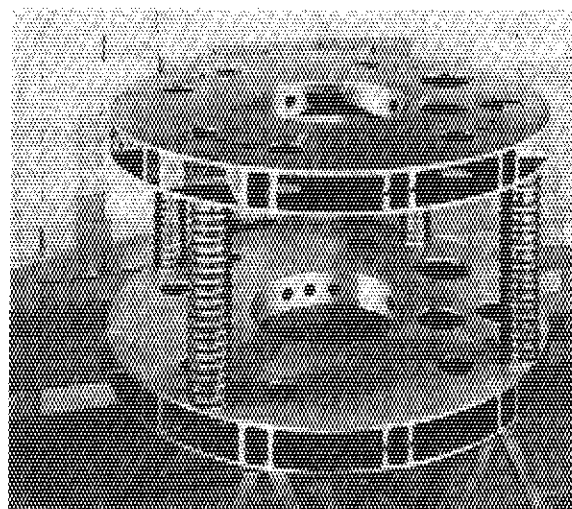


Fig. 5 Column plates and posts of Pelletron accelerator.

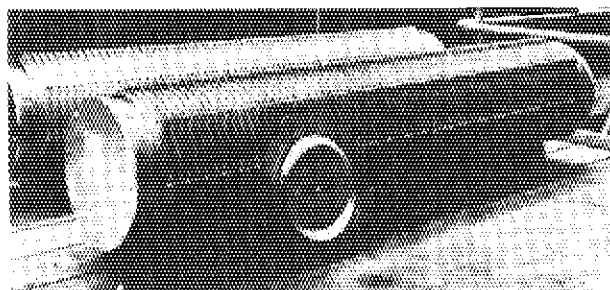


Fig. 6 Inclined-field accelerator tubes.



Fig. 7 Pelletron chain and pulley.

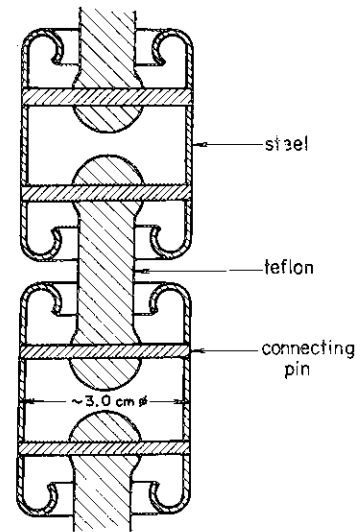


Fig. 8 Cross section of Pelletron chain.

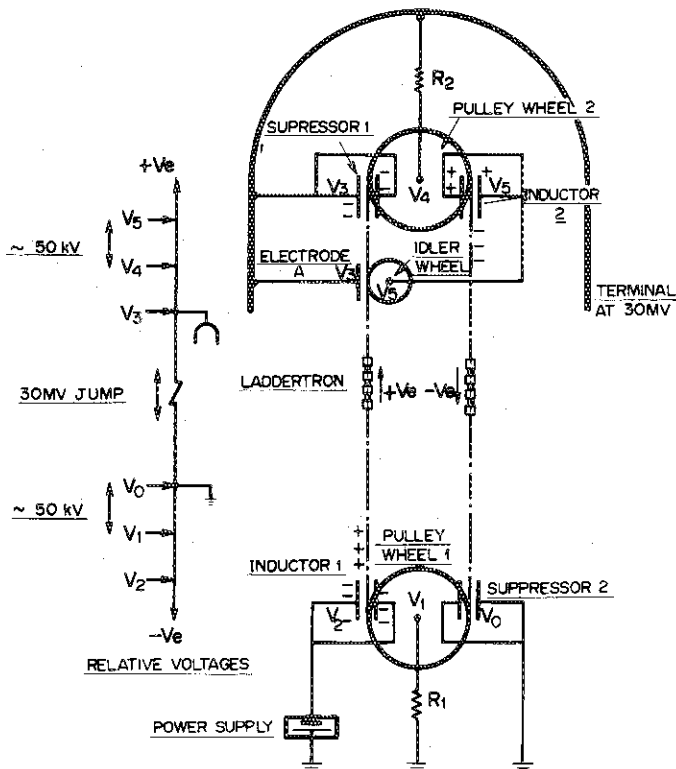


Fig. 9 Schematic diagram of charging system showing the relative electrode voltages.

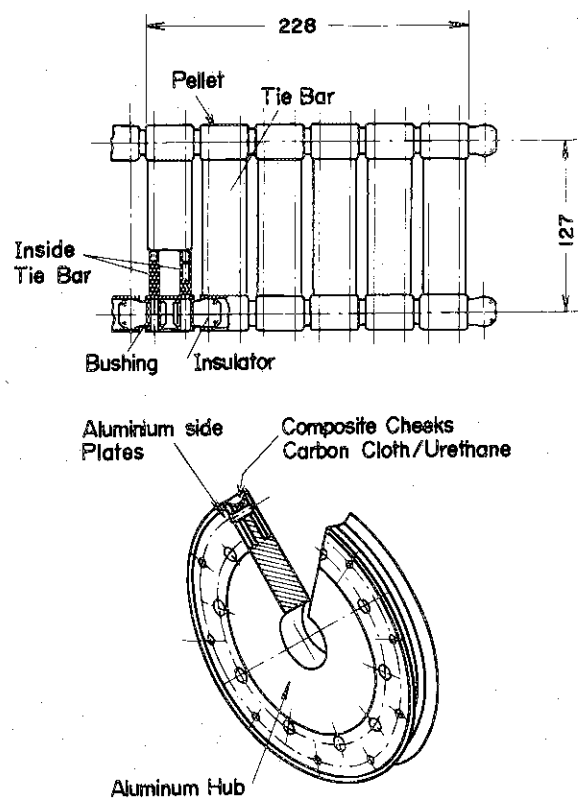


Fig.10 Arrangements of Laddertron chain and pulley wheel.

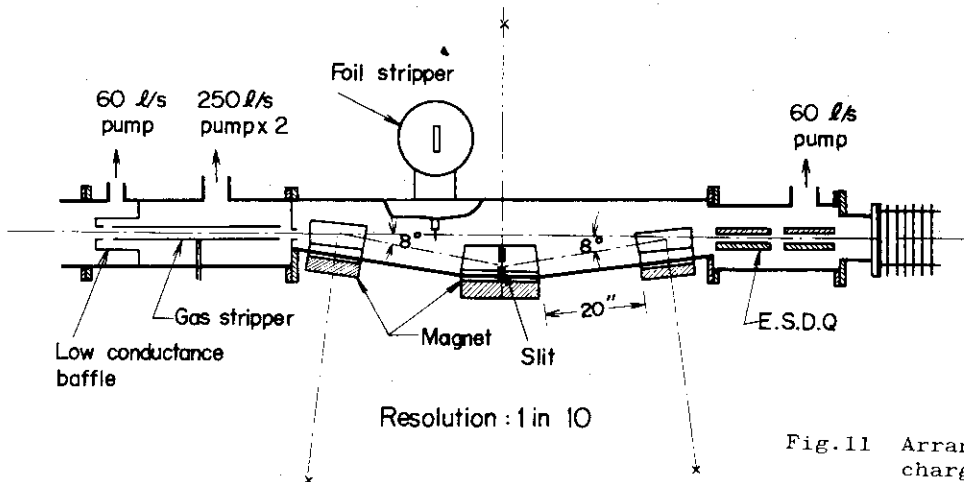


Fig. 11 Arrangement of HVE magnetic charge-state selector.

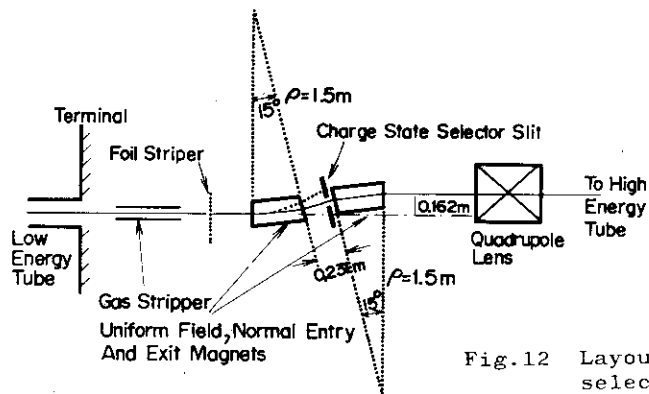


Fig. 12 Layout of Daresbury charge-state selector.

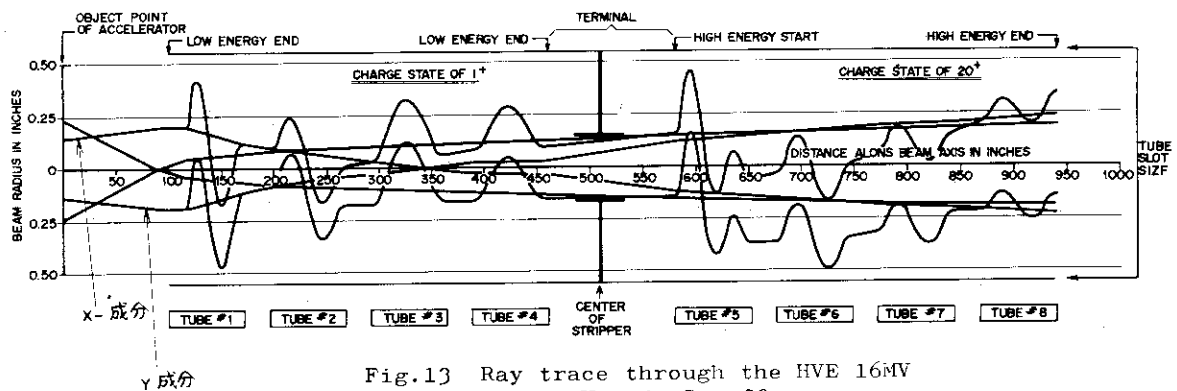
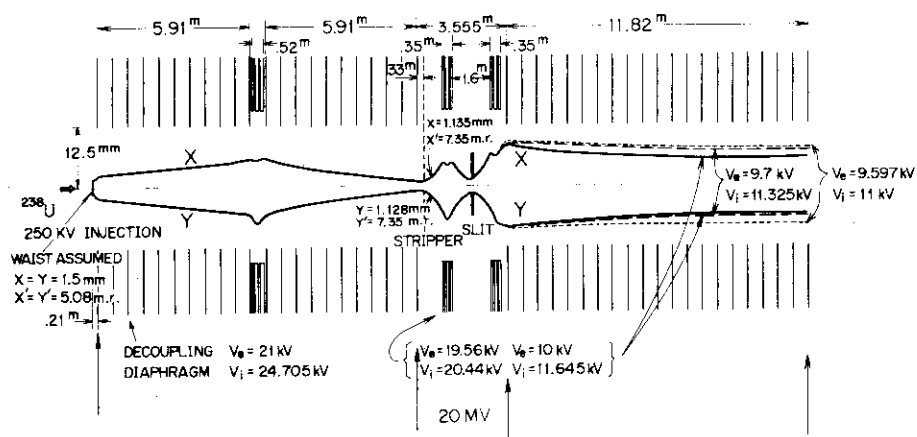
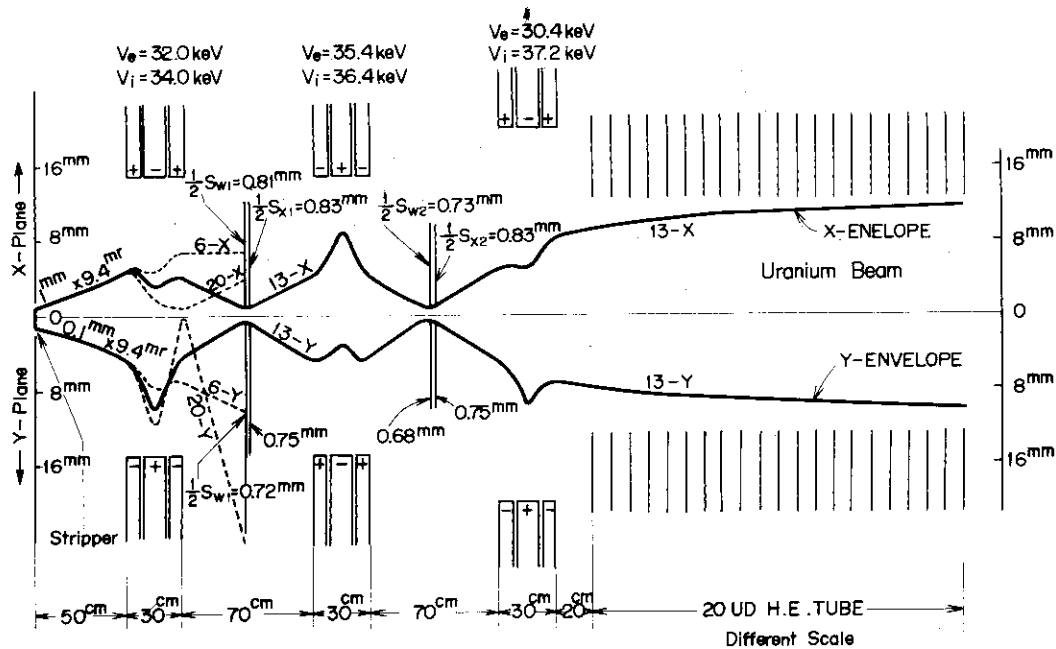


Fig. 13 Ray trace through the HVE 16MV tandem Van de Graaff.

Fig. 14 ^{238}U beam envelope in a low energy tube, a two-lens system and a high energy tube---20 UD.



20UD : Terminal Potential : 20 MeV
Strripper 10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Carbon foil

Fig.15 ^{238}U beam envelopes in a three-lens system and high energy tube---20 UD.

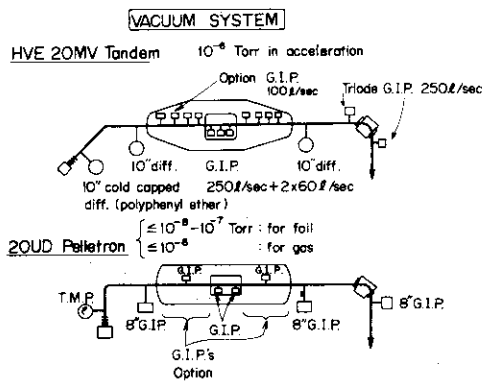


Fig.16 Vacuum systems of HVE 20 MV tandem and 20 UD Pelletron.

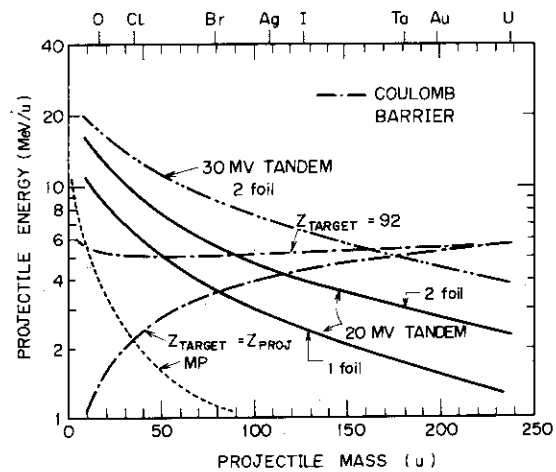


Fig.18 Energies of heavy ions accelerated by large tandem accelerators.

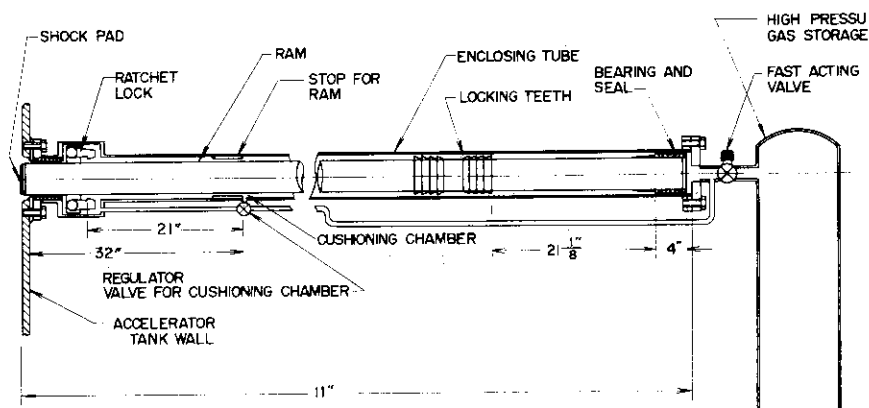


Fig.17 NEC automatic column support.

1.2 九大タンデム加速器の規模と特徴について

九州大学理学部 磯 矢 彰

(福岡市東区箱崎)

Design and New Features of a Three-Stage Tandem at Kyushu University

Akira ISOYA

(Faculty of Science, Kyushu University,
Fukuoka)

A scope of the project and new design features of the 10 MV tandem under construction are presented. In the three-stage operation, combining an existing single-stage Van de Graaff, it will produce a hydrogen ion beam of 25 MeV. The design is also made with a stress on the acceleration of very heavy ions.

目下、九州大学において三段タンデム方式の静電加速器の建設が行われている。完成は昭和50年の予定である。この計画は初段加速器として九大に現存する縦型の6 MV静電加速器を使用し、これに隣接して横型のタンデム加速器を新設して三段タンデムを構成するものである。タンデム加速器のターミナル電圧は10 MVであり、水素イオンに対して最高約25 MeVのビームが予定される。また各種の重イオンの加速を便利に行うために、1 MV程度の小型加速器を用意してタンデムへの負イオンビームの入射を行う。この場合には ^{12}C 、 ^{16}O イオンに対して60~70 MeVまで、もっと重いイオンに対しては100 MeV程度までのビームが得られるであろう。

九大ではこの計画を始める前に、長期にわたって既存の静電加速器について性能を向上させるための研究を行い、各種の新技术を開発して来た。今回のタンデム加速器計画は、この成果と多年の静電加速器に関する経験を基礎にして実施されるものである。またこの加速器には重イオン加速の見地から各種の条件を考慮して最新の設計がとり入れられている。以下この加速器の設計方針、新しい特徴、研究を必要とする問題などについて解説を行う。

1. 加速器タンクの大きさとSF₆ガス絶縁

タンデムタンクの大きさはSuper-FNと同程度(内径3.7 m, 長さ14.5 m)のもので、絶縁ガスには10気圧(ゲージ)のSF₆ガスを使用する。10 MVにおける高電圧ターミナル電極表面のgross fieldの強さは、電極の直径にほとんど無関係に約160 kV/cmとなる。この電場の強さは既存の大型タンデムによって到達されたことのある略最大値に相当するもので、安定にこの電圧を保持することは必ずしも容易でないようであるが、今回の計画では下記の(3)(4)(5)(6)項などの効果によってこれを実現出来ると考えている。

2. Insulation Columnの構造

水平保持のColumnの製作は極めて特殊な技術であり、本計画において、設計にもっとも慎重を期した箇所である。その構造はFig.2およびFig.3(断面図)に示されている。中央ターミナル部

の両側の各コラム（長さ 5.3 m）は 5 セクションに分割され、各セクションはそれぞれ 4 本の水平メンバーと 1 本の斜めメンバーから組立てられている。これらの水平および斜めメンバーは、ポーセレン円板とチタニウム板を重ね合せてエポキシ接着を行ったもので、曲げによる破壊強度は $\sim 30,000 \text{ kg} \cdot \text{cm}$ である。これは現在の目的に対して充分大きな強度であるといえる。コラムの両端では、円滑ジョイントが用いられるが、各セクション間の仕切板と水平メンバーの結合は剛節によって行われ、全体として Rahmen 構造になっている。このコラムに外部より約 20 ton の水平方向の圧力を加えて、重力のために上部水平メンバーに張力が働くのを打消している。

重力による各コラムメンバーの縦方向の変形は斜めメンバーの長さの微調整によって略完全に除去されている。また地震による横方向の変形に対しては、1 g までの慣性力による変形に耐えられるように設計されている。これを実際の地震動にあてはめてみると、瞬間最大加速度 $\sim 0.3 \text{ g}$ （マグニチュード ~ 5 ）までの地震に耐えることを意味している。

3. Column 電極の形と配置

通常、静電加速器において、電極間の電場がもっとも強くなる箇所は高電圧ターミナルに隣接するコラムの最高電位部の hoop 表面である。この部分の stress multiplication factor の大きさは、1.7 $\sim$ 2.0 にもなり、実際タンク壁との間のスパークはこの附近にもっとも頻繁に発生する。今回のタンデムの計画においては、center terminal を column よりも太くして、その両端の隆起部のスクリーン効果によって column の動径方向の電場を弱めるように計った。ターミナル両端の曲線の形、立ち上りの高さ、hoop 断面の形状について最適化を行った結果、上述の stress multiplication factor の値を 1.27 まで低下させることが出来た。この際 center terminal の立ち上りの高さは約 15 cm で、そのスクリーン効果は column の約 50 cm の範囲に及んでいる。Hoop は楕円形断面のものを使用する。

center terminal の shell 電極は中央部で二等分し、各々の半分は両方へ滑べらしてターミナル内部を完全に開放することが出来るように設計された。

4. Pellet Chain

本計画のタンデムには、入射加速器と同じく電荷の搬送体として pellet chain が使用される。pellet chain がベルトに比べて優れていることについてはもはや触れる必要はないと思う。九大では独自の設計による pellet chain を、現存のヴァンドグラフにおいて過去四ケ年にわたって使用し、chain 自体の製作法、chain の運転機構などについて改良を重ねて来た。Fig. 4 は最新の設計による pellet chain の構造を示す。

各々の pellet は endless ループに作られたテトロンコードの芯入りポリウレタンロープの上に、ポリウレタンを隙間に注入する方法によって固定されている。この方法により極めて耐久力に富み一様性の良い pellet chain を製作することが出来る。pellet chain の安定したスムーズな運転状態を得るには、芯コードとして出来るだけ伸び率の小さい材料を選ぶこと、また伸び率のゆらぎがループの各部分で出来るだけ小さいものを使用することが大切である。このようなものを製作することは技術的に非常に難しい問題であるので、現在研究室においてその試作研究を行っている。

使用される pellet chain の本数は各側のコラムに 4 本ずつ合計 8 本である（Fig. 3）。1 本の pellet chain の運びうる電流は約 $50 \mu\text{A}$ であるので、全電流容量は約 $400 \mu\text{A}$ である。この内分

割 resistor に流す電流は 10MV において約 $200\mu\text{A}$ である。

5. Liner

現存のヴァンドグラフにおいては、ターミナル電圧の安定化の手段として、タンク内壁にとりつけられた平板状の liner 電極を介して静電誘導による負性フィードバックを行っている。タンデム加速器においても、同じ方式の安定化を行う。今回のものは平板の代りに多数のパイプをすの子状に配列したものをを用いる (Fig.2)。このすの子状の liner はタンクの下部において上方より下降するゴミの catcher としての役割を果たすことが期待されている。すの子の目を抜けてタンクの壁面に達したゴミは、タンクガス循環装置によってタンク壁上数ヶ所に設けられた排出管より SF_6 ガスとともにタンク外へ搬出され、filter によって除去される。

6. Dust Catcher および Conditioning のための装置

九大の静電加速器の経験は、タンク内部におけるダストの存在が超高電圧領域 (高電圧電極表面の電場の強さ $> 150\text{kV/cm}$) においてスパークの最大の原因であることを示している。従って今回のタンデム加速器の設計にあたってタンク内のダストの発生源を極力除去するように努めた。しかし、横型コラムは縦型のものに比べてダストの影響を強く受けるので、積極的なダスト排除手段を考える必要がある。そのようなものとして静電方式の dust collector の設置を計画している。また、発生電圧の増加につれて電極間に蓄積される静電エネルギーは電圧の 2 乗に比例して増加するので、10MV 以上の電圧におけるスパークは極めて破壊力の強いものになる。一般に高電圧装置では最高電圧に到達するために、スパークによって電極表面の conditioning を行う必要があるがタンデムのように大型の装置においては最高電圧においてスパークを生ずることは危険であるので、比較的低い電圧において電極表面に移動可能な電極を接近させ、その表面に局所的に過度の電場を作ってスパークを発生させて、conditioning を各セクションごとに進めることが有効であろう。今回のタンデムはタンク内に移動台車が常置されるので、これを利用して上述の目的の装置が作られる。

また、絶縁 column に沿う電位勾配に対して conditioning を行うために (主として加速管の conditioning), column の各セクションごとに全発生電圧を集中して掛けることの出来る shorting 装置のとりつけを計画している。

7. Dividing Resistor, サーチに対する Guard Ring

Column に沿う電位勾配を一樣に保つために resistor chain を使用するが、これは column に対するものと accelerator tube のものとの 2 系統が装備される (Fig.3)。このように、加速管に対して別個の resistor chain を使用することによって、accelerator tube の電極を従来やられてきたように、各段ごとに column の対応する電極と電氣的に結ぶ必要がなくなったので、accelerator tube の放電による損傷の危険性が大いに軽減されるであろう。

Resistor のユニットは $500\text{M}\Omega$ 、または $1000\text{M}\Omega$ の金属被膜の resistor で Fig.3 に示されているように、サーチに対する保護用の annular リングによってその外周が包まれている。

九大では現用のヴァンドグラフにおいて上述の様式の annular リングを多年使用してきたが、サーチに対する保護作用が極めて確実であるので、今回のタンデムにおいては column の絶縁支柱、

加速管の絶縁リング，などすべての絶縁物に対して同様の guard リングをとりつけることにした（注・ pellet chain も同じ構造をもつ system である）。

8. Accelerator Tube

Accelerator tube は静電加速器の性能を最終的に決めるもっとも決定的な要素であるので，良い性能の加速管を作るために多年研究が行われて来たのにも拘らず，今日なお決定版ともいえるべきものが確立されるには到っていない。しかし最近の NEC の accelerator tube はかなりこの最終目標に近づきつつあるように感ぜられる。九大の今回の計画では NEC でやっているように ceramic と電極との接合をメタルボンドによって行うことにより，ベーキング可能（200℃）で有機物を全く含まない系を作ることが必須であると考えて，目下専門のセラミックメーカーに依頼して試作品作り，各種のテストを行っている。この場合には銀ローを使用するために，insulator-cathode 接合部における field emission の問題がきびしく起ってくる。これを防止するために，電極と ceramic insulator の形状についての工夫が必要になってくる。また九大で計画している加速管の一つの特徴は ring magnet によって electron loading を抑制することにある。この方式は現在ヴァンドグラークで試みて非常に大きな効果をあげている。また電極の材質としては最近チタニウムが超高電場の中での使用に対して顕著な効果を示すことが認められているので，これを使用することにした。

以上のように，有機物を排除した高真空系とチタニウム電極の使用によってスパッタリングにもとづく ion exchange loading を消去し，ring magnet の使用によって electron loading を抑制し，また ceramic リングおよび電極の形状の最適化を計ることによって絶縁物の沿面放電に対する耐力を増すなどの処置を行うことにより，3 MV/m 程度の超高電場の中で安全に使用出来る加速管を作ることを期待している。

9. Vacuum system

8項で述べたような加速管を確実に動作させるために，Ti-sputtering ion pump を主体にし molecular pump を補助的に使用するかなり大規模の超高真空排気系が準備された。加速管を通じての排気速度は小さいので，タンデムの中央ターミナル部にもかなり強力な sputtering ion pump を設備する必要がある。加速管内部の真空度は 10^{-8} Torr 程度を予定している。また非常に重要なことは，タンデムの入口および出口側で加速管に接続されるビームトランスポートの真空系は加速管のそれに比べて cleanness の度合いが低いので，その部分から有機物ペーパーが加速管に侵入するのを如何に食止めるかの問題である。このため実際の使用条件であらゆる事態に安全性が保証されるように厳重な baffle system を設計した。

10. Ion Optics, Stripper および Charge-State Selector

この加速器で効率よく加速出来るイオンの種類を $Z \sim 50$ （出来ればすべての原子番号）まで広げるために，全ビーム系の ion optics を beam envelope tracing 法によって検討した。stripper を通過したビームの divergence が軽いイオンに比べて非常に大きいので（ $\propto Z^2$ ），後段の加速管の中での beam optics は慎重な考慮を要する。重イオンの場合にはイオンが電極を叩くときに出る二次電子数は数 100 程度の大きな値になるので，たとえ僅かでも stray beam があれば加速管に過

度の load を与える危険性がある。この点を考慮して stripper から出てくるビームに対してなるべく明るいイオンレンズを用いてよくコリメートされたビームを加速管に送ることが望ましく、また重いイオンに対しては stripper 後のイオンの電荷数の分布幅が広いので、特定の電荷数のものだけを選んで加速管に導入することが加速管に無用の load を与えることを避ける意味で望ましい。また、この charge-state selector の利点の一つは、選択された特定の電荷数のイオンに対して最適の optics の条件で、後段加速器にビームを送ることが出来る点にある。もし、電荷数の大きく異なるイオンが混在するならば、optics に合致しないために加速管の電極を叩く成分が必ず存在するからである。上述の強い収束性と charge-state selection の両方の機能を兼ね備えたレンズ系として四重極レンズが優れている。また、電磁石よりも静電方式のものがより静電加速器の使用条件に適していると考えられるので、これの使用を検討している。

同じ理由により、タンデムへの負イオンビーム入射部のイオンレンズもまた静電型の Q-レンズを使用する。

11. Negative Ion Injector

タンデムに直接負電荷重イオンを入射させるためのイオン源および初段加速の装置として Fig.5 に示すような小型の pellet chain 型静電高圧発生器を製作した。発生電圧は 1 MV まで可能であるので、この装置は入射ビームの ion optics の上で非常に有力な手段になりうるであろう。pellet chain の運びうる電流は約 1 mA である。この装置の加速部には 2 ケの短い加速管がタンデム状に配置されており、中央の高電圧 (-) 部には一方から入射されたイオンに対する converter が設置される。目的の負イオンビームを得るには下記のいろいろの方法が考えられる。(a)陽イオンを投入して Li-oven を通過させ、負イオンに変える。この方法はイオンの mass が大きくなるにつれて electron capture をおこすための最適エネルギーが略 mass に比例して増加すると考えられるので、特に大きな mass のイオンに対して有用になるであろう。(b)Ar (または Kr) イオンを入射させ、converter 部でスパッタリングにより、ターゲット物質の負イオンを得る方法 (Cs^+ ビームを入射させて、sputtering cone を叩く方法もある)。(c) converter 部で入射ビームによって目的の原子を含むガス分子を叩き、その dissociation によって目的の負イオンを作る。この種の process は一般に断面積が大きいので、有力な手段になりうる。

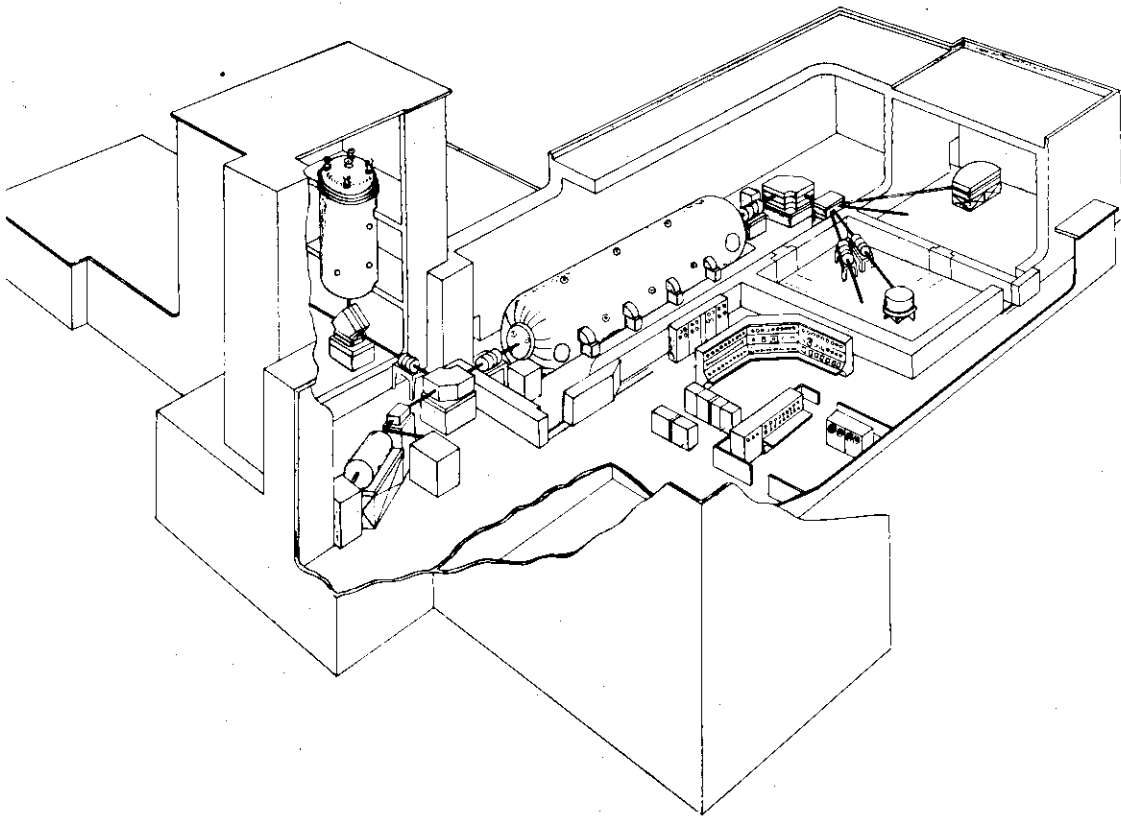


Fig. 1 Layout of the three-stage tandem at Kyushu University.

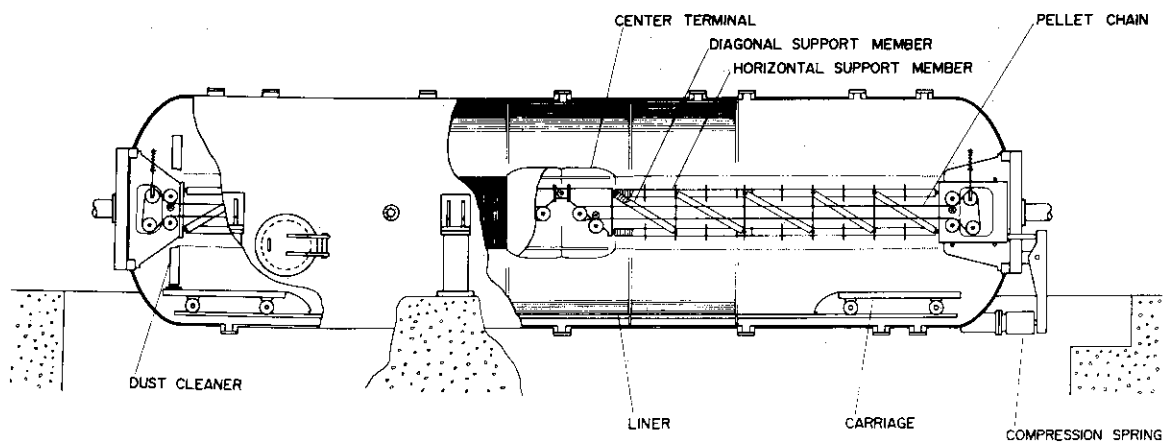


Fig. 2 The basic mechanical and electro-static structure of the 10 MV tandem under construction.

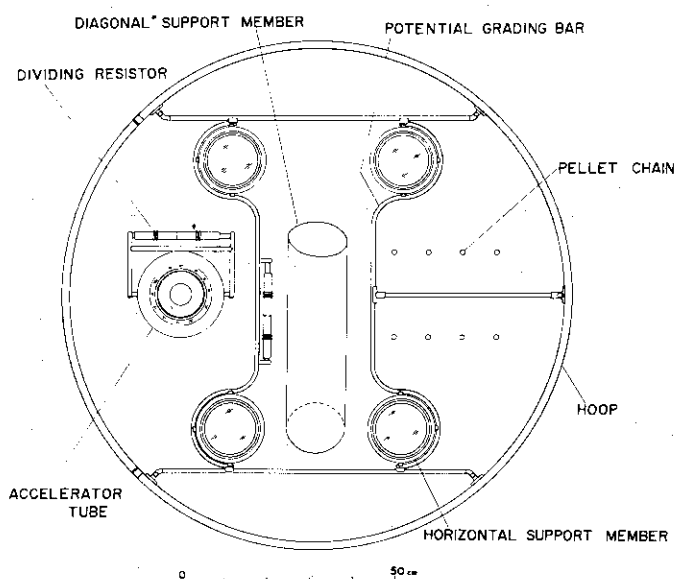


Fig. 3 A cross section of the column of the tandem. One diagonal member is set on the center line of the cross section of the column, providing, at both sides, ample spaces for accommodating an accelerator tube and four pellet chains. Hoops are slid into place from the side. Two sets of dividing resistors are used for decoupling the accelerator tube from the column.

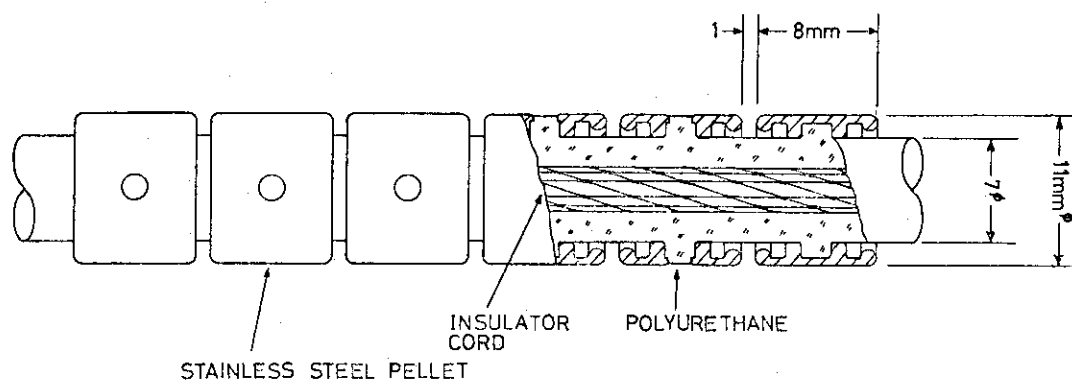


Fig. 4 A new model of the pellet chain.

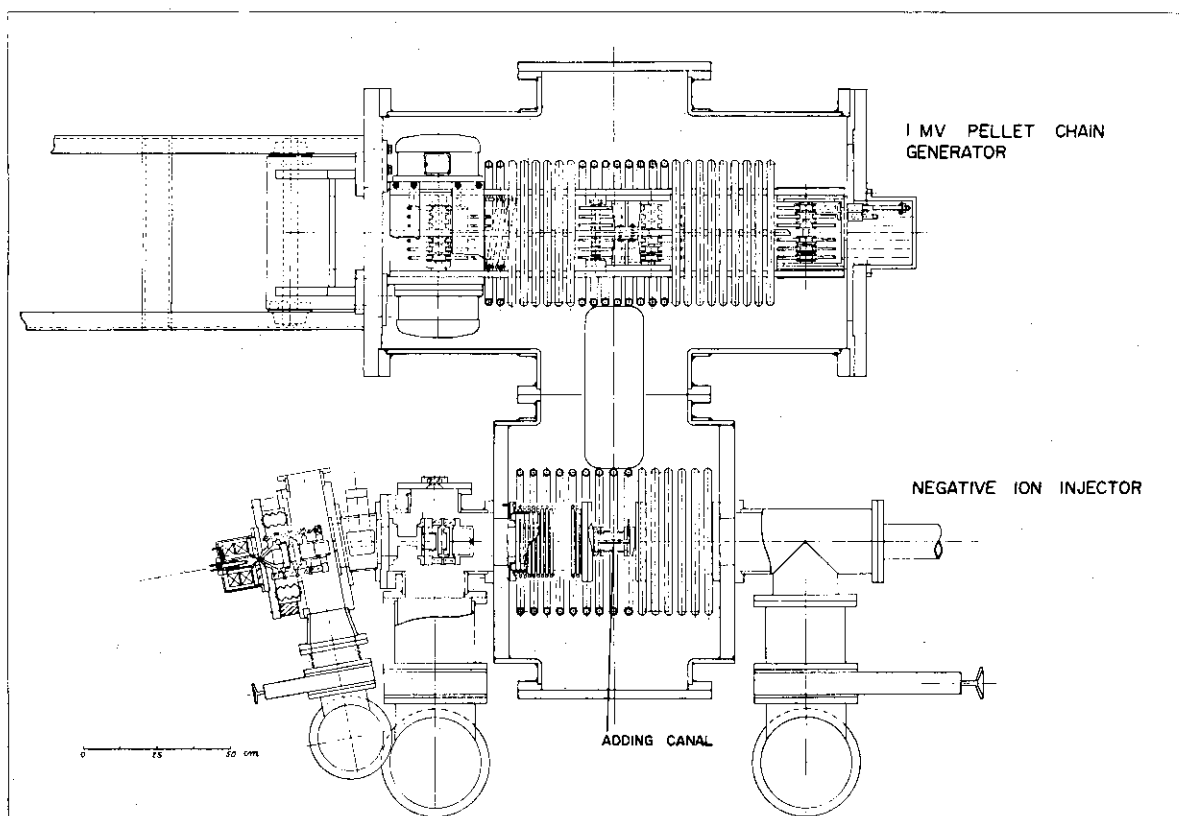


Fig. 5 An independent negative ion injector for heavy ions, incorporating a small pellet chain generator.

2. 重イオン源

2.1 重イオン源

京都大学工学部 福 沢 文 雄
(京都市左京区吉田本町)

Heavy Ion Source

Fumio FUKUZAWA
(Dept. of Nuclear Engineering, Kyoto University
Yoshida, Kyoto)

A review is given of fundamental processes which lead to the production of multiply charged ions by electron-atom collision in heavy ion sources. Experimental and theoretical results on ionization potentials, ionization cross sections, direct ejection, inner shell ionization and confinement time are discussed in order to obtain the knowledge of ionic populations in ion sources. Electron affinities are important quantities for production of negative ions, and briefly surveyed.

重イオン加速器用イオン源としては荷電数の大きいイオンをできるだけ多く出せるものが好ましく、これまで各種の型のものが考案されてきている。本論ではこれらイオン源内でのイオン形成に共通の基礎的事項をまとめイオン源特性を考える上での参考にしたい。

現在実用化されているイオン源はすべて電子と原子との衝突によってイオン化を行なっている。従って考慮すべきことはイオン化ポテンシャル、イオン化断面積およびイオン化のメカニズム、原子が電子衝突にさらされている時間すなわち閉じ込め時間 (confinement time) である。実際のイオン源ではカソード等の損耗によるイオン源の寿命、イオンビーム引出しのエミッタンスが重要な因子となるがこれについては触れない。タンデム型加速器では負イオン源が必要になるが、負イオン形成については電子親和力が問題になる。

1. イオン化ポテンシャル

原子をイオン化するにはそのイオン化ポテンシャル以上のエネルギーを与えねばならない。原子内の電子配置は殻構造をもっており外殻電子をとり去るに要するエネルギーは数 eV であるが内殻電子のそれは重い原子で百 keV にも達する。イオン化ポテンシャルの測定は荷電数の大きいイオンに対しては非常に難しくなり計算で推定する外はない。Fig 1 は Carlson 達の計算結果¹⁾で、これは中性原子の量子力学的データのみを使う近似式で計算したものであるが、実験データともよく合い、Los Alamos^{2,3)} および Frankfurt⁴⁾ のたんねんな HFS 計算とも数%の精度で合う。従ってこの値は実際に使用する上で十分正しいと考えてよいであろう。Fig 2 はこの計算をもとに C から U

までのいくつかの原子についていろいろな荷電状態を得るために必要な全イオン化ポテンシャルをプロットしたものである。⁵⁾

ある荷電状態のイオンを作るのに電子との単回衝突で一挙に所要の荷電状態にまでもって行く (single impact ionization) か, 1個または数個の電子のはぎとりを繰返して最終の荷電状態にする (successive ionization) かによって衝突電子の必要エネルギーが変ってくる。例えば Ne^{7+} を作るのに single impact ionization なら約 720 eV 必要であるが, Fig 3 のような successive ionization では 207 eV あればよいことになる。⁶⁾ 実際のイオン源でどの過程が主に起るのかはこれらの過程に対するイオン化断面積を考慮して推定せねばならぬが, 現在最も広く使われている型のもものではアーク電圧, アーク電流の点からみてつぎのように考えられる。

Type	アーク電圧	アーク電流	多価イオン形成過程
Duoplasmatron	小	大	Successive ionization
PIG, Cold cathode	大	小	Single impact ionization
PIG, Hot cathode	中	大	数個の電子をはぎとってゆく Successive ionization

2. イオン化断面積

薄い気体中を一定エネルギーの電子を走らせて単回衝突でできた気体イオンを集めることにより全イオン化断面積が求まる。このような方法で測定した全イオン化断面積の電子エネルギーによる変化は Fig 4 に Ne について示す如く, イオン化エネルギーの 2~3 倍で最大値をとりエネルギーが大となると E^{-1} で減少する。他の原子についてもこの傾向は全く同じである。⁷⁾ 個々の荷電状態を分離してその割合を測れば部分イオン化断面積が得られる。Figs 5, 6, 7 は夫々 Ne, Ar, Kr での測定結果である。⁸⁾⁹⁾

これらの断面積は Born 近似で計算することができ, 光学的許容遷移に対しては

$$\sigma_a = \frac{A}{E} \ln CE$$

光学的禁止遷移に対しては

$$\sigma_f = \frac{B}{E}$$

の形に表わすことができる。ここに A, B, C は定数である。電子衝突によるイオン化では両遷移が可能であるため両式を重ね合せてイオン化断面積は

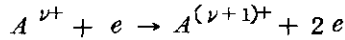
$$\begin{aligned}\sigma_i &= \sigma_a + \sigma_f \\ &= \frac{A}{E} \ln C'E\end{aligned}$$

但し $C' = C e^{\frac{B}{A}}$

の形に書くことができる。これは実験で得られた断面積のエネルギー依存性をよくあらわしている。¹⁰⁾

ターゲット原子が中性でなくある荷電状態にあるとき, すなわちイオンに電子が当たって更に荷電状態を高めるような衝突は実験データが限られており, crossed beam 法での測定が僅かにあるの

みである。一例を Fig 8 に示す。⁷⁾ この場合も断面積のエネルギー依存の様子は中性原子のイオン化の場合と同じである。ターゲット・イオンの荷電数が大きいときのデータは殆どなくイオン化断面積は計算によって推定する以外にない。



のイオン化断面積はイオン化エネルギーを使って表わすと Born 近似でつぎの形に書ける。

$$\sigma(\nu \rightarrow \nu+1) = \bar{\sigma} \left(\frac{E_0}{E_\nu} \right)^2 \frac{E_\nu}{E} \ln \frac{E}{E_\nu}.$$

ただし

$\bar{\sigma}$: 定数

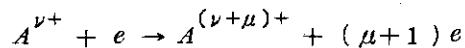
E : 入射電子のエネルギー

E_ν : ν 価のイオンから 1 個の電子をとり去るに要するエネルギー

E_ν はどの shell から電子をとり去るかによって異なり, $E_\nu < E$ のすべての電子について断面積を加える必要があるが, $E_\nu \simeq E$ については Born 近似が悪くなるためこの式は使えない。従って最もとり去り易い電子に対しての E_ν を上式に使用して和の操作は $\bar{\sigma}$ におし込めてしまうのが普通である。

この式から明らかなように大きい荷電状態になる程イオン化断面積は減少する。また shell gap では E_ν が大きく変りイオン化断面積がそこで小さくなる。従って successive ionization でイオンができるならば shell gap を越した所の荷電状態のものは非常に少くなる筈である。特にイオン化エネルギーの差が電子温度より大きくなると, すなわち $E_{\nu+1} - E_\nu > kT_e$ のときは $\nu+1$ 価のイオンの割合は非常に小さくなってしまふ。実際 PIG イオン源で Ar イオンを作る場合を考えるとモード 2 の放電 (負抵抗の領域) では $kT_e < 300 \text{ eV}$ で Ar^{8+} , Ar^{9+} のイオン化エネルギーはそれぞれ 152 eV, 396 eV であるためこのような状態となり, successive ionization 以外の多価イオン形成過程がない限りは 9^+ 以上のものの割合は非常に小さくなる筈である。¹¹⁾

単回衝突で 1 個以上の電子がもぎとられる反応



に対してはもぎとりのメカニズムに応じてイオン化断面積のエネルギー依存性が異なる。直接放出 (direct ejection) すなわち電子衝突で一挙に μ 個の電子がもぎとられるときは光学的禁止遷移に対応して

$$\sigma(\nu \rightarrow \nu+\mu) \simeq \frac{B}{E}$$

の形となる。一方内殻電離 (inner shell ionization) すなわち内殻電子が 1 個たたき出されてから Auger 過程及び shake off 過程で荷電数が増大するようなときは 1 個の電子の放出に対応する遷移であるから

$$\sigma(\nu \rightarrow \nu+\mu) \propto \frac{A}{E} \ln C' E$$

となる筈である。どちらの過程が起っているかを見るには σE を $\ln E$ に対してプロットしてみれば

ば明らかになる。これが水平な直線になれば直接放出，傾斜をもつときは内殻電離による過程と考えることができる。Fig 9 は Fig 5 に対してこのようなプロットをしたもので，これから Ne^{2+} , Ne^{3+} は直接放出， Ne^{4+} , Ne^{5+} は内殻電離が効いていると云うことができる。⁸⁾ 同様に Fig 6, Fig 7 から Ar, Kr の多価イオンは内殻電離による過程が効いていると云える。⁹⁾

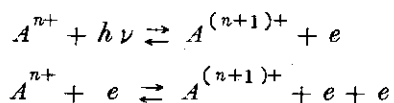
3. 単回衝突による多価イオン生成のメカニズム

単回衝突で多価イオンができるメカニズムとして重要なものは内殻電離である。例えば K 殻の電子を 1 個たたき出ただけで Auger 過程が連続して起れば多価イオンが得られる。Fig 10 は Xe イオンについての例で 1s 電子がたたき出されただけでエネルギー的には Xe^{20+} を生成させることが可能である。¹²⁾ Auger 過程で荷電数が増す他に所謂 electron shake off も起る。これは内殻電子が高速でとび出したとき，外殻電子の感ずる有効電荷が急激に変化するため外殻電子が励起したりイオン化したりする現象である。結局内殻電離が生じたとき Auger 過程と electron shake off によって最終的な電荷がきまる。それに要する時間は 10^{-15} sec の程度と推定されている。

Fig 11 は各種稀ガスに対し X 線で K, L, M 殻の内殻電離を起させたとき最終的に得られた電荷分布の測定結果である。¹³⁾ Fig 12 は各内殻の空孔によって結果する平均電荷の推定値である。これらから原子番号 Z が大きいと平均電荷が大きくなることがわかる。K 殻空孔では平均電荷の Z による増加の割合が小さいが，これは Z が大になると蛍光収量が増大するためである。

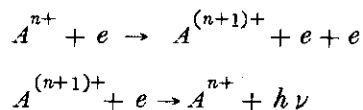
4. 閉じ込め時間 (Confinement time)

電子との衝突毎にイオンが 1 個づつ電子を失って多価イオンができるものとする，プラズマ中でイオンの電荷分布が平衡に達するまでにはある時間がかかる。平衡電荷分布を求めるのに LTE model (local thermal equilibrium) があるがこれは各衝突過程がつねにその逆過程と同じ割合で起っていると仮定する。すなわち



の平衡が成立するとするのである。これからイオンの平衡電荷分布を求めると Saha の式が得られる。このモデルが成立するためにはプラズマ密度が相当大きくなければならず，普通のイオン源に対してはむしろつぎのようにイオン化過程と再結合過程とがつり合うとして求めるべきであろう。

(Corona model)



これからイオン電荷分布が平衡に達するまでの時間 (正しくは relaxation time) τ を求めると

$$n_e \tau \simeq 10^{12} \text{ cm}^{-3} \text{ sec}$$

となる。ただし n_e は電子密度である。¹⁴⁾ 実際のイオン源では $n_e \sim 10^{10} / \text{cm}^3$ の程度であるから τ はかなり長い。

電荷分布の時間的変化を計算した例はいくつかある。電子衝突でイオン化のみが起るとして計算

すると中性原子が ν 価イオンになるまでの時間 $\tau(\nu)$ は

$$\tau(\nu) = -\sum_{n=1}^{\nu} \tau(n-1 \rightarrow n) = \frac{1}{n_e v_e} \sum_{n=1}^{\nu} \frac{1}{\sigma(n-1 \rightarrow n)}$$

となる。ここに n_e , v_e はそれぞれ電子密度, 電子速度で $\sigma(n-1 \rightarrow n)$ は $(n-1)$ 価イオンのイオン化断面積, $\tau(n-1 \rightarrow n)$ は $(n-1)$ 価イオンが n 価イオンになるまでの平均時間をあらわす。Fig 13, 14はHIPACに対してNeとUの電荷分布を計算したもので, 電子密度 $n_e = 2 \times 10^{10}/\text{cm}^3$ 電子エネルギー13.6 keVととってある。¹⁵⁾ Ne電子が50% stripするには約0.1秒, Uでは数秒かかることがわかる。この2つのデータから $kT_e \approx 10$ keVの電子ガス中で原子が50% stripするまでの時間 τ は

$$10^{10} \lesssim n_e \tau \lesssim 10^{11} \quad \text{cm}^{-3} \text{ sec}$$

とみてよいであろう。Fig 15はこのような計算で各種原子(原子番号Z)について所要の荷電数 Z_{eff} のイオンを得るに要する時間を求めたものである。¹⁶⁾

実際のイオン源でこのようなイオン形成の過程が観測されている。Fig 16はpulsed cold cathode PIGで多価のイオン程時間的に遅れて出て来ることがはっきり示されており, 計算で求めた時間変化と定量的にもよく合っている。¹⁷⁾ またイオン源でアーク電流を変えてイオンの電荷分布を測れば閉じ込め時間 τ が一定で電子密度 n_e を変えたことになるが, このときの変化も上と同じ傾向になる筈である。Fig 17の測定値はそれをよく示している。

5. イオン源からのイオンの電荷分布

以上に述べたことを基にしてイオン源から出て来るイオンの電荷分布を計算することができる。Fig 18はcold cathode PIGについてのBennet and Gavinの測定¹⁸⁾とFuchsの計算¹⁹⁾およびDarling and Davisの計算²⁰⁾を比較したものである。Fuchsの計算では注目する荷電数のイオンの割合を出すのにイオン化過程とイオン源壁への損失だけを考慮しており, 断面積はBorn近似の表式を使っている。この方法では多価イオンの割合が測定値より小さくなってしまいが, Darling and Davisは再結合とAuger効果をきちんと考慮に入れ実験データを再現することに成功した。勿論いろいろな過程に対し必要な断面積等の値が不十分であるが, イオン源がこれまでのような魔術的開発の段階から科学的開発の段階へ踏み出したと云えるであろう。

6. 負イオン源

タンデム型加速器では負イオンの入射が必要であるが, 負イオンの生成については

- (1) 正イオンをガス又は固体中を通して電子をくっつけて負イオンを作る。
- (2) イオン源の中で元々出来ている負イオンを引出して使う。

の2方法があり, 大電流を得るには後者の方が有利である。しかし, 例えば He^- のようなものは励起状態であるため衝突でしかできず(1)の方式をとらざるを得ない。負イオンを作る際に基礎となるのは電子親和力(electron affinity)で, これは

$$\text{Electron Affinity (A)} = E_{\text{tot}}(A) - E_{\text{tot}}(A^-)$$

ただし $E_{\text{tot}}(A)$: 中性粒子Aの全エネルギー

$E_{tot}(A^-)$: 負イオン A^- の全エネルギー

で定義される。安定な負イオンができるためには電子親和力が正でなければならぬが Fig 19 に示すように元素の 75% が正の電子親和力をもっている。²¹⁾ しかし負の電子親和力のものでも励起状態で負イオンを形成するものがあり (例えば He^-) , また化合物として負イオンを作ることもできる (例えば NH^- , ArF^-) 。これらは準安定状態で加速時間の間だけ存在してくれば十分である。こうなると残りの 25% についてもすべて加速用の負イオンを作ることは多分可能であろう。勿論最初は極少量の負イオンしか得られないであろうが H^- ビームが μA 以下で出発して現在 22 mA まで得られていることを考えれば負イオン源の将来は楽観してもよいであろう。なお多価の負イオンを得る努力も為されており Heidelberg で O^{--} , F^{--} , Cl^{--} , Bi^{--} , Br^{--} , I^{--} , Tl^{--} が $\sim 1\text{nA}$ 得られたとの報告がある。²²⁾

本論をまとめるにあたって A. Septier の総合報告⁶⁾ を大いに参考にした。

References

- 1) Carlson, T.A., Nestor, Jr, C.W., Wasserman, N. and McDowell, J.D.: ORNL 4562 (1970)
- 2) Mann, J.B.: LASL report LA-DC 3690 (1967)
- 3) Larson, A.C., Waber, J.T.: LASL report, LA-DC 8508 (1967)
- 4) Schmidt, W. and Becker, R.: Arbeitstagung Ionenquellen, Heidelberg, GSI Bericht 71-3 (1971)
- 5) Hudson, E.D., Mallory, M.L. and Mosko, S.W.: IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-18 No.3 113 (1971)
- 6) Septier, A.: IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-19 No.2 22 (1973)
- 7) Kieffer, L.J. and Dunn, G.H.: Rev. Mod. Phys. 38 1 (1966)
- 8) Schram, B.L., Boerboom, A.J.H. and Kistemaker, J.: Physica 32 185 (1966)
- 9) Schram, B.L.: Physica 32 197 (1966)
- 10) Schram, B.L. and Vriens, L.: Physica 31 1431 (1965)
- 11) Mallory, M.L., Hudson, E.D. and Fuchs, G.: IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-19 No.2 118 (1972)
- 12) Pleasonton, F. and Snell, A.H.: Proc. Roy. Soc. 241A 141 (1957)
- 13) Carlson, T.A., Hunt, W.E. and Krause, M.O.: Phys. Rev. 151 41 (1966)
- 14) McWhirter, R.W.P.: Plasma Diagnostic Technics (Acad. Press) chap. 5 (1965)
- 15) Stix, T.H.: IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-19 No.2 150 (1972)

- 16) Daugherty, J.D., Grodzins, L., Janes, G.S. and Levy, R.H.: Phys. Rev. Letters 20 369 (1968)
- 17) Pigarov, Yu.D. and Morozov, P.M.: Sov. Phys. - Tech. Phys. 6 336 (1961)
- 18) Bennett, J.R.J. and Gavin, B.: Rutherford High Energy Lab. Rep. RPP/A84
- 19) Fuchs, G.: IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-19 No.2 160 (1972)
- 20) Darling, R.L. and Davis, R.H.: Rev. Sci. Instr. 44 375 (1973)
- 21) Purser, K.H.: IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-20 No.3 136 (1973)
- 22) Comment of Tawara, H. at the meeting.

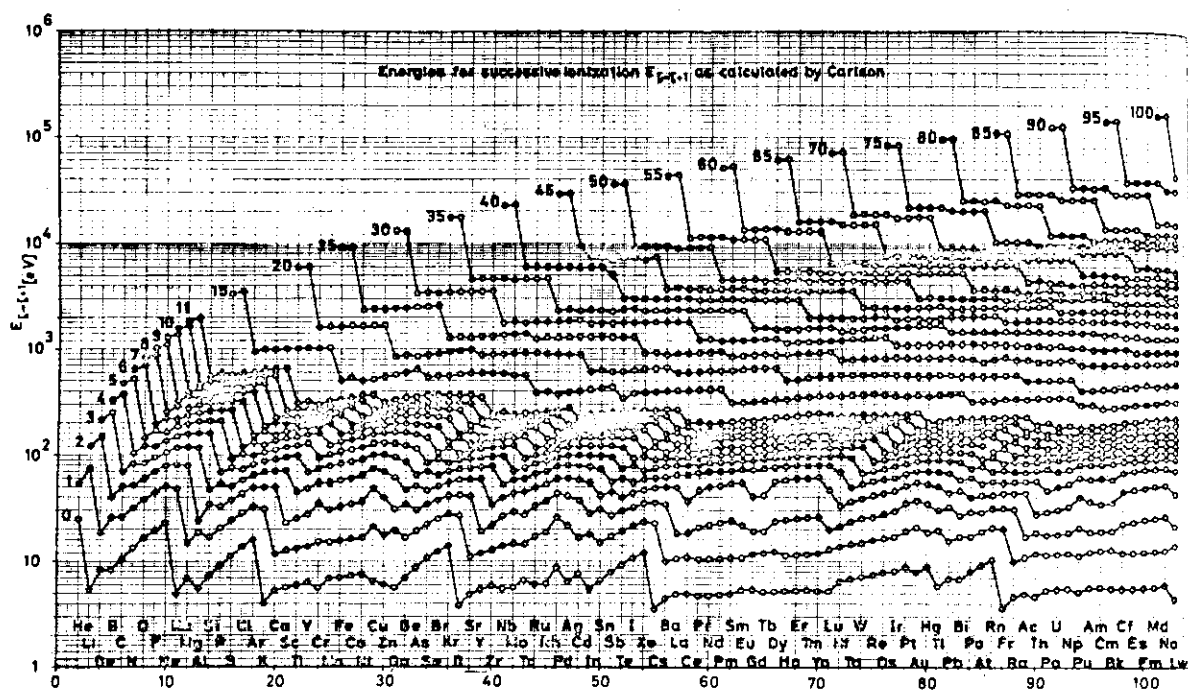


Fig. 1 Energies for successive ionization calculated by Carlson.
(T. A. Carlson et al, ORNL 4562 (1970))

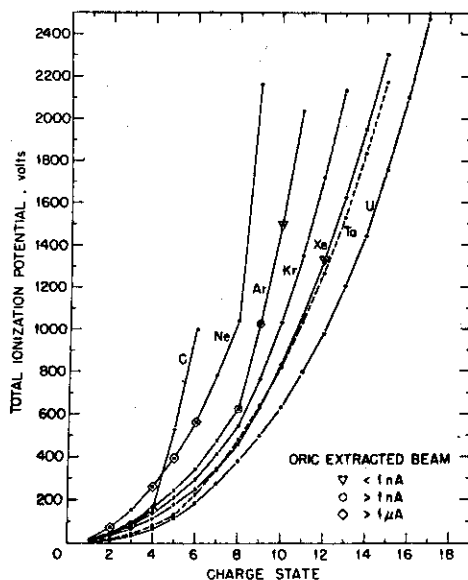


Fig. 2 Calculated total ionization potentials required for multiply-charged heavy ions of interest. Geometric symbols indicate external beam currents that have been obtained with the Heavy-Ion Source in ORIC. (E. D. Hudson et al, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-18 No.3 113 (1971) Fig. 7)

Total Coll. Number	n=	0	1+	2+	3+	4+	5+	6+	7+
7			21.6	41.1	63.5	97.2	126.4	158	207
				104.6					
8			62.7						
					160.7				
5				201.8					
			62.7	162.2					

Fig. 3 Possible steps for an electron energy of $E \approx 210$ eV for obtaining Ne^{7+} ions. (A. Septier, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-19 No.2 22 (1973) Table 2)

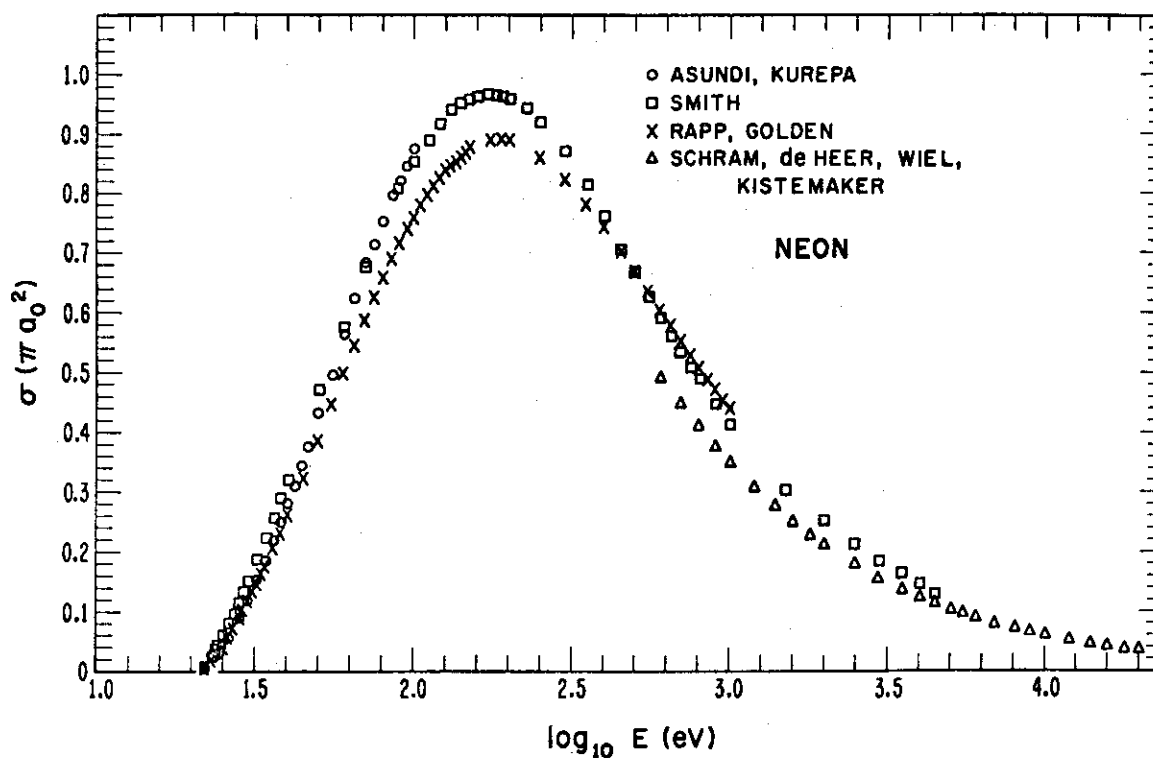


Fig. 4 Total cross sections for the ionization of atomic neon. (L. J. Kieffer and G. H. Dunn, Rev. Mod. Phys. 38 1 (1966) Fig. 7)

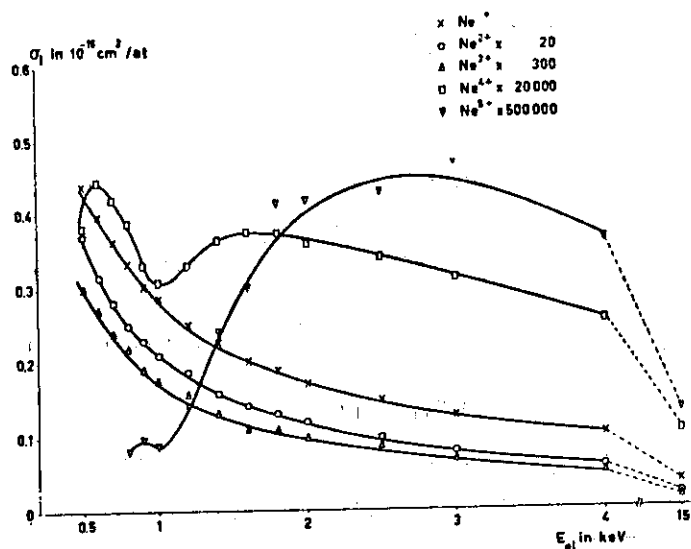


Fig. 5 Partial cross sections for single and multiple ionization in neon.
(B. L. Schram et al, Physica 32 185 (1966) Fig. 3)

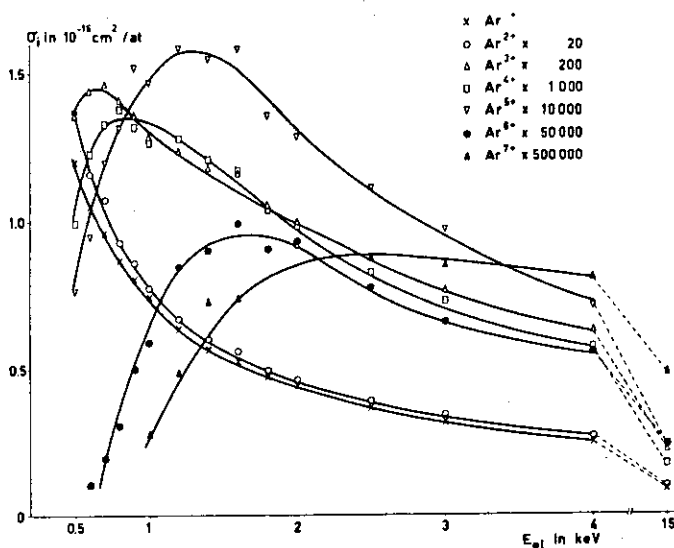


Fig. 6 Partial cross sections for the production of ions with charge 1+ up to 7+ for electrons incident on argon.
(B. L. Schram, Physica 32 197 (1966) Fig. 1)

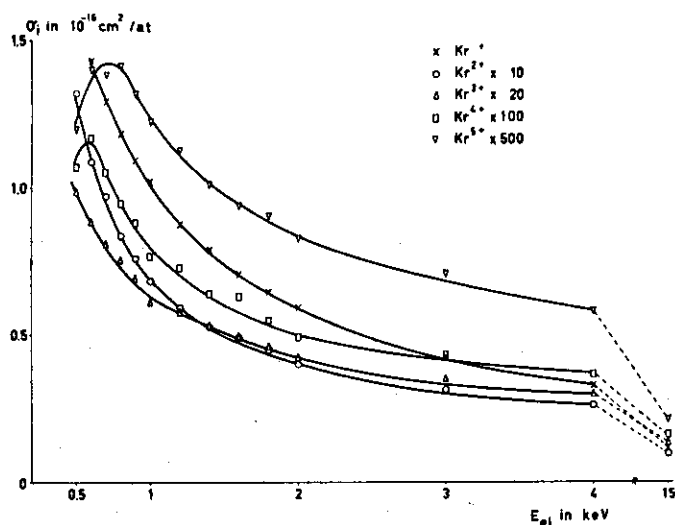


Fig. 7 Partial cross sections for the production of ions with charge 1+ up to 5+ for electrons incident on krypton.
(B. L. Schram, Physica 32 197 (1966) Fig. 2)

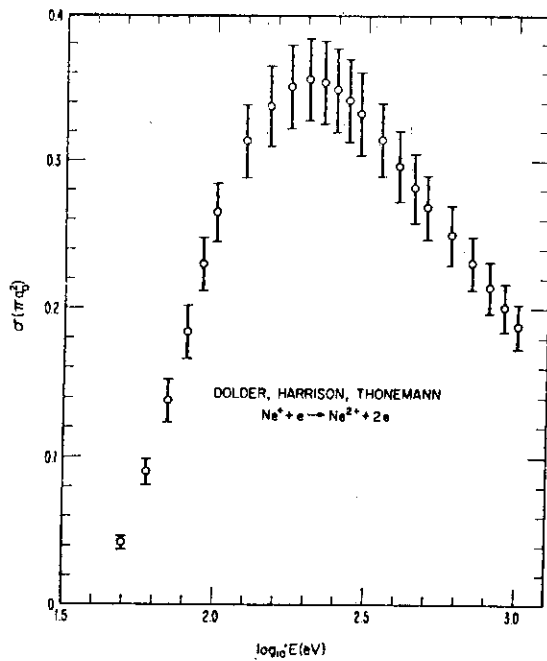


Fig. 8 Cross sections for the single ionization of Ne, (L. J. Kieffer and G. H. Dunn, Rev. Mod. Phys. 38 1 (1966) Fig. 21)

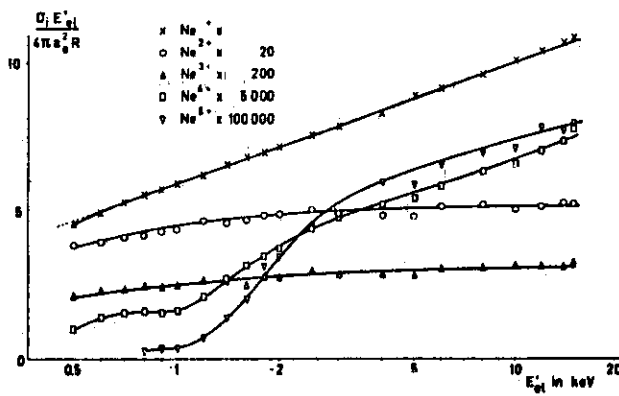


Fig. 9 Plot for neon of $\sigma_i E_i' / 4\pi a_0^2 R$ versus $\ln E_i'$ for the partial cross sections for single and multiple ionization. (B. L. Schram et al, Physica 32 185 (1966) Fig. 5)

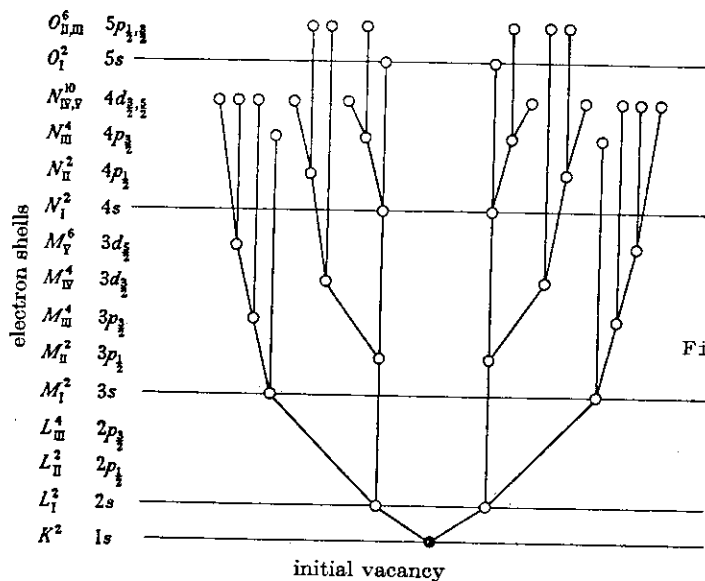


Fig.10 A conceptual vacancy cascade in xenon, showing low successive Auger transitions can displace twenty electrons from the atom. (F. Pleasonton and A. H. Shell, Proc. Roy. Soc. 241 A 141 (1957) Fig. 3)

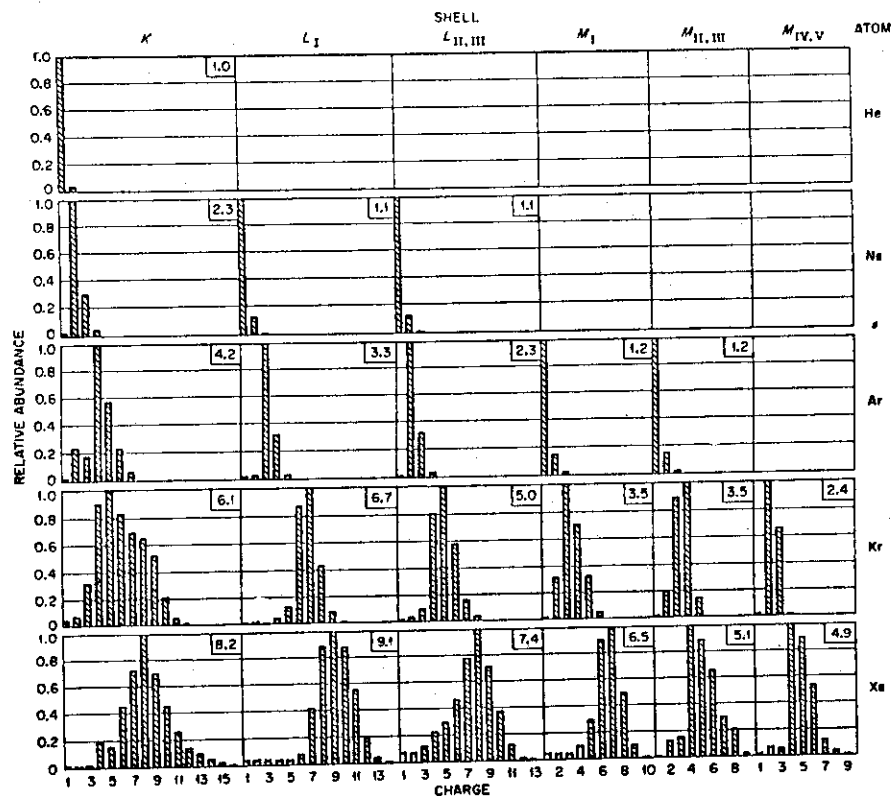


Fig.11 The relative abundances of ions that are formed as the consequence of a sudden vacancy in the K, L, and M shells of the rare gases. The average charge is given for each spectrum in the upper right-hand corner. The bars containing a notch on top represent an upper limit to the designated intensity.
(T. A. Carlson et al, Phys. Rev. 151 41 (1966) Fig.1)

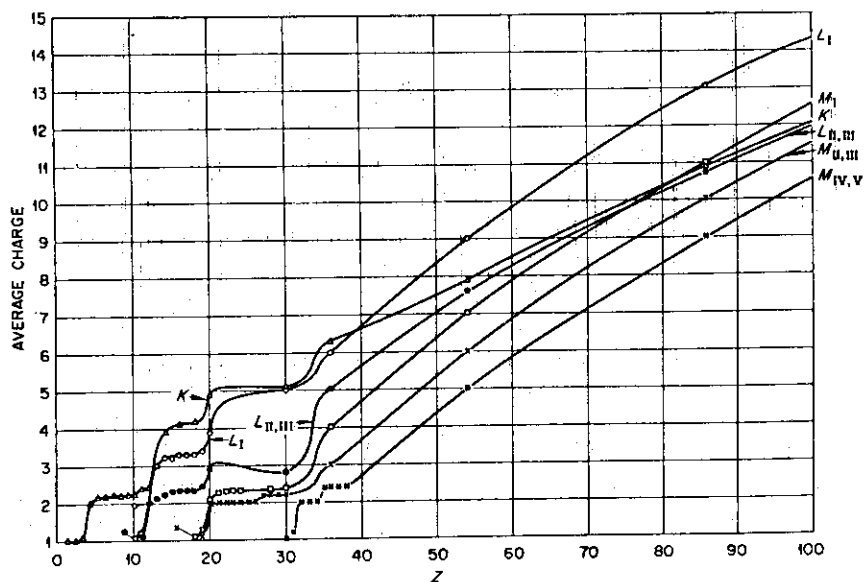


Fig.12 Estimated average charge as the result of a sudden vacancy in the K, L, and M shells as a function of the atomic number.
(T. A. Carlson et al, Phys. Rev. 151 41 (1966) Fig.3)

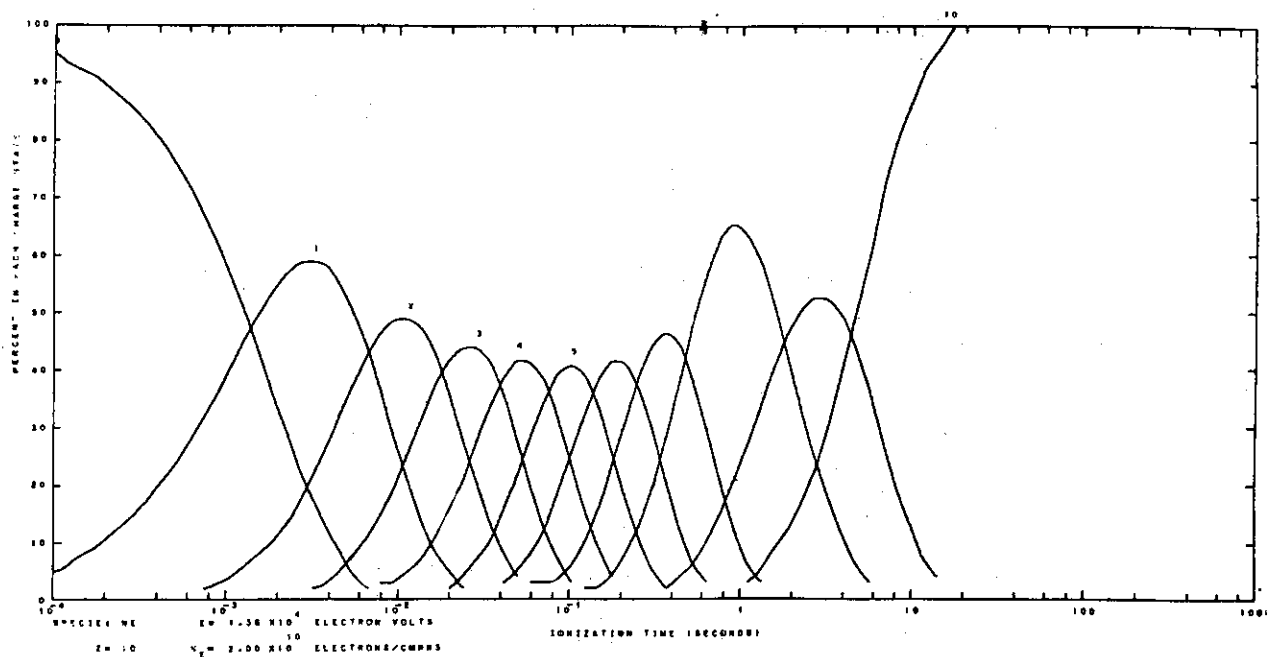


Fig.13 Probability of different states of ionization for Ne atoms exposed to 13.6 keV electrons.
T. H. Stix, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-19 No.2 150 (1972) Fig. 1)

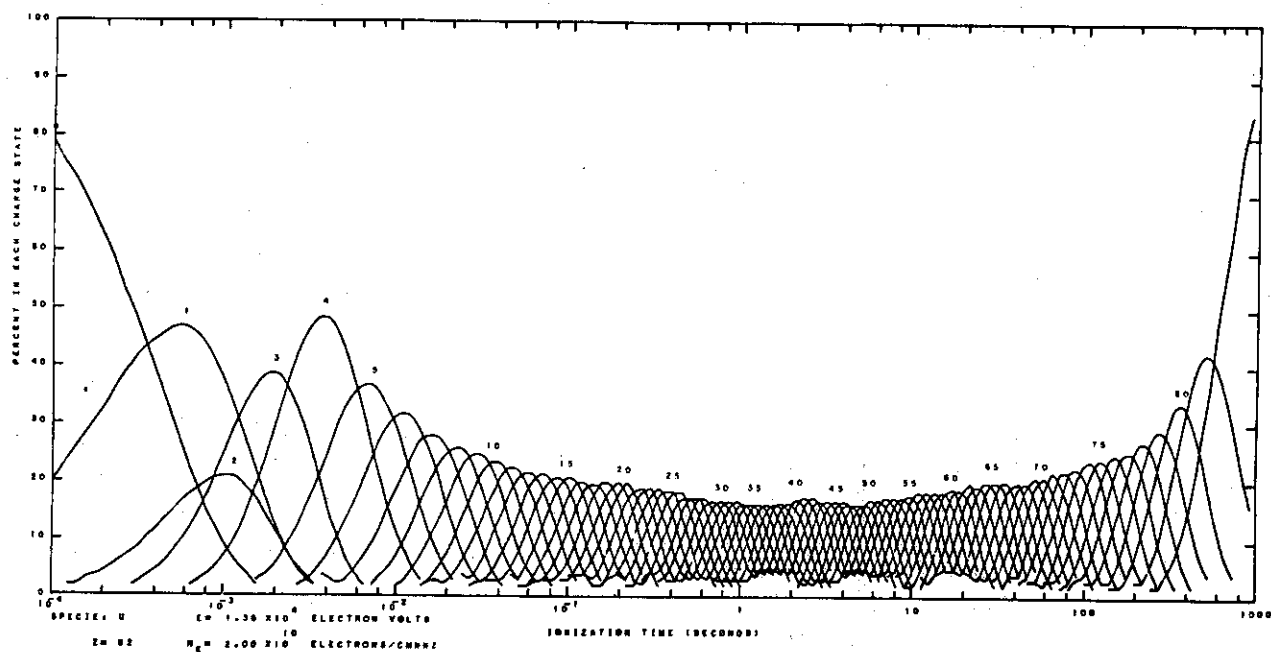


Fig.14 Probability of different states of ionization for U atoms exposed to 13.6 keV electrons.
(T. H. Stix, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-19 No.2 150 (1972) Fig. 2)

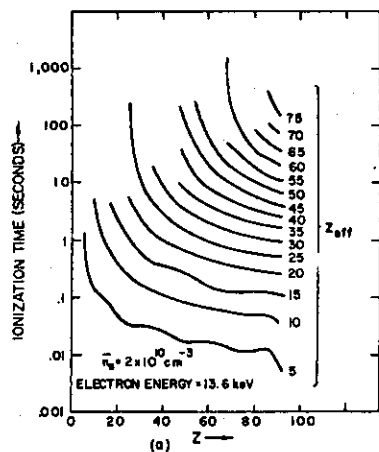


Fig. 15 Time required to remove Z_{eff} electrons from electrons from element Z under the stated conditions.
(J. D. Daugherty et al, Phys. Rev. Letters 20 369 (1968) Fig. 2(a))

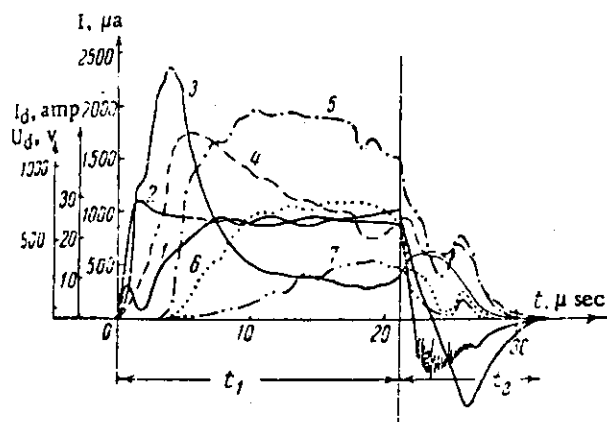


Fig. 16 Variation of arc current 1, arc potential 2, and output of multiply charged nitrogen ions (3 - N^{1+} ; 4 - N^{2+} ; 5 - N^{3+} ; 6 - N^{4+} ; 7 - N^{5+}) as a function of the time during the pulse. Source of Pigarov and Morozov. Note the sequential rise of each charge state indicating that ionization is as a result of multiple collisions.
(Yu. D. Pigarov and P. M. Morozov, Sov. Phys. - Tech. Phys. 6 336 (1961) Fig. 3)

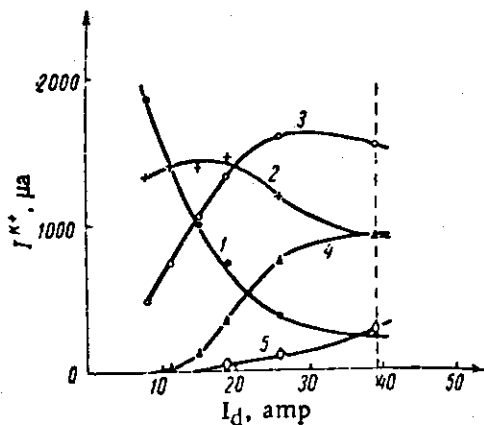


Fig. 17 Variation in the output I^{k+} of multiply charged nitrogen ions with arc current I_d . The charge state $k+$ is indicated against each curve. Pulsed indirectly heated cathode source, side extraction, of Pigarov and Morozov. (Yu. D. Pigarov and P. M. Morozov, Sov. Phys. - Tech. Phys. 6 336 (1961) Fig. 4)

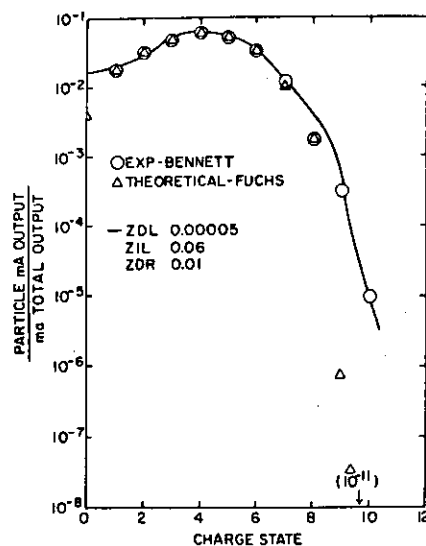


Fig. 18 Comparison of the experimental charge fraction with the theoretically calculated ones. Solid line shows theoretical-Darling and Davis. (R. L. Darling and R. H. Davis, Rev. Sci. Instr. 44 375 (1973) Fig. 9)

H 13.607 0.754																	He 24.46 0.085
Li 5.393 0.62	Be 9.00 0.481											B 8.017 0.30	C 11.417 1.26	N 14.521 0.213	O 13.618 1.445	F 17.423 2.64	Ne 21.47
Na 5.12 0.7	Mg 7.38 0.521											Al 5.78 0.22	Si 8.12 1.39	P 10.48 0.78	S 10.33 2.08	Cl 12.91 3.62	Ar 16.68
K 4.19 0.5	Ca 5.93 1.06	Sc 6.7 0.3	Ti 6.58 0.7	V 6.7 0.7	Cr 6.76 0.98	Mn 7.43 1.07	Fe 7.63 0.5	Co 7.7 1.0	Ni 7.64 1.4	Cu 7.72 1.8	Zn 7.73 0.99	Ga 6.97 0.4	Ge 6.97 1.48	As 10.4 1.67	Se 9.75 2.8	Br 11.5 5.37	Kr 14.6
Rb 4.15 0.2	Sr 5.45 1.55	Y 6.5 0.3	Zr 6.52 0.7	Nb 7.12 1.23	Mo 7.38 1.6	Tc 7.7 1.0	Ru 7.7 1.6	Rh 7.7 1.6	Pd 8.3 1.1	Ag 7.7 2.0	Cd 8.94 -0.7	In 6.78 0.4	Sn 7.3 1.03	Sb 9.8 0.8	Te 9.8 2.1	I 10.4 3.07	Xe 12.1
Cs 3.87 0.28	Ba 5.19 0.48	La 6.5 0.3	Hf 6.5 0.7	Ta 7.12 1.23	W 7.38 1.6	Re 7.7 1.0	Os 7.7 1.6	Ir 7.7 1.6	Pt 8.3 1.1	Au 8.94 -0.7	Hg 10.37 0.8	Tl 6.78 0.4	Pb 7.3 1.03	Bi 9.8 0.8	Po 9.8 2.1	At 10.4 3.07	Rn 12.1

0.01 eV ionization affinity only is outlined. 0.01 eV
ionization
0.01 eV ionization only

Fig.19 The upper number in each box is the ionization potential and the lower the electron affinity. Those atoms that have produced useful (microampere or more) beams of negative ions are heavily outlined. (K. H. Purser, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-20 No.3 136 (1973) Fig. 1)

2.2 タンデム型加速器用の直接引出し型負イオン源

東京大学理学部 野 上 燿 三
(東京都文京区本郷7-3-1)

Direct Extraction Negative Ion Source for Tandem Accelerator

Yozo NOGAMI
(Department of Physics, University of Tokyo,
Hongo, Bunkyo-Ku, Tokyo)

Performance of a direct extraction negative ion source
(abbreviated to DENIS) for the Tandem accelerator of University
of Tokyo is reported.

東京大学原子力研究総合センターのタンデム型加速器を用いて、直接引き出し型負イオン源 (DENIS と略称) による ^{16}O イオンの加速を行なった。

負イオン源の構造を Fig. 1 に示す。ふつうのデュオプラズマトロンであるが、微調ネジ A によって B 面をすべらすことによって中間電極 C の軸と陽極 D の孔とを偏心させることができる。

酸素イオンの加速の場合には水素ガスに酸素を 10~20% まぜたものを使用するが、熱陰極としては白金ガーゼをベースにしたオキサイド・カソードがもっとも良い結果を与え 100 時間以上の連続使用が可能である (オキサイドのペーストには少量の水ガラスをまぜて剝離を防いだ)。

DENIS の諸元の代表的な値を Table 1 に示す。この場合にはパラジウム・リークにそれ以前に使用した重水素がまだ吸着されていたが、引き出されるイオンの同定のために便利なのでそのまま使用した。

Fig. 2 は中間電極の軸 (プラズマの軸) と陽極の孔との偏心を変化した時の引き出される電流 (負イオンと電子) と負イオン中の OD^- 電流を示したもので、偏心が 0.8~0.9 mm の時が最適値となっている。

Fig. 3 は引き出し電圧を変えた時の I_{OD} の値の変化である。

Fig. 4 は負イオンをイオン源の分析電磁石によってわけた時のスペクトルを示す。

Table 2 はこの負イオンを加速した時の加速器の諸元で、17.5 MeV の O^{4+} ビームのターゲット上での大きさは 2 mm 径のスポットに集束することができた。(表中のビーム電流の値は粒子電流ではない。)

Table I

An Example of the Operating Condition (1973. 7. 4)

Ion Source Gas	$O_2 + H_2 \sim 2.7$ Torr $O_2 \sim 17\%$
Filament Current	10.1 A
Solenoid Current	0.5 A
Arc Voltage	77 V
Arc Current	0.16 A
Displacement	0.9 mm
Extraction Voltage	8 KV
Extraction Load	1.5 mA
I negative	O^- 0.25, OH^- 35, OD^- 0.63, μA

Table II

An Example of the Operating Condition (1973. 7. 5)

Injection Voltage	48 KV		
Injected Beam Current	3 μA		
Stripper Gas	N_2		
Terminal Voltage	245 MV	35 MV	456 MV
Analysed Beam Current	100~110 nA	~ 120 nA	15 ~ 20 nA
Charge State	3^+	4^+	5^+
Vacuum	Injection Line	2×10^{-6} Torr	
	Acceleration Tube	$4 \sim 5 \times 10^{-6}$ Torr	
	Terminal	$\sim 10^{-4}$ Torr	
	Analysing Duct	$\sim 3 \times 10^{-6}$ Torr	

Arrangement of DENIS

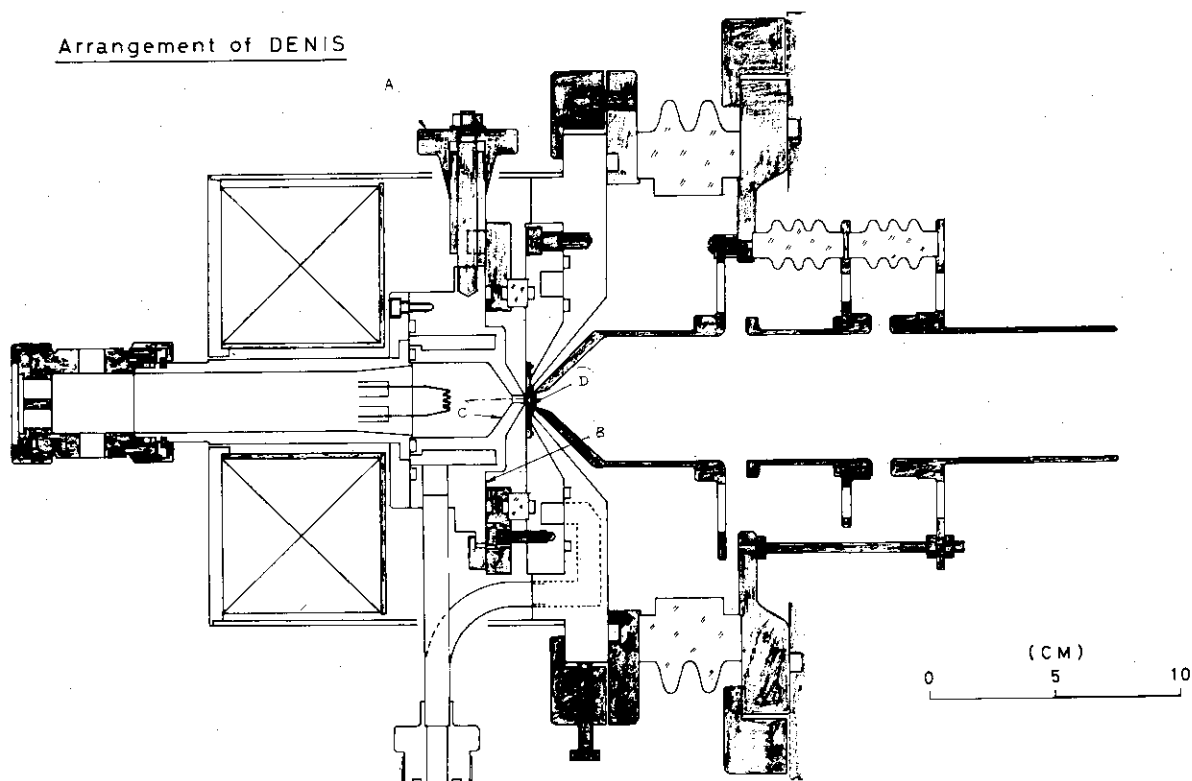


Fig. 1 Arrangement of DENIS.

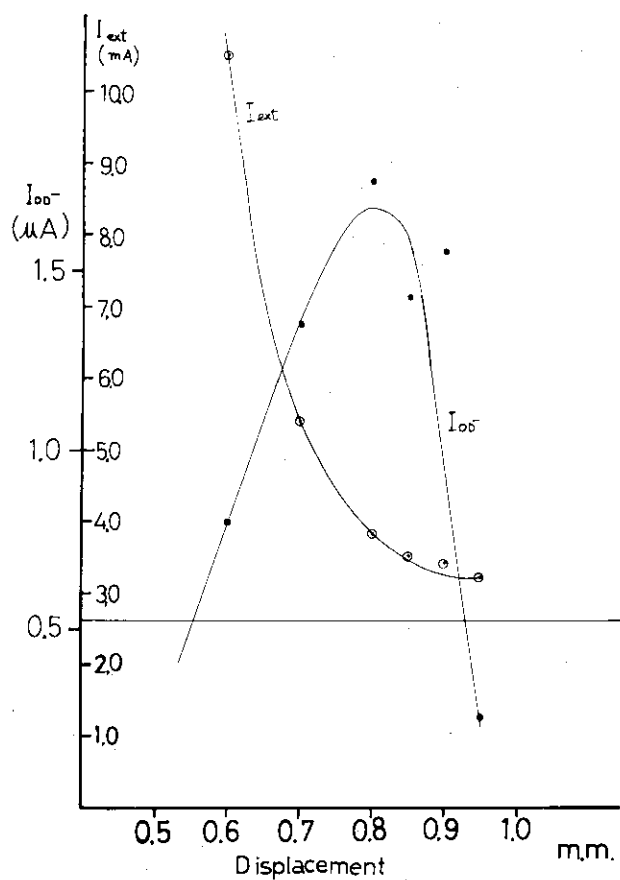


Fig. 2 Extracted beam current, and OD^- current as a function of displacement.

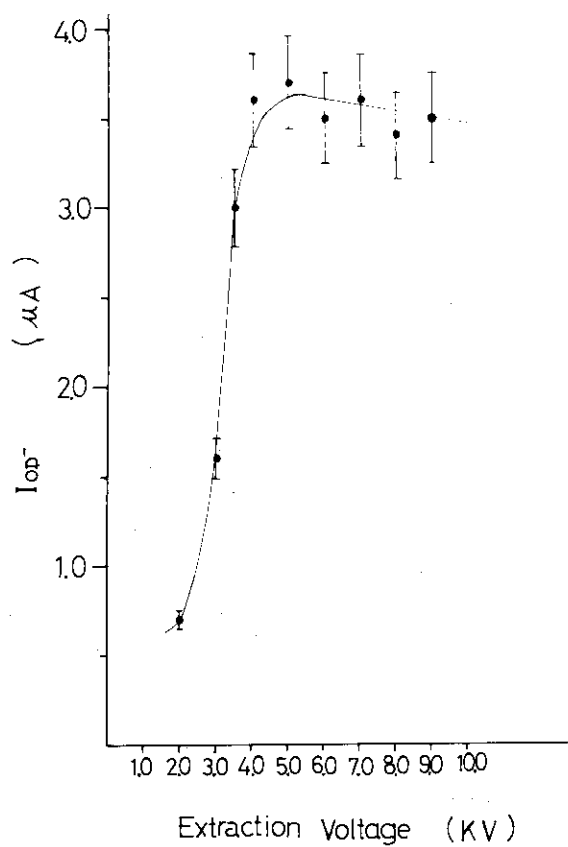


Fig. 3 OD^- current as a function of extraction voltage.

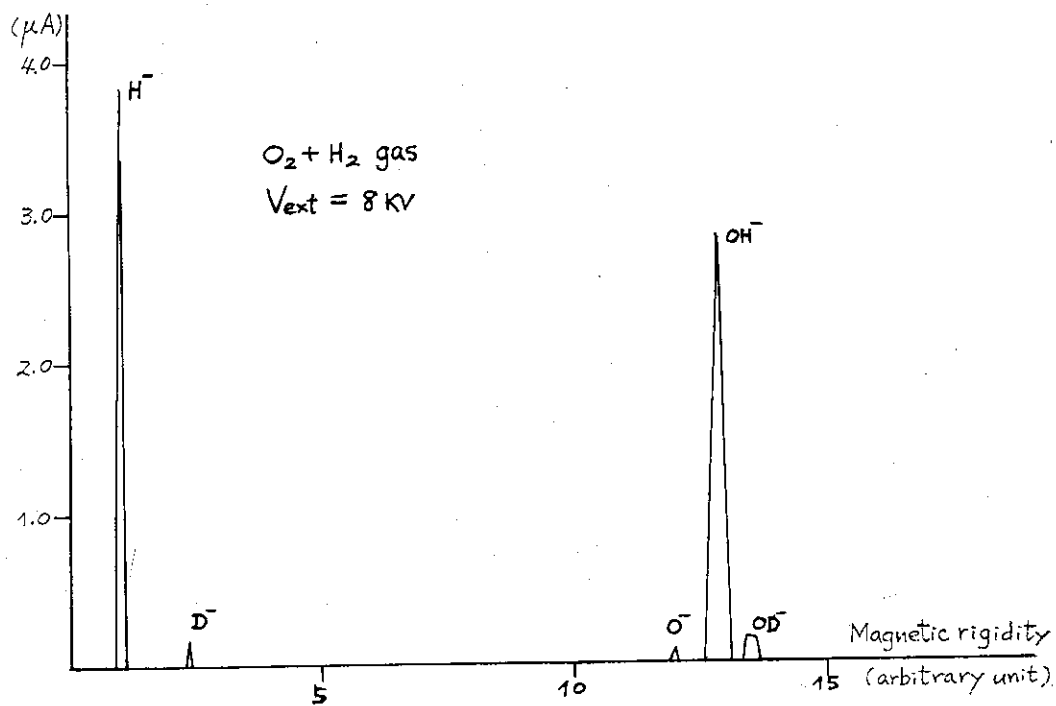


Fig. 4 Negative ion spectrum.

2.3 PIG型イオン源による窒素、アルゴン・イオンの加速

日本原子力研究所 小林 千明, 神田 将
吉田 紘二*
(茨城県那珂郡東海村)

Acceleration of Nitrogen and Argon Ions from PIG Ion Source

Chiaki KOBAYASHI, Susumu KANDA and Koji YOSHIDA*
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki)

The results of nitrogen and argon ion acceleration by the JAERI 2 MV Van de Graaff accelerator with a cold-cathode PIG ion source are given. The beam currents of N^+ and Ar^{2+} were $3.5 \mu A$ and $1.25 \mu A$ on a target, respectively. The life time of the ion source was about 200 hours for nitrogen and 50 hours for argon.

1. はじめに

日本原子力研究所核物理第一研究室にある2MV VdGは、物性、材料関係研究のため1972年6月より重イオンの加速も開始した。1973年6月には京都大学工学部と協力開発を進めているPIG型イオン源により窒素、アルゴンの加速を行なった。

以下、イオン源の構造、VdGによる窒素、アルゴンイオンの加速データ等を解説する。

2. イオン源にPIG型を採用した理由

一般に高圧ガスタンク内に端子を持つ静電加速器用イオン源の条件としては、操作の容易、寿命、安定性の他に消費電力が小さいこと、加速管の末端に取付けるためガス放出量が少いこと、が最優先される。この2MV VdGはHigh Voltage Eng.社製のAN型という小型の機種であるがイオン源用としての電力は150W以下、アルゴンを1MVで加速する場合の加速管内圧力を考慮した場合のイオン源からのガス放出量は $\sim 1 \text{ cc/hr}$ 以下に限定される。

以上の理由により、構造の簡単な冷陰極型PIG型イオン源を採用した。

2.1 イオン源の構造

Fig. 1に構造を示す。動作としては上下陰極を兼ねるポールピース間に置かれた円筒形陽極に2~3kVの正の直流電圧を印加し、イオン化しようとするガスを筐体横の小穴より供給する。プラズマは陽極内に形成され、下部陰極にあげられた小孔よりイオンビームを引出す。陰極は上下とも $20 \text{ mm}\phi \times 1 \text{ mm}$ 厚タンタル板で下側陰極板は $1 \text{ mm}\phi$ のビーム引出孔があげられている。陽極は内径 $14 \text{ mm}\phi \times 20 \text{ mm}$ のステンレス円筒で絶縁ポールにより保持される。

上下陰極間は30mmで磁場は ~ 500 ガウス程度である。放電電流は2~3mA、圧力はガスの種類によって多少違うが $5 \times 10^{-3} \text{ Torr} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Torr}$ 位である。

* 京都大学工学部(京都市左京区吉田本町):

* Dept. of Nuclear Engineering, Kyoto University, Yoshida, Kyoto.

2.2 VdG加速系

Fig. 2 は加速系の概略図を示す。イオン源は加速管に直接取付けられ、加速管への入射のためのレンズ等は一切ない。加速管長は約1 mで最上段電極がビーム引出しと集束レンズを兼ねておりイオン源引出孔に対し負の電圧(0~40 kV)調節ができる。ターゲットまでのビームパスは加速管を含め約9 mである。加速管出口より3.4 mに分析電磁石があり偏向角は90度である。真空ポンプは加速管出口と振分け電磁石のところにそれぞれ200 ℓ/s の水銀拡散ポンプがあり真空度はビームパス全域平均で約 5×10^{-6} Torrである。(ビーム加速時)加速管出口より分析電磁石入口までの距離が長いので中間に静電型Qレンズを置いてある。通常軽イオンではQレンズの必要はないが、今回の重イオン加速では不可欠である。図中石英板観測による窒素ビームの形状を示してあるが、これはQレンズを使用したときのデータである。

2.3 加速エネルギー範囲

加速エネルギーの最高限界は現在の場合90度分析電磁石の偏向能力限界で決り、最低限界は加速管集束作用の下限界で決る。具体的にはそれぞれ次のようになる。

$$N^+ \quad 0.4 \sim 1.28 \text{ MeV}$$

$$Ar^+ \quad 0.4 \sim 0.45 \text{ MeV}$$

$$Ar^{2+} \quad 0.8 \sim 1.8 \text{ MeV}$$

但し加速管集束作用は加速電圧が0.6 MV以下になると急激に悪化する。

3. 加速データ

窒素およびアルゴンの加速ビームの分析をFig. 3, 4に示す。図中 N_2^{+2+} となっているような標示は加速後のイオンビームが残留ガスとの衝突で荷電変換を受けたものである。荷電変換される量はビームダクトの真空度およびビームパスから考えると計算と大略一致する。

Fig. 5, 6はそれぞれ窒素とアルゴンのベンチテストでの分析と比較したものであり荷電変換により発生する多荷イオンがかなり多いことがわかる。ターゲット上でのイオンビーム強度は N^+ 3.5 μA (0.9 MeV), Ar^{2+} 1.25 μA (1.8 MeV)であった。

ビームの安定度は極めて良く、特に強度変化は2~3%程度で安定しており、イオン源の操作も容易であった。イオン源の操作箇所はアーク電圧、磁場、ガス流量の3ヶ所である。

4. イオン源の特性・寿命

冷陰極PIG型であるためアーク特性は正抵抗を示しアークのV-I特性はなだらかなものとなっている。磁場の変化に対しても急激な放電状態の変化はない。

Fig. 7, 8はそれぞれ窒素、アルゴンガスによるアーク電圧対出力ビームの特性である。

多荷イオンは少く価数が多くなると出力は一桁程度減少している。多荷イオンを多くするには電子密度の増加が必要であり消費電力、冷却の問題など極めて困難な点が多い。

イオン源の寿命は、陰極板の損耗で決りアーク電流が2~3 mA程度での通常の使用状態のとき、アルゴンで50時間程度、窒素で200時間位である。陰極材はタンタルやタングステンなどが好ましいようであるが加工性の点でタンタルを使用している。

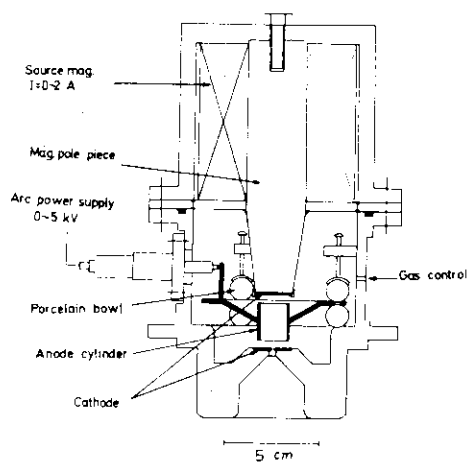


Fig. 1 Schematic diagram of PIG ion source.

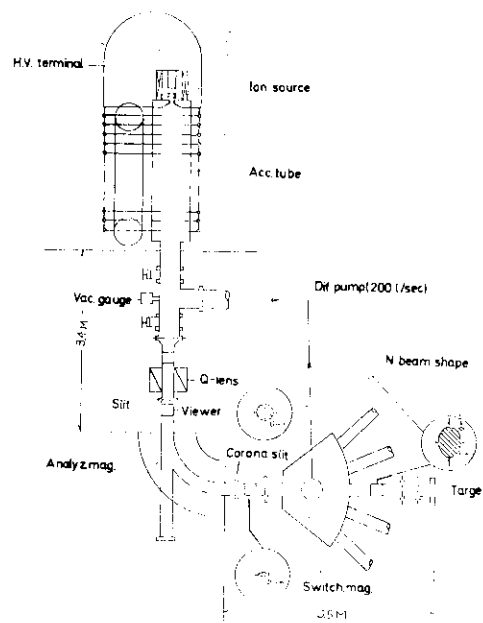


Fig. 2 JAERI 2 MV Van de Graaff system and shape of beam spots of nitrogen ions.

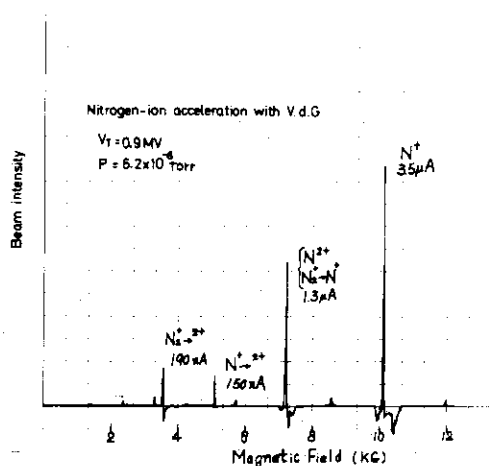


Fig. 3 Intensity of analysed nitrogen beams accelerated at a terminal voltage of 0.9 MV.

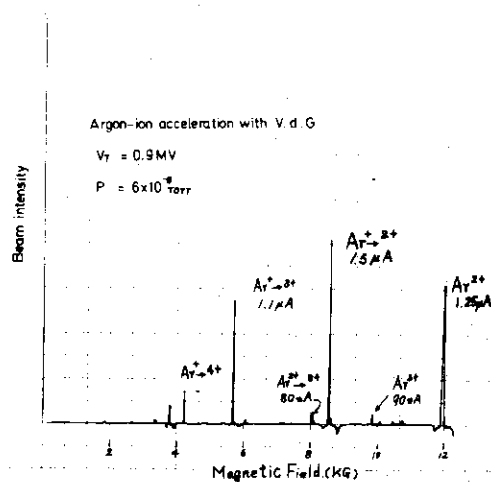


Fig. 4 Intensity of analysed argon beams accelerated at terminal voltage of 0.9 MV.

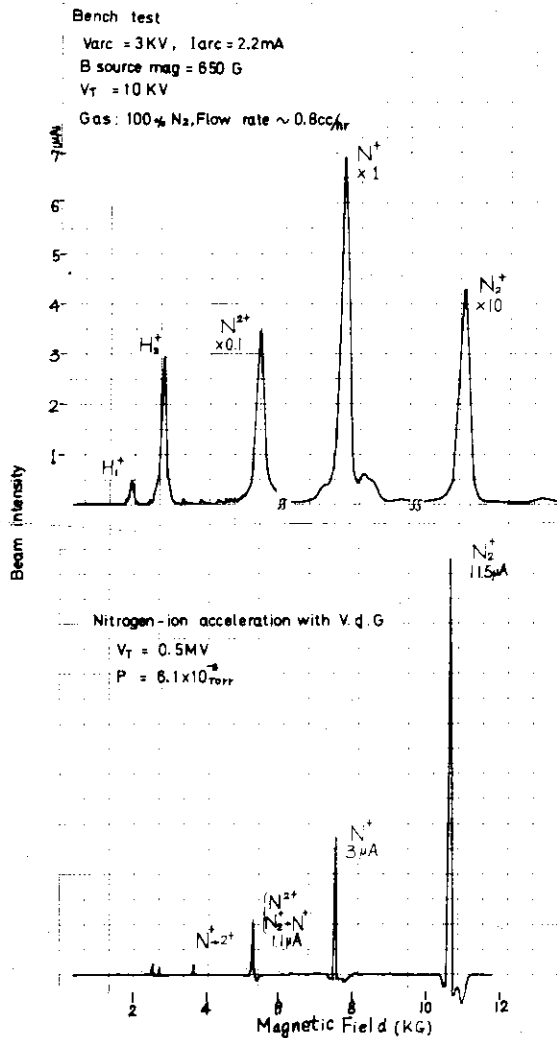


Fig. 5 Comparison between beam intensities of nitrogen ions by a bench test and those from a Van de Graaff accelerator.

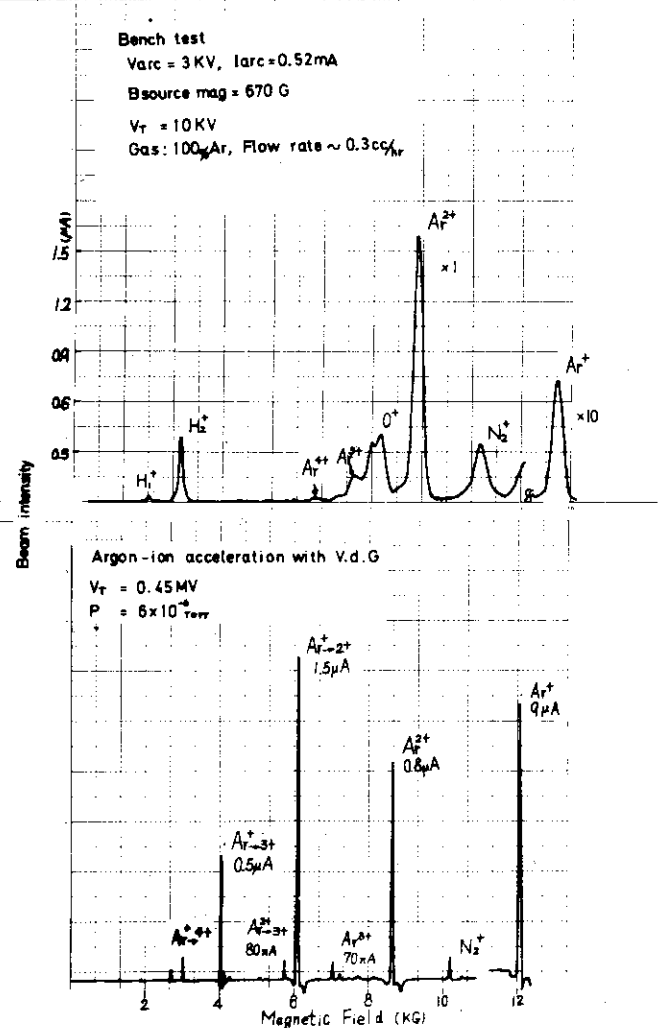


Fig. 6 Comparison between beam intensities of argon ions by a bench test and those from a Van de Graaff accelerator.

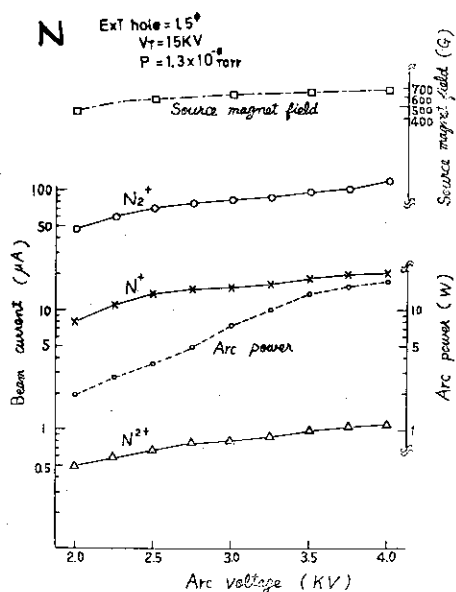


Fig. 7 Beam currents of nitrogen ions vs. arc voltage.

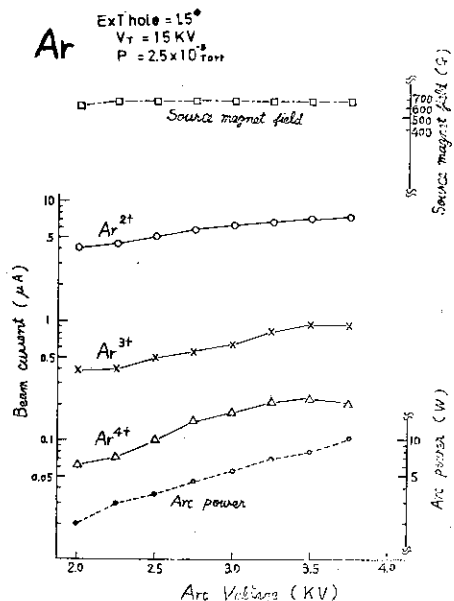


Fig. 8 Beam currents of argon ions vs. arc voltage.

2.4 タンデム静電加速器の重イオン源

東京教育大学理学部 山内 幹雄
(東京都文京区大塚 3-29-1)

Ion Sources for Negative Heavy Ions

Mikio YAMANOUCHI
(Dept. of Physics, Tokyo University of Education,
Otsuka, Bunkyo-ku, Tokyo)

A negative heavy ion source recently developed by R. Middleton and C.T. Adams is reviewed briefly. Some measures are proposed to improve the ion source. A pilot ion source has been constructed in our laboratory and the investigation is in progress. Characteristic curves of an ion gun equipped with a front-feed-type ionizer are presented. Although the result is not conclusive yet, the front-feed-type ionizer seems promising for its simple structure and long life.

1. 緒言

タンデム静電加速器の重イオン源としては、これまで主として、気体プラズマ中からイオンを取出す方式のものが用いられてきたが、この種のイオン源では、元素または化合物を気体としてイオン源に導入する必要があるため、作り出せるイオンの種類は限られたものとなる。多種の重イオン生成が可能で、しかも充分なビーム電流が得られるものとしては、スパッタリング現象を利用したイオン源が知られている。タンデム型静電加速器の負イオン源としてはじめてスパッタリング・イオン源を試みたのは Hortig 等¹⁾であるが、最近 Purser²⁾ さらには Middleton と Adams³⁾ がこれに改良を加え、electron affinity が正值を示すほとんどすべての元素または化合物について、その負重イオンを生成し得る可能性を示唆している。

このショート・トークでは、Middleton-Adams の新しい形式のスパッタリング形負重イオン源（以下 MA イオン源と記す）の概要を紹介し、またわれわれの研究室で進められている同形式イオン源の開発研究について述べる。

2. MA イオン源

MA イオン源の構成を Fig. 1 に示す。図中 1 はイオン銃で、表面電離作用によりカリウム・イオンを生成し、スパッタリング・ターゲット、5 を衝撃している。2 は多孔質タングステン製の ionizer で 1500 K ほどの温度に保たれている。3 はカリウムの加熱炉である。5 からスパッタリングにより放出されたイオンは表面、4 に付着したカリウム被膜を通過する際に荷電交換し電極、6 の電場によって引出される。7 は気体導入口で、ここから水素、酸素などの気体を取入れ、4 の表面に吸着させ、これからイオンを生成するためのものである。8 は荷電交換能率を高めるために付加するアルカリ金属の加熱炉である。

Middleton 等は、Table 1 に示すように、このイオン源を使って各種イオンを生成し、その

数種についてはE N -タンデム（端子電圧4 MV）で加速試験をしている。

MAイオン源の特徴としてMiddleton等は、

- 1) 長寿命である。イオン銃はカリウム5 gチャージで1000時間以上、スパッタリング・ターゲットは100時間以上
- 2) スパッタリング・ターゲットの交換が容易である。Fig.1の9に示す回転板上にターゲットを取付け真空を破らずにターゲット交換ができる。
- 3) 真空排気系の負荷が極めて小である。気体を導入せずに使う場合はもちろんであるが、さらに、カリウムがゲッターとして作用し残留気体を吸着する。
- 4) 消費電力が小である。Table 1のビーム出力を得るのに要する電力は、400W。
- 5) 操作が簡単で、かつ動作は安定している。イオン源として調整するものは、加熱炉とionizerの温度のみである。なお、ionizerの効率の温度依存性は、一定温度以上では実用上無視できる。の諸点をあげている。このうち、第3項のクレイナ・イオン源であるということは、端子電圧10MVをこす静電加速器で重イオンを加速する場合最大の利点と考える。

3. MAイオン源の改良

MAイオン源には前述のような利点があるが、Middleton等も認めているように、未だ開発途上のもので改善すべき余地を残している。改善すべき主な点は、

- 1) イオン銃およびスパッタリング・ターゲットの寿命を向上させること。
- 2) スパッタリング効率を高めるため、衝撃粒子として K^+ にかえ Cs^+ を用いること。このことは、イオン銃の電力消費をさらに減少させる利点にもつながる。
- 3) 重イオン引出電極系（Fig. 1, 5-6）のイオン光学上の改善である。

われわれは以上の観点から、Fig. 2 に示す装置によりイオン源のベンチ・テストを進めている。その要点を列記すれば、

- 1) イオン銃のionizerとしてFig. 2に示すfront-feed形のものをを用い、イオン銃の寿命増加をはかる。WilsonとBrewer⁴⁾によれば、多孔質タングステンは高温で目づまりを生じるため、front feedの方が有利であるとされている。また、front-feed形ではionizer部のアルカリ金属蒸気の通過率を、多孔質タングステンにくらべはるかに大きくとれるためFig. 1, 8に示す付加熱は不要となろう。
- 2) Cs^+ を衝撃粒子として使用することにより、 K^+ に比し約2.5倍のスパッタリング効率向上が期待される⁵⁾。この場合、セシウム加熱炉および重イオン・ビーム取出口に設けるセシウム・トラップの安全な取扱法を確立する必要がある。
- 3) ターゲットの寿命を増加する方法としては、衝撃粒子ビームを円形に偏向してターゲットに当てる偏向器（Fig. 2, 6）を設ける。この方法は、偏向円の半径を変化させることにより、重イオン引出し電場に対し、最適の衝撃位置を求めるにも有効である。の諸点である。

4. Front feed形イオン銃の出力特性

これまでに各種形状の異なるfront-feed形イオン源を試作し特性試験を行ってきたが、その代表例をFig. 3に示す。電流値は、スパッタリング・ターゲットの位置にファラデー・カップを置いて測定したものである。このイオン銃では、ionizerは厚さ0.3 mm.のタングステン円板で、直

径15mmのものをを用いている。 Cs^+ のイオン電流1 mAのとき、セシウム炉およびionizerの加熱用電力はそれぞれ30Wおよび270Wである。セシウムの消費量は1gで100時間程度と推定される。長時間にわたる寿命試験はまだ行っていないが、30時間使用後の銃を分解して調べた場合、ionizerの変形、腐蝕などは全く見られなかった。

われわれの重イオン源開発は緒についたばかりの段階であって、イオン銃についても、なお検討すべき問題が残されているが、front-feed形ionizerの使用は、その構造が単純であること、堅牢であることから見て極めて有効であると考ええる。

現在、前述の計画に従って研究を進めているが、同学諸兄の御教示、御鞭撻をまつものである。

References

- 1) Hortig G., Mokler P. and Müller M.: Zeits. f. Phys., 210, 312 (1968). Müller M. and Hortig G.: IEEE Trans. NS-16, 38 (1968)
- 2) Purser K. H.: IEEE Trans. NS-20, 136 (1973)
- 3) Middleton R. and Adams C. T.: Private comun. (1973)
- 4) Wilson R. G. and Brewer G. R.: "Ion Beams with Applications to Ion Implantation", John Wiley & Sons, 74 (1973)
- 5) Almén O. and Bruce G.: Nucl. Instr. Methods, 11, 279 (1961)

Table 1. Negative heavy ions produced with
Middleton-Adams ion source.

Ions	Ion current (μA)	Accelerated beam current (μA)	Remarks
H^- , D^-	10--15		Gas feed, 10 atm. cc/hr
D^-	3	0.75 ^a	a: Analyzed d^+ beam. Target deuterium was absorbed in Ti cone.
Li^-	--2		
B^-	1	0.25 ^b	b: Analyzed $^{10}B^{3+}$ Beam.
C^-	20		
O^-	100		Gas feed, 2--50 atm. cc/hr
Ca^-	0.5		
Ti^-	1		
Fe^-	1		
Ni^-	1		
Cu^-	2.5		Analyzed $^{63}Cu^{4+}$, 0.2 μA , $^{65}Cu^{4+}$, 0.08 μA
Au^-	3		
Bi^-	0.2		

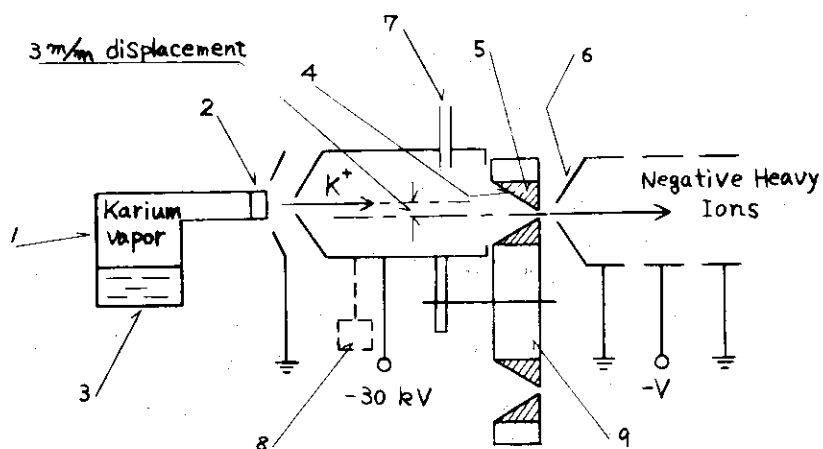


Fig. 1 Schematic diagram of the Middleton-Adams ion source. 1 ion gun, 2 porous tungsten ionizer, 3 potassium vaporizer, 4 surface of sputtering target, 5 sputtering target, 6 heavy ion extraction electrode, 7 gas inlet, 8 auxiliary vaporizer and 9 rotating wheel.

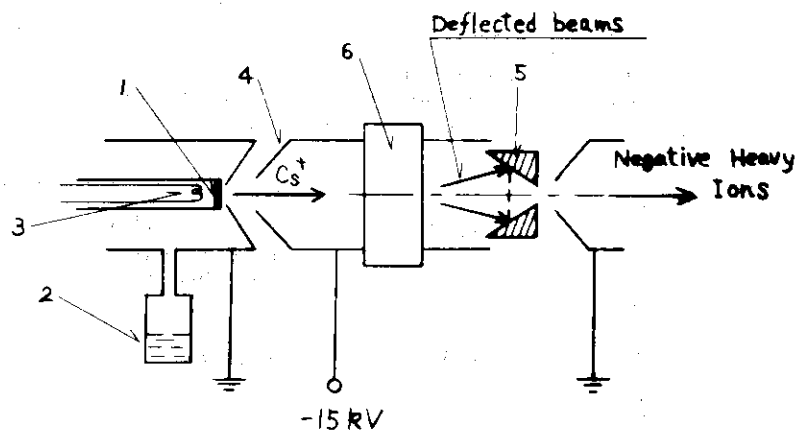


Fig. 2 Schematic diagram of the pilot apparatus for heavy ion production. 1 tungsten-plate ionizer, 2 Cs vaporizer, 3 ionizer heater, 4 extraction electrode, 5 sputtering target and 6 circular deflector.

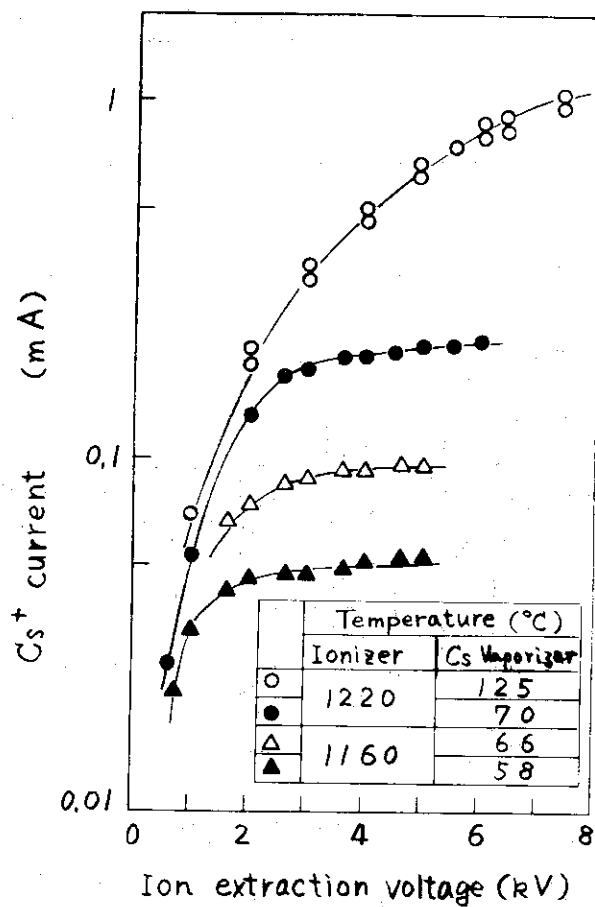


Fig. 3 Characteristic curves of the front-feed-type Cs ion gun.

2.5 理研重イオン源とサイクロトロンでの重イオン加速

理化学研究所 河野 功
(埼玉県和光市広沢 2-1)

Performance of Multiply-charged Heavy Ion Source and Acceleration of Heavy Ions in the IPCR Cyclotron

Isao KOHNO
(The Institute of Physical and Chemical Research,
Wako-shi, Saitama)

The design and performance of the multiply-charged heavy ion source which is now used in the IPCR cyclotron are described. At present, C^{4+} , N^{4+} , O^{4+} and O^{5+} ions are produced in the source and accelerated in the ranges of energies 48~100, 56~100, 70~95 and 70~125 MeV respectively, by the cyclotron. Production of multiply-charged ions of Ne, Ar, Kr and Xe has been studied by use of this ion source. Several ions, such as Ne^{4+} , Ne^{5+} , Ar^{6+} , Ar^{7+} , Ar^{8+} , Kr^{7+} , Kr^{8+} , Kr^{9+} , Xe^{9+} , Xe^{10+} and Xe^{11+} have been observed.

1. 序

理研160cmサイクロトロンは、その磁場を5kGないし20kGに、周波数を約5MHzないし13MHzに変えられるように作られている。従って種々な質量対荷電の比(M/q)を持つ粒子が、Fig. 1に示されるエネルギー範囲で加速される。これらの中、C, N, Oなどの重イオンの加速は、後に述べる重イオン源の開発と併行して、1966年の秋から開始され、現在では加速されたC, Nイオンを各種方面の実験に供し、それがサイクロトロン使用時間の殆どを占めている。その後、重イオン源の性能試験のため、Ar, Kr, Xeなどのより重い重イオンをサイクロトロンによって高調波加速させ、それら重いイオンの多荷イオン生成に関する知識も得た。ここでは、このサイクロトロン用の多荷イオン源と、上に述べた各種重イオンのサイクロトロンによる加速の様子について述べる。

2. 重イオン源

2.1 重イオン源の概要

重イオン源にはソ連のDubna研究所のサイクロトロンに使用されているMorozov¹⁾達の開発したと同型のものを用いた。その断面図をFig. 2に示す。フィラメントからの熱電子が約1.4kV, 0.5Aの電子流となり、上部陰極を衝撃して、それを加熱し、陰極の反対側から熱電子を放出させる。後は普通のPIG放電と同じで、上下の陰極の間に放電によるプラズマ柱を作り、ここで中性ガスをイオン化して多荷イオンを作る。イオンの引き出しは陽極円筒の横にスリット状の孔を開けて、ここから行う。アーク放電の電圧は約250V~500V, 電流は3A~7A, アーク電力としては1kW~3kWである。また、ガスの導入は陽極円筒の側面から行われ、流入量はガスの種類によって異なるが、普通0.5cc/min~1.5cc/min(標準圧力)であった。イオン源の寿命は、上部陰極の消耗によって決まっているが、平均して約24時間である。いいかえれば、24時間の点灯により上

部陰極（タングステン製， $10\text{mm}\phi\times 10\text{mm}$ ）に上下に貫通する孔が開き，イオン源の寿命が終った。但し，このイオン源は約1時間の作業で陰極を交換し，スパッタした汚れを落として再び使用に供し得る。陽極は純水で冷却された銅で作られ，引き出しスリットはモリブデン製である。

2.2 重イオン源の動作状態

上に述べた重イオン源でFig.1に示した領域で加速し得るような多荷イオンを沢山生成するには，アーク電力とガス流入量が最も大きく関係する。アーク電力についてはFig.3(a)，(b)に示すようにアーク電力が大きい程多荷イオンの量が多い。また，同じアーク電力の時にはガス流入量が少い程多荷イオンの量が多くなる。(Fig.4) しかし，ガス流入量はあまり減らすとアーク放電が消えてしまう。実際にこのイオン源で得られた多荷イオンは C^{4+} ， N^{4+} ， N^{5+} ， O^{4+} ， O^{5+} などで，さらに重いAr，Krなどの生成された多荷イオンと，その相対的な量はFig.5に示す。

3. 重イオン加速

サイクロトロンで多荷重イオンを加速する時，勿論，磁場と周波数と M/q の間のサイクロトロン条件を満たさなければならないが，陽子(p)， α 粒子に比べて特に問題となるのは，残留ガスとイオンとの衝突で起こる荷電変換による損失である。例えば， C^{4+} ， N^{4+} イオンが，3ないし5 MeV/nucleonに加速されている時，それらが C^{5+} ， N^{5+} になる荷電変換断面積は $0.5\sim 1.0\times 10^{-17}\text{cm}^2$ であり，サイクロトロン内で走る距離が数100mなので，加速中の損失を減らすには少くとも 5×10^{-6} Torr以下の真空中に保たなければならない。この損失の様子をFig.6に示す。

サイクロトロンで粒子を加速するとき，周波数を固定して磁場の強さを変えると，その磁場の強さに対応してサイクロトロン条件を満たす M/q の値の粒子が加速される。従ってイオン源を点灯して，磁場の強さを変えていき，ある半径のところで加速されてきたイオンを測定していると，イオン源からoutputされる各種イオンの M/q スペクトルが得られる。この方法で測定したArガスの場合の M/q スペクトルをFig.7に示す。この中 Ar^{8+} のみがnormal modeによる加速で，他は3倍または5倍高調波により加速されたものである。理研の普通型サイクロトロンでは，これら高調波加速のものはサイクロトロンから取り出せない。また， Ar^{8+} イオンもdeflector電圧の関係から取り出すことができない。Ne，Ar，Kr，Xeガスについても同様な測定が行われたが，それらの結果をまとめて，Table 1に示す。そこには別に現在加速，使用されているC，Nなどの取り出し後の強度についても示している。

終りに，理研サイクロトロンでの重イオン加速に関しての今後の課題は，高調波加速されたイオンを外に取り出すこと，および酸素より低い質量の他の元素の多荷イオンを作り，サイクロトロンで加速させることである。

References

- 1) Morozov P.M., Makov B.N. and Ioffe M.S. : Atomnaya Energiya 2 272 (1957)
- 2) 理研サイクロトロンイオン源については
 Kohno I., Tonuma, T., Miyazawa Y., Nakajimas., Inoue T., Shimamura A. and Karasawa T. : Nucl. Instr. and Meth. 66 283 (1968).
 Miyazawa Y. et al. : Jap. J. Appl. Phys. 9 532 (1970).
 Miyazawa Y. et al. : IEEE Trans. on N. S. NS-19 No. 2 105 (1972).
 Kohno I. et al. : IEEE Trans. on N. S. NS-19 No. 2 109 (1972).
- 3) 理研の場合の荷電変換については,
 Tonuma T., Miyazawa Y., Karasawa T. : Jap. J. Appl. Phys. 9 1306 (1970).
 Tonuma T. et al. : J. Phys. Soc. Japan 34 148 (1973)

Table 1. Projectiles, energy range and particle yield.

Projectile	C ³⁺	C ⁴⁺	N ⁴⁺	N ⁵⁺	O ⁴⁺	O ⁵⁺
Energy (MeV)	48-75	48-100	56-100	56-125	70-95	70-125
Internal beam current* (μ A)	30	22	30	5	10	2.0
Extracted beam current (μ A)	5	4	5	1	2	0.4

*) Internal beam current was measured at the radius of 70 cm.

Internal beam current measured at the radius of 55 cm,

Particle	Arc		Charge State										
	V _a (V)	I _a (A)	2+	3+	4+	5+	6+	7+	8+	9+	10+	11+	
²⁰ Ne	380	5	12	7.5	0.55	0.04							
⁴⁰ Ar	400	4	10	7	1	0.1	0.052	0.035					
⁸⁴ Xr	420	7.3				0.65	0.26	0.11	0.04				
¹²⁹ Xe	400	7.5								0.15	0.04	0.01	

[mA]

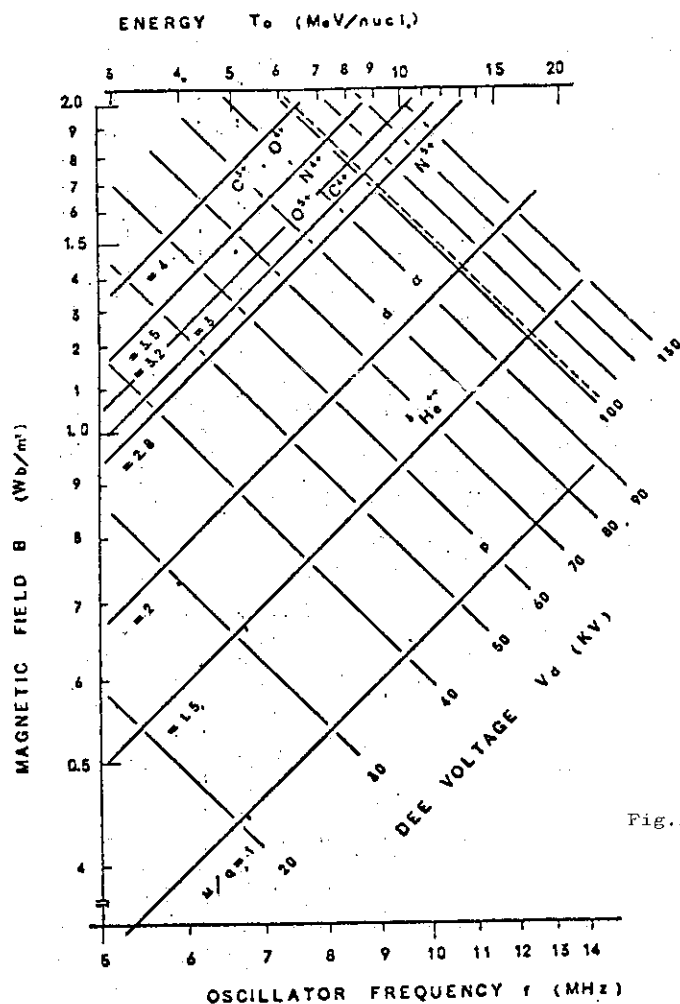


Fig.1. The resonance condition of IPCR 160 cm variable energy cyclotron. Radius of beam exit is 74 cm. The dotted line indicates the upper limit of dee voltage.

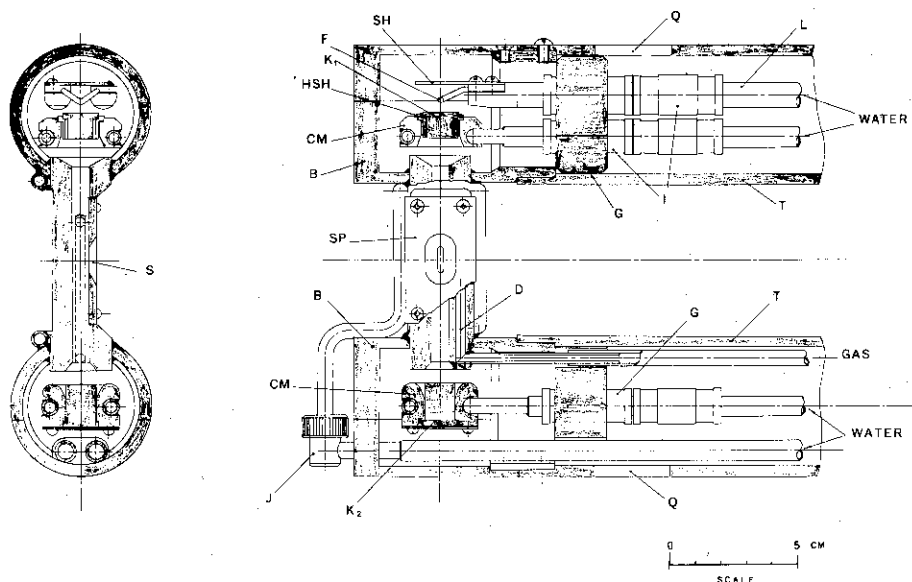


Fig. 2. Cross-sectional view of source.

- K₁ - hot cathode (W)
- K₂ - reflector cathode (W)
- CM - cathode mount (copper and water-cooled)
- HSH - cathode heat shield (W)
- SH - electron shield
- F - filament
- B - anode box (copper)
- SP - slit plate (M₀)

- S - source aperture
- D - distribution plenum
- Q - exhaust window
- I - insulator (steatite)
- J - cooled joint
- L - leading tube
- T - supporting tube
- G - copper spacer

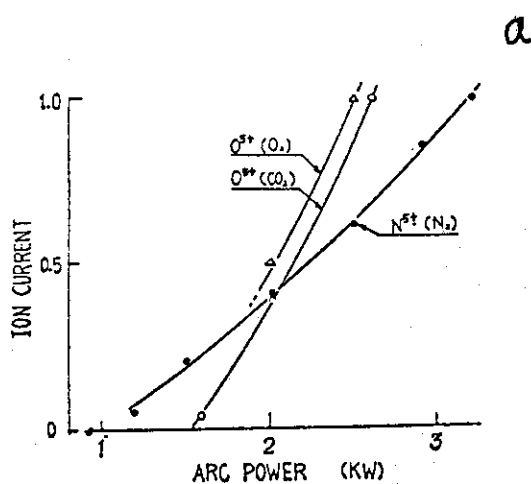


Fig.3(a) Ion current of N^{5+} and O^{5+} vs. arc power. Arc voltage is 400V.

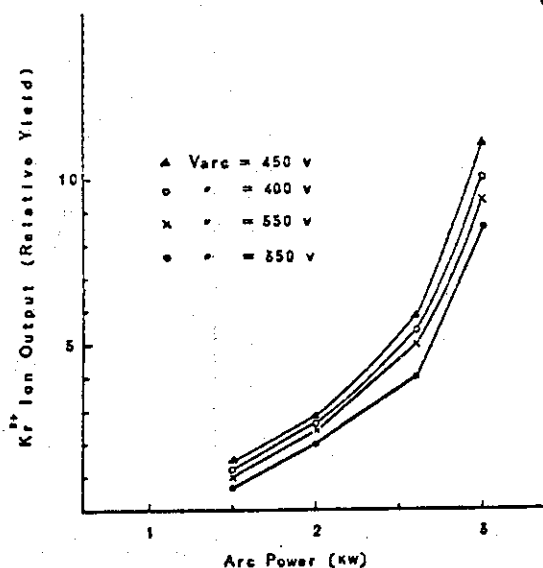


Fig.3(b) The Kr^{8+} ion relative yield vs. arc power. Kr gas flow rate is 0.5 cc/min.

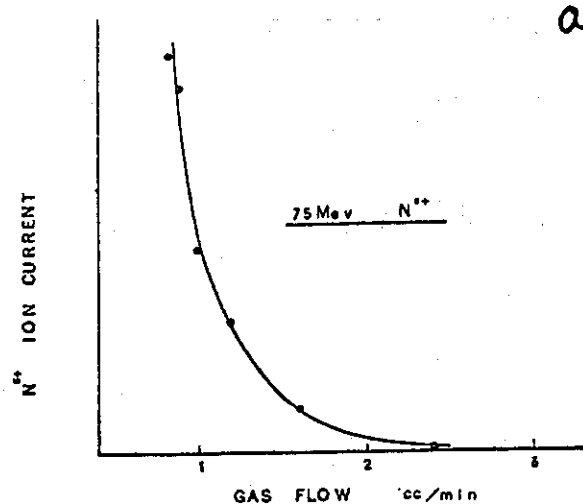


Fig.4(a) Ion current of N^{5+} vs. N_2 gas flow rate. Arc power is 2.5kW and the arc voltage is 400V.

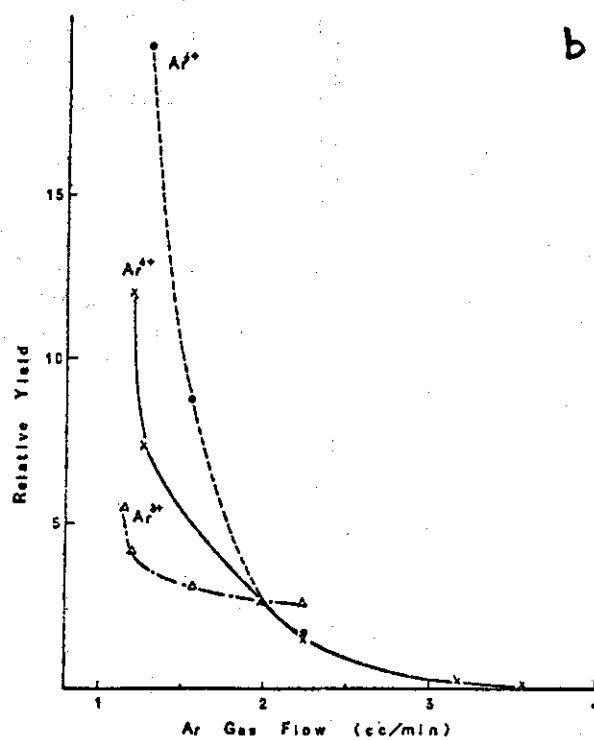


Fig.4(b) The Ar^{4+} , Ar^{6+} and Ar^{8+} relative yields vs. Ar gas flow rate. Each yield coincides with the value at 2 cc/min. Arc power = 450V x 5A

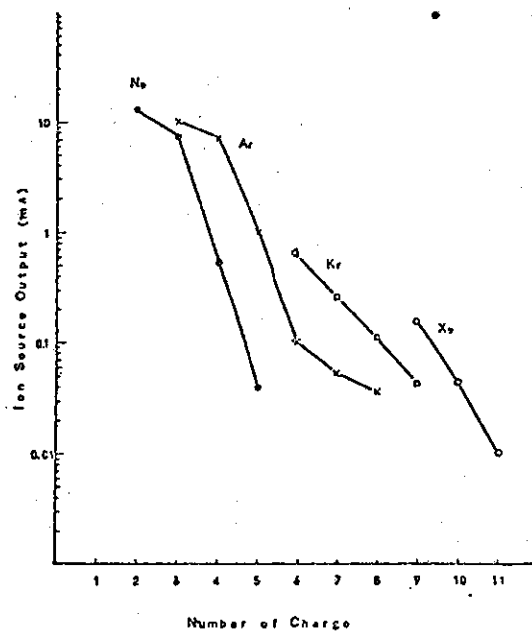


Fig. 5 Ion source output yields of Ne, Ar, Kr, and Xe charge states

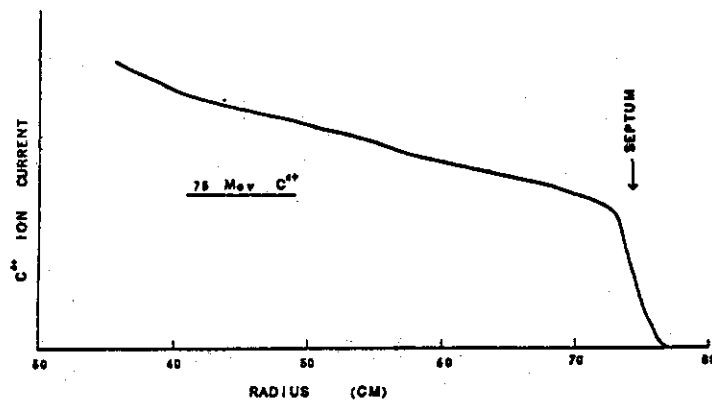


Fig. 6. Beam attenuation vs. radius. The pressure is 4×10^{-6} mmHg.

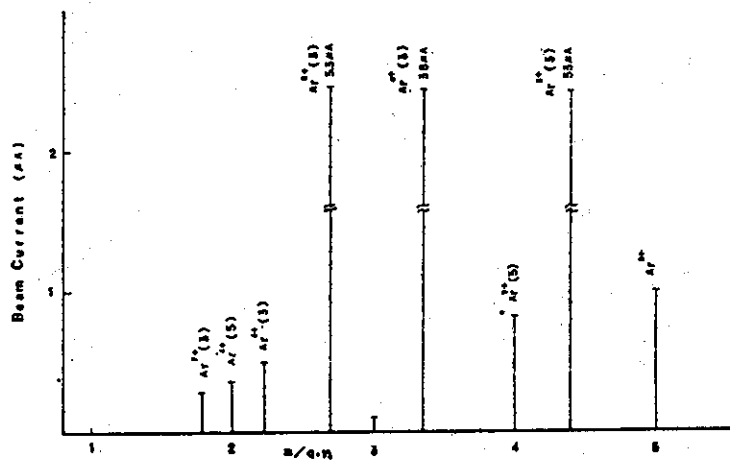


Fig. 7. The m/q spectrum of the ion beam when Ar gas was fed in the source. $f = 6.5$ MHz, $V_d = 40$ kV, arc power = 450 V $\times$ 5 A. n means a harmonic number of radio frequency.

2.6 レーザーによる多重電離イオンの発生

大阪大学工学部レーザー工学研究施設 山中 龍彦
 山中 千代衛
 (大阪府吹田市字山田上)

Production of Multiply Charged Ions by Laser Beams

Tatsuhiko YAMANAKA and Chiyoe YAMANAKA
 (Institute of Laser Engineering, Osaka University,
 Suita, Osaka)

The ionization of atoms in high temperature laser plasma is promising method from the point of view of obtaining multiply-charged ions and their use in accelerator injectors. High power laser system is briefly discussed. The properties of multiply ionized ions are surveyed. Ions with $z = 25$ have already been obtained by bombardment of high power glass laser to solid target.

1. まえがき

1960年のMaimanによるルビーレーザー¹⁾の発振成功以来電波と同じ性質を持った光(指向性, 可干渉性, スペクトル純度が高い)の発生が可能になり従来の光源では不可能であった光と物質の非線型相互作用の研究をはじめとする多くの新しい研究がレーザーを用いて行なわれるようになった。特に1961年のMcClung等によるQスイッチジャイアントパルス発振²⁾の成功はメガワット以上の光パルスの発生を可能にし電離をともなう光と物質の相互作用の研究の基礎を築いた。レーザー光による高温プラズマ発生³⁾, 核融合⁴⁾の研究が指向性と可干渉性をいかしたレーザーエネルギー応用の最も特長的なものである。またスペクトル純度と高輝度を利用した最近の注目すべき応用としてはレーザー光によるアイソトープ分離⁵⁾の研究がある。

レーザーによる多重電離イオンの発生^{6)~8)}はレーザーによる高温プラズマ発生研究の一環として行なわれて来たが, 現在では加速器用のイオン源として研究が行なわれている。多重重イオン発生は ^{209}Bi までテストされ, ^{27}Al で完全電離, ^{59}Co で25価のイオンまで得られている。

ここでは多重電離イオン発生に必要なレーザーの発生法を概略し, 多重イオン発生研究の現状について述べる。

2. 大出力レーザー

発振に成功しているレーザーの最高光子エネルギーは高々3 eVであるため直接の光電子で得られるイオンは一価のものまでである。このため非常に強いレーザー光を固体ターゲットに集中し, 多重光子吸収による電離, 逆制動吸収過程による電離, または光電界による直接電離によりプラズマを発生し, イオンを作る。プラズマ中でのイオンの荷電量はプラズマの温度に左右されるため, 多荷電離のイオンを発生するためには高温プラズマを作る必要がある。

現在開発されているレーザーで高温プラズマ発生用に利用出来る大出力レーザーは固体レーザーではガラスに添加した Nd^{3+} のエネルギーレベルを利用するガラスレーザーとルビー中の Cr^{3+} の

エネルギーレベルを利用するルビーレーザーである。ガラスレーザーの発振波長は 1.06μ ($\sim 1\text{ eV}$)、ルビーレーザーは 0.6943μ ($\sim 2\text{ eV}$) である。一方気体レーザーでは炭酸ガスの振動レベルを利用した炭酸ガスレーザーが高出力である。発振波長は 10.6μ ($\sim 0.1\text{ eV}$) である。Table 1 に大出力レーザーの性能を示す。ルビーレーザーが他のものに比して出力が小さいのは大型結晶が得られないためである。現在稼働中のガラスレーザーの最大出力は 250 J でパルス幅が 2 nsec である。また炭酸ガスレーザーは 1 kJ 、パルス幅 100 nsec ^{*} である。

2.1 大出力ガラスレーザー

2枚の反射鏡よりなる共振器中にレーザーガラスロッドを配置しXeランプで励起する普通レーザー系で得られる出力は高々数 100 kW であるため、Fig. 1 に示すような共振器中に高速光シャッターを配置したQスイッチレーザー^{**}を用い $10\text{ MW}\sim 50\text{ MW}$ 、パルス幅 $20\sim 50\text{ nsec}$ のレーザー光を発生し、レーザー増幅器により所要の出力まで増幅する。レーザー増幅器の増幅特性、プラズマ発生技術の面より発振段レーザー光は立上りの速い、ビーム発散角の小さい (1 mrad 程度)、単一横モード (TEM_{000} 、空間的にガウス分布をしたモード) のものが望ましい。このためQスイッチ発振器より得られたレーザー光をレーザートリガースパークギャップを発振段レーザー光で動作させ、電圧をポッケルセルシャッターに印加し、シャッター動作を起させ、レーザー光の立上り時間、パルス幅を制御し (PTM法という) 増幅段に送り出す。パルス幅は Fig. 1 のポッケルセルの終端短絡ケーブルの長さにより決まる。Fig. 2 にPTM法によりパルス整形したレーザーパルスを示す。

レーザー増幅器はレーザー素子中でのレーザー光強度をガラスの破壊耐力以内に保つように後段ほどガラスロッドの径を大きく取る。増幅段自体での自己発振を防止するためロッドの両端面をブリュスター角または数度の角度を持たせる。さらに増幅段各段のカップリングによるパラステック発振や強い蛍光増幅による蓄積エネルギーの損失を防止し、主パルスエネルギーと背景光のエネルギー比を大にするため増幅段間の距離を十分とりデカップル的手段を構ずる。またプラズマ生成時のプラズマからの反射レーザー光が増幅段を逆進増幅され、レーザー素子を破壊するためフラーデ回転子等による反射防止の手段を十分構ずる必要がある。Table 2 は大阪大学レーザー工学研究施設に設置されている出力 250 J 、 2 nsec のレーザーの特性を示す。

大出力固体レーザーは励起光吸収による温度上昇のため繰返しを上げることは困難である。安定な出力を得るには上記 250 J で $10\sim 20$ 分間隔の動作となる。しかし次に述べる炭酸ガスレーザーでは単時間運転で 100 P/S 程度まで可能となる。

2.2 大出力 CO_2 レーザー

CO_2 レーザーは He 、 N_2 、 CO_2 の混合気体の放電により CO_2 の分子振動レベルを励起し発振させるが、定常放電では高気圧動作を行なわせた場合の出力は動作気体を高速 (50 m/s 程度) で流した場合でも数 kW 程度である。このため尖頭出力の大きいレーザー光を得るにはレーザー発振軸と垂直方向のパルス放電を行ない大気圧の前後で動作させる。このようにすると出力数 MW 、パルス幅 100 nsec 程度のレーザー光が得られる。さらにパルス幅の狭いパルスを得るには励起速度

* 現在炭酸ガスレーザーの進歩はいちじるしく日々出力が更新されている。

** QスイッチレーザーのQスイッチ素子としてはFig. 1に示したポッケルセル光シャッターを用いる以外に全反射鏡を高速回転プリズムにおきかえたものや、光シャッターとして可飽和色素を用いたもの等多くの種類がある。

を速くし1気圧前後で動作させるとパルス幅数 nsec のパルスよりなるモード同期発振が得られる(ガラスレーザーでもモード同期発振は可能である)。モード同期パルスのパルス幅は動作圧力の関数となり圧力は高い程パルス幅は狭くなる。パルス幅制御はガラスレーザーの場合と同様PTM法により任意の幅のパルスを取り出すか、またパルス幅が制御されたモード同期パルス列中の1パルスをPTM法で取り出せばよい。この発振段パルスを増幅段に導き増幅する。増幅の方法はガラスレーザーの場合と同じである。気体レーザーはガス放電を利用するため繰返しが高いため加速器用のイオン発生用光源として有利である。問題は高気圧で安定なグロー放電をつけることである。

1気圧以下の放電は紫外線による予備電離を利用したり、アーク放電等により発生した電子を初期電子として安定なグロー放電を行なわせる。また1気圧以上では電子ビームを放電領域に導きこれを放電電子として主放電を行なわせる。特に電子ビーム励起を利用した電子ビーム励起CO₂レーザーは大容積を一樣に励起出来るため、大出力CO₂レーザーの増幅後段に用いられている。

3. 重イオン発生

発生イオンの電離度はプラズマの温度の関数であるためレーザープラズマの性質を調べる必要がある。

レーザー光のプラズマ中での吸収は高 z 原子プラズマの場合は逆制動吸収過程による。(水素のような低 z 原子プラズマでは電子温度数100 eV, レーザー光強度 10^{13} W/cm²以上でパラメトリック不安定性による異常吸収効果が主となるがこの場合は省略する。)この吸収過程による吸収係数 K_ν は

$$K_\nu = \frac{1.17 \times 10^{-8} z^2 n_e^2}{3\nu^2 (kT_e)^{3/2}} \frac{\ell n A}{(1 - \nu_p^2 / \nu^2)^{1/2}} \quad [\text{cm}^{-1}] \quad (\nu_p < \nu) \quad (1)$$

ここで ν は入射レーザー光周波数、 ν_p はプラズマ周波数、 kT_e はeVで表わした電子温度、 z はイオンの荷電量、 n_e は電子密度、 $\ell n A$ はSpitzerらにより与えられた衝突に関する補正係数で対象としているプラズマでは10程度である。(1)式より明らかなように吸収係数はレーザー光に対する遮断密度近傍で非常に大きくなり、 $(zn_e)^2$ に比例し、周波数の2乗、温度の $3/2$ 乗に逆比例する。また電子からイオンへのエネルギー輸送は密度に比例するから局所的にレーザー光を集中し高密度プラズマを作るのが有利である。

固体表面にレーザー光を集光照射***した時のレーザー光強度 I と発生プラズマの電子温度 T_e の関係は電磁流体的に取扱うことが出来る。

$$T_e \propto I^{2/3} \quad (2)$$

Fig. 4に示すように nsec 以上のパルス幅のレーザー光では発生プラズマの電子温度はパルス幅⁹⁾に影響されず、発生プラズマ量のみが変る。 z の大きい原子では電離エネルギーが大となるため(2)式の勾配は小さくなる。

*** ビーム発散角 θ のレーザー光を焦点距離 f のレンズで集光した時の焦点面上でのスポット径 d は $d = f\theta$ で与えられるため焦点距離の小さいレンズで集光することが望ましい。

発生プラズマのイオンエネルギー、荷電量はファラデーカップや静電型エネルギー分析器とtime of flightの併用により測定する。Fig. 5に示すように立上りの速いレーザーパルスで発生したプラズマでは電子温度が最内核電子の電離エネルギーに近ずくと、荷電量の大きいイオン数が荷電量の小さいイオン数よりも多くなる⁶⁾。しかしFig. 6に示すように立上りのゆるやかなレーザーを用いた場合は発生プラズマの膨張効果が大きくプラズマの温度が上らないために荷電量の多いイオン数の増加は期待出来ない⁸⁾。発生イオンの荷電量とエネルギーの関係はFig. 7に示すように荷電量の大きいイオンの方が大きく $z=20$ でイオンエネルギーは30 KeVにも達する。

発生イオンの空間分布はFig. 7に示すように荷電量の小さい低エネルギーイオンはほぼ半球対称になるが、荷電量の大きい高エネルギーイオンはレーザーの集光角内に発生する。Table 3にガラスレーザーにより発生した多重イオンの荷電量を示す。

4. むすび

入射レーザー光強度と電離度の関係の理論的取扱もされるようになったが、発生プラズマが非常に時間の短い、非平衡プラズマであるため正確に取扱うことが困難である。またレーザーエネルギーの応用研究は主にレーザーによる核融合の研究に精力が注がれこの方面の研究が手薄になっていた感がある。しかしレーザーの進歩とともに加速器用イオン源として期待出来る。

References

- (1) Maiman T. H. ; Nature 187, 493 (1960).
- (2) McClung F. J. and Hellwarth R. W. ; J. Appl. Phys. 33, 828 (1962)
- (3) Yamanaka, C. Yamanaka T. et al ; Phys. Rev. A 6, 2335 (1972)
- (4) 山中, 山中他 ; 電学誌 92-A, 561 (昭47)
- (5) Ambartzumian, R. V. et al. ; Appl. Opt. 11, 354 (1972)
- (6) Kang, H. B. Yamanaka T. et al. ; J. Phys. Soc. Japan. 34, 504 (1973)
- (7) Ananin O. B. et al. ; JETP Lett. 16, 384 (1972), *ibid* 11, 252 (1970)
- (8) Ananin O. B. et al. ; Soviet Phys. JETP 33, 706 (1971)
- (9) Waki M., Yamanaka T. et al. ; Japan. J. Appl. Phys. 11, 420 (1972)
- (10) 稲場他編 ; レーザーハンドブック 朝倉書店 (1973)

Table 1. Property of high power laser

Laser (wave length)		Energy	Pulse width	Repetition	Beam divergence (rad)	Efficiency (%)
CO laser (10.6 μ m)	cw	25kW				
	Pulse	800MW	80 ns	10/s	10^{-3}	10~25%
Glass laser (10.6 μ m)		1kJ	1ms		10^{-3}	5%
		500J	30ns	20~1/min	2×10^{-4}	0.1~0.2%
		250J	2ns		10^{-3}	0.1~0.2%
		10~30J	10~1ps		?	?
Ruby laser (694.3nm)		30J	500 μ s	1/s	10^{-2}	0.2%
		3J	30ns	1/4s	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	0.1%
		1J	30ns	1/4s	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	0.1%
YAG laser (1.06 μ m)	cw	20W			10^{-1}	
	Pulse	0.1J	25ns	50/s	10^{-2}	

Table 2. Properties of 250J-2nsec glass laser system

		Oscillator Section			Amplifier Section					Booster Section	
		TEM ₀₀ Preamp			I	II	III	IV	V	Preamp	Disc Laser
		Osc	I	II							
Glass		LGG11	LGG11	LGG11	LGG11	LGG11	LGG11	LGG11	LGG11	LSG91	LSG91 H
Nd ³⁺ (wt%)		3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	1.5	3
Glass size		10 ϕ $\times 150$ l	10 ϕ $\times 150$ l	15 ϕ $\times 330$ l	20 ϕ $\times 330$ l	20 ϕ $\times 330$ l	30 ϕ $\times 330$ l	30 ϕ $\times 330$ l	40 ϕ $\times 600$ l	60 ϕ $\times 400$ l	80 ϕ $\times 25$ t $\times 12$
Flash Lamp		1	1	1	4	4	6	6	10	10	30
Pump. Energy(kJ) (Max. Pump. E.)		0.8 (2)	1 (2)	4.3 (6)	11 (20)	11 (20)	17 (30)	17 (30)	72 (200)	40 (100)	140 (300)
Gain			3	6	16	14	10	6	5	2.4	2
Power (MW)	Inp.		0.3	0.9	2	20	180	1.5×10^3	5×10^3	2.5×10^4	6×10^4
	Outp.		0.3	0.9	5.4	32	280	1.8×10^3	6.7×10^3	2.5×10^4	6×10^4 1.2×10^5

Table 3. Production of multiply charged ions

Targets	⁹ ₄ Be	¹² ₆ C	²⁷ ₁₃ Al	⁵⁹ ₂₇ Co	^{107~109} ₄₇ Ag	¹⁸¹ ₇₃ Ta	¹⁸⁴ ₇₄ W	²⁰⁹ ₈₃ Bi
Max z	4	6	13	25	16	20	19	19
Laser intensity W cm ⁻²	$\approx 10^{13}$							
Laser pulse shape								
Focal spot	d = 0.01~0.1 cm							

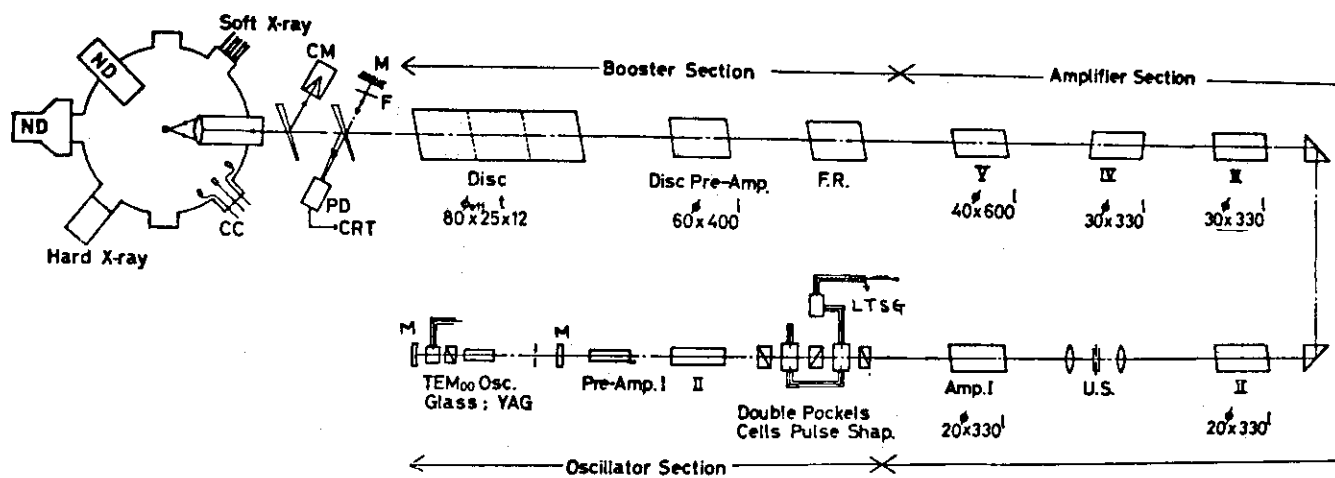


Fig. 1 High power glass laser system.

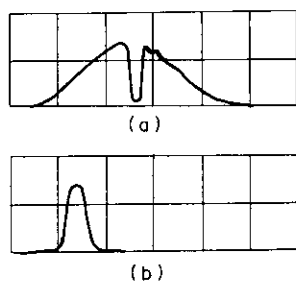


Fig. 2 Laser pulse tailored by PTM method.
 (a) Laser pulse at LTSG. 10 nsec/div.
 (b) Tailored pulse. 5 nsec/div.

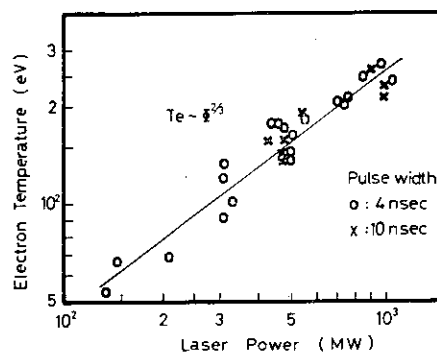


Fig. 3 Electron temperature versus laser power.
 Target; $(\text{CH}_2)_n$, laser; glass laser

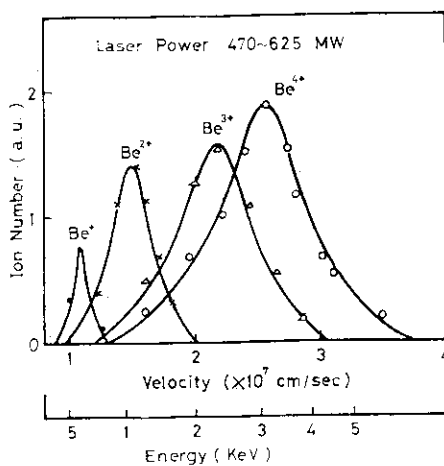


Fig. 4 Energy distribution of Be ions.
 $T_e \approx 250 \sim 300$ eV.
 Laser; glass laser,
 pulse width; 2 nsec.

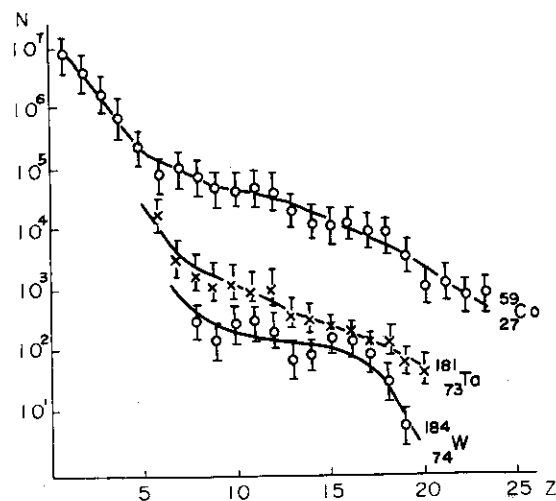


Fig. 5. Number of recorded ions as a function
 of charge for laser intensity
 $10^{13} \text{ W cm}^{-2}$.
 Laser; glass laser, pulse width; 15 nsec.

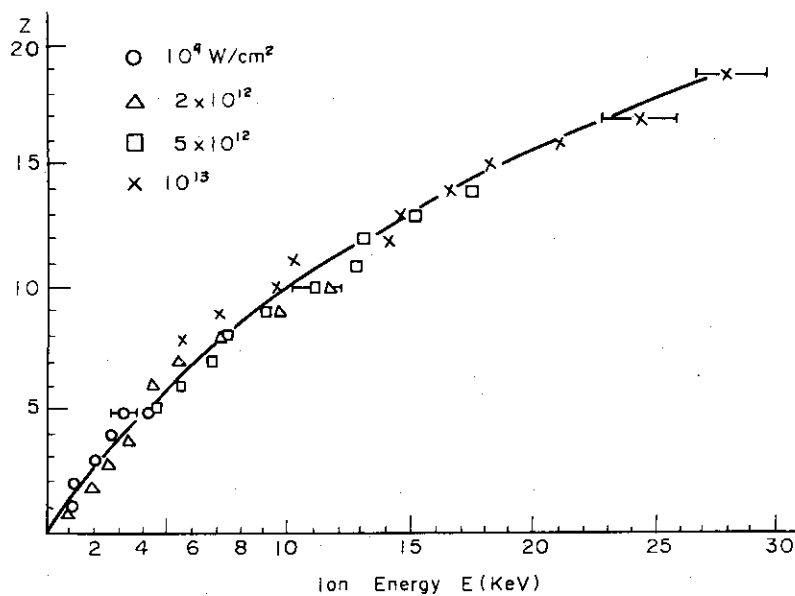


Fig. 6 Energy of $^{184}_{74}\text{W}$ ions as a function of charge per ion for different values of laser intensity. Laser; glass laser, pulse width; 15 nsec.

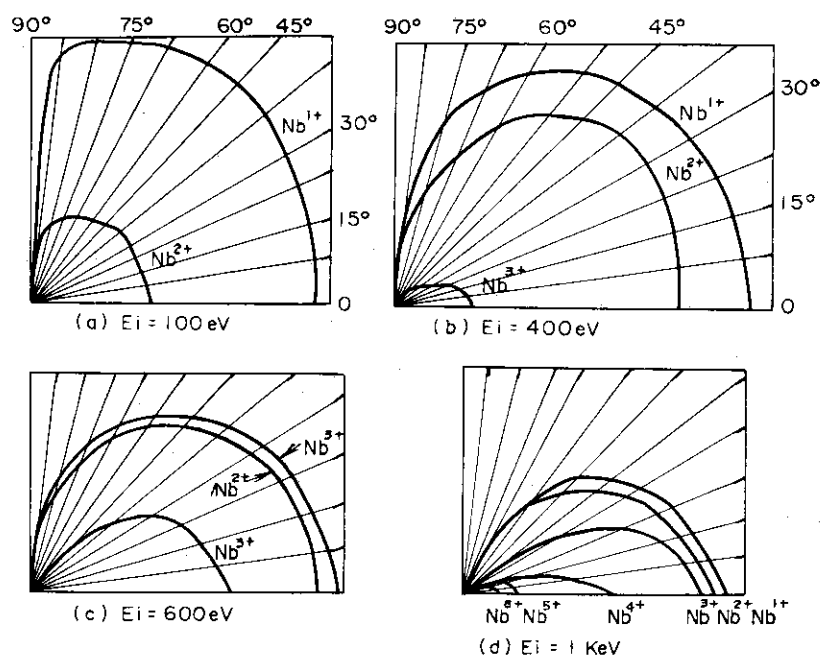


Fig. 7 Angular distribution of ions of different energy ($^{93}_{41}\text{Nb}$). Laser; glass laser, pulse width; 15 nsec.

2.7 京都ビーム・プラズマ型イオン源

京都大学工学部 高木 俊 宜, 山 田 公
石 川 順 三
(京都市左京区吉田本町)

Kyoto Beam-Plasma Type Ion Source

Toshinori TAKAGI, Isao YAMADA and Junzo ISHIKAWA
(Department of Electronics, Kyoto University,
Yoshida, Kyoto)

A new beam-plasma type ion source has been designed and evaluated to obtain a high density and high current ion beam. A highly dense plasma which is stable in density is produced by a beam-plasma discharge, in which the gas is ionized very effectively by the microwave power of the electron beam through the beam-plasma interactions. In our experimental apparatus the plasma density of about 10^{11}cm^{-3} has been obtained. This value will increase by a factor of $10^1 - 10^2$ with the electron beam current and the magnetic field. This suggests that an ampere of ion beam can be obtained by the ion source in the proper operation. The electron beam is injected near the ion extractor, resulting in both a high intensity and highly neutralized, well confined ion beam. The very low normalized emittance of 3.8×10^{-8} rad.m was obtained for the 1 mA ion beam. The operation for the multiply-charged ion source is also given.

1. まえがき

近年の物理工学の発展に伴い核物理学を始めとした核融合, 宇宙推進機関, イオン注入などの各分野において水素から重い元素にわたるあらゆる元素のイオンが必要とされるようになった。従来各種イオン源が開発されてきているがこれら各分野の要求を十分満たすとは云えず, 当面 (i) 高密度大電力イオン源, (ii) 多価, 重イオン源, (iii) 超高温動作イオン源, (iv) イオン化プレーティングやイオン加工のようなイオン工学的表面処理技術に適したイオン源などの開発が必要とされている。当研究室ではその目的に添って (a) 高密度大電流イオンビームを得ることを目的とした「ビームプラズマ型イオン源」¹⁾ (b) 重イオン源として高温動作可能な「電子衝撃型メタルイオン源」²⁾ (c) イオン化プレーティングを目的とした「金属蒸気クラスタイオン源」³⁾ の3種のイオン源を開発中である。こゝでは2~3価の多価重イオン源としても興味あるビームプラズマ型イオン源についてその動作原理と合わせて動特性を略述する。

2. イオン源の構造

高密度大電流イオンを得るためにはイオン源内において高密度のプラズマが得られることおよびプラズマからの効果的なイオンの引出しがおこなわれることが必要である。ビームプラズマ型イオンはイオン引出し方向から電子ビームを入射させることによって, ビームプラズマ電離による高密度プラズマの生成と, 電子ビームの負の空間電荷によるイオンビーム空間電荷中和効果を用いた有効なイオン引出しにより大電流イオンビームを引出すことが可能である。したがって大電力イオン源に適し

た新しい形のイオン源と云える。Fig. 1 (a)に示すように円筒形状を持つ陰極から放出される電子ビームは集束磁界中に存在する細いドリフト管内に入射すると、ドリフト空間に存在するプラズマ相互作用を起こし、適当な条件の下では不安定性による高周波振動 (2~10 GHz) が発生する。この高周波振動によりガスの電離が助成されプラズマ密度は単に電子ビームの衝突電離による場合の $10^2 \sim 10^3$ 倍に達する。⁴⁾このような新しい電離機構をわれわれは“ビームプラズマ電離”と称している。ドリフト管内に得られた高密度プラズマ中のイオンは入射電子ビームの作る負の電位の谷に捕獲されて集束性の良いイオンビームとなって陰極円筒を通過する。

3. ビームプラズマ電離

グローやアーク放電を利用するイオン源ではイオンの生成は単に一次電子の衝突電離による比較的簡単な電離機構を持つ。ビームプラズマ電離ではFig. 1 (b)に示すように一次電子のエネルギーはビームプラズマ相互作用を通じて高周波電磁界に変換され、これが電子サイクロトロン共鳴吸収過程等を経てプラズマ電子が加熱される。主要な電離はプラズマ中で高エネルギーを持った電子によってなされる。この電離現象において直流エネルギーからマイクロ波領域の高周波エネルギーへの変換過程であるビームプラズマ相互作用は電離効率を左右する重要な過程であるが、これが磁界や電子ビーム電圧、電流などの外部条件の関数であるばかりでなくプラズマ密度の関数でもあるため図に示すようにプラズマ生成過程の中に帰還ループを生じる。この帰還現象はビームプラズマ電離の性質を特徴づけるものである。

ビームプラズマ相互作用において電子ビームもプラズマも空間的に一様に分布し、冷たく粒子間の衝突が無視できると仮定して導かれる分散関係から、5種類の不安定性の存在が計算される。Fig. 2にこれらの不安定性A, B, ..., Eの特性量のプラズマ密度に対する変化を示す。A, C, Dは対流不安定性(convective instability)を示し波は時間的にではなく空間的に成長する。従って伝播定数の虚部が波の成長を決める重要な特性量となる。他方B, Eは絶対不安定性(absolute instability)を示し波は時間的に成長するため周波数の虚部が重要な特性量となる。⁵⁾これらの不安定性に伴う発振の生じ易さは上述の特性量を比較することにより判定できる。通常の動作条件では不安定性Bに伴う発振が最も生じ易いことが計算される。イオン源内で生じている発振周波数と波数を観測すると上述Bに伴う発振であることが確認された。Fig. 3に発振周波数の観測例を示す。主な観測周波数は $f_i = \sqrt{f_p^2 + f_{ce}^2}$ の近傍にある。ここに f_p , f_{ce} はそれぞれプラズマ周波数および電子サイクロトロン周波数をあらわす。また波数は磁界が600 Gauss, プラズマ密度が $1 \sim 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ のとき約 $2 \times 10^2 \text{ rad} \cdot \text{m}^{-1}$ であることが観測された。Fig. 2 (d)に示すように絶対不安定性Bによる発振の波の時間的な成長の割合を示す周波数の虚部 ω_{si} はあるプラズマ密度において極大値を持つ。一般に絶対不安定性においては、電子と中性ガスの衝突、高周波電界による電磁場およびクーロン場による衝突効果はその衝突周波数に比例して周波数の虚部の絶対値を小さくする傾向がある。このことを考慮するとイオン源内のプラズマ密度は一度発振が生じれば周波数の虚部が極大値を持つプラズマ密度 n_{max} 付近まで達して発振が定常に達すると考えられる。すなわちプラズマ密度を一定に保つ作用が自蔵されていると考えてもよい。また不安定性Bにより生じる発振はプラズマ電子とビーム電子との相互作用によるものであるためイオンの種類によらず周波数の虚部が極大値を示すプラズマ密度の値は変化しない。一方発振が開始するためには初期条件としてあるプラズマ密度が必要であるが、これを実現するにはコレクタから放出される電離能率の高い二次電子をド

リフト空間に注入したりガス圧を適当に設定することも必要である。Fig. 4に二次電子のエネルギーを決めるコレクタードリフト管間電圧 V_{cd} とプラズマ密度および引出されるイオン電流の関係を示す。 V_{cd} を増せば単に電子ビーム電流の衝突電離によってできるプラズマ密度に比べて400倍程度のプラズマ密度が得られる。このときのイオン生成はプラズマ中で高いエネルギーを持つ電子により主になされていることがプラズマ諸量の測定値から計算することができる。また測定された最大プラズマ密度 10^{11} cm^{-3} は磁界が1000 Gaussのとき周波数の虚部が最大値を示すプラズマ密度 $n_{\max}$ にほぼ一致する。

得られるプラズマ密度を大きくするためには $n_{\max}$ を大きくすると同時に発振を生じ易くするため ω_{si} の絶対値は大きい方がよい。ビームプラズマ相互作用に寄与する外部条件の磁界や電子ビーム電圧、電流を変化したときのプラズマ密度と ω_{si} との関係をFig. 5に示す。磁界を増加すれば $n_{\max}$ は増加するがプラズマ密度の低いときの $|\omega_{si}|$ が小さくなって発振が生じにくくなる。ビーム電圧の変化に対しても同様な変化を示す。ビーム電流の変化に対しては電流の1/2乗に比例して ω_{si} 曲線が平行に増加する。各パラメータの変化を考慮すると電圧を適当に設定すれば磁界と電流を共に増加させることによってビームプラズマ電離による高密度プラズマの得られることが期待できる。計算によればビーム電圧20~50 kV, 電流1~5 A, 磁界5~10 kGでプラズマ密度 $10^{12} \sim 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ が得られる。

4. イオンビームの引出し

引出されるイオン電流はプラズマ密度と電子温度によって計算される飽和イオン電流によって評価できる。飽和電流値が小さい場合にはイオン引出し方向から入射する電子ビームによる負の空間電荷によりイオンビームは完全に中和され良質のエミッタンスを持つビームとして引出される。飽和電流値が非常に大きい場合電子ビームにより中和されないイオンが存在するが、一般のイオン源におけるイオン引出しの場合に比べて同じ引出し電圧でより多くのイオン電流が引出せることや、電子ビームによるイオンビームの集束効果が加わりより集束性の良いイオンビームが引出せることは簡単な計算から推察できる。電子ビーム電流が50~100 mAのとき数mA~10数mA程度の水素イオン電流が得られている。さらに適当に動作させればより多くのイオン電流が引出せると考えられる。また前述の計算のように $10^{12} \sim 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ のプラズマ密度が得られればアンペア級のイオンビームを引出すことも可能であろう。1 mAの窒素イオン電流における規格化エミッタンスと規格化輝度はそれぞれ $3.8 \times 10^{-8} \text{ rad} \cdot \text{m}$, $1.48 \times 10^{11} \text{ A} \cdot \text{rad}^{-2} \cdot \text{m}^{-2}$ である。これは良質のイオンビームであることを示している。

5. 多価イオンの生成

ビームプラズマ型イオン源は適当に動作条件を変化させることによって多価イオン源として用いることができる。導入するガス圧を低くすればビームプラズマ電離においてはプラズマの電子温度が上昇するため多価イオンの生成確率が増すと共に中性分子との衝突による多価イオンの消滅も少なくなり多価イオン源として動作する。しかしビームプラズマ電離を起こすために中性ガス圧をあまり低くすることができないため価数の高いイオンの生成はあまり期待できないが、2, 3 価のイオン源として興味がある。Fig. 6 (a)にアルゴンの多価イオン特性を、Fig. 6 (b)に金属イオンとしてインジウムの多価イオン特性を示す。多価イオンを得る他の一つの方法はイオン源を2

段にする方法で、Fig. 1 (a) のコレクタ部分に前述の電子衝撃型メタルイオン源を載せ1価イオンをビームプラズマ型イオン源のドリフト空間に導入する。⁶⁾そこでビームプラズマ電離により段階的に価数を上げ多価イオンとなったビームが円筒カソードより引出される。多価イオン特性は電子衝撃型イオン源からの1価イオンのドリフト空間滞空時間により異なる。

6. むすび

ビームプラズマ型イオン源は外部からマイクロ波を導入する ECR (electron cyclotron resonance) イオン源⁷⁾などとは異なりイオン源内部でマイクロ波発振を起こすマイクロ波自蔵形マイクロ波加熱方式のイオン源といえる。イオンの生成引出しに電子ビームを効果的に使用し、ビームプラズマ電離による安定な高密度プラズマから集束性の良い大電流イオンビームを引出すことができ、大電力イオン源としての動作が可能である。また寿命を決める陰極部が高真空中にありイオン衝撃を受けないため長時間の連続運転が可能である特徴を持つ。

このイオン源は構造的には電子ビーム入射形であるが多価イオン源である電子ビームイオン源⁸⁾ (EBIS; electron beam ion source) とはイオンの生成引出し機構が共に異なっていることは注意する必要がある。

References

- 1) Takagi T., Yamada I., Ishikawa J. and Iwao H.: Papers of the Japan Society for the Promotion of Science 132nd Committee (1970); Record of 11th Symp. on Electron, Ion and Laser Beam Technol., Boulder, U.S.A., p.597(1971); Proc. Symp. on Ion Sources and Formation of Ion Beams, BNL, U.S.A., p.191 (1971); and 2nd Intern. Conf. on Ion Sources, Vienna, p.367 (1972).
- 2) Takagi T., Yamada I., Ishikawa J. and Fuyuki Y.: 2nd Intern. Conf. on Ion Sources, Vienna, p.784 (1972).
- 3) Takagi T., Yamada I., Kunori M. and Kobiyama S.: ibid, p.790.
- 4) Getty W. D. and Smullin L. D.: J. Appl. Phys., 34, 12, p.342 (1963).
- 5) Briggs R. J.: "Electron-Stream Interactions with Plasmas" MIT Press, Cambridge, Mass. (1964).
- 6) Takagi T., Yamada I. and Ishikawa J.: IEEE Trans. on N.S., NS-19, 2, p.142 (1972).
- 7) Bliman S., Geller R., Hess W., Jacquot B. and Jacquot C.: IEEE Trans. on N.S., NS-19, 2, p.200 (1972).
- 8) Donets E. D., Ilyushchenko V. I. and Alpert V. A.: Joint Institute for Nuclear Research, P7-4124, Dubna (1968).

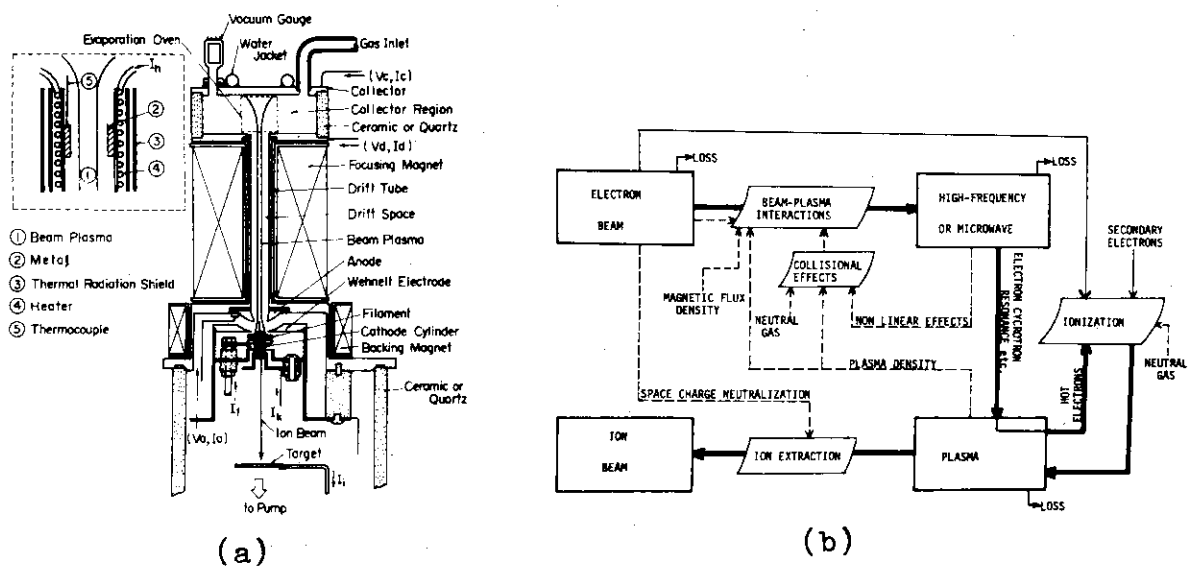


Fig. 1 Schematic diagram of beam-plasma type ion source (a), and energy-flow diagram for the ion source (b).

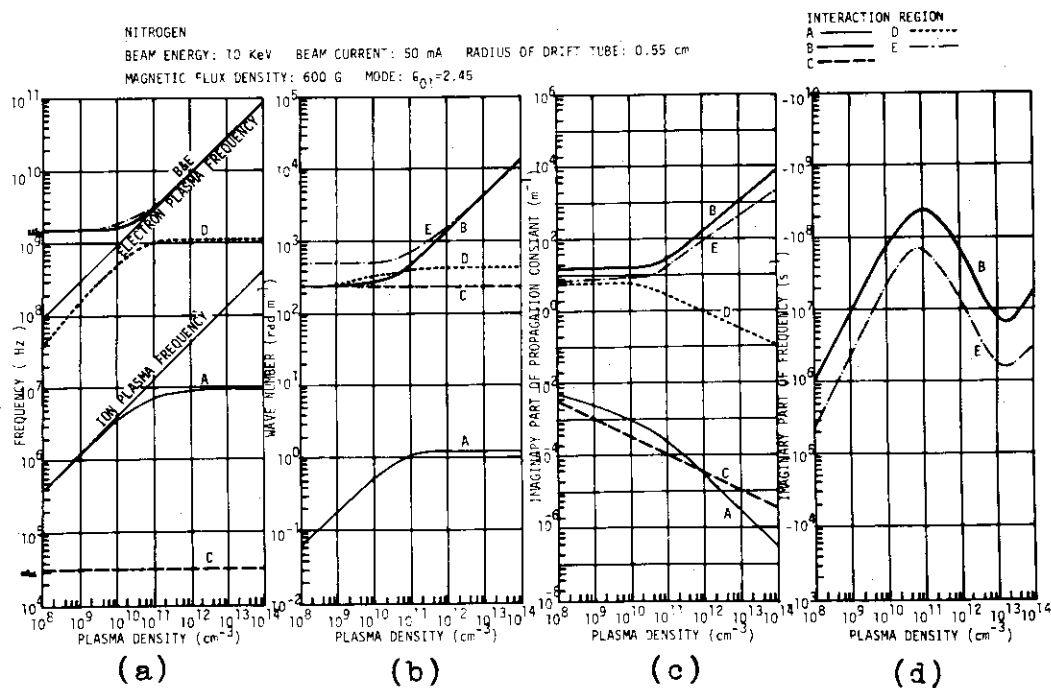


Fig. 2 Calculation of the real frequencies (a), the wave numbers (b), the imaginary parts of the propagation constants (c), and those of the frequencies (d) in the five interaction regions of A, B, C, D and E without collisional effects as a function of the plasma density.

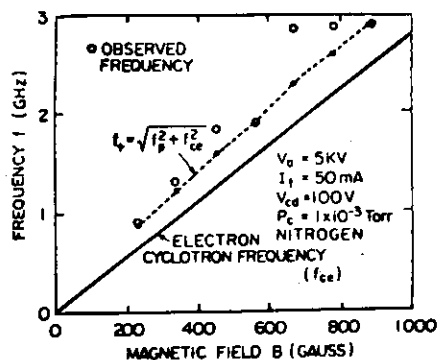


Fig. 3 Observed frequencies as a function of magnetic flux density in the drift tube.

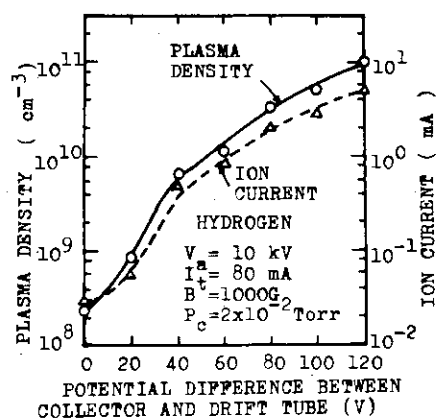


Fig. 4 Plasma-density and ion current characteristics as a function of potential difference between collector and drift tube.

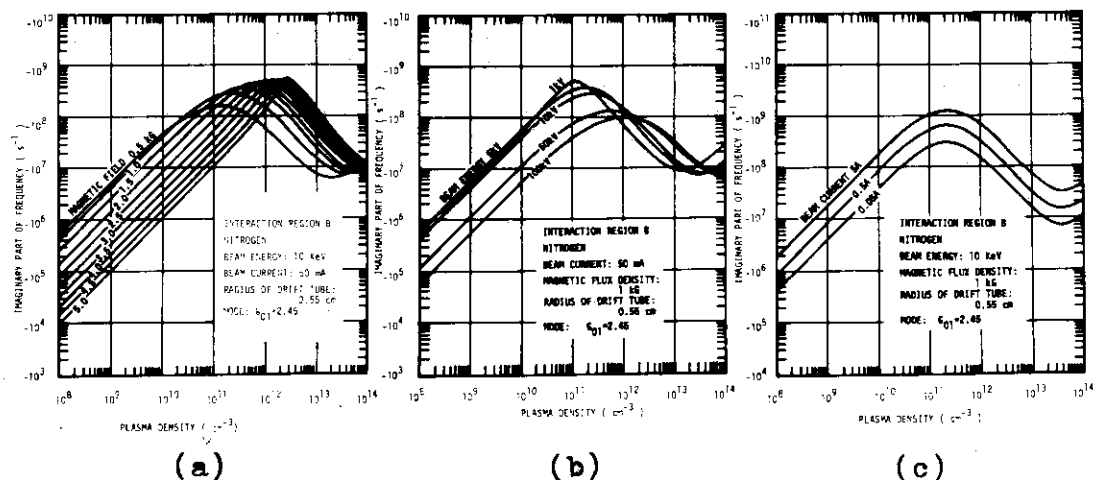


Fig. 5 Relations between the plasma density and the imaginary part of the frequency as a parameter of magnetic flux density (a), electron beam energy (b), and electron beam current (c).

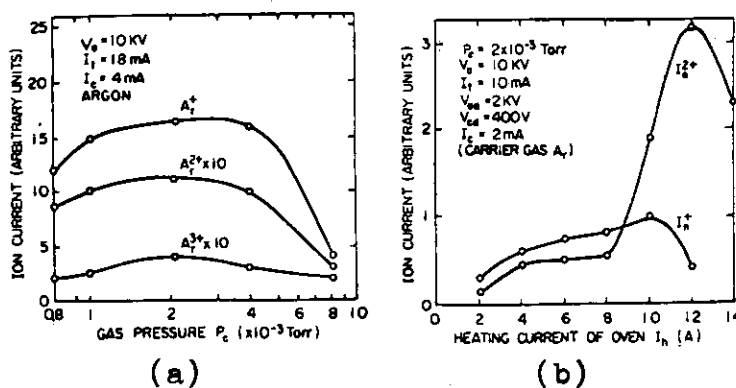


Fig. 6 Multiply-charged ion-current characteristics as a function of Ar gas pressure (a), and heating current of the evaporation oven for indium.

3. 荷電変換

3.1 重イオンの荷電変換過程

九州大学工学部 俵 博 之
(福岡市箱崎町)

Charge Change Processes in Energetic Heavy Ions

Hiroyuki Tawara
(Nuclear Engineering Department, Kyushu University,
Fukuoka)

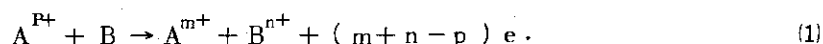
The experimental results of the charge change processes of heavy ions are reviewed, giving the emphasis to the following topics: equilibrium charge distributions in gas and solid targets, effective charges in targets, charge change cross sections, angular distributions of charge fractions and doubly charged negative ions.

1. はじめに

高速粒子が物質中を通過すると、入射粒子は物質中の原子と衝突し、電子を失ったり、捕かくしたりして、通過後の粒子の電荷は、入射時のそれにくらべ異なってくる。このような荷電変換過程は原子衝突における主な研究テーマのひとつであるが、同時に、天体物理、プラズマ、核融合、粒子加速器などの応用分野にも深い関係がある。水素イオンの荷電変換に関しては、数多くの実験および理論があり、¹⁾また、比較的軽いイオンに関する結果も一通りまとめられている。²⁾一方、重イオンの荷電変換は非常に複雑で、理論的には全く不備であり、実験もごく限られたものである。このような研究は、加速器設計上の要求に応じ、主として、ORNL, Heidelberg, MITなどでタンデム型VdGを用いて行なわれている。この方面では、100keV/amu (タンデムVdGのターミナルでの荷電変換の時) から1MeV/amu (サイクロトロン入射の時) のエネルギー範囲の荷電変換に特に興味がある。ここでは、 $Z > 20$ の重イオンについての最近の荷電変換の実験結果をふりかえる。^{3,4)}

2. 荷電変換の基礎

電荷 $P+$ の重イオン A が中性のターゲット原子 B と衝突して、入射イオンの電荷が $m+$ ターゲット原子が $n+$ になったとすると、 $(m+n-p)$ 個の電子が放出される：



この過程の反応断面積は、 σ_{Pm}^{on} と表わされるが、低速の B^{n+} および電子を正確に測定することはかなり困難であり、通常 B^{n+} は無視して入射イオンの電荷状態のみをしらべる (σ_{Pm})。 $P > m$ の時

電子捕かく、 $P < m$ の時、電子損失とよばれる。重イオンの荷電変換では、2個以上の電子が同時に移動する過程が、プロトンにくらべ、かなり大きいことが特長である。

ターゲットの厚さ $d\pi$ を通過した後の粒子の電荷分布は次の式で表わされる：

$$dF_i/d\pi = -F_i \sum_j \sigma_{ij} + \sum_j F_j \sigma_{ji}, \quad i = -1, 0, 1, \dots, Z, \quad (2)$$

$$\sum_i F_i = 1$$

ここで、 F_i は電荷 i のイオンの全体に対する割合である。(2)式右辺の第1項は、電荷 j への変換で電荷 i のイオンが減少することを示し、第2項は、 j からの変換で電荷 i のイオンが増加することを示す。この微分方程式に基づいて、荷電変換断面積 σ_{pm} が決定される。大ざっぱに言って、

1.成長法 growth method, 2.減衰法 attenuation method, 3.コンデンサー法 condenser method とよばれる方法があり、それぞれ、 σ_{pm} , $\sum_m \sigma_{pm}$, $\sum_m (p-m) \sigma_{pm}$ がもとめられる。しかし、重イオンでは、衝突で発生する電荷状態が多いので、各々の σ_{pm} を上記の方法できめるには、いろいろな困難がともなう。最近では、(2)式にもとづいて、いろいろなターゲット厚さ π での F_i をもとめ、 σ_{ij} をパラメーターとして電子計算機を用いて、実験と best fit する σ_{ij} をもとめる方法が、広く行なわれている。⁵⁾ また、減衰法でえられる $\sum_m \sigma_{pm}$ は、加速途上でのビーム損失を与え、応用上、大切なものである。

3. 実験方法

荷電変換の実験によく使用される装置の一例を Fig.1 に示す。サイクロトロンあるいはタンデム VdG など加速された重イオンは、必要に応じてその電荷をかえるために、ガスまたはフォイルの電荷変換部 charge converter を通った後、電磁石で特定電荷をもったイオンをえらび出す。えらび出された電荷のイオンは、ガスターゲット室にはいる。このターゲット室の圧力は可変で、圧力測定には Baratron といわれるダイヤフラム形真空計がよく使われる。フォイルを使う場合、ガス室は真空に排気され、いろいろな厚さのフォイルは回転板上にとりつけられている。ターゲット室を出たイオンは電荷分析器で、電荷に応じて偏向され、position-sensitive-detector (PSD) に、その強度が記録される。PSD に記録されるいろいろな電荷のイオン強度を、ガス圧力あるいはフォイルの厚さの関数として測定する。電荷変換部は、イオンの電荷を変えるのみならず、イオンの励起状態を変えるためにも使用される。

110 MeV の I イオンが充分厚い H_2 ガスターゲットおよび炭素フォイルを通過した後の PSD の出力すなわち、I イオンの電荷分布を Fig.2 に示す。この PSD を使用して便利な点は、すべての電荷のイオンを同時に記録するので、ビーム強度の規格化が不要なことである。PSD の位置分解能は 0.2 mm 以下で、15~20 種の異なった電荷のイオンを同時に記録出来る。15 MeV I^{11+} イオンを O_2 ガスターゲットに入射して、 O_2 ガス圧力を変化させると、Fig.3 に示すように、イオンの電荷分布は変化する。ガス圧力が低い領域では、一回衝突 single collision が主で、ガス圧力が充分高くなると、イオンは多数回衝突するので、ガス圧による電荷分布の変化はなくなる。この状態は電荷平衡 charge equilibrium とよばれ、入射イオンの電荷に無関係である。

4. 電荷平衡での電荷分布

電荷平衡状態でのイオンの電荷分布は、most probable charge を中心にほぼガウス分布をして

いると予想される。しかし、こまかい点をみると、ガウス分布からずれている場合が多い。平均電荷 $\bar{i}$ を次のように定義する：

$$\bar{i} = \sum_i i F_i \quad (3)$$

4.1 密度効果

いろいろなガスおよびフォイルを通過した 110 MeV I イオンの平衡電荷分布を Fig.4 に示す。ターゲットの種類によって電荷分布にわずかの違いがみられるが、全体的にみて、フォイルでのイオン電荷はガスにおけるそれよりかなり高い。この現象はすでに 1951 年 Lassen によって見いだされ、この結果に対して Bohr-Lindhard⁶⁾ は次のような固体中での密度効果によると説明した：

1. 固体内では衝突周波数が非常にたかいので、イオンは最初の衝突後、基底状態にもどる前に次の衝突をするので、イオンあるいはイオンの中の電子はたかい励起状態にある。一方、ガスタarget では、衝突間の時間間隔が長く、大部分のイオンは衝突前に基底状態にもどり、イオンの励起エネルギーは低い。

2. 励起状態にある電子は、イオンから失われやすい。すなわち、励起された電子に対する電子損失断面積 σ_L は、基底状態にある電子のそれより大きい。

3. 励起状態のイオンに捕かくされた電子は、再びイオンから放出される確率が大きい。すなわち励起イオンに対する電子捕かく断面積 σ_c は、基底状態にあるイオンのそれより小さい。

この結果、イオンあるいは電子が高い励起状態にある固体での衝突では、多くの電子が失われ固体内でのイオンの平均電荷は、ガス内でのそれより大きい。

このような密度効果は、長短のガスタarget での平衡電荷分布にもみられ、短いガスタarget の方の平均電荷 $\bar{i}$ が幾分大きい。同様に、ガス状態とジェット状態の CO₂ でも同じ効果がみられ、後者の $\bar{i}$ が大きい (Fig.5)。

もし、すべての荷電変換断面積 σ_{ij} がわかっていると、(2)式に従って任意のターゲット厚さでの電荷分布 F_i を決定することが出来る。 σ_{ij} は前述のように、 π が小さいところでの $dF_i/d\pi$ の測定からもとめられる。Fig.6 に、4 MeV Cl⁴⁺ イオンを H₂ ガスに衝突させた時、(2)式にもとずいて計算した電荷分布と、実際に測定した電荷分布を示す。 π が小さいところでは、両者はよくあっているが、 π が大きくなるにつれ、測定された高い電荷イオンの割合は計算値よりも大きくなる。たとえば、測定された平均電荷 $\bar{i} = 3.24$ に対し、計算でえられた $\bar{i} = 2.64$ である。この差はイオン励起状態の効果によるものであり、(2)式にはこの効果は含まれておらず、すべて基底状態のイオンの荷電変換過程のみを考慮している。

イオンの励起状態の効果をしらべるため、荷電変換部 (Fig.1 参照) のガス圧力を変化させ、4 MeV Cl イオンと H₂ ガスの衝突における σ_c , σ_L を測定した結果を Fig.7 に示す。図の横軸はイオンの励起状態を表わすものと考えてよい。 σ_c はイオンの励起の増加とともに減少しているが、 σ_L はほとんど変化していない。この図の結果は、タンデム VdG のターミナルでつくられたイオン (飛行時間が長いのでほぼ基底状態にある) と、ターゲット直前で電荷をかえたイオン (励起状態にある) に対する荷電変換の比較とほぼ同じ意味をもっている。この結果は、イオンの励起とともに σ_c が減少し、 σ_L が増大するという Bohr-Lindhard の予想に反する。

重イオンの電子損失過程には、多数個の電子が寄与しており、イオンの励起エネルギーはこれらの多数の電子に分布されるので、平均的にみた電子の励起エネルギーは必ずしもたかくなり、イオ

ンからの電子損失確率は増大しない。一方、励起状態のイオンへの電子捕かく過程を与えると、もしイオンの励起エネルギーが、電子を捕かくした電荷 ($i-1$) のイオンに対する電子の結合エネルギーよりも大きい場合には、一たん捕かくされた電子は、自己電離によって再びイオンから放出され、イオンの電荷はもとの状態にもどり、實際上、捕かく過程に寄与しない。すなわち、 σ_e が減少する。

このようなイオンの励起状態の効果によって、フォイルとガスターゲットでの電荷分布の違いが次のように説明出来るよう：ガスターゲットでは衝突時間間隔が長いので、1回目の衝突後イオンの中の励起された電子は、オーグメント過程を経て放出され、2回目の衝突の時有するイオンの励起エネルギーは小さい。一方、フォイルでは、時間間隔が非常に短いので、オーグメント過程による電子放出はおこりえず、イオンの励起エネルギーは蓄積され、イオンは高い励起状態にある。

ところで、イオンの電荷が、フォイルとガスターゲットの内で如何なる分布をしているかということは非常に興味ある点である。Bohr-Lindhard は、高い励起エネルギーのためフォイル内でのイオンの平均電荷 $\bar{i}_f$ は、ガス内での $\bar{i}_g$ より大きく、かつ、イオンがフォイルを出た後、いくらかの電子が放出されてイオンの電荷がさらに増加すると考えていた。この考えは長い間信じられてきたが、上記の実験データにもとずいて、Betz⁷⁾によって最近修正された。

電子損失過程には数多くの電子が寄与しており、これら多重電子損失は直接作用よりも、むしろ内殻電離をとともなう再配置過程 rearrangement process による場合が多い。この過程で、オーグメント電子放出の形でイオンが励起エネルギーを放出して基底状態にもどるには、一定の時間が必要である。この時間は重い原子に対してほぼ $10^{-12} \sim 10^{-15}$ s⁸⁾ であり、一方、数 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ のフォイルを通過するに要する時間は 10^{-15} s 程度で、幾分前者が長い。このような再配置過程にもとづく多重電子放出は、かなりのイオンがフォイルを通過した後、すなわち、イオンがフォイルを出てからおこると思えることが出来る。従ってターゲット内での重イオンの電荷状態を模式的に表わすと、Fig. 8 のようになる。すなわち、Bohr-Lindhard の予想に反し、ターゲット内部でのイオン電荷分布はガス、フォイルいずれでも大差ない（これは後述の有効電荷の測定結果と一致する）。しかし、フォイルを通過した直後、励起状態にあった多数の電子がイオンから放出され、イオン電荷が増大する。

4.2 電荷分布の非対称性

Fig. 9 に示すように、平衡電荷分布はほぼ対称であるが、実際には、 H_2 ガスのような軽いガスあるいは炭素フォイルなどではほぼ対称であるのに反し、 O_2 ガスのような重いガスあるいは Au フォイルなどでは、高い電荷側に尾をひいていることがわかる。これらの非対称分布についてしらべてみる。

(1) 殻効果 Shell effect

100 MeV と 140 MeV Br イオンが炭素フォイルを通過した後の電荷分布を Fig. 10 に示す。

100 MeV では、ほぼ対称分布をしているが、140 MeV になると、 $i > 26$ 以上のビーム強度が急激に減少し、対称分布からずれてくる。Br²⁵⁺ ($Z=35$) で N 殻電子が全部なくなり、Br²⁶⁺ では M 殻電子をとりさらねばならない。すなわち、とりさるべき電子の殻が変れば、電子の結合エネルギーが大巾に変わり、電子はぎとりが困難になる。この殻効果は、 F_{i+1}/F_i の分布をみるとさらにはつきりする (Fig. 11, ガウス分布ならば直線になる)。さらに、殻効果は Sub-shell の間でもはっきりみられ、Fig. 12 に示すように、Kr イオンの場合、3d-3p および $3p_{5/2}-3p_{3/2}$ 殻でも、

F_{i+1}/F_i の傾きに、はっきりした違いがみられる。

(2) 超高電荷部分の分布

上記、殻効果をのぞけば、電荷分布は一般に高い電荷のイオンの割合が多い。強度のよわい部分をさらにしらべてみると Fig. 13 のように、非常に高い電荷のイオンがつくられていることがわかる。たとえば、平均電荷 $\bar{i}=5+$ であるのに、わずかながら $i=25+$ のイオンが検出されている。この種の非対称性は、 H_2 あるいは He のようなガスタージェットではみられず、Kr や He のような重いターゲットガスでのみおこり、多重電子損失過程がきいていいると考えられる（単一電子損失あるいは捕かくのみであれば、対称分布になる）。多重電子損失がおこる過程として次の2つが考えられる：1）一度に多数の電子を放出する直接過程，2）一度には1～2個の電子しか放出しないがカスケードに起って全体として多数の電子を放出する再配置過程。1）は主に外殻電子に関し，1回の衝突で多数の電子を一度に放出する確率は小さい。一方，2）は主に内殻電子に関し，ひとつの内殻電子が放出されると，オーグメント過程によってカスケードに多数の外殻電子を失う。重イオン-重いターゲット衝突では，2）の過程がおこる確率は非常にたかいが，⁹⁾ 重イオン-軽い原子では2）の過程はおこらない。重いイオン-ターゲット同志の衝突で，2）がおこりやすいのは，Fano-Lichten による electron promotion モデルで説明される。¹⁰⁾

さらに，重イオンによる内殻電離には，同時につよい外殻電離をとともなうことは，この種の実験で確認されており，内殻電離が高い電荷状態のイオンの生成に大きい役割をはたしていることは，容易に考えられる。また，非常に高い電荷のイオンが発生する機構が，いわゆる violent 衝突で，内殻に関係していることは，イオン電荷の角分布をみてもわかる。たとえば，8 MeV I イオンと Xe ガス衝突における電荷の角分布は，高い電荷状態に行くにつれ，巾がひろくなり， I^{15+} 以上では2つのピークがあらわれる。12 MeV I^+ の前方 0° 方向での平均電荷は $\bar{i}=5+$ であるが， 2° ずれたところでは $\bar{i}=23+$ になる（7節参照）。Fig. 13 に示した分布は，これらの非常に高い電荷のイオンに対しては，最適条件でなく，電荷平衡のガス圧力より数倍ひくいガス圧で，その強度は最大になる。すなわち，この超高電荷のイオンは，多重衝突よりもむしろ単一衝突で生成されたものと考えられる。

また，これらの高電荷イオンの生成に内殻電離が有効に働いているとすれば，内殻電離の研究で知られているように，ターゲットとイオンをうまく組合せることによって，さらにつよい高電荷のイオンをつくること出来ると思われる。

4.3 巨大分子での荷電変換

フォイルでは平均電荷 $\bar{i}$ が大きい，フォイルの寿命が短い。一方，ガスタージェットでは寿命の点の問題はないが， $\bar{i}$ が小さい。加速器に应用する際には， $\bar{i}$ が大きく，寿命が長い荷電変換ターゲットが必要である。この目的のためにいろいろな試みがなされたが，まだ成功してない。はじめ各種の炭化水素系の分子についてしらべられたが， $\bar{i}$ はほとんど増大しなかった。最近のデータによると，分子中に水素原子があるためだろうと考えられている。

最近，弗素炭化物系の巨大分子（たとえば， $C_{10}F_{18}$ ，原子質量462）のガスタージェットでえられるイオンの $\bar{i}$ は，通常のガスより幾分大きい，フォイルよりは小さい（Fig. 4 参照）。この原因として，ターゲット分子がかなり大きいので，1個の分子との衝突の間に，多数個の原子と作用し，前述の密度効果に似た現象が起っていると考えられる。この種の巨大分子をジェット状にしてやれば，さらに $\bar{i}$ がふえる可能性がある。しかし，実際に应用するにはまだデータが不十分である。

4.4 平均電荷の一般式

重イオンの物質中での平均電荷 $\bar{i}$ を計算する試みは、Bohr, Lamb, その他によってなされた。しかし、それぞれ異なった仮定や条件のもとで考えているので、全体的にみた場合の実験との一致は必ずしもよくない。一方、実験的には、少しずつデータが蓄積されつつあり、電荷分布のこまかい非対称やターゲットによる分布の形の違いを無視すれば、多くの場合、平均電荷 $\bar{i}$ は入射イオンのエネルギーの関数として、ターゲットによる2~3のパラメーターを含めることによって、半経験式で表わされる。Fig. 14にはいろいろなイオンのフォイル通過後の平均電荷を換算速度の関数として示している。図中の実線は、Nikolaev-Dmitriev¹²⁾による経験式で次のように表わされる：

$$\bar{i}/Z = [1 + (Z^{-0.45} v/v')^{-k}]^{-k} \quad (4)$$

Z : 重イオンの原子番号, v : イオンの速度, $k = 0.6$, $v' = 3.6 \times 10^8$ cm/sec
一方、ガスターゲットでもほぼ一つの経験式で表わされる：

$$\bar{i}/Z = 0.47 v Z^{-0.55} / v' \quad (5)$$

$$v' = 2.19 \times 10^8 \text{ cm/sec (Bohr 速度)}$$

しかし、前述したいろいろな効果のため、上式の内挿は可能でも、外挿には十分注意しなければならない。一般に、上式では、 $4\bar{i} = \pm 2$ の範囲内で、イオンの平均電荷 $\bar{i}$ を知ることが出来る。

5. ターゲット内での有効電荷

ターゲット内での重イオンのエネルギー損失 $dE/dx|_{HI}$ は、イオンのもつ電荷につよく依存し、Bethe の公式によると、同じ速度のプロトンのそれ $dE/dx|_P$ と次のような関係で表わされる：

$$dE/dx|_{HI} = i_{\text{eff}}^2 dE/dx|_P \quad (6)$$

i_{eff} はイオンのターゲット内での有効電荷といわれ、実際にイオンがターゲット内で有する平均電荷 $\bar{i}$ とほぼ等しいと考えられる。上式にもとづいて、重イオンのエネルギー損失測定から、ターゲット内でのイオンの有効電荷を知ることが出来る。Fig. 15に、I イオンのガスおよび固体ターゲット中での有効電荷をイオンのエネルギーの関数として示す。¹³⁾ 図中の実線および点線は炭素フォイルおよび Ar ガスを通過した後の平均電荷 $\bar{i}$ を示す。有効電荷は、ターゲットがガスあるいは固体には無関係であり、しかも、ガス通過後の平均電荷 $\bar{i}_g$ とほぼ等しいが、固体通過後の平均電荷 $\bar{i}_s$ よりかなり小さい。このことは、固体およびガスターゲット内でのイオン電荷は、本質的に差がないという Betz の考えをうらづけるものであり、固体ターゲットでの平均電荷 $\bar{i}_s$ が大きいのは、固体を出た直後、高い励起エネルギーをもっているイオンが、多くの電子を失うということで説明される。さらに、いろいろな固体中での Br, U イオンについても同様な結果が報告されており、ターゲット中での有効電荷を表わす式は、ガスターゲットでの平均電荷を表わす経験式とほとんど等しい。

6. 荷電変換断面積

荷電変換断面積の測定は、この方面の研究に最も基本的なものであるが、4章でのべた平衡電荷の測定にくらべはるかに少ない。一例として、Fig. 16, 17 に I イオンが He および O₂ ガスを通過する際の荷電変換断面積を、入射イオンの電荷の関数として示す。実線は電子捕かく断面積 σ_e 、

点線は電子損失断面積 σ_e を示す。単一電子捕かく断面積 $\sigma_{i,i+1}$ はイオン電荷とともに急激に減少し、特に He ターゲットでは著しい。一方、多重電子損失断面積 $\sigma_{i,i+n}$ ($n \geq 2$) は、 O_2 ガスターゲットでは、減少が比較的ゆるやかである。すなわち、多重電子損失過程が重いターゲットではおこりやすいことを示している。この原因は、重イオンと重いターゲット原子の衝突の際形成される準分子 quasi-molecule (4.2.2 参照) にもとづく内殻電離⁹⁾ によるもので、内殻電子が電離され、オージェ過程をへて多数の電子がイオンの外へ放出される。かつ、この内殻電離と同時に起こる外殻電離も大きく寄与していることも見のがしてならない点である。反対に、軽い原子ではこの機構は働かないので、多重電子損失はおこりにくく、イオン電荷の増加と共に、多重電子損失断面積は急速に減少する。

電荷平衡時の電荷分布が重いターゲットで非対称になる (4.2 節参照) のは、この多重電子損失断面積が大きいことによる。

いろいろな電荷のイオンに対する $\sigma_{i,i+1}$, $\sigma_{i,i-1}$ をエネルギーの関数として Fig. 18 に示す。これから電子捕かく断面積はイオン速度の増加とともに減少し、一方、電子損失断面積は増大することがわかる。後者は、イオン速度と注目している電子の軌道速度とほぼ等しくなる附近で最大になり、その後減少して行く。一般的傾向として、イオンの速度にくらべて、軌道速度が大きい電子はイオンにとどまり、逆に、おそい電子はイオンからふりおとされと考えてよい。従って、イオンのエネルギーの増加とともに、イオンの平均電荷は増加する (Fig. 14)。

7. 電荷の角度分布

以上のべたのはすべて前方 0° 方向に出てきた重イオンの電荷分布に関するデータである。前述のように、重イオンの電子損失には内殻電離が関与していることから、衝突したイオンは、かなり大きい角度に散乱されるはずである。イオン-原子衝突で生じたイオンの電荷の角分布測定は、100 keV 程度の低エネルギーでは 2~3 行なわれたが、ここで考えている高いエネルギーの重イオンに関しては、一例があるにすぎない。¹⁴⁾ Kessel はいろいろなエネルギーの I イオンと Xe ガスとの衝突で発生した I イオンの電荷の角分布を測定した (Fig. 19)。ビームの入射方向からわずか $2 \sim 3^\circ$ ずれると、非常に高い電荷のイオンが発生していることがわかる。たとえば、12 MeV I イオンの 0° 方向での平均電荷はガスで $\bar{i}_g \approx 5+$ 、固体で $\bar{i}_s = 10+$ であるのにくらべ、 2° ずれた附近での $\bar{i}$ は $23+ \sim 24+$ となり、 $27+$ のイオンもかなりある。さらに、1.5 MeV I イオンでは、 0° 方向で $\bar{i}_g = 2+$ 、 $\bar{i}_s = 3+$ にくらべ、 8° 付近では $\bar{i} = 16+$ に達する。このようなイオン電荷の角分布が生じるのは、重イオンの内殻電離が関係していることを示している。この測定は、電荷分布の確率だけであるが、この種の反応断面積をもとめることは、基礎的な面のみならず、加速器への応用面でも興味ありかつ大切な点である。応用面からみると、3 MeV VdG でも、ビーム方向から $2 \sim 3^\circ$ ずれた点のイオンを使うと $\bar{i} \approx 23+$ で、 $\bar{i}/m = 0.18$ となり、十分サイクロトロンに入射出来る値である。

8. 二重電荷負イオン

これは荷電変換とは直接関係ない。通常タンデム VdG で使用されている負イオンは、中性原子に 1 個の余分な電子がついているマイナス 1 荷のイオンである。この負イオンに、さらに 1 個の電子を附加した二重電荷負イオン (マイナス 2 荷イオン) が出来れば、タンデム VdG でえられるイ

オンエネルギーはさらに増大する。(理論的に H^- は存在しないといわれているが)もし H^- を10 MV タンデム VdG で加速すると 30 MeV のエネルギーがえられ、通常の負イオン H^- でえられる 20 MeV よりも 50% 高いことになる。

Heidelberg¹⁵⁾では、PIG イオン源から直接ひき出される負イオンを調べているうちに、多くの1荷の負イオンにまじって、2荷の負イオンを見出した。これまで、 O^- , F^- , Cl^- , Br^- , I^- , Tl^- , Bi^- で数 nA がえられている。これらの発生機構はまだ解明されていないが、アーク中での電子衝突によるものであろう。この2荷の負イオンは荷電変換(電子捕かく)過程でも生成されるはずであり、もう少し定量的なデータがえられるだろう。負イオンは、electro-negative な性質の原子では生成される確率がたかい。もし、 U^- イオンがえられたとして、30 MV タンデム VdG (高エネルギー側の中間に1個フォイルをおく)で加速すると、平均電荷をもつUイオンに対するエネルギーは1050 MeV (4.5 MeV/amu)となり、かつ、電荷分布を考えると、かなりの強度の10 MeV/amu 程度のUイオンがえられる可能性がある。

この2荷の負イオンについては、まだまだ研究すべき点が多い。

9. おわりに

荷電変換過程は、原子衝突における基礎研究のテーマであるばかりでなく、重イオン加速器の設計には不可欠なものである。ターゲットでの電荷平衡時の平均電荷については経験式にもとずいてかなりの確度で知ることが出来るが、重イオンの荷電変換過程は非常に複雑で、理論的にはほとんど何もしられていないような状態である。従って、実験によるデータの蓄積が必要である。また、内殻電離が高い電荷のイオンをつくる上で大切な役割をしており、両者の関係をしらべることは興味ある点である。

References

- 1) Tawara H., Russek A.: Rev. mod. Phys., 45, 198 (1973)
- 2) Nikolaev V. S.: Soviet Phys. -USPEKHI, 8, 269 (1965)
- 3) Betz H. D.: Rev. mod. Phys.
- 4) 俵 博之: タンデム領域の核物理 JAERI-1184 P. 11 (1969)
- 5) Datz S., Lutz H. O., Bridwell L. B., Moak C. D., Betz H. D., Ellsworth L. D.: Phys. Rev., A2, 430 (1970)
- 6) Bohr N., Lindhard J.: Kgl. Danske Videnskab, Selskab, Math. Fys. Medd., 28, No. 7 (1954)
- 7) Betz H. D., Grodzins L.: Phys. Rev. Letters, 25, 211 (1970)
- 8) Walters D. L., Bhalla C. P.: Phys. Rev., A3, 1919 (1971); A4, 2164 (1971)
- 9) Fano U., Lichten W.: Phys. Rev. Letters, 14, 627 (1965)
- 10) 俵 博之: 「重イオンによる原子力の研究」 JAERI (1974)

- 11) 俵 博之: 日本物理学会誌, 29, 23 (1974)
- 12) Nikolaev V. S., Dmitriev I. S.: Phys. Letters, 28A, 177 (1968)
- 13) Pierce T. E., Blann M.: Phys. Rev., 173, 390 (1968)
- 14) Kessel Q. C.: Phys. Rev., A2, 1881 (1970)
- 15) Baumann H., Heinicke E., Kaiser H. J., Bethge K.: Nucl. Instr. Meth., 95, 389 (1971)

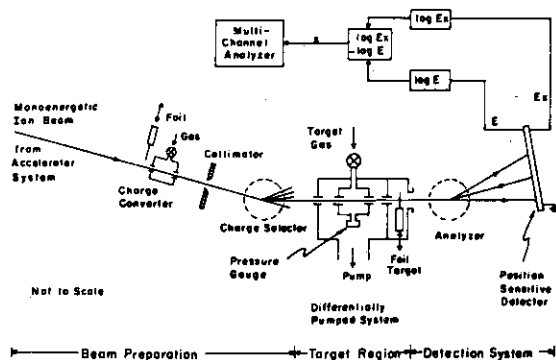


Fig. 1 An example of the experimental apparatus for charge state measurements.

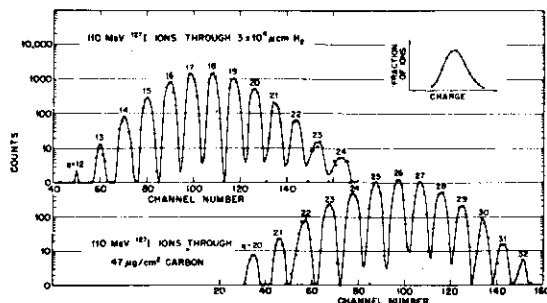


Fig. 2 Charge state spectra of 110 MeV I ions recorded with a position-sensitive detector.

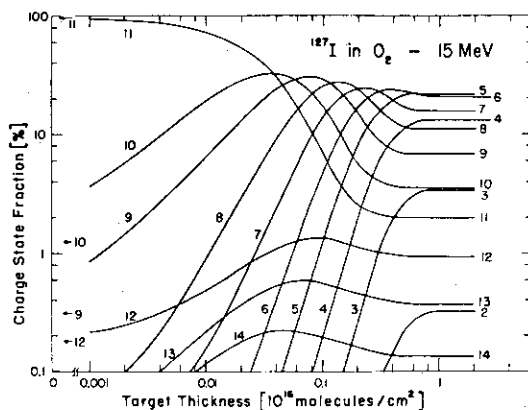


Fig. 3 Charge state distributions of 15 MeV I ions on O_2 gas as a function of the target gas pressure.

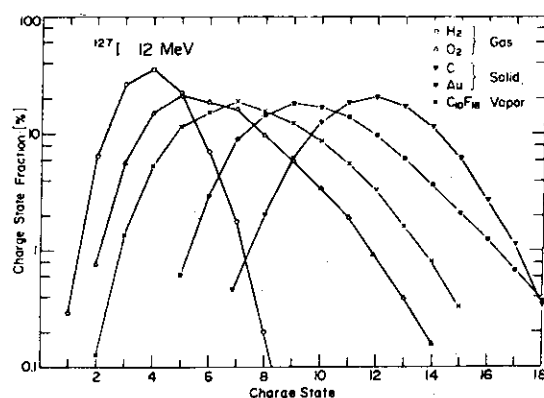


Fig. 4 Equilibrium charge distributions of 12 MeV I ions passing through various gas and foil targets.

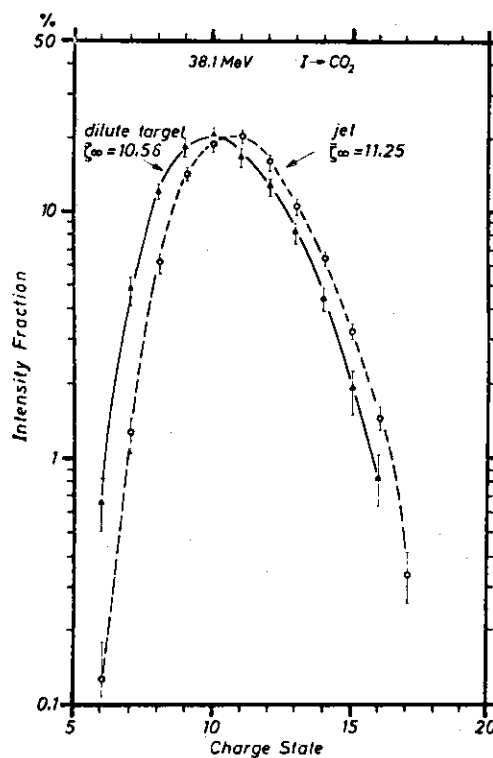


Fig. 5 Equilibrium charge distributions of 38 MeV I ions passing through gas and supersonic jet of CO_2 .

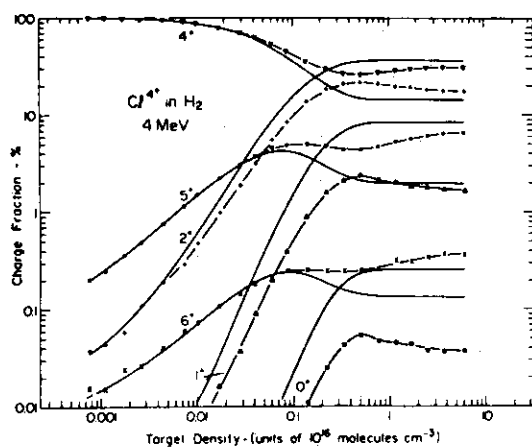


Fig. 6 Charge state distributions of 4 MeV Cl ions as a function of H₂ gas pressure. The solid lines are computed and the interrupted lines with symbols are measured.

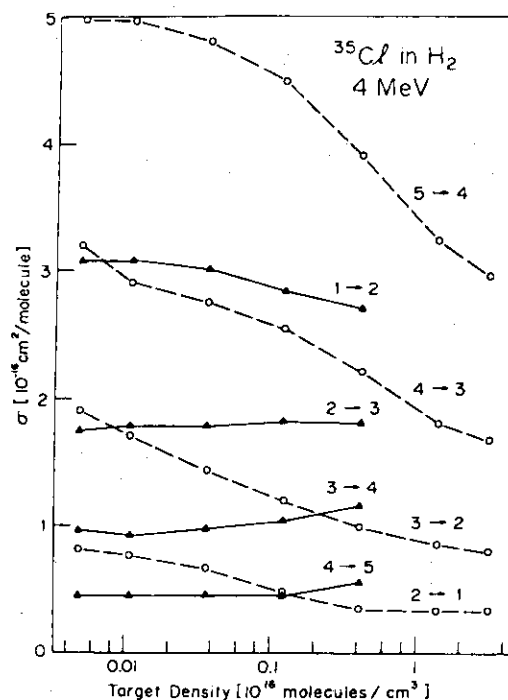


Fig. 7 Effective charge cross sections of 4 MeV Cl ions as a function of the gas pressure in the charge converter. The excitation energy of ions increases with increasing the gas pressure.

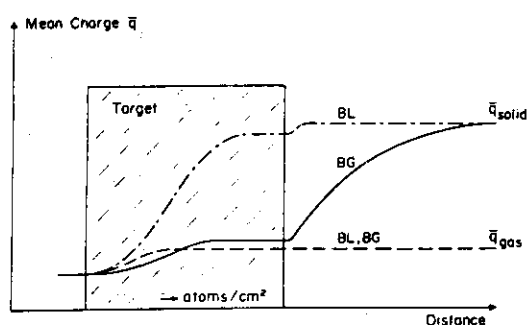


Fig. 8 Schematic illustration of the charge state of ions passing through gas and foil. BL: Bohr-Lindhard. BG: Betz-Grodzins.

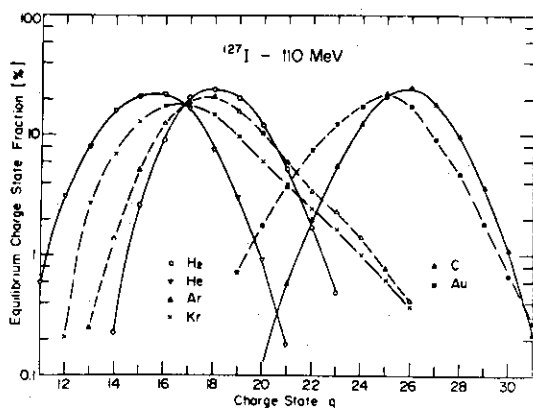


Fig. 9 Equilibrium charge distribution of 110 MeV I ions passing through various gas and foil targets.

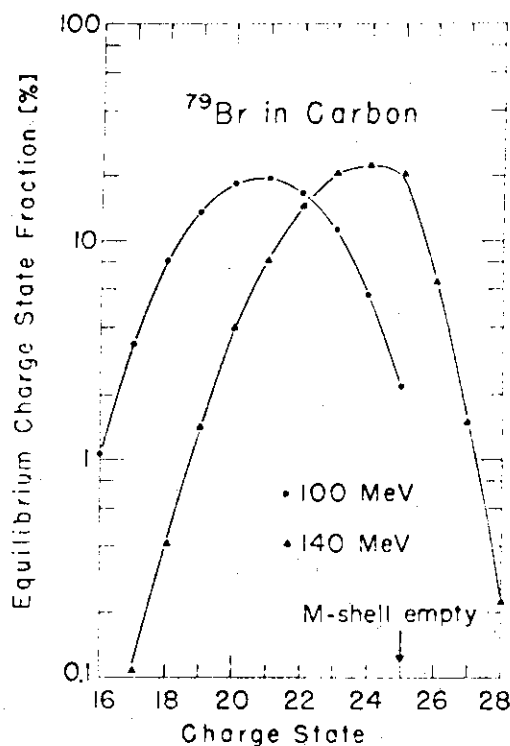


Fig. 10 Equilibrium charge distribution of Br ions stripped in a carbon foil.

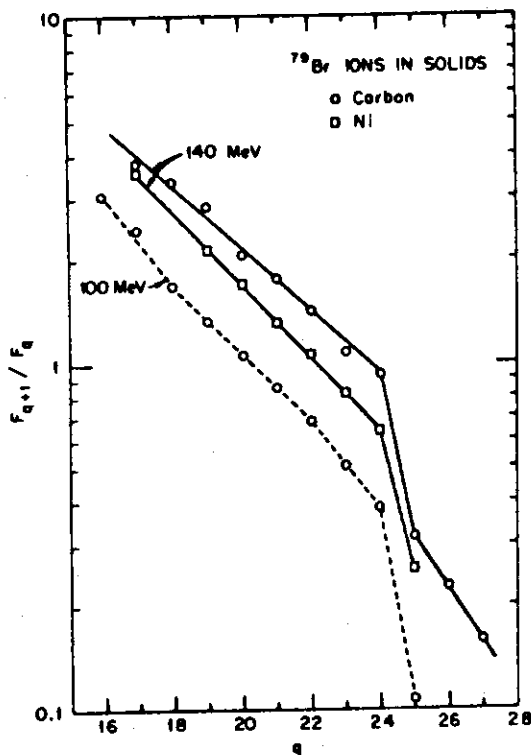


Fig. 11 A discontinuity in the charge fraction ratios for Br ions.

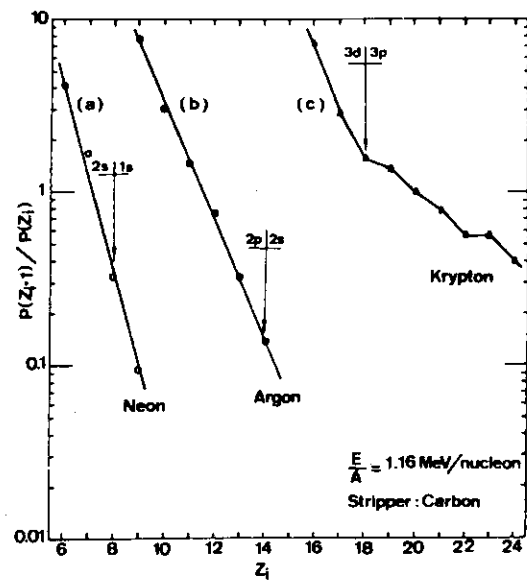


Fig. 12 A discontinuity in the charge fraction ratios for Kr ions.

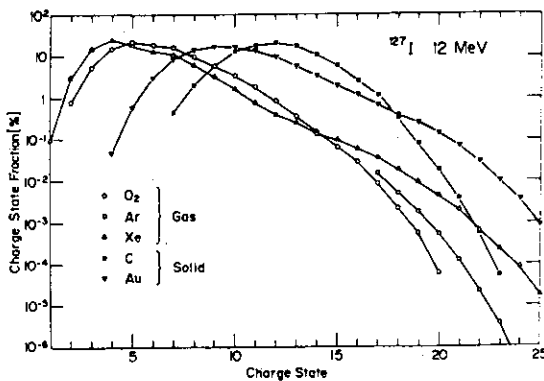


Fig. 13 Equilibrium charge distributions and high charge state tails of 12 MeV I ions.

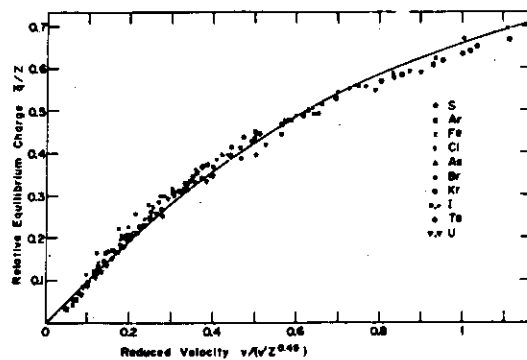


Fig. 14 Relative mean charge of various heavy ions passing through foils. The solid line represent the empirical formula by Nikolaev-Domitriev (eq. 4).

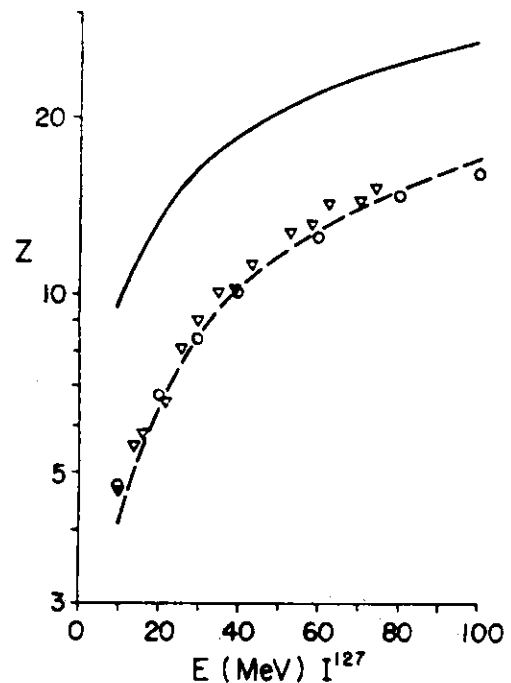


Fig. 15 Effective charges of I ions in gas and solid. The solid line: the mean charge in Ar gas. The dashed lines: the mean charge in Ar gas¹³.

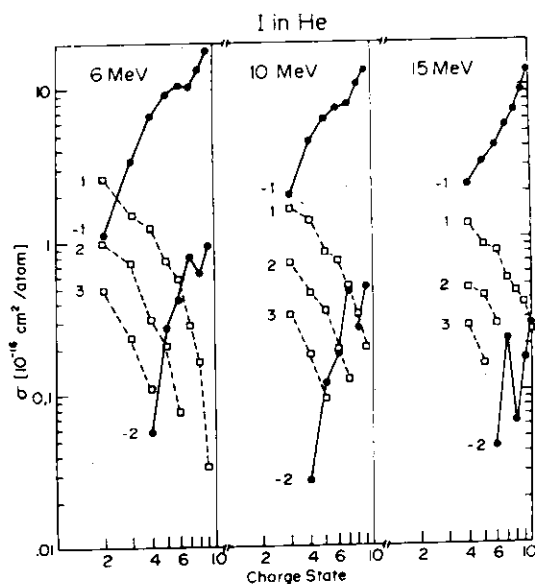


Fig. 16 Cross sections of electron capture (solid lines) and electron loss (dashed lines) ($i, i+n$) of I ions passing through He as a function of the initial ionic charge. The values of n are indicated near each curve.

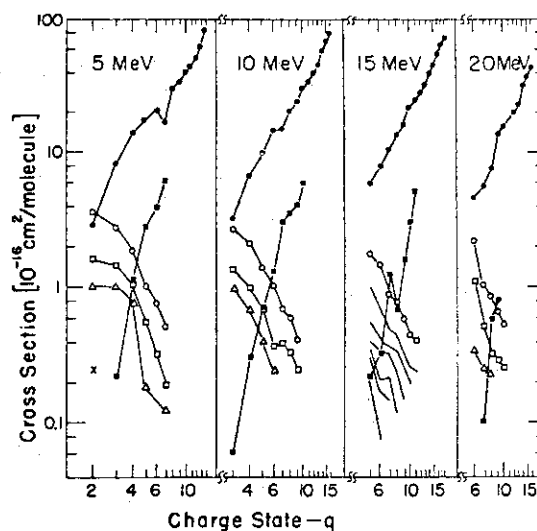


Fig. 17 Cross sections of electron capture (solid lines) and electron loss (dashed lines) ($i, i+n$) of I ions passing through O. : $n=-1$, : $n=-2$, : $n=1$, : $n=2$, : $n=3$, : $n=L$.

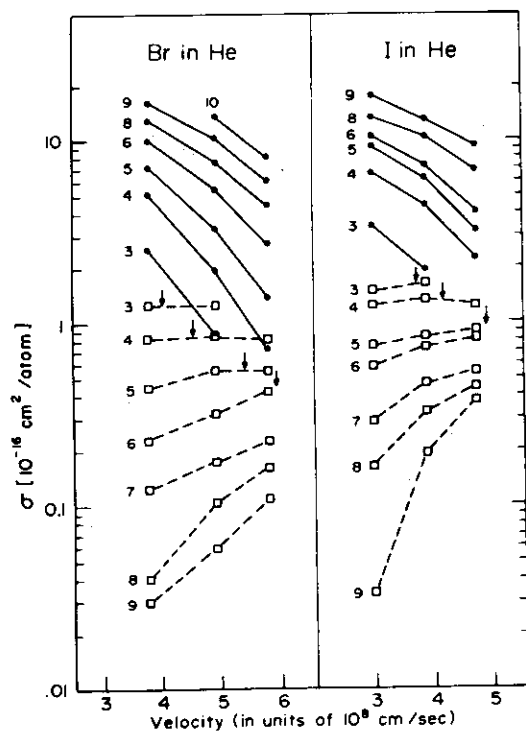


Fig. 18 Cross sections of a single electron capture and loss of Br and I ions passing through He gas as a function of the ion velocity. The initial ionic charge states are indicated near each curve.

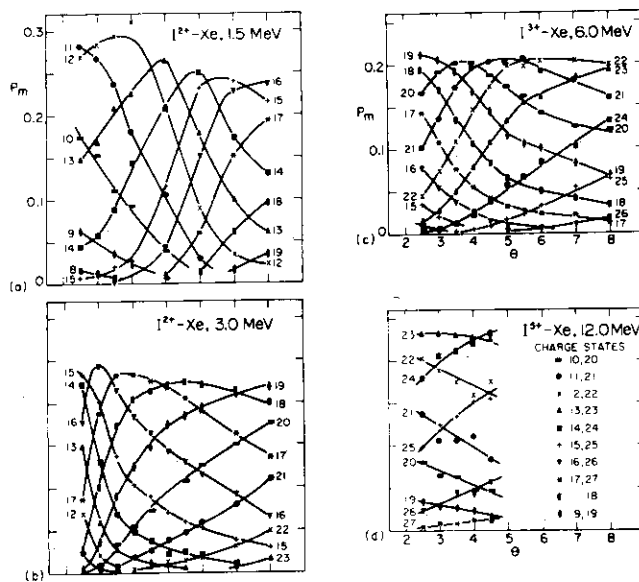


Fig. 19 Charge state fractions for the scattered I ions having charge m as a function of the scattering angle.

3.2 固体中での重イオン平衡電荷分布の測定

京都大学原子核工学 尾崎 譲治, 中田 章久
城戸 義明, 浅利 正敏
福沢 文雄
(京都市左京区吉田本町)

Measurement of Equilibrium Charge Distribution with a Thick Target

Joji OZAKI, Akihisa NAKATA, Yoshiaki KIDO,
Masatoshi ASARI and Fumio FUKUZAWA
(Dept. of Nuclear Engineering, Kyoto University,
Yoshida, Kyoto)

Combinations of a position sensitive detector and an electric or a magnetic field are shown to be suitable for measurement of the equilibrium charge distributions of the scattered ions from a thick target. Experimental results agree well with the semi-empirical estimations. Measurements at different scattering angles show that the inner shell ionizations caused by violent collisions do not affect the charge distributions in this measurement.

1. はじめに

従来、固体中を通過するイオンの電荷分布の測定は、薄膜を通過させたものを測定していた。この測定法では、低エネルギー領域では薄膜を極めて薄くせざるを得ず、この技術的な限界から、重イオンの数 MeV 以下での電荷分布の測定データは全くなかった。また、電荷変換のチャンネルリング効果を調べるときも、薄い単結晶が必要であり、これを作る技術的困難さによって、いままで測定されたデータはほとんどない。我々は、このような限界を超える新たな実験方法を見出した。それは、厚い固体ターゲットによる後方散乱を使って電荷分布を測定する方法である。この実験も継続中であり、今迄のデータは非常に満足すべきものである。また、散乱角度によって励起状態が違うことが考えられるため、散乱角度を 10° , 90° , 135° と変えて測定したところ、認めうる違いはなく、この方法が有効であることが証明された。これによって低エネルギー重イオンの電荷分布のデータをすべての固体媒質中について測定できる見通しがついており、現在、そのデータを着々と蓄えつつある。

2. 測定方法

たとえば、厚いターゲットにあたったイオンを 90° 方向散乱について測定する場合を考えよう。 90° 方向に散乱されたイオンは、散乱された深さによって異なったエネルギーを持っており、また、様々な電荷状態にある。このイオンを電場ないし磁場による偏向場を通過させると、そのエネルギー、電荷状態に応じて様々な方向に曲げられる。これを Position Sensitive Detector (PSD) でうけたとする (Figure 1)。偏向場に磁場を用いると、偏向場による曲りがあまり大きくないとき、電荷 Ze 、エネルギー E のイオンの PSD への入射位置のずれ x は次式で与えられる。

$$x = \frac{L(L+l)}{2\sqrt{2}} \cdot \frac{BZe}{\sqrt{m}} \cdot \frac{1}{\sqrt{E}} \quad (1)$$

ここで L , l はそれぞれ偏向場および偏向場から PSD までの長さであり, B は磁場の強さである。PSD はエネルギー信号 $S(E)$ と位置信号 $P(Z, E)$ を同時に出す。

$$S(E) = kE \quad (k: \text{定数}) \quad (2)$$

$S(E)$ と $P(Z, E)$ の関係は次式で与えられる。

$$P_1(Z, E) = \frac{a_0 + x}{a} S(E) \quad (3)$$

$$P_2(Z, E) = \frac{a - (a_0 + x)}{a} S(E) \quad (4)$$

PSD を Figure 1 のごとく配置したときの位置信号 $P_1(Z, E)$ であり, Figure 1 と上下逆に PSD を配置すれば位置信号は $P_2(Z, E)$ となる。ここで a は PSD の有効全長であり, a_0 はイオンの入射した位置である。ここで (1) 式を (3), (4) 式に代入すると位置信号とエネルギー信号, イオンの電荷との関係が出てくる。

$$P_{1B}(Z, E) = \frac{a_0}{a} S(E) + \frac{L(L+l)}{2\sqrt{2}} \sqrt{k} \frac{BZe}{\sqrt{m}} \sqrt{S(E)}$$

$$P_{2B}(Z, E) = \left(1 - \frac{a_0}{a}\right) S(E) - \frac{L(L+l)}{2\sqrt{2}} \sqrt{k} \frac{BZe}{\sqrt{m}} \sqrt{S(E)}$$

この位置信号とエネルギー信号を二次元波高分析器 (二次元 PHA) に入れてやると, 両信号に応じた測定点が連続的に写し出され, それは磁場による偏向場の場合, Figure 2 のように測定点が分布するはずである。ここで, 点線より上に測定点が見出されないのは, イオンが偏向場で曲りすぎ, PSD をはみ出すことに対応している。これらのパターンから電荷分布を求めるのは簡単であり, ある一定のエネルギー (すなわちある $S(E)$ 値) のところの各電荷状態に対する計数値を比べればよいのである。この測定方法の測定精度は, ビームをしぼるスリットの大きさ, PSD のエネルギー分解能, 位置分解能によってきまるが, これらを適当に選ぶことによって電荷状態を十分分離した状態で十分な計数率を得ることができる。なお, 高エネルギー端は平衡分布に達していないものもあるが, 平衡分布に達する厚さは数千 Å であり, エネルギー分解能をあわせ考えると, ほとんど全部平衡電荷分布を測定したと言えるだろう。

実験装置全体の概略は Figure 3 に示した通りである。

3. 実験結果

バン・デ・グラフ加速器からの 5.2 MeV N^{2+} イオンを厚い Cu ターゲットにあてて, 90° 後方散乱イオンのエネルギー信号対位置信号をとった結果を Figure 4 に示す。このデータは, この方式ではじめてとったもので, スリットは $1\text{mm} \times 1\text{mm}$ よりも広く, 増巾器系の利得調整も最適になっている。それでも各電荷状態が十分分離した予想通りのパターンが得られている。0 価の位置は

偏向場をゼロにすることによって容易に得られる。このパターンから2.0～3.0 MeVのNイオンの平衡電荷分布を読みとった結果がFigure 5である。図中破線はDmitrievの理論¹⁾による計算値で、全体としてかなり良い一致を示している。

内殻電離の効果を調べるために、我々は2 MeV N⁺イオンを厚いAuターゲットにあてて、135°後方散乱、90°後方散乱、10°前方散乱を調べてみた。各エネルギー状態に対応する各方向の平均平衡電荷をFigure 6に示す。10°方向、90°方向、135°方向共、理論値によく合致している。また、90°方向、135°方向の平衡電荷分布をFigure 7に示す。両者共、理論値にかなり良い一致を示している。また、Figure 8は、10°方向、90°方向の平衡電荷分布を示したものである。これも両者共理論値によく合っている。

また、ターゲットをBi, Sb, Ag, In, Sn, Cd, Pb, Au, Ta, Ni, と変えてNイオンの電荷分布を測定したが、Heについての実験^{2, 3)}と同様に、ターゲットによる変化はなかった。

4. むすび

原子-原子衝突によって、内殻(たとえばK殻)電子が電離すると、オーグメント過程によって電離が飛躍的に増大することがある。一方、Dmitrievの理論は、外殻電子の連続的電離を仮定しているため、後方散乱によって内殻電離がおこれば、実験結果と理論とは食い違うはずであり、散乱角によって平衡電荷分布は違うはずである。しかし、実験結果は、Figure 7, Figure 8に見られるごとく、散乱方向にかかわらず平衡電荷分布はいずれも理論値によく合致しており、このことから、このエネルギー領域での後方散乱では内殻電離のおこる、いわゆる violent collision の効果はほとんど無視できると結論づけられる。

以上見てきたように、固体中での重イオンの平衡電荷分布を測定する、この極めて簡単な方法は有効であることが判明した。

ただ一つ注意すべき点は、ビームによってターゲットの表面にカーボンが付着し、結果的にカーボンによる電荷分布を測定することである。このことを防ぐために、チャンバーを高真空にし、ターゲットの表面をきれいにするなどの措置を構じる必要がある。

References

- (1) Marion J. B. and Young F. C. ; "Nuclear Reaction Analysis, graphs and tables", Northholland Publish Co., (1968)
- (2) Armstrong C., Mullendore J. V., Harris W. R. and Marion J. B. ; Proc. Phys. Soc. (London), 86, 1283 (1965)
- (3) Allison S. K. ; Revs. Modern Phys., 30, 1137 (1958)

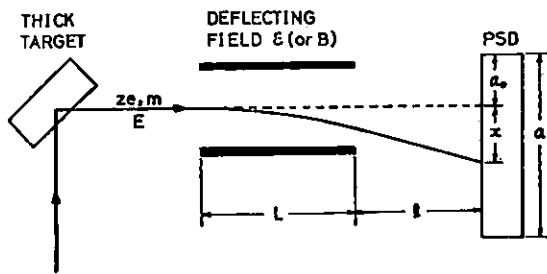


Fig. 1 Principle of measurement.

MAGNETIC DEFLECTION

$$P_{10} = \frac{z_0}{a} E + \frac{L(L+2l)}{2lE} \frac{Bz_0}{\sqrt{m}} \sqrt{E} \quad P_{10} = (1 - \frac{z_0}{a}) E - \frac{L(L+l)}{2lE} \frac{Bz_0}{\sqrt{m}} \sqrt{E}$$

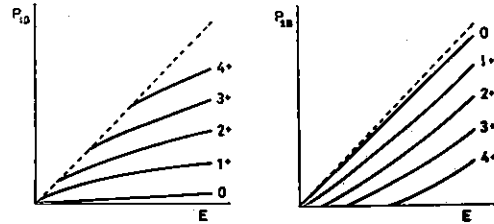


Fig. 2 Calculated curves of position signal versus energy signal for magnetic deflection.

EXPERIMENTAL ARRANGEMENT

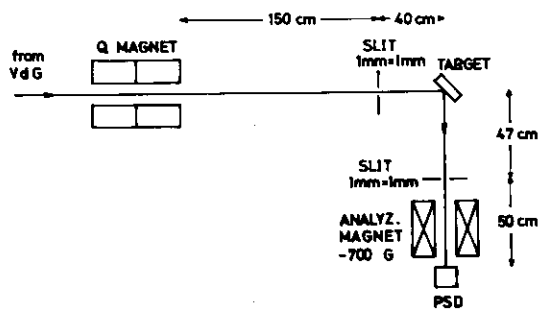


Fig. 3 Experimental arrangement.

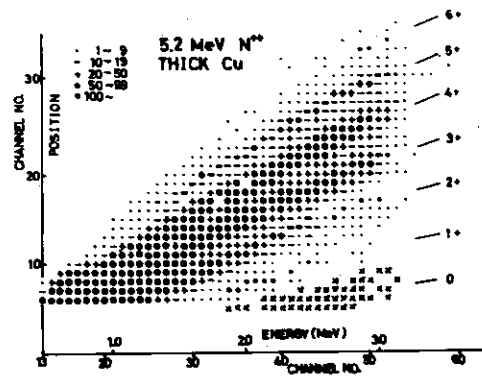


Fig. 4 Two parameter representation of position and energy signals of scattered nitrogen ions from thick copper target. The energy of incident N^{2+} ion is 5.2 MeV.

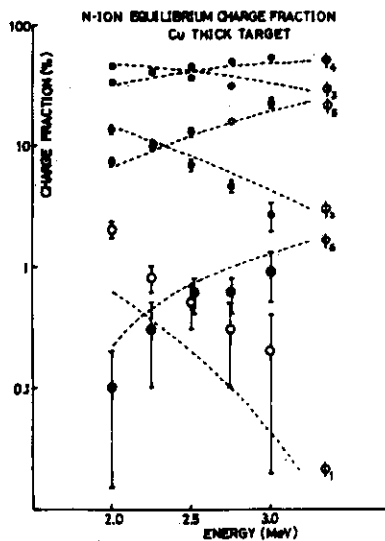


Fig. 5 Plot of equilibrium charge fraction of nitrogen ion stripped in copper as a function of the projectile energy. Those of circles are estimated from the data shown in Fig. 4. Broken lines show the semi-empirically calculated values by Dmitriev.

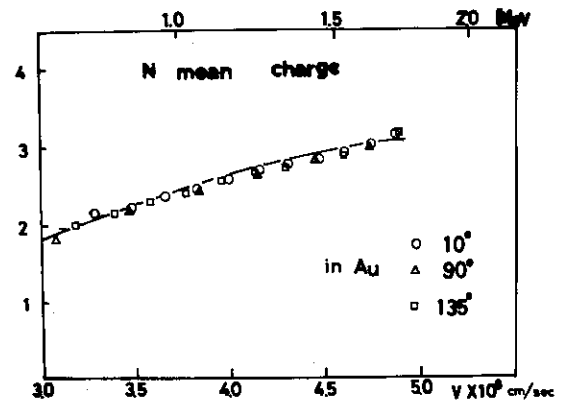


Fig. 6 Mean charge of nitrogen ion in aurum thick target measured at three different angles. There is no appreciable difference among the results at three scattering angles.

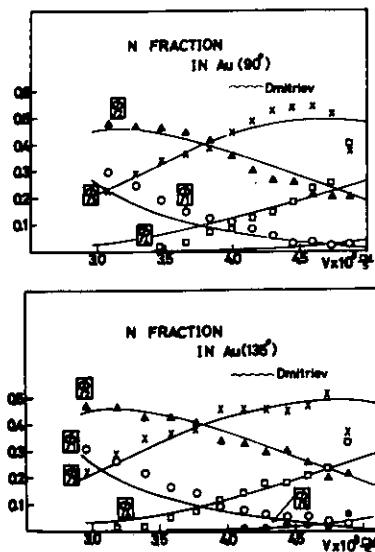


Fig. 7 Plot of equilibrium charge fraction of nitrogen ion stripped in aurum target as a function of the projectile energy. Measurement at the two scattering angles of 90° and 135° shows no appreciable difference, and gives the results which agree with the semi-empirically calculated values by Dmitriev shown by solid lines.

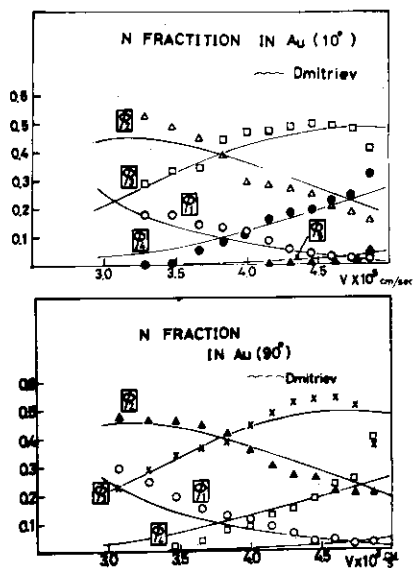


Fig. 8 Plot of equilibrium charge fraction of nitrogen ion stripped in aurum target as a function of the projectile energy. Measurement at the two scattering angles of 10° and 90° shows no appreciable difference, and gives the results which agree with the semi-empirically calculated values by Dmitriev shown by solid lines.

4. ビーム利用技術

4.1 東工大バンデにおけるオンライン実験

東京工業大学理学部 足立 實, 芦部 楠夫
新井 栄一*, 小川 雅生*
(東京都目黒区大岡山 2-12-1)

On-Line Experiments at the V.d.G. Accelerator
of Tokyo Institute of Technology

Minoru ADACHI, Kusuo ASHIBE, Eiichi ARAI and Masao OGAWA
(Tokyo Institute of Technology, Oh-Okayama,
Meguro-ku, Tokyo)

Functional descriptions of the on-line apparatuses and/or
programs which are used at the V.d.G. accelerator of Tokyo
Institute of Technology are described briefly.

東工大の4MVバンデグラフにはUSC-3(東芝製)という小型のデータ処理装置が設置されている(Fig. 1), しかしUSC-3にはフォートラン等のコンパイラがなくデータ処理装置よりむしろデータ取得装置とよばれるべき性格を持っている。USC-3の中心は1語20ビットの8K語メモリを持つミニコンピュータ(ICD-507)である。このICD-507は制御用ミニコンであり, プログラム割込み機能と数多くのデジタルI/Oを持っている。4MVバンデグラフにおける実験に上記ICD-507の特性を利用したオンライン測定のうち典型的な2例を簡単に紹介する

1) 角分布(角相関)自動測定

(p, γ), ($p, n\gamma$)あるいは($^3\text{He}, \alpha$), ($^3\text{He}, p$)反応等の γ 線あるいは反応粒子の角分布(角相関)を測定する実験において検出器のゴニオメータ系を自動制御するものである。各角度に対応する位置にマイクロスイッチを設置し, 検出器系が駆動モータによりその位置に移動してマイクロスイッチ上に達すると, その接点信号がコンピュータへの割込み信号となる。割込み信号が受けられるとただちにデジタルI/Oを通じて駆動モータをoffにする。同時にスペクトル測定を開始し, モニター検出器の計数値が設定値に達するまで測定を続行する。モニター計数値に達すると, 測定を止め, 測定されたスペクトルを割込み信号(測定位置信号)に対応するドラムメモリに累積する, つぎに測定記録(測定位置, 回数, 測定時間等)をタイプ出力する。最後にデジタルI/Oを通じ検出器駆動モータをonし, つぎの測定位置へ移動させる。この自動測定プログラムの流れをFig. 2に示す。

2) 励起関数自動測定

(p, p)反応等の励起関数測定はバンデグラフでしばしば行われる実験の1つである。本自動測定系は励起関数測定のためにビーム分析電磁石の電流設定をコンピュータ制御するものである。電

* 東京工業大学原子炉工学研究所

磁石用電流電源とコンピュータ間のインターフェイスをFig. 3に示す。図中のリレーをデジタルI/Oを通じ接にすることにより対応する抵抗を短絡し、AC間の抵抗値を変化させ電圧E₂を変える。マンガン基準抵抗の両端の電圧1との差を電流電源にフィードバックすることにより電磁石電流を制御するわけである。AC, BC間が全く同一の回路であるのは、AC間のリレーの接(断)に応じてBC間の対応するリレーを断(接)し、AB間のインピーダンスを変化させないためである。本自動測定のための機能として、デジタルI/Oを通じ、位相検波を利用した自動追走NMRの周波数を読み込める。本自動測定系は励起関数測定への応用のほかに、(p, r)等における共鳴状態にビームエネルギーを保持することにも使用できる。自動追走NMRの周波数の値に応じて、電流の増減のための信号をデジタルI/Oを通じ送りだせばよいわけである。

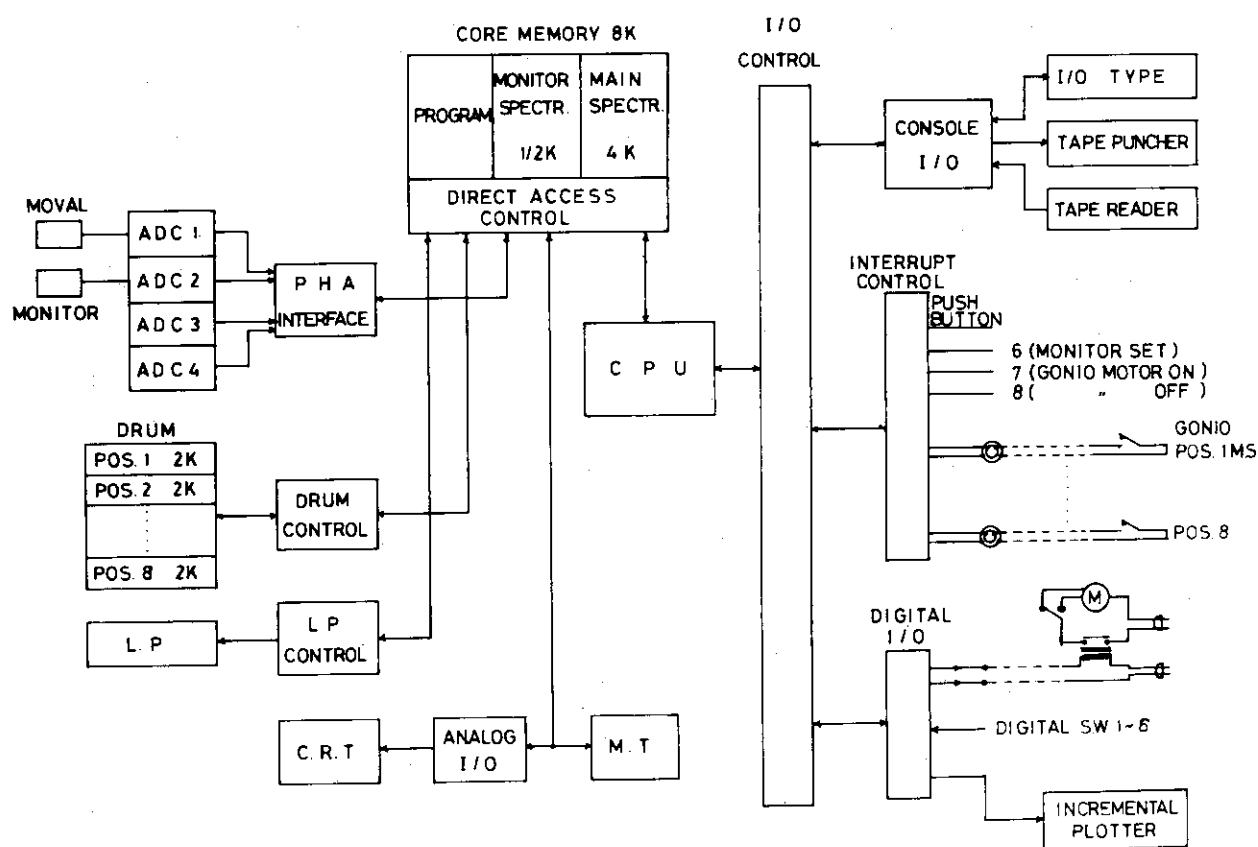


Fig. 1 Schematic diagram of USC-3 Data Processing system

角分布(角相関)自動測定プログラムの流れ

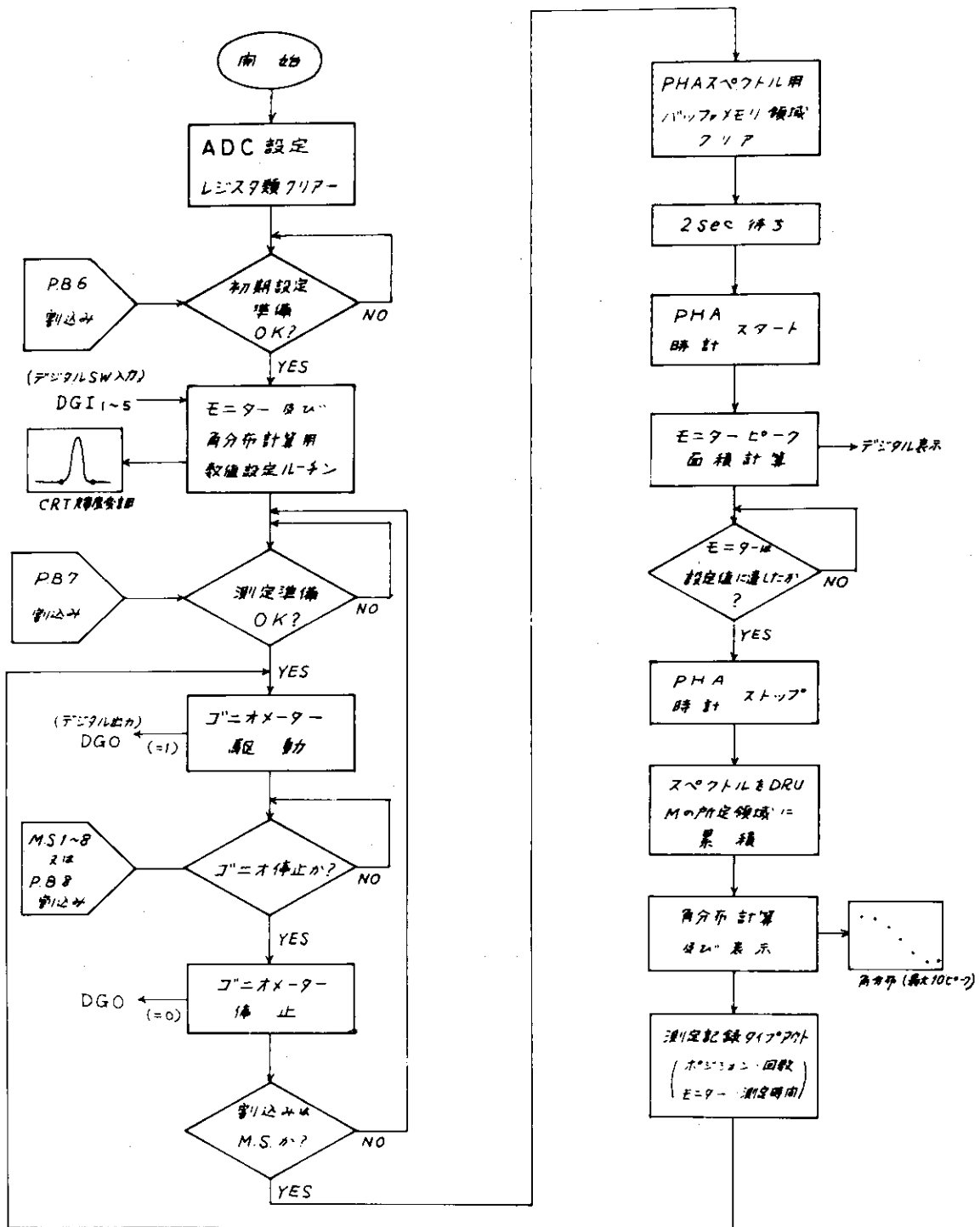


Fig. 2 Flow chart of an angular distribution (correlation) measurement program (M.S. = micro switch)

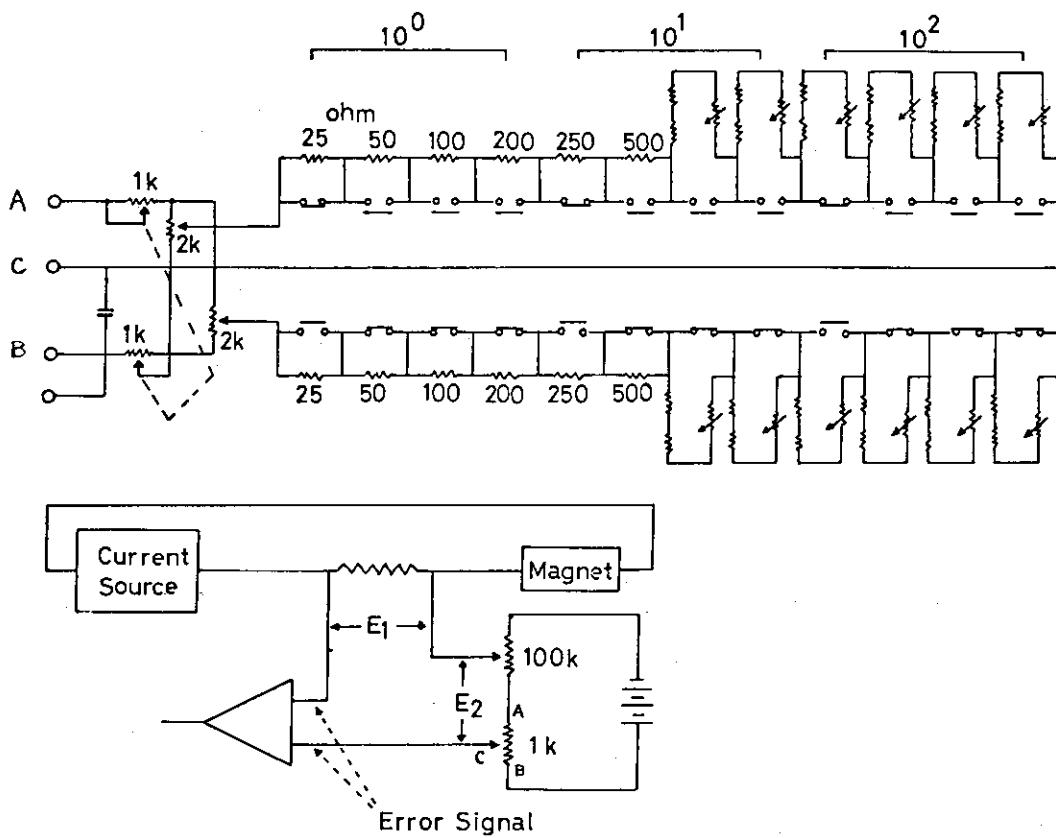


Fig. 3 Interface controlling a current power supply for a beam analyzing magnet.

4.2 電場、磁場を併用した粒子分析器とスピン回転装置の理論

大阪大学核物理研究センター 池上 栄胤

(大阪府吹田市山田上)

A First-order Theory for the Design of Charged Particle Spectrometers and Spin Rotators with Crossed Electric and Magnetic Field

Hidetsugu IKEGAMI

(Research Center for Nuclear Physics Osaka University, Yamadakami, Suita, Osaka)

Several new principles governing the design of optical systems with crossed electric and magnetic field are presented. In particular, the dispersion and the resolution of mass, velocity, energy, and momentum are expressed as simple integrals of particular first order trajectories characterizing the systems. It is shown that non zero entrance and exit angles to the electric field boundaries are useful parameters on the design of the systems as those to the magnetic pole boundaries. As useful examples, the systems of zero velocity dispersion type and of zero mass dispersion type are discussed. It is seen that the former is suited as a recoil nucleus spectrometer while the latter a spin rotator.

1. 序

一般に大運動量移行が起る核反応で生じた反跳核はイオン価が大きく、反応粒子ビームに垂直な面内に核スピンの整列しているから核分光學上有用である。しかしこれを質量分析するには質量分散以外の分散性、殊に速度分散を消す事が望ましい。この点電場、磁場を併用した分析器は有効である。一方、イオンの磁場中のスピン回転 θ はイオンの質量 M 、 g -因子、電荷 q と電磁石の偏向角 ϕ_0 で $\theta = (\mu M / I \hbar q e) \phi_0$ のように決まるから、任意の種類のイオンに思い通りのスピン回転を起こさせる為にも電場と磁場を併用した装置が考えられる。

ここでは先ず円筒座標で定義された一般的な円錐磁極場とトロイダル電場を併用した系のイオン光学を論じ、特に興味ある無速度分散型(インビーム分析器に相当)と無質量分散型(スピン回転装置又は速度分析器に相当)を取り上げる。最終の章では初めに紹介した議論を任意の電磁場のイオン光学系に拡張し、分析器の分解能に対する重要な新しい定理を証明する。

2. 円錐磁極場とトロイダル電場

Fig.1 に示すような円錐磁極の場は次式であらわされる¹⁾。

$$B_z(r, 0) = B_z(a + a\rho, 0) = \frac{R_m \cdot B_0}{R_m + a\rho} \quad (1)$$

一般に磁場中央面上の分布は

$$B_z(r, 0) = B_0 (1 + n_1 \rho + n_2 \rho^2 + \dots) \quad (2)$$

と展開出来るから(1)式と比較して

$$n = -\frac{a}{R_m}, \quad n_1 = n^2, \quad n_2 = n^3, \dots \quad (3)$$

ここで(1)式の近似等式は $R_m = a$ 即ち $n = 1$ に限り厳密に成立する。

Fig.2 に示すようなトロイダル電場は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} E_r(r, 0) &= E_r(a + a\rho, 0) \\ &= E_0(1 + \ell\rho + \ell_1\rho^2 + \dots) \end{aligned} \quad (4)$$

$$\ell = -\left(1 + \frac{a}{R_e}\right) \quad (5)$$

ここで R_m, R_a, R_b, R_e, a は, r の正方向の時, 正とする。

規準粒子(質量 M_0 , 速度 v_0) の電場 E_0 , 磁場 B_0 夫々による回転軌道半径を a_e, a_m とし曲率を h_e, h_m とすると

$$\begin{aligned} a_e &= -\frac{M_0 v_0^2}{e E_0} = \frac{1}{h_e} \\ a_m &= -\frac{M_0 v_0}{e B_0} = \frac{1}{h_m} \end{aligned} \quad (6)$$

これ等の電場, 磁場を併用した場合の軌道半径 a 又は曲率 h は次式で与えられる。

$$\frac{1}{a} = \frac{1}{a_e} + \frac{1}{a_m}, \quad h = h_e + h_m \quad (7)$$

3. 円錐磁極場, トロイダル電場併用時のイオン光学

質量, 速度が(8)式で示される粒子に対する一次の軌道方程式は(9), (10)両式で与えられる。

$$M = M_0(1 + \gamma), \quad v = v_0(1 + \beta) \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \frac{d^2\rho}{d\varphi^2} &= -(\nu_H)^2 \rho + \gamma + \left(2 - \frac{h_m}{h}\right) \beta \\ \nu_H &\equiv \left[3 + \ell - \frac{h_m}{h} (3 + \ell - n) + \left(\frac{h_m}{h}\right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \frac{d^2\zeta}{d\varphi^2} &= -(\nu_V)^2 \zeta, \quad a\zeta \equiv z \\ \nu_V &\equiv \left[-\frac{h_e}{h} (1 + \ell) - \frac{h_m}{h} n \right]^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (10)$$

ν_H, ν_V が実数の時, ρ, ζ は振動解があり軌道は集束し虚数の時は発散する。(9)(10)両式より直ちに

$$\{(\nu_H)^2 + (\nu_V)^2\} h^2 = h^2 + h_e^2 = 2h^2 - 2h h_m + h_m^2 \quad (11)$$

が得られる。即ち「水平, 垂直両方向の総集束性は電場, 磁場の分布に無関係であり, 夫々の場の強

さ乃至それらによる粒子軌道の曲率で決まる。又集束の強さは電場だけの場合 $2h^2$ ，磁場だけの場合 h^2 で併用した場合はその中間である。」という定理が見出せる。

(9)(10)両式を解き Fig.3 のような (x_1, y_1) , (x_2, y_2) 座標を導入すると

$$y_2 = y_1 \cos(\nu_H \varphi_0) + y_1' \cdot \frac{\sin(\nu_H \varphi_0)}{\nu_H} + \left\{ r + \left(1 + \frac{h_e}{h}\right) \beta \right\} \frac{1 - \cos(\nu_H \varphi_0)}{(\nu_H)^2} \quad (12)$$

$$z_2 = z_1 \cos(\nu_V \varphi_0) + z_1' \frac{\sin(\nu_V \varphi_0)}{\nu_V} \quad (13)$$

ここで x, y の長さは規準軌道半径 a を単位としている。前二式をマトリックス表示すると

$$\begin{bmatrix} y_2 \\ y_2' \\ \Delta \end{bmatrix} = \mathcal{M}_0 \begin{bmatrix} y_1 \\ y_1' \\ \Delta \end{bmatrix} \quad (14)$$

$$\begin{aligned} \mathcal{M}_0 &\equiv \begin{bmatrix} (y/y)_0 & (y/y')_0 & (y/\Delta)_0 \\ (y'/y)_0 & (y'/y')_0 & (y'/\Delta)_0 \\ 0 & 0 & (\Delta/\Delta)_0 \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} \cos(\nu_H \varphi_0), & \sin(\nu_H \varphi_0)/\nu_H, & \{1 - \cos(\nu_H \varphi_0)\}/\nu_H^2 \\ -\nu_H \sin(\nu_H \varphi_0), & \cos(\nu_H \varphi_0), & \sin(\nu_H \varphi_0)/\nu_H \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (15) \end{aligned}$$

ただし

$$\Delta \equiv r + \left(1 + \frac{h_e}{h}\right) \beta = r + \left(2 - \frac{h_m}{h}\right) \beta \quad (16)$$

であり、 $(\Delta/\Delta)_0 = 1$ が成立する場合はイオンが電場とエネルギーの授受をしない時、すなわち $E=0$ 又は $E \neq 0$, $y_1 = y_2$ の場合である。実用上は

$$(\Delta/\Delta)_0 \approx 1, \quad \text{ただし} \quad \frac{1}{2} M_0 v_0^2 \gg \frac{y_2}{y_1} E d r \quad (17)$$

としてよい。 z 方向については

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} z_2 \\ z_2' \\ \Delta \end{bmatrix} &\equiv \nu_0 \begin{bmatrix} z_1 \\ z_1' \\ \Delta \end{bmatrix} \\ \nu_0 &\equiv \begin{bmatrix} (z/z)_0 & (z/z')_0 \\ (z'/z)_0 & (z'/z')_0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos(\nu_V \varphi_0), & \sin(\nu_V \varphi_0)/\nu_V \\ -\nu_V \sin(\nu_V \varphi_0), & \cos(\nu_V \varphi_0) \end{bmatrix} \quad (18) \end{aligned}$$

したがって (Fig.3) の物点座標 (y_0, z_0) と像点座標 (y^*, z^*) の関係は、

$$\begin{bmatrix} y^* \\ y'^* \\ \Delta \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & \ell_2 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \mathcal{M}_0 \begin{bmatrix} 1 & \ell_1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} y_0 \\ y_0' \\ \Delta \end{bmatrix} \quad (19)$$

$$\begin{bmatrix} z^* \\ z'^* \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & \ell'_2 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \nu_0 \begin{bmatrix} 1 & \ell_1 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} z_0 \\ z'_0 \end{bmatrix} \quad (20)$$

であたえられる。以上の考察から倍率，集束条件等は次の各式であらわす事が出来る。ここではイオンが場の境界面に垂直に入射する場合を取り上げているが次式のマトリックス要素表示の部分は次章で述べる斜入射の場合にも $(y/y)_0 \rightarrow (y/y)$ 等の交換をするだけで適用出来る。

横倍率 M_H :

$$M_H = (y/y)_0 + \ell_2 (y'/y)_0 = \cos(\nu_H \varphi_0) - \ell_2 \nu_H \sin(\nu_H \varphi_0) \quad (21)$$

縦倍率 M_V :

$$M_V = (z/z)_0 + \ell'_2 (z'/z)_0 = \cos(\nu_V \varphi_0) - \ell'_2 \nu_V \sin(\nu_V \varphi_0) \quad (22)$$

横方向集束:

$$\begin{aligned} (y/y)_0 \ell_1 + (y'/y)_0 + (y'/y)_0 \ell_1 \ell_2 + (y'/y)_0 \ell_2 &= 0 \\ (\ell_1 + \ell_2) \cos(\nu_H \varphi_0) + [1 - (\nu_H)^2 \ell_1 \ell_2] \frac{\sin(\nu_H \varphi_0)}{\nu_H} &= 0 \end{aligned} \quad (23)$$

縦方向集束:

$$\begin{aligned} (z/z)_0 \ell'_1 + (z'/z)_0 + (z'/z)_0 \ell'_1 \ell'_2 + (z'/z)_0 \ell'_2 &= 0 \\ (\ell'_1 + \ell'_2) \cos(\nu_V \varphi_0) + [1 - (\nu_V)^2 \ell'_1 \ell'_2] \frac{\sin(\nu_V \varphi_0)}{\nu_V} &= 0 \end{aligned} \quad (24)$$

分散:

$$\begin{aligned} D_{r,\beta} &= [(y/\Delta)_0 + \ell_2 (y'/\Delta)_0] \cdot \Delta \\ &= \left[\frac{1 - \cos(\nu_H \varphi_0)}{(\nu_H)^2} + \frac{\sin(\nu_H \varphi_0)}{\nu_H} \cdot \ell_2 \right] \left[r + \left(1 + \frac{h_e}{h}\right) \beta \right] \end{aligned} \quad (25)$$

直交入射の場合の方向二重集束は(23)(24)より

$$\ell'_2 = \ell_2, \quad \nu_H = \nu_V$$

すなわち

$$1 + \frac{1}{2} \left(\frac{a}{a_m} \right)^2 - \frac{a}{R_e} - \left(\frac{a}{a_m} \right) \left(1 - \frac{a}{R_e} + \frac{a}{R_m} \right) = 0 \quad (26)$$

この式で明らかなように R_e , R_m の何れかを ∞ としても方向二重集束が達成出来る。つまり一様磁場か円筒型電極を使用して差し支えない。実用上は一様磁場のものが簡便である。

4. 斜入射効果

Fig. 4 は電場，磁場共斜線の部分に存在し，場の境界面にイオンが斜交する場合を示す。斜入射角を夫々電場について α_{1e} , α_{2e} 磁場では α_{1m} , α_{2m} とする。 α が正 (図の矢印方向) であれば，横

方向の集束性は弱められ、縦方向の集束性は強められる事になる。これは(11)式を拡張した後述の(50)式によって一般的に証明されるが Fig. 5 から容易に理解される。つまり斜入出射効果は直交入出射の電磁場（前章参照）の境界に図のようなセクター電磁場を重畳させる効果として理解される。更に換言すればこのセクター場は軸長（ x 軸方向の長さ）が 0 の電磁的 Q-レンズ（四極電磁場）と見做される。^{*} Fig. 4 b より、入射角 α_{1e} 、 α_{1m} に伴うビームの偏向角は

$$y' = y'_e + y'_m = y_1 \left[\frac{\tan \alpha_{1e}}{a_e} + \frac{\tan \alpha_{1m}}{a_m} \right] \quad (27)$$

であるから、このセクターレンズ固有の変換マトリックス $\mathcal{M}_{s1}$ は、

$$\mathcal{M}_{s1} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ G_1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (28)$$

$$G_1 \equiv \left(\frac{a}{a_e} \right) \tan \alpha_{1e} + \left(\frac{a}{a_m} \right) \tan \alpha_{1m}$$

特に電場、磁場が境界を共通とする時は(7)式より

$$G_1 = \tan \alpha_1, \quad \alpha_1 \equiv \alpha_{1e} = \alpha_{1m} \quad (29)$$

以上の考察から斜入出射の電磁場（Fig. 4）全系の変換マトリックスは

$$\begin{aligned} \mathcal{M} &= \mathcal{M}_{s2} \times \mathcal{M}_0 \times \mathcal{M}_{s1} \\ &= \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ G_2 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (y/y)_0 & (y/y')_0 & (y/\Delta)_0 \\ (y'/y)_0 & (y'/y')_0 & (y'/\Delta)_0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ G_1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \\ &\equiv \begin{bmatrix} (y/y)(y/y')(y/\Delta) \\ (y'/y)(y'/y')(y'/\Delta) \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (30) \end{aligned}$$

このマトリックス要素は第 1 表に示す。前章の(20)~(25)の各式で $(y/y)_0$ 等を対応する (y/y) 等のマトリックス要素に置換すれば斜入出射の電磁場全系の倍率、集束条件、分散が求まる。(30)式はよく知られているこれまでの磁場の斜入出射の効果を拡張したものである。しかしながら、一般に電場の境界はその形状も含めて、対向電極の相対位置とその間に適当な電位をあたえて配置したグリッドによって制御出来るものであり、磁場境界の制御よりは簡単であるから、今後は積極的に電場の斜入出射も活用すべきであろう。後述するように電場の場合も縦方向すなわち z 方向の集束が斜入出射によって生ずるのである。

歴史的には斜入出射効果の最大の意義はそれによって生ずる縦方向の集束性にあった。この集束性は(11)式の定理の拡張（第 7 章の(50)式）から直ちに結果が得られるが、先ず、磁場だけが存在する場合について具体的な考察を行って見る。磁場 B の y 方向の成分を B_y とすると縦方向の運動方程式は

* 軸長 0 の Q-レンズであるから通常の Q-レンズの強集束性に対し、弱集束の性質のものである。

$$\frac{d^2 z}{dt^2} = -\frac{e v_0}{M_0} B_y$$

ここで $x = v_0 t$ と (6) を併用すると,

$$\frac{d^2 z}{dx^2} = -\frac{B_y}{a_m B_0} \quad (31)$$

これを Fig. 4b のセクターレンズの区間で積分すると z' の境界での変化が得られる。すなわち

$$\Delta z' = -\left(\frac{1}{a_m B_0}\right) \int B_y dx \quad (32)$$

一般に $\text{rot } \mathbf{B} = 0$ つまり $\partial B_y / \partial z = \partial B_z / \partial y$ であるから

$$\frac{\partial}{\partial z} \int B_y dx = \frac{\partial}{\partial y} \int B_z dx = B_0 \tan \alpha_{1m}$$

従って $z = 0$ で $B_y = 0$ である事に留意して

$$\int B_y dx = B_0 z \tan \alpha_{1m}$$

よって

$$\Delta z'_m = -\left(\frac{z}{a_m}\right) \tan \alpha_{1m} = -\left(\frac{z}{a}\right) \left(\frac{a}{a_m} \tan \alpha_{1m}\right) \quad (33)$$

電場についても同様の議論が進められるが $\text{rot } \mathbf{B} = 0$ の代わりに $\text{div } \mathbf{E} = 0$ すなわち $\partial E_z / \partial z = -\partial E_y / \partial y$ の関係を使用すると

$$\Delta z'_e = -\left(\frac{z}{a_e}\right) \tan \alpha_{1e} = -\left(\frac{z}{a}\right) \left(\frac{a}{a_e} \tan \alpha_{1e}\right) \quad (34)$$

従って $\mathbf{B}$, $\mathbf{E}$ 共の斜入射効果による縦方向の偏位は

$$\Delta z' = \Delta z'_e + \Delta z'_m = -\left(\frac{z}{a}\right) \left[\left(\frac{a}{a_e}\right) \tan \alpha_{1e} + \left(\frac{a}{a_m}\right) \tan \alpha_{1m} \right] = -\left(\frac{z}{a}\right) G_1 \quad (35)$$

すなわちセクターレンズの縦方向変換マトリックスは,

$$\nu_{s1} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -G_1 & 1 \end{bmatrix} \quad (36)$$

よって全系の変換マトリックスは (30) 式に対応して

$$\begin{aligned} \nu &= \nu_{s2} \times \nu_0 \times \nu_{s1} \\ &= \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -G_2 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (z/z)_0 & (z/z')_0 \\ (z/z)_0 & (z'/z')_0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -G_1 & 1 \end{bmatrix} \equiv \begin{bmatrix} (z/z)(z/z') \\ (z'/z)(z'/z') \end{bmatrix} \quad (37) \end{aligned}$$

このマトリックス要素はTable 1にまとめてある。(37)式の結果、殊に電場についても斜入出射によって縦方向の集束性が出て来る事実は従来報告されていなかったものである。

5. 速度無分散型分析器

核反応で生じた反跳核をそのまま質量分析する事は捕集効率の高い事と反跳核の偏極性を生かした研究が可能となる事から興味深い。この際の問題点は反跳核のイオン価の分布とエネルギー分布である。このうち後者は速度無分散型分析器の使用で解決する。この場合は(38)と(7)式より、

$$h = -h_e = \frac{h_m}{2} \quad (38)$$

質量分散性のみ持つ方向二重集束の条件は(39)式より

$$\frac{1}{a} = \frac{1}{R_m} - \frac{1}{R_e} \quad (39)$$

一様磁場を採用する時は上式と(9)(10)(25)の式より

$$R_e = -a, \quad \nu_H = \nu_V = 1, \quad D_r = \cos \varphi_0 - \ell_2 \sin \varphi_0 \quad (40)$$

横方向の集束、分散性に関する限り一様磁場のみの場合 ($a = a_m$) と全く同じである事がわかる。なお前章で述べた斜入出射を利用すれば、一様磁場と円筒電極の場で方向二重集束が得られる事は云うまでもない。

6. 直進型分析器——速度フィルター

(7)式において $h_e = -h_m$ とすると $h = 0$ となりイオンは直進する。この場合(3)(4)両式において

$$\frac{n}{a} = -\frac{1}{R_m}, \quad \frac{\ell}{a} = -\frac{1}{R_e} \quad (41)$$

又 $a\varphi = x, \quad a\rho = y, \quad a\zeta = z$

であるから

(9)(10)両式は

$$\left. \begin{aligned} \frac{d^2 y}{d x^2} &= -(k_H)^2 x - \beta h_m \\ k_H^2 &= h_m^2 \left[1 - \left(\frac{a_m}{R_m} + \frac{a_e}{R_e} \right) \right] \end{aligned} \right\} \quad (42)$$

$$\left. \begin{aligned} \frac{d^2 z}{d x^2} &= -(k_V)^2 z \\ k_V^2 &= h_m^2 \left[\frac{a_m}{R_m} + \frac{a_e}{R_e} \right] \end{aligned} \right\} \quad (43)$$

よって

$$(k_H)^2 + (k_V)^2 = h_m^2 \quad (44)$$

横，縦両方向の集束性の和は h_m^2 すなわち磁場だけの場合と同じである。(42)式で明らかなように質量分散つまり(40)式の γ 項が消えている。従って直進型の分析器は速度フィルターとして有用で前章の分析器と対照的である。 $R_e = R_m = \infty$ のものは古くからウィーンフィルタとして有名である。(42)(43)両式より方向二重集束は

$$k_H = k_V = \frac{h_m}{2} \quad \left. \vphantom{k_H = k_V = \frac{h_m}{2}} \right\} \quad (45)$$

或は
$$\frac{1}{R_m} - \frac{1}{R_e} = \frac{1}{2a_m}$$

実用的には $R_m = \infty$, $R_e = -2a_m$ が興味深い。第4章の斜入出射効果を利用すれば一様電磁場で方向二重集束が得られる。(45)式に対応する速度分散 D_β は

$$D_\beta = 2 \{ 1 - \cos(h_m x \sqrt{2}) \} + \ell_2 \sqrt{2} \sin(h_m x \sqrt{2}) \quad (46)$$

7. 任意の電場と磁場におけるイオン光学

中央面に関する電磁場の対称性だけを前提とした最も一般的な場合は Fig. 6 に示すような規準として選んだ軌道上に定義した移動座標 (s, y, z) を導入する事によって第3章のイオン光学は簡単に拡張される。 h, h_m, h_e はもはや常数ではないが

$$h = h_m + h_e \quad (7)$$

はそのまま成立し，任意の軌道の規準軌道からの偏位は

$$\frac{d^2 y}{ds^2} = k_H^2 y + \{ \gamma h + (h + h_e) \beta \} h \quad \left. \vphantom{\frac{d^2 y}{ds^2} = k_H^2 y + \{ \gamma h + (h + h_e) \beta \} h} \right\} \quad (47)$$

$$k_H^2 = \nu_H^2 \cdot h^2 = (3 + \ell) h^2 - (3 + \ell - n) h h_m + h_m^2$$

$$\frac{d^2 z}{ds^2} = -k_V^2 z \quad \left. \vphantom{\frac{d^2 z}{ds^2} = -k_V^2 z} \right\} \quad (48)$$

$$k_V^2 = \nu_V^2 \cdot h^2 = -(1 + \ell) h h_e - n h h_m$$

この場合，電磁場の分布パラメータは

$$n = \left[\left(\frac{1}{h B_z} \frac{\partial B_z}{\partial y} \right) \right]_{y=0, z=0} \quad (49)$$

$$n_1 = \left[\frac{1}{2! h^2 B_z} \left(\frac{\partial^2 B_z}{\partial y^2} \right) \right]_{y=0, z=0} \quad \left. \vphantom{n_1 = \left[\frac{1}{2! h^2 B_z} \left(\frac{\partial^2 B_z}{\partial y^2} \right) \right]_{y=0, z=0}} \right\}$$

の如く，一般的な形で定義される。これらのパラメータも h と同様に常数ではないが(11)式の定理は成立する。

$$k_H^2 + k_V^2 = h^2 + h_e^2 = 2h^2 - 2h h_m + h_m^2 \quad (50)$$

すなわち，任意の電磁場についても(11)式の定理は拡張出来るのである。従ってこの定理を斜入出

射のセクター電磁場 (Fig.5 参照) に適用すると $h=0$ であるから (50) 式より

$$k_H^2 = -k_V^2 \quad (51)$$

つまり横縦夫々の方向の集束性は逆であり、その大きさは等しい。(28) 式の横集束マトリックスと縦集束マトリックス (30) 式を比較してみてもこの定理が理解されよう。四極レンズを含む多極レンズについても (51) 式は厳密に成立する。

(12)(33) 両式は次式のように拡張される。

$$y = y_0 \cos(k_H s) + y'_0 \frac{\sin(k_H s)}{k_H} - \cos(k_H s) \int_0^s \frac{\sin(k_H s)}{k_H} [r h + \beta(h + h_e)] ds \quad (52)$$

$$z = z_0 \cos(k_H s) + z'_0 \frac{\sin(k_H s)}{k_H} \quad (53)$$

ただし、 $a=1/h$ がもはや常数ではないから、 y, z の単位に a を使用する事はしていない。以上の議論では対称性以外に電磁場分布に何等の制限も加えていないから (52)(53) 両式より直ちに

$$\left. \begin{aligned} M_H &= \cos(k_H s_H^*) \\ M_V &= \cos(k_V s_V^*) \end{aligned} \right\} \quad (54)$$

ただし s_H^*, s_V^* は横、縦両方向夫々の像点の座標であり、これらは次式のような一次集束条件をみたす。

$$\left. \begin{aligned} \frac{\sin(k_H s_H^*)}{k_H} &= 0 \\ \frac{\sin(k_V s_V^*)}{k_V} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (55)$$

像点 $s = s_H^*$ における分散は (52)(53) 両式より

$$D = -\cos(k_H s_H^*) \int_0^{s_H^*} \frac{\sin(k_H s)}{k_H} [r h + \beta(h + h_e)] ds \quad (56)$$

従って一次の分解能 $R_1 = |D/M_H y_0|$ について

$$R_1 y_0 = \left| \frac{D}{M_H} \right| = \left| \int_0^{s_H^*} \frac{\sin(k_H s)}{k_H} [r h + \beta(h + h_e)] ds \right| \quad (57)$$

ここで (52) 式の右辺の y'_0 の係数から明らかなように、 $y'_0 \sin(k_H s)/k_H$ は放出角が $2 y'_0$ のビームの半巾すなわち $y(y_0=0, \Delta=0)$ であるから (28) 式と $h ds = d\varphi$ を用いて

$$R_1 y_0 = \left| \frac{D}{M_H} \right| = \left| \frac{1}{y'_0} \int_0^{y_0} y(y_0=0, \Delta=0) \cdot \Delta \cdot d\varphi \right| \quad (58)$$

今, y'_0 で規格化したビーム巾の積分を

$$\Gamma \equiv \left| \frac{1}{y'_0} \int_0^{y_0} y(y_0=0, \Delta=0) d\varphi \right| = \left| \frac{\ell}{y'_0} \right| \quad (59)$$

の如く定義すると分解能が以下の場合に簡単に表示出来る。ここに ℓ は場の中での標準軌道との行路差である。

i) 磁場だけの場合, ($h_e = 0, h_m = h$):

$$R_1 y_0 = (\beta + \gamma) \Gamma = \delta_p \cdot \Gamma, \quad \delta_p \equiv \Delta p/p \quad (60)$$

ii) 電場だけの場合, ($h_m = 0, h_e = h$):

$$R_1 y_0 = (2\beta + \gamma) \Gamma = \delta_E \cdot \Gamma, \quad \delta_E \equiv \Delta E/E \quad (61)$$

iii) 標準軌道が直線の場合, ($h_e = -h_m, h = 0$):

$$R_1 y_0 = \beta \cdot \Gamma \quad (62)$$

iv) 無速度分散の場合, ($h_e = -h_m/2 = -h$):

$$R_1 y_0 = \gamma \cdot \Gamma \quad (63)$$

すなわち上記の場合は, いずれも分解能がビームの行路差だけで決定される事が理解される。(57)式から明らかな如く, 従来の通念と異って実は場の分布パラメーターは分散と分解能に直接関係なく軌道半径乃至腕の長さも分解能の決定要因になってはいない。(60)式の定理は Streib, Brown によって発見されていた。これを拡張した (iv) は報告例が見つかっていない。この式はイオンと場のエネルギー授受が無視出来る限り, 如何なる場合にも適用される。因みに Q-レンズ等の多極場では $\Gamma = 0$ であるから $D = 0, R_1 = 0$ である。二次以上の高次収差⁴⁾の議論は次回にゆずる。

終りに核物理研測定器部門のメンバーとの議論が有用であった事を附記し感謝する。

References

- 1) 松田 久: 質量分析, No. 25, 47 (1964).
- 2) Enge H. A.: Focusing of charged particles, ed. A. Septier, Academic Press, New York, 1967.
- 3) Streib J. F.: HEPL Report No. 104, (1960) Stanford University.
Brown K. L.: Partide Physics, 1, 71 (1967).
- 4) For example, Ikegami H.: Rev. Sci. Instr., 29, 943 (1958).
Yamamoto H., Takumi K. and Ikegami H.: Nucl. Instr. and Methods, 65, 253 (1968).

Table 1 First-order focusing coefficients
(matrix elements) for deflecting systems
with crossed electric and magnetic field.

Matrix element	
$(y/y) :$	$\cos(\nu_H \varphi_0) + G_1 \frac{\sin(\nu_H \varphi_0)}{\nu_H}$
$(y/y') :$	$\frac{\sin(\nu_H \varphi_0)}{\nu_H}$
$(y/\Delta) :$	$\frac{1 - \cos(\nu_H \varphi_0)}{(\nu_H)^2}$
$(y'/y) :$	$\frac{\sin(\nu_H \varphi_0)}{\nu_H} \left[1 - \frac{G_1 G_2}{(\nu_H)^2} \right] + \cos(\nu_H \varphi_0) \cdot [G_1 + G_2]$
$(y'/y') :$	$\cos(\nu_H \varphi_0) + G_2 \frac{\sin(\nu_H \varphi_0)}{\nu_H}$
$(y'/\Delta) :$	$\frac{\sin(\nu_H \varphi_0)}{\nu_H} + G_2 \frac{1 - \cos(\nu_H \varphi_0)}{(\nu_H)^2}$
$(z/z) :$	$\cos(\nu_V \varphi_0) - G_1 \frac{\sin(\nu_V \varphi_0)}{\nu_V}$
$(z/z') :$	$\frac{\sin(\nu_V \varphi_0)}{\nu_V}$
$(z'/z) :$	$-\frac{\sin(\nu_V \varphi_0)}{\nu_V} \left[1 - \frac{G_1 G_2}{(\nu_V)^2} \right] - \cos(\nu_V \varphi_0) \cdot [G_1 + G_2]$
$(z'/z') :$	$\cos(\nu_V \varphi_0) - G_2 \frac{\sin(\nu_V \varphi_0)}{\nu_V}$

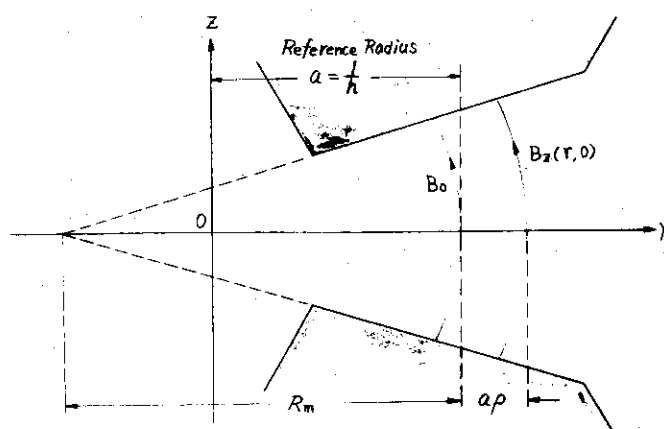


Fig. 1 Cross-sectional view of conical magnet poles.

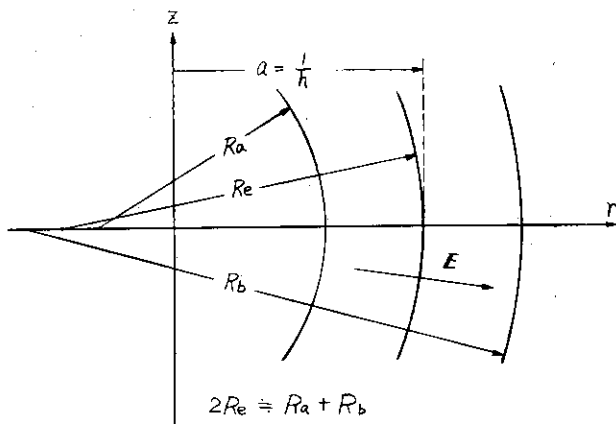


Fig. 2 Cross-sectional view of toroidal electrodes.

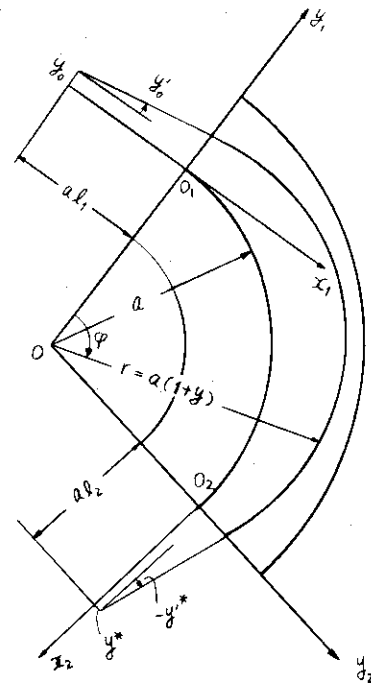


Fig. 3 Coordinate system used in derivation of transfer matrix elements.

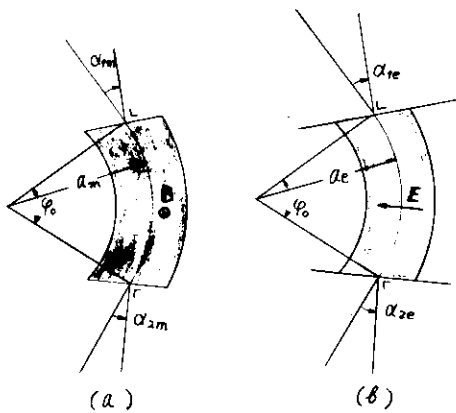


Fig. 4 Electric and magnetic field with nonzero entrance and exit angles.
(a) Magnetic field (b) Electric field

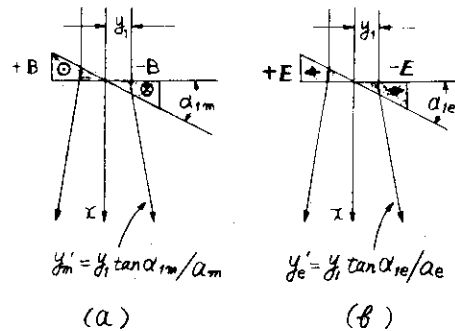


Fig. 5 Effect of $\alpha \approx 0$ equivalent to adding a "sector" lens at entrance.
(a) Magnetic field (b) Electric field

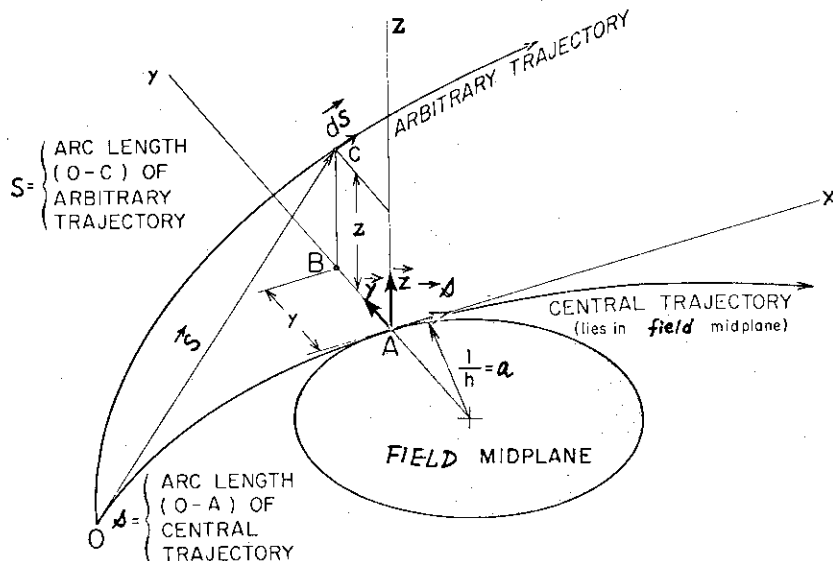


Fig. 6 Curvilinear coordinate system used in derivation of generalized theorem of ion optics.

4.3 重イオン核反応実験におけるターゲット調製技術

日本原子力研究所 馬場 澄子
(茨城県那珂郡東海村)

The Target Preparation Technique in Heavy-ion Experiments

Sumiko BABA
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken)

The target preparation methods for studies of heavy-ion induced nuclear reaction are reviewed. Discussions are given on their advantages and disadvantages.

重イオン核反応の実験のうち、核化学的に興味ある実験として、励起関数、飛程、散乱・反跳等の実験を選び、これらの実験に用いられているターゲットについて文献をサーベイした。^{1,2)} これらの実験において、ターゲットが備えるべき性質として要求される条件は、

- 1) 適当な厚さを持ち、かつ厚さの一様性がよいこと。
- 2) 熱伝導度が高いこと
- 3) 実験に耐えるだけの強度があること
- 4) 化学的に安定であること

の諸点である。これらは、軽い荷電粒子(Heや陽子など)の照射の際にも必要とされた条件であって、このような性質を備えたターゲットを入手する方法に関しては、すでに多くの検討がなされている。³⁾ しかしながら、重イオンは軽い荷電粒子に比較すると物質中でのエネルギー損失の割合が大きいので、1)の厚さに関しては、上記のような実験では非常に薄いターゲットが要求される点、2)の熱伝導度に関しては特に厚いターゲットを用いる実験では局所的な発熱が大きいことを考慮しなければならない点で、軽い荷電粒子の実験よりも条件が厳しい。

物質中での、イオンのエネルギー損失 $-dE/dx$ (E はイオンのエネルギー、 x はイオンが通過した厚さ)は、だいたいイオンの原子番号 Z の自乗に比例し、又その質量数が大きい程大きな値となる。⁴⁾ アルミニウム中でのイオンのエネルギー損失の例をFig. 1に示す。 $-dE/dx$ の値²⁾を用いて、ターゲット中でのエネルギー損失が入射エネルギーの1パーセントになるようなターゲットの厚さを計算した。ターゲット物質としてAlとAu、入射粒子として陽子、 ^{12}C 及び ^{40}Ar の場合の計算例をTable 1に示した。これらの数値から、重イオン核反応の励起関数の実験には主として $1\text{mg}/\text{cm}^2$ 以下の厚さのターゲットが必要であることが知られる。実際に、多くの研究でそのような厚さのターゲットが使用されている。^{1, 2)} 散乱などの実験では、更に薄い数 $10\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下のターゲットが使用されている場合が多い。⁵⁾

ターゲット用薄膜の作製法として、圧延法、電解法、真空蒸着法、沈降法、スパッタリング法等が従来行なわれているが、重イオン実験に用いられているターゲットの多くは真空蒸着法で作られている。真空蒸着法によれば、C、N及び大部分の金属元素の数 $10 - 数100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の厚さの薄膜が得られるので、厚さの点で重イオン実験用のターゲットとして適している。また、数元素を除い

て殆どの金属元素は単体の金属箔になるので、熱伝導度の点でも好都合である。真空蒸着法の欠点は、効率が悪くて原料のうちのごく一部しかターゲットとして得られない点である。このため、濃縮同位体等の高価な物質の蒸着には、ロスを減らすために種々の工夫がなされている。同位体分離器で補集しつつターゲットを作る方法も有効であり、Reに関する例が報告⁶⁾されている。

圧延法や電解法はロスが少なく操作も容易であるが、得られる箔の厚みが重イオン用のターゲットとしては大きすぎる場合が多いため、少数の元素にしか適用されていない。酸化物を還元蒸着の後圧延する特殊な方法でYb, Tm等の希土類元素⁷⁾の、電解法によってNiとAlとFeの^{8, 9)}それぞれ数mg/cm²以下の箔を作った例などがみられた。融点が非常に高く真空蒸着法の適用が困難な元素、即ちTa, Ti, U, Hf, Wのターゲット作製法として、N₂気流中で金属とバックキンの間に電場をかけ、窒化物をスパッターさせる方法が報告されている¹⁰⁾。また、Sm, Tb, Mnについては、酸化物を沈降法或いはスプレー法によってターゲットとした例がみられた。^{11, 12)}以上、種々の方法によってどのような元素のターゲットを作ることができるかを、Table 2に一覧表にして示した。Os, Pdなどの白金族元素とHgのターゲット作製例はみられないか、みられても作るのが困難で良好なターゲットが得られていなかった。なお、人工元素のターゲット技術に関してはここでは省略した。

我が国でのターゲット用薄膜製造の経験は、数年前に原子核研究所で行なわれた、ターゲット製作技術の研究会において、殆どすべて発表されていると考えられる。この研究会の報告書¹³⁾には、諸所の研究グループにおけるターゲット作製の実績と作製上の注意事項が記載されている。これら^{13, 14)}を参考にすれば、主として真空蒸着法により、いくつかの元素は沈降法やスパッタリング法により、重イオン実験用のターゲットは、現在大部分の元素について作ることが可能と考えられる。上記報告書¹³⁾によれば、真空蒸着法はターゲットにより作り方に難易の差があるとみられる。例えば、数10μg/cm²程度の薄いものを作る場合の取り扱い、濃縮同位体のターゲットのように原料が少量の場合とか、高い融点のターゲット物質の場合のヒーターに対するバックキンの置き方の工夫、酸化され易いターゲット物質の場合の空気に触れさせないような取り扱い、などは可成りの熟練が必要である。これに対し、筆者らの研究グループで開発した遠心沈降法¹⁵⁾は、化学的に安定な粉末状態で得られさえすれば、どのような金属あるいは金属の化合物にも容易に適用でき、最低100μg/cm²までのターゲットを作ることが可能である。但し、粉末をのせるためのバックキンを常に必要とする。

薄いターゲットの厚みの測定には、通常、ターゲット物質を秤量あるいはその他の化学分析によって定量した後、面積で割り算して厚みを算出する方法は、誤差が大きくなるのであまり適当ではない。より精度が高く、一般的に行なわれている方法は、α線源を用いる方法である。^{13, 16)}即ち、ターゲットを通過した前後の単色α線の飛程の差、あるいはエネルギー差を測定し、その値からターゲットの厚さを求める。約4MeVのα線により、1μg/cm²の精度で10mg/cm²まで測定が可能という報告がある。¹⁶⁾α線源を用いる方法は、ターゲットを破壊する必要がなく、またビーム状の線源で行なえば厚みの一様度を測定することも可能で、非常に有効な方法である。

重イオン実験に使用したターゲットの、厚さの一様度を記載してある報告は、少数しかみられなかった。そのうちの一つは、Al, Au, Ag, Niといった比較的扱い易い元素を真空蒸着法で作った例で、蒸着中にバックキンを回転させることにより、ターゲットの厚さの場所による変化が±1%となっている。¹⁷⁾その他の2, 3の例では、±5-10%の厚さのばらつきが示されている。^{9, 12)}一般に、10-100mg/cm²程度の厚いターゲットに比較して、厚さの一様性に関して良質な薄いターゲッ

トを得るのは、容易ではないと考えられる。厚い場合の例として、前記の遠心沈降法¹⁵⁾によって作った $29 \cdot 37 \text{ mg/cm}^2$ の U_3O_8 ターゲットの厚さ分布測定の結果を Fig. 2 に示す。

重イオン照射の際のターゲット内での発熱は、これまで述べた薄いターゲットよりも、厚いターゲットを使用する実験で重大な問題となるが、これは主として照射技術によって解決すべき問題点である。

以上の結論として、軽い荷電粒子の核反応実験のためにすでに開発されている方法で、重イオン核反応実験用のターゲットを作ることが可能であるが、作るのに軽い荷電粒子の場合以上の熟練と細心の注意を必要とするということがいえる。

References

- 1) Keller K. A., Lange J., Münzel H. and Pfennig G.: Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology Vol.5, Part b (Springer-Verlag, 1973)
- 2) Hata K. et al: to be published
- 3) Yaffe L.: Ann. Rev. Nucl. Sci., 12, 153 (1962);
Smith M. L.: AERE-R-5097 (1965)
- 4) Northcliffe L. C. and Schilling R. F.: Nuclear Data, A7, 233 (1970)
- 5) Kerns J. R. and Saladin J. X.: Phys. Rev. C, 6, 1016 (1972)
- 6) Chellis K. E. and Sheline R. K.: Nucl. Instr. Methods, 54, 139 (1969)
- 7) Leigh J. R., Newton J. O., Ellis L. A., Evans M. C. and Emmott M. J.: Nucl. Phys., A183, 177 (1972)
- 8) Blann M., Lanzafame F. M. and Piscitelli R. A.: Phys. Rev., 133, B700 (1964)
- 9) Cline C. K.: Nucl. Phys., A174, 73 (1971)
- 10) Wormald M. R., Underwood B. Y. and Allen K. W.: Nucl. Instr. Methods, 107, 233 (1973)
- 11) Gauvin H., Hahn R. L., Le Beyec Y., Lefort M. and Livet J.: Nucl. Phys., A208, 360 (1973)
- 12) Read J. B. J., Bells J. M. L. and Wolfgang R.: Phys. Rev., 127, 1722 (1962)
- 13) 金子, 松田他: 原子核研究, 11 611 (1967)
- 14) Uemura Y. et al: Bull. Inst. Chem. Res. Kyoto Univ., 47, 114 (1969)
- 15) Suzuki T., Baba S., Umezawa H. and Amano H.: Nucl. Instr. Methods, 87, 311 (1970)

- 16) Ramavataram K. and Porat D. I.: Nucl. Instr. Methods, 4, 239 (1959)
- 17) Porat D. I. and Ramavataram K.: Proc. Roy. Soc. (London), A252, 394 (1959)

Table 1. The target thicknesses for the 1 % energy loss (mg/cm^2)

Incident energy of ion (MeV)	Al-target			Au-target		
	P	^{12}C	^{40}Ar	P	^{12}C	^{40}Ar
50	50	0.217	0.0275	85.7	0.465	0.0719
100	176	0.714	0.0613	276	1.39	0.143
200	565		0.161	861		0.336

Table 2. Methods of the target preparation for heavy-ion experiments and the list of elements applicable in each method

Method	Elements
Evaporation	Li, Be, B, C, N, F(CaF_2), Na, Mg, Al, Si, S, K(KCl), Ca, Sc, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Se, Rb(RbCl), Sr(Sr_2O_3), Y, Zr, Mo, Ag, Cd, Sn, Sb, Te, I(KI), Cs(Cs_3N , CsCl), Ba(Ba , BaCl_2), R.E., W, Ir, Pt, Au, Tl, Pb, Bi, Ra, U(UF_4)
Electroplating	Cr, Fe, Ni, Rh, Te, Au
Rolling	Al, V, Cu, In, Au, Dy, Tm, Yb, Th
Sputtering	Sc, V, Hf, Ta, W, U
Deposition	P, Mn, Rb, Nd, Sm, Tb, U
Spraying	Mn, Co

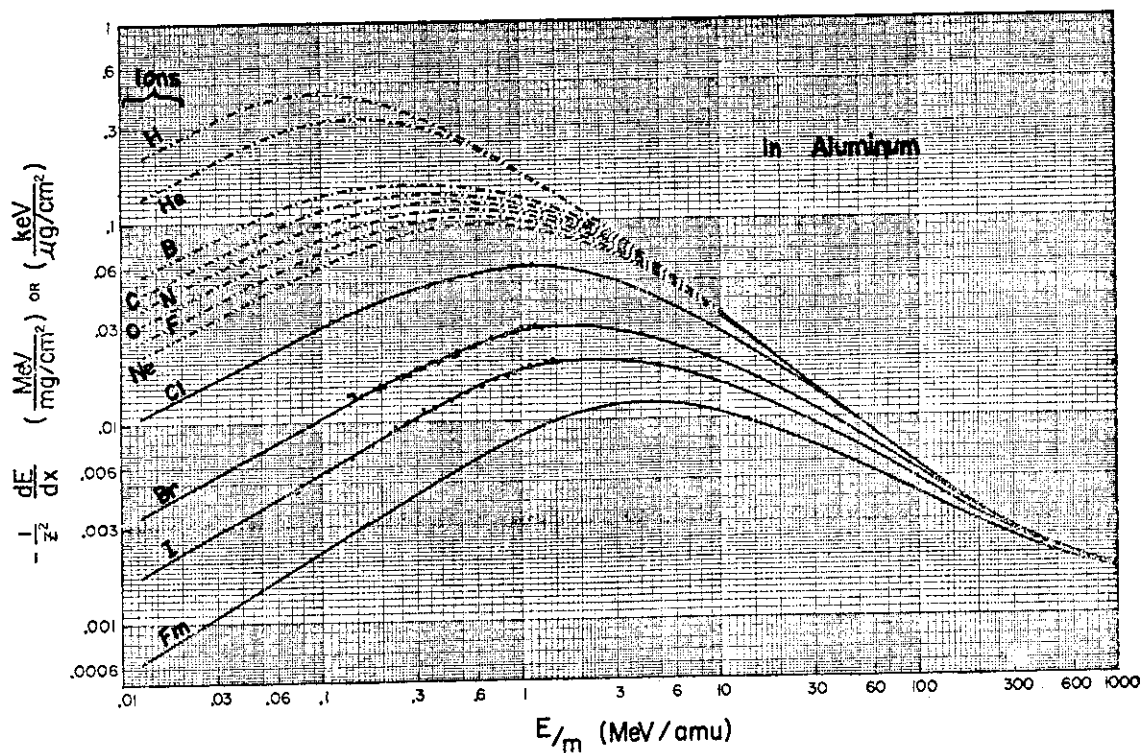


Fig. 1 Stopping-power curves for heavy ions in aluminum (from Ref. 4)

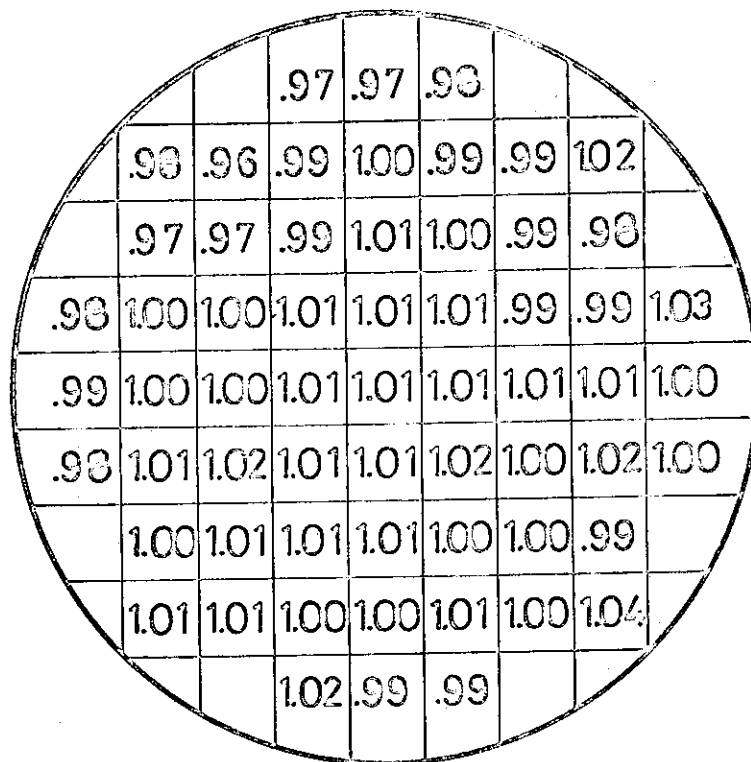


Fig. 2 An example of the uniformity in the thickness for a U_3O_8 -target made by the deposition method¹⁵⁾. The number shows the thickness of 2×2 mm square normalized to average thickness (29.37 mg/cm^2)

4.4 多重発熱照射

理化学研究所 野 崎 正
(埼玉県和光市広沢2-1)

Bombardment Accompanied with a Large Heat Evolution

Tadashi NOZAKI
(Institute of Physical and Chemical Research,
Wako-shi, Saitama)

Counterplans for a large heat evolution during a high-flux charged particle bombardment are discussed. It is emphasized that the impedance for heat flow from the target substance to the coolant should be made as low as possible.

1. 序 論

荷電粒子照射するとターゲット内で発熱するが、RI生産のときなどは、この発熱によるターゲットの融解や分解によって、照射可能な最高線束が決定されることもある。この発熱の対策は、多くの荷電粒子照射においてきわめて重要であるが、科学的なすつきりした一般解答を興えられる性質のものではない。多量発熱をとまなう荷電粒子照射を用いる研究の報文でも、照射条件の記載は成功した場合の条件が簡単に示してあるだけだが、同一条件で同一の人が照射したつもりでも、あるときは成功し、あるときはターゲットの融解等により失敗することは、しばしばある。そこで、多量発熱をとまなうときの照射条件の選定は、多くの経験をもとにし、それに種々の科学的知識を補助的に用いておこなわねばならない。

重イオン照射では、現在までわが国では、多量発熱をとまなう程の線束は得られていない。たゞ、半導体基質への不純物のインプラントーションの場合は例外である。いま、速度が一定の荷電粒子の同一の薄膜中におけるエネルギー損失は、入射粒子の電荷の自乗に比例するから、重イオンは軽イオンより飛程が小になる。したがって、重イオン照射のときは、発熱が小さな厚さの中に集中することになる。また、発熱と同時に、その部分における放射線損傷も大となる。

重イオン反応による生成核は、軽イオン反応のときに較べて、一般に多量の反跳エネルギーを得ており、したがって反跳飛程が大である。これは、Stacked Foil Methodにより励起関数を測定しようとする場合には不都合なことであるが、一方、薄膜のターゲットから生成核を飛び出させて捕集するには好都合である。このほかにも、重イオン照射でも薄膜をいろいろと利用することになるが、その使用法は、前記の理由により、軽イオン照射の場合よりも難しくなることを覚悟せねばならぬ。

2. 多量発熱の対策

Fig.1に示すように、多量の発熱をとまなう照射では、入射ビームとターゲットの両方に工夫をほらねばならぬ。ビームは、ターゲットの照射しようとする部分に、なるべく均一な線束密度($\mu\text{A}/\text{mm}^2$)で入射させねばならぬ。とくに、ビームの中心部に線束密度が大な部分が存在する場合がよくあるが、これはきわめて不都合である。Q磁石の使用法を適切にする必要がある。また、回転タ

ターゲットホルダーや、振動ターゲットホルダーを用いたり、細いビームで照射しよとする面上を走査させる方法も有効であるが、一般に容易ではないことが多い。

ビーム側についてはこれ以上論ぜずにターゲット側をくわしく取扱うことにする。

3. ターゲットの形状、照射法の設定

よく知られているように、荷電粒子は、飛程の終端部、すなわち停止する直前でLETが最大となるので、その部分で発熱量が最大となる。そこで、この部分からターゲットの融解や分解等が始るのが普通である。RI製造や励起関数の測定等では、この飛程の最終まで同一のターゲット物質を置いておく必要のないことも多い。そのようなときは、ビームの飛程の末端がターゲットホルダーに入るようにし、このホルダーは冷却をよくしたアルミニウム等の発熱に強いものにしておくべきである。この、ターゲットの厚みの設定に関する注意は、高発熱照射の対策としてきわめて重要である。

ターゲットの面積を大とし、ビームの断面積も大にすれば、発熱対策としてよいのは当然である。しかし、Internal Beamで照射するときなどは、ビームの断面積は大にできない。そのときは、ターゲット面に斜にビームを入射させることにより、被照射面積を大とする（Grazing Bombardment）また、回転ターゲットホルダー等も、被照射面積を大とする効果もあって有効である。

冷却には流水が一般に用いられるが、ドライアイスを用いると大変便利なこともある。液体窒素は、より低温であっても、気化した窒素ガスによってターゲットの冷却が妨げられる恐れのある場合もあり、ごく特殊の場合しか用いない方がよいと思われる。ターゲット元素の化学形を変える工夫により、水冷で充分なことが多い。一定の条件で照射しているターゲットの温度は、冷却物と発熱体の間の熱伝導によって定まるが、これは、2つの物体の間の接触部があるときは、その部分の熱抵抗によってほとんど決定されることが多い。そこで、ターゲット物質とターゲットホルダーの接触法にとくに注意をはらう必要がある。そうすれば、冷媒液の温度は問題とする必要がないのが普通である。

4. 固体ターゲットの作製法

(a)金属をパイプ状にして、中に冷却水を通じながら照射したり、金属板の裏を直接流水で冷却しながら照射すれば、一般に1KW程度の発熱には容易にたえうる。(b)流水で冷却している金属のターゲットホルダー上に、ターゲット物質を蒸着または電着するのも優れた方法である。この場合、後処理を考慮して、ホルダーには作用せずにターゲット物質だけを溶解させることのできるような系を選ぶべきである。(c)ホルダー上にターゲット物質をハンダ付する。低融点ハンダを用いれば、照射後熱水に浸せば、とりはずしに便利である。ハンダ付したうえで、さらに念のためにターゲットを固定する手段をこうじておけば、ハンダが融解しても熱の伝達の役目は果す。(d)ホルダーとターゲット物質の間に、インジウムのような軟い金属の板を置き、強く押してサンドイッチ状にしておく。(e)金属の酸化物の粉末等の場合は、化学形を変化させて、より適した物質とすることを考える。たとえば、Borateとする。すなわち、 B_2O_3 と金属の酸化物とを、白金るつぼ中で融解すると水あめ状物質となるが、これをホルダーに塗りつけて冷却すると融点不定のガラス状物質となる。このようにしたBorateは、ホルダーと熱的によく接着しており、また融解しても高粘度のため流れ落ちにくく照射が継続できる。たゞ、高温でよく水を追い出しておかないと、照射開始時に気体

を放出して、加速器内の真空が悪化する恐がある。(f)粉末で照射せねばならないときは、無害の金属粉末等の少量をBinderとして加えて、加圧してかためる。

5. 液体、気体の照射、ビーム取出し窓の問題

これ等の照射には、加速器の真空とターゲット物質の間に、ビーム取出し窓が必要となる。この窓の材質としては、アルミニウム、チタン、特殊のクロム合金やステンレスが優れている。ビーム取出し窓が、どの線束まで破れないかは、なかなか予言が困難であり、また、実験上の気の付きにくい微差によって大変異なるとも多い。強力な風冷が有効であるが、冷却に用いた気体の放射化に配慮せねばならぬ。窓厚の選定も重要であるが、アルミニウムなら約 $30\mu\text{m}$ 以上、チタンなら $10\mu\text{m}$ 以上だと、使用可能な最大線束はあまり厚さに依存しなくなるようである。一度空気中に取出したビームで大気中で照射する場合は、金属箔ははるかに破れにくい。Fig. 2に文献にあるニッケルの取出し窓に関する図を示す。¹⁾実際は、もう少し厚い箔を用いれば、使用可能な線束は大となると思われる。

液体の照射では、窓は比較的破れにくい、が、気体照射のときは破損し易い。これは、鍋の中で湯を沸すときと、からだきのときに相当する。たゞ、液体照射のときは、液体中に生ずる放射線分解生成物と、窓箔との間の化学反応を念頭におかねばならぬ。 $20\sim 30\mu\text{m}$ のチタン箔を通して 18MeV の ^3He で水を照射するときは、ビームの形状によらず、 $30\mu\text{A}$ 程度まででは窓は破損しない。

6. 重ね合せ照射に関する注意

2種の金属を重ねて照射すると、合金をつくって融解し易くなることがあるので注意を要する。また、金属箔を重ねて照射すると、融点以下でも、相互にくつつき合うことがある。チタン箔は、その代表例といえよう。このような場合は、適当なスペーサーを入れて、箔相互の間に空間をつくっておく。

Reference

- 1) Marion J. B. and Young; F. C. : "Nuclear Reaction Analysis," p. p. 117, North Holland Pub. Co, Amsterdam (1968).

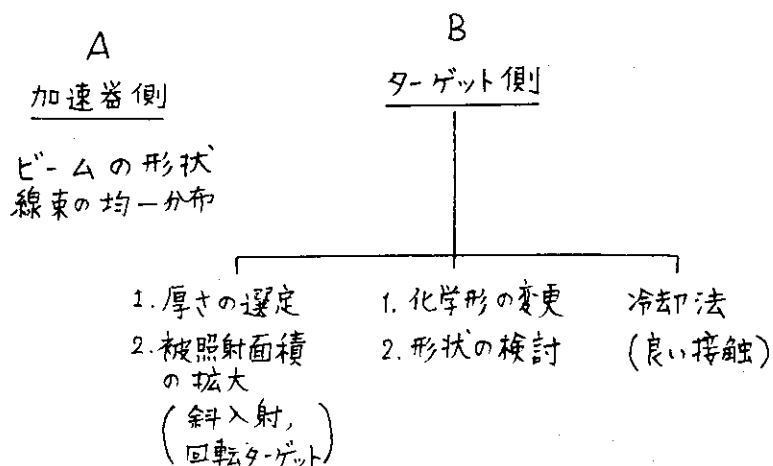


Fig. 1 Counterplan for a Large Heat Evolution.
(from Ref. 1)

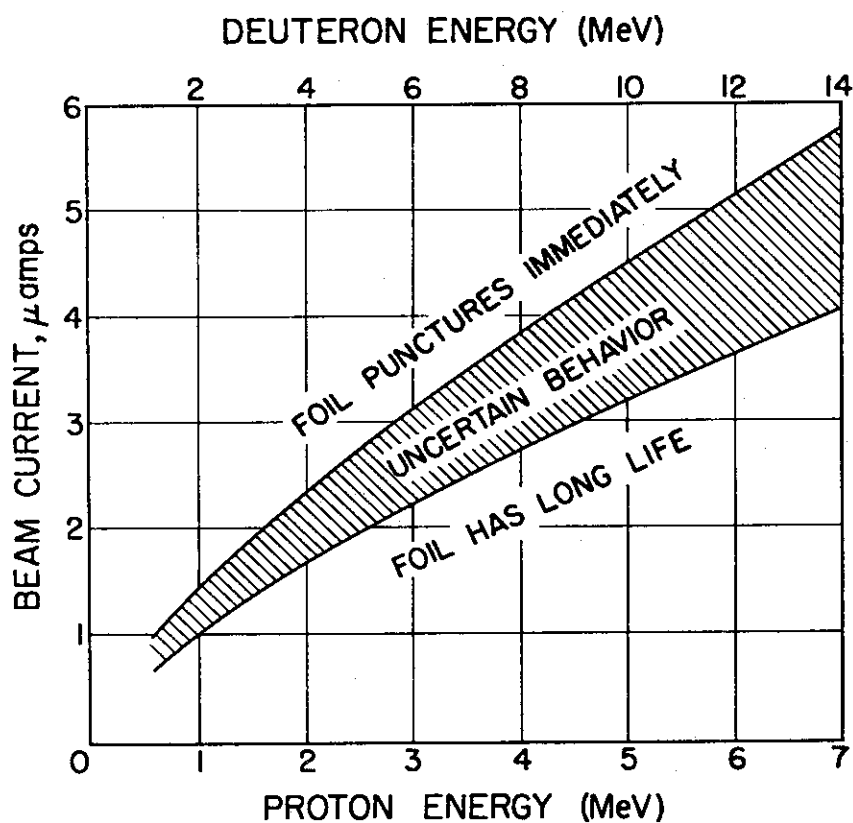


Fig. 2 Allowable Beam Currents of Protons and Deuterons on Thin Nickel Foils
Foil : 1.2~1.4 μm Thickness, 4 mm Diameter.
Beam Diameter : 2.4 mm.

4.5 短半減期核種照射技術 —特に化学処理について—

大阪大学理学部 福島 昭 三
(大阪府豊中市待兼山町 1-1)

Techniques for Short-lived Isotopes
with Emphasis on Chemical Treatments

Shouzow FUKUSHIMA
(Faculty of Science, Osaka University,
Toyonaka, Osaka)

HI reactions are probably the most convenient way to produce n-deficient nuclides far from the β -stable line. Highly excited compound nucleus formed by a HI bombardment should decay via multi-particle emission processes, which make the product to include various by-products over a wide-range of atomic number. Therefore in a HI reaction, measurements must be preceded by some chemical- and/or mass-separations. Importance of gas-phase separation is discussed for rapid techniques of 10^6 sec order. A rapid irradiation system used at the cyclotron of Osaka Univ. is explained and a proposal is made for a 'by-line chemistry station' provided with a 'vertical beam duct' for RI production.

1. はじめに

われわれのグループは、未知核種の探索、不確実な核種の確認、不詳壊変特性の解明、などの問題に関心をもっている。現在このような不確定核種として残されているものは、いわゆる β 安定線からかなり隔たった相当短寿命のものばかりであろうと想像される。^{脚註}重イオン反応は、この種の核種のうち β 安定線の中性子欠損側の核種、すなわち β^+ またはEC型壊変に対して不安定なものを作り出す最も有力な手段である。

以下では、文献にあらわれた実例や、われわれ自身のさゝやかな経験をもとに、この分野の研究における照射技術、特に化学的手段の重要性やその可能性などを論じたい。

2. 重イオン反応の特徴と化学分離の重要性

重イオンを標的核にうち込むには、越えねばならぬクーロム障壁が高いので、弾丸核に非常に高い運動エネルギーを与える必要がある。その結果、重イオン反応では、生成する複合核の励起エネルギーが極めて高いのが特徴である。このことは可なり多数の粒子が蒸発して行かなければ複合核は冷却しないことを意味する。多粒子蒸発が起るときには、蒸発する粒子の種類や数、持ち出す角運動量などについてバラエティが大きくなるのが一般的傾向であるから、重イオン反応の生成物の組成は単純ではあり得ず、必ず何種類もの生成核が混在することとなる。生成物の放射能測定を行うには試料はできるだけ単純な組成のものをを用いるのが圧倒的に有利であるから、重イオン反応

最近、 $^{58}\text{Ni}(^{12}\text{C}, 2n)$ 反応による ^{68}Se の発見が報ぜられた。¹⁾それによると ^{68}Se は (3.2 ± 0.2) hr の半減期をもつとのことであり、「非常に短寿命のものばかり」という予想は当たらないかも知れない。

生成物の測定には、必ず何等かの分離操作を先行させねばならないということになる。分離方法として先ず考えられるのは生成核の質量数 A の差による質量分離法と生成核の原子番号 Z の差による化学分離法とであろう。

Winn ら²⁾ は複合核モデルを用い、いくつかの代表的な重イオン反応系について生成核の励起エネルギーを計算している。Fig. 1 は彼等の結果をまとめたものの一つであり、各系の複合核の励起エネルギー 90 MeV 以下の領域における生成断面積 (mb) のピーク値が等高線として表現されている。図中等高線に附された数字は $\sigma_{\max}$ (mb) の常用対数値である。(例えば 2 とあるのは、そのエネルギー範囲で最高 100 mb に達することを意味する。) ここで注目すべき一つの結果は、複合核からの荷電粒子放出が非常に強く起るということである。一般に、励起核からの n , P , α などの粒子放出を圧倒的に有利にすると考え易いが、励起エネルギーが十分高い時には当然のことながら、クローム障壁は殆んど問題とはならず、各粒子放出に対する Q 値が支配的な影響を持つ。 β 安定線から出来るだけ遠く離れた「面白い」生成核を目指して、第 1 図の例のように複合核自身が既に β 安定線から相当遠い系をえらぶと、 n に対する結合エネルギーは非常に大きくなって、 n 放出過程が P , α などの放出に圧倒される様子が、ハッキリと表われている。荷電粒子放出が優勢になるということは、すなわち、生成核種は多くの異なる Z にまたがり、そこでは、化学分離こそが有効な分離手段となることを意味する。化学分離法の難点は、言うまでもなく同一元素の同位体を分離できないことである。これに関連して、最近 Dulna で行われた不詳核種 ^{78}Rb に関する実験³⁾ で (重イオン反応ではなく、600 MeV P による照射であるが) On-line Mass separator の ion collector に集まった $A=78$ の成分を更に化学分離して ^{78}Rb の試料を得ているのは、今後の一つの方向を示すものとして注目される。

3. 気相反応による迅速化学分離

短寿命核種の製造に適した迅速化学分離法については既にいくつかの総説^{4)~7)} が示されている。殊に、分離の迅速性に注目すると気相反応の利用が多くの可能性をもっていることが既に指摘されている。⁵⁾ 当然最も簡便なのは希ガスやハロゲンなどのような本来気体として存在する元素を分離精製することである。その他の元素についても特殊化合物を利用するなどして何とか気相に引き出そうとする試みが、色々成功しているのを見ると、今後の発展によって気相分離はもはや特殊元素に限られることなく、秒オーダーの迅速化学分離が一般化するものと期待できる。秒オーダーの化学分離では、化学反応系の好都合なものを選ぶと共に混合、汙過、溶解、分液抽出など各種の化学操作に対する巧みな "Instrumentation" が成否を決する重要な要素となってくる。以下には、秒オーダー化学分離のいくつかの実例を紹介しよう。

1) うすいターゲットから反跳で飛び出した原子を気体で thermalize させ、本来固体となり易い元素でも気流中に分散させることにより、気体の如く輸送、反応させるものである。最初 Macfarlane⁸⁾ が短寿命の希土類元素を He ガスで thermalize させ、照射箱のごく近傍で壁面や magnetic tape に吹きつけて生成核を沈着させるか、あるいは生成核の帯電を利用して電極面に捕集させるかした。これだけでは元素による差は余り期待できそうもないが、ここでは興味ある現象として、反跳原子は電子をもぎとられて当然 $\oplus$ に帯電するのが普通なのに、He ガス中に混入する微量成分 (有機成分?) との反応で $\ominus$ にも帯電することが発見されたことである。これは明らかに化学反応であり、化学種による差が期待できよう。また、最近になって反跳原子を He 気流に乗せて、

しかも細い管の中を数mにおよんで、かつ非常な高収率でどの方向へでも輸送しうることが示された。⁹⁾そしてここでも、本来固体として凝集するはずの元素を気流中に保持しておくためには、担体ガス中に CCl_4 を混ぜることや、輸送管壁表面の物質の種類に密接な関係があることが見出された。このような方法を発展させれば、非常に興味ある迅速化学分離が可能となるであろう。なお、反跳原子のターゲットからの脱出を利用する方法では、反跳飛程の関係で非常に薄いターゲットしか利用できず、収率が低くなる欠点がある。しかしこの点について重イオン反応の場合には、反跳エネルギーが非常に大きくなり、かなり厚いターゲットが用いられる。

2) Zvara ら¹⁰⁾ が 104 番元素の発見に用いた方法では、Fig. 2 のような装置を用い、 $^{242}\text{Pu} + ^{22}\text{Ne} \rightarrow 104$ 反応生成核の反跳を N_2 気流中で thermalize させた後、少量の NbCl_5 、 ZrCl_4 蒸気と接触させ、交換反応により、104 を同様の塩化物蒸気として輸送した。104 が Hf の同族であろうとの推定に基く塩化物の揮発性を利用したものであるが、 Cl_2 ガスを用いて直接 O-chlorination を行うような激しい方法をとらず、Nb-Zr-Chloride との交換反応を用い同時にそれらを担体として用いたところに注目したい。

3) 交換反応が選択的ガス化反応として有効なものであることは前の例にも示されているが、更に、Tomlinson, Hurdus¹¹⁾ は U 溶液を熱中性子照射して、その U 溶液中に H_2Se ガスを吹き込むと、試料溶液中に溶存する fission product の Se 同位体が、同位体交換反応によって H_2Se 中に出て来ることを利用した。この方法で $T_{1/2} = 0.41 \text{ sec}$ の ^{89}Se なども捕えている。重イオン照射では溶液照射は無理だから固体試料を照射した後溶液化する過程の迅速化がはからねばならないが、上の例に示されるような交換反応の利用で相当な迅速分離が可能となるであろう。

4) はなはだ原始的な操作でも、少し Instrumentation をすれば、十分迅速分離に利用できることを示すのが次の例である。すなわち Kratz ら¹²⁾ が $^{86}\text{As} (T_{1/2} = 0.9 \text{ sec})$ 、 $^{87}\text{As} (T_{1/2} = 0.3 \text{ sec})$ らを発見した実験では、U の熱中性子核分裂生成物の中から As 同位体を水素化物に変え、その揮発性を利用して取り出す。このとき発生機の H を用いるが、それは Fig. 3 のような装置を用いて、照射した U 溶液を濃 HCl 液と混ぜた後、Zn 粉を投入するという単純な方法を用いている。この場合には、As 以外にも Te, Se, Sb などが同じく水素化物となって気相に混入して来るのを、種々の吸着剤や洗滌液中を通して除去し、最後に AgNO_3 処理した耐火レンガ粉末に As を捕集している。用いた化学反応そのものは平凡なものであるが、あらかじめ反応容器内に置いた Zn 粉末を盛ったスプーン状の容器をひっくり返したり、コックを開閉したりするのを、自動的に Sequence Control されたソレノイドを用いて行い、非常な迅速化に成功している。この例も中性子照射の実験で、照射したのは溶液であり、そのまゝ重イオン照射に転用できるシステムではないけれども、迅速化学分離の Instrumentation を示す好例と言えよう。

以上の諸例のまとめとして、用いられている化学反応はそれ程特殊なものではないことを指摘したい。と言うことは、秒オーダーの化学分離が、相当広範囲な種類の元素について、それぞれに適したシステムを考案して行く可能性があることを暗示するものである。

4. 重イオン反応の問題点、ターゲットの取り出しと溶解

中性子照射の場合と異なり、重イオン反応では照射用ターゲットは大い真空中に、固体物質を置くのが普通である。このため、前節 1) で述べたように、反跳でターゲットから飛び出した生成核を捕えるかまたはガス・ターゲットを用いるのでなければ、照射後必ずターゲットを取り出して

溶解する手順が必要となり、この操作に相当な時間がかかる。特に、反跳法では target は薄いことが必須条件であり、thick target を用いて反応収率の向上を狙う場合は必ずこの障害を突破しなければならない。ところで真空ターゲットの迅速取り出し装置などの詳細は、余り文献に記載されないので諸外国の事情は明らかでない。

以下にはわれわれのグループが阪大サイクロトロンでの短寿命核種製造のために試作し、日常的に使用している簡便な装置¹³⁾の主要機構を示す。

Fig. 4は真空バルブ操作なしでターゲットを真空外に取り出すA, B, Cの三段階を示すものである。ターゲット物質は背板に取り付け、水冷されているプローブに圧着する。プローブのターゲット取付け凹みが真空外に引き出された所で、Fig. 5のように押え金をはね上げると、ターゲット自身は重力でラビット内に落下、収容される。プローブの駆動は圧縮空気シリンダーを用いて行い、ターゲット押え金のはね上げはソレノイドを用いて行っているが、照射終了後、ターゲットをラビットに収容するまでに約1秒を要する。ラビットはクランプをはずすと垂直な気送管の入口にそって落下し始めると同時に蓋がしまる仕組みである。ラビットの外径40mmに対し気送管内径60mmにとり、1kWの排気ブローを用いた真空輸送方式であるが、輸送速度は約10m/sec程度である。目的の化学実験室に到着すると、Fig. 6に示すラビット受けとり装置があつて瞬間的にラビットを気送管の外にとり出すことができる。しかし、ラビットからターゲットをつまみ出し、化学容器に投入して溶解を始める操作は手動で行うため最低5 sec程度の時間がかかる実情である。

5. 短寿命核種用照射，化学処理設備への一，二の提言

前項にのべた如く、迅速化学処理を極限まで追求しようとする、照射ターゲットをラビットに収めて、遠隔の化学実験室まで輸送し、そこでまたターゲットを取り出すという従来のやり方は、化学操作を開始する前に、はや数秒の時間を費すこととなる。これを避けるためには、照射位置と化学処理の位置を隣接させ、ターゲットを取り出した後は、ラビット輸送しないで、直接化学処理用の容器に投入する。具体的には、化学実験室にビームダクトを導入するか、または、照射室の一隅を換気と遮へいの有効に働く化学処理および放射線測定可能なRIセクションとする。ターゲットはむやみに厚くすると無用の発熱を起したり、誘導放射能や、照射中の γ 線、中性子線のバックグラウンドを不必要に高めるだけなので、ターゲットは収率の許す限り薄くして、ビームを突抜けさせ、ビームを止めるフェラデーカップはシールド壁を貫いて後方の別室に置く。

また、ターゲット溶解速度を増すためには、微粉状のサンプルをなるべく固めないようにするのが良いが、ビームが水平に照射される所では、ターゲットを垂直に保持する必要上、落ちこぼれないように押し固めたり、バインダーで固めるようなことをして溶解を妨げている。ビームを上方から垂直に通してターゲットを水平に保持する方式では、微粉状ターゲット物質を、背板用箔の上にパラバラと列べるだけで照射ができ、溶解をずっと容易に、迅速にし得る筈である。今後RI製造用照射のビーム方向は垂直に設計すべきだと思う。

感謝： 本稿の準備に際し御援助頂いた三藤安佐枝氏に厚く御礼申し上げます。

References

- 1) Bilge A. N., Boswell G. G.J : J. Inorg. Nucl. Chem. 34, 407 (1972)
- 2) Winn W. G., Gutbrod H. H., Blann M.: Nucl. Phys. A188, 423 (1972)
- 3) Arlt R., Beyer G. J., Herrmann E., Habenicht W., Tyrroff H.: Radiochem. Radioanal. Lett. 10, 173 (1972)
- 4) Zaitseva N. G., 岡下訳 : JAERI, No.2414 (1966)
- 5) Amiel S.: "Yaffe, Ed., Nuclear Chemistry" Chapt. 9, p.251 (1968)
- 6) 日下：「京大原子炉，短寿命核短期研究会」，KURRI-TR-76, p.15 (1969)
- 7) Herrmann G., Denschlag H. O.: Ann. Rev. Nucl. Sci. 19, 1 (1969)
- 8) MacFarlane R. D.: Phys. Rev. 126, 274 (1962)
- 9) Schmidt-Ott W. D., Mlekodaj R. L., Bingham C. A.: Nucl. Inst. Meth. 108, 13 (1973)
- 10) Zvara I., Chuburkov Yu. T., Caletka R. and Shalaevskii M.R.: Joint Inst. Nucl. Res. Dubna, Rept. P7-3783 (1963)
- 11) Tomlinson L., Hurdus M. H.: J. Inorg. Nucl. Chem. 33, 3609 (1971)
- 12) Kratz J. V., Franz H. and Herrmann G.: J. Inorg. Nucl. Chem. 35, 1407 (1971)
- 13) 福島，三藤，森川，齊藤：原子核研究 17 489 (1973)

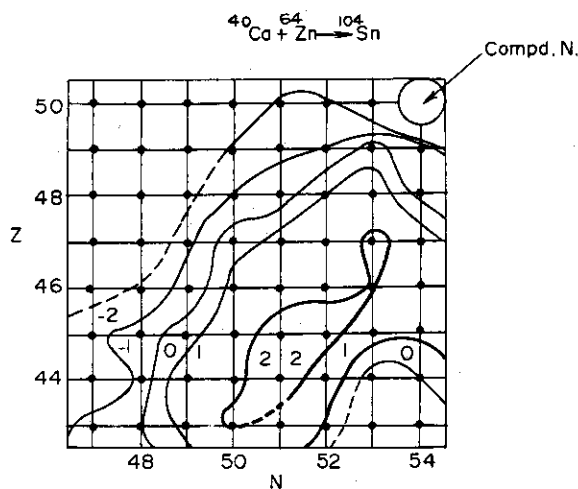


Fig. 1 Reaction yield map via a compound nucleus which is far from the β stable line (contour line of $\sigma_{\max}(\text{mb})$) (from Ref. 2)

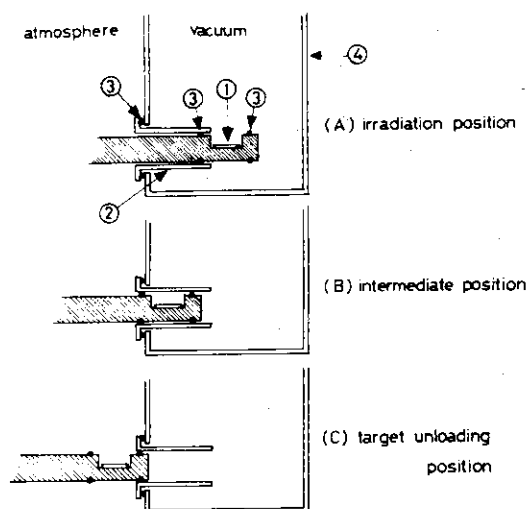


Fig. 4 The valveless operation when the target probe is pulled out (Rapid irradiation system at OULNS) (from Ref. 13)

- 1 target port
- 2 sheath tube
- 3 O-ring packing seal
- 4 irradiation chamber

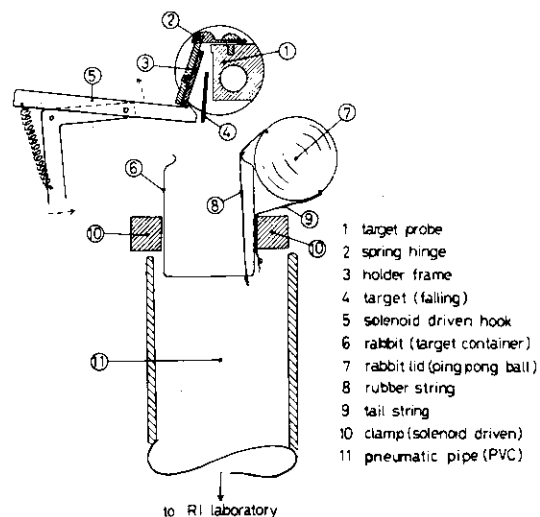


Fig. 5 Target demounting and waiting rabbit (from Ref.13)

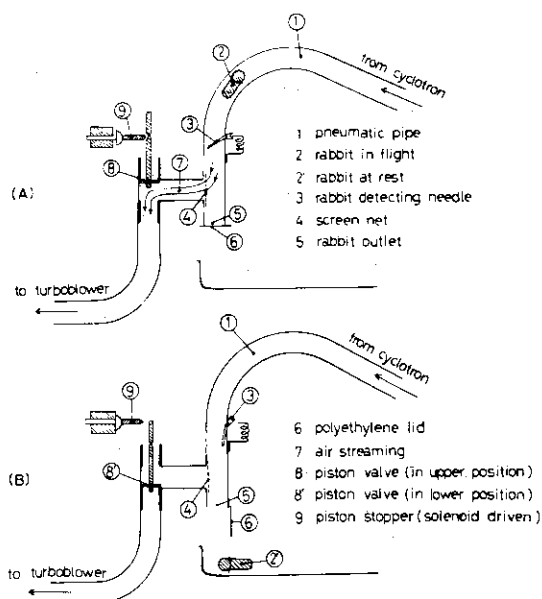


Fig. 6 Rabbit receiving station (from Ref. 13)
(A) before arrival of the rabbit
(B) after arrival of the rabbit

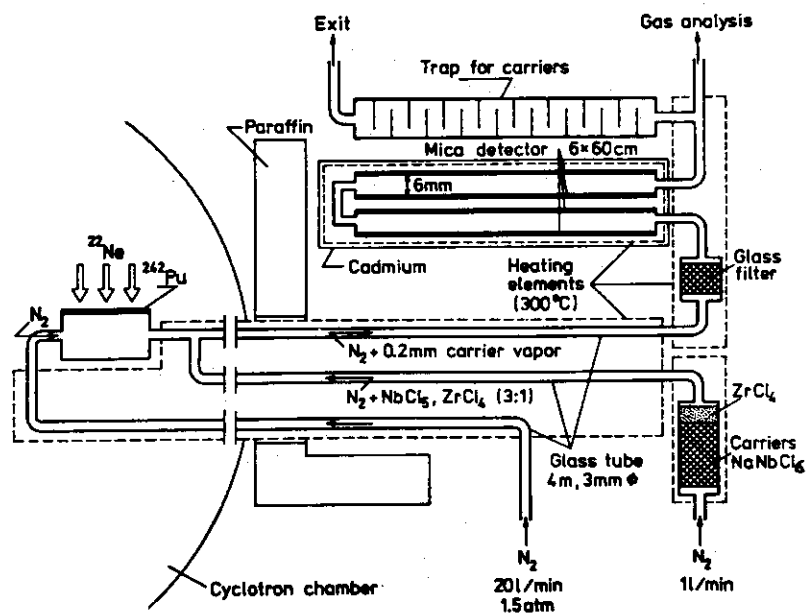


Fig. 2 Apparatus to detect the element 104
(from Ref. 10)

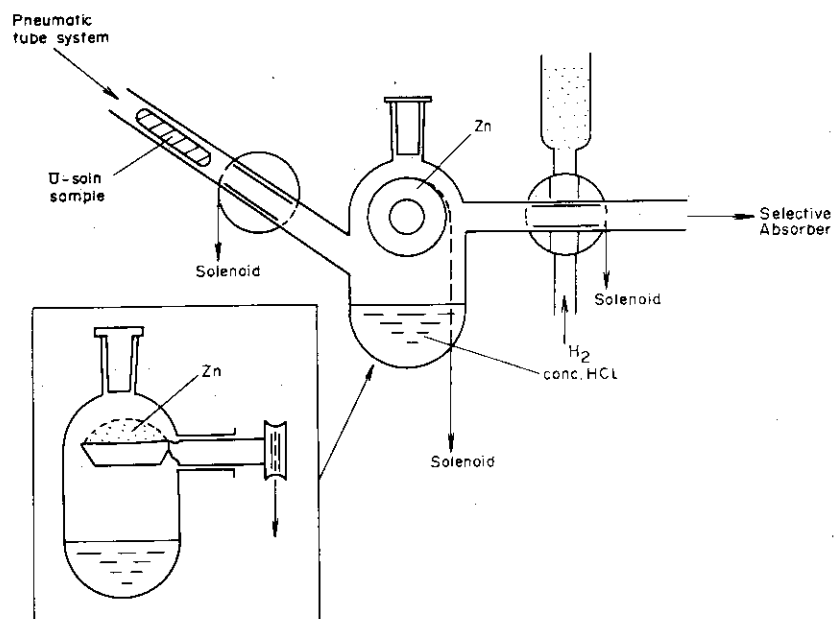


Fig. 3 Apparatus for hydrogenation of As in
thermal neutron fission of U
(from Ref. 12)

第3部：重・超重元素の核特性，重・超重元素の化学，
重イオンによるR I生成

Part III : Nuclear Properties of Heavy and Super-Heavy Elements,
Chemistry of Heavy and Super-Heavy Elements and
Production of Radioisotopes with Heavy Ions.

1. 重・超重元素の核特性

1.1 “IAEA第3回核分裂の物理・化学に関するシンポジウム(1973)” からのトピックス

日本原子力研究所 竹 腰 英 子
(茨城県那珂郡東海村)

Some Topics on IAEA Third Symposium on the Physics
and Chemistry of Fission (IAEA-SM-174) (1973)

Eiko TAKEKOSHI
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken)

Some topics on IAEA-SM-174 (1973) are introduced along
the following subjects; 1), static potential energy, 2),
nuclear structure in the secondary minimum, 3), dynamic
fission process, and 4), nuclear fusion and nuclear fission
in heavy ion reaction.

1. まえがき

IAEA主催の核物理の物理・化学に関するシンポジウムは4年毎に開催される。第2回シンポジウムは1969年、Viennaにおいて開催された。その会議でのトピックスはref: 1にのべられているが、要約して次に簡単にのべる。第2回シンポジウムでのもっとも大きなトピックは核分裂に対する従来のモデル概念、すなわちN. Bohrによって1939年に提案された30年間の歴史をもつ液滴モデル(LDM)の描像が核分裂のサドル点(Saddle point)附近で大巾に修正されたことである。このことは1962年DubnaのFlerov達により発見された ^{242m}Am 核分裂アイソマ(Fissioning Isomer)の解釈に端を発した。²⁾ 1969年には①アクチナイド領域核のPu~Cmにおよぶ多くの核分裂アイソマの発見、②核分裂バリヤ近くでの核分裂確率の励起関数における異常なバンプあるいはピーク観測、③中性子共鳴領域での核分裂断面積のデータにおける奇異なパターン、などが新しい実験事実として登場してきた。これらの新しい現象は従来のLDMの核分裂バリヤ(Barrier)の概念では説明することが不可能になり、原子核を巨視的に扱うLDMに加えて何らかの補正が必要となった。登場してきた核分裂に対する新しいモデルはLDMをポテンシャル・エネルギーのベースとしたもので、これに原子核の殻効果(Shell Effect)を功妙に附加したStrutinskyモデル(1967年)である。³⁾ このモデルが核分裂現象に与える特徴は従来のLDMの1山の核分裂バリヤに対して2山の核分裂バリヤを与えることである。1969年シンポジウムではStrutinskyモデルを用いて上記①②③に関する新しい核分裂現象の解釈が或程度まで定量的に示され、Strutinsky処方³⁾の成功が謳歌された。

1969→1973への核分裂に対する実験的・理論的研究の進展はめざましく、その上核分裂の逆反応的過程、すなわち重イオンによる核融合反応の実験的研究がフランスのALICE, Dubna

の大型サイクロトロン+AVFサイクロトロン、アメリカのスーパー・ハイラック (Super HILAC) などの大型重イオン加速器の建設完成と共にスタートした。このような状況下で核分裂と核融合に関する原子核反応、原子核構造を総合的に研究することが可能となってきた。

1973年第3回シンポジウムは8月13日～17日、アメリカのRochester大学で開催された。この会議にはこの分野の研究の大きな主流をにぎるソビエト勢全員が欠席であったことは参加者一同大変に残念であった。以下に1973年第3回シンポジウムのトピックスをのべる。

2. 第3回シンポジウムにおけるトピックス

Fig.1, 2に第3回シンポジウムの筆者の印象を示す。Fig.1, 2では縦軸に原子核の励起エネルギー、横軸に原子核の変形パラメータをとり、この2つの物理量に対する原子核の状態が示されている。Fig.1では核分裂バリヤに近い核分裂核の励起エネルギー領域で変形パラメータが第1極小値から第2バリヤのサドルを通過したあたりまでの領域 (phase I と定義する)、核分裂の第2バリヤのサドルからシッション (scission) までの途上 (phase II と定義する) が示されている。

phase I に対しては静的ポテンシャル・エネルギーが1969年に引続いて研究され種々のモデルにもとづく計算が画期的に進展した。phase I, IIの両領域については「完成に近づいた静的扱」から「動的扱についての試み」がいくつかスタートし今回のシンポジウムの1つのトピックとなっている。phase IIIについては核分裂片に対する精度のよい核データの集積が報告された。phase Iにおける2山核分裂バリヤの第2極小値 (変形パラメータ, $\epsilon \sim 0.6$) における原子核構造が最近少しづつ明らかにされ、これらの実験データも今回のシンポジウムの1つのトピックである。Fig.1に関連してFig.2では原子核の励起エネルギーがかなり高い状態が示されている。これらの励起エネルギーの複合核は重イオン核融合反応で形成され、Fig.1のphase IIを核分裂で理解する上に相補的方法となりつつある。核分裂と核融合との関連に対する研究が大型重イオン加速器の稼動開始と共に徐々に進行中であり核分裂の動的扱に関与してくる「原子核の粘性」とも呼ばれる新しい物理量に対する理解が少しづつ開けつつある。これは第3回シンポジウムでの今後の方向を示す研究として、注目されるべきである。以下各トピックについてのべる。

2.1 静的ポテンシャル・エネルギー

(1) 理論的研究

静的核分裂バリヤの理論的計算方法と1973年現在における各計算方法の現状はTable Iに示されている。

2山核分裂バリヤを実現するためにはStrutinsky 処方、すなわち巨視的LDMに原子核のShell effectの補正を施したモデルが1967年から現在に至るまで精力的に用いられている。(Table Iで第2欄に示す)。原子核の形を扱うのに2通りの方法があり、④原子核を1体的に扱う計算、⑤原子核を2体的に扱う計算、に分けることができる。④では原子核が核分裂への進行に際して回転楕円体の対称軸に沿ってのびる場合を扱い、変形パラメータとしては球体からのずれを表す ϵ_1 、またはのびた方向へのきょり(c)とくびれの太さ(h)などが用いられている。この扱では2山バリヤの第2バリヤすなわちSaddle pointの通過後の大きな変形に対しては計算の精度が悪い。このような状態では、変形した形にかなりのくびれが生ずることもありうるが、このような時にはCassinian ovalといわれる変形をとることも試みられている。⑤では核分裂片システムから考慮する方法でシッション点からサドル点を經由して核分裂核への核変形の移行を表示することに特徴付けられて居り、核分裂片の殻効果などが直接的に反映するモデルである。2中心パラ

メトリゼーションとNixによるパラメトリゼーションに分けることが出来るが、前者は2体の空間的なつながり、すなわちくびれにおいてカスプを生じるが後者はスムーズに結合されている。以上のことから核分裂、重イオン核反応を通じて⑥の2体的に扱うNixのパラメトリゼーション⁴⁾による計算がもっとも適当であるように考えられるが扱う現象によっては④、⑤に属する他のモデルを用いる方が都合のよい場合もある。これらのモデルを用いて1973年には質量非対称パラメータを導入することも完成され、アクチノイド領域核の低励起核に対する質量非対称に有効な2山核分裂バリヤが計算可能となった。⁵⁾ Fig.3の上部にはNixパラメトリゼーションによる²⁴⁰Puの静的ポテンシャル・エネルギー・カーブが示されている。点線は質量対称パラメータによるもの、実線が質量非対称パラメータによるものである。第2バリヤにおける質量対称と非対称との高さの差は大きく質量非対称の場合は約4 MeVも低くなる。第1バリヤにおける差は小さい。後にのべるが第2バリヤに対する高さは実験値とかなりよい一致を与えている。

(巨視的+微視的)扱のStrutinsky処方は実験データを説明するにはすぐれているが、方法としてはあくまで暫定的なものである。本質的な扱いとしてはself-consistentな微視的処方で上記方法で得られたものと同様な結果が得られることがのぞましい。このような観点から1973年には²⁴⁰Puに対してself-consistent microscopic prescriptionによる計算の結果が示された。⁶⁾ この処方は通常与えられた核子-核子ポテンシャルによってスタートしHartree-Fock近似の方法によって多体系のSchrödinger方程式を解くことである。これは2核子散乱データなどの基本的実験データを再現しうよう調整されているリアリストックなポテンシャルを用いるか、あるいは、巨視的核特性を再現しうよう調整されているeffective interactionを用いて行うかの2通りがある。アクチノイド核のように重い変形核に対しては、現在、ref.6に示されるように、単純化されたSkyrme's interactionと呼ばれるものがeffective interactionとして用いられ、静的ポテンシャル・エネルギーを計算することが試みられている。⁶⁾ Fig.3の下部にはref.6からの結果が示されている。上部のカーブのように質量非対称はまだ扱われていないが上部の質量対称のものにくらべて第1、第2バリヤ共大体2倍以上である。しかし、上記計算法は将来決定的なものとして進展することが期待されている。

巨視的モデルのLDMについても1973年までには更に検討が進められた。すなわち1966年以降にLDMの標準的存在であったMyersとSwiateckiのLDM⁷⁾におけるエネルギー計算は特徴付けられた原子核の形に対してなされ $A^{-1/3}$ 、 $[(N-Z)/A]^2$ のpowerの展開が用いられたが、 $A^{2/3} \cdot [(N-Z)/A]^2$ において展開が閉ぢられていた。しかし彼等は最近LDMにおいて場所的な核密度、中性子・陽子密度のちがいを考慮することにより、上記展開における高次項を含むようモデルを改良した。これは従来のLDMと区別してdroplet model⁸⁾と呼ばれている。このモデルはLDMより精度のよいものであるが軽い核の核分裂、また、核分裂のシッション近く、あるいは重イオン反応における初期の接触点などのネックの小さな状態に対しては更に核力のrangeについての考慮が必要とされる。⁵⁾

(2) 実験的決定

2山バリヤ・パラメータの実験的決定はLos Alamosグループにより総合的に精力的に進められた。⁹⁾ 彼等は(d, pf), (t, pf), (³He, df), (p, p'f), (³He, α f), (t, α f)などの直接反応から得られるTh~Bkの領域のeven-even, odd A, odd-oddの多くの核種に対するfission probability dataの統計的解析からバリヤのcurvature $\hbar\omega_A$, $\hbar\omega_B$ を求めた。

fission probability を P_f , T_ν を penetrability factor ($P_\nu = \frac{D}{2\pi} \cdot \sum_\nu T_\nu$, ν は fission channel, neutron channel, gamma channel など) とすると P_f の関係は Fig. 4 で示される。核分裂アイソマに対する励起関数の解析からは第2極小値の励起エネルギー (E_{II}), 第2バリヤの高さ E_B が求められた。^{9,10)} 図の説明は Fig. 5 に示されている。

実験的にきめられた値と理論値 (Nix パラメトリゼーション) との比較が E_{II} と E_B について Fig. 6, 7 に示されている。⁵⁾ 理論値は even-even 核に対するもの, 実験値は上記解析により得られた核種のすべてに対するものが図示されている。Fig. 6, 7 から E_{II} に対しては両者の合い具合はまちまちであり, E_B に対しては U, Pu, Cm に対してはかなりのよい一致が得られている。 E_{II} については観測されている核分裂アイソマが必ずしも第2極小値の最低状態でない場合もありうることでありこれらのことも両者の合い具合に反映していると思われる。

2.2 第2極小値における原子核構造

Fig. 8 には第2極小値における最近明らかにされた原子核構造が図示されている。これらのすべてはタンデム・バンデグラフによる精密実験で得られたものである。

(1) 基底状態回転バンド・メンバ

1972年 München グループにより ^{240m}Pu の第2極小値における基底状態回転バンド・メンバ, 2^+ , 4^+ , 6^+ , 8^+ が $^{238}\text{U}(\alpha, 2n)$ 反応を用いてカスケードの内部変換電子測定により同定された。¹¹⁾ これらのレベルスキームは図中に示されている。これらの γ 線の内部変換電子は第1極小値におけるものに比べて 10^{-4} 程度に弱いので, 核分裂アイソマからの核分裂片との遅延同時計数により測定が可能となった。カスケード・スペクトルから得られた $\hbar^2/2J$ (J は moment of inertia) は 3.3 keV であり第1極小値の基底状態回転バンドに対する値 7.1 keV の約半分である。この値は Sobiczewski 達による計算値¹²⁾ (ペアリングの強さ一定の場合) とよい一致を示し, 第2極小値の核変形パラメータは $\epsilon \sim 0.6$ であることが確証された。

(2) 励起状態における核分裂アイソマ

1972~1973における核分裂アイソマ同定の中 ^{238}Pu では半減期 0.5 ns, 6.5 ns の2つが観測されているがこの中半減期 6.5 ns に対する励起エネルギーは ~ 1.3 MeV であることが Copenhagen グループにより報告された。¹³⁾ そしてそれらは第1極小値における K-isomer ($K=4^-, J=4, E_x = 1.1 \text{ MeV} = 2.4_n$) と同性質をもつものと推定された。同様の核分裂アイソマが ^{238}Pu に対しても観測された。この場合 $T_{1/2} = 35 \text{ ns}$, $T_{1/2} = 40 \pm 15 \text{ ps}$ の2つが同定されたが長半減期の方が K-isomer と推定されている。これらの K-isomer らしい励起状態の J-K を測定する試みが München, Dubna グループによりなされ, それらの結果が報告された。^{15,16)} 実験方法は核分裂アイソマからの核分裂片の入射ビーム方向に関する角度分布の測定である。この方法で注意すべきことはターゲット核から放出された核分裂アイソマ核が放出時に電場, 磁場を誘起しこれが核分裂アイソマ状態の電気, 磁気モーメントに影響を与えることである。München グループはこれをさけるために, ターゲットと蒸着鉛箔のサンドイッチ法を用いた。これは鉛の cubic 格子が角度分布を乱さないよう作用する利点があるからである。Dubna グループは核分裂アイソマ核をそのまま真空中に放出する方法を用いた。どちらの測定においても J, K はユニークに決定されなかった。München グループは $^{236}\text{U}(\alpha, 2n) ^{238m}\text{Pu}$ ($T_{1/2} = 5 \text{ ns}$), $^{235}\text{U}(\alpha, 2n) ^{237m}\text{Pu}$ ($T_{1/2} = 1.1 \mu\text{s}$, 82 ns), $^{239}\text{Pu}(\alpha, 2n) ^{241m}\text{Cm}$ ($T_{1/2} = 20 \text{ ns}$) について, 又 Dubna グループは $^{235}\text{U}(\alpha, 2n) ^{237m}\text{Pu}$ ($T_{1/2} = 1.1 \mu\text{s}$, 82 ns), $^{238}\text{U}(\alpha, 3n) ^{236m}\text{Pu}$ ($T_{1/2} = 34 \text{ ns}$), $^{238}\text{U}(\alpha, 2n) ^{240m}\text{Pu}$ ($T_{1/2}$

$=4\text{ ns}$), $^{239}\text{Pu}(\alpha, 2n)^{241\text{m}}\text{Cm}(T_{1/2}=20\text{ ns})$, $^{242}\text{Pu}(\alpha, 3n)^{243\text{m}}\text{Cm}(T_{1/2}=80\text{ ns})$ について測定を行った。

(3) シェイプ・アイソマ

even-even 核の実験的なバリア・パラメータについては ref. 9 において得られているが, U では第1, 第2バリアの高さはほぼ同じ位, Th では第1バリアが第2バリアより高くなっている。このようなことは Th, U では核分裂アイソマからの崩壊モードとしては, 第1極小値の状態に γ 崩壊する確率が核分裂モードにくらべかなり大きいことを意味することになる。この γ 崩壊による γ 線測定は即発核分裂からの核分裂片に伴う遅延 γ 線および核反応時の他の γ 線のバックグラウンド上に測定することになるのでかなり困難であるが Seattle グループは FN タンデムからのパルス重陽子ビームによる $^{238}\text{U}(d, pn)^{238\text{m}}\text{U}$ を用いて既知の核分裂アイソマの半減期 (195 ns) と同半減期をもつ 2.514, 1.879 MeV γ 線を検出することに成功した。¹⁷⁾ 2.514 MeV は第2極小値の核分裂アイソマから, 第1極小値に属する中間状態を経由して, 第1極小値の基底回転バンドメンバの 2^+ への γ 線, 1.879 MeV γ 線は第1極小値の $K=0, I=1^-$ のレベルへの γ 線に相当すると考えられた。このことは核分裂アイソマはシェイプ・アイソマでもあることが確認されたと言えよう。重陽子エネルギー $E_d=18\text{ MeV}$ において核分裂モードへの断面積は $6\mu\text{b}$ であり, γ 崩壊モードへの断面積は 2.514 MeV γ 線に対しては約 $90\mu\text{b}$, 1.879 MeV γ 線に対しては約 $40\mu\text{b}$ であり, 他の γ 線も考慮すると γ 崩壊の全断面積は約 $250\mu\text{b}$ と算定された。このことから第2極小値の $T_{1/2}=195\text{ ns}$ の状態に対しては γ 崩壊の部分半減期は約 195 ns, 核分裂モードへの部分半減期は約 8000 ns と算定された。シェイプ・アイソマが同定されたことはシンポジウムでのうれしいトピックであった。

2.3 動的核分裂過程

Fig. 1 に示されている phase I, II の領域に関する核分裂過程の動的取扱の検討が各地の理論グループにより試みられそれらの報告がなされた。静的ポテンシャル・エネルギーについては 2.1 で述べたように各モデルにもとづく成果がほぼ出つくし, 今後の研究方向としては動的ポテンシャル・エネルギーの検討の時期に到達している。核分裂過程, 又は次にのべる重イオン核反応において本格的に動的取扱の研究が必須となってきたことは今回のシンポジウムの大きな特色と言えよう。動的取扱に関して報告されたレポートは Fig. 9 に記入されている。

(1) phase I について

phase I のバリア浸透については Pauli 達により集団運動が断熱的極で研究された。¹⁸⁾ 動的ポテンシャル・エネルギーの決定は Strutinsky 処方を用い, ground state spontaneous fission, isomer fission, isomer de-excitation に対する "least action trajectory" が求められた。この途上で Strutinsky 処方における LDM 内の reduced fission parameter $\zeta (= (Z^2/A) \cdot (\frac{1}{X}))$ (X は fissility parameter) が ground state spontaneous fission, isomer fission の半減期から実験的に得られ, その後各元素に対する $\zeta = C_1 (1 - KI^2)$ (C_1, K はパラメータ, $I = \frac{N-Z}{A}$) 式におけるパラメータ C_1, K が算出された。その例として ground state spontaneous fission について得られた関係は U, Pu に対しては $\zeta = 49.0 (1 - 1.87 I^2)$, Cm に対しては $\zeta = 49.41 (1 - 2.12 I^2)$ C_f, F_m に対しては $\zeta = 50.47 (1 - 2.84 I^2)$ である。これらを用いて least action trajectory における動的バリアが計算された。この結果は Fig. 10 に示されているが第2バリアの高さ E_B は動的なものは静的なものに比較して全般的に 2 MeV 位低くなっている。(図中実験値は $\bigcirc, \triangle$ で示されこれ

らは静的バリアの高さとよい一致を示している)。第1バリアの高さ E_A は静的なものは計算値が実験値より ~ 1 MeV程度低いが動的なものは計算値が実験値より ~ 1 MeV程度高い。

Isomer de-excitation と isomer fission に対する分岐比も計算された。これは Fig. 11 に示されている。2.2(3)でのべた核分裂アイソマからの γ 崩壊と核分裂モードに関連して、Uでは γ 分岐比の方が大きく、Pu, Cmでは核分裂分岐比の大きいことを示している。分岐比の絶対値については少なくとも2桁のあいまいさがあると報告されている。

Wilet 達の仕事では phase I における集団運動の断熱的扱からのずれの検討がなされている。

(2) phase II について

Fig. 9 で示されるように phase II については、Nix による断熱的な動的扱で saddle point から scission point まで、また、逆過程の経過が図的に示された。²⁰⁾ 例として、 ^{236}U , $^{476}184$ 核で核分裂方向に saddle point で最初 1 MeV の運動エネルギーをもつ時、scission point までの核の変形の時間変化が Fig. 12 で示され、また $^{238}\text{U} + ^{238}\text{U}$ の重イオン核融合反応時の核の変形の時間変化が最初のシステムのクーロン・バリアより上の運動エネルギーのちがいにより Fig. 13 に示されている。 $^{476}184$ 核のあめん棒のように引のばされた核分裂の状態が示されているが、このように重い核では2体分裂よりも多体分裂がエネルギー的に低くなることを意味するであろう。また非断熱的扱として粘性を考慮するならば事情は変化するであろう。Saddle から scission へは 10^{-21} sec の order, 重イオン核融合では 10^{-22} sec の order が移行時間として得られているが重イオン核融合の時には最初の接触の時の核力の影きょうの導入が必要と考えられるので 10^{-22} sec の order は長くなることが期待される。

phase II では非断熱的扱として nuclear viscosity, 原子核の粘性に対応するよう量として nuclear temperature をもつ2中心モデルにおける effective potential energy が Schmitt 達により計算された。²¹⁾ 各 nuclear temperature における2つの構成部分の体積比に対する変形エネルギーが、scission point から saddle point への途上で計算され、実験値との比較が議論されている。Fig. 14 では ^{236}U に対して neck radius $D=2.5$ fm の scission point, $D=3.5$ fm の scission と saddle の中間, $D=5.0$ fm の saddle point についての各 nuclear temperature に対する変形エネルギーが図示されている。 $T=1.8$ MeV (励起エネルギー約 90 MeV に対応する) を境にして $T < 1.8$ MeV では質量非対称, $T > 1.8$ MeV では質量対称となることが示されている。これは実験データと傾向は合っている。 $T=1.8$ MeV を検証する実験データが必要とされている。

nuclear viscosity constant を hydrodynamical に求める試みが Hasse 達により報告された。²²⁾ 3つの場合 ① Saddle から scission へ (dissipation energy の時間微分は $\dot{E} = -\frac{1}{2} \eta \sum Z_{ij} \dot{\alpha}_i \dot{\alpha}_j$ で表わされている。 α_i は deformation co-ordinates, Z_{ij} は α_i に depend する hydrodynamical viscosity coefficient, $\dot{E}$ は saddle から scission への種々の dynamic fission path について積分される。 $E \approx 5 \sim 20$ MeV に等しいとおかれた。 η は time independent nuclear viscosity constant である) ② 第2極小値の状態あるいは第2バリア上の連続レベルのカップルから生じる第1極小値に属する高い vibrational state の巾, ③ giant dipole resonance の巾 (hydrodynamical flow の damping と解釈される) から η が求められ, $\eta \approx 10^{-23} \text{ MeV} \cdot \text{sec} \cdot \text{fm}^{-3} = 10^{10} \text{ poise}$ が①②③いずれの場合にも算定されている。

動的扱については、まだまだ糸口さがしの段階であり scission のごく瞬前に Norenberg によ

り提案されている極小値における動的問題など、(Nix がこれについて少しふれている²⁰⁾) 今後の興味ある問題となるであろう。その他動的極に関連する報告された論文は Fig. 9 に記入されている。

2.4 重イオン反応における核融合と核分裂

核分裂の phase II 現象, とくに動的極に関連して重イオン核融合が研究されるべきである。この糸口となるデータがフランスの ALICE²³⁾, アメリカの Super HILAC²⁴⁾, ORIC²⁵⁾, Yale-HILAC²⁶⁾ を用いた実験から報告された。これらの実験の一覧表は Table II に与えられている。この中 ALICE の実験と臨界角運動量 critical angular momentum についてのべる。

(1) ALICE の実験

ALICE プロジェクトでは重イオン ^{40}Ar ($E = 150 \sim 300 \text{ MeV}$), 重イオン ^{84}Kr ($E = 450 \sim 500 \text{ MeV}$) を用いてターゲット核 Mo ~ U に対する核分裂断面積, とくに complete fusion を経由する核分裂断面積の測定がなされた。Table II には complete fusion 核が記入されている。complete fusion を経由する核分裂は, その分裂が対称分裂であると仮定すると 2 つの分裂片核の角度相関が得られる。 $\text{Au} + \text{Ar}$ ($E = 250 \text{ MeV}$), $\text{Th} + \text{Ar}$ ($E = 250 \text{ MeV}$) について得られた角度相関を Fig. 15 に示す。図中矢印は Nix のモデルによる計算値である。各相関角について得られた total kinetic energy と観測された核の質量との関係が Fig. 16, 17 に示されている。Fig. 16 は $\text{Sb} + \text{Ar}$ ($E_{\text{cm}} = 223 \text{ MeV}$), $\text{Au} + \text{Ar}$ ($E_{\text{cm}} = 249 \text{ MeV}$) の場合で Fig. 17 は $\text{Ho} + \text{Ar}$ ($E_{\text{cm}} = 226 \text{ MeV}$) の場合である。いずれの場合にも対称分裂が示され, それに相当する total kinetic energy が得られている。入射重イオン, ターゲットの質量に相当する場所にそれぞれの等高線の山が見られる場合があるがこれらは重イオンの弾性散乱, 核子移行反応などにより生じた核である。重イオンの全断面積 $\sigma_R = \pi (R_P + R_T)^2 (1 - \frac{V}{E})$, R_P, R_T は重イオンとターゲット核の半径, V はクーロンバリヤ, E は重心における重イオンのエネルギーであるから, complete fusion 経由の fission cross section, $\sigma_{\text{fusion} \rightarrow \text{fission}}$ が σ_R の比として求めることが出来る。重イオン Ar を用いた場合では, 複合核の質量が 200 以下 すなわちターゲット核が Ar あたりまでは $(\sigma_{\text{fusion} \rightarrow \text{fission}}) / \sigma_R$ の比は非常に小さい。これらの複合核では中性子蒸発反応が主になり $(\sigma_{\text{fusion} \rightarrow \text{fission}}) / \sigma_R$ の値は約 10% 以下である。

Table II における ALICE 以外の実験はこれらに関するものである。重イオン Ar 複合核の質量が 200 近く, それ以上では複合核の大部分は complete fusion $\rightarrow$ fission であり残る部分は中性子, 荷電粒子の蒸発を生じる。重イオンにより持ちこまれた angular momentum は複合核に回転エネルギーを与え, これは複合核の核分裂バリヤを低下させる。この核分裂バリヤを effective fission barrier と称するが, 複合核の質量が 200 以上の時にはこの effective fission barrier は中性子の結合エネルギー以下にまで低下し, complete angular momentum 移行の後の fission cross section の測定断面積は, 重イオンとターゲットの complete fusion 核の生成断面積となる。これは σ_R より小さい。effective fission barrier を零にする angular momentum を critical angular momentum (ℓ_{critical}) と定義すれば, $\ell > \ell_{\text{critical}}$ では complete fusion を経由しない fission が生じるので, これからの影きょうが σ_R の中に考慮されねばならない。これらの影きょうは重イオンのエネルギーが高くなると増大する。Ar 重イオンで生成される複合核の質量が 200 以上になると $(\sigma_{\text{fusion} \rightarrow \text{fission}}) / \sigma_R$ は約 60% となり, 200 以下の場合にくらべて非常に大きくなる。Kr 重イオン ($E = 450 \sim 500 \text{ MeV}$) による複合核の質量 200 以上の場合には $(\sigma_{\text{fusion} \rightarrow \text{fission}}) / \sigma_R$ は約 20% 以下になり, 比核分裂パラメータ (X) が 0.9 以上になる

と、例えば $\text{Bi} + \text{Kr}$, $\text{U} + \text{Kr}$ の場合には、この比は 5% 以下に小さくなっている。 $\text{U} + \text{Kr}$ の時には融合核は $Z = 128$, $A = 322$ となり、2 体核分裂をする融合核経由の核分裂は 10mb 以下と報告されている。この場合 critical angular momentum は非常に小さく 10 以下である。このような重い核では核分裂モードは 2 体よりも多体分裂がエネルギー的に安定であると考えられるのでこのようなことも影きょうしているのかも知れない。 $\text{Bi} + \text{Kr}$ に対する全運動エネルギーと生成核片の質量の関係は Fig. 18 に示されているが、これは Fig. 16, 17 に比較すると $Z = 119$, $A = 293$ の complete fusion 経由の核分裂 ($E_{k, \text{total}} \sim 260 \text{ MeV}$) はこの場合には対称分裂でなく、重核分裂片がターゲット、軽核分裂片が重イオンのそれぞれの質量に近い非対称核分裂を示している。弾性散乱、核子移行反応による部分は $E_{k, \text{total}} \sim 350 \text{ MeV}$ あたりにみられる。この場合の解釈としては、融合核の質量が非常に重くなると準分子状態のような核が形成されているであろうと考えられる。そして 2 つの核分裂片の質量が当初のチャンネルの質量数に近く、平衡状態の configuration には到達していないと考えられる。このような現象は非常に興味のあるものであり、超重元素 $Z = 114$, $A = 293$ 生成に関連して現象がより明らかにされることが期待される。

Complete fusion 経由の核分裂 (質量対称) の total kinetic energy とその巾、又質量分布の巾も重イオン核融合、核分裂における動的極に重要な量である。total kinetic energy は Fig. 19 でまた質量分布と kinetic energy の分布巾は Fig. 20 で示されている。これらの図では実験値と Nix モデルとの計算値が比較されている。total kinetic energy は他の反応から得られた系統的な傾向によく合い、これは理論計算とも傾向はよく合っている。絶対値については実験値の方が理論値より多少大きい。巾については実験値は理論値よりはるかに大きく、nuclear viscosity などの影きょうを考える必要があることを示しているものと思われる。すなわち、frictional effect をもつ dynamic model を用いて compound nucleus formation を解くことの必要性が Swiatecki 達により提案されているようであるが取扱の詳細は不明である。より多くの実験データが必要である。

(2) 臨界角運動量 (critical angular momentum)

最後に critical angular momentum に関連して簡単にふれておく。①複合核の平衡状態の観点から上述したように ref. 28 の Cohen, Plasil, Swiatecki の定義、すなわち持ちこまれた重イオンの angular momentum のために複合核の effective fission barrier を零にする critical angular momentum と他方、②重イオンとターゲットが complete fusion を生ずる時に 2 つの間に働く attractive nuclear force が 2 つの repulsive Coulomb と centrifugal force の和に等しいと定義したときに算定される critical angular momentum がある。²⁹⁾ 両者の比較は Fig. 21 に示されている。縦軸は critical angular momentum, 横軸は入射重イオンとターゲット核の原子番号の和である。点線は①、実線は②の計算値を示す。②の場合各入射重イオン, C, O, Ne, Kr で示されている。図中の Δ , $\circ$, $\square$ は夫々の重イオンに対する実験値の $\sigma_{\text{complete fusion}}$ から計算された ℓ_{critical} を示している。C, O, Ne などの軽い重イオンでは②のカーブは①のカーブより一般に低く、Kr では $Z_1 + Z_2 \sim 70$ 以上で①, ②のカーブはよく一致している。又②のカーブの C, O, Ne に対するものは実験点を大体説明しているようである。Kr の場合には実験点の方が①, ②カーブより大きい。超重元素 $Z = 114$ に対しては ℓ_{crit} の計算値は約 30 位である。 ℓ_{crit} に対する実験、理論面からの研究が今後の重イオン核反応にとって非常に重要である。超重元素生成にとって本質的な問題を含むことは言うまでもない。

3. おわりに

紙面の都合で説明を省略した個所も多く、また、急速に進展して行く学問分野であるため筆者の理解の範囲でトピックスを記述したが、関連あるまたは興味ある人々には原論文を参照して把握されることをお願いしたい。

References

- 1) 竹腰英子：物理学会誌 23 596(1968), 25 302(1970)
原子力学会誌 12 187(1970)
- 2) Polikanov S. M. et al: Soviet Phys. JETP 15 1016 (1962);
Perehygin V. P. et al: Soviet Phys. JETP 15 1022 (1962);
Polikanov S. M. et al: Soviet Phys. JETP 17 544 (1963);
Flerov G. N. et al: Soviet Phys. JETP 18 964 (1964);
Flerov G. N. et al: Nucl. Phys. A97 444 (1967);
Flerov G. N. et al: Nucl. Phys. A102 443 (1967);
Linev A. F. et al: Nucl. Phys. 63 173 (1965).
- 3) Strutinsky V. M.: Nucl. Phys. A95 420 (1967), A122 1 (1968)
- 4) 代表的なものとして Bolsterli M. et al: Phys. Rev. C5 105 (1972); Andersen B. L. et al: Nucl. Phys. A159 337 (1970)
- 5) Möller P. and Nix J. R.: IAEA-SM-174/202 (1973)
- 6) Flocard H. et al: IAEA-SM-174/38 (1973)
- 7) Myers W. D. and Swiatecki W. J.: Nucl. Phys. 81 1 (1966),
Ark. Fys. 36 343 (1967)
- 8) Myers W. D. and Swiatecki W. J.: Ann. Phys. 55 395 (1969), Berkeley Rep. UCRL-19543 (1970), LBL-1957 (1973)
- 9) Back B. B. et al: IAEA-SM-174/201, IAEA-SM-174/27 (1973)
- 10) Britt H. C. et al: Phys. Rev. C7 801 (1973)
- 11) Specht H. J. et al: Phys. Lett. 41B 43 (1972)
- 12) Sobiczewski A. et al: Nucl. Phys. A202 274 (1973)
- 13) Limkilde P. and Sletten G.: Nucl. Phys. A199 504 (1973)
- 14) Metag V. et al: IAEA-SM-174/26 (1973)
- 15) Specht H. J. et al: IAEA-SM-174/19 (1973)
- 16) Galeriu D. et al: IAEA-SM-174/15 (1973)
- 17) Russo P. et al: IAEA-SM-174-96 (1973)
- 18) Pauli H. C. and Ledergerber T.: IAEA-SM-174/206 (1973)
- 19) Schütte G. and Wilets L.: IAEA-SM-174/210 (1973)
- 20) Sierk A. J. and Nix J. R.: IAEA-SM-174/74 (1973)

- 21) Schmitt H. W. and Mustafa M. G.: IAEA-SM-174/73 (1973)
- 22) Wieczorek R. et al: IAEA-SM-174/2 (1973)
- 23) Hanape F. et al: IAEA-SM-174/42 (1973)
- 24) Gutbrod H. H. et al: IAEA-SM-174/59 (1973)
- 25) Plasil F. et al: IAEA-SM-174/71 (1973)
- 26) Zebelman A. M. et al: IAEA-SM-174/67 (1973)
- 27) Cohen S. et al: Third Conf. on Reactions between Complex Nuclei, Univ. of California Press, Berkeley and Los Angeles 325 (1963), Blann M. and Plasil F.: Phys. Rev. Lett. 29 303 (1972), Blann M.: Proc. Heavy Ion Summer Study, Oak Ridge (1972), Conf. 720669, p.269
- 28) Wilczynski J.: IAEA-SM-174/208 (1973)

* IAEA-SM-174 (1973) は IAEA 第 3 回核分裂の物理・化学に関するシンポジウムにおける発表論文である。

Table 1. Present status for static fission barrier calculations

method	Status at 1973
Liquid Drop	Myers & Swiatecki LD 1966~67 Droplet 1971~73
macroscopic (LD) + microscopic (δ shell)	1) One body model Ei, Ch, cassinian oval 2) Two bodies model a. Two center parametrization b. Nix shape parametrization
1967 → 1973 → Future	
Self consistent microscopic (Hartree-Fock)	Effective interaction (Skyrme's interaction)
1972 → 1973 → Future	

Table 2. Present status for studies on the nuclear fusion and the nuclear fission in heavy ion reaction

Machine	Beams (MeV)	Reaction
ALICE (France)	^{40}Ar (150~300) ^{86}Kr (450~500)	$(\text{Mo, Sb, Pr, Ho, Au, Bi, Th, U}) + \text{Ar} \rightarrow \sigma_{\text{fission}}$ $(^{136}\text{Xe}, ^{137}\text{Sb}, ^{165}\text{Ho}, ^{208}\text{Bi}, ^{238}\text{U}) + \text{Ar} \rightarrow \sigma_{\text{fusion}} + \sigma_{\text{fission}}$ $(\text{Nd, Tm, } ^{205}\text{At}, ^{249}\text{Md}, ^{276}\text{Lr})$ $(^{185}\text{Ho}, ^{186}\text{W}, ^{208}\text{Bi}, ^{238}\text{U}) + \text{Kr} \rightarrow \sigma_{\text{fusion}} + \sigma_{\text{fission}}$ $(^{249}\text{Lw}, ^{270}\text{Lr}, ^{293}\text{Lr}, ^{322}\text{Lr})$
Super-HILAC (U.S.A.)	^{40}Ar (197~288)	$^{58}\text{Ni} + \text{Ar} \rightarrow \sigma_{\text{evap}} + \sigma_{\text{direct}} \rightarrow \sigma_{\text{R}}$ $^{108}\text{Ag} + \text{Ar} \rightarrow \sigma_{\text{evap}} + \sigma_{\text{fission}} \rightarrow \sigma_{\text{R theor}} (\bigcirc \bigcirc)$
ORIC (U.S.A.)	^{20}Ne (110~165)	$^{107}\text{Ag} + ^{20}\text{Ne} \rightarrow \sigma_{\text{fusion}} + \sigma_{\text{fission}} < \sigma_{\text{R calc.}}$
Yale HILAC (U.S.A.)	$^{11}\text{B}, ^{12}\text{C}, ^{16}\text{O}$ ^{20}Ne	$^{11}\text{B}, ^{12}\text{C}, ^{16}\text{O} + ^{152}\text{Gd} = ^{16}\text{O} + ^{154}\text{Sm} + ^{20}\text{Ne} + ^{150}\text{Nd} \rightarrow ^{170}\text{Yb}$ $(\text{Ex} = 107 \text{ MeV})$ $\text{Jerit. } (\sigma/\sigma_{\text{Cf}})_{\text{exp}}, (\sigma/\sigma_{\text{Cf}})_{\text{theor}}$

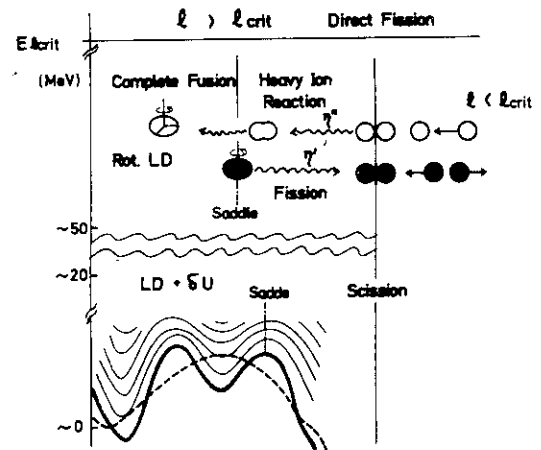
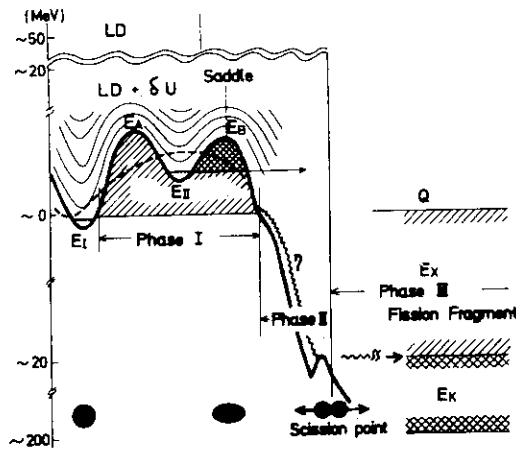


Fig. 1 and 2 Impression overlooking IAEA-SM-174 (1973).
Fig. 1 shows a potential energy as a function of nuclear deformation.
Fig. 2 shows a relation between nuclear fusion in heavy ion reaction and nuclear fission.

Fission Barrier (Static) Calculation

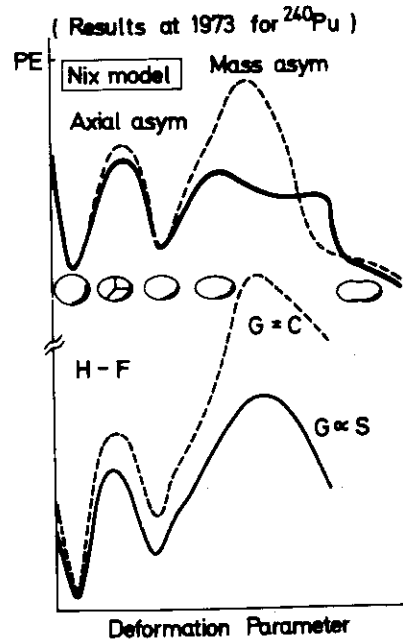
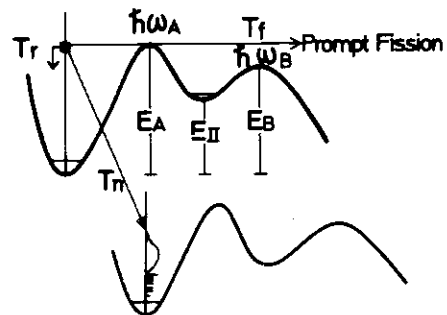


Fig. 3 Calculated static potential energy for ^{240}Pu as a function of nuclear deformation. Upper part is referred from Ref. 5 and lower part from Ref. 6.

Exp. Fission Barrier Parameter

1. Direct Reaction Fission



$$P_f = \left\langle \frac{T_f}{T_f + T_n + T_r} \right\rangle$$

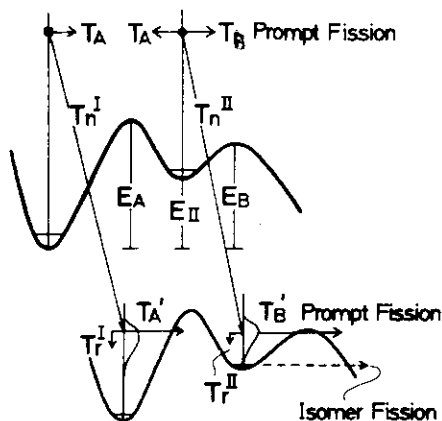
$$T_f = f(T_A, T_B)$$

$$= f'(E_A, \hbar\omega_A, E_B, \hbar\omega_B)$$

Fig. 4 Schematic illustration of the major feature of direct reaction fission (from Ref. 9)

Exp. Fission Barrier Parameter

2. Fission Isomer E^* Function



$$\frac{\sigma_{\text{isomer}}}{\sigma_{\text{prompt}}} \approx f(T_B, T_n^{\text{II}}, T_B', T_r^{\text{I}}) \cdot g(T_A, T_A', T_n^{\text{I}}, T_r^{\text{I}}) \approx f'(E_B, E_B', E_{\text{II}}') \cdot g$$

Fig. 5 Schematic illustration of the major feature of fissioning isomer population (from Ref. 9)

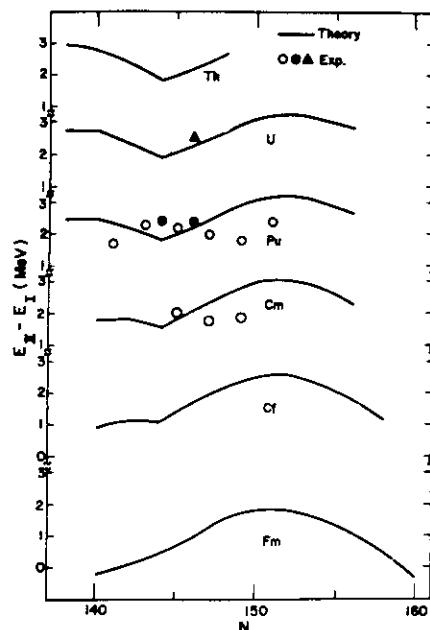


Fig. 6 Height of the secondary minimum as a function of neutron number N (from Ref. 5). Curves are the calculated results in Ref. 5. Symbols of $\circ$, $\bullet$, Δ mean experimental data; solid symbols are used for even nuclei and open symbols for odd-neutron nuclei.

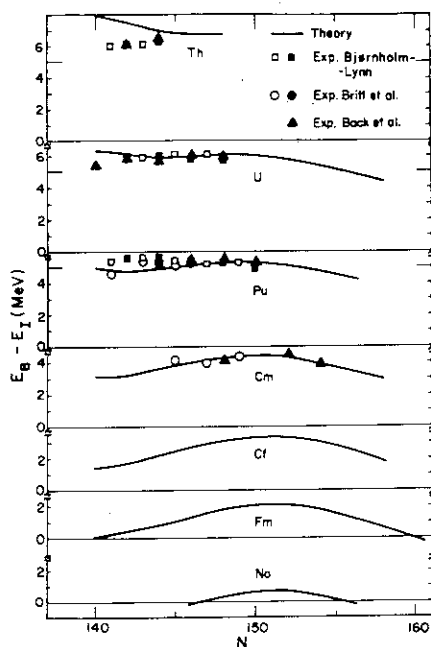


Fig. 7 Height of the asymmetric second barrier as a function of neutron number N (from Ref. 5). See the figure caption in Fig. 6 for curves and all of symbols.

Nuclear Structure in 2nd well

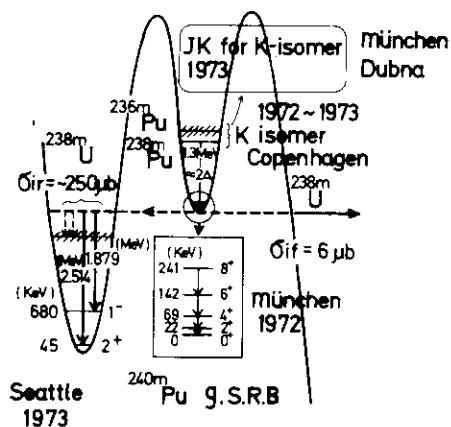


Fig. 8 Recent studies on nuclear structure in the secondary minimum.

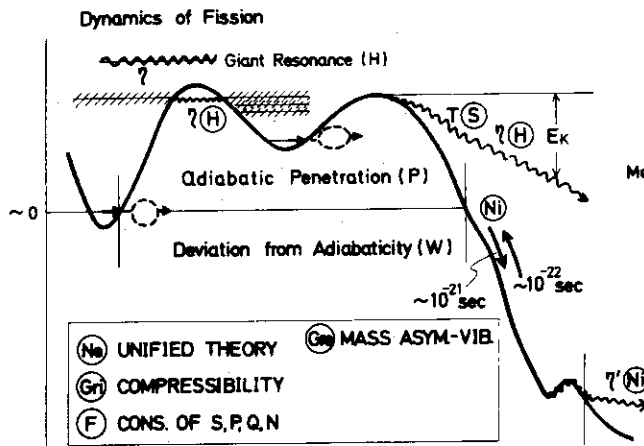


Fig. 9 Studies in IAEA-174 (1973) on the dynamic fission process.

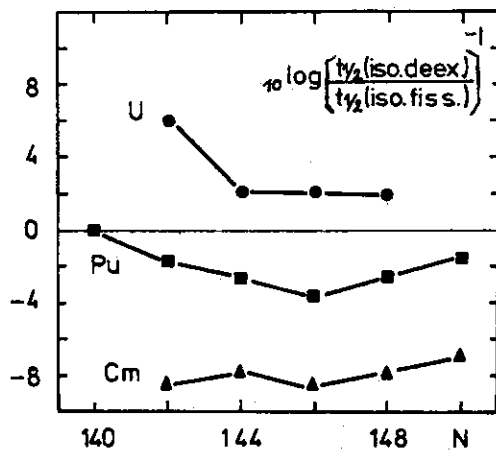


Fig.11 Branching ratios for isomer de-excitation and isomer fission for some U, Pu, and Cm isotopes as a function of neutron number N (from Ref.18).

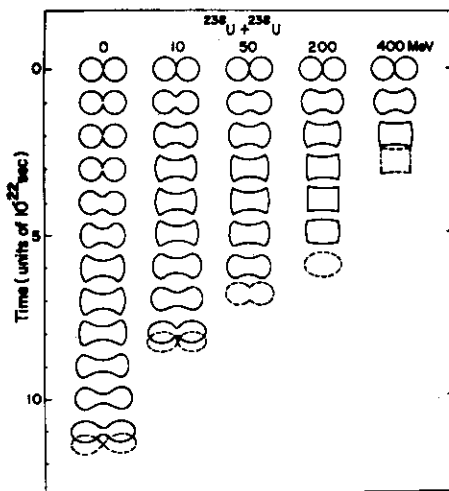


Fig.13 Calculated sequence of shapes at time intervals of 10^{-22} sec for the fusion of $238\text{U} + 238\text{U}$. The nuclei are tangent spheres at $t = 0$ (from Ref.20).

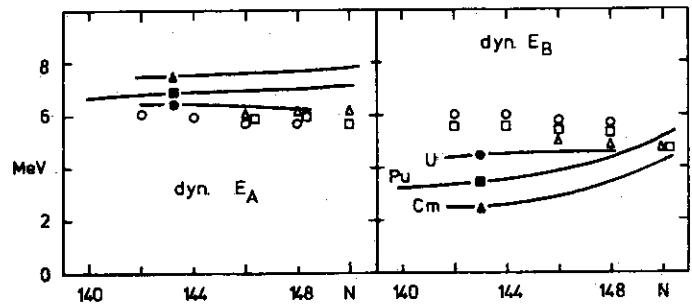


Fig.10 Dynamic fission barriers for U, Pu, Cm isotopes as a function on neutron number N (from Ref. 18).

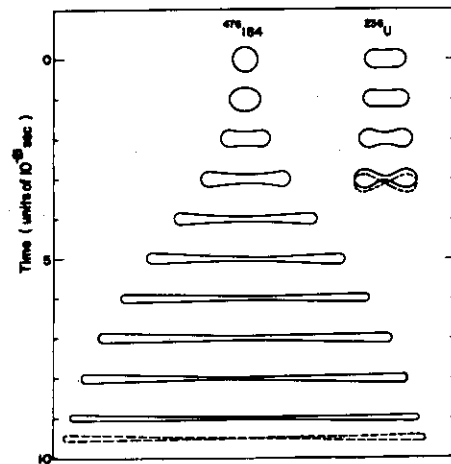


Fig.12 Calculated sequence of shapes at time intervals of 10^{-21} sec for the symmetric fission of 476184 and 236U . The scission configurations are shown by dashed line (from Ref. 20)

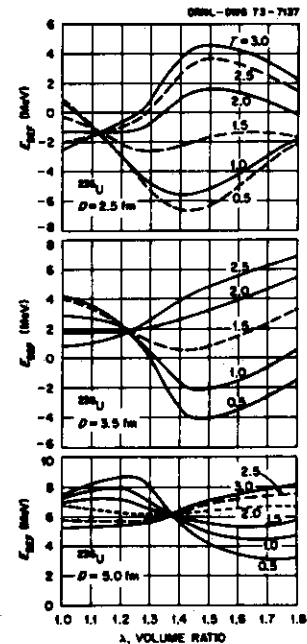


Fig.14 The deformation energy E_{DEF} as a function of volume ratio for various temperature T of the nucleus 236U . The lower, middle and upper parts are for the shapes at $D = 5.0$ fm (at the secondary saddle point), $D = 3.5$ fm, and 2.4 fm (beyond the saddle point and close to scission), respectively (from Ref. 21).

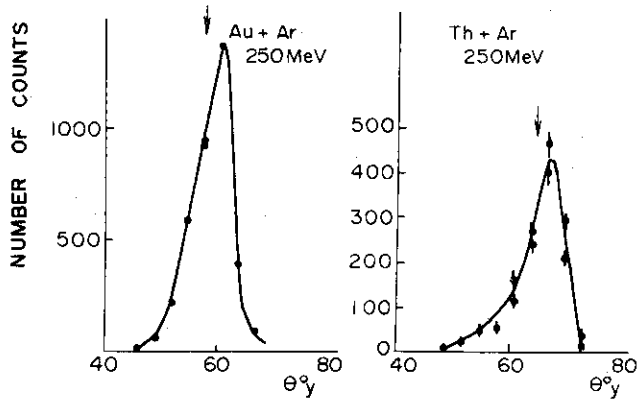


Fig. 15 Angular correlation between fission fragments of Au + Ar (237Bk) and Th + Ar (272108). The arrow in figure indicates the correlation angle for the symmetric fission, which is obtained from the total kinetic energy by Nix (UCRL-17958, 1968) (from Ref. 23).

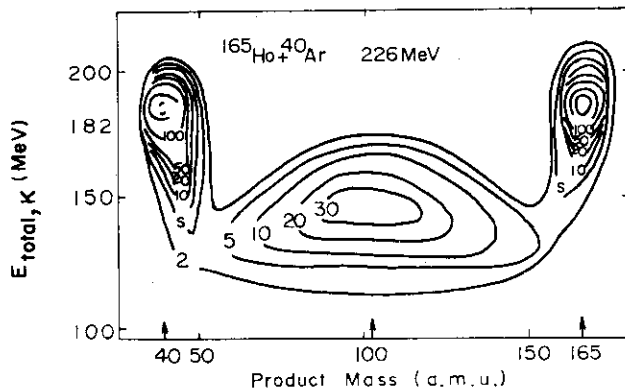


Fig. 17 Contour diagram for the mass-total kinetic energy distribution for the 182 MeVc.m. ^{40}Ar on ^{165}Ho case (from Ref. 23).

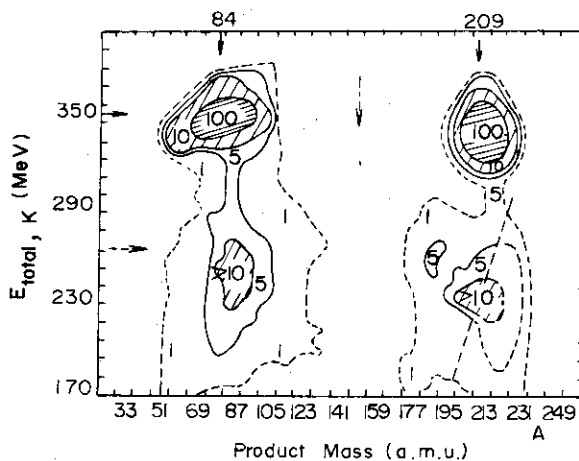


Fig. 18 Contour diagram for the mass-total kinetic energy distribution for the 357 MeVc.m. ^{84}Kr on ^{209}Bi case (from Ref. 23).

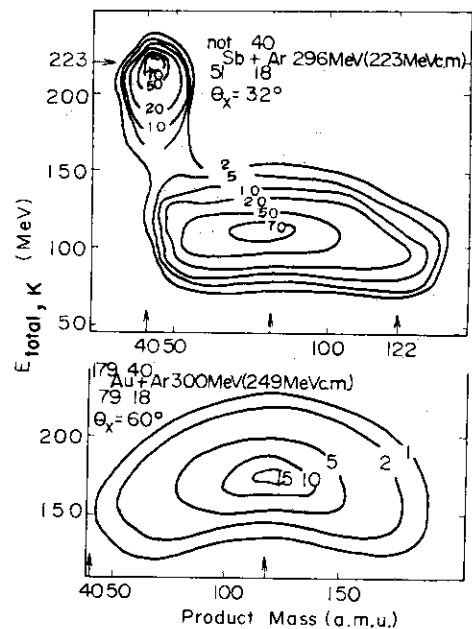


Fig. 16 Contour diagrams for the mass-total kinetic energy distribution for the 223 MeVc.m. ^{40}Ar on natural Sb case (upper part) and for the 249 MeVc.m. ^{40}Ar on ^{179}Au case. Measurements are made by using two detectors, which are placed at a given angle and at corresponding to the correlation angles to the projectile direction (from Ref. 23).

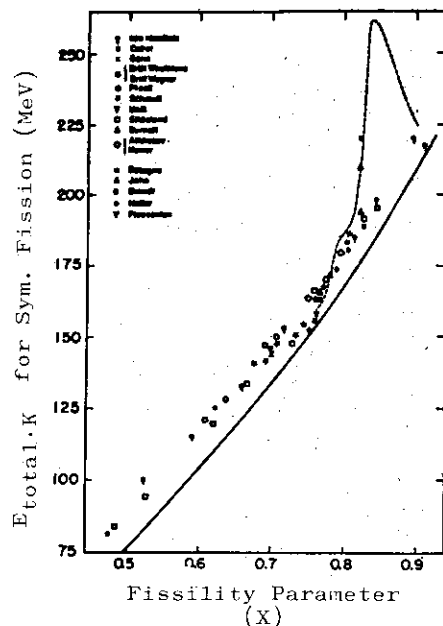


Fig. 19 Variation of the total kinetic energy for the symmetric fission as a function of fissility parameter (X). Solid line is obtained from the prediction by Nix (UCRL-17958, 1968). Dotted line is obtained from the prediction by Schmitt and Mosel (Nucl. Phys. A186 (1972) 1). Each symbol is experimental value, and the results in the present work are indicated by symbol of $\uparrow$. (from Ref. 23)

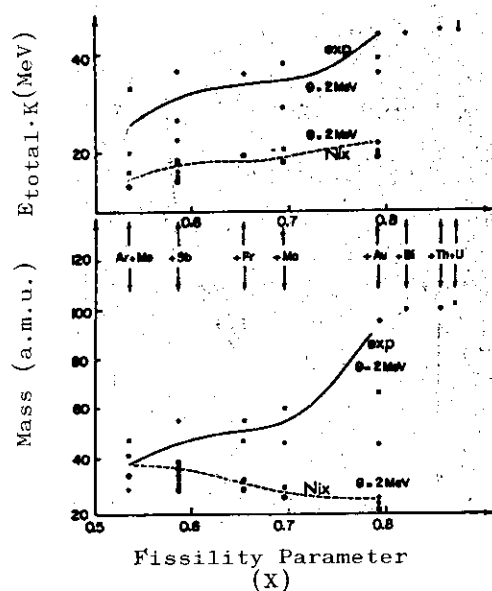


Fig.20 The widths of mass distribution and of the total kinetic energy distribution for the fission of different compound nuclei. Closed symbols mean experimental values, and open symbols mean the values calculated by Nix (UCRL-17958, 1968). (from Ref. 23)

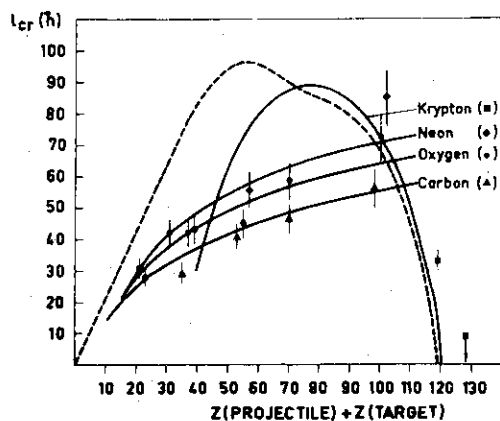


Fig.21 Critical angular momenta calculated from measured values of complete fusion as a function of the Z-value of the compound system. The solid lines show the prediction of this model for C, O, Ne and Kr projectiles. The dashed line shows the limits of angular momentum for the compound system predicted by Cohen, Plasil and Swiatecki (ref. 28). (from Ref. 29)

1.2 重核に対する重イオン核反応

東京大学原子核研究所 志田嘉次郎

(東京都田無市緑町3-2-1)

Heavy Ion Reactions for Heavy Nuclei

Kajiyo SHIDA

(Institute for Nuclear Study, University of Tokyo,
Midori-cho, Tanashi-shi, Tokyo)

Some of topics on the incomplete fusion and the direct process are reviewed from recent studies with heavy ion reactions in heavy nuclei, and some interesting problems for the interaction radius and others are pointed out.

軽核もしくは中重核をターゲットにした重イオン反応は、これまで盛んに研究されて来たが、重核では余り調べられていない。故に問題点の提起、あるいはその解決についても、甚だ不十分な状態である。これまで知られている、Coulomb barrier 前後での傾向で、質的に重核ターゲットというものを特位させるものは、強いクーロンの相互作用による影響と、角運動量の制限による影響である。前者は当面このレビューの範囲外であるが、後者の直接的なあらわれは、Complete Fusion Process が非常に小さい、あるいは、殆ど存在しないことである。すなわちいわゆる複合核が作られない点にある。故に重イオン核反応過程として考えられるのは、直接過程とIncomplete Fusion Process である。

1. Incomplete Fusion

核反応断面積の大部分を含むもので、定義からいっても、あまりはっきりしない、種々な過程を含むものである。この process の重要性は10年前に Cohen et al.¹⁾により指摘されていたが、最近の実験²⁾は予想以上に、Complete Fusionが少ないことを示している。(Fig. 1)

この process を多少なりとも明らかにしようとする実験は、これまで Dubna³⁾で、又最近 Orsay⁴⁾でも行われた。¹⁹⁷Au や ²³²Th をターゲットとして Ar までの重イオンをあてた際に放出される軽核の生成断面積を移行した粒子数、放出角度、Excitation Energy等についての関数として調べると、その結果は反応が local な Fusion を経由し、その間に粒子移行が起る。そして、中間状態として、移行粒子数等によるが、不完全ながらある種の平衡状態があるという描像に大体矛盾しないようである。より重いイオンを用いた場合は Symmetric な分裂をするものと考えられており⁵⁾、fission の逆過程に似てくるものと考えられる。

2. 直接過程

重核をターゲットにしたものでは精度の良い実験は²⁰⁸Pb 近傍のみである⁶⁾。Fig. 2 に示すような粒子移行反応で低い励起の discrete な準位に行くものは、Fig. 3 に示すように、Brink⁷⁾の semi-classical な理論で良く説明される。この図は、recoil の重要性も同時に示している。Fig. 2 での高

い励起エネルギーに対応する連続分布が、1.で述べた Incomplete Fusion を経由したものに
対応する筈である。理研のグループ⁸⁾はこのような山から、複合核過程での level density に相当
するものを引出そうと試みているようであるが、その結果が期待される。

3. Interaction Radius

Rutherford 以来荷電粒子を用いて弾性散乱のクーロン散乱からのずれを調べることに核の
大きさを決める実験がなされてきた。現在重イオンを用いての実験では、二つの核が核力を通じて
相互作用を始める距離を求めようとしている。その動機は、dynamic な変形度の問題である⁹⁾。
すなわち、有効なクーロンの閾値が変形により高くなるのかどうかである。Lefort 等¹⁰⁾は実
験的に、一見高くなっているような結果を得たがその解釈については、まだユニークなものが出せ
ないようであり、これは今後の課題であろう。次にこれと関連して面白い実験結果¹¹⁾が最近出たの
で紹介する。これは¹⁶O から Cu まで5種のイオンを用い Sn の同位元素との interaction radius,
RI を Rutherford 散乱からのずれとして実験室系で 40° 及び 150° での測定から求めたものである。
注目すべきことは重いイオンの場合 Sn の同位元素の質量数の増加するにつれて、RI が減少するこ
とである。(Table. 1)

α 粒子を用いた同種の実験が Saclay¹²⁾でなされているのでその結果を Fig. 4 に示す。これでは、RI
は Sn の同位元素では質量数とともにふえており、Sm の同位元素では安定な変形がはじまると急激
に増加することがわかる。Sn の同位元素は低い励起状態では互いに良く似ており、E1, E2, E3,
等の知られている集団励起モードだけで RI の変化が説明できるものかどうか興味ある問題である。

4. そ の 他

4.1 α 崩壊と α 及び ^8Be Transfer

重核での反応検出方法は、直接粒子を測定するか、またはエネルギー分解能等に問題のある場合
は γ 線との同時計測を用いるのが普通である。ここに α 崩壊を用いて反応過程を調べたきれいな実
験がある¹³⁾。¹⁹⁷Au や ²⁰⁹Bi をターゲットとし、¹²C イオンを使い、In beam の catcher foil 方法等
を用いて、 α -emitter の角分布、recoil energy、励起関数等を測定することにより α あるいは
 ^8Be Transfer Process の重要性を明らかにしたものである。Fig. 5 に示すように ^8Be の移行を含む
過程の断面積は相当大きなものである。

4.2 SubCoulomb Transfer での Virtual Coulomb Excitation の影響

重イオン+重核の反応では、クーロン力が強いので、クーロン励起の確率が非常に大きく、解析
が難しくなる面がある。だが、このことを積極的に利用することが可能であれば、例えば核子移行
反応において、反応機構や核構造についてより深い知識が得られるであろう。Fig. 6 示したのは
²⁰⁸Pb で 3^- へのクーロン励起を考慮すると、1 核子移行反応で 77 MeV 位の入射エネルギーでは核力
の不確定さも少なく、 3^+ の構造が決定されるだろうという理論計算である¹⁴⁾、この計算の精度、
確度は別にして、このような可能性は今後更に追求されるべきであろう。

References

- 1) Cohen S. et al: Proceedings of the Third Conference on Reactions between Complex Nuclei, Berkeley p.325 (1963)
- 2) Lefort M.: Jour. de Physique C5-73 (1972)
- 3) Artukh A. G. et al: Nucl. Phys. A160 511 (1971), Proceedings of International Conference on Nuclear Physics, München, 5. 164-166 (1973)
- 4) Colombani P. et al: Proceedings of International Conference on Nuclear Physics, München 5. 167 (1973)
- 5) Swaitecki W. J.: Journal de Physique C5-45 (1972)
- 6) Anyas-Weiss N. et al: Physics Lett. 45B 231 (1973)
Kovar D. G. et al: Phys. Rev. Lett. 30 1075 (1973)
- 7) Brink D. M.: Phys. Lett. 40B 37 (1972)
- 8) Kohno I. et al: Proceedings of International Conference on Nuclear Physics, München 5.169 (1973)
- 9) Wong C. Y.: Phys. Lett. 26B 120 (1968)
- 10) Lefort M. et al: Nucl. Phys. A197 485 (1972)
- 11) Christy A. et al: Proceedings of International Conference on Nuclear Physics, München 5.14 (1973)
- 12) Badaway I. et al: Annual Report, Saclay 46 (1972)
- 13) Bimbot R. et al: Nucl. Phys. A189 193 (1972)
Nomura T. et al: Proceedings of International Conference on Nuclear Physics, München 5.216 (1973)
- 14) Goldfarb L. J. B. and Takeuchi K.: Proceedings of International Conference on Nuclear Physics, München 5.48 (1973)

Table I. Interaction barriers, E_b , and interaction radii, R_I , deduced after the manner of Lefort et al.¹⁰⁾ The figure shows the data obtained with the ^{56}Fe bombardment. The lines on the figure have been drawn to guide the eyes. (from Ref. 11)

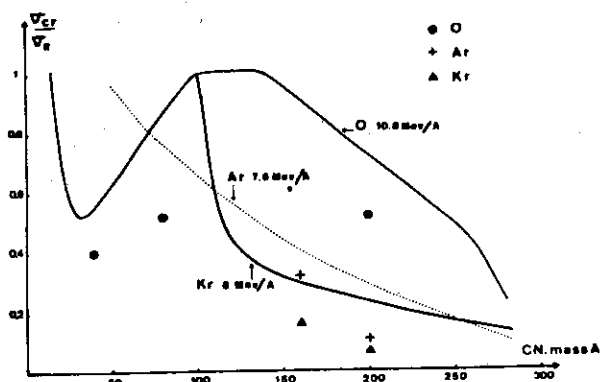
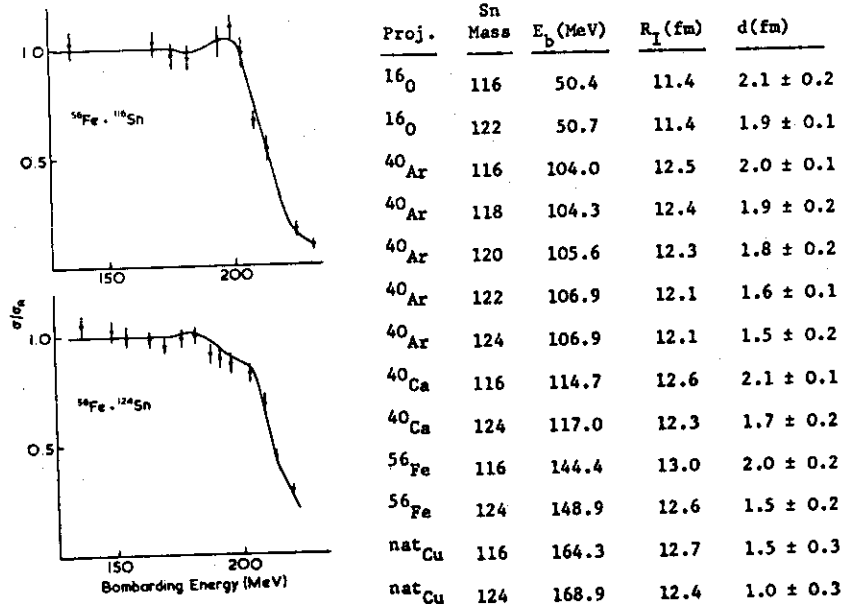


Fig. 1 Cross section for complete fusion as a function of A of compound nucleus, according to the rotating liquid drop model. Experimental ratios σ_{CF}/σ_R are for oxygen: $\bullet$, Argon at 300 MeV: $+$, and krypton at 450 MeV: $\blacktriangle$ (from Ref. 1)

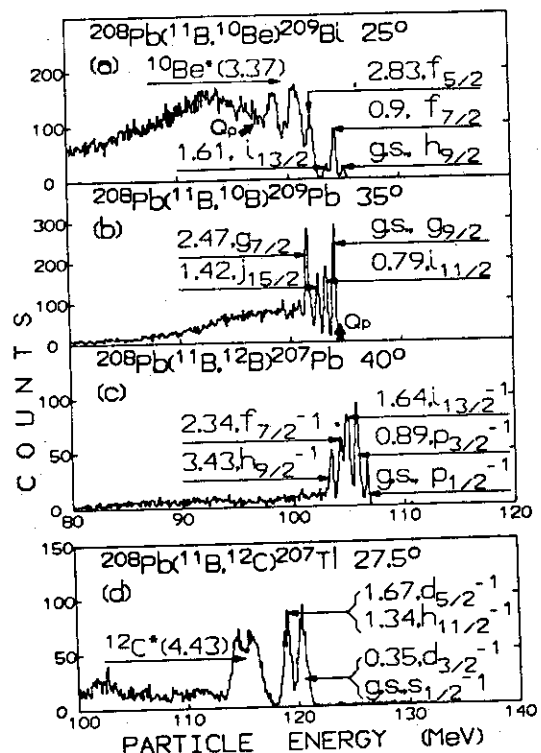


Fig. 2 Energy spectra for single-nucleon transfer reactions on ^{208}Pb , induced by ^{11}B ions of 113.5 MeV. The bold arrows, labelled Q_p in (a) and (b), denote the excitation corresponding to the predicted kinematically favoured Q -value. (from Ref. 6)

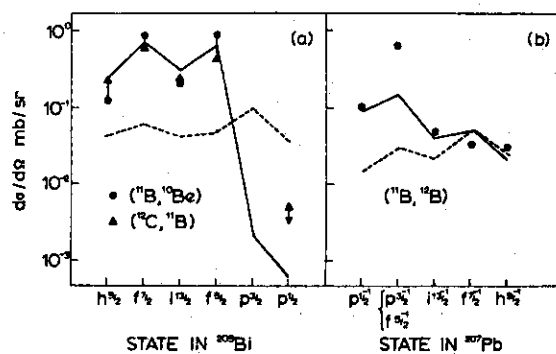


Fig. 3 Comparison of experimental cross sections with semiclassical theory, (a) for proton stripping and (b) for neutron pick-up. In (a) the ($^{12}\text{C}, ^{11}\text{B}$) data has been normalised to the ($^{11}\text{B}, ^{10}\text{Be}$) data. The solid line is the theoretical prediction based on eq.(1), and the dotted line shows the effect of omitting "recoil terms" by setting $k_0 = 0$. (from Ref. 7)

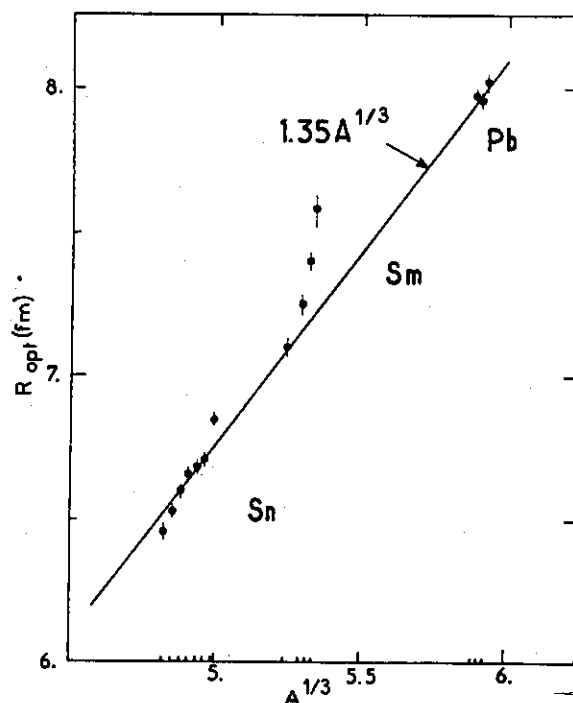


Fig. 4 $R_{\text{opt}}(\text{fm})$ values as a function of $A^{1/3}$. (from Ref. 12)

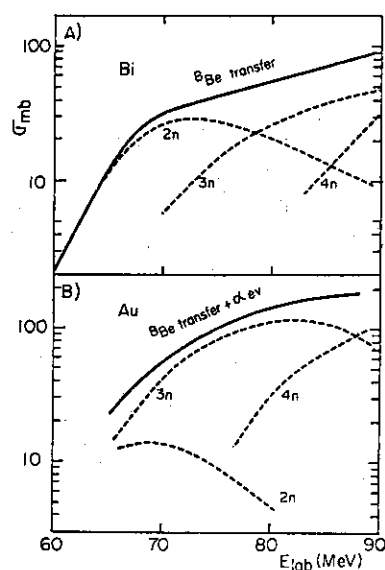


Fig. 5 Excitation functions for ^8Be transfer. (A) In the case of a Bi target, the cross section of ^8Be transfer is obtained by summing the cross sections for the mechanisms $^8\text{Be}-2n$, $^8\text{Be}-3n$ and $^8\text{Be}-4n$. (B) In the case of a Au target the cross sections for production of Bi isotopes are summed, when the ($^{12}\text{C}, xn$) mechanism is excluded. The resulting curve includes the possibility of ($^{12}\text{C}, \alpha xn$) reactions, the α -particle being evaporated. (from Ref. 13)

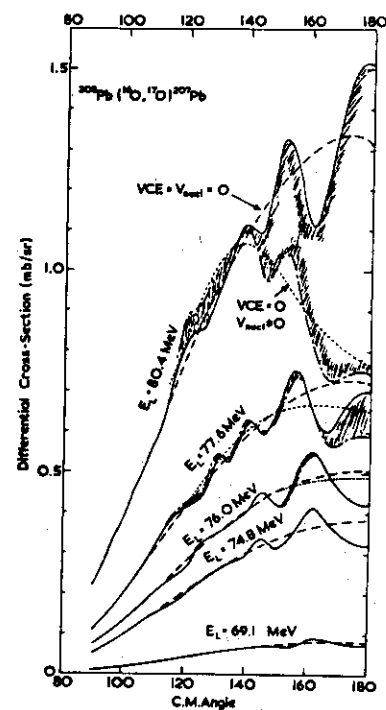


Fig. 6 Angular distribution for ^{17}O with the virtual Coulomb excitation in the $^{208}\text{Pb}(^{16}\text{O}, ^{17}\text{O})^{207}\text{Pb}$ reaction. (from Ref. 14)

1.3 重核の核化学

日本原子力研究所 馬 場 宏
(茨城県那珂郡東海村)

Nuclear Chemistry of Heavy Nuclides

Hiroshi BABA
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki)

Nuclear chemistry studies using heavy ion reactions are reviewed. The content consists of the fission studies (part I) and syntheses of known and new nuclides (part II).

重イオン加速器を用いる核化学の研究——特に重核を対象とした場合——の主要な分野は核分裂であり、次いで超重核の合成をも含めた新しい元素、同位元素の生成にあると言ってもよいであろう。この観点に立つならば、最初の重イオン核化学研究のピークは、1960年代の前半における核分裂の研究に見ることが出来る。この時期には、Sikkelandを中心とするBerkeleyグループの活躍が目立つが、60年代半ばから盛んに行われるようになったマルチパラメーター実験が核分裂研究の主流になると共に、重イオン核分裂実験は姿を消すようになった。

代って重イオン核化学実験の主流の座についたのが、新しい元素の合成の試みで、60年代半ば以降DubnaとBerkeleyとの間で繰りひろげられた先陣争いは特に有名である。Dubnaにおける核化学の研究は、Berkeleyと異なり、はじめから新元素核種の合成という目的の方が強かったようである。重イオン核分裂の研究は、むしろBerkeleyその他の場所で殆んど行われなくなった60年代後半になって認められるようになったが、60年代始めから現在に到るまでの主要テーマは一貫して同位元素合成であったといえる。そのことが、結果的に見て、102番から105番に到る新元素発見の先陣争いにおいてBerkeleyに勝ち、次いで自発核分裂性同位体の発見に結びついたのではないであろうか。

60年代の終りになって、重イオン核反応のもたらす新しいphaseに着目するという積極的な理由にもとずき再び重イオンによる核分裂の実験に再び関心が寄せられるようになって来た。このような新しいphaseの一つは、入射重イオンが系に持ち込む極めて大きな角運動量の効果であり、また、重イオンとターゲットとの間に生じる大きなクーロン反発力の効果である。このいわば、重イオン核分裂研究の第二期黄金時代はいまようやくその幕明けを迎えたというべき段階にある。

重イオン核分裂の研究において見落してならないことは、上に述べたような重イオン核反応に特有な効果の重要性もさることながら、核分裂事象の解明という点に着目しても、他の手段による核分裂研究にない利点を持っていることである。たとえば、他の手段では実現し得ない核分裂系を作ることが出来る。このことは、核分裂事象を理解する上で情報を最も必要とされながら最も不足しているRa近辺の核の核分裂を研究する手段が得られることを意味する。

中程度の励起状態にある核の核分裂は、低いエネルギーでの核分裂と異なる様相を示し、しかも前者の方がより単純なシステマティックスに従うことが知られている。低エネルギー核分裂がより

複雑な様相を呈するのは、シェル効果のためであると考えられるし、高エネルギーでの差異は、このシェル効果が消滅あるいは著しく減少するためであると考えれば、定性的な説明がつく。この点に関して更に研究を進めるためには、実験データの不足している高エネルギー核分裂の実験を盛んに行う必要がある。その意味では、より純粋な核分裂系を与える重イオン核分裂は重要な意味をもってくる。

1. 核分裂

1.1 重イオン反応によって作られる核分裂系

二体核分裂の際には、核分裂片は互いに重心系で 180° の方向に放出される。したがって、核分裂片の角度相関を測定すれば、反応時の運動量の移行が完全か不完全かを知ることが出来る。Sikkeland¹⁾は、核子当たり約10MeVのエネルギーの ^{12}C と ^{20}Ne を入射粒子とする重い原子核の核分裂片の角度相関をしらべた結果、主たる寄与は完全な運動量移行過程すなわち複合核形成過程から来ることが確かめられた。 $\text{Au}+^{12}\text{C}$ の系では、100%であり、複合核の重さが増すにつれて次第に非複合核経由の核分裂の寄与が増すが、最も重い $^{238}\text{U}+^{20}\text{Ne}$ 系においてもその割合は高々17%であった。

重イオンとの反応によって形成された複合核は中性子等の軽い粒子を放出したのちにはじめて核分裂を起す。放射化学的に求めた一組の核分裂収率データを用いて、この核分裂核の原子番号と質量数を求める方法²⁾がある。Fig. 1には、 $\text{Au}(^{12}\text{C}, f)$ 反応のデータ³⁾をこの方法に従って解析した結果を示す。Fig. 1の縦軸は、核電荷と質量のガウス分布に実測データを最小自乗フィットさせた時の標準偏差を、横軸は核電荷分布曲線の巾を与える。2つの異なる核電荷分布すなわち一様分布(UCD)と液滴模型による計算値²⁾(LDM)を仮定した場合の結果が図示してある。図中の各曲線の脇に核分裂核に到るまでの放出過程を与えてある。最も確からしい状態は図中の最低点に対応する。この点における中性子放出数 x の値は8であり、したがって、核分裂核は $^{194}_{82}\text{Pb}$ であると結論される。

重イオン誘起核分裂の核電荷分布および質量分布については、Oganessian⁴⁾の研究がある。彼らによれば、 $^{238}\text{U}(^{20}\text{Ne}, f)$ 反応の核電荷分布はいわゆるequal charge displacement(ECD)によく合うとされている。Oganessianらはまた、核電荷分布と質量の分散の系統性をも求めている。

1.2 角運動量効果

重イオン反応の特徴の1つは、反応の際に非常に大きな角運動量が複合核に持ち込まれることである。核分裂に対する角運動量の効果は、まず核分裂障壁の低下という形で現われる^{5,6)}ことが示された。Fig. 2には、Hiskesの結果を基にGilmoreが角運動量の関数として求めた ^{191}Ti と ^{197}Ti の核分裂障壁を示す⁷⁾。ここで注目すべきは、角運動量が或る極限の値 $l=l_0$ になると障壁が消滅する点である。すなわち、この極限の値以上の角運動量では入射粒子と標的核が融合することは出来ず、直ちに2つに割れてしまう一種の直接核分裂が起ると考えられる。Swiatecki⁸⁾は、この考えを更に進めてFig. 3に示すような形にまとめた。彼らによれば、 $E_{\text{CM}}-b^2$ 平面は3本の曲線によって分割される。ここで、 E_{CM} は質量中心系における運動エネルギー、 b はimpact parameterを表わす。反応が起るためには、入射粒子と標的核が最も接近した時に両者の半径の和以内に近づくねばならない。最近接の距離 r_{min} が核半径の和に等しいという関係

$$\left(\frac{b}{r_{\text{min}}}\right)^2 = 1 - \frac{V(r_{\text{min}})}{E_{\text{CM}}} \quad (1)$$

が、第1の曲線(A)になる。 $V(r)$ は相互作用ポテンシャルを表わす。つぎに、角運動量が核分裂障壁

B_f が 0 になる極限值 ℓ_{crit} 以上では、複合核は生成しない。すなわち、慣性質量を M_{red} とするとき

$$b^2 = \frac{\ell_{crit}^2}{2M_{red}} \cdot \frac{1}{E_{CM}} \quad (2)$$

が第 2 の曲線(B)である。最後に、一旦生成した複合核が生き残るためには、核分裂以外の脱励起過程、すなわち粒子放出過程によって安定状態に落ちつかねばならない。したがって、 B_f が粒子の分離エネルギーに等しい曲線が第 3 の曲線(C)になる。

Sperber は、液滴に回転を与えた時の安定性を研究した⁹⁾。回転エネルギーが 0 の時に安定な形である球形は、回転が加えられるにつれてまず扁平になり、ついで回転軸に沿って上下にくぼみが生じ、さらに回転が増すとドーナツ状になることが計算によって示された。この結果から考えると、核分裂に与える角運動量の影響は単に核分裂障壁を下げるだけにとどまらないであろう。

Gilmore ら⁷⁾は、核分裂の起り易さ (fissibility) に現われる角運動量の効果に着目した。彼らは、核分裂断面積 σ_f の複合核形成断面積 σ_0 に対する比を励起エネルギーに対して目盛り、同じ複合核を与える重イオン反応同志で、入射重イオンが重い方が大きい値を与えることを見出した。Obukhov ら¹⁰⁾は、 σ_f の全反応断面積 σ_R に対する比を複合核の原子番号 Z と質量数 A からなるパラメータ Z^2/A の関数として求めた。彼らの結果を Fig. 4 に示す。図中の点線は陽子照射の場合で、実線は Ne 照射の結果を表わす。角運動量の影響は明瞭である。また、Pik-pichak¹¹⁾は複合核¹⁹⁷Tl について、¹⁶O 照射の場合の capture-to-fission 比の¹²C 照射の場合の値に対する比を計算し、2.0 という実測値に対して 2.1 という値を得た。

Sikkeland はこれとやゝ観点を変えて σ_f/σ_0 を入射粒子の質量 A の関数として扱った¹²⁾。その結果、核分裂障壁 B_f に対して

$$B_f = 6.76 (0.75 - x) A^{2/3} \quad (3)$$

なる関係式を得た。こゝに x は fissility parameter である。(3)式は回転していない液滴における核分裂障壁¹³⁾にほかならないことが指摘された。

核分裂生成物の中の shielded nuclei について準安定状態と基底状態の生成比 (m/g 比) を測定することによって複合核から核分裂片への角運動量の移行についての知見が得られることが、Vandenbosch らによって示された¹⁴⁾。彼らは¹³⁴Cs についての m/g 比を求め、その結果から、分裂片中に持ち込まれる平均の固有角運動量は核分裂核の保有していた角運動量より大きいという結論を得た。さらに、核分裂核の角運動量が増加すると、その増加分の少くとも一部は分裂片の角運動量に加えられることも示した。

分裂片の運動エネルギーと角運動量との関係に着目したのは Sikkeland らであった。彼らは、最初、分裂片の運動エネルギーが励起エネルギーにほとんど依らないことを見出した¹⁵⁾が、その後のより精密な測定の結果、分裂片間のクーロン反撥力に起因すると考えられる定常項の他に、励起エネルギー E_X に比例する項があること¹⁶⁾を見出した。Sikkeland に従って平均運動エネルギー $\bar{E}_K$ を詳しく書くと、

$$\bar{E}_K = 0.0042 Z^2/A^{1/3} + 0.075 E_X \quad (4)$$

となる。 E_X がほぼ角運動量の 2 乗平均に比例することから、彼は(4)式が

$$E_K = V_0 + B\bar{\ell}^2 \quad (5)$$

からの帰結であり、したがって右辺第 2 項は角運動量効果を表わしていると論じているが、この点については議論の分れるところであろう。

角運動量効果が最も直接的に、したがってより顕著に現われるのは、核分裂片の角度分布である。Viola¹⁷⁾らはAuとBiを標的核として種々の重イオンを当てた時に起る核分裂の分裂片角度分布を測定し、それから求めた角運動量の平均値を計算値と比較した。計算値は、Fig.5に示すように低いエネルギーで小さすぎ、高いエネルギーで大きすぎるという結果が得られた。彼らはこれらの不一致の原因として、前者に対しては核分裂と中性子放出の競合効果、すなわち fissibility の角運動量依存性を想定し、後者に対しては直接過程の寄与を示唆している。

重核の核分裂、特に低エネルギー核分裂に対する障壁が2つの山を有する構造になっている¹⁸⁾ことは広く信じられている。Vandenboschは、核分裂片の角度分布を決定する要因の1つである慣性率を微視的に計算し、限界温度以上の励起エネルギーに対しては外側のサドル変形を採用した場合に実験結果とよく合うことを示した¹⁹⁾。しかし、核分裂核が規定されていない場合には、角度分布から得られる K_0^2 の値の誤差は極めて大きくなる²⁰⁾筈であり、この問題に関して明確な結論を得るには角度分布の測定と同時に核分裂核をも知り得るような実験を行うことが必要である。

その他の角運動量効果としては、核分裂片質量分布に見られる影響がある。FordとLeachmanは高い角運動量に対して対称分裂の割合が高くなる²¹⁾ことを、またDavidは同様に高い角運動量に対して valley-to-peak 比が大きくなる²²⁾ことを報告している。

1.3 限界角運動量

重イオン反応に関連して限界角運動量という問題に関心が持たれたのは比較的最近である。Kowalskyらは、Alの²⁰Ne及び¹⁶Oによる複合核形成反応に対して角運動量の値に限界があること²³⁾を観測した。一方、BlannとPlasilは σ_f/σ_R のデータを解析して核分裂が生き残るための限界角運動量について論じている²⁴⁾。彼らの結果をFig.6に示す。

ところでFig.3に説明したように、限界角運動量といっても、複合核が形成し得るための限界値 ($B_f=0$) と、一旦生成した複合核が核分裂せずに生き残るための限界値 ($B_f > B_s$) の2通りの意味がある。Kowalskyらの実験は後者に関連したものであり、Blannらの結果では前者を求めている。Plasilの計算²⁵⁾は、fissility parameter のほぼ全領域にわたって、核子当り10MeVの運動エネルギーを有する重イオンの持ち込む角運動量については限界角運動量を無視することが出来ないことを示している。

限界角運動量に関するやゝ間接的な実験としては、Kalinkinらの報告²⁶⁾がある。彼らは、²³⁸Uの重イオン反応において、入射イオンが重くなる程、直接核分裂の割合が増すことを示した。彼らはまた、核電荷分布と質量分布の分散の中に限界角運動量と非弾性衝突の影響が認められると報告している。

1.4 クーロン励起とクーロン核分裂

入射重イオンと標的核の間に生じる非常に大きなクーロン反撥力は、Fig.3でdistant collisionと名付けられた両者が接触しない場合でも、標的核に大きな変形を与えるだけでなく、標的核を励起状態に押し上げる、いわゆるクーロン励起の現象が認められる。このクーロン励起とその際に与えられた変形とは、当然その後の核分裂過程の可能性を示唆する。もしこのクーロン核分裂が観測可能ならば、それは核分裂核のみならず、核分裂のチャンネルをもかなり明確に規定した実験データを提供し得ることが期待される。すなわち、クーロン核分裂はサドル近傍における low-lying fission channel の構造を調べる有力な手段となることが期待される。

Kelsonは、クーロン核分裂断面積を計算によって求め、断面積が観測にかゝる程度の大きさにな

るのは入射重イオンの原子番号が 50 程度以上の場合であるという結果²⁷⁾を得た。一方, Wilet と Guth²⁸⁾は, クーロン核分裂の dynamic な計算を行って, 核分裂断面積および分裂片の運動エネルギーと角度分布等を求めているが, これらの量がいずれも基底平衡状態とサドル変形の間の変形パラメータの差 $\Delta\beta$ の値に依存するという結果を得た。そのため彼らは将来行われるであろうクーロン核分裂の実験において, この $\Delta\beta$ を求めることが第 1 目標となるべきであると述べている。

大きなクーロン反発力はまた, 標的核に大きな反跳エネルギーを与える。Stelson ら²⁹⁾は, この現象を利用してクーロン励起による励起準位の平均寿命を求めることを試みた。彼らは, ^{117}Sn のクーロン励起のさいに放出される γ 線の line shape のドップラー効果による広がりを測定し, これを理論式と比較することにより, 10^{-12} 秒程度の大きさの平均寿命をかなり明確に定めることに成功した。これは直接, 核分裂に関係した話題ではないが, 励起準位の寿命を求めるという, より一般的な意味で注目される。

1.5 サドル以後の過程

核分裂過程のなかで, サドル近傍の研究は, 主として理論的に比較的よくなされている。これに対して実際に観測されるのは, 勿論, 核分裂片その他の放出粒子である。原子核がサドルを通過してから分裂点に到達するまでの過程は, 理論的には, hydrodynamic な計算^{30,31)}と Two-center model による static なポテンシャル計算³²⁾とがあるが, 実測データは皆無というべき状態である。そのため, 重イオン反応を核分裂の逆過程として位置づけられないかという期待が生れて来る。しかし, 核分裂過程と異なり, 重イオン反応では大きなクーロン障壁を乗り越えなければならないし, 持ち込まれる角運動量もはるかに大きなものとなる。また, 2 つの核の内部励起や変形の様子も両者の間で致命的ともいえる差異を示すであろうと思われる。このような理由から, 重イオン反応を用いて核分裂現象を可逆的な過程として取扱おうという企ては現在のところ見通しは明るくない。しかし, 重イオン反応をサドルから分裂点への移行のある一点と対応させることは可能である。Maher らは, $(^{16}\text{O}+^{16}\text{O})$ 反応における 90° 方向の弾性散乱の励起関数の中に quasi-molecular structure の存在を示唆する構造を見出した³³⁾。この quasi-molecule 構造が入射粒子と標的核の広い組み合わせにおいて実現可能ならば, 核分裂過程の後半について貴重な情報を与えることが期待される。これはまた, 実際に分裂が起る以前に潜在的な分裂片の核的性質が関与するという考察³⁴⁾とも探いつながりを持つであろう。

分裂後の分裂片の挙動のうちで最もよく測られているのは, 角度分布と運動エネルギーである。これらに比べ頻度はかなり落ちるが, その次によく求められているのは, 分裂片の質量の関数としての放出中性子数である。放出中性子数は分裂片に与えられた励起エネルギーに換算される。中性子放出が終ったあとさらに残されたエネルギーは γ 線の形で放出される。 ^{235}U の熱中性子核分裂の場合, この γ 線放出エネルギー E_γ は $(72 \pm 0.8) \text{ MeV}$ ³⁵⁾である。これに対して, 理論的には, 従来 4.9 MeV という値³⁶⁾が得られていた。Thomas と Grover は, この差異を Yrast level³⁷⁾を考慮することによって取り除くことが出来た³⁸⁾。

1.6 三体核分裂

従来, 三体核分裂は, 2 つの主たる分裂片の他に中性子以外の軽い粒子, 最も普通には α 粒子, が同時に放出される過程を意味していた。これに対し, Muga ら³⁹⁾は, ^{235}U の熱中性子核分裂や ^{252}Cf の自発核分裂のさいに, 3 つのほぼ同じ大きさの破片に分れる過程が, 観測にかかる程度の確率で起ることを報告した。しかし, Stoenner らは, Muga の型の三体核分裂からの生成核が観測されず,

その検出限界はMugaらの与えた断面積をはるかに下まわると結論している⁴⁰⁾。

重イオン反応では、このような三体核分裂が、軽い入射粒子の場合に比べて、はるかに大きな確率で起ることが見出された。重イオン誘起三体核分裂に対しては、Muzychkaらがcascade fission mechanismを提唱⁴¹⁾している。彼らはこの機構に基づいて三体核分裂の励起関数を複合核の Z^2/A の若干の値に対して与えた。彼らの計算値を実測値⁴²⁻⁴⁴⁾と比較する形でFig.7に示す。重イオン三体核分裂断面積はカスケード核分裂モデルでよく説明される。

Fig.7には重イオン反応以外のデータ^{39,45)}も加えてある。これらの実測値に対しては、カスケード核分裂モデルの与える断面積の方が小さくなると思われ、その限りではStoennerらの結果と符合する。しかし、Mugaらによれば、3つの分裂片が同時に互いに 120° 方向に放出されるとしているので、非対称性の大きい二体分裂に続いて大きい方の分裂片がさらに2つに割れるというカスケード分裂機構とは明らかに違うようである。反応機構が異なれば事情は違ってくる。

重イオン三体核分裂とそれ以外の三体核分裂で、分裂機構は異なるのかどうか、もし異なるとすれば両者は互いにどのような関係にあるのかといった興味ある問題は今後に残された問題である。

2. 核種の合成

2.1 中性子過剰の軽い核の合成

中性子過剰の軽い核を合成するのはかなり困難である。考えられる方法としては、(i)高中性子束の雰囲気の中で引き続いて中性子吸収をさせる、(ii) $^6\text{Li}(n,t)^4\text{He}$ 反応で発生する t を使つての (t,p) 反応を利用する、(iii)核子移行反応を利用する、(iv)中重核の核分裂生成核の中から取り出す、等が挙げられるが、副次反応や収量その他の点で問題がある。Lefort⁴⁶⁾はこれらの原子核を合成する手段として多重核子移行反応に着目した。彼によれば、考え得る反応として、(i)標的核から若干の中性子を引き抜く反応、(ii)結果として入射イオンより中性子過剰核を生成する(入射イオン-xp+yn)型の複雑な核子交換反応、(iii)標的核への数ケの陽子の引き抜き反応の3つがあり、Volkovらの仕事⁴⁷⁾を中心とする最近の実験結果が紹介されている。たゞ、これらの方法では、生成した中性子過剰核はターゲット中にとゞまらずそのまま外に飛び出してしまふので、製造という観点に立った場合には収集の問題に工夫が必要となる。

2.2 β -Stability line から遠くはずれた中性子欠損核の合成

中性子欠損核の合成には重イオン反応が極めて有力な手段である。WinnらはNuclear Chartの全領域にわたって(HI, xn)型の反応の断面積を計算⁴⁸⁾した。彼らの結果をFig.8に示す。Fig.8の中には、各生成核種についての励起関数の最大値を陽子数と中性子数の二次元平面内の等高線で表わした図が挿入されている。こゝで、全反応断面積の計算には拋物線ポテンシャルが用いられ、生成複合核の崩壊過程の解析はWeisskopf-Ewing model⁴⁹⁾に従って行われている。彼らの結果で注目すべき点は、複合核が中性子欠損核である場合には最初xp過程が圧倒的に起ったあとでn, p, α 等が放出され、 β -stability lineの附近に位置する複合核の場合には最初はほとんどxn過程で占められたあとpまたは α 放出が起ることである。いずれにしても最終的には β -stability lineから遠くはずれた核になる。

重イオン誘起複合核に対比するものとして重イオン誘起破碎反応が挙げられる。Fig.9にはOganessianらのデータ⁴⁾を示す。

2.3 新元素の合成

新元素合成は、多くの研究者特に核化学者にとって興味あるテーマであり、1950年代半ばから1960年代の終りにかけて殊に強い関心が持たれた。ハイライトは102番元素から105番元素にかけてのDubnaとBerkeleyの先陣争いであった。こゝでは、そのうちの104番元素発見の過程を、両グループの業績⁵⁰⁻⁵⁵⁾をTable 1に対比させて示す。なお、102番元素についてはFlerov⁵⁶⁾が、103番元素についてはDonetsら⁵⁷⁾が総説をあらわしている。

2.4 核分裂性核異性体の発見

新元素合成につづくトピックは、自発核分裂性核異性体の発見⁵⁸⁾であった。そして、この異性体は、Strutinskiiによってshape isomerであることが示された⁵⁹⁾。彼の導入したshell correctionの手法⁶⁰⁾は、その後広く受け入れられ、幾多の貴重な成果⁶¹⁾を挙げるに到った。核分裂性核異性体の発見は核物理学の分野で新しい視野を開いたといえよう。

核分裂性核異性体の発見は重イオン反応でなされたが、軽い入射粒子を用いる方がむしろ有利である。全体的な展望は総説⁶²⁾にゆずるとして、こゝでは歴史的な核異性体である^{242m}Amについてその研究⁶³⁻⁶⁷⁾のあとをたどってTable 2にまとめておく。

2.5 超重元素

未知の元素を求めんとして原子番号を1つずつ上げようという試みを続ける一方で、我々は測定にかゝる程度の寿命を有する原子核が存在する元素の上限はどの辺であろうかという疑問に直面する。従来の核分裂の理論によれば、そのような限界点は平衡状態にある原子核自体が核分裂に対して不安定となる境界点であるとされていた⁶⁸⁾。そして、この上限値は実験的にかなり明確に求められており、原子番号 Z と質量数 A について、 $Z^2/A \approx 48$ ^{69,12)}である。

しかし、現在では液滴的な核分裂障壁が完全に消滅してしまっている核でも、殻効果のために障壁が現われる可能性があること⁵⁹⁾が知られている。そして、そのような可能性の最も高い核は、 $Z=114$, $N=184$ の二重魔法数の周辺に見出されることが期待され、また計算の結果⁷⁰⁾もそれを裏付けている。これがいわゆる超重元素存在の予言であり、俄然多くの核物理、核化学の研究者の関心を集めるようになった。

超重核の探索は、天然に存在する鉱物等の中に求める方法と、加速器を用いて合成する方法の二通りの方法で行われているが、現在までのところいずれも肯定的な結果は得られていない。前者については、Thompsonら⁷¹⁾が精力的な探索を行い、これと他の結果とをまとめた報告がある。また、後者の方法についても、Thompsonらによっていろいろな可能性が検討されている⁷²⁾が、本稿ではこれまでに試みられた重イオン反応を利用する探索の結果⁷³⁻⁷⁹⁾をTable 3にまとめておく。

Flerovらは、重イオン誘起核分裂からの生成物の中に超重核を見出す可能性に着目した⁸⁰⁾⁾。Fig. 10は彼らの論文から引用したものであり、そこでは $^{238}\text{U} + ^{12}\text{C}$, ^{20}Ne , ^{40}Ar の3つの反応から求めた質量分布曲線と、それらを ^{84}Kr と ^{136}Xe の場合に外挿したものが示されている。Fig. 10の結果から、 $^{238}\text{U} + ^{136}\text{Xe}$ の反応を利用すれば、超重核が0.1mb程度の断面積で生成することが期待される。

む す び

1960年代を中心として実に多岐にわたる重イオン核化学の実験が試みられ、幾多の興味ある結果と今後の可能性が見出された。60年代の終り以後、重イオン研究の意義が見直されると共に、理論の面から幾つかの興味ある指摘がなされ、将来行われるべき実験に貴重な示唆を与えている。重イオン核化学の研究は、今まさに本格的なスタートがなされようとしているといえよう。

References

- 1) Sikkeland T., Haines E. L. and Viola Jr., V. E.: Phys. Rev. 125, 1350 (1962)
- 2) 馬場 宏, 馬場澄子: 第17回放射化学討論会, 東京 (1973)
- 3) Blann M.: Phys. Rev. 123, 1356 (1961)
- 4) Oganesian Yu. Ts. and Penionzhkevitch Yu. E.: J. Phys. (Paris) 31, 259 (1970)
- 5) Hiskes J. R.: UCRL-9275, thesis (1960)
- 6) Pik-Pichak G. A.: Zhur. Eksptl. i Teor. Fiz. 42, 1294 (1962)
- 7) Gilmore J.: UCRL-9304, thesis (1960); Gilmore J., Thompson S. G. and Perlman I.: Phys. Rev. 128, 2276 (1962)
- 8) Cohen S., Plasil F. and Swiatecki W. J.: paper F-1, Proc. of the Third Conf. on reactions between complex nuclei, Asilomar, Calif. (1963); Swiatecki W. J.: J. Phys. (Paris) Colloq. 33, No8-9, C5-45 (1972)
- 9) Sperber D.: Phys. Rev. 130, 468 (1963)
- 10) Obukhov A. I., Perfilov N. A., Shigaev O. E., and Tkachenko E. G.: Yadern. Fiz. 11, 977 (1970)
- 11) Pik-Pichak G. A.: "Fizika Deleniya Atomnykh Yader", p116, Moscow, Gosatomizdat (1962)
- 12) Sikkeland T.: Phys. Rev. 135, B669 (1964)
- 13) Cohen S. and Swiatecki W. J.: Ann. Phys. 22, 406 (1963)
- 14) Vandebosch R. and Warhanek H.: TID-16939 (1962)
- 15) Viola Jr., V. E. and Sikkeland T.: Phys. Rev. 130, 2044 (1963)
- 16) Sikkeland T.: Phys. Lett. 31B, 451 (1970)
- 17) Viola Jr., V. E., Thomas T. D. and Seaborg G. T.: Phys. Rev. 129, 2710 (1963)
- 18) See, for example, Nix J. R.: Ann. Rev. Nucl. Science 22, 65 (1972)
- 19) Vandebosch R.: RLO-1388-204 (1972)
- 20) Kapoor S. S., Baba H. and Thompson S. G.: Phys. Rev. 149, 965 (1966)
- 21) Ford G. P. and Leachman R. B.: Phys. Rev. 137, B826 (1965)

- 22) David M. E.: Thesis, Lafayette, Ind., Purdue Univ. (1963)
- 23) Kowalsky L., Millar J. M., D'Auria J. and Jodogue J. C.: pVIII41 of Proc. of Int. Topical Conf. on nuclear track registration in insulating solids and applications, Vol 2, France (1969)
- 24) Blann M. and Plasil F.: Phys. Rev. Lett. 29, 303 (1972)
- 25) Plasil F.: J. Phys. (Paris) Colloq. 33, No5, 51 (1972)
- 26) Kalinkin B. N. and Permyakov V. P.: JINR-P4-6149 (1971)
- 27) Kelson I.: Phys. Lett. 32B, 445 (1970)
- 28) Wilets L. and Guth E.: Phys. Rev. 156, 1349 (1967)
- 29) Stelson P. H., Milner W. T., McGowan F. K., Robinson R. L. and Raman S.: Nucl. Phys. A190, 197 (1972)
- 30) Nix J. R. and Swiatecki W. J.: Nucl. Phys. 71, 1 (1965); Nix J. R.: Nucl. Phys. A130, 241 (1969)
- 31) Hasse R. W.: Nucl. Phys. A118, 577 (1968); paper IAEA-SM-122/28, Proc. of the Second IAEA Symposium on physics and chemistry of fission, IAEA, Vienna (1969)
- 32) For example, Maruhn J. and Greiner W.: Z. Phys. 251, No5, 431 (1972); Slavov B., Galonska J. E. and Faessler A.: Phys. Lett. 37B, 483 (1971); Mustafa M. G., Mosel U. and Schmitt H. W.: Phys. Rev. Lett. 28, 1536 (1972)
- 33) Maher J. V., Sachs M. W., Siemssen R. H., Weidinger A. and Bromley D. A.: Phys. Rev. 188, 1665 (1969)
- 34) Schmitt H. W.: paper IAEA-SM-122/122, Proc. of the Second IAEA Symposium on physics and chemistry of fission, IAEA, Vienna (1969); Mosel, U. and Schmitt, H. W.: Phys. Rev. C4, 2185 (1971)
- 35) Maienshein F. C., Peelle R. W., Zobel W. and Love T. A.: paper P/670, Proc. of the Second Int. Conf. on the peaceful uses of atomic energy, Vol 15, IAEA, Geneva (1958)
- 36) Terrell J.: Phys. Rev. 113, 527 (1959)
- 37) Grover J. R. and Gilat J.: Phys. Rev. 157, 802 (1967)
- 38) Thomas T. D. and Grover J. R.: Phys. Rev. 159, 980 (1967)
- 39) Muga M. L., Bowman H. R. and Thompson S. G.: Phys. Rev. 121, 270 (1961); Muga M. L.: Phys. Rev. Lett. 11, 129 (1963); paper SM-60/73, Proc. of the Symposium on physics and chemistry of fission, IAEA, Salzburg (1965); Muga M. L., Rice C. R. and Seldacek W. A.: Phys. Rev. Lett. 18, 404 (1967)

- 40) Stoenner R. W. and Hillman M.: Phys. Rev. 142, 716 (1966)
- 41) Muzychka Yu. A., Oganessian Yu. Ts., Pustyl'nik B. I. and Flerov G. N.: Yadern. Fiz. 6, 306 (1967)
- 42) Brandt R.: Angew. Chem. Int. Ed. Engl. 10, 890 (1971)
- 43) Price P. B., Fleischer R. L., Walker R. M. and Hubbard E.L.: paper F-2, Proc. of the Third Conf. on reactions between complex nuclei, Asilomar, Calif. (1963)
- 44) Fleischer R. L., Price P. B. and Walker R. M.: Phys. Rev. 143, 943 (1966)
- 45) Rosen L. and Hudson A. M.: Phys. Rev. 78, 533 (1950)
- 46) Lefort F.: J. Phys. (Paris) Colloq. 33, No8-9, C5-73 (1972)
- 47) Volkov V. V., Artukh A. G. et al.: Nucl. Phys. A126, 1 (1969); ibid. A160, 511 (1971); ibid. A168, 321 (1971); ibid. A176, 284 (1972)
- 48) Winn W. G., Gutbrod H. H. and Blann M.: Nucl. Phys. A188, 423 (1972)
- 49) Weisskopf V. F. and Ewing D. H.: Phys. Rev. 57, 472 (1940)
- 50) Flerov G. N., Oganessian Yu. Ts., Lobanov Yu. V., Kuznetsov V. I., Druin V. A., Perelygin V. P., Gavrilov K.A., Tret'yakova S. P. and Plotko V. M.: At. Energ. 17, 310 (1964)
- 51) Oganessian Yu. Ts., Lobanov Yu. V., Tret'yakova S. P., Lazarev Yu. A., Kolesov I. V., Gavrilov K. A., Plotko V. M. and Poluboyarinov Yu. A.: At. Energ. 28, 393 (1970); ibid. 29, 243 (1971)
- 52) Ghiorso A., Nurmia M., Harris J., Eskola K. and Eskola P.: Phys. Rev. Lett. 22, 1317 (1969)
- 53) Ghiorso A., Nurmia M., Eskola K. and Eskola P.: Phys. Lett. 32B, 95 (1970)
- 54) Druin V. A., Korotkin Yu. S., Kharitonov Yu. P., Krashonkin V. I., Lobanov Yu. V., Nadkarni D. M. and Tret'yakova S. P.: JINR-E7-7023 (1973)
- 55) Nurmia M.: "Nuclear Reactions induced by Heavy Ions", p666, Amsterdam, North-Holland (1970)
- 56) Flerov G. N.: Ann. Phys. 2, 311 (1967)
- 57) Donets E. D., Druin V. A. and Mikheev V. L.: Ann Phys. 3, 331 (1968)
- 58) Polikanov S. M., Druin V. A., Karnaukhov V. A., Mikheev V. L., Pleva A. A., Skobelev N. K., Subbotin V. G.,

- Ter-akop'yan G. M. and Fomichev V. A.: Zhur. Eksptl. i Teor. Fiz. 42, 1464 (1962)
- 59) Strutinskii V. M.: Nucl. Phys. A95, 420 (1967)
- 60) Strutinskii V. M.: Yadern. Fiz. 3, 614 (1966); Nucl. Phys. A122, 1 (1968)
- 61) Bjeornholm S. and Strutinskii V.M.: Nucl. Phys. A136, 1 (1969); Strutinskii V. M. and Bjeornholm S.: pp431-48 of Nuclear Structure, Dubna Symposium, 1968, Vienna, IAEA (1968); Michaudon, A.: CONF-720901, p1087 (1972)
- 62) 竹腰英子: JAERI-1221, P71 (1972)
- 63) Pereygin V. P., Almazova S. P., Gvozdev B. A. and Chuburkov Yu. T.: Zhur. Eksptl. i Teor. Fiz. 42, 1472 (1962)
- 64) Pereygin V. P. and Tret'yakova S. P.: Zhur. Eksptl. i Teor. Fiz. 45, 863 (1963)
- 65) Flerov G. N., Polikanov S. M., Gavrilov K. A., Mikheev V. L., Pereygin V. P. and Pleva A. A.: Zhur. Eksptl. i Teor. Fiz. 45, 1396 (1963)
- 66) Linev A. F., Markov B. N., Pleva A. A. and Polikanov S. M.: Nucl. Phys. 63, 173 (1965)
- 67) Gangrskii Yu. P., Gvozdev B. A., Markov B. N., Polikanov S. M. and Jungclaussen H.: Yadern. Fiz. 5, 535 (1967)
- 68) Bohr N. and Wheeler J. A.: Phys. Rev. 56, 426 (1939)
- 69) Burnette D. S., Gatti R. C., Plasil F., Price P. B., Swiatecki W. J. and Thompson S. G.: Phys. Rev. 134, B952 (1964)
- 70) See, for example, ref. 18 or 46
- 71) Cheifetz E., Jared R. C., Giusti E. R. and Thompson S. G.: Phys. Rev. C6, 1348 (1972)
- 72) Thompson S. G. and Tsang C. F.: Science 178, No.4065, 1047 (1972)
- 73) Sikkeland T.: Phys. Lett. 27B, 277 (1968)
- 74) Thompson S. G.: Talk given at the APS Meeting, Miami (1968); Nurmia M., Sikkeland T., Silva R. and Ghiorso A.: Phys. Lett. 26B, 78 (1967)
- 75) Oganesian Yu. Ts., Orlova O. A., Penionshkevich Yu. E., Gavrilov K. A. and Kim D. E.: JINR-P7-6300 (1972)
- 76) Flerov G. N., Karamian S. A., Penionshkevich Yu. E., Tret'yakova S. P. and Shelaev I. A.: JINR-P7-6262 (1972)

- 77) Bimbot R., Deprun C., Gardés D., Gauvin H., LeBeyec Y., Lefort M. and Péter J.: Nature 234, 215 (1971)
- 78) Westgaard L., Erdal B. R., Hansen P. G., Kugler E., Sletten G., Sundell S., Fritsch T., Henrich E., Theis W., Wolf G. K., Camplan J., Klapisch R., Meunier R. and Poskanzer A. M.: Nucl. Phys. A192, 517 (1972)
- 79) Colombani P., Gatty B., Jacmart J. C., Lefort, M., Peter J., Riou M., Stéphan C. and Tarrago X.: Phys. Lett. 42B, 208 (1972)
- 80) Flerov G. N. and Oganesian Yu. Ts.: JINR-P7-6523 (1972)

Table 1 Study of the element 104 at Dubna and Berkeley

Dubna			Berkeley		
$^{242}\text{Pu} + ^{22}\text{Ne} \rightarrow ^{261-259}104$	$\tau_{\text{sp.f.}} = 0.3 \text{ s}$	} ref. 50	$^{249}\text{Cf} + ^{12}\text{C} \rightarrow ^{257}104$	$\tau_{1/2} = (4.5 \pm 1.0) \text{ s}$	} ref. 52
$^{238}\text{U} + ^{22}\text{Ne} \rightarrow \text{no}$			$^{249}\text{Cf} + ^{13}\text{C} \rightarrow ^{259}104$	$\tau_{1/2} = 3 \text{ s}$	
$^{242}\text{Pu} + ^{20}\text{Ne} \rightarrow \text{no}$			$^{249}\text{Cf} + ^{12,13}\text{C} \rightarrow ^{258}104 ?$	$\tau_{1/2} = 11 \text{ ms}$	
$^{242}\text{Pu} + ^{22}\text{Ne} \rightarrow ^{260}104,$	$\tau_{\text{sp.f.}} = (0.1 \pm 0.05) \text{ s}$	ref. 51	$^{248}\text{Cm} + ^{18}\text{O} \rightarrow ^{261}104$	$\tau_{1/2} = 65 \text{ s}$	} ref. 53
$^{246}\text{Cm} (>99\%)$	$+ ^{18}\text{O} \rightarrow ^{259}104$	$\tau = (3.2 \pm 0.8) \text{ s}$	$^{248}\text{Cm} + ^{16}\text{O} \rightarrow ^{259}104$	$\tau_{1/2} = 3 \text{ s}$	
$^{242}\text{Cm} (0.5\%)$			$^{249}\text{Cf} + ^{12,13}\text{C} \rightarrow ^{258}104$	$\tau_{1/2} = 4 \text{ ms}$	
		ref. 54	$^{248}\text{Cm} + ^{16,18}\text{O}$	$\rightarrow \text{no } 0.3 \text{ s activity}$	} ref. 55
			$^{253-255}\text{Eu} + ^{10,11}\text{B}$		

Table 2 Spontaneous fissioning isomer ^{242m}Am

Reaction	$\tau_{1/2}$	Remarks	Reference
$^{238}\text{U} + ^{22}\text{Ne}$	$(20 \pm 10)\text{ms}$	$Z \leq 100$	58
$^{238}\text{U} + ^{16}\text{O}$	$(13 \pm 8)\text{ms}$		
$^{232}\text{Th} + ^{22}\text{Ne}$	—	$\sigma_{\text{Th}} \leq \sigma_{\text{U}+\text{O}}^{30}$	
$^{238}\text{U} + ^{22}\text{Ne}$	$(17 \pm 7)\text{ms}$	135 MeV-Ne	63
$^{238}\text{U} + ^{16}\text{O}$	$(14.3 \pm 1.9)\text{ms}$	$(14 \pm 1)\text{ms}$	64
$^{238}\text{U} + ^{20}\text{Ne}$	$(9.7 \pm 0.8)\text{ms}$		
$^{238}\text{U} + ^{22}\text{Ne}$	$(12.9 \pm 2.1)\text{ms}$		
$^{238}\text{U} + ^{11}\text{B}$	$(15.6 \pm 2.8)\text{ms}$	$Z \leq 97$	
$^{242-240}\text{Pu} + \alpha$	$(12.6 \pm 1.1)\text{ms}$	$Z \leq 95, A \leq 242$	65
$^{243, 241}\text{Am} + \alpha$		39.6 MeV- α	
$^{239}\text{Pu} + \alpha$			
$^{238}\text{U} + \alpha$	—		
$^{242-240}\text{Pu} + \text{d}$	$(14 \pm 2)\text{ms}$	19.8 MeV-d	
$^{243}\text{Am}(n, 2n)^{242}\text{Am}$	$(13.1 \pm 0.1)\text{ms}$		66
$^{243}\text{Am}(^{22}\text{Ne}, ^{23}\text{Ne})^{242}\text{Am}$			67

Table 3 Results of the heavy ion experiments for the search of superheavy elements

Reaction	Remarks	Reference
$^{238}_{92}\text{U} + ^{40}_{18}\text{Ar}$	fission fragments from $^{278}_{110}(\text{?})$	73
$^{248}_{96}\text{Cm} + ^{40}_{18}\text{Ar} \rightarrow ^{288-x}_{114} + xn$	$\sigma < 5 \times 10^{-32} \text{cm}^2$ for $\tau > 10^{-9} \text{s}$	74
$^{238}_{92}\text{U} + ^{136}_{54}\text{Xe}$	fission fragments from $^{374}_{146}(\text{?})$	75
$^{238}_{92}\text{U} + ^{66}_{30}\text{Zn} \rightarrow ^{304-x}_{122} + xn$	$\sigma < 5 \times 10^{-30} \text{cm}^2$ for $\tau > 10^{-8} \text{s}$	76
$^{232}_{90}\text{Th} + ^{84}_{36}\text{Kr} \rightarrow ^{316-x}_{126} + xn$	high energy α from $^{316-x}_{126}(\text{?})$	77
$^{238}_{92}\text{U} + \text{p}(\text{GeV}) \rightarrow \text{build-up in target} \rightarrow ^{290}_{112}$	$\sigma \lesssim 2 \times 10^{-16} \text{b}$ for $\tau_{1/2} = 1 \text{month}$	78
$^{208}_{82}\text{Pb} + ^{84}_{36}\text{Kr}$	$\sigma \lesssim 1 \mu\text{b}$	79
$^{232}_{90}\text{Th} + ^{84}_{36}\text{Kr}$	$\sigma \lesssim 5 \mu\text{b}$	79
$^{238}_{92}\text{U} + ^{84}_{36}\text{Kr}$	$\sigma \lesssim 80 \mu\text{b}$	79

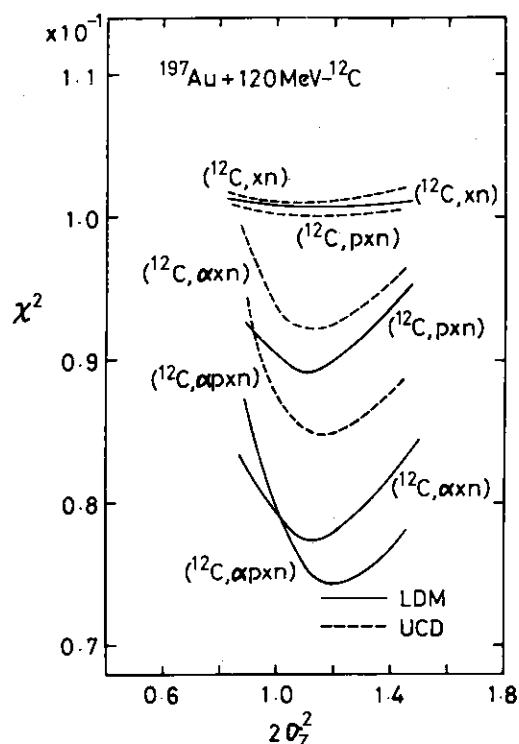


Fig. 1 χ -square analysis of the radiochemical yield data in the fission of gold with 120-MeV carbons³⁾. The χ^2 values are plotted versus the dispersion in the charge distribution. Two types of the charge distribution are considered; uniform charge distribution (UCD) and distribution computed with a liquid drop model (LDM)²⁾. Various compound decay modes considered are self-explanatorily given in the figure.

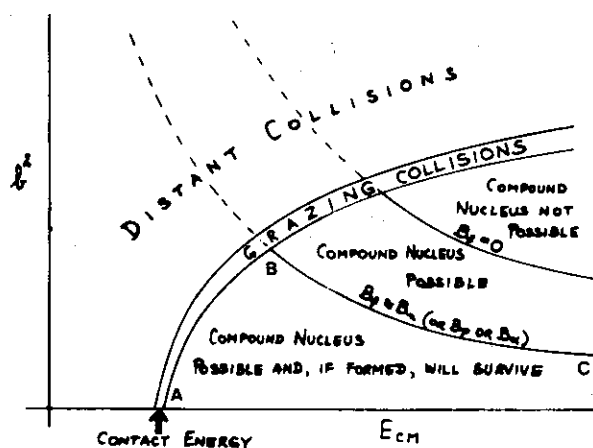


Fig. 3 A classification of nuclear collisions in the b vs. E plane. Distant collisions give place to close collisions along a diffuse region of grazing collisions. Close collisions are subdivided into three regions, as shown (from ref. 8).

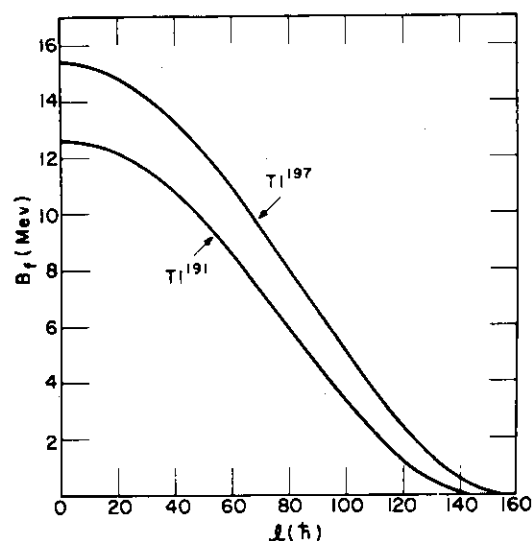


Fig. 2 The barrier for fission of ^{191}Tl and ^{197}Tl as a function of angular momentum (from ref. 7).

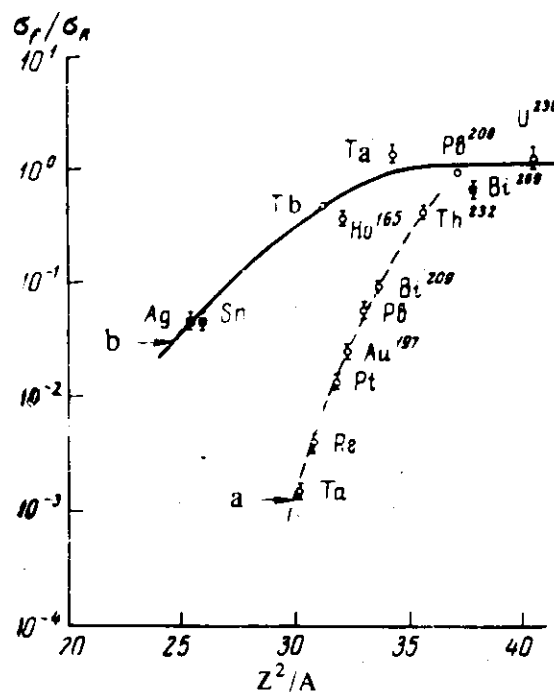


Fig. 4 Fissility σ_f/σ_R versus the parameter Z^2/A of the compound nucleus in 280-MeV proton bombardments of nuclei from Th to Ta (curve a) and in Ne ion bombardments (curve b) (from ref. 10).

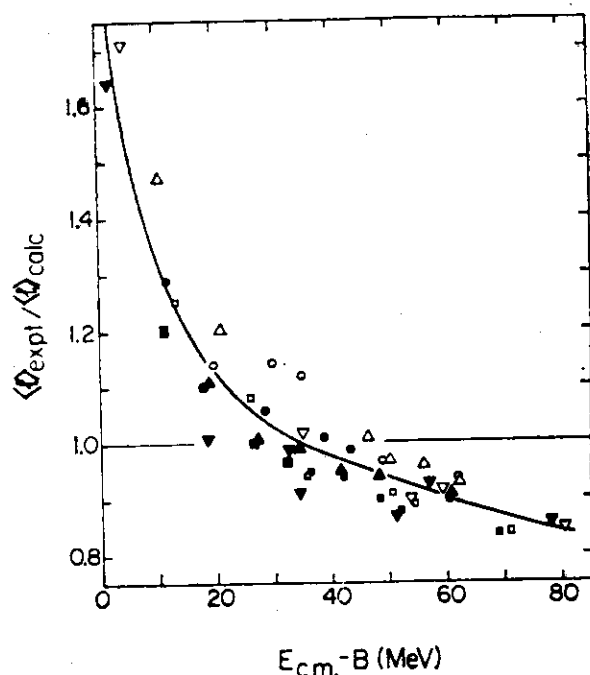


Fig. 5 Ratio of experimental to calculated average angular momentum plotted against center-of-mass kinetic energy of the projectile in excess of the Coulomb barrier (from ref. 17)

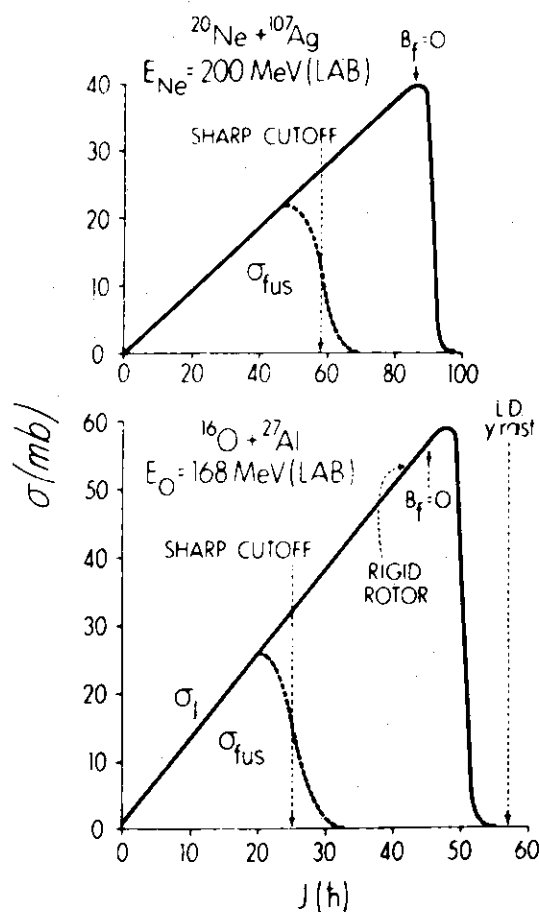


Fig. 6 Calculated cross section surviving fission as a function of angular momentum for two systems. The solid curve represents the partial reaction cross sections versus angular momentum. The dashed curve represents the cutoff imposed by fission as given by the calculations. Also indicated are the sharp-cutoff J value (which gives the same fusion cross section as the calculated result), and the J values for which the fission barrier becomes zero, for which the rotational energy of a rigid rotor equals the excitation energy, and for which the rotational energy of a rotating drop at equilibrium deformation equals the excitation energy. The latter two values are not shown for the $^{20}\text{Ne} + ^{107}\text{Ag}$ system since both values are at J values higher than those populated in the reaction (from ref. 24).

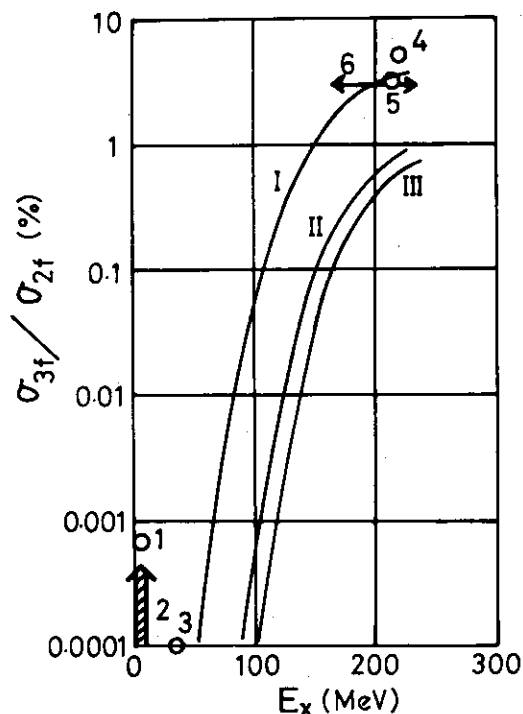


Fig. 7 Calculated and observed ternary fission probability as a function of the excitation energy E_x . Solid curves represent calculated values of $\sigma_{3f} / \sigma_{2f}$ based on the cascade fission mechanism, for different Z^2/A values: I. 43.5, II. 41 and III. 40 (from ref. 41). Open circles and arrows represent observed values for systems with various Z^2/A values: 1. 35.8^{45} , 2. $35.8 - 38.239$, 3. 38.2^{42} , 4. 40.4^{43} , 5. 43.5^{44} , 6. 43.5^{43} .

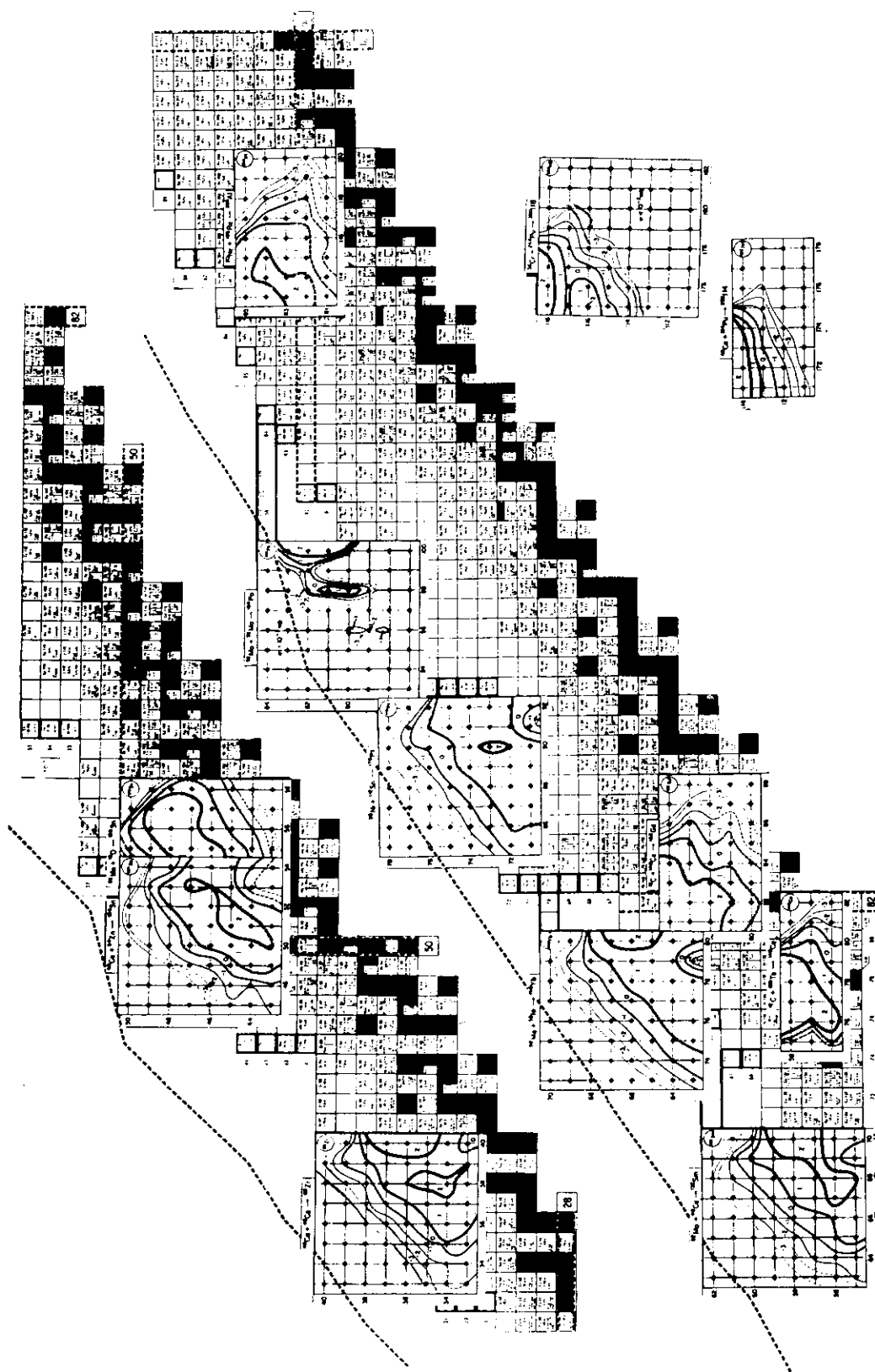


Fig. 8 Contour diagrams for decay of compound nuclei as indicated. The back squares represent β -stable isotopes, the dashed lines represent the doubly even proton drip line from the Myers-Swiatecki mass formula. Contour diagrams in the lower right-hand corner are for reactions to produce "superheavy elements" as indicated. The closed shell numbers are indicated on the chart of the nucleides to aid in identifying the mass regions (from ref. 48).

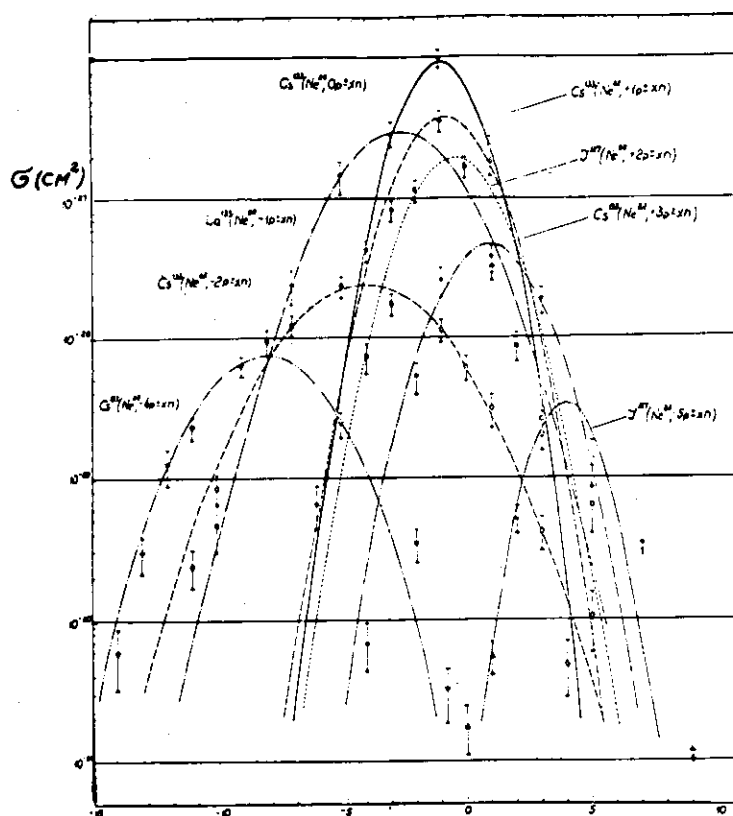


Fig. 9 Yields of various isotopes obtained in the multi-nucleon transfer reactions (the types of the reactions being indicated by the curves) in bombardments of ^{127}I , ^{133}Cs and ^{129}La with 170-MeV ^{22}Ne (from ref. 4).

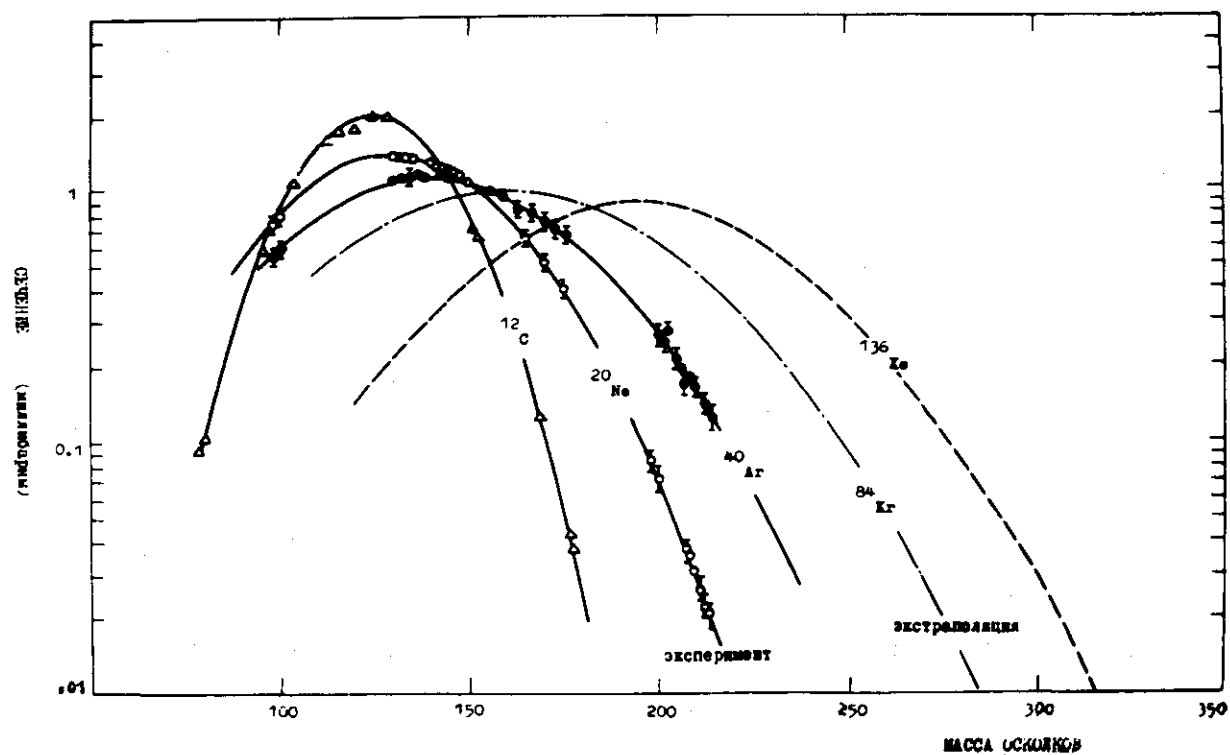


Fig.10 Mass distribution of the fission fragments prior to the neutron emission from the bombardment of ^{238}U with ^{12}C , ^{20}Ne , ^{40}Ar (experiment) and ^{84}Kr , ^{136}Xe (extrapolated calculation) (from ref. 80).

1.4 重イオンによるクローン励起

日本原子力研究所 杉山 康 治
(茨城県那珂郡東海村)

Coulomb Excitation with Heavy Ions

Yasuharu SUGIYAMA
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Ibaraki)

Some of recent experimental results on Coulomb excitation are reviewed. In this review some of the difficulties with the method are stressed.

1. はじめに

原子核を衝突しあう2つの原子核の電磁的相互作用のみによって励起し、その励起される確率等の値から原子核の励起状態の性質を調べようとするのがクローン励起の実験のねらいである。その特徴は相互作用が純粋に電磁的であるため不確定の少ない取り扱いができ、精度の良い原子核の情報が引き出せることにある。2個の粒子間の相互作用が純粋に電磁的であるための条件として2個の粒子間の最接近距離を R とすると

$$R \geq R_1 + R_2 + S$$

という条件が必要である。ここで R_1 , R_2 は各々の粒子の核半径、 S は2個の粒子の相対する表面間の距離であり最近の実験から S は少なくとも5 fm なければならないことが判明している。¹⁾

クローン励起に対する理論的取り扱いとしては主に semi-classical な近似が使われてきた。この近似は双曲線上を動く point charge の time dependent な電磁場によって標的核が励起されるとするもので、その断面積は次のように書ける。

$$d\sigma_f = P_{i \rightarrow f} d\sigma_R \quad (1)$$

ここで $d\sigma_R$ は Rutherford 散乱の断面積であり $P_{i \rightarrow f}$ は initial 状態から final 状態への遷移確率である。この近似は入射粒子の de Broglie 波長が2粒子間の最接近距離に比べて十分短かく原子核の励起エネルギーが入射粒子の入射エネルギーに比べて十分低い時に成り立つと言われるが実際は後で述べるようにこの近似では不足で、量子力学の効果を考慮に入れなければならない。しかしこれからの話をわかりやすくするため semi-classical な近似に基づいて話を進めて行く。

Rutherford 散乱の断面積は計算できるので、(1)式をみてわかるようにクローン励起による断面積を測定する事によって原子核の initial 状態から final 状態への遷移確率の情報を得る事ができる。

実験的にクローン励起の断面積を測る方法に主に2つのタイプがあるが、一つは散乱後の粒子のエネルギー・スペクトラムを測る方法であり、他は散乱後放出される γ 線を測る方法である。前者の特徴は弾性散乱の強さと目的のピークの強さの比を測ればよいので、直接的に遷移確率が求まり

精度の良い結果が得られる。ただエネルギー分解能に限度があり、特に重い入射粒子を用いた場合にはあまり用いられない。これに対して後者は分解能の良い Ge(Li) 検出器が用いられるため重い入射粒子の場合に適しているが、Rutherford 散乱の断面積が同時に測定できないため、 γ 線の yield からクーロン励起の断面積を求めなければならない。その時に種々の correction や calibration が必要とされるため誤差が大きくなる。次にこれまでなされてきた主なクーロン励起の実験例を紹介する。

2.1 第1励起状態 2^+ の電気 4 重極能率の測定

クーロン励起で偶々核の第一励起状態を励起する遷移振幅には Fig.1 に示すように種々の過程がある。この中で左から 2 番目に示されている過程が電気 4 重極能率に関係する量で $E2$ の reduced matrix element $\langle 2^+ || m(E2) || 2^+ \rangle$ を含んでいる。電気 4 重極能率 Q は、 $E2$ reduced matrix element と次の関係になる。

$$e Q = -\frac{4}{5} \sqrt{\frac{2\pi}{7}} \langle 2^+ || m(E2) || 2^+ \rangle \quad (2)$$

この項は 2 次の過程であるが、遷移確率は遷移振幅の 2 乗で与えられるからクーロン励起の断面積には 1 次と 2 次の干渉項として現われる。入射粒子の種類を変えとか、測定角度を変えとか等 2 種類の実験を行う事によって遷移振幅のうち M_{0+2+} , M_{2+2+} (但し M_{0+2+} 等は $\langle 2^+ || m(E2) || 0^+ \rangle$ 等を示す) は実験を fit させるパラメーターとして求まるが、 M_{0+2+} , M_{2+2+} 等は他の実験値等や理論計算によって得られた値を用いなければならない。他の実験からその値がわかっている場合でも遷移振幅の中の他の項に対するその phase はわからない。この phase の未知な事が電気 4 重極能率を求めるこの実験に於いての最大の誤差を引き起す原因の一つになる。この種の実験は実験可能な 160 位の偶々核のうち既に 40 % は 1 度はなされている。Fig.2 には Pittsdlurgh で行われた O_8 , P_1 に対する実験結果を示す。²⁾ 入射粒子には α と ^{16}O が用いられている。図中にある P_4 は $P_4 = M_{0+2+}M_{2+2+} + M_{0+2-}M_{2+2-}$ で与えられその符号が負の時の実験値が黒まる、正の時が白まるで示されている。図からわかるように P_4 が正の時と負の時の値に大きなずれがある。同じく Fig.2 に四角印でメスbauer効果を用いた実験結果が示されているが、この値と Kumar and Baranger の理論計算から導かれる P_4 に対する負の値等を参照すると黒まるの値が最もらしい。そうするとこれは原子核の変形がこの領域では prolate 変形から oblate 変形に変る事を示しており、興味深いものである。

2.2 偶々変形核の基底回転帯に属する 4^+ の $E4$ moment

変形核の回転帯に属する 4^+ 状態への $E4$ moment の値はその状態の持つ Y_4 変形を知る上において重要な値であり希土類元素に対してはかなり詳しく調べられてきた。 4^+ 状態を励起する遷移過程を Fig.3 に示す。入射粒子が重くなると 2 次の過程に対する遷移振幅が急速に増加するためこの種の実験は主に α 粒子等の軽い粒子が用いられてきた。この場合高い励起エネルギーを持った他の状態を通じて来る過程が多いが、できるだけ多くのレベルを考慮に入れる必要があり (例えば ^{152}Sm に対する実験に於いても回転帯の 10^+ 状態までは考慮に入れる必要がある) その状態に対する遷移振幅の値も知る必要がある。遷移振幅の phase は rotational model に基づいて計算されるのであ

まり問題にされていないようである。他に重要になる問題は量子力学の効果の補正であり例えば左から3番目の過程に量子力学の効果の補正をしてやると ^{230}Th の場合E4の reduced matrix element の値が10%変化する。又高い励起状態を経て来る2次の過程に対する量子力学の効果の補正も重要と考えられ、その効果を考慮するとE4 moment の sign が変わることもあり得るが、今の所その効果を取り入れた解析はできないらしい。

Fig. 4 に Oak Ridge で行われた $^{230,232}\text{Th}$, $^{234-238}\text{U}$, $^{238-244}\text{Pu}$, $^{244-248}\text{Cm}$ に対する実験結果を示す。³⁾ この実験は17 MeVの α 粒子を用いて行われた。実線は実験値は結んだものであり点線はNilsson model による理論値である。 β_{40} の値は実験値から直接求められず核の電荷分布を仮定する必要がある。Fig. 4の場合の電荷分布はDeformed Fermi Distribution である。この図の特徴の一つとして β_{40} の実験値の中性子数に対する変化が理論値に対する変化より大きいという事が上げられる。

3. 重イオンビームを用いた時の特徴と問題点

2章で紹介した実験例は主に α 粒子とか ^{16}O を入射粒子として用いた時の場合であるが、さらに重い入射粒子を用いた場合その主な特徴として次の事が上げられる。

イ) 標的核の recoil energy が大きい

ロ) 高い spin 状態まで強く励起される。

イ) の場合の応用例として Fig. 5 に γ 線の doppler broadening に基づいた life time の測定結果を示す。¹⁾ この実験は36 MeVの ^{16}O を ^{93}Nb に衝突させた例であるが、この時 ^{93}Nb の持つ最大の recoil energy は18 MeVであり、この状態で1 MeVの γ 線が受ける最大の energy shift は約20 keVになる。入射粒子が重くなればなるほど recoil energy が大きくなり、より短い life time まで測定可能になる。この種の実験は γ 線の singles spectrum を測定すれば良いので非常に簡単である。解析上問題になるのは recoil 核の物質中での slowing down process (特に range の終りの時)の詳細な知識が不足な事であり、そのため解析結果に不確かさが生じる。

次にロ)の場合に関して述べる。Fig. 6に各種の重イオンを ^{238}U に照射した時クーロン励起によって基底状態に属する回転帯のどの位大きいスピンまでが励起されるかを示してある。⁴⁾ 各粒子の入射エネルギーは各々のクーロン障壁の近傍であるが、図から見てわかるように Pb を照射するとスピンが30位までのレベルがかなり強い確率で励起される。このように重イオンを用いるとこれまで調べられたことがなかった high spin 状態まで研究可能になり、種々の面白い現象が見い出される可能性が出てくるが、その解析には種々の問題点がある。その問題点を説明するため Fig. 7 に重イオンを偶々の変形核に照射した時のクーロン励起による核の励起の sequence の模式図を示す。この図の中でたとえば γ -band に属する 6^+ 状態を取りあげると 6^+ 状態を励起する過程が図を見てわかるようにたくさんある。この 6^+ 状態から同じ band の 4^+ 状態への遷移確率を求めようとする時には 6^+ 状態を励起する他の過程の遷移確率が全部わかっていなければならない。特に high spin 状態になればなるほどその状態を励起する過程が増えるので他の方法等によって前もって個々の過程を調べておく必要がある。もう一つ大きな問題になるのは high spin 状態になるほど量子力学の効果の補正が大きくなる事である。その効果は factor 10 の補正を必要とする場合も出てくる。¹⁾ それ故量子力学を用いた解析 code が必要とされるが、量子力学を用いた coupled channel の計算に於いて4つ以上の level を入れた計算は現在の計算機でも計算時間がかかりすぎて実行可能

でなくなる。より effective な解析 code の出現が待たれているのが現状のようである。

4. おわりに

クローン励起の実験において実験上にもその解析の面にもまだ種々の問題点がある。しかし実イオン加速用の加速器の発達によって加速粒子の種類が増え、加速エネルギーの範囲も広まることになるので、調べたい状態にふさわしい入射粒子とエネルギーを選ぶ事によって、その状態の正確な情報が得られる事が期待される。例えば Th 等の second minimum の所にある状態の知識や高い励起エネルギーを持った状態の正確な知識等も入射粒子と入射エネルギーの適当な組み合わせによって得られる事も期待され今後の重イオン加速器の発展が望まれている。

最後にこれまで発表されたクローン励起に関する優れたレビューが種々あり、より詳しい知識を望む方はそれらを参照にされたい。^{1,4~6)}

References

- 1) McGowan F. K.: Proc. of Heavy Ion Summer Study, Oak Ridge, 1972, (CONF-720669) p.38
- 2) Pryor R. J. and Saladin J. X.: Phys. Rev. C1, 1573 (1970)
- 3) Bemis C. E. et al.: Phys. Rev. C8, 1466 (1973)
- 4) Diamond R. M.: Proc. Conf. on Nuclear Moments and Nuclear Structure, Osaka, 1972, p.118
- 5) Greenberg J. S.: Proc. Symp. on In-Beam Spectroscopy with Heavy Ions, Saitama, 1972, (IPCR Cyclotron Progress Report Supplement 2) p.23
- 6) Nakai K.: Report of JAERI-Rikagaku Kenkyusho Co-organized Meeting on Heavy-Ion Science, 1972, (JAERI 1221) p.125

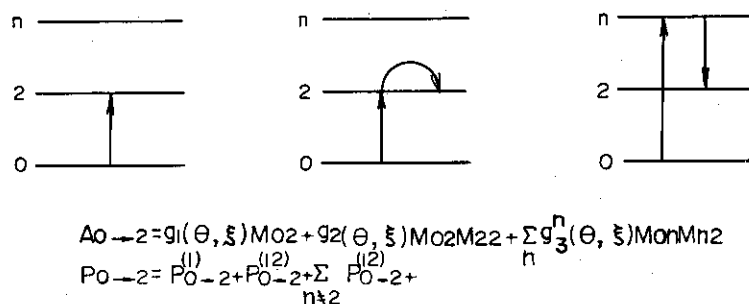


Fig. 1 Excitation of 2^+ states in even-even nuclei

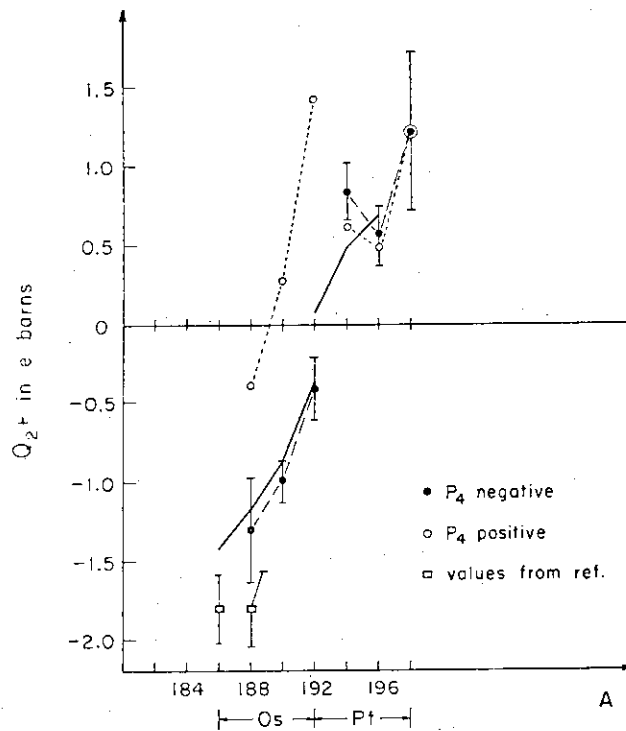


Fig. 2 Experimental values and theoretical predictions of Q_{2+} . The solid curve connects values predicted by Kumar and Baranger, the dashed line connects experimental values for P_4 negative, and the dotted line connects values for P_4 positive. Only the errors on the P_4 negative solution are shown.

$$A_{41} = g_1(\theta, \xi) M_{04}$$

$$g_2(\theta, \xi) M_{04} M_{44}$$

$$g_3(\theta, \xi, \xi_1, \xi_2) M_{02} M_{24}$$

$$\sum_n g_n(\theta, \xi, \xi_1, \xi_2) M_{0n} M_{n4}$$

$$g_5(\theta, \xi, \xi_1, \xi_2) M_{02} M_{24}'$$

$$P_4 = \left| \sum_i A_{4i} \right|^2 = P_4^{(11)} + P_4^{(12)} + P_4^{(22)}$$

Fig. 3 Excitation of 4_1^+ states in even-even deformed nuclei⁵⁾.

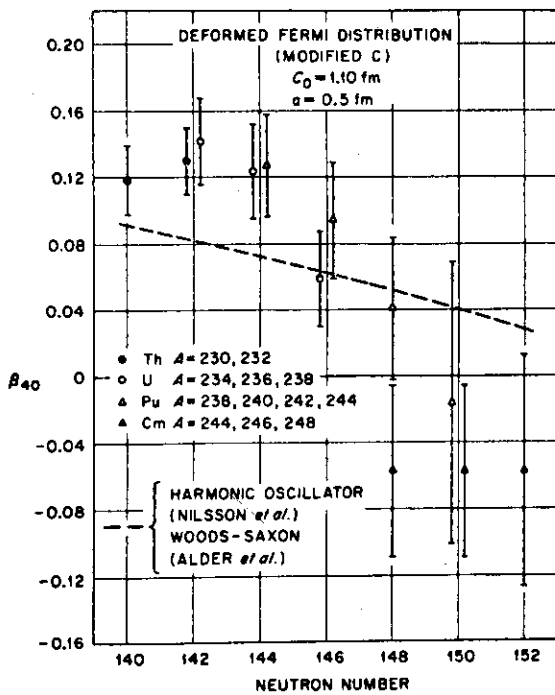


Fig. 4 Experimental and theoretical deformation parameters β_{40} of actinide nuclei³⁾.

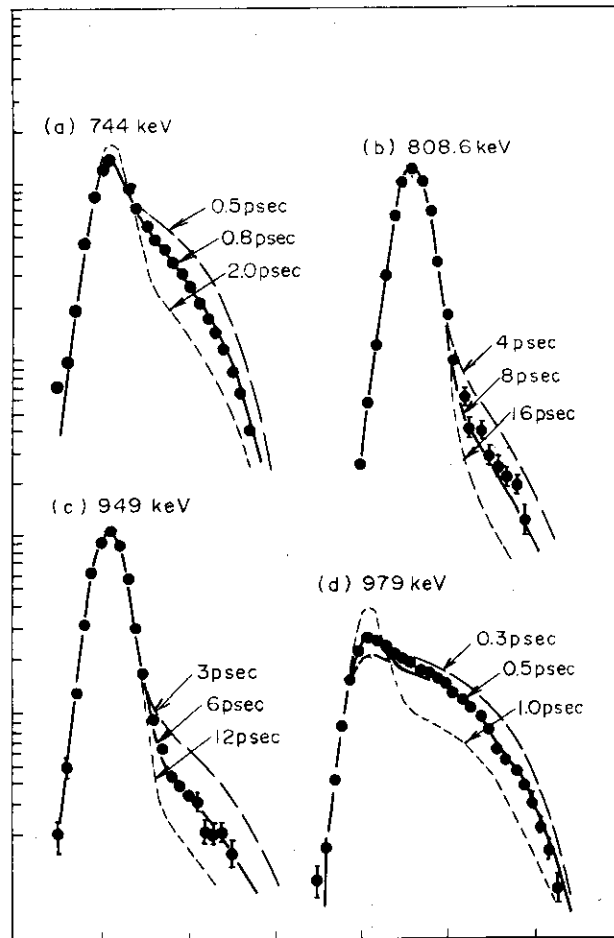


Fig. 5 Observed shapes of the gamma-ray peaks from ^{16}O coulomb excitation of ^{93}Nb with the Ge(Li) detector placed at 0° to the beam direction¹⁾.

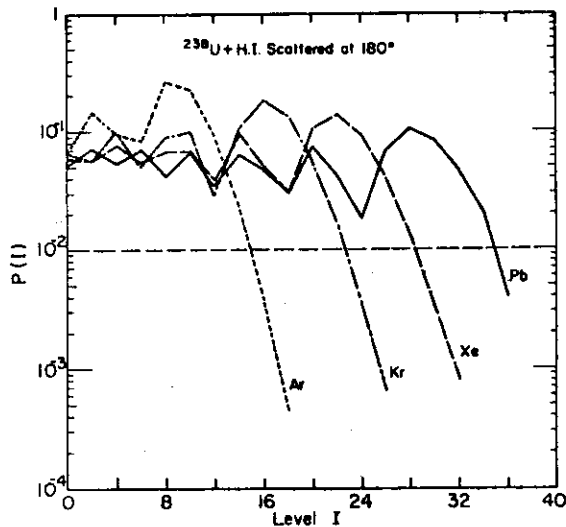


Fig. 6 Probability of exciting the level of spin I in ^{238}U vs. I for a number of heavy ions⁴⁾, as calculated by the deBoer-Winther Coulomb excitation program, using only ground-band levels connected by rigid rotor matrix elements

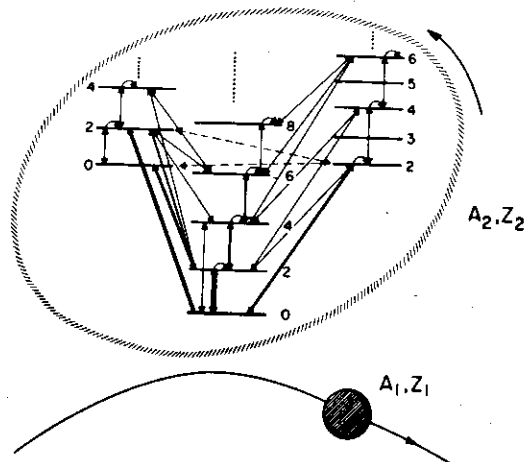


Fig. 7 Schematic presentation of sequence of excitation induced by a heavy projectile in a deformed nucleus⁵⁾.

1.5 広いアクチノイド核の低い励起状態

東京教育大学理学部 鹿 取 謙 二

(東京都文京区大塚 3 - 29 - 1)

Low-lying Excited States in Wide Actinide Nuclei

Kenji KATORI

(Physics Department, Tokyo University of Education,
Otsuka, Bunkyo-ku, Tokyo)

Low-lying excited states ($E_x \leq 2$ MeV) in wide actinide nuclei (Ra to Cf) have been systematically studied with the transfer reactions of (p,t), (d,t) and (d,p). Two topics are discussed here: (1) Two quasi-particle states in even-even nuclei as well as in odd-odd nuclei; (2) Excited 0^+ states and coupling of one nucleon to their states.

安定な原子核の中で最も重い原子核の領域—アクチノイド核—は、原子核反応を用いたスペクトロスコピーという点では未開の領域である。この原子核の領域は安定核として一番多数個の核子を持っている点で、原子核という小数多体系をみつかう時、安定した性質がその励起状態にあらわれると考えられている。即ち隣り同志の核の間で、広い系統性を持つ励起状態が数多くあらわれる事が期待できる。これはより軽い核が、隣りの核にうつるだけで性質のちがった励起状態を有するのといちじるしく異なる。又この領域での単一粒子準位（ニールソン軌道）を正確に定めることは、将来我々がその夢としている超重核（ $Z \sim 120$ ）の領域を推測するのに正しい出発点を与えることになる。

アクチノイド核領域は今まで核分裂のもとになる核燃料物質としてその観点から性質が明らかにされてきた。とくに（n, γ ）、（n, f）の断面積の測定とそれにとまなう準位の性質である。又 β 崩壊、 α 崩壊を用いる実験が主になされてきたが、核構造の研究という点からはごく低い励起状態（ $E_x \leq 1$ MeV）にかぎられている。こゝでのべる励起状態は $E_x \leq 2$ MeV のもので、従来より高い状態に属する。

ここでは筆者のアルゴン又国立研究所滞在中（1970～1973年）に行ったアクチノイド核に関する実験のうちで、2つのトピックスをとりあげ、その結果を要約する。その1つは一粒子移行反応で到達する偶偶核及び奇奇核の2準粒子状態についての話と、その2は励起 0^+ 状態についての話である。

1. 2準粒子状態について

アクチノイド核の単一準粒子状態については精力的な研究がアルゴン又国立研究所でなされていた。調べられた核は $^{231, 233}_{90}\text{Th}$, $^{233, 235, 237, 239}_{92}\text{U}$, $^{241, 243, 245}_{94}\text{Pu}$, $^{243, 245, 247, 249}_{96}\text{Cm}$ ¹⁾ で、確定した中性子のニールソン軌道は $\frac{9}{2}^+[615]$, $\frac{3}{2}^+[622]$, $\frac{1}{2}^+[620]$, $\frac{7}{2}^+[613]$, $\frac{9}{2}^-[734]$, $\frac{7}{2}^+[624]$, $\frac{5}{2}^+[622]$, $\frac{1}{2}^+[631]$, $\frac{7}{2}^-[743]$, $\frac{5}{2}^+[633]$, $\frac{3}{2}^+[631]$, $\frac{5}{2}^-[752]$, $\frac{1}{2}^-[501]$, $\frac{5}{2}^-[503]$, $\frac{1}{2}^-[750]$ である。実験データから偶奇核の単一準粒子状態の励起エネルギー及びスピン、パリティ

イをもとめ、バンドを組立てる。実験で得られたバンドヘッドのエネルギーの位置をBCS変換によって、対相関効果のないニールソン軌道のエネルギーの位置になおす。それぞれの軌道の中性子数、陽子数変化をスムーズに結びあわせることによって β_2 変形、 β_4 変形、 β_6 変形をもとめる。その結果、Cmアイソトープで $\beta_2 = 0.24 \pm 0.01$ 、 $\beta_4 = 0.00 \pm 0.01$ 、 $\beta_6 = 0.01 \pm 0.01$ が無理のない平衡変形であることがわかった。

偶奇核を標的核とした場合は、終状態が偶偶核になる。アクティナイドの偶偶核は一番低い励起状態は基底状態($K=0^+$)の回転バンドで、次に八重極状態($K=0^-, 1^-, 2^-, 3^-$)の回転バンド、 β^- 、 γ -振動バンド($K=0^+, 2^+$)があらわれる。2準粒子状態は、 β^- 、 γ -振動状態の上下、 $E_x \sim 1$ MeV前後からあらわれだす。核反応の断面積のふるまいから2準粒子状態を定め、バンドを組たて、純粋な単一状態からなっている状態と比較してその純度を求めた。しらべた原子核は $^{234}_{92}\text{U}$ ²⁾、 $^{236}_{92}\text{U}$ ³⁾、 $^{238,240}_{94}\text{Pu}$ ⁴⁾、 $^{248,250}_{98}\text{Cf}$ ³⁾と $^{230,232}_{91}\text{Pa}$ 、 $^{236,238}_{93}\text{Np}$ 、 $^{242,244}_{95}\text{Am}$ ⁵⁾である。2つの単一粒子状態の結合によって2つの2準粒子状態が生じる。即ち、 $K_> = \Omega_1 + \Omega_2$ 、 $K_< = |\Omega_1 - \Omega_2|$ である。これらが純粋な状態であれば、この状態のバンドヘッドのエネルギー差から芯の外側の2個の核子間に働く核内有効残留相互作用がわかる。これについて解析を行った結果、芯が球形の核(Ca, Zr, Pb近傍)の外側で得られた有効残留相互作用と一致した。

2. 励起 0^+ 状態について

アクティナイド領域の偶-偶核を標的核にした(p, t)反応の系統的研究はMaherら⁶⁾によってなされた。アクティナイド領域の第一 0^+ 励起状態はもっと軽い核(希土類領域)と同様に(p, t)反応によって強く励起する。しかし他の領域とくらべてその性質が非常に不思議であることがわかった。励起 0^+ 状態の特長を列挙すると

- ① アクティナイド核の広い領域(Ra, Th, V, Pu, Cm)にわたって(p, t)反応によって一様に強く励起する。基底状態への断面積に対して $\sim 15\%$ である。
- ② 励起 0^+ 状態のエネルギー位置がアクティナイド核で一定している。 $(E_x \sim 900 \text{ KeV})$
- ③ (t, p)反応ではほとんど励起されない。
- ④ α 崩壊のヒンドゥランス因子が小さい。
- ⑤ 基底状態へのE0遷移の行列要素が大きい。

これらの実験事実からして、この励起 0^+ 状態は安定な集団励起であるが、性質が今まで考えられている β 振動とはちがっており、又対振動のふつうの表式化ともちがっていることがわかった。

その後、理論による解析がこの 0^+ 状態についてなされた。代表的なものとしてVan Rijら⁷⁾のものとBesら⁸⁾のものがあるが、Van Rijらは、励起 0^+ 状態をつくるのは $(\frac{1}{2}^-[501])^2$ 状態のふるまいによるもので、prolate軌道、同志、oblate軌道 $(\frac{1}{2}^-[501])$ など同志間に働く対相互作用とoblate軌道とprolate軌道に働く対相互作用がちがい後者が小さく、oblate軌道の数がprolate軌道の数に比べて少ないという考えで、④励起 0^+ 状態のエネルギーの位置、⑤基底状態への遷移に対して $\sim 15\%$ という断面積の比③原子核によらずエネルギーの位置が一定で断面積の比が一定であることを示した。

これに対して2つの実験を試みち。その1は偶奇核と奇偶核で(p, t)反応を観測したら、一つ粒子が余分に加ったことによってこの励起 0^+ 状態がこわれるかどうか。⁹⁾実験は $^{233}_{92}\text{U}$ 、 $^{237}_{94}\text{Pu}$ 、 $^{235}_{93}\text{Np}$ 、 $^{241}_{95}\text{Am}$ の核で調べられ、いずれもこの励起 0^+ 状態に一粒子ついた状態が見いだされた。又偶偶核

で得られたエネルギー位置と同じ位置にエネルギーの重心が見いだされ、強度もほぼ基底状態への遷移への～15%であった。但し、1本には集中せず、数本にわかれた。これはバンド間のコリオリス力によるか、他の残留相互作用によると思われるが、重心の位置、遷移の和は、いずれも隣接する偶偶核の場合と一致した。基底状態へのQ値が奇核のときは偶偶核に比較してスムーズでないが、この励起 0^+ 状態へのQ値は偶偶核と非常にスムーズにつながる。このことはVan Rijらの説をつよく支持する。

その2はこの説は一核子移行反応では励起 0^+ 状態へほとんど遷移しないとしている。そこで $^{239}\text{Pu}(d, p)^{240}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu}(d, t)^{238}\text{Pu}$ 反応を行ってこの励起 0^+ 状態が励起するかどうか調べた。その結果は基底状態への遷移とくらべてかなりつよく励起し、ほとんど出ないとする予言と合入れない。⁷⁾ 又実験から求められたニールソン軌道を使ってこの励起状態のエネルギーの位置を計算すると、かならずしも実測されている励起 0^+ 状態のエネルギーの位置までさがってこない。¹⁰⁾ 定性的にはかなり理解できたものの定量的にはいまだ満足のいく理解がこの励起 0^+ 状態にはえられていない。

結びとして次のことをのべたい。アクティナイド核の研究はいろいろな分野の人々の協力のもとにおこなわれている。原子炉の人々、化学の人々、物理の人々の密接な共同作業と、その知識の頻繁な交換を通じてより深い原子核の理解と応用が広がっているように思える。

References

- 1) Braid T. H., Chasman R. R., Erskine J. R. and Friedman A. M.: Phys. Rev. C1 275 (1970); Phys. Rev. C4 247 (1971), Phys. Rev. C6 1374 (1972).
- 2) Bjornholm S., Dubois J. and Elbek B.: Nucl. Phys. A118 241 (1968).
- 3) Katori K., Friedman A. M. and Erskine J. R.: to be published in Phys. Rev. C.
- 4) Friedman A. M. and Katori K.: Phys. Rev. Letters 30 102 (1973).
- 5) Katori K. and Friedman A. M.: Bull. Amer. Phys. Soc. 17 463 (1972).
- 6) Maher J. V., Erskine J. R., Friedman A. M., Siemssen R. H. and Schiffer J. P.: Phys. Rev. C5 1380 (1972).
- 7) Van Rij W. I. and Kahana S. H.: Phys. Rev. Letters 28 50 (1972).
- 8) Bes D. R., Broglia R. A. and Nilsson B.: Phys. Letters 40B 338 (1972).
- 9) Friedman A. M., Katori K., Albright D. and Schiffer J. P.: to be published in Phys. Rev. C.
- 10) Chasman R. R.: Phys. Rev. Letters 28 1275 (1972).

1.6 核分裂におけるポテンシャル・エネルギー面の研究

大阪市立大学 末 包 昌 太, 山 路 修 平*,
 岩 本 昭, 原 田 吉之助**
 (大阪市住吉区杉本町 459)

Potential Energy Surface of Nuclear Fission

Shota SUEKANE, Shuhei YAMAJI*,
 Akira IWAMOTO** and Kichinosuke HARADA**
 (Faculty of Science, Osaka City University,
 Sumiyoshi-ku, Osaka)

The present status of the study of the potential energy surface for the nuclear fission is discussed critically. The total potential energy has been calculated for the symmetric and the asymmetric fissions of ^{235}U based on the modified two-center oscillator potential, and the results are discussed.

1. 数年前に核分裂アイソマーが発見され¹⁾, 核分裂障壁は二つの山を持っていることがわかって以来, その原因は何か, またそれを理論的に導くことが出来るかということが核分裂の理論, あるいは大きくいえば核構造の理論の中心的課題の一つであった。この課題はこの一二年間にほぼ解決されたと考えられており^{2~7)} 問題は核分裂の過程の力学的な性質を解明する問題に移りつゝある。すなわち原子核のような有限な大きさの微現的系が変形したとき, 変形が特定の対称性をもつときには, 球形のときとはちがった変形核の閉殻構造をもつようになる。たとえば, スピン-軌道相互作用を無視した回転楕円体に変形した調和振動子ポテンシャルの場合には, 長軸と短軸の比が 2 : 1 のとき閉殻構造が現われ, アクチナイド領域の質量数では $N \sim 140$ が一つのマジック・ナンバーになることがわかる⁸⁾。そして上記の核分裂におけるポテンシャル・エネルギー面の変動は核分裂の過程で現われる巨大変形状態における核構造の閉殻構造にもとづくことが明らかにされた。

原子核の状態を記述するシュレーディンガー方程式を

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \mathcal{H} \Psi$$

と書く。ここでハミルトニアン $\mathcal{H}$ は一般に原子核の形を記述する集団パラメーター $q(t)$ を含んでいる。 $q(t)$ は時間に依存するパラメーターであって, 各瞬間における $\mathcal{H}(q(t))$ にたいする時間に依存しないシュレーディンガー方程式の固有状態を用いて, 集団運動にたいするハミルトニアン

$$H_{\text{coll}} = \mathcal{H} K(q, \dot{q}) + W(q)$$

を導くことが出来る。集団座標 $q(t)$ ($q_\mu(t)$'s) をえらぶにあたっては, 運動エネルギー $K(q, \dot{q})$ の質量テンソル (あるいは計量テンソル) が対角形になるようにえらぶのが最も望ましいが, 平衡変形のまわりの微小振動の場合をのぞいて, 実際にこの要請をみたす集団座標を見出すことは困難

*) 理化学研究所 (埼玉県和光市広沢 2-1) Institute of Physical and Chemical Research, Wako-Shi, Saitama.

**) 日本原子力研究所 (茨城県那珂郡東海村) Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki.

であり、またこの質量テンソルが正値定符号になり、それによって定義される幾何学がユークリッド的になるということは自明ではない。さいわい時間に依存する摂動論の方法を用いるならば $K(q, \dot{q})$ をあらわに書くことが出来て、質量テンソルに対する cranking 公式が得られるので、適当な模型を設定することによって計算することが出来る。⁹⁾

核分裂の現象が、その全過程にわたって断熱的であると考えすることは困難であるが、少なくともその初期の段階は断熱的であると信じられており、かつそのような前提のもとに導かれた理論によって実験結果の説明がなされている。断熱近似を用いると集団運動にたいするポテンシャル・エネルギー $W(q)$ は、 $\mathcal{H}(q)$ の基底状態のエネルギー $E_0(q)$ で与えられる。また、核分裂の過程においても、原子核は近似的に体積を一定に保ちながら変形すると考えるならば $E_0(q)$ すなわち $W(q)$ は変形エネルギーであると思ふことが出来る。

$E_0(q)$ を求めるためには、もし原子核が2体の核力から構成されていると考えるならば、その特異性を処理するために Brueckner-Bethe-Goldstone の方法によって doublyself-consistent problem を解かなければならない。¹⁰⁾ しかしながら、この理論の核分裂の現象への適用可能性についての問題のほかに、現在の大型計算機的能力をもってしても核分裂する変形した重い核に適用して定量的な議論をすることは、ほとんど不可能に近い。

次に、最近盛んになりつつある理論に Hartree-Fock の方法がある。¹¹⁾ この方法は今後ますます盛んになると考えられているが、現実的な核力の特異性や、Hartree-Fock 方程式の交換項の積分計算についての技術的問題のために有効相互作用を用いなければならない。ところが有効相互作用の一意性の問題のほかに、基底状態附近できめた有効相互作用をそのまま核分裂の巨大変形状態に対して用いてよいかどうかという問題もあり、さらに Hartree-Fock 場にくりこまれなかった残留相互作用の全エネルギーへの寄与をどのように扱うかという問題もあって、この方法が必ずしも今後の最良の方法とは考えられない。現在 Hartree-Fock 法によって、重い核の基底状態の質量や荷電分布の説明に成功している有効相互作用は Skyrms の相互作用¹¹⁾ だけである。この相互作用を用いて制限条件付きの Hartree-Fock 方程式を解いて導かれたポテンシャル・エネルギー面は ^{240}Pu の場合、外側の障壁が約 13 MeV 高く出すぎている。¹²⁾

現在最も広く用いられ、かつ定量的にも良い結果が得られているのは微視的-巨視的 (あるいは two-part) 方法と呼ばれている方法である。これは Swiatecki によって提案され、¹³⁾ Strutinsky によって定式化された方法¹⁴⁾ でポテンシャル・エネルギー $W(q)$ を、適当な方法によって核子数や変形の変化に対して平均された滑らかな依存性を示す部分 $\tilde{W}(q)$ と、殻構造に依存した変動する部分とに分けて考える。したがって $W(q)$ は

$$W(q) = \tilde{W} + (W - \tilde{W})$$

と書くことが出来て、 $\tilde{W}(q)$ を液滴模型 (最近では droplet model) の変形エネルギー E_{LDM} でおきかえ、殻構造に依存する変動項 $W(q) - \tilde{W}(q)$ としては、粒子エネルギーからの寄与 ΔE_s と残留相互作用からの寄与として対相互作用から計算された ΔE_p を考えて

$$W(q) = E_{\text{LDM}} + \Delta E_s + \Delta E_p$$

とおく。こゝで ΔE_s を殻補正項また ΔE_p を対補正項と呼ぶ。

ΔE_s の計算法として最も信頼されているのが Strutinsky の処方と呼ばれている方法である。^{3~5)} この方法でもっとも大切なことは微視的部分と巨視的な部分との間に重複した部分が生じないよう

に計算することである。このために、この方法の理論的なうちづけについての議論がいろいろな人によってなされているけれども、まだ完全なものはないようである。

粒子状態のエネルギー・スペクトル $\{\epsilon_n\}$ をなめらかにしたものを $\{\bar{\epsilon}_n\}$ として、これを与える分布関数を $g(\epsilon)$ とすると殻補正項は

$$\begin{aligned}\Delta E_s &= \sum \epsilon_n - \sum \bar{\epsilon}_n \\ &= \sum \epsilon_n - \int_{-\infty}^{\lambda} \epsilon g(\epsilon) d\epsilon\end{aligned}$$

によって与えられる。こゝで和は粒子によって占有された状態についてとられ、 λ はなめらかにされたスペクトルにおけるフェルミ・エネルギーである。Strutinsky の処方ではまず $g(\epsilon)$ が与えられる。われわれは以下の計算においては $g(\epsilon)$ の決定および ΔE_p の計算には Nix の方法を用いた。^{4, 5)}

微視的補正項を計算するのに用いられる変形殻模型としては、大きくわけると一中心ポテンシャルを用いるものと、^{2, 14, 15, 16)} 二中心の自由度をもったポテンシャルを用いるもの^{17, 18)} とがある。さらに、それぞれにおいて有限な深さをもったより現実的なポテンシャルと、^{3, 5, 6)} 調和振動子型の無限大の壁をもったポテンシャルとがある。二中心ポテンシャルは核分裂において鞍部をこしたあとの配位に対しても適用することが出来、かつ過程の進行にともなう分裂片の生成を直接扱うことが出来るので、核分裂や重イオン反応の記述に適したポテンシャルであるといえる。一方、数学的に取扱いやすい二中心調和振動子ポテンシャルはアクチナイド領域の原子核において確認されているダイヤモンド型の変形を含むことが出来ないこと、および neck におけるポテンシャルの切り込みが、大きすぎるといふ批判がなされているが、これらは neck の補正にたいするパラメーターを適当にえらぶならば解決することが出来る。

このほかに、たとえば巨大変形状態とくに2つの分裂片が成長してきたときの対相互作用をどのようにきめるかというような困難であるが興味深い問題も残されている。

2. 核分裂にたいするポテンシャル・エネルギー面について²³⁸U にたいするわれわれの計算結果を中心にしながら説明する。第1図は液滴模型のポテンシャル・エネルギーの地図を対称分裂の場合に変形 δ と二中心ポテンシャルの中心間の距離 z_0 について書いたものである。こゝで核表面は neck の補正をほどこした修正された二中心調和振動子ポテンシャルの一つの等ポテンシャル面と一致するものと仮定し、第2図に示したように Maruhn-Greiner¹⁷⁾ の neck 補正のパラメーター ϵ は 0.5 に固定した。第1図からわかるように (液) 滴模型では $z_0 = 0$ fm, $\delta = 0$ の球形が最低エネルギーを与え、鞍点は $z_0 \sim 8$ fm, $\delta \sim 0.3$ にあり高さ約 6 MeV であることがわかる。また常に対称分裂が非対称分裂片の生成に対して安定である。

第3図は同じく対称分裂の場合の殻補正項 ΔE_s を z_0 と δ について書いたものである。 ΔE_s は $z_0 = 0$ の線上では $\delta \sim 0.23$ に最小点があり、なお図には示されていないが $z_0 = 0$, $\delta \sim 0.6$ に Nilsson 模型の第2の極小点に対応した浅い極小点がある。二中心模型ではこの極小点よりさらに深い極小が $z_0 \sim 3$ fm, $\delta \sim 0.3 - 0.4$ に現われる。また $z_0 \sim 7.5$ fm におそらく扁平楕円体形をもつ極小があることがわかる。 ΔE_s を対補正項 ΔE_p と共に E_{LDM} に加えることによって全ポテンシャル・エネルギー面が得られる。それが第4図である。図によれば基底状態は $z_0 \sim 0$ fm, $\delta \sim 0.2$ に来る。内側の障壁は $z_0 \sim 4$ fm, $\delta \sim 0.15$ にある二つの山の間 $z_0 \sim 3$ fm, $\delta \sim 0.2 - 0.25$ にあり、高さ約 3.5 MeV である。基底状態の次の第2番目の極小は $z_0 \sim 4$ fm, $\delta \sim 0.3$ にありその底の高さは約 2 MeV である。

*) これらのわれわれの計算結果は Prog. Theo. Phys. に投稿中の Letter¹⁹⁾ から引用したものである。

これをすぎると $z_0 \sim 8-9 \text{ fm}$, $\delta \sim 0.2-0.45$ の範囲にわたって高さ約 9 MeV の外側の障壁があり、これが scission 点につながることをわかる。これらの数値は ^{238}U の基底状態の変形、核分裂の障壁の高さについての実験値とほぼ一致している。

次に、これらの対称分裂に対する計算結果が質量の非対称を入れることによってどのように変わるかをしらべた。第 5 図と第 6 図は内側の障壁、第 2 番目の極小および外側の障壁が質量の非対称によってどのように変わるかを示した。第 5 図からあきらかに内側の障壁および第 2 番目の極小は質量の非対称に対して安定であることがわかる。他方外側の障壁においては第 6 図に示したように障壁の高さは適当な質量の非対称に対して低くなることをわかる。そして最も有利な質量比は 138:98 $\sim$ 148:88 であるが、この値は実験値 138:98 とほぼ一致している。さらにこの質量の非対称の原因は殻補正エネルギーの変動にあり、外側の障壁は $z_0 \sim 8 \text{ fm}$ であるから分裂片が可成り成長して来ており、分裂片核の殻構造の影響が現われはじめていると考えられる。

最後に第 7 図は核分裂の各段階における核表面の形と分裂過程でのポテンシャル・エネルギーの概念図を示している。これらの結果から第 2 番目の極小までは過程は対称な質量分布を保っており、このあと非対称な質量分布が有利になることがわかる。この非対称は粒子単位密度の殻構造にもとづく変動によるものである。また質量の非対称による外側の障壁の高さの低下は約 3 MeV である。他方内側の障壁は質量の非対称によって低くならないが、最近の研究によればそれは軸的非対称な変形に対して不安定で、この変形を入れることによって低くなることがわかった。^{7, 16)} さらにまた軽い方のアクチナイド核に対して、外側にもう一つの質量非対称の障壁が得られることが報告されており、これが Th-アイソトープの核分裂における異常性と関係があるのではないかとされている。⁷⁾

このように原子核の変形に関連したいろいろの現象、たとえば基底状態の質量と変形、アクチナイド核の核分裂障壁における外側の障壁、分裂障壁の高さ、あるいは分裂の質量分布などは微視的-巨視的方法を用いて理解することが出来、かつこれらは集団運動にたいするポテンシャル・エネルギーの微視的部分すなわち粒子単位密度の局所の変動(殻構造)によることがわかった。

今後核分裂の研究は、このようなポテンシャル・エネルギー面の研究をさらに精密化することともに、この過程の力学的な性質の研究がより盛んになると考えられる。また特に二中心模型では第 2 番目の極小は必ず有限の値の z_0 に現われる。このことは核力が short range であることを考えるとまったく妥当なことであるが、一中心模型と著るしくちがう点であり、この点を実験的に検証することが強くのぞまれる。また Strutinsky の処方による微視的-巨視的方法は核分裂だけでなく、もっと軽い核まで含めて広く適用出来ることを注意しておきたい。

References

- 1) Polikanov S. M., Druin V. A., Karnaukhov V. A., Mikheev V. L., Plevé A. A., Skobelev N. K., Subbottin V. G., Ter-Akopyan G. M., and Fomichev V. A.: Sov. Phys. JETP, 15, 1016 (1962)
- 2) Johansson T., Nilsson S. G., and Szymański Z.: Ann. Phys., (Paris) 5, 377 (1970)
- 3) Brack M., Damgaard J., Jensen A. S., Pauli H. C., Strutinsky V. M., and Wong C. Y.: Rev. Mod. Phys. 44, 320 (1972)
- 4) Nix J. R.: Ann. Rev. Nucl. Sci., 22, 65 (1972)
- 5) Bolsterli M., Fiset E. O., Nix J. R., and Norton J. L.: Phys. Rev., C5, 1050 (1972)
- 6) Pauli H. C.: Phys. Rev. 7, 35 (1973)
- 7) Möller H. C. and Nix J. R.: IAEA-SM-174/202 (1973)
- 8) Geilikman B. T.: Yad. Fiz. 2, 894 (1969), Sov. J. Nucl. Phys. 9, 521 (1969); Sheline R. K., Ragnersson I. and Nilsson S. G.: Phys. Lett., B41, 115 (1972)
- 9) Inglis D. R.: Phys. Rev. 103, 1786 (1956)
- 10) Bethe H. A.: Ann. Rev. Nucl. Sci. 21, 93 (1971)
- 11) Flocard H., Quetin P., Kerman A. K., and Vautherin D.: Nucl. Phys. A203, 433 (1973)
- 12) Flocard H., Quentin P., Vautherin D., and Kerman A. K.: IAEA-SM-174/38 (1973)
- 13) Swiatecki W. J.: Proc. Int. Conf. Nuclidic Masses, Vienna, 2nd, July 1963, 58. Vienna: Springer-Verlag. 473pp.
- 14) Strutinsky V. M.: Yad. Fiz. 3, 614 (1966); Sov. J. Nucl. Phys., 3, 449 (1966)
- 15) Gustafsson C., Lamm I. L., Nilsson B., and Nilsson S. G.: Ark. Fys., 36, 613 (1967); Nilsson S. G., Tsang C. F., Sobiczewski A., Szymański Z., Wycech S., Gustafsson C., Lamm I. L., Möller P., and Nilsson B.: Nucl. Phys., A131, 1 (1969)
- 16) Larsson S. E. and Leander G.: IAEA-SM-174/6 (1973)
- 17) Maruhn J. and Greiner W.: Z. Phys., 251, 431 (1972)
- 18) Mosel U.: Phys. Rev., C6, 971 (1972); Mustafa M. G., Mosel U., and Schmitt H. W.: Phys. Rev. C7, 1519 (1973); Andersen B. L., Dickmann F., and Dietrich K.: Nucl. Phys. A159, 337 (1970)
- 19) Iwamoto A., Harada K., Suekane S., and Yamaji S.: Preprint, submitted to Prog. Theo. Phys. (1973)

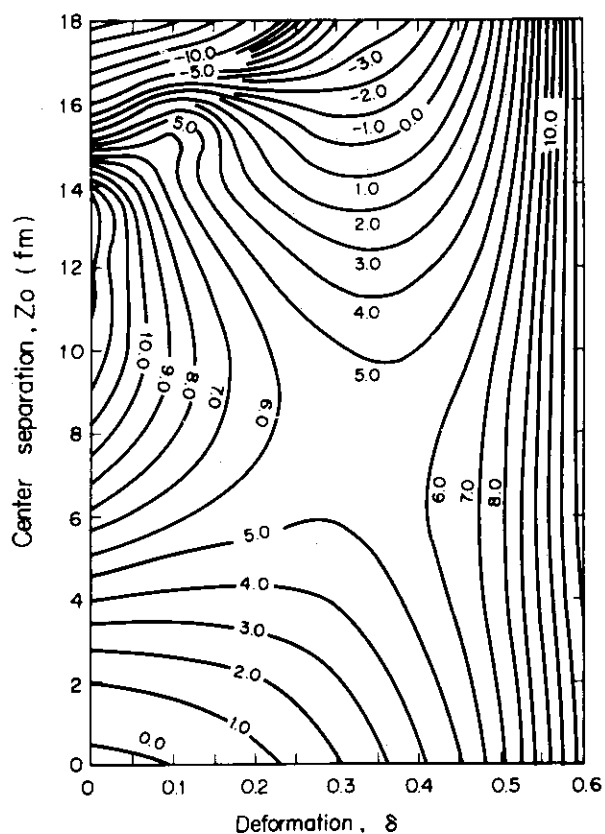


Fig. 1 ^{238}U liquid drop model energy, E_{LDM} (MeV).

$$\epsilon = 0.5, \omega_z^2 = \omega_0^2 \left(1 - \frac{4}{3} \delta\right), \omega_\rho^2 = \omega_0^2 \left(1 + \frac{2}{3} \delta\right).$$

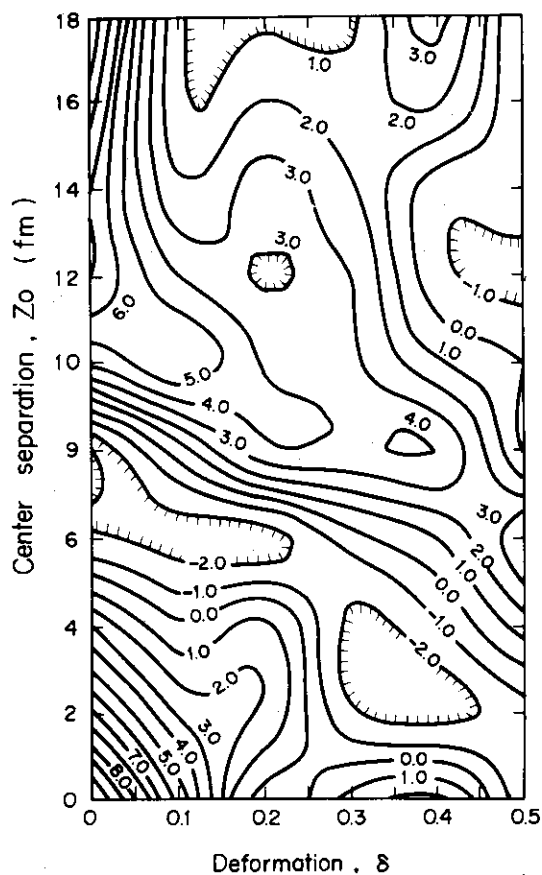


Fig. 3 Shell correction energy, δE_S (MeV). ($\epsilon = 0.5$)

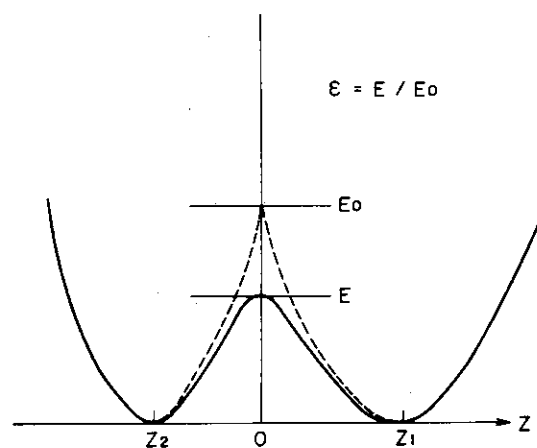


Fig. 2 Definition of the neck correction parameter ϵ .

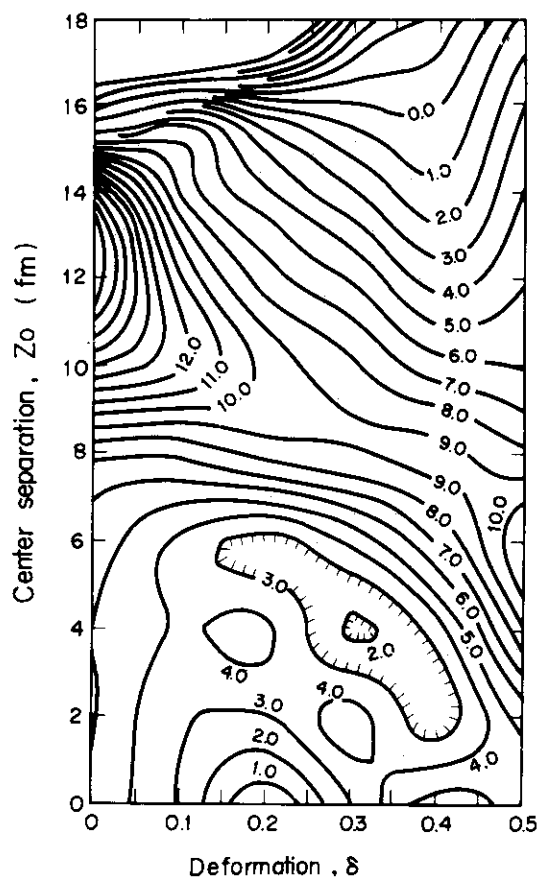


Fig. 4 Total potential energy surface of ^{238}U , (MeV). $\epsilon = 0.5$

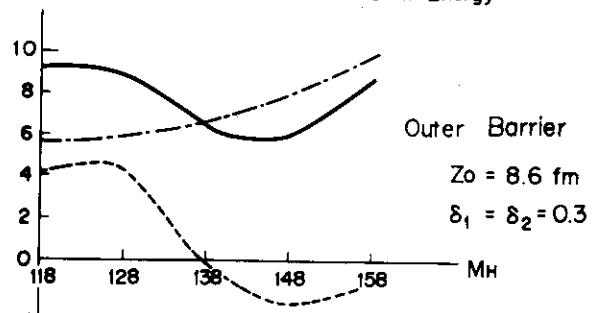
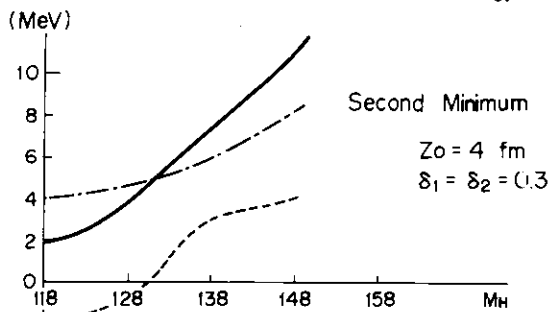
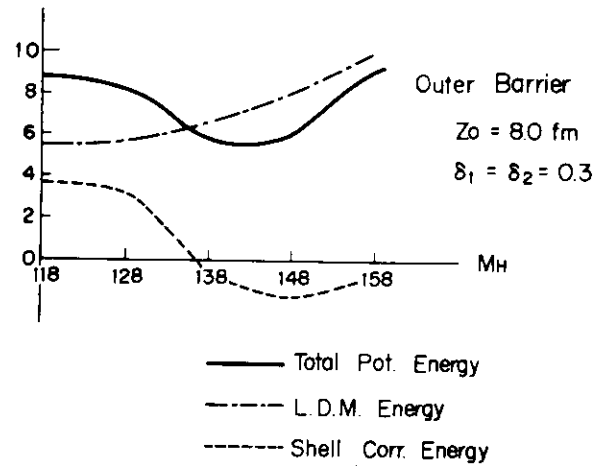
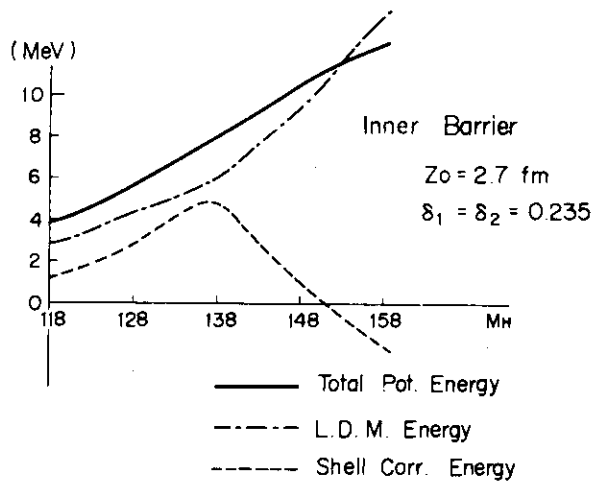


Fig. 5 Mass asymmetry dependence of the 1st barrier and the second minimum. ($\epsilon = 0.5$)

Fig. 6 Mass asymmetry dependences of the outer barrier. ($\epsilon = 0.5$)

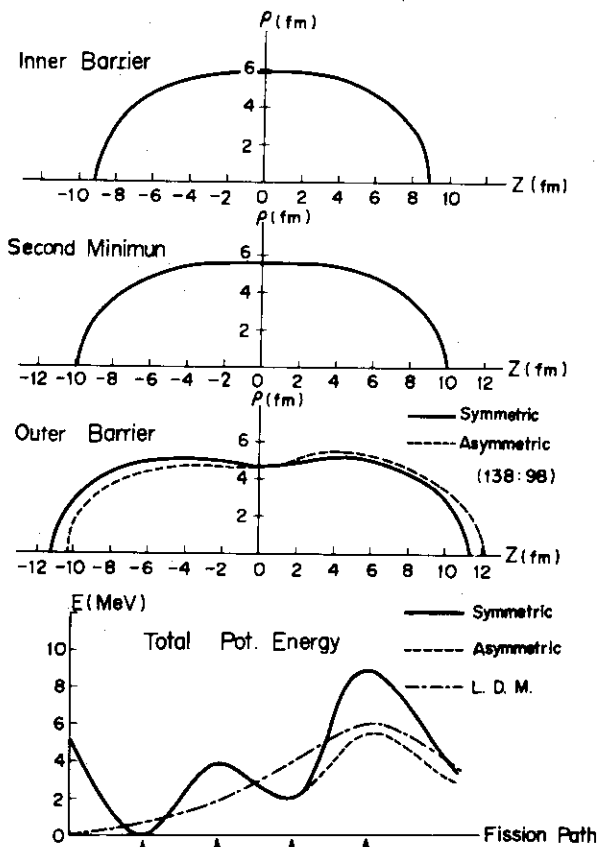


Fig. 7 Nuclear surface shapes and total potential energy.

1.7 超重核の安定性

早稲田大学理工学部 山田 勝美, 宇野 正宏
富永 俊夫
(東京都新宿区西大久保4-170)

Stability of Superheavy Nuclei

Masami YAMADA, Masahiro UNO and Toshio TOMINAGA
(Waseda University,
Nishi-Okubo, Shinjuku-ku, Tokyo)

Stability of superheavy nuclei is investigated by the use of a new mass formula and a phenomenological theory of spontaneous fission. The fission half-lives of 114 and 110 are estimated to be roughly a year and an hour, respectively, though these values are susceptible to various uncertainties.

1. まえおき

近年、超重核に対する関心が大いに高まってきた。しかし、その研究はなかなかむずかしく、理論的にも実験的にも難問が山積している。たとえば、超重核にはどれくらい長い寿命のものがあるかという最も基本的な問題に対しても、これまでの理論的な推定の結果は非常にまちまちである。

われわれも以前より超重核の安定性に興味をもち、独自の研究を行ってきた。もちろんこの問題を一気に解決できるとは思っていないが、自分の手で計算することによって理論の不確定さを実感することは大切だと考えるし、それをいくらかでもここでお伝えしたいと思う。

超重核の崩壊としては、 α 崩壊、 β 崩壊、自発核分裂の三つを考えればよからう。このうち崩壊確率を最も推定しやすいのは β 崩壊であるが、われわれはそれに対して安定かまたは長寿命であるとみられる核だけを取り扱うことにする。一方、 α 崩壊と自発核分裂は、原子核の質量にきわめて敏感である。また自発核分裂は、それを取り扱う理論によって確率が大きく変わる。このような状況に対応して、われわれは原子質量公式と自発核分裂の理論を新しくつくることから始める。

2. 原子質量公式

われわれは質量公式を

$$M = M_g + M_s \quad (1)$$

のように二つの部分の和として書く。ここで、 M_g は陽子数や中性子数と共になめらかに変化する大局的ふるまいを表す部分であり、 M_s はその他の部分で、広い意味での殻効果を表す。これらのうち、 M_s は実験値との比較により経験的に、 M_g は M_s がなるべく合理的なふるまいをするように決定される。この合理的なふるまいとして、具体的には、第一に M_s はあまり大きくなく0のまわりに分布し、第二に軽い核では核力の荷電対称性を反映して陽子と中性子に対してほぼ同じ殻効果が存在すると考える。 M_s の形としては、最も簡単な

$$M_s = P_Z + Q_N \quad (2)$$

というものをとった。ここで P_Z と Q_N はそれぞれの陽子数または中性子数に付随する定数パラメタ

である。一方 M_g としては、小玉の公式¹⁾を上の方針に従って修正した。なお、偶奇項は P_Z と Q_N に含めてしまった。

質量の実験値との比較は、奇奇核を除くものについて行った。その理由は、奇奇核では最後の陽子と中性子の結合によって上の形の殻効果からのずれがかなり存在するからである。誤差 0.1 MeV 以下の実験値を用い、最小2乗法により、次の公式が得られた。

$$\begin{aligned}
 M_g &= 7.68046A + 0.39122I \\
 &\quad + a(A) \cdot A + b(A) \cdot |I| + c(A) \cdot \frac{I^2}{A} + E_c(A, Z)
 \end{aligned}
 \tag{3}$$

$$\begin{aligned}
 a(A) &= -16.945 + 25.745A^{-1/3} - 9.45A^{-2/3} - 6.12A^{-1} \\
 b(A) &= 15.0A^{-2/3} \\
 c(A) &= 35.9178 - 87.5067A^{-1/3} + 74.9626A^{-2/3} / (1 + 0.484581A^{-1/3}) \\
 E_c &: \text{台形分布のクーロンエネルギー}
 \end{aligned}$$

P_Z , Q_N はそれぞれ Figs. 1 と 2 に示す。

(3)式の M_g は、超重核に対して最も大きい質量を与える部類にはいり、たとえば $^{298}114$ に対して計算されたこの部分の質量は、多くの他の公式の液滴部分の質量より数 MeV から十数 MeV 大きい。

一方、 P_Z と Q_N のふるまいは比較的良いが、全く合理的といえるほどではない。たとえば $N \approx 82$ 付近の Q_N がもう少し (1~2 MeV) 下がり、代わりに $Z \approx 60$ の P_Z が同程度上がった方が良いように見える。(こうしても実験との一致はそんなに悪くならない) とくに最も重い領域で、 P_Z がどんどん下に向かい、逆に Q_N が上昇しようとしているのが、超重核の質量を問題にするとき気になる点である。ともあれ、 P_Z と Q_N は、魔法数で -5 MeV 程度まで下がるのがかなりはっきりわかるであろう。こうして超重核の質量超過の推定値として、たとえば

$$\begin{aligned}
 ^{298}114 & \quad 203.37 \text{ MeV} + M_s \\
 ^{294}110 & \quad 191.69 \text{ MeV} + M_s
 \end{aligned}
 \tag{4}$$

$$M_s = -(5 \sim 10) \text{ MeV}$$

が得られた。ここで M_s としては一重または二重の魔法数に対する値を採用した。(M_s の信頼する値を推定することはきわめて困難と考える。)

α 崩壊の Q 値は殻効果に大きく依存するが、われわれは超重核の M_s を計算していないので確かなことはいえない。ただ、 M_g 部分からの Q_α への寄与は、他の液滴公式によるものより 0.5~1 MeV 程度大きめになり、これは半減期が $1/10^{2.6} \sim 1/10^{5.6}$ 倍程度に減少することに対応する。しかし、次に述べる核分裂に比べると、 α 崩壊の方が一般に寿命が長くなりそうである。

3. 自発核分裂

これまでの核分裂の理論は、膨大な計算を必要とするものが多い。われわれは、もっと計算の楽な現象論をつくることを試みる。基礎におくのは、ふつう行われるように、WKB法による崩壊定数の式

$$\lambda = \lambda_0 \exp \left[-\frac{2}{\hbar} \int_{V > E_0} \{ 2M_{\text{eff}}(V - E_0) \}^{1/2} dx \right] \tag{5}$$

である。これまでの多くの取り扱いでは、分裂途中のそれぞれの形 (5)式では x で代表) に対して最小のポテンシャル $V_{\min}$ を求め、それに対応する有効質量 M_{eff} を計算または推定して、崩壊確率

を求めている。しかし、こうして得られた M_{eff} は、理論的な最小値すなわち渦無しの流れに対する M_{eff} の数倍もある。そこで、ポテンシャルのもっと高い所を通る道の中に $M_{\text{eff}}(V-E_0)$ を小さくするものがありそうに思える。さらに slippage も起こると考えられるので、実際に通る道を平均したいわば有効通路は、fragment の種類や励起状態によって違うとしてもよからう。こうしてわれわれは、“multipotential model”ともいうべきモデルに到達した。

われわれは、 x として fragment の重心間の距離をとる。そこで、fragment の種類と状態を決めたときの部分崩壊定数を計算するには、それに対応する V と M_{eff} を x の関数として決めればよい。それは初状態と scission 状態の間をなめらかに内挿することによって実行する。従って、親核と fragment の個性は考慮されるが、変形途中の個性は無視される。そこでアクチノイド領域で断熱ポテンシャルが2つ山になっていることも無視してしまう。これはやや乱暴に見えるかも知れないが、自発核分裂のようにエネルギーが第2の極小点よりかなり低いときには、あながち無理な近似でもなからう。

V と M_{eff} の大体の様子をFig. 3に示す。 x の値によって、三つの領域に分けることができる。領域Ⅲは fragment が分かれて、その間に核力が働かないところである。scission において、二つの fragment は prolate な回転楕円体で、対称軸を共有しているとする。それらの長軸の長さを a_1 , a_2 としたとき、 $x_s = a_1 + a_2 + d$ の所で核力が切れるとする。ここで d は調節できるパラメーターである。領域Ⅲのポテンシャルは fragment の基底状態の質量、変形エネルギー、および fragment 間の静電斥力により決定される。また、有効質量は換算質量となる。領域Ⅱは、親核状態と scission をなめらかにつなぐ部分で、ポテンシャルは x の三次式、有効質量は $M_{\text{eff}}(x) = a \frac{(x-x_s)^2}{1+bx} + \mu$ とした。ここで、 μ は換算質量、 a , b は親核での渦無し有効質量の値とその x に関する微係数により決定される。領域Ⅰは親核の個性を含んでいる部分である。ここでのポテンシャルは、 x の三次式から Gauss 型の関数で下げたものである。この位置 x_0 は親核の四重極モーメントから決め、下がり高は Nilsson ら²⁾の殻補正エネルギーを、また幅 Δ は β 振動エネルギーを参考にして決定した。一方、有効質量は、同じ幅の Gauss 関数でふやし、 x_0 において渦無しの場合の2.5倍となるようにした。

この模型では、半減期のほかにいくつかの量を計算することができる。たとえば fragment の質量数分布は、fragment の変形とエネルギー関係に強く依存する。もちろん液滴模型による関係を用いると対称分裂が一番多くなってしまいが、少しそれを修正することにより、実験に見られる非対称分裂を再現できるように見える。fragment の励起エネルギーは、fragment の表面エネルギーとしてふつうの値をとると、計算値が小さすぎるが、有効表面エネルギーがやや小さくなっているとすれば実験に合わせられるようである。

さて問題の半減期であるが、大体の様子は fragment に液滴模型を使ってもよいと考えられるので、表面エネルギーの係数を15.0 MeVとした液滴模型により議論をする。ここで問題になるのが、前に導入したパラメーター d である。まずそれが核種によらない($d=3.80$ fm)としたときの計算値を、実験値と共にFig. 4に示す。これは異なった元素間の変化の様子を大体表わしているけれども、同位元素間のふるまいに系統的なずれが見られる。そこで

$$d = 5.824 + 0.256Z - 0.709 \frac{Z^2}{A} \quad (6)$$

としてみた計算値がFig. 4の黒丸印であるが、これだと実験値との一致はおおよそ2桁以内となっ

て満足すべきものといえよう。

4. 超重核の自発核分裂

以上の方法を超重核の自発核分裂に応用した例を Fig. 5 に示す。ここで横軸は基底状態の質量超過を、縦軸は Fig. 3 の領域 I におけるポテンシャルの Gauss 型での下がり高を負荷号で表わし、その面上に半減期（単位は年）の常用対数が等高線で書いてある。ただし親核は球形とした。

なお、幸いにもこの付近の超重核では半減期の d 依存性は U などよりずっと小さく、(6)式以外の d を使っても結果はそれほど大きく変わらない。さて、 $U \sim Cf$ あたりの Nilsson ら²⁾ の殻補正エネルギーとわれわれの M_s は約 2 MeV 違っているので、(4)式の M_s は Fig. 5 の縦軸の $-(7 \sim 12)$ MeV に対応するとみなされる。こうして(4)式の質量は Fig. 5 での破線部になる。ところで²⁹⁸114 は、これまでの他の研究によると二重魔法核の可能性がかなりあるので、破線部の比較的下の部分になることが期待され、従って大ざっぱに 1 年という目安を立てることができる。一方²⁹⁴110 には二重魔法核の可能性がうすいので、比較的上の方の値をとって、1 時間が目安になる。

われわれの計算は多くの不確定要素を含み、半減期の不確定さはきわめて大きいと見なければならぬであろう。しかし上の結果から、適当な超重核の寿命は、それらが“存在しない”ほど短くはないということができよう。また、自然に存在する可能性は非常に小さいであろう。最後に、われわれは質量公式と核分裂の理論を改良ないしは精密化しつつあることを付け加えておく。

References

- 1) Kodama T.: Prog. Theor. Phys., 45, 1112 (1971)
- 2) Nilsson S. G.: Nucl. Phys., A131, 1 (1969)

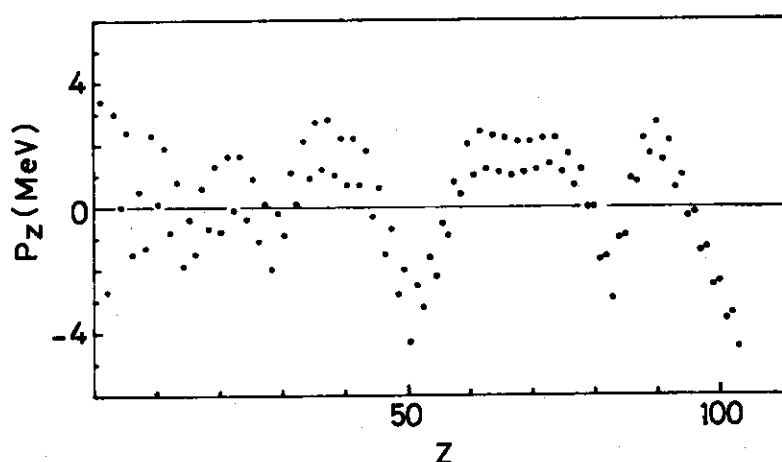


Fig. 1 Proton shell correction terms P_z .

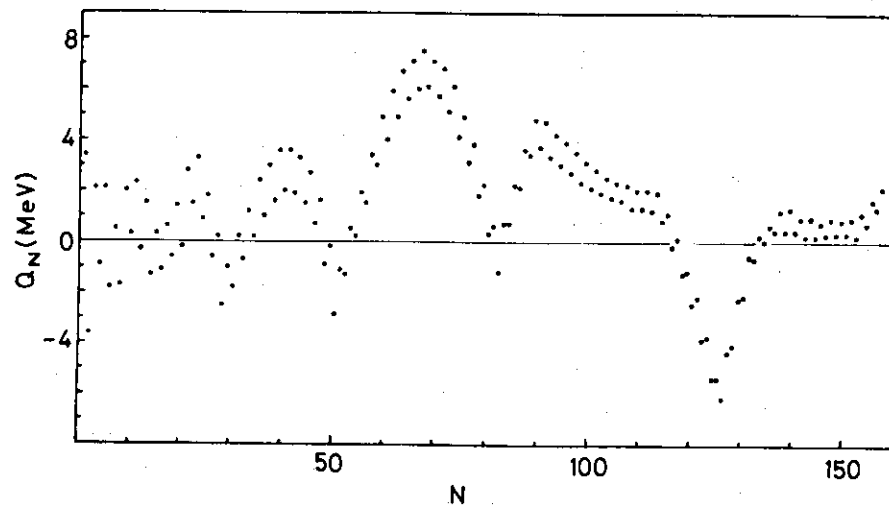


Fig. 2 Neutron shell correction terms Q_N .

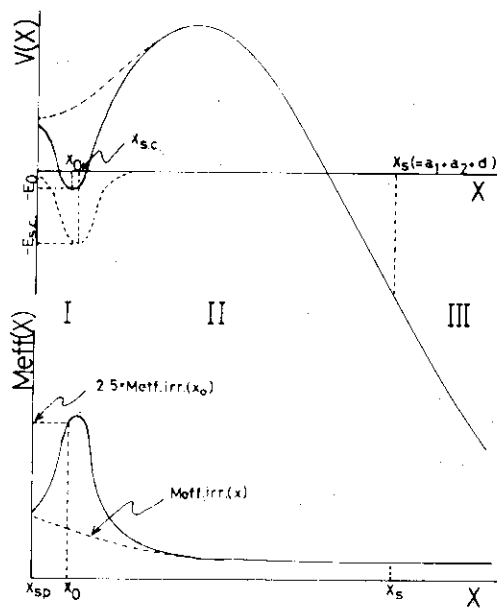


Fig. 3 Potential energy V and effective mass M_{eff} of a fissioning nucleus. The abscissa x is the distance between the centers of fragments.

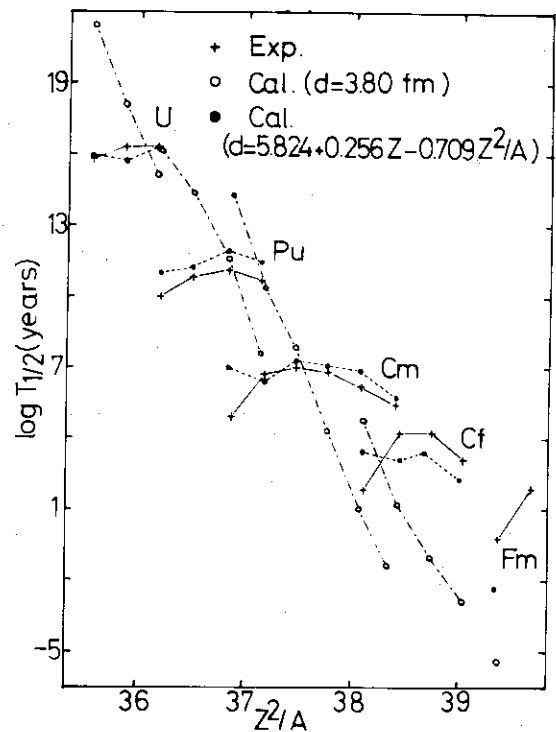


Fig. 4 Spontaneous-fission half-lives of actinide nuclei.

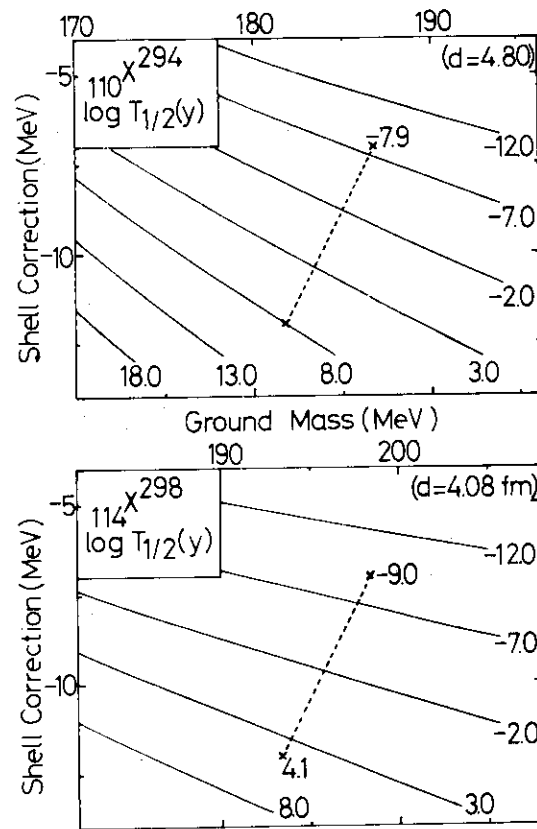


Fig. 5 Contour maps of spontaneous-fission half-lives for superheavy nuclei $^{294}_{110}$ and $^{298}_{114}$. The locations of our ground-state mass with typical single and double magic shell corrections are indicated by crosses.

1.8 超重核生成断面積の計算

京都大学原子エネルギー研究所

今西信嗣, 西 朋太, 藤原 一郎
(京都府宇治市五ヶ庄)

Calculated Production Cross Section of Superheavy Nuclei

Nobutsugu IMANISHI, Tomota NISHI and Ichiro FUJIWARA
(Institute of Atomic Energy, Kyoto University,
Uji, Kyoto)

The production cross section of superheavy nuclei (SHN) through the compound process is calculated and the most probable combinations of projectiles and targets are presented. In the calculation of the complete fusion cross section, the Coulomb barrier and a critical angular momentum are taken carefully into account and it is found that the complete fusion cross section is some orders of magnitude less than the total cross section deduced from the usual semi-classical sharp-cut-off model. A simple spin-dependent competition is introduced in the de-excitation process of a compound nucleus and the overall production cross sections are obtained.

1. はじめに

超重核の存在およびその生成の研究は今日の最も大きな関心事の一つである。すでに超重核の安定性については、理論的にいくつかの研究がなされ¹⁻⁴⁾、いずれも原子番号 $Z \sim 114$ 近傍に安定な "島" を予言している。しかるに実験面では、自然界での超重核の探究および加速器を用いた人工合成について精力的に行なわれつつあるがまだ確たる証拠はでていない。

超重核合成法として、いくつかの方法が提案されている⁵⁾。この報告ではそれらのうち最も良好と考えられ、しかも、反応断面積を算出する際にこれまでの重イオン反応からの外挿が比較的容易である複合核生成過程に基づいて、超重核合成の断面積の推定を行なう。

2. 完全融合断面積

重心系エネルギー E 、質量数 A_1 、原子番号 Z_1 の重イオンを質量数 A_2 、原子番号 Z_2 の標的核に照射したときには、一般に

$$Z_1 Z_2 e^2 / \hbar v \gg 1 \quad (v \text{ は相対速度})$$

が満足され、 ℓ 番めの部分波は角運動量 $[\ell(\ell+1)]^{1/2} \hbar$ に対応した古典軌道の近傍に局在され、反応断面積は以下の式で表わされる。

$$\sigma_r = \pi \lambda^2 \sum_{\ell}^{\ell_{\max}} (2\ell+1) = \pi R^2 (1 - V_c/E) \quad (1)$$

$$R = r_0 (A_1^{1/3} + A_2^{1/3}) \quad (2)$$

$$V_c = Z_1 \cdot Z_2 e^2 / R \quad (3)$$

r_0 = 核半径パラメター

しかし、超重核合成の場合は以下のような点で通常の比較的軽い重イオン反応より注意深い取り扱いが必要となる。

- ① 高原子番号をもつ核間の反応であるため、クーロン反撥力が非常に大きくなり、衝突直前の核は扁球状変形をおこし、クーロンしきい値が核変形を伴わない場合より高くなる。
- ② 超重元素の分裂鞍部点は変形が非常に小さいため、衝突粒子間の衝突パラメターがとりうる大きさが制限される。
- ③ 衝突後もちこまれる角運動量に伴う回転エネルギーとポテンシャル・エネルギーとのかねあいから、もちこみうる角運動量が非常に制限される。
- ②と③は臨界角運動量を決める。
- ④ 超重元素領域では滴模型に基づく障壁はなく、殻構造に基づく障壁があるのみであると考えられている。^{1~4)}したがって核の励起エネルギーが増加するにつれ、殻効果は小さくなり、ある励起エネルギー以上では障壁は消えると予想される。

以下の節でこれらのことを検討する。

2.1 クーロン障壁

以前入射粒子として⁴⁰Arまでの比較的軽い重イオンを用いた場合、クーロン障壁をEq.(3)であらわしたとき、 r_0 の値は1.45 fmが妥当とされてきた。しかし、たとえば、⁸⁴Kr + ¹¹⁶Cdとか⁸⁴Kr + ⁷²Ge反応ではクーロン障壁は $r_0 = 1.45$ fmを用いた値よりはるかに高く、 r_0 としては $r_0 = 1.32$ fmを用いる必要があるとしている。⁶⁾このことは定性的には、2つの衝突核間に働くクーロン反撥力に基づき、衝突軸を対称軸とするような扁球状変形がおこるためと予想される。この変形の程度はクーロン反撥力および核の変形のしやすさに依存する。いまごく単純に入射粒子番号に対し、 r_0 をプロットし、直線で外挿すると、Xeを入射粒子とする場合は $r_0 = 1.2$ fmとなる。

2.2 臨界角運動量

超重元素領域核の臨界角運動量を以下の2つの点から推定する。

- i) NilssonらおよびNixらによって行なわれてきた超重核のポテンシャル表面の計算によると基底状態の安定点は変形零の位置にあり、既存の核に較べ非常に小さな変形で容易に分裂してしまう。したがって2つの重核が衝突して、超重元素領域核で複合核を形成するためには、衝突パラメターが十分小さく、2つの核が超重元素の鞍部点以内におさまる必要がある。この衝突パラメターの限界値を ρ_0 とすると、とりうる角運動量 J_ρ は

$$J_\rho = [2\mu(E-V)]^{\frac{1}{2}} \rho_0 / \hbar^2 \quad (4)$$

で与えられる。ここで μ は換算質量である。たとえば、⁴⁸Cd + ²⁴⁸Cm → ²⁹⁶116* 反応では、クーロン障壁近傍での入射エネルギー $E_{lab} = 4.8$ MeV/Aで $J_\rho = 9$ 、 $E_{lab} = 5.0$ MeV/Aで $J_\rho = 31$ である。

- ii) 複合核形成時にもちこまれた角運動量は回転運動に使われる。回転運動に伴うエネルギー E_R は

$$E_R = \frac{\hbar^2}{2I(\beta)} \cdot J(J+1) \quad (5)$$

で与えられる。⁷⁾よく知られているように、慣性モーメント I は P_2 変形パラメータ β の 2 乗、したがって、Bolsterli らの用いている変形パラメータ y の 2 乗に比例する。慣性モーメントの β 依存に伴ない回転エネルギー E_R は β^2 に反比例して変形とともにかわる。したがって角運動量 J が大きいほど変形が大きくなるにつれて、回転エネルギー E_R は急速に減少する。角運動量が大きくなり、ある一定の角運動量 J_r を越えるとポテンシャル・エネルギーと回転エネルギーの和に極小点が鞍部点以内に存在せず、したがって複合核は形成されず、瞬時核分裂にいたる。

慣性モーメント I の超重元素領域での値は

$$I = I_0 (A/A_0)^{2/3} (\beta/\beta_0)^2 \quad (5)$$

を用いて推定することができる。⁸⁾ここで、 A_0 , I_0 , β_0 は既存のある核の質量数、慣性モーメント、基底状態変形である。アクチノイド元素の値を基準に用いると、変形 $\beta = 0.25$ 近傍で $A \approx 300$ の核の回転定数 $\hbar^2/2I$ は ~ 6 keV となる。この値を用いたとき回転エネルギー + ポテンシャル・エネルギーの変形依存性の一例を Fig. 1 に示す。ここでポテンシャル・エネルギー曲線は Bolsterli らの得たものをもとにした。この図から判るように、たとえば、 $^{48}\text{Ca} + ^{244}\text{Pu} \rightarrow ^{292}114$ でできると予想される複合核の角運動量 J_r は最大 12 程度でそれ以上になると瞬時核分裂を起こすか、粒子放出にいたる前に分裂すると考えられる。 $^{86}\text{Kr} + ^{232}\text{Th} \rightarrow ^{318}126$ で予想される複合核は分裂障壁が低いため、 J_r としてはたかだか $J_r \sim 3$ 程度である。

以上のことから複合核形成に有効な角運動量の最大値 J_{crit} はこれまで述べてきた 2 つの角運動量 (J_ρ , J_r) のうちの最小値である。Fig. 2 にこれら、2 つの角運動量で制限したときの完全融合断面積および Natowitz⁹⁾ の実験値から外挿して求めた J_c で制限したときの断面積の計算値の例をしめす。ここで入射粒子 ^{48}Ca , ^{76}Ge および ^{86}Kr の核半径パラメータ r_0 はそれぞれ、1.45, 1.32 および 1.45, 1.32 および 1.32 fm を用いた。 σ_R は Eq. (1) から計算される値、 σ_ρ , σ_{rot} および σ_c は、それぞれ、角運動量 J_ρ , J_r および J_c で切った場合に予想される完全融合断面積である。反応の Q 値は Fiset³⁾ の質量欠損から求めた。この図から判るように超重元素領域での複合核形成の完全融合断面積は σ_R に較べ $1/100$ 程度あるいはそれ以下になる。たとえば $^{48}\text{Ca} + ^{248}\text{Cm}$ 反応で約 10 mb, $^{76}\text{Ge} + ^{232}\text{Th}$ 反応で 5 mb, $^{86}\text{Kr} + ^{232}\text{Th}$ でたかだか 3 mb 程度である。

3. 中性子放出と核分裂の競争および生成断面積

Morreto は殻模型および BCS ハミルトニアンに基礎を置き統計的手法で励起核の変形確率ならびに分裂幅 Γ_f および中性子放出幅 Γ_n を励起エネルギーの関数として求めた¹⁰⁾。Morreto の $(\Gamma_f/\Gamma_n)_0$ の値は核の J 依存性が入っていない。そこで非常に単純に

$$(\Gamma_f/\Gamma_n)_J \propto \exp \left[\frac{J(J+1)\hbar^2}{2} \left(\frac{1}{\tau_e I_e} - \frac{1}{\tau_f I_f} \right) \right] \quad (7)$$

と考える。ここで τ_e , τ_f は核温度の平衡点および鞍部点での値、 I_e , I_f はそれぞれ平衡点および鞍部点での慣性モーメントである。そうすると、各放出段での平均の Γ_f/Γ_n は

$$\Gamma_f/\Gamma_n \propto \frac{\sum (2J+1) \exp \left[\frac{J(J+1)\hbar^2}{2} \left(\frac{1}{\tau_e I_e} - \frac{1}{\tau_f I_f} \right) \right]}{\sum (2J+1)} \quad (8)$$

で与えられる。この J 依存性を考慮して、Morreto の求めた $(\Gamma_f/\Gamma_n)_0$ を用いると、先に求めた完全融合断面積から超重元素領域核の生成断面積が推定できる。入射粒子と標的核の組合せのうち最も良好と考えられるいくつかの場合の超重元素生成断面積の結果を Table 1 に示す。核半径パラメータ r_0 は前に述べた値を用いた。反応の Q 値は Fiset ら³⁾ の計算結果に基づいた。複合核形成でとりうる最大の角運動量 J_{crit} は

$$J_{crit} = \min(J_p, J_r)$$

である。 σ_{max}^{CF} は完全融合断面積の最大値、 E_{bomb} はそのときの入射エネルギー、 E_{ex} は複合核の励起エネルギーである。 $\Pi \Gamma_n/\Gamma_f$ は上に述べた Γ_f/Γ_n から求めた。 σ_n は中性子放出後超重元素が基底状態におちつく断面積の最大値である。

4. 考 察

重イオン反応で完全融合を経て複合核が形成されるためには、もちこまれる角運動量が臨界角運動量以下でなければならない。基底状態が変形零の位置にあり、すこしの変形で核分裂に到る超重元素領域核の場合は、ポテンシャル・エネルギーと回転エネルギーの競争による角運動量の制限が最も大きい。したがって、完全融合断面積が最も大きくなる入射粒子と標的核の組合せは、なるべく持込み角運動量が小さく、しかも形成される複合核の分裂障壁が高いものである。

Γ_n/Γ_f の値も分裂障壁の高さに非常に強く依存する。いずれにしても分裂障壁が高いと予想される領域に複合核を形成するには、この計算で示したような、 ^{48}Ca とか ^{76}Ge のような非常に中性子過剰な核をこれまた ^{248}Cm とか ^{252}Cf あるいは ^{226}Ra とか ^{232}Th のような中性子最過剰核に照射する必要がある。しかも、入射粒子と標的核の組合せがごく限られたものに限定される。このように同位体存在比の大きい核を入射粒子として採用できず、同位体存在比の非常に小さい核を入射粒子とする必要があること、また通常これまで、あまり重イオンとして用いられなかった元素であるなどの点からして超重元素の人工的合成は非常に困難なものと予想される。

さらに分裂障壁の計算値はいくつか例があるが、それらの結果は相互にかなり異なり、その差異は時には 2~3 MeV あるいはそれ以上にも達する。これは主として用いる単一粒子殻模型のポテンシャルの形およびそれに要するパラメータのあいまいさによる。したがって、この計算に用いた分裂障壁の高さがもし 2 MeV 程度過算していたとすれば、 Γ_n/Γ_f は Table 1 の値の 1/100 程度になり、したがって、生成断面積も 1/100 程度までさがる。いずれにしても、生成断面積は形成される複合核の分裂障壁の高さに大きく依存しているといえる。

References

- 1) Nilsson S. G. et al.: Nucl. Phys. A131 1 (1969)
Tsang C. F. and Nilsson S. G.: Nucl. Phys. A140 289 (1970)
- 2) Bolsterli M., Fiset E. O., Nix J. R. and Norton J. L.:
Phys. Rev. C 5 1050 (1972)
- 3) Fiset E. O. and Nix J. R.: priv. com.
- 4) Brack M. et al.: Rev. Mod. Phys. 44 320 (1972)
- 5) Swiatecki W. J.: Nuclear Reaction Induced by Heavy Ions;
ed. Bock R. and Hering W. R. (North-Holland Pub. Co.
Amsterdam, 1972)
- 6) Gauvin H., Le Beyec Y., Lefort M. and Deprun C.: Phys.
Rev. Letts. 28 697 (1972)
- 7) Diamond R. M., Stephans F. S. and Swiatecki W. J.: Phys.
Letts. 11 315 (1964)
- 8) Kelson I. and Shoshani Y.: Phys. Letts. 40B 58 (1972)
- 9) Natowitz J. B.: Phys. Rev. C 1 623 (1970)
- 10) Moretto L. G.: Nucl. Phys. A180 337 (1972)

Table 1. Calculated cross sections for the production of super heavy nuclei.

Reaction	r_0 fm	$-Q$ MeV	J_{crit}	σ_{max}^{CF} mb	E_{bomb} MeV/A	E_{ex} MeV	$\Pi \Gamma_n / \Gamma_T$	σ_n mb
$^{244}\text{Pu}(^{48}\text{Ca}, 3n)^{289}_{114}$	1.45	159.1	12	12	4.75	31	0.027	0.32
$^{248}\text{Cm}(^{48}\text{Ca}, 3n)^{293}_{116}$	1.45	164.0	12	12	4.83	30	0.42	5
$^{252}\text{Cf}(^{48}\text{Ca}, 3n)^{297}_{118}$	1.45	168.6	12	12	4.90	29	1	12
$^{226}\text{Ra}(^{76}\text{Ge}, 4n)^{298}_{120}$	1.32	261.7	12	5.5	5.27	37	1	5.5
$^{232}\text{Th}(^{76}\text{Ge}, 4n)^{304}_{122}$	1.32	269.8	12	5.4	5.32	35	0.17	0.9
$^{226}\text{Ra}(^{86}\text{Kr}, 2n)^{310}_{124}$	1.32	309.7	10	3.2	5.30	20	0.4	1.3
$^{232}\text{Th}(^{86}\text{Kr}, 2n)^{316}_{126}$	1.32	321.1	3	0.3	5.35	15	0.025	0.0075
$^{176}\text{Yr}(^{136}\text{Xe}, 4n)^{308}_{124}$	1.20	390.0	7	1	5.52	34	0.009	0.009
$^{180}\text{Hf}(^{136}\text{Xe}, 4n)^{312}_{126}$	1.20	400.1	7	1	5.60	34	0.00008	0.00008

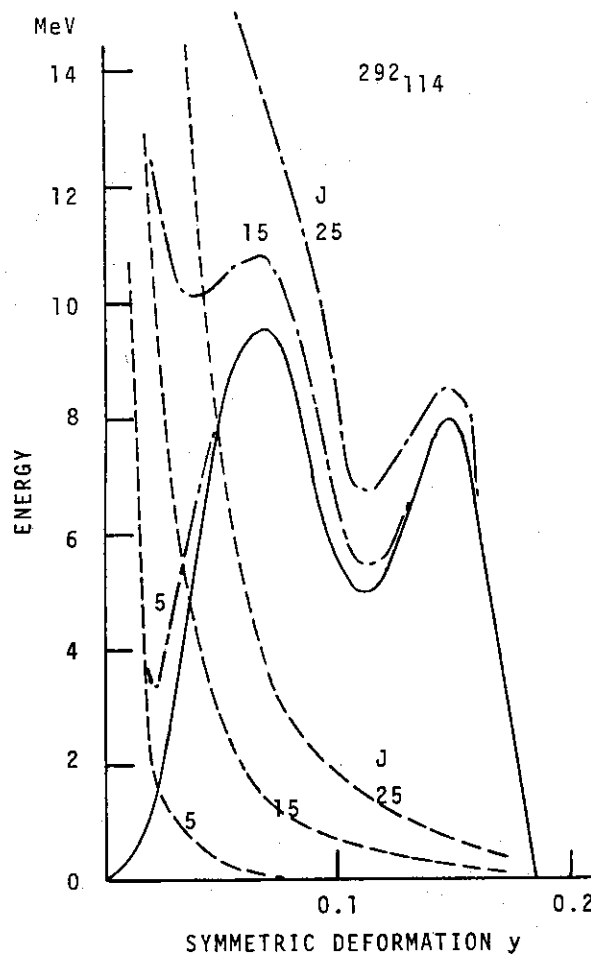


Fig. 1 The rotational- and the potential-energy versus deformation y . The curves are as follows: solid line, the potential energy curve [Bolsterli et al. Ref. 2]; dashed lines, rotational energies; dot-dash lines, potential energy + rotational energy.

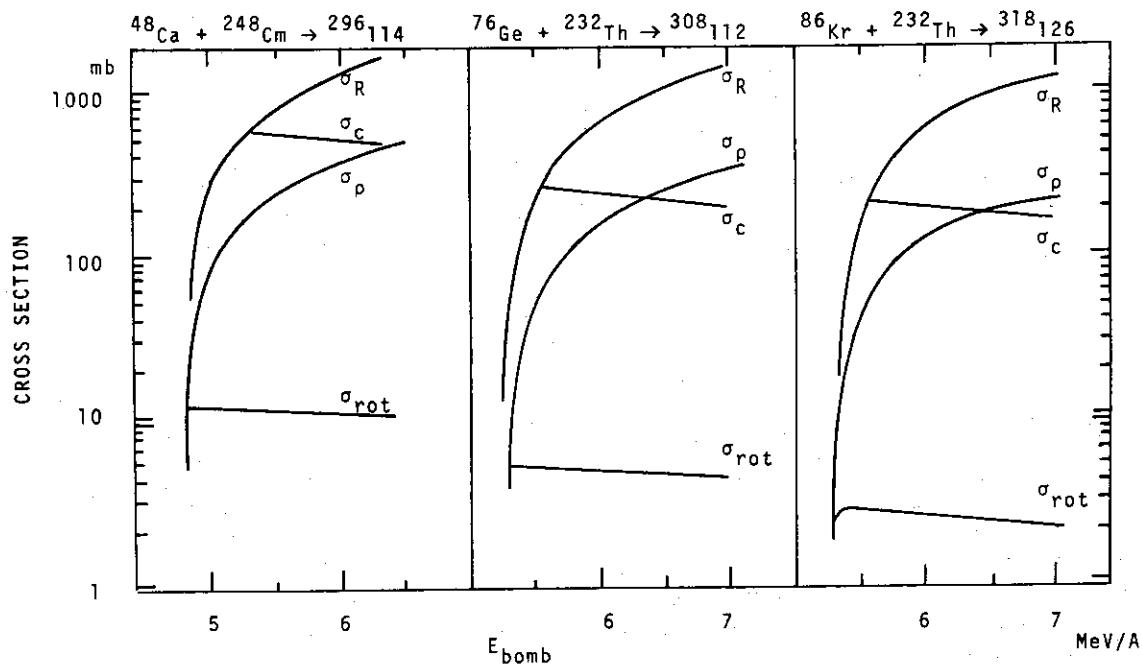


Fig. 2 Calculated complete fusion cross sections for $^{48}\text{Ca} + ^{244}\text{Cm}$, $^{76}\text{Ge} + ^{232}\text{Th}$ and $^{86}\text{Kr} + ^{232}\text{Th}$ reactions.

2. 重・超重元素の化学

2.1 重・超重元素^{*}の化学

日本原子力研究所 上 野 馨
(茨城県那珂郡東海村)

The Chemistry of Heavy and Superheavy Elements

Kaoru UENO
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun Ibaraki)

The developments in the field of actinide and transactinide elements are reviewed, including the discovery, preparation, purification and chemical properties. Transuranium elements are produced from uranium by neutron irradiation or by heavy ion bombardment. The elements of atomic number up to 100 are obtained by successive build-up in a nuclear reactor, in which neutron absorption and beta decay occur alternately. In the neutron shower of a nuclear explosion, the heavier isotopes of the initial nuclide are formed by simultaneous absorption of several neutrons, which are then followed by the beta decays to give the elements of higher atomic numbers. Still heavier nuclides are produced by heavy ion bombardment with an accelerator. The precipitation processes based on coprecipitation or adsorption, as well as paper chromatography and electrophoresis, are normally used as analytical methods. Extraction chromatography is suitable for the analytical separation of transplutonium elements and also for the purification and isolation of their milligram quantities. A double recoil method is generally used for the separation of short-lived heavy nuclides. Solvent extraction and ion exchange are the techniques most widely used for the separation of long-lived transuranium elements. Electronic configuration, oxidation states, properties of the metals and oxides, and chemical properties in the solution are also explained. The most conspicuous difference between the lanthanide and the actinide elements is the greater variety of stable oxidation states of the latter. Finally, research and development on the transuranium elements in JAERI are described.

1. はじめに

83 番元素ビスマスより大きい原子番号の元素は、総て放射性核種で構成されている。92 番元素ウランまでは天然に存在するが、93 番元素ネプツニウムより重い元素は人工的に合成され、105 番元素までが知られている。この中で 89 番元素アクチニウムより 103 番元素ローレンシウムまでの

* ; 重元素とは鉛より重く、現在存在が確認されている 105 番元素位までの元素を、超重元素とはさらに重く 114 番、126 番近くの原子番号をもつ元素と理論的に考察されている。

15 元素はアクチノイドに属する。104 番元素はエカハフニウム 105 番元素はエカタンタルと云われている**。

こゝではアクチニウムより重い元素を対象として、その化学について示す。

2. 発見の歴史

1889年に Debierne によってアクチニウム, 1828年に Berzelius によってトリウム, 1917年に Hahn と Meitner によってプロトアクチニウム, 1789年に Klaproth によってウラン, がそれぞれ発見された。人工的に合成される超ウラン元素の中の最初の元素ネプツニウムが 1940年に Mc Millan によって発見されて以来, 約 30 年の間に 12 の新元素が合成された。プルトニウム, アメリシウム, キュリウムまでの元素は比較的簡単に発見されたが, それより重い元素の合成には十分な量のアメリシウムとキュリウムの生産が前提条件となり, 併せて標的物質の放射能が強いため, 高放射性の出発物質の共存下で生じた新しい元素に起因するごく少量の放射能を検出するための効果的な化学分離法の開発が必要となった。また危険な α 放射体から健康障害を最小に留めるための遠隔操作の諸法の開発も要求された。

1949 から 50 年にかけて, これらの諸問題が解決されバークリウム, カリホルニウムの両元素が合成された。新元素の原子番号は, 分離に用いたイオン交換樹脂柱からの溶離位置で定められた。1952 年エニウエック環礁でおこなわれた熱核爆発実験で生じた放射性降下物の試料からアインスタイニウムとフェルミウムが発見された。メンデレビウムの生成量が数時間の照射当り数原子と少ないことが予測されたので, 反跳捕集法が開発され新核種の確認に用いられた。1958 から 61 年にかけてノーベリウムとローレンシウムはさらに改良された捕集法を使い, 核的性質の測定によって合成が証明された。104 番元素は塩化物の揮発性の差を利用してアクチノイドから分離され確認され, 105 番元素の確認にはニオブとの化学的性質の類似性が使われた。

112 番元素の合成が報じられているが確認されていない。核の安定性の議論から 114 番元素など超重元素の存在が推察され, その探索が続けられているが発見の報告はない。

3. 製 法

ウランまでの元素は鉱物から分離される。超ウラン元素の中で極く微量のネプツニウム, プルトニウム以外は天然に存在しないので人工的に合成される。微量な超プルトニウム元素は, ウランやプルトニウムなどを加速した粒子で照射して合成されるが, しかし可秤量の製造は通常原子炉内でのプルトニウムやアメリシウムの照射あるいは使用済み燃料再処理廃液, プルトニウム精製廃液からの分離による。

3.1 鉱物からの抽出

トリウムはトール石, モナズ石などより, ウランは閃ウラン鉱, 瀝青ウラン鉱などから分離される。プロトアクチニウムは, ウランやラジウムの抽出残渣から分けられる。

3.2 中性子捕獲法による製造

原子炉内照射と熱核爆発による照射とに大別される。

3.2.1 原子炉を使用する製造

** ; 104, 105 番元素にはそれぞれ研究者によって名称が提案されているが, IUPAC ではまだ (1972 年現在) 決定されていない。

合成される超ウラン元素の量は放射性壊変と核分裂との競合により制限される。熱中性子束 $10^{11} \sim 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の実験炉、 $\sim 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の材料試験炉および、 $\sim 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の高中性子束原子炉など種々の原子炉が目的に応じて利用される。

^{238}U 、 ^{241}Am の研究炉による短期照射で、トレーサ実験に使う ^{239}Np 、 ^{242}Cm が得られる。

^{239}Pu を出発核種とすれば Fig. 1 に示したように、 ^{252}Cf の生成には 13 ケの中性子を加えねばならないのでカリホルニウムの生成速度は中性子束に非常に影響される。

プルトニウムから出発して超プルトニウム元素の製造は通常 a. ^{239}Pu の ^{242}Pu 、 ^{243}Am および ^{244}Cm への転換、b. 前記生成核種の照射によるカリホルニウム同位体の製造、c. カリホルニウムの照射によるアインスタイニウムおよびフェルミウムの合成、の三段階を経て進められる。

第 1 段階では、 ^{239}Pu が 99 % ^{242}Pu に変わるまで照射される。出発核種の ^{239}Pu 、10 kg から約 0.6 kg の ^{242}Pu と約 0.3 kg の ^{243}Am 、 ^{244}Cm を生成し 9.1 kg は核分裂生成物となり消費される。プルトニウム、アメリシウムおよびキュリウムは核分裂生成物より分離した後、高中性子束原子炉で照射する。18 ヶ月間の照射で ^{242}Pu 、10 g 当り約 5.2 mg の ^{252}Cf が生成すると言われている。 ^{239}Pu の 0.3 % が ^{252}Cf に変換され、残りの 99.7 % は核分裂を起こして失われると計算されている。

分離されたカリホルニウムを再照射しアインスタイニウムとフェルミウムを製造する。これらの元素では最も寿命の長い同位体でも数日の半減期であるため、照射期間は短い。フェルミウムより原子番号の大きい元素はターゲットの核的性質から原子炉で作ることは困難である。

3.2.2 熱核爆発による製造

熱核爆発による超プルトニウム元素の生成は、原子炉による合成と著しく異なるが、それは核爆発によって発生した $\sim 10^{38} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ にも達する強大な中性子束と、 10^{-8} 秒以下の短時間照射に起因する。

核爆発によって放射される中性子の持続時間が生成する同位体の β^- 壊変の半減期より非常に短いので、極端に中性子過剰のウラン同位体が生成する。この方法で合成・分離された最も重い核は ^{257}Fm である。

3.2.3 廃液からの回収

ウランを燃料として使用する原子炉ではネプツニウム、プルトニウムのほかアメリシウム、キュリウムなどが運転中常に生成されている。したがって使用済み燃料の再処理廃液から kg 量のアメリシウム、キュリウムが回収されているが、源液が多量の核分裂生成物を含んでいるので高放射線の遮蔽を考慮した施設を必要とする。

その他 ^{241}Am はプルトニウム精製廃液から得られる。使用済み燃料から分離されたプルトニウムは、 ^{239}Pu の他に質量数 240、241、242 の同位体を含んでいる。この中で ^{241}Pu は半減期 14 年で ^{241}Am に変わるので、市販のプルトニウム製剤にはかなりの量の ^{241}Am が生成し、プルトニウムの研究を妨げることになる。したがって研究に先立っておこなわれるプルトニウム精製により生じた廃液は、 ^{241}Am を高放射線の防護なしに得られる原料である。

3.3 荷電粒子照射による製造

この方法の特徴は生成核の原子番号が、標的核と衝撃荷電粒子の原子番号の和にほとんど等しいということである。また 100 番以上の原子番号の元素は、この方法でのみ合成されている。しかしながら加速器を使った核反応では生成量が少なく、目的とする元素の数原子の合成にとどまることもある。

陽子や α 粒子など軽い粒子を用いた照射では標的核の原子番号より1～2上の元素が合成されるが、酸素やネオンなどの重イオンによる衝撃では一度に原子番号を8～10上げることができる。

ノーベリウム検出に用いられた装置をFig. 2に概念図的に示す。加速された ^{12}C で照射されたキュリウムからノーベリウム原子が放出され、負に荷電した金属の移動ベルトBへ移る。ベルトの速度は調節されていて、ノーベリウムの壊変生成物フェルミウムが捕集箔Aに移り放射能が測定される。ノーベリウムの半減期はベルトの速さと、捕集箔上のフェルミウムの分布から計算される。この二重反跳分離法は短寿命の重い核の分離・検出に用いられている。

3.4 取り扱い施設

高中性子束原子炉で照射した試料には、自発核分裂の半減期が短い核種をはじめ、多量の α 放射体および核分裂生成物を含むので、その化学処理には $\alpha \cdot \beta \cdot \gamma$ 線および中性子を遮蔽した特別の施設が用いられる。この目的のために開発されたのが水ケープで、水および添加ホウ素により試料より放射される中性子を遮蔽している。

4. 分離と精製

溶媒抽出法とイオン交換法は、族分離・相互分離に最も広く利用される。酸化-還元サイクルは酸化状態を数種持つ元素に対して特に有効であるが、III価が特に安定な超プルトニウム元素の分離には数段の分離過程が必要となる。共沈あるいは吸着に基づく沈殿法は、ペーパクロマトグラフ法や電気泳動法と同様に、分析法として利用される。カラム分離の便利さと選択的抽出の利点を持った抽出クロマトグラフ法は分析的分離のみならず、超プルトニウム元素のmg量の精製と分離に使用される。

4.1 沈殿法

アクチノイド・イオンの共沈に用いられる試薬には、 LaF_3 , BiPO_4 , $\text{K}_3\text{La}(\text{SO}_4)_3$, $\text{NaUO}_2(\text{CH}_3\text{COO})_3$ があげられる。沈殿法の欠点は、特異性がなくキャリアの添加が新たな不純物を溶液中に持ち込むことになり、最終精製では再び取り除かねばならぬことである。

4.2 昇華法

ウラン、ネプツニウムやプルトニウムの六フッ化物は昇華温度、沸点が約 60°C の揮発性の化合物である。適当なフッ素化剤によって選択的に分離ができ、フッ化ナトリウムやフッ化マグネシウムへの吸・脱着により高い分離比が得られる。ウランやプルトニウムは塩素化と塩化物の昇華により分離できるが、高温を必要とする。

4.3 ペーパクロマトグラフ法と電気泳動法

ペーパクロマトグラフ法によりアクチニウムからアメリシウムに至る元素の分離ができる。アルコールと鉍酸の混合物を展開に用いると3～4の異なった元素群に分かれるが、 Np(VI) , Pu(VI) は還元され Pu(V) は不均化するので Np(IV) , Pu(IV) , (III)に変えておく必要がある。

4.4 溶媒抽出法と抽出クロマトグラフ法

テノイルトリフルオロアセトン (HTTA), オキシシン, リン酸トリブチル (TBP), ビス(2-エチルヘキシル)リン酸 (HDEHP)などの有機試薬が利用される。

IV価のアクチノイドは M(TTA)_4 (MはTh, Pu)の錯体を作り、 $\text{pH } 0 \sim 1$, $0.1 \sim 1 \text{ M HTTA}$ ベンゼン溶液により定量的に抽出され、Fig. 3に示すようにII, III価のイオンから分離される。II価イオンはIII価イオンよりさらに高い pH で抽出される。ノーベリウムの抽出挙動がローレン

シウムと異なりラジウム、バリウムと似ていることからその原子価が推定された。

臭素酸カリウムを含む10M硝酸溶液中から0.15MHDEHPでBk(IV)を抽出し、III価の超プルトニウム元素から分離する。分離比は 10^6 に達する。Bk(IV)は過酸化水素でIII価に還元し水相へ逆抽出される。

抽出クロマトグラフ法では、抽出剤をテフロン粒や珪礫土などの適当な固定剤に吸着させ、固定相としてカラムに入れ、希鉱酸や錯化剤を移動相として使用する。四級アンモニウム塩やHDEHPがアメリシウム、キュリウムや超キュリウム元素の分離に使われる。アリコート336-Sを固定相、微酸性硝酸リチウムを移動相として2.7の分離比をアメリシウム-キュリウムに対し、1.46をカリホルニウム-アインスタイニウムに対して得た。HDEHPを固定相、希塩酸または硝酸を用いれば、2.1~2.4の分離比でアインスタイニウムとフェルミウムが分離される。

4.5 イオン交換法

陰イオン交換樹脂は核分裂生成物からのアクチノイドの族分離、あるいはプルトニウムの単離に使用される。

塩酸溶液中のIII~IV価アクチノイドは次のような挙動を示す。U(VI), Pu(VI), Np(VI)は6M以上の塩酸から吸着し、3M以下の塩酸で溶離される。この系ではNp(VI), Pu(VI)が除々に還元されることに注意しなければならない。Pa(V)は6M以上の塩酸から吸着される。U(IV)とNp(IV)は濃塩酸溶液から、Pu(IV)は4M以上の塩酸から吸着される。III価のアクチノイドは8M以上の塩酸溶液でわずかに吸着がみられるが、分配比は小さい。

硝酸溶液中からの核分裂生成物の分配比は小さい。7M硝酸とすればPu(IV)は選択的、定量的にウランおよび超プルトニウム元素および核分裂生成物から分けられる。その他塩化リチウム、硝酸アルミニウム、チオン酸アンモニウムなどが分離に用いられる。

陽イオン交換樹脂はアクチノイド諸元素の相互分離に主として利用される。各イオンの溶離位置は溶離された元素の原子番号を示している。

希鉱酸溶液から樹脂上に固定したのち、錯化剤で溶離するのが手すじである。最もよく利用される錯化剤は α -ヒドロキシイソ酪酸であるが、クエン酸、乳酸なども用いられる。Fig. 4は照射アメリシウムからキュリウムを分離したときの溶離曲線である。近年高中性子束原子炉で照射した試料の分離のために高圧イオン交換法が開発された。この方法によれば分離に要する時間が短縮されさらに試料の放射線による溶液の分解もおさえられる利点がある。代表的溶離曲線をFig. 5に示す。

5. 化学的性質

5.1 実験法

アクチノイドの化学的実験は、利用できる量とその比放射能によって変わってくる。ネプツニウムとプルトニウムの化学的性質は、 ^{237}Np , $^{239-242}\text{Pu}$ の数gを使って研究できるが、アメリシウムとキュリウムでは $^{241,243}\text{Am}$ と ^{244}Cm のmgからg量でなされる。さらに重い元素は長寿命核種 ^{249}Bk , ^{249}Cf および ^{253}Es の μg 量が使用され、固体化合物の調製と研究、溶液の吸収スペクトルの測定などには、超微量化学の技術が要求される。パークレイのCunningham一派はこれらの技術をほぼ完成の域まで発展させた。Fig. 6に μg 以下の量の ^{249}Cf を使った固体化合物の研究手順を図式的に

示す。超フェルミウム元素ではトレーサー量でのみ研究がなされる。

異なった半減期の同位体を用いるときに化学的挙動が放射線化学効果によって変わってくることがある。 CmF_4 は CmF_3 のフッ素化で作られるが ^{244}Cm では得られても、 ^{242}Cm では合成できない。これは $^{242}\text{CmF}_4$ 格子の放射線による急速な崩壊によるためである。 $\text{Cm}(\text{C}_5\text{H}_5)_3$ の合成には ^{252}Cf の娘核種 ^{248}Cm ($t_{1/2} = 3.48 \times 10^4$ 年) を使う。

固体化合物の研究には通常 X 線回折法が利用されるがアインスタイニウム酸化物の研究には電子線回折法が用いられ、 10^{-9} g 量の $^{253}\text{Es}_2\text{O}_3$ により結晶学的研究がなされた。さらに 10^{-12} g 量の固体化合物の同定の可能性が推察されており、そうならば半減期が数時間の同位体で作られた化合物の研究ができることになる。

短寿命核種を用いる実験では、それ自身の壊変生成物によって汚染を起こすので、できるだけ手早く実験を進める必要がある。 ^{253}Es では ^{249}Cf が不純物として 3.5 % / day の割合で増えるが、さらに短寿命核種では自己汚染は大きくなる。

プルトニウムやアメリシウムの研究でも、自己放射線効果が無視できないことがある。 $^{241}\text{Am(VI)}$ の水溶液は 5 % / h の速度で自己還元されるが、これは AmO_2^{2+} と放射線による生成物との作用による。

このように非放射性元素の化学では経験しなかった新しい問題が多数存在する。

5.2 電子配置と酸化状態

Table 1 にアクチニウムより重い元素の電子配置と酸化状態を示す。

5 f の電子配置を持つアクチノイドの化学的性質は、4 f の電子配置をもつランタノイドに類似する。しかし 4 f 電子に比べて 5 f 電子の結合エネルギーが低く、外殻電子による遮蔽効果が小さいことから、軽いアクチノイドの化学を複雑なものとしている。

アクチノイドの最初の方の元素の高い酸化状態の安定性は、原子番号の増加とともに増すが、超ウラン元素では高い酸化状態の安定性が減退し、超プルトニウム元素では III 価が最も安定となる。個々の酸化状態の安定性に関するこれらの見解は、錯化剤のない水溶液、たとえば過塩素酸溶液についてだけ適用できる。

アクチノイドの種々の酸化状態の概要を簡単に示す。

II 価；水溶液中のノーベリウムの最も安定な酸化状態は II 価である。カリホルニウムからメンデレビウムまでの諸元素も溶液中で II 価が観測されている。固体の CfBr_2 は CfBr_3 の熱分解により得られる。

III 価；アメリシウムからメンデレビウムまでの諸元素とローレンシウムで最も安定な酸化状態である。 M_2O_3 (M は Pu から Es)， M_2S_3 (M は U から Cf)， MF_3 (M は U から Cf) などが特徴的な化合物である。

IV 価； MO_2 ， MF_4 (M は Th から Cf) が代表的化合物である。水溶液中では加水分解や不均化を起こし易い (Pu, Am)。TBP，エーテル類，ケトン類，アミン類や HTTA などに抽出され易い。

V 価； Pa(V) ， Np(V) を除けば水溶液中で不安定である。 MO_2^+ イオンは不均化の傾向が強く (U, Pu)，自己還元を起こし易い (Am)。

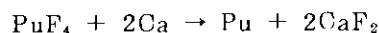
VI 価；ウランからアメリシウムに至る MO_2^{2+} イオンは原子番号が大きくなるにしたがって不安定となる。 NpF_6 ， PuF_6 ， $\text{NpO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 以外、超ウラン元素の 2 種の元素より構成された化合物は知られていない。

VII 価；ネプツニウムとプルトニウムで知られている。水溶液から $[\text{Co}(\text{NH}_3)_6]\text{NpO}_6 \cdot \text{aq}$ ，

$\text{Ba}_3(\text{PuO}_5)_2 \cdot aq$ などの化合物が得られる。

5.3 固体化学

アクチニウムよりアインスタイニウムに至る諸元素で金属が作られている。一般に金属はアクチノイドのハロゲン化物をアルカリあるいはアルカリ土類金属で還元して作る。



アメリシウムのような昇華し易い超プルトニウム元素の金属は、酸化物をランタンで還元しても作ることができる。 $\text{Am}_2\text{O}_3 + \text{La} \rightarrow \text{Am} + \text{La}_2\text{O}_3$

アクチノイド金属は電気化学的に陽性で反応性に富み、電気化学的に陰性な元素の多くと種々の化合物を作る。

Fig. 7 に金属の多形変態, Table 2 に代表的酸化物を示す。

5.4 溶液化学

アクチノイドイオンは錯化剤を含まない酸性溶液では M^{2+} , M^{3+} , M^{4+} , MO_2^+ , MO_2^{2+} として存在する。 MO_2^+ と MO_2^{2+} はそれぞれ I, および II 価のように行動する。近紫外, 可視, 近赤外部に狭く鋭い吸収帯を示す。5 f 電子転移に基づくこの吸収帯はアクチノイドイオンの同定や定量に用いられる。ウランからキュリウムまでの諸元素の各酸化状態における色を Table 3 に示す。加水分解, 水和, 錯体形成の度合は $\text{M}^{4+} > \text{MO}_2^{2+} > \text{M}^{3+} > \text{MO}_2^+$ の順となる。

各イオンの酸化還元, 不均化, 自己還元について略記する。

Ac(III): 安定, Th(IV): 安定, Pa(IV): 空気が存在しない場合安定。酸着で Pa(V) へ急速に酸化される。Pa(V) から亜鉛粉末あるいは, 電解還元によりつくられる。

Pa(V): 安定。強い還元剤で Pa(IV) へ還元される。

U(III): U(IV) から強い還元剤か電解還元で作られる。

U(IV): 空気が存在しなければ安定。 UO_2^{2+} 溶液から中程度の強さの還元剤か電解還元により得られる。

UO_2^+ : 不均化して急速に U(IV) + U(VI) となる。

UO_2^{2+} : 安定。加水分解し易い。

Np(III): 酸素の存在しない場合安定。Np(IV) から中程度の強さの還元剤を用いて作られる。

Np(IV): 安定。酸素によりゆっくり酸化される。

NpO_2^+ : 安定。高い酸濃度, たとえば $> 8\text{M}$ 硝酸で Np(IV) + Np(VI) へ不均化する。

NpO_2^{2+} : 安定。有機錯化剤や, イオン交換樹脂により急速に還元される。

NpO_2^{2+} : アルカリ溶液中で安定。アルカリ溶液中, ClO_2^- , $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$, あるいは O_3 を用い NpO_2^{2+} を酸化して作る。

Pu(III): 安定。 α 放射線の作用により酸化される。

Pu(IV): 濃い酸中で安定。希酸溶液中では不均化する。

PuO_2^+ : pH 2 ~ 6 でのみ安定。

PuO_2^{2+} : 安定。 α 放射線の作用により還元される。

PuO_2^{2+} : アルカリ溶液中でのみ知られている。

Am(III): 安定。強い酸化剤でのみ Am(V) と Am(VI) へ酸化される。

Am(IV): 濃フッ化水素酸とリン酸溶液中でのみ安定。

Am(III) + Am(IV) へ不均化し易い。

AmO_2^+ : 安定。 NpO_2^+ のように不均化は強酸溶液中でのみ起こる。

AmO_2^{3+} : 安定。急速な自己還元を起こす。

$\text{Cm}(\text{III})$: 安定。

$\text{Cm}(\text{IV})$: 15 M フッ化セシウム溶液中でのみ安定。

$\text{Bk}(\text{III})$: 安定。強い酸化剤でのみ $\text{Bk}(\text{IV})$ へ変え得る。

$\text{Bk}(\text{IV})$, $\text{Cf}(\text{III})$, $\text{Es}(\text{III})$, $\text{Fm}(\text{III})$, $\text{Md}(\text{II}, \text{III})$, $\text{No}(\text{II}, \text{III})$, $\text{Lr}(\text{III})$, $104(\text{IV})$: 安定。

6. 原研における研究

1957年 JRR-1 が設置された当初から超ウラン元素の合成に着手し ^{239}Np , ^{239}Pu を分離確認した。ネプツニウム、プルトニウムについての化学的研究を進めるとともに、1961年微量の ^{241}Am を照射し ^{242}Cm を合成した。また JRR-2 で数100時間照射し、数年間放置した ^{241}Am 試料を新に開発した HDEHP による溶媒抽出法とイオン交換法を併用してキュリウムを分離し、核的性質の測定から ^{243}Cm の生成を確認した。1970年、JMTR の稼動により高中性子束による長期照射ができるようになったので、 ^{241}Am 約10mg を1年間照射した。高放射性物質取り扱い施設で照射試料の外套を切り取り、放射線量を落して Fig. 8 に示す簡易 α γ 鉛セルに移し化学処理した。

セルは前面が5 cm厚の鉛で作られ放射線を遮蔽している。内容積は約1 m³ でマニプレーター1基と、トンク2基を備えており、沈殿の分離、イオン交換操作などが比較的容易にできるように設計されている。

混在する核分裂生成物などより超プルトニウム元素を分離し、 244 , 245 , ^{246}Cm を質量分析により確認した。また化学的に分離精製したカリホルニウム部分の自発核分裂速度を測定し、 $^{250,252}\text{Cf}$ を検出した。

他方 JRR-3 使用済み燃料の再処理により数100 g のプルトニウムを回収した。また JPDR 使用済み燃料の燃焼度測定のためにおこなわれた化学分析で、燃料中に ^{241}Am , 244 , ^{244}Cm などの超プルトニウム元素の生成を確認している。

プルトニウム精製廃液からの簡単な沈殿法、溶媒抽出法を併用したアメリカウム回収法を開発し、数100 mg の ^{241}Am を得た。

トリウムからアメリカウムに至る諸元素についての固体化合物、錯化合物についての研究も進めた。

7. おわりに

国内の大型動力炉の稼動、使用済み燃料再処理の開始などが近日にせまり、アクチノイド諸元素の保有量も急速に増大するものと思われる。これらの重い元素の優れた特徴を生かした利用法の開発とともに、溶液化学、固体化学、核化学的諸性質の研究開発、さらに超重元素の合成・確認などの研究の飛躍的進展が望まれる。

References

- 1) Keller C.: "The Chemistry of the Transplutonium Elements", Verlag Chemie GmbH (1971).
- 2) Katz J. J., Seaborg G. T.: "The Chemistry of the Actinide Elements", Methuen, London (1957).
- 3) Keller C.: Industries Atomiques & Spatiales, 6, 12 (1972).
- 4) Radiation Protection Problems Relating to Transuranium Elements, EUR-4612 d-f-3 (1971).

Table 1. Electronic configurations of gaseous actinide and transactinide atoms in the ground state, and oxidation states of the actinides and transactinides (the most stable state is underlined, while the values in parentheses have not been confirmed). (from Ref. 3)

Atomic number		Electronic configuration and term symbol*	Oxidation state
89	Actinium	$6d7s^2(^2D_{3/2})$	(2) <u>3</u>
90	Thorium	$6d^27s^2(^3F_2)$	(2)3 <u>4</u>
91	Protactinium	$5f^26d7s^2(^4K_{11/2})$	(3)4 <u>5</u>
92	Uranium	$5f^36d7s^2(^5L_6)$	2 3 4 5 <u>6</u>
93	Neptunium	$5f^46d7s^2(^6L_{11/2})$	3 4 <u>5</u> 6 7
94	Plutonium	$5f^67s^2(^7F_0)$	3 <u>4</u> 5 6 7
95	Americium	$5f^77s^2(^8S_{7/2})$	2 <u>3</u> 4 5 6
96	Curium	$5f^76d7s^2(^9D_2)$	(2) <u>3</u> 4
97	Berkelium	$5f^86d7s^2(^8G_{15/2})$ or $5f^97s^2(^6H_{15/2})$	<u>3</u> 4
98	Californium	$5f^{10}7s^2(^5I_8)$	2 <u>3</u> 4(5)
99	Einsteinium	$5f^{11}7s^2(^4I_{15/2})$	2 <u>3</u>
100	Fermium	$5f^{12}7s^2(^3H_6)$	2 <u>3</u>
101	Mendelevium	$5f^{13}7s^2(^2F_{7/2})$	2 <u>3</u>
102	Nobelium	$5f^{14}7s^2(^1S_0)$	<u>2</u> 3
103	Lawrencium	$5f^{14}6d7s^2(^2D_{5/2})$	<u>3</u>
104		$5f^{14}6d^27s^2$	4
105		$5f^{14}6d^37s^2$	(5)

* Outside the radon core $1s^22s^22p^63s^23p^6$
 $3d^{10}4s^24p^64d^{10}4f^{14}5s^25p^65d^{10}6s^26p^6$

Table 2. Typical actinide oxides

Compound	Lattice symmetry	Color
Ac ₂ O ₃	hexagonal	white brown to black green black green dark brown gray black black yellow brown black beige dark brown yellow brown yellow brown yellow black
ThO ₂	cubic	
UO ₂	cubic	
U ₃ O ₈	orthorhombic	
NpO ₂	cubic	
Np ₂ O ₅	monoclinic	
PuO	cubic	
Pu ₂ O ₃	hexagonal	
PuO ₂	cubic	
AmO	cubic	
Am ₂ O ₃	hexagonal	
AmO ₂	cubic	
CmO	cubic	
Cm ₂ O ₃	hexagonal	
CmO ₂	cubic	
Bk ₂ O ₃	cubic	
BkO ₂	cubic	
Cf ₂ O ₃	hexagonal	
CfO ₂	cubic	
Es ₂ O ₃	cubic	

Table 3. Ion types and corresponding colors for actinides. (from Ref. 2)

Element	M ⁺³	M ⁺⁴	MO ₂ ⁺	MO ₂ ⁺⁺	MO ₅ ⁻⁻⁻
Actinium	Colourless	—	—	—	Green Blue-green
Thorium	—	Colourless	—	—	
Protactinium	—	Colourless	(Colourless)	—	
Uranium	Red	Green	(Colour unknown)	Yellow	
Neptunium	Blue to purple	Yellow-green	Green	Pin to red	
Plutonium	Blue to violet	Tan to orange-brown	(Reddish purple) ^a	Yellow to pink-orange	
Americium	Pink	—	Yellow	Rum-coloured	
Curium	Colourless	—	—	—	

^a Predicted from the absorption spectrum of Pu(V).

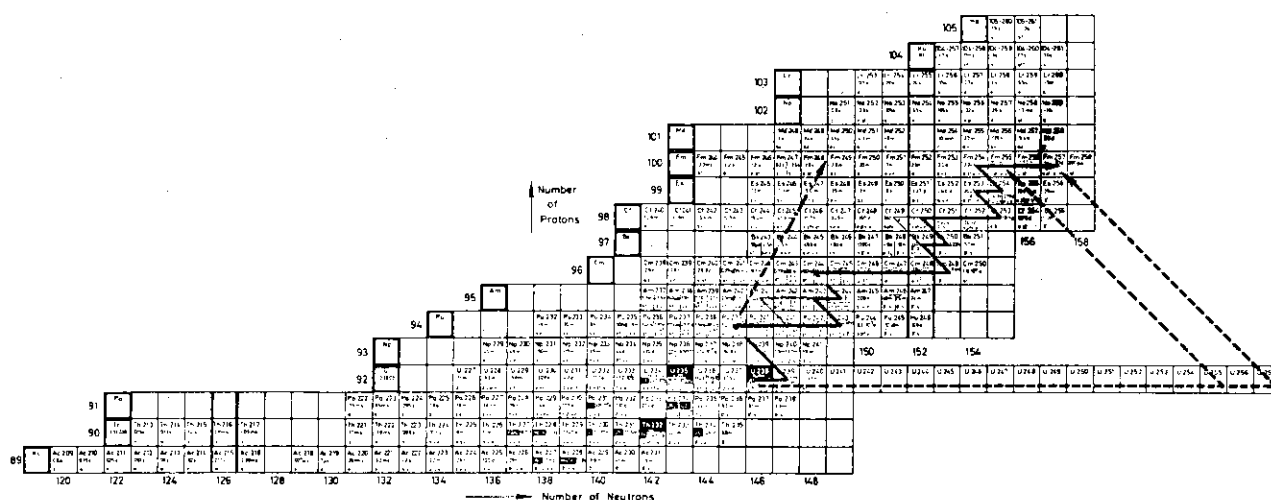


Fig. 1 Schematic representation of the various possibilities of synthesis of heavy transuranium nuclides (from Ref. 1).

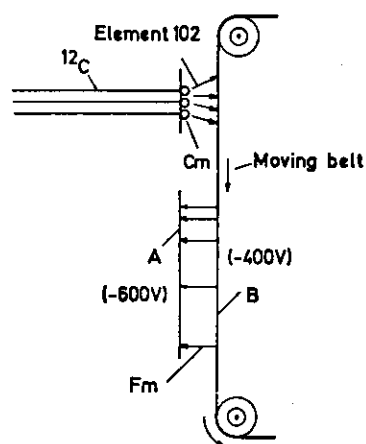


Fig. 2 Schematic representation of the experiment used for the first identification of Nobelium (from Ref. 1).

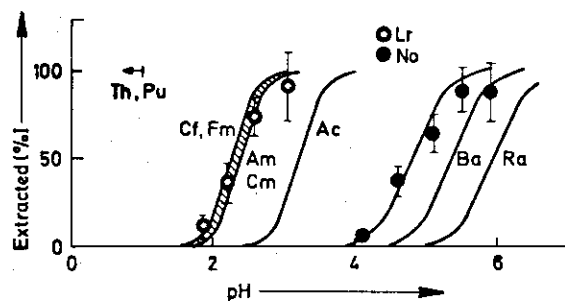


Fig. 3 Extraction curves for divalent and trivalent metal ions by thenoyl-trifluoroacetone/hexone from buffered aqueous solutions (from Ref. 3).

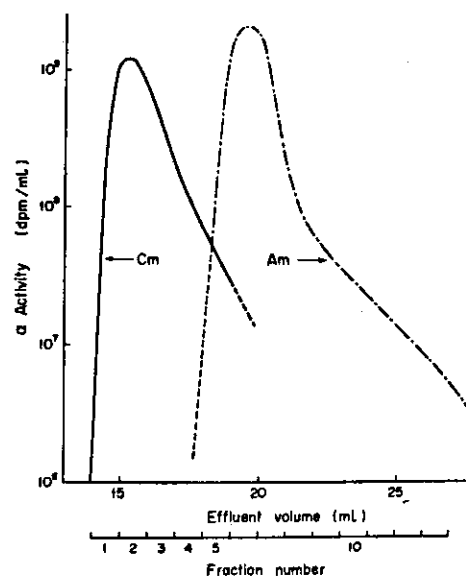


Fig. 4 Elution curve of americium and curium.

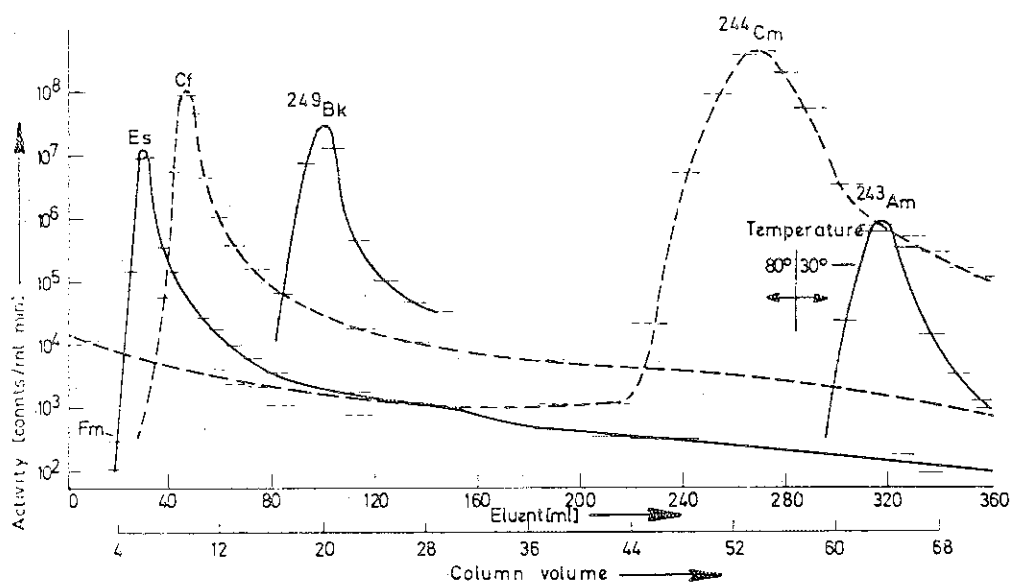


Fig. 5 Chromatographic separation of transplutonium elements by high pressure ion exchange (from Ref. 1).

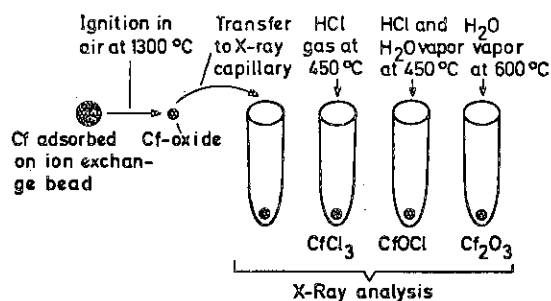


Fig. 6 Method of preparing the first californium compounds (from Ref. 3).

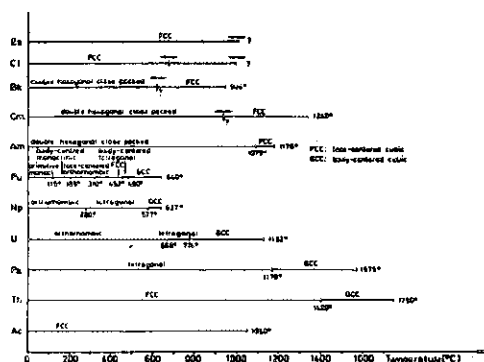


Fig. 7 Polymorphous modifications of the actinide metals (from Ref. 3).

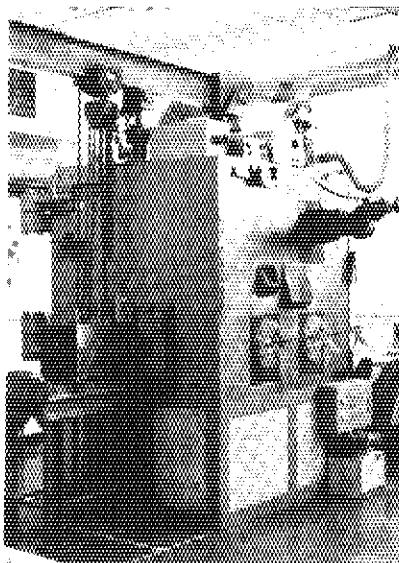


Fig. 8 A chemical hot cell.

2.2 重および超重元素の酸化状態

東北大学金属材料研究所

原 光雄, 佐藤明子, 三頭聡明

川筋伊佐務, 鈴木 進

(仙台市片平二丁目 1-1)

The Oxidation States of the Heavy and Superheavy Elements

Mitsuo HARA, Akiko SATO, Toshiaki MITSUGASHIRA,
Isamu KAWASUJI and Shin SUZUKI

(The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals,
Tohoku University, Katahira 2-chome, Sendai)

The observed oxidation states of the actinoids were discussed in comparison with those of the lanthanoids. The predicted oxidation states of the elements between $Z = 104-172$ were also discussed in connection with the extrapolated metal radii, the electron binding energies and ionization energies which had been deduced through the relativistic Hartree-Fock-Slater calculations.

1. ま え が き

元素の化学的性質は核外電子, 特に外殻電子に依存するが, その電子の結合エネルギー, イオン化エネルギー, あるいは原子 (またはイオン) 半径などに関連のある酸化電位により元素は種々の酸化状態をとる。従って元素の化学的性質は主に酸化状態によって特徴づけられる。

核外電子の殻への充填を基礎とする周期律表において $Z=103$ の Lr によっていわゆるアクチノイド系列が完結した。しかし $Z=104, 105$ の元素が発見され, $Z=110-120$ および $Z=154-170$ の2つの領域に比較的安定な原子核の存在が予想され周期律表はさらに延長されている。こうした超重元素の存在を確かめるには比較的安定とはいえ多くは短寿命のため壊変生成物を調べるとか X 線スペクトルを測定するなど方法は限られる。1 秒以上の寿命なら質量分析, 分光分析あるいは化学的方法で検出することも可能であろう。また地球上の鉱物, いん石や月試料あるいは宇宙線成分の中から超重元素を見い出そうとする場合には予め化学的性質について信頼しうる予測を行うことが不可欠である。以下は $Z \geq 89$ の重および超重元素が化学的性質を特徴づける如何なる酸化状態をとることが知られ, あるいは予想されているかを議論する。

2. アクチノイドの酸化状態

アクチノイドの外殻電子配置および既知の酸化数を表 1 に示す。Ra ($Z=88$) ですでに $6s$, $6p$ および $7s$ 殻は満たされており, $Z=89$ からは内側の $6d$ あるいは $5f$ 殻に電子が入る。系列の半ばまではそれらの殻の電子の結合エネルギーがほぼ等しいので電子の充填は不規則である。また充填された電子のイオン化エネルギーは小さいので高酸化状態が可能である。系列の中位の Cm は半充填配置 $f^7 d^1 s^2$ をとるが, スピン-軌道相互作用が大きいのでこの配置は $5f_{7/2}^6 5f_{7/2}^1 6d_{3/2}^1 7s_{1/2}^2$ であろう。さらに Z が増加すると $5f_{7/2}$ 副殻の結合エネルギーが $6d_{3/2}$ 副殻のものより小さく

なるので電子は $5f_{7/2}$ 副殻に順次充填される。外殻電子による遮蔽は $Z \geq 93$ では大きくなりイオン化エネルギーに大きな差を生じない。この状況はランタノイドの場合と同様であり、Cm 以降の元素は通常 3 価となる。

ランタノイドおよびアクチノイド間の類似性は 2 - 4 価の酸化状態において顕著であり、それらは通常 M^{2+} , M^{3+} , M^{4+} イオンとして存在する。5 価以上の酸化状態は酸性溶液では MO_2^+ , MO_2^{2+} , MO_2^{3+} イオンとして存在し、酸素との結合が強いのが特徴である。

Np および Pu の 7 価状態は 1967 年に Krot と Gel'man¹⁾ によって発見された。それらは化学的性質を研究するのに十分な安定性を有しており、酸化還元反応、錯体および固体化合物の生成、共沈や溶媒抽出における挙動などがすでに研究されている。²⁾ また Pu には 8 価状態さえ予想されており、7 価状態の発見は U から Am までの元素の最高原子価が 6 価であるという従来の定説を破るものでアクチノイドの化学に及ぼす影響は大きい。

3. 超重元素の酸化状態

未知元素の酸化状態はその酸化電位を予測して推定するしか方法がない。そのためには酸化電位に関連する物理的諸量、たとえばイオン化エネルギー、原子またはイオン半径および波動関数の動径分布を調べて酸化状態を予測する一方、既知元素の物理的、化学的性質を調べてその周期性を未知領域にまで延長することも必要である。図 3 に示す原子半径はこうした外挿法によって求められたもので Z が大きくなると精度が低下するのは止むを得ない。

3.1 周期律表上の位置

中性原子の基底状態における元素の電子配置は Hartree-Fock 計算によって求められており、それに基づく周期律表において超重元素は図 1 に示すような位置を占める。高周期になるほどいわゆるスピン-軌道相互作用による電子殻の副殻への分裂の度合いが大きくなるので、殻への電子の充填は低周期の元素の場合とは異なってくる。

Fricke ら³⁾ による相対論的 Hartree-Fock-Slater 計算によれば $Z=104-112$ および $Z=113-118$ の元素ではそれぞれ 6 d および 7 p 殻に電子が充填される。 $Z=119-120$ で 8 s 電子が充填された後、5 g 電子がはじめて現われる $Z=121-155$ のいわゆる超アクチノイドでは 5 g, 6 f, 7 d および 8 p 殻に不規則に電子が入る。⁴⁾ $Z=155$ から 7 d 殻への充填がはじまり、 $Z=164$ の元素では 7 d 殻は充満する。8 p 殻への分裂が大きいため $Z=165-168$ の元素では $8p_{3/2}$ 副殻の代りに 9 s と $9p_{1/2}$ 副殻が電子で占められるので 8 周期は $Z=164$ で終り、 $8p_{3/2}$ 副殻には $Z=169-172$ で電子が入る。 $Z > 172$ の元素についての信頼しうる議論はない。 $Z=104-172$ の超重元素はその外殻電子配置により、d 電子を持ついわゆる遷移元素である $Z=104-112$, $Z=156-164$ の元素、p 電子が原子価電子である $Z=113-118$, $Z=167-172$ の P 元素、 $Z=121-155$ の超アクチノイド、さらに s 電子が原子価電子である $Z=119, 120, 165, 166$ の元素と 4 つのグループに分けられる。各グループごとに主に Fricke³⁾ の報告を参考にしながら如何なる酸化状態が予測されているかを紹介する。

3.2 遷移元素の酸化状態

相対論的 Hartree-Fock-Slater 計算によれば $Z=104-112$ と $Z=156-164$ の元素では $d_{3/2}$ と $d_{5/2}$ 副殻に電子は順次充填され、原子およびイオンの全結合エネルギーの差、すなわちイオン化エネルギーは図 2 に示すような値となる。³⁾ 実験値と計算値との差は 6 周期の元素で 0.2 eV であり、7 と 8 周期の元素のイオン化エネルギーの計算値にはこの値を補正してある。6 - 8 周期の遷移元素のイ

オン化エネルギーは $d_{3/2}$ 副殻が満たされ $d_{5/2}$ 副殻への充填がはじまる Re, $Z=107$, $Z=159$ の元素で落ち込む。これは d 殻が 2 つの副殻に分裂するためであり、特に 8 周期の元素でその分裂は顕著で $d_{3/2}$ 副殻の電子は $d_{5/2}$ 副殻よりイオン化され易い。

7 周期の遷移元素：アクチノイド収縮はランタノイド収縮より小さいので図 3 に示すように原子半径は対応する 6 周期の元素より大きい。 d 電子の充填に伴って金属結合の d 性が次第に失なわれて半径は減少するが逆に共有結合性が増加してくるので半径は大きくなる。 $Z=104-108$ の元素はイオン化エネルギーが比較的小さく、また半径も大きいので考えられる最大の酸化状態になるのであろう。概して 6 周期の 5 d 元素に化学的性質が類似していると予想されるが、 $Z=104$ の元素が Hf, Ta に似ていること⁵⁾、 $Z=105$ の元素が Ta に似た挙動をとること⁶⁻⁷⁾はその予想を裏付ける。このグループの後半のものは共有結合性に富み半径が大きいのでいわゆる貴金属であり、通常は金属状態であらう。しかし一旦化学結合が生じ $7s$ 電子がイオン化されることがあれば d 電子も容易にイオン化され高酸化状態に達することも考えられる。

8 周期の遷移元素：超アクチノイドでは内側の $5g$ や $6f$ 殻に 32 個の電子が充填されるのでランタノイドやアクチノイドでみられるような収縮が起ると予想される。それを考慮し外挿法で得た原子半径でも議論に耐える程の精度は期待できない。 $8s$ 電子の結合エネルギーは大きく、元素の化学的性質に関与しない。従って酸化数は 7 周期の対応する元素より 2 だけ小さいだろう。イオン化エネルギーは全般に小さく考えられる最大の酸化数をとるであろうが終りの方の元素はやはり貴金属であらう。 $Z=164$ の元素は予想される酸化状態からは Hg よりも Pt に似ているが³⁾、Pb に似て通常 2 価状態になるとする意見⁸⁻⁹⁾と希ガスに似ているとする意見¹⁰⁾もある。表 2 に遷移元素の既知および予想される酸化状態を示す。

3.3 p 元素の酸化状態

図 4 に p 元素のイオン化エネルギーを示すが、実測値と計算値との差は 6 周期の元素で約 0.8 eV であり、7 と 9 周期の元素の計算値には既に 0.8 eV を加えてある³⁾。 p^2 と p^3 の間でイオン化エネルギーの落ち込みがみられるのは p 殻が分裂し $p_{3/2}$ 副殻の電子がイオン化され易いためである。9 周期では $9p_{1/2}$ と $8p_{3/2}$ 副殻が使われ、それらのエネルギー差が小さいのでイオン化エネルギーは単調に増加する。

7 周期の p 元素：図 3 から予想されるように金属結合性は p^3 でなくなり原子半径は最大になるが、その後の減少は Z 増加に伴う収縮による。 $Z=113, 114$ の元素は以前から Tl(I), Pb(II) に似ていると予想されている¹¹⁾ように 1, 2 価、 $Z=115-117$ の元素は $7p_{3/2}$ 副殻の電子がイオン化され易いことから通常 1 - 3 価をとるが、強力な酸化剤を使えば高酸化状態も可能であらう。 $Z=117$ の元素はハロゲン族であるが -1 価にならないとする意見¹²⁾もある。 $Z=114$ の元素と同程度のイオン化エネルギーを持つ $Z=118$ の元素は Xe や Rn に似ていて希ガスとしての性質は弱く共有結合性も予想される。

9 周期の p 元素： $9s$ 電子の結合エネルギーは大きい化合物中でそれらがイオン化されることがあれば、 p 電子のイオン化エネルギーが小さいので $Z=167-170$ の元素は 3 - 6 価、 $Z=171$ の元素は他のハロゲン族元素と同様に多くの酸化状態をとるであらう。 $Z=172$ の元素はイオン化エネルギーが大きく典型的な希ガスであらうが Xe のように共有結合性も有するであらう。ただ質量数が多いので気体ではなく液体か固体で存在するであらう。p 元素の酸化状態をまとめて表 3 に示す。

3.4 超アクチノイドの酸化状態

種々の計算による結果は $Z=125$ の元素から g 電子の充填が始まり $Z=154$ で完了するとしている。相対論的 Hartree Fock-Slater 計算によって求められた外殻電子配置⁴⁾を表4に示す。 $8s$ 殻はすでに満たされており、6つの副殻に不規則に電子が入る。 g 電子の性質が不明のため g 電子を持つ元素の化学的性質を予測することは困難である。 $8s_{1/2}$, $7d_{3/2}$, $8p_{1/2}$, $6f_{5/2}$ と $5g_{7/2}$ 副殻の電子のイオン化エネルギーは系列のはじめの方では比較的小さく、それらの副殻の電子の多くはイオン化されて化合物中では予想もできないほどの高い酸化状態になるだろう。

$5g_{7/2}$ 副殻への充填が始まる $Z=125$ の前までは3-6価、 $Z=125, 126$ の元素は7,8価、 $Z \geq 127$ では非常に高い酸化状態に達するが $5g_{7/2}$ 副殻が満たされる $Z=132$ で6価まで減少するであろう。 $8p_{1/2}$ 電子の結合エネルギーは既に大きくなっており、 $5g_{9/2}$ 副殻が満たされる $Z=144$ では3-4価、副殻がすべて満たされる $Z=154$ で0-2価となろう。すなわち $6f$ 殻は電子雲に埋没し、 $8p_{1/2}$ $8s$ 電子は強く結合しているのでわずかの外殻電子のみがイオン化される。

3.5 その他の超重元素の酸化状態

$Z=119-120$, $Z=165-166$ の元素ではそれぞれ $8s$, $9s$ 電子が原子価電子である。 $Z=119, 120$ の元素のイオン化エネルギーはそれぞれ Cs, Ba あるいは Fr, Ra と同じくらいであろう。それらの通常の酸化状態はアルカリ金属とアルカリ土類元素の1価、2価に同じであろう。

$Z=165, 166$ の元素のイオン化エネルギーはそれぞれ Na, Mg と同程度で典型的なアルカリ金属アルカリ土類元素で1価、2価の酸化状態になるが、一旦化学結合が生じると $7d$ 電子のイオン化エネルギーが比較的小さいのでさらに高い酸化状態に達するかもしれない。

4. あとがき

$Z=89-172$ の元素の酸化状態について触れたが、それらの超重元素のうち人工的に合成したり自然界から見出すなど直接あるいは間接的に検出する元素はほんのわずかであろう。それらは周期律表上でいくつかの位置を占めるにすぎないであろうが、それらの化学的性質を予測するには将来とも検出される可能性のない多くの元素を含めて議論せざるを得ない。周期律表の延長はどこまで可能かという問題とともに紹介したような議論は今後も続けられるであろう。

References

- 1) Krot N. N. and Gel'man A. D.: Dokl. Akad. Nauk SSSR, 177, 124 (1967)
- 2) Suzuki S. and Hara M.: Kagaku, 26, 737 (1971)
- 3) Fricke B., Greiner W. and Waber J. T.: Theo. Chim. Acta, 21, 737 (1971)
- 4) Mann J. B. and Waber J. T.: J. Chem. PHYS., 53, 2397 (1970)
- 5) Zvara I., Chuburkov Y. Y., Tsaletka R. T., Zvarova T. S., Shalevsky M. R. and Shilov B. V.: Sov. J. Atom. Energy, 21, 709 (1966)
- 6) Zvara I., Chuburkov Y. Y., Tsaletka R. T., Zvarova T. S., Shalvsky M. R. and Shilov B. V.: Radiokhimiya, 9, 231 (1967)

- 7) Ghiorso A., Nurmia M., Eskola K., Harris J. and Eskola P.: Phys. Rev. Letters, 24, 1498 (1970)
- 8) Penneman R. A., Mann J. B. and Jørgensen C. K.: Chem. Phys. Letters, 8, 321 (1971)
- 9) Chaikhorskii A. A.: Radiokhimiya, 12, 801 (1970)
- 10) Fricke B. W. and Greiner W.: Phys. Letters, 30B, 317 (1969)
- 11) Keller O. L., Burnett J. L., Carlson T. A. and Nestor C. W.: J. Phys. Chem., 74, 1127 (1970)
- 12) Cunningham B. B.: "Proceedings of the Robert A. Welch Foundation Conference on Chemical Research. XII. The Transuranium Elements, Houston, 1969", Robert A. Welch Foundation, Houston, 307 (1970)

Table 1. The electron configurations and oxidation states of the actinoids

Atomic number	Element	Electron configuration (= Rn core)	Oxidation states (Most stable states are underlined)
89	Ac	$6d^1 7s^2$	<u>3</u>
90	Th	$6d^2 7s^2$	3 <u>4</u>
91	Pa	$5f^2 6d^1 7s^2$	4 <u>5</u>
92	U	$5f^3 6d^1 7s^2$	3 4 5 <u>6</u>
93	Np	$5f^4 6d^1 7s^2$	3 4 <u>5</u> 6 7
94	Pu	$5f^6 7s^2$	3 <u>4</u> 5 6 7
95	Am	$5f^7 7s^2$	<u>3</u> 4 5 6
96	Cm	$5f^7 6d^1 7s^2$	<u>3</u> 4
97	Bk	$5f^9 7s^2$	<u>3</u> 4
98	Cf	$5f^{10} 7s^2$	2 <u>3</u> 4
99	Es	$5f^{11} 7s^2$	2 <u>3</u>
100	Fm	$5f^{12} 7s^2$	2 <u>3</u>
101	Md	$5f^{13} 7s^2$	2 <u>3</u>
102	No	$5f^{14} 7s^2$	<u>2</u> 3
103	Lr	$5f^{14} 6d^1 7s^2$	<u>2</u>

Table 2. The oxidation states of the transition elements

Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn
(2) <u>3</u> <u>4</u>	(2)3(4) <u>5</u>	2 <u>3</u> (4)(5)6	(1) <u>2</u> (3)4(5)(6)7	(1) <u>2</u> <u>3</u> (4) (6)	(1) <u>2</u> 3(4)	(1) <u>2</u> (3)(4)	<u>1</u> <u>2</u> (3)	<u>2</u>
Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cu
(2)(3) <u>4</u>	(2)3(4) <u>5</u>	(2)3(4)5 <u>6</u>	<u>7</u>	(1)(2) <u>3</u> 4 5 6(7)8	(1)(2) <u>3</u> 4 (6)	2(3)4	1 <u>2</u> (3)	<u>2</u>
Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg
<u>4</u>	(2)(3)(4) <u>5</u>	(2)3(4)5 <u>6</u>	(1)(2)(3)4(5)(6) <u>7</u>	(1)(2)(3) <u>4</u> 6	8, (1)(2) <u>3</u> 4 6	(1)2(3) <u>4</u> (6)	1 <u>3</u> (4)	<u>1</u> <u>2</u>
104	105	106	107	108	109	110	111	112
<u>4</u>	<u>5</u>	4 <u>6</u>	5 6 <u>7</u>	4 6 <u>8</u>	4 <u>6</u>	4 <u>6</u>	1 3 <u>5</u>	1 <u>2</u> <u>4</u>
156	157	158	159	160	161	162	163	164
<u>2</u>	<u>2</u>	<u>4</u>	<u>5</u>	2 <u>6</u>	<u>3</u>	<u>4</u>	<u>5</u>	2 <u>4</u> 6

(The most stable states are underlined and the unusual states are designated in parenthesis.)

Table 3. The oxidation states of the p elements

B	C	N	O	F	Ne
<u>2</u>	-4 <u>2</u> (3) <u>4</u>	-3(1)2(3)4 <u>5</u>	-2	-1	0
Al	Si	P	S	Cl	Ar
<u>2</u>	(-4)(2) <u>4</u>	-3(1) 3(4) <u>5</u>	-2 <u>4</u> <u>6</u>	- <u>1</u> 1(3)(4)5(7)	0
Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
(1)(2) <u>3</u>	(-4)(2) <u>4</u>	-3 <u>3</u> 5	-2(2) <u>4</u> <u>6</u>	- <u>1</u> 1(3) 5(7)	0
In	Sn	Sb	Te	I	Xe
(1)(2) <u>3</u>	2 <u>4</u>	(-3) <u>3</u> 5	-2(2) <u>4</u> <u>6</u>	- <u>1</u> (1)(3) 5 7	0(2)(4)(6)(8)
Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
<u>1</u> 3	<u>2</u> 4	(-3)(1) <u>3</u> 5	2 <u>4</u> (6)	- <u>1</u> (1)(3)	0
113	114	115	116	117	118
1	2	<u>1</u> 3	<u>2</u> 4	-1 1 <u>3</u>	<u>0</u> 4 6
167	168	169	170	171	172
3	4	5	6	-1 3 <u>7</u>	<u>0</u> 4 6 8

(The most stable states are underlined and the unusual states are designated in parentheses.)

Table 4. The electron configurations and the expected oxidation states of the superactinoid elements (from Ref. 4)

Element Z	Electron configuration ⁴⁾ (+ Z=118 core)							Oxidation states
	8s _{1/2}	8p _{1/2}	5g _{7/2}	5g _{9/2}	6f _{5/2}	6f _{7/2}	7d _{3/2}	
121	2	1	-	-	-	-	-	3
122	2	1	-	-	-	-	1	4
123	2	1	-	-	1	-	1	5
124	2	1	-	-	2	-	-	6
125	2	1	1	-	3	-	-	7
126	2	2	2	-	2	-	-	8
127	2	2	3	-	2	-	-	-
128	2	2	4	-	2	-	-	-
129	2	2	5	-	2	-	-	-
130	2	2	6	-	2	-	-	-
132	2	2	8	-	2	-	-	6
134	2	2	8	-	4	-	-	-
136	2	2	8	2	4	-	-	-
138	2	2	8	4	3	-	1	-
140	2	2	8	6	3	-	1	-
141	2	2	8	7	2	-	2	-
142	2	2	3	8	2	-	2	-
144	2	2	8	10	1	-	3	3 4
145	2	2	8	10	3	-	2	2 5
146	2	2	8	10	4	-	2	2 4 6
149	2	2	8	10	6	-	3	3
150	2	2	8	10	6	-	4	4
152	2	2	8	10	6	3	3	3 6
154	2	2	8	10	6	8	-	8
155	2	2	8	10	6	8	1	1

s ¹										s ²									
H										Ne									
1										2									
s ²										s ² p ¹⁻⁶									
Li Be										B C N O F Ne									
3 4										5 6 7 8 9 10									
Na Mg										Al Si P S Cl Ar									
11 12										13 14 15 16 17 18									
d ¹ s ²										d ²⁻¹⁰ s ²									
K Ca Sc										Ti V - Cu Zn Ga Ge As Se Br Kr									
19 20 21										22 23 - 29 30 31 32 33 34 35 36									
Rb Sr Y										Zr Nb - Ag Cd In Sn Sb Te I Xe									
37 38 39										40 41 - 47 48 49 50 51 52 53 54									
(f,d) ²⁻¹⁵ s ²										(f,d) ²⁻¹⁵ s ²									
Cs Ba La										Ce Pr - Yb Lu Hf Ta - Au Hg Tl Pb Bi Po At Rn									
55 56 57										58 59 - 70 71 72 73 - 79 80 81 82 83 84 85 86									
Fr Ra Ac										Th Pa - No Lr									
87 88 89										90 91 - 102 103 104 105 - 111 112 113 114 115 116 117 118									
119 120 121 122 123 - 140 141 142 143 - 154 155 156 157 - 163 164										165 166 167 168 169 170 171 172									
(g,f,d,p) ¹⁻³⁵ s ²										d ²⁻¹⁰									
165 166										167 168 169 170 171 172									

Fig. 1 An extended periodic table
(The valence electrons are indicated.)

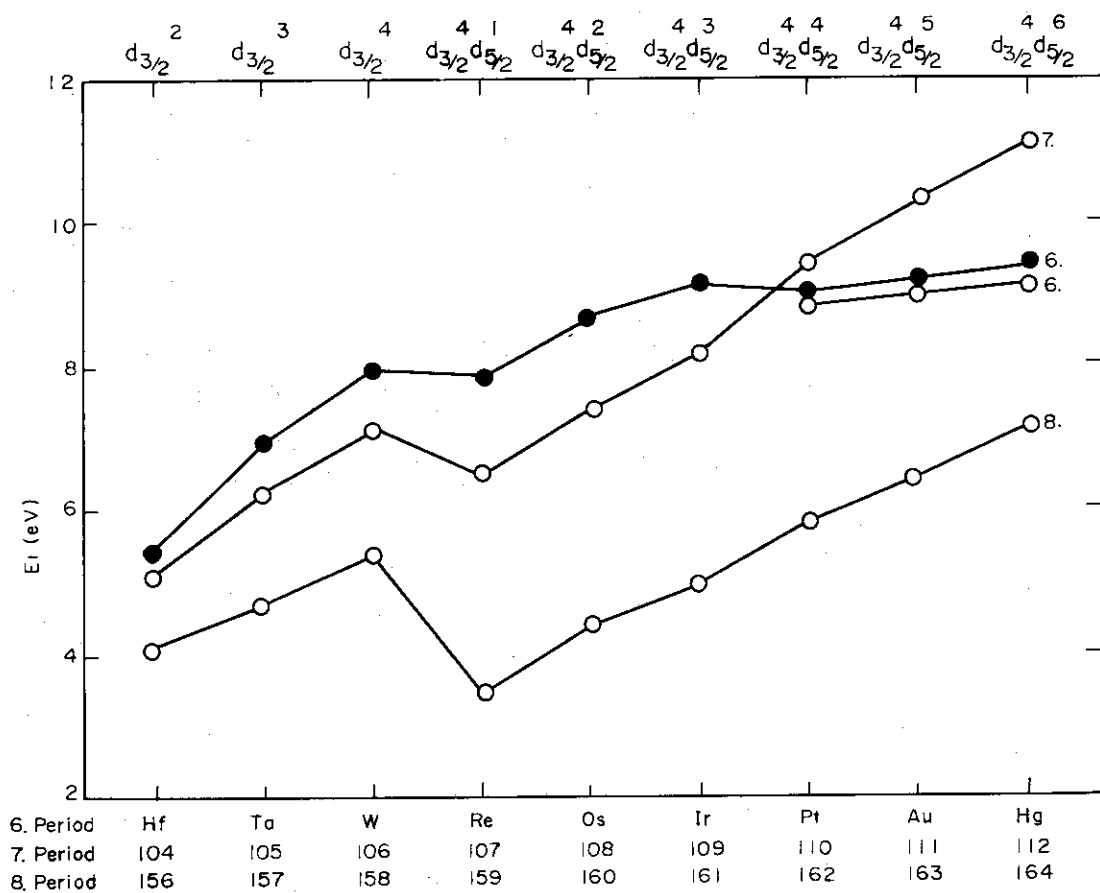


Fig. 2 The first ionization energies of the transition elements from 6th to 8th period

○ calculated ● experimental

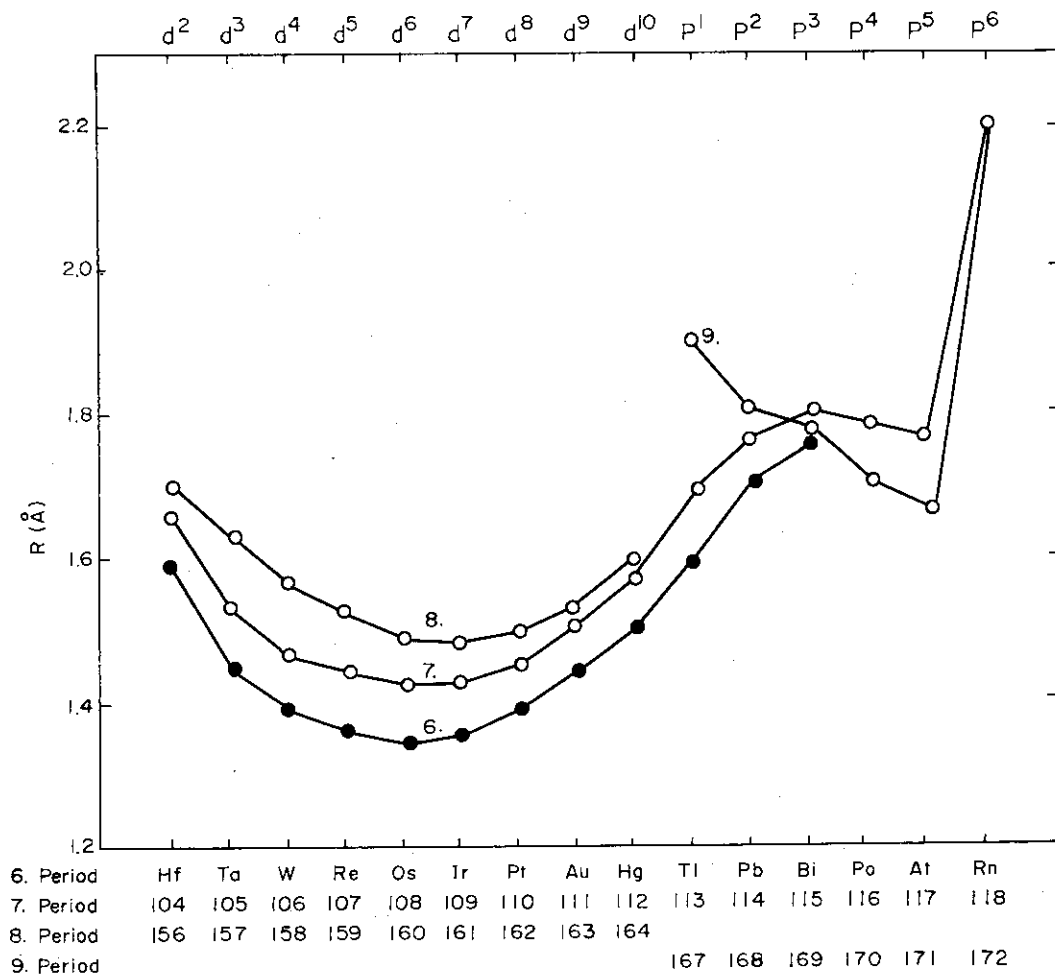


Fig. 3 The metal radii of the transition and p elements from 6th to 9th period
 O extrapolation ● experimental

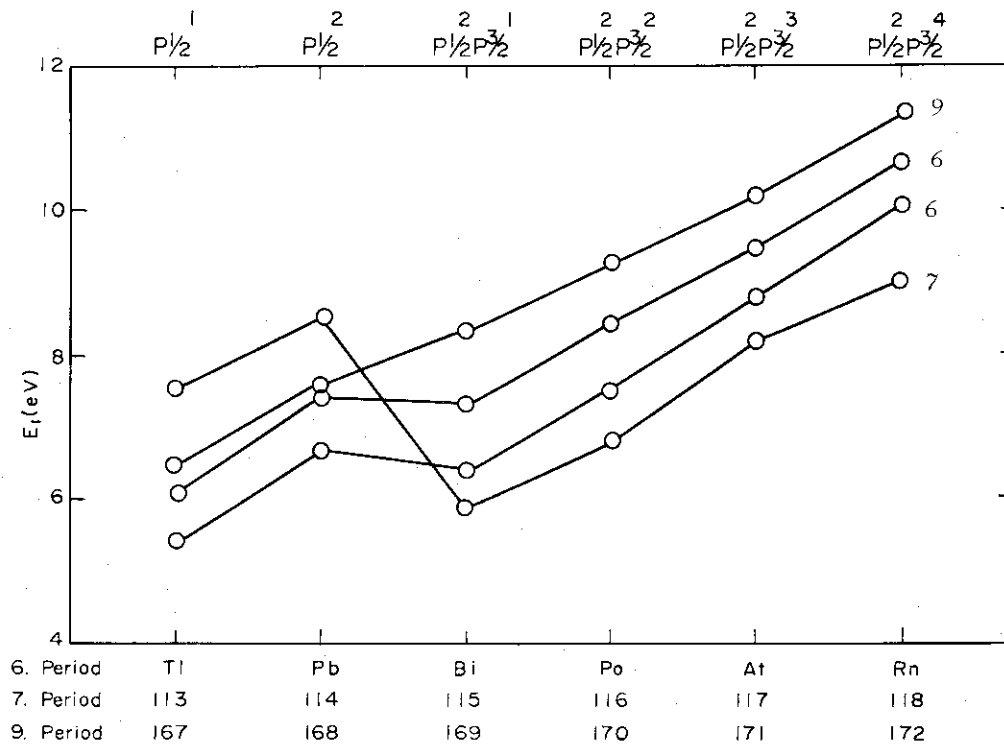


Fig. 4 The first ionization energies of the p elements from 6th to 9th period
 O calculated ● experimental (from Ref.3).

2.3 ロ紙電気泳動による重元素の相互分離

東京教育大理学部 池田 長生
木村 幹*
市川 五朗**
(東京都文京区大塚 3-29-1)

Mutual Separation of Aqueous Heavy Ions by Paper Electrophoresis

Nagao IKEDA, Kan KIMURA* and Goro ICHIKAWA**
(Faculty of Science, Tokyo University of Education,
Otsuka, Bunkyo-ku, Tokyo)

Rapid mutual separations of three heavy ion groups (Th-Pa-U; U-Np-Pu; Am-Cm) were achieved by means of paper electrophoresis. The paper used was 2.5 cm × 25 cm Cellogel strip, the buffer solution 0.5-0.8 M α -hydroxy iso-butylic acid solution with pH 2.0-3.0, and the applied voltage 2000 V. It took only 25-30 min for complete separation of the elements of each group.

1. 序 論

上野のレビューにもあるように、3価のランタノイドあるいはアクチノイドイオンの相互分離はかなり困難を伴う。例えば、イオン交換樹脂による相互分離は、非常に有効であるが、時間がかかる欠点がある。それに対して、高圧ロ紙電気泳動法によれば、短時間でランタノイドイオンの相互分離ができる¹⁾。この報告では、この方法をさらにアクチノイドイオン群の相互分離に適用した結果について述べる。

着目した元素はトリウムからキュリウムに至る6元素で、これを次の3つのグループに分けて、相互分離を検討した。

- (1) Th-Pa-U
- (2) U-Np-Pu
- (3) Am-Cm

第1のグループは、天然に共存し、また²³²Thの(n, γ)反応の結果生成する元素群でもある。第2のグループは、²³⁸Uの(n, γ)反応の結果得られる元素群である。第3のグループは、²⁴¹Amの(n, γ)反応により得られる元素の組み合わせである。

2. 実 験

2.1 泳動装置

装置の概略をFig. 1に示す。4の支持体には25×25cmのセロゲルを用い、2の泳動緩衝液は α

* 現在 青山学院大理工学部

** 現在 住友金属鉱山株式会社中央研究所

α -ヒドロキシイソ酪酸の溶液を用いた。

2.2 実験操作

アクチノイドを含む試料溶液の微量を、マイクロピペットでセロゲル上に滴下したのち、白金電極に適当な電圧をかけ、適当な時間泳動をおこなった。泳動後の各元素のロ紙上での位置の確認には、ウランとトリウムはアリザリンのアルコール溶液による呈色で、 ^{233}Pa , ^{239}Np , ^{239}Pu , ^{241}Am および ^{242}Cm については、薄層ラジオクロマトスキャナにより泳動位置を確認し、各位置について、半減期、放射線エネルギーなどを測定して、核種の同定をおこなった。

3. 泳動条件の検討

3.1 泳動緩衝液の pH

α -ヒドロキシイソ酪酸の濃度を 0.05 M とし、硝酸カリウムでイオン強度を 0.10 に調節し、電圧 10 V/cm の条件で pH の影響をしらべた。

結果の一例として Th-Pa-U の場合を、Fig. 2 に示す。図から明らかなように、U, Th は pH の上昇とともに泳動距離は小さくなり、pH 4~6 では中性種としてスポットした原点の位置に留まる。一方 Pa は pH (1.2) では原点に留まるが pH を上げると、配位子濃度が高くなり、陰イオン種として陽極方向に泳動するようになる。しかしこのとき一部は中性種として原点に留まる。このようなことから、分離のための条件としては pH 1.2~3.0 が適当であると考えられる。

3.2 電 圧

前述の 3.1 の条件では、イオン強度が高いので、泳動分離の時間を短縮するために高電圧をかけると、電流値は増大し、ロ紙での熱の発生も大きくなる。

したがって弱酸の α -ヒドロキシイソ酪酸のみを溶かした溶液を泳動緩衝液として用い、さらにエチレングリコールを冷却媒体として冷却をおこない、高電圧下で泳動をおこなうこととした。

Fig. 3 は泳動時間を一定にして、電圧に対して泳動距離をしらべた 1 例である。図から明らかなように、U, Th とともに 2000 V までは一定の比をもって泳動し、2000 V においてもっともよい分離が得られる。2500 V 以上では、ロ紙面からの蒸発が激しく、泳動条件を一定に保つことが難しくなる。このような結果から、泳動電圧は 2000 V を最高電圧とした。

4. 結 論

U-Pa-Th の相互分離の結果の一例を Fig. 4 に示す。Pa は 3.1 で述べたように、原点に留まる部分と陽極に移動する部分とが認められた。原点に留まる部分は少なく、かつ U-Th の相互分離に影響はない。

U-Np-Pu の場合を Fig. 5 に示す。泳動距離は $^{239}\text{Pu} > \text{U} > ^{239}\text{Np}$ であった。

Am-Cm の分離の一例を Fig. 6 に示す。Am, Cm は両元素とも、ふつう溶液中で 3 価のイオンとして存在し、希土類元素の Eu, Gd に対応し、その分離は困難なものである。本法においても、 α -ヒドロキシイソ酪酸の配位子濃度が低いときは、Am, Cm は一群となって泳動し、分離できない。しかし、図のように、pH 値を 2.5 とすると、30 分という短時間で分離は完全であった。

Reference

- 1) 池田, 木村, 市川: 日化第 22 年会講演予稿集 II, 1156 (1969).
 Aitzetmüller K., Buchtela K., Grass F., Hecht F.: *Microchim. Acta*, (1964), 1089;
 (1966), 1101. など.

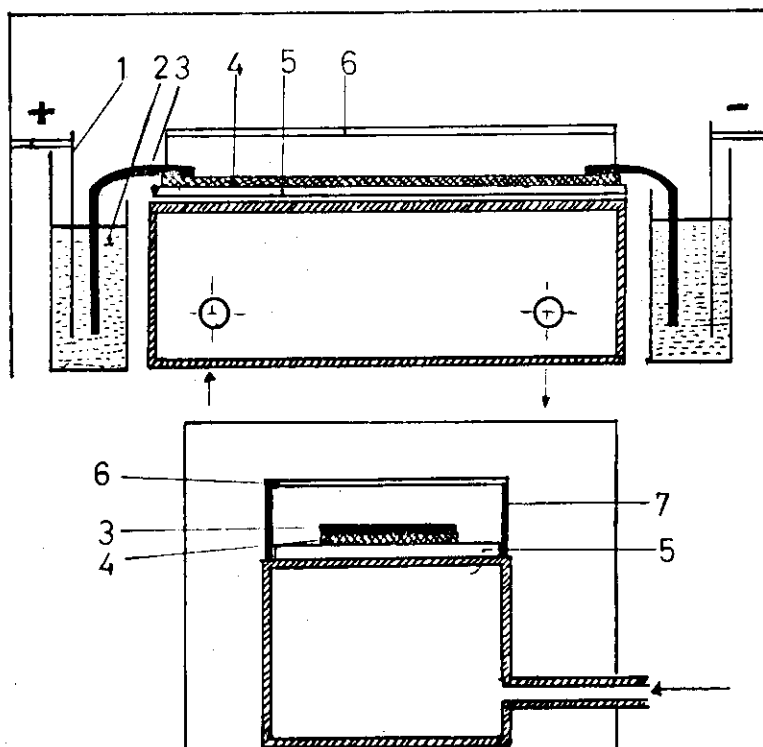


Fig. 1 Apparatus for paper electrophoresis.
 1: Platinum electrode. 2: Electrolyte.
 3: Filterpaper. 4: Cellogel.
 5: Glass plate (cooled with ethylene glycol).
 6: Frame of PVC.

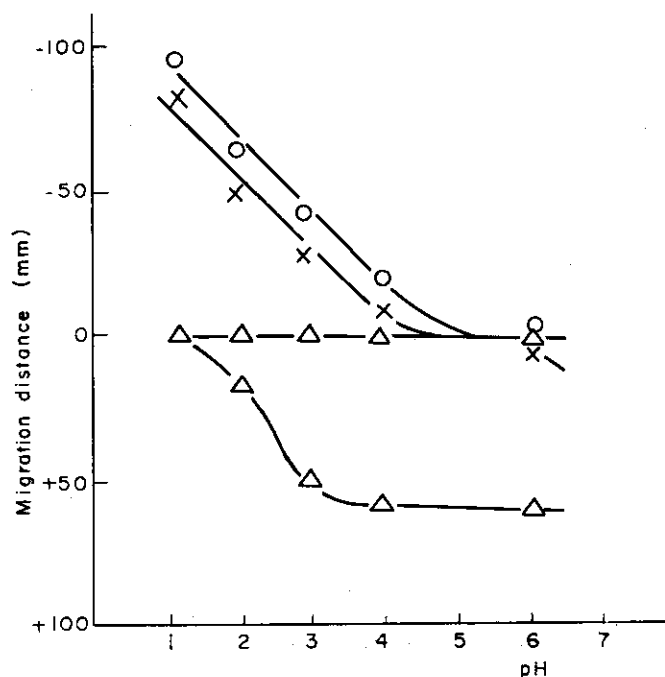


Fig. 2 Relation of migration distance to pH
 O: U X: Th Δ : Pa
 α -hydroxy-iso-butylic acid: 0.05 M

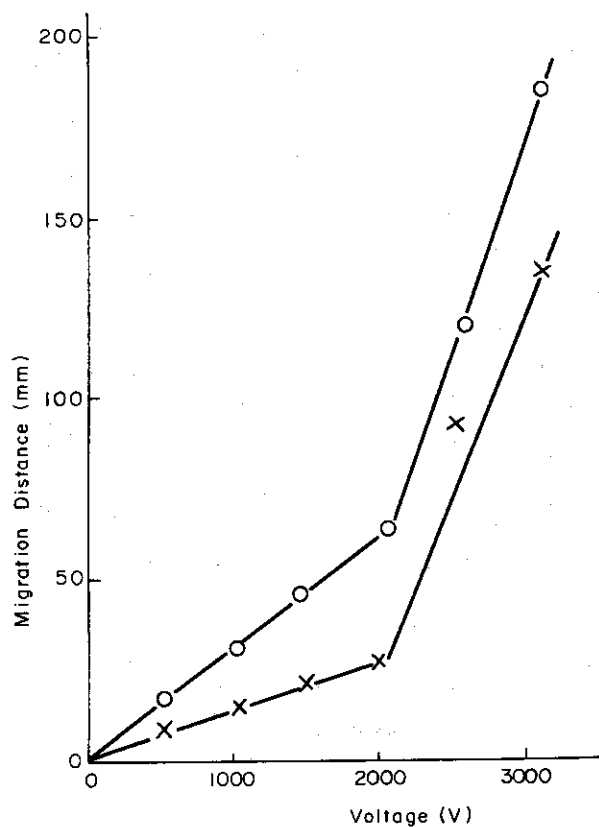


Fig. 3 Relation of migration distance to voltage
 O: U X: Th
 α -hydroxy-iso-butylic acid: 0.8 M

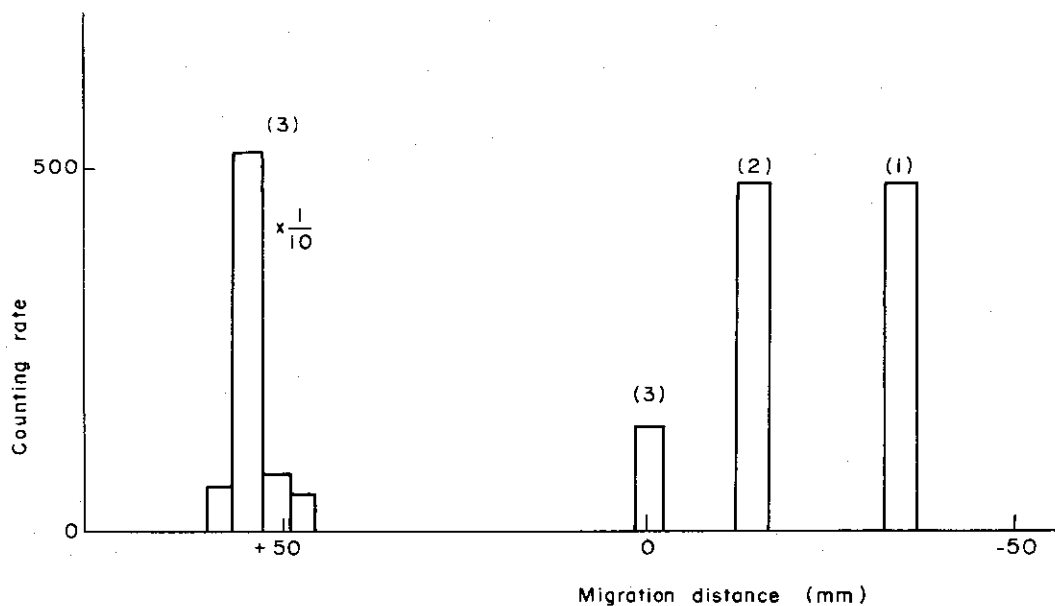


Fig. 4 Mutual separation of U, Th, and Pa.
 (1): U α -hydroxy-iso-butylic acid: 0.6 M
 (2): Th pH: 2.0
 (3): Pa time: 25 min
 voltage: 2000 V

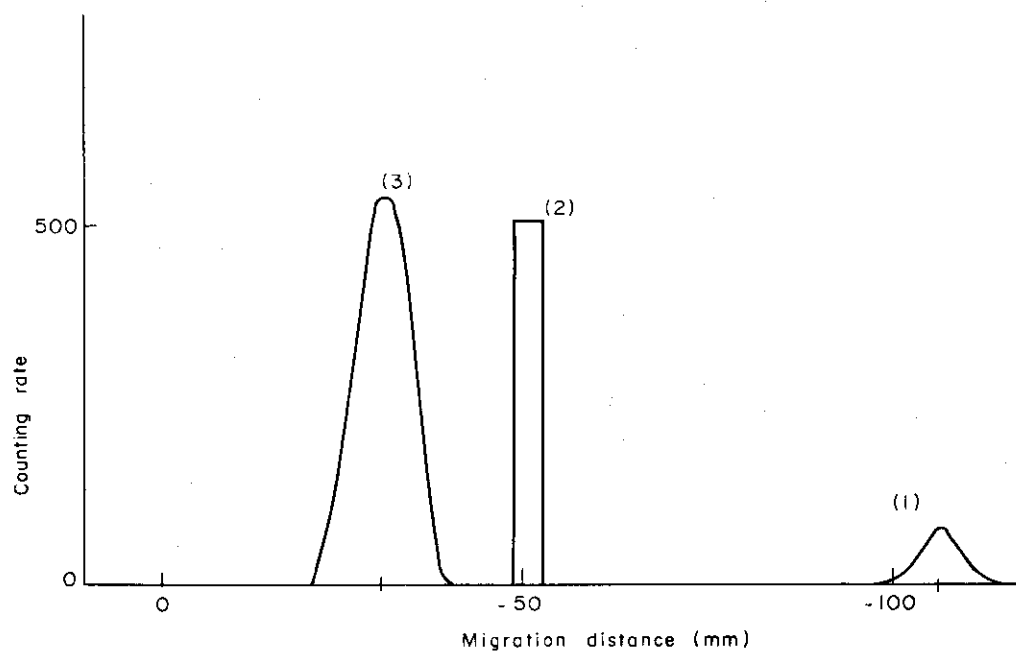


Fig. 5 Mutual separation of Pu, Np and U.
 (1): Pu α -hydroxy-iso-butylic acid: 0.8 M
 (2): U pH : 2.0
 (3): Np time: 30 min
 voltage: 2000 V

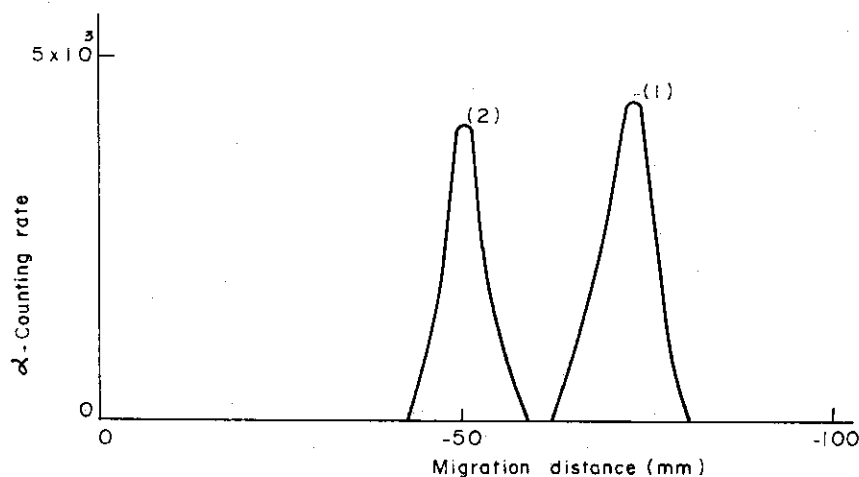


Fig. 6 Mutual separation of Am and Cm.
 (1): Am (^{241}Am)
 (2): Cm (^{242}Cm)
 α -hydroxy-iso-butylic acid: 0.8 M
 pH: 2.5
 time: 30 min
 voltage: 2000 V

2.4 重イオンによる核反応生成物の分離化学

日本原子力研究所 梅 沢 弘 一
(茨城県那珂郡東海村)

Separation Chemistry of Various Elements Produced by Heavy-ion Irradiation

Hirokazu UMEZAWA
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki)

The necessity for systematic separation is discussed and a feasible ion-exchange scheme is designed to separate various elements. Special techniques for preparation of highly pure water and some chemical reagents are also presented.

1. 序 言

ウラン、あるいはその他の重元素ターゲットを高エネルギー重イオンで照射すると、生成核種は、きわめて多種の元素にわたる。これが、反応生成物の分離を考えるときの、ひとつの要点である。

ある元素を迅速に単離したい場合には、目的元素に特異的に作用する化学反応を選ぶ必要がある。しかし、生成した核種の帰属元素を探究するような場合には、あまり特異性のない化学反応を利用し、その作用程度の差によって、諸元素を系統的に分離することが望ましい。

すでに、高エネルギー陽子で衝撃したウラン、あるいはタングステン・ターゲット中の超重元素探索に用いられた系統分離法が、いくつか報告されている。¹⁻⁴⁾ 一方、われわれは、つとに、ウランの陽子核分裂の研究、あるいは核燃料の燃焼率評価の目的で、照射ウランから核分裂生成物ならびに超ウラン元素を系統的に分離する方法を開発して来た。^{5,6)} こゝでは、重イオン反応の研究への利用のため、さらに広範囲の元素を対象にして、このイオン交換分離法の適用性を考察する。また、いわゆる“きれいな分離”に不可欠な高純度試薬調製法を紹介する。

2. 諸元素のイオン交換系統分離

各種鉱酸溶液におけるイオン交換平衡データをみると、諸元素の吸着挙動に、最も変化のみられるのは、塩酸系陰イオン交換である。⁷⁻¹⁰⁾ 塩酸を主溶離剤とする陰イオン交換クロマトグラフィの適用できる範囲、ならびに分離可能な諸元素の区分を、Fig. 1 に示す。水素、希ガス、ハロゲン、ならびに B, C, N, O, Si, P, S 以外の元素は、すべて分離できると思われる。また、この方法では、試料は濃い塩酸溶液として扱われるので、加水分解、あるいはコロイド生成などの問題がほとんどない。

試料を、濃塩酸溶液に調製し、あらかじめ濃塩酸で浸した強塩基性陰イオン交換樹脂カラムに加える。次いで、各種溶離液を順次切り換えて用いれば、図に示すような6属に分けることができよう。最近、比表面積の広いポーラス型樹脂を用いると、きわめて分解能良く分離できることが見出されている。^{11,12)} 十分細かい粒度のポーラス型陰イオン交換樹脂の使用が可能になれば、この初段分離過程で、さらに細かく分けることもできると思われる。

次に、各属内の個別分離について、簡単に考察する。

第1属： 塩酸濃度2Mに希釈して再び陰イオン交換カラムを通せば、鉛とトリウムは樹脂に捕捉される。⁷⁾ つぎに、7-8M硝酸溶液にして、トリウムを陰イオン交換で分離する。⁸⁾ 残りの各元素は、陽イオン交換により、すべて定量的に分離される。⁵⁾

第2属： こゝに含まれる元素の各個分離には、筆者は、あまり経験がない。川頭らは、この属にはいる多数の重金属イオンを、塩酸-プロパノール系溶離液を用いる陽イオン交換クロマトグラフィにより相互分離している。¹³⁾

第3属： 溶離液中に添加する硝酸は、樹脂相におけるPu(IV)→Pu(III)の還元を防ぐために必要である。⁶⁾ ジルコニウム、(ハフニウム)とプロトアクチニウムの分離には、フッ化水素酸を少量添加した塩酸溶離液による陰イオン交換クロマトグラフィが有効である。¹⁴⁾ また、ジルコニウムとハフニウムの相互分離は、かなり厄介であるが、硝酸(0.45M)とクエン酸(0.091M)を含む溶液を用いる陽イオン交換で分離できるという報告がある。¹⁵⁾

第4属： 7-8M硝酸溶液に調製して、陰イオン交換分離をおこなえば、ゲルマニウムは吸着されず直ちに溶離され、すこしおくれ、ニオブならびにタンタルが流出する。⁸⁾ 次いで、濃塩酸で樹脂をCl型にかえ、ヨウ化水素を含む塩酸(9-12M)で、プルトニウムを3価に還元して溶離、さらに1-2M塩酸でネプツニウムを溶離する。⁶⁾

第5属： セレン、テルルならびにポロニウムを捕捉するには、内部電解法が便利である。2M程度の塩酸濃度に調節して、水銀、あるいは、銅、ニッケルなどの金属ハクを投入して数十分間かきまぜると、これらの金属表面に自発的に析出し、捕捉される。とくに、水銀を、超音波により溶液中に1-2分間分散させた後、遠心分離すれば、迅速かつ定量的な分離ができる。¹⁶⁾

鉄とウランは、7-8M硝酸を溶離液とする陰イオン交換クロマトグラフィで、相互分離できる。また、鉄、ガリウム、テルルなどの相互分離には、陽イオン交換法も用いられる。⁵⁾

第6属： これらの元素のイオン交換挙動は、まだあまり明らかにされていないようである。見方をかえれば、通常のイオン交換樹脂によるクロマトグラフ分離には不向きのものであるといえよう。最近、種々のキレート樹脂が開発され、白金族元素などに著しい選択性を示すものも得られている。しかし、キレート樹脂に捕捉した場合には、これから再溶出させるのが難しく、樹脂を分解しなければ回収できないのが難点である。

以上述べたように、細部には未だ不明の点が残っているが、多くの元素を系統的に分離するためには、イオン交換法が非常に有効であると思われる。

3. 高純度試薬の調製

核反応生成物の量は、通常、極微量($\leq 1 \mu\text{g}$)である。加えて、分離後には、電子、 α 粒子あるいは核分裂片などを測定することが多く、測定試料は、数 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度以下の厚さに調製しなければならない。このような場合には、使用する試薬の純度に留意し、すべて“きれいな状態”において、分離操作をおこなうことが重要である。

比較的簡単に良い水をつくるには、銅あるいはガラス製の通常の装置で蒸留した水を、さらに石英あるいはテフロン製の非沸騰型蒸留器¹⁷⁾を用いて精製すると良い。1ℓ中の不揮発残渣が50 μg 程度以下の水を容易に得られる。¹⁸⁾ ポリエチレン瓶中に密封しておけば、一ヶ月位までは、清浄に保存することができる。

高純度の塩酸ならびに水酸化アンモニウムの調製には、等圧蒸留法が優れている。¹⁹⁾ 特級試薬濃塩酸と上記の方法で得た高純度水とを、それぞれ、広口瓶、あるいはビーカーのような開口容器に入れ、両者をデンケータのような密閉容器中に放置して、濃塩酸から蒸発する塩化水素を水に吸収させる。得られる塩酸の濃度は、もとの濃塩酸と水の割合、ならびに放置時間により異なるが、水の10倍程度の濃塩酸を入れて、数日間放置すれば、約10Mの高純度塩酸が得られる。

同じ手法で、高純度水酸化アンモニウム ($<9.5\text{M}$)、シュウ化水素酸、あるいはヨウ化水素なども調製される。しかし、この方法は、蒸気圧の低いものには適用できない。沸点の高い硝酸、フッ化水素酸、過塩素酸あるいは硫酸などは、水と同様に、それぞれ専用の非沸騰型蒸留器で精製するのが、最も良いようである。¹⁷⁾

References

- 1) Kush V., Mikul'ski Ya., Scheglovski Z.: Radiokhimiya, 12, 401 (1970)
- 2) Unik J. P., Horiwitz E. P., Wolf K. L., Ahmad I., Fried S., Cohen D., Fields P. R., Bloomquist C. A. A., Henderson D.J.: Nucl. Phys., A191, 233 (1972)
- 3) Brandt R., Molzahn D., Patzelt P.: Radiochim. Acta, 18, 157 (1972)
- 4) Newton G. W. A., Robinson V. J., Skarestad, M., Hemingway J. D.: J. Inorg. Nucl. Chem., 35, 2035 (1973)
- 5) Natsume H., Umezawa H., Suzuki T., Ichikawa F., Sato T., Baba S., Amano H.: J. Radioanal. Chem., 7, 189 (1971)
- 6) Natsume H., Umezawa, H., Okazaki S., Suzuki T., Sonobe T., Useda S.: J. Nucl. Sci. Technol., 9, 737 (1973)
- 7) Kraus K. A., Nelson F.: Proc. Intern. Conf. Peaceful Uses At. Energy, Geneva: 7, 113 (1956)
- 8) Faris J. P., Buchanan R. F.: Anal. Chem., 36, 1157 (1964)
- 9) Faris J. P.: Anal. Chem., 32, 520 (1960)
- 10) Nelson F., Murase T., Kraus K. A.: J. Chromatog., 13, 503 (1964)
- 11) Umezawa H., Ichikawa S., Natsume H.: Unpublished result
- 12) Kawazu K., Fritz J. S.: J. Chromatog., 77, 397 (1973)
- 13) Kawazu K., Matsueda T., Kakiyama H.: Japan Analyst, 22, 1301 (1973)
- 14) Kraus K. A., Moore G. E.: J. Amer. Chem. Soc., 73, 2900 (1951)
- 15) Benedict J. T., Schumb W. C., Coryell C. D.: J. Amer. Chem. Soc., 76, 2036 (1954)

- 16) Okashita H.: *Radiochim. Acta*, 7, 85 (1967)
- 17) Kuehner E. C., Alvarez R., Paulsen P. J., Murphy T. J.: *Anal. Chem.*, 44, 2050 (1972)
- 18) Sato T.: Private communication.
- 19) Irvig H., Cox J. J.: *Analyst*, 83, 526 (1958)

- 1** 12M HCl ($K_d \leq 1$)
- 2** 12M HCl ($10 \leq K_d \leq 30$)
- 3** 9M HCl - 0.1M HNO₃ - 0.1M HF
- 4** 4M HCl
- 5** 0.1M HCl
- 6** 14M HNO₃

H																	He								
Li	Be															B	C	N	O	F	Ne				
Na	Mg															Al	Si	P	S	Cl	Ar				
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr								
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe								
Cs	Ba	La	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn								
Fr	Ra	Ac	Th	Pa																					
					U	Np	Pu	Am	Lr																

Fig. 1 Group separation of various elements by anion-exchange

3. 重イオンによるRI生成

3.1 重イオンによるRI生成

広島大学理学部 吉 沢 康 和
(広島市東千田町1-1)

Radioisotope Production by Heavy Ions

Yasukazu YOSHIKAWA
(Faculty of Science, Hiroshima University,
Hiroshima)

Recently many kinds of radioisotopes have been produced by heavy ions. Reaction cross sections and fission cross sections are important to estimate isotope production. Significant experiments are made on transuranium production and light alpha emitters. Recoil technique and on-line isotope separator are interesting technique for heavy ion isotope production. In this paper these problems except transuranium are reviewed.

1. はじめに

サイクロトロン、タンデムヴァンデグラフ、線型加速器で重イオンが加速されるようになり、重イオンにより放射線核種が作られるようになった。しかし、重イオンビーム強度は、陽子・アルファビームにくらべて少なく、今までは主として新しい核種の発見など特殊な用途にかぎられている。

重イオンにより作られた新しい核種のなかで、第一にあげねばならぬのは、超ウランであろう。超ウランは、中性子の多重吸収により作ることができるが、他方ウランあるいはプルトニウムをターゲットして重イオン反応により作られる。特に原子番号100以上のものは、核分裂のため中性子の多重吸収で作ることは困難であるから、重イオンが使われる。超ウランの生成は、特に興味深い問題であるが、超ウランと超重核については別のセッションがあるので、ここでは省略する。

次に特徴的な研究は、軽い α 放射性核種の発見である。重イオンによる反跳を利用して生成核をターゲットから分離し、中性子の少い核種が多く発見された。この方法でTeからPb附近まで広い範囲で α 放射性核が観測されている。

将来、重イオンビーム強度が増せば、陽子・アルファ粒子などで作りにくいRIの製造にも利用されるだろう。特に、希ガス、アルカリ金属など周期表の両端附近のRI製造に適している。また、中性子核分裂で作ることが困難な中性子の多いRIは、重イオンによる核分裂を利用する方法が考えられる。

非常に重い重イオン反応による核種生成には未知的な多くの問題がある。特に象徴的なU+U反応は、超重核生成の可能性とも関係し、今後の興味深い問題である。

重イオンの核反応断面積と核分裂断面積は、新しい核種を作るために重要であるから、ここでは先づそれについてのべ、つづいて2, 3の実験例と興味ある実験技術について簡単にのべる。

2. 重イオン反応

重イオンによる核反応は、軽い核 ($Z \leq 30$) および重い核 ($Z \geq 82$) を除けば、中性子放射が主なものである。すなわち、 (HI, xn) 反応であらわされ、 $x = 1, 2, 3, \dots$ である。軽い核では、陽子放射、アルファ粒子放射が無視できなくなり、重い核では、核分裂が主な反応となる。

重イオン反応の断面積の励起曲線を精密に測定した例は少ないが、その例を Fig. 1 にしめす。¹⁾ これは重い核の例であるが、未だ核分裂は大きくはない。 $(^{12}\text{C}, xn)$ 反応で $x = 5$ あたりまでは、断面積のピークが大きいが、 $x = 6$ から急に小さくなる。この小さくなるところは、複合核によって異なる。全体としての励起曲線は、複合核モデルの計算から期待されるものとほぼ一致している。これは、この反応にかぎらず一般に重イオン反応で言えることである。

Fig. 1 からわかるように、 $x = 8$ では断面積の最大値が 2mb 程度で非常に小さい。これは重い核にかぎらず軽い核でも観測されるところで、中性子の少い RI を作ることが困難になることをしめしている。重イオン反応は、中性子の少い RI 生成に興味があるので、この点に関して解析したのが Stephens ら²⁾ である。

Stephens らによれば、中性子の少い核では Fig. 2 にしめすように中性子の結合エネルギーが大きくなるのに反して陽子と α 粒子の結合エネルギーが小さくなり、中性子放出の確率が急に減少し陽子放射の確率が増大する。そのため Fig. 1 にしめしたような $x > 6$ における断面積の減少がおこる。この考え方からすれば、ターゲットと重イオンビームに中性子の少い核を使っても x の小さいところから中性子放射の断面積が小さくなり、中性子の少い RI を作ることが困難となる。

同じ原子番号で最も中性子の少い始めにできる複合核は、Fig. 3 の点線でしめすところにある。Sn のこの複合核は ^{104}Sn であり、Ce では ^{122}Ce である。これが中性子を放出して、より中性子の少い RI を作る確率は大へん小さく、この点線より外の核種を生成する断面積は非常に小さい。この点線はなお核種存在の極限から可成り遠いところにある。

このような複合核反応の断面積をよりくわしく計算したものが Winn ら³⁾ である。この結果の一部を Fig. 4 にしめす。曲線は最大の断面積を等高線でしめしたもので、数字は mb 単位の桁 (1×10^n mb の n) をしめす。

これらの結果から見て複合核反応によるかぎり、非常に中性子の少い極限附近の核種を生成することは、悲観的である。直接反応の計算がないので決定的なことは言えないが、重イオンの直接過程による生成に僅かな望みはあるが、大きな断面積は期待できない。

3. 重イオンによる核分裂

中性子の多い RI を作る方法として、核分裂が利用される。遅い中性子による核分裂では、生成する RI はかぎられた範囲である。数十 MeV の粒子を使えば、遅い中性子ではできない $Z \approx 50$ 附近の RI を生成することができる。しかし、 $Z \approx 30$ と $Z \approx 70$ の中性子の多い核種を作る方法がなかったのが、Ne 以上の重イオンによる核分裂を使えば、広い範囲にわたって中性子の多い RI を作られることが明らかになった。

Dubna における ^{22}Ne の核分裂の実験結果⁴⁾ を Fig. 5 にしめす。これは、核分裂生成核の分布が

質量数と原子番号の両者に関して広がっていることをしめしている。Neより軽い重イオンでは、このような傾向は明らかでなかったが²²Neでこのように広がっているから、より重い重イオンではどのようなになるか興味深い。U+U反応までいかなくとも、複合核の原子番号が120程度以上の反応でどのような核種の領域をカバーできるか大へん興味がある。

4. α 放射性核の研究

重イオンを使って新しい核種を作る試みのなかで、Berkeleyでシステマティックに行われた α 放射性核の発見がある。重イオン反応による反跳を利用し、Macfarlane and GreffioenとSiivolaが主として原子番号60以上の中性子の少い新しいRIを発見した。これらはすべて α 放射性である。⁵⁾

反跳法の技術的問題は、次節にゆずることにして実験のあらましを次にのべる。ターゲットから核反応の反跳で飛び出した生成核をヘリウムジェット法で減速と運搬をして半導体検出器で α 線を測定する。核種の質量数の決定は、核反応断面積の励起曲線を測定することから推定される。崩壊図式を決定していないので断面積の相対値しかえられていないことが多い。(HI, xn)反応が主反応で α 崩壊が主な分岐であればよいが、先にのべたように安定核からはなれた領域では中性子放射が少く陽子放射が多いので原子番号の決定には問題があるだろう。 α 線スペクトルの例をFig. 6にしめす。これらの実験では α 線のエネルギーと半減期が測定されている。

このようにして、Teと希土類からFrまで多くの元素の α 放射性同位体が発見された。

5. ヘリウムジェット法

重イオン反応の生成核を測定するとき、反跳法はすぐれた方法である。ビームを出しながら少しはなれたバックグラウンドの少ないところに反跳核を導き測定できれば非常によいことは誰にも明らかである。重イオンによる反跳は、陽子やアルファ粒子による反跳にくらべ大きいけれども反跳核の飛程は短く有効なターゲット厚さは僅かである。反跳原子の電荷も色々ありエネルギー巾も広い。これを直接電磁石で分離しても強度が弱く使いものにならないので、質量分離はしないで、他の方法で原子番号と質量数を決める。

一番初期のものをFig. 7にしめす。⁶⁾ 反跳をヘリウム気体中で止め、ヘリウムと共に反跳核をふき出し、対面に反跳核を吹きつける。ここで α 線を測定すれば、ビームのバックグラウンドも少く測定しやすい。

その後、色々の工夫があり、Fig. 8にしめすようなものもある。⁷⁾ 反跳核は、ヘリウム気体中で始めイオン化しているが、エネルギーを失い静止に近いところで中性化し、ヘリウム気体に流され運ばれる。気圧の低いところに出たとき、重い原子は衝突した金属面に附着し、ヘリウム原子は拡散と散乱をする。

ヘリウムジェット法は、反跳核を止めるため、ある程度の気圧が必要である。次にのべるオンライン同位体分離器のイオン源に導くためには減圧しなければならない。反跳核を有効に利用するためには、反跳核を逃がさないようにしてヘリウム気体を減少させる必要がある。そのためFig. 9にしめすような細い所を通し、重い原子は直進し、軽いヘリウム原子は拡散することにより反跳核を濃縮することが試みられている。濃縮はできたとしても回収率はあまりよくない。今後どの程度の改良が行われるか興味ある技術である。

6. オンライン同位体分離器

重イオンビームにオンラインとしてDubnaとStokholmでは同位体分離器を使っている。重イオンを使用する特徴は、生成核の大きい反跳を利用できることと重イオンの種類によりターゲットと生成RIの組み合わせを適当にえらぶことができるところにある。これら2か所の研究成果はそのうちに現われるであろうし、現在建設中の他の重イオン加速器にもいくつかのところでオンライン同位体分離器が取り付けられることと思う。

重イオンと関係ないが、現在核研のFMサイクロトロン陽子ビームにオンラインとして働いているわれわれの同位体分離器⁸⁾について、重イオンビームを使った場合を考慮しながら説明していくことにする。

この同位体分離器は、大阪大学で組立てを開始し、広島大学に移り一応オフラインで完成し、核研FMサイクロトロンでオンライン実験を行うために約1年前核研へ運び実験を開始したものである。装置の全体をFig. 10に示す。電磁石の軌道半径60 cmで小型であり、手作りのところも多い。この装置でオンラインの実験の経験をつみ、高エネルギー陽子ビームあるいは、 ^3He ビーム、重イオンビームにオンラインとしての実験を行いたいと考えている。この一年間の実験でZnとMnの分離を試み、半減期1.5分の ^{61}Zn の分離に成功した。そのときの拡散時間は1分であった。ここでいう拡散時間とはターゲットにできた核種がターゲット内を拡散し、蒸発してイオン源でイオン化され、電磁場を通過して検出器にくるまでの平均時間である。

^{61}Zn は、 $^{63}\text{Cu}(p, 3n)^{61}\text{Zn}$ 反応で作られたもので、Znは蒸発しやすい金属である。次に試みたMnは未だテストの段階で $^{52}\text{Cr}(p, n)^{52}\text{Mn}$ と $^{52}\text{Cr}(p, 2n)^{51}\text{Mn}$ の分離を試み成功した。拡散時間も1分程度にすることができたので、今後は幾つかの元素に拡散することもできると期待している。われわれの方法の特徴は、ターゲットとイオン源を近づけ、その全体を約1000℃に上げたこと、イオン源にホローカソード型を採用したことである。

このような方法ではターゲットが蒸発しにくいものでなければならない。一番簡単なのはターゲットが蒸発しにくい金属元素で、生成核種が蒸発しやすいものがよいのであるが、周期表から明らかのように、陽子、アルファ粒子をビームとしているかぎり組合せは少い。金属ターゲットとして使用できるのは、周期表中1b, 4a, 4b, 6b, 8族である。

酸素程度までの重イオンビームであっても自由に使えれば、これらをターゲットとして多くの元素を分離することが可能になる。たとえば、NiをターゲットとしてKrを、MoをターゲットにしてCdなどを生成することが可能になる。

もうひとつの重イオンの特徴は、先にのべたように反跳が大きいことである。反跳をグラフィットのような拡散しやすい物質で止めれば、拡散時間を短くして、半減期の短いものも実験できるようになる。

このようにオンライン同位体分離器の実験を行う場合も重イオンビームは非常に役に立つものである。酸素などより重い重イオンが加速されれば、核分裂生成核種(中性子の多いRI)の研究もできるようになり、期待するところは大きい。

7. 将来の展望

重イオンによるRI生成の将来は、先にのべたように、超ウランの研究と新しいRIの発見が第一であろう。その他に中性子、陽子、アルファ粒子で作りにくいRIの製造にむけられることも

あろう。では、新しい RI の研究はどんな意義があるだろうか。新しい RI とは、言い換えれば安定核からはなれた寿命の短い核種の研究にあると言える。

安定核からはなれた核種の研究は、“核種があるから探し求める”という人間本来の探究心がその主役であるが、その研究目的を分類すれば、次のようになる。

1) 原子質量と核の存在の極限。現在知られている核種の数 1500 余り、核種の存在する範囲からその数は 4000 から 5000 と推定される。現在われわれが知っている原子の質量は、安定核附近にかぎられている。安定核からはなれた核種の質量を知ることは、核力の問題とも関係して興味深い。核種存在の極限を知ることも興味あることである。

2) 崩壊の過程。安定核からはなれたところでは、色々変った原子核崩壊が期待される。第一が陽子崩壊である。中性子の少い極限の軽い核で陽子崩壊が観測されるだろう。核によっては 2 陽子崩壊もおこる。原子番号 50 附近以上の中性子の少い核では α 崩壊が起る。また、遅発粒子放射性核が多く観測されることになる。中性子の少い側では遅発 α 放射と陽子放射であり、中性子の多い側では遅発中性子放射がおこる。もうひとつは中性子の少い側で β 崩壊の超許容転移が多く測定されることである。

3) 核構造。核構造の立場から見ても興味ある問題が多い。現在の核構造論は、数百の核種の研究をもとにしている。核種数は数千あるからわずか 10 % 程度の核の性質しか知らないことになる。残りの核のなかから面白い現象が発見されることを期待したい。現在の延長として考えられることは、いくつかの double magic 核の励起状態を知ることができ、新しい変形核の領域が発見される可能性がある。

4) 宇宙論と元素の起源。元素生成の過程として中性子の多重吸収と β 崩壊が考えられている。いわゆる r 過程では安定核よりはなれた中性子の多い核をへて原子は成長する。それ故、中性子の多い安定核からはなれた核の性質は元素の起源にとって重要なデータとなる。また、安定核からはなれた核の性質は、星の燃焼と星の成長にも関係している。

以上のべたことは、新しい核種研究にとっての現在考えられる物理学的興味である。今後新しい核種の発見とともに研究目的も大きく変わっていくと思われる。

一番の難問題は、起重元素の生成と同様、どうして核種の存在の極限に到達できるかということであろう。先にのべたように、現在知られている反応では、ここに到達できるものはない。すなわち、高エネルギー陽子反応も、重イオン反応も、重イオン核分裂も、多重中性子吸収もこの極限に近づくことは困難である。残る期待は、非常に重い重イオンの核分裂と高エネルギー重イオン反応である。これは僅かな断面積のものを探し求める困難な実験であろう。

References

- 1) Gough R. A. and Macfarlane R. D.: Nuclear Reactions Induced by Heavy Ions, ed. by Bock R. and Hering W. R.: North-Holland Pub. Co., p.673 (1970)
- 2) Stephens F. S., Leigh J. R. and Diamond R. M.: Nucl. Phys. A170, 321 (1971)
- 3) Winn W. G., Gutbrod H. H. and Blann M.: Nucl. Phys. A188, 423 (1972)
- 4) Flerov G. N., Proceedings of International Conference on Nuclear Structure, Tokyo, ed. by Sanada J., Physical Society of Japan p.237 (1967); Private communication.
- 5) Macfarlane R. D.: Phys. Rev. 126, 274 (1962); 137, B1448 (1965); Macfarlane R. D. and Griffioen R. D.: Phys. Rev. 130, 1491 (1963); 131, 2176 (1963); 133 (1964) B1373; Siivola A.: Nucl. Phys. 84, 385 (1966); A92, 475 (1967); A101 (1967) 129; A109, 231 (1968). Treytl W. and Valli K.: Nucl. Phys. A97, 405 (1967)
- 6) Macfarlane R. D. and Griffioen R. D.: Nucl. Inst. Meth. 461 (1963)
- 7) Macfarlane R. D., Gough R. A., Oakey N. S. and Torgerson D. F.: Nucl. Inst. Meth. 73, 285 (1969); W.-D. Schmidt-Ott: Nucl. Inst. Meth. 108, 13 (1973)
- 8) 吉沢康和, 他: 原子核研究 18, 1 (1973)

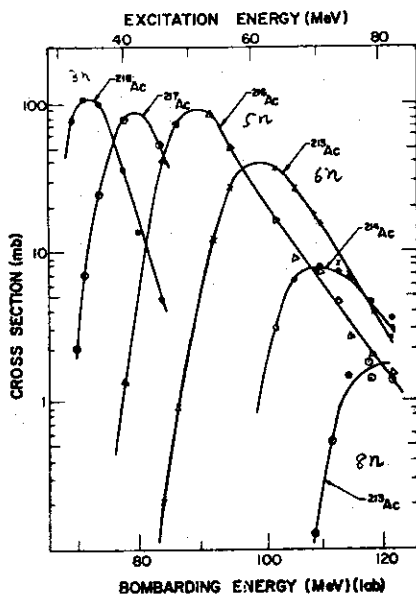


Fig. 1 Excitation curves of ^{209}Bi (^{12}C , xn) reaction¹⁾.

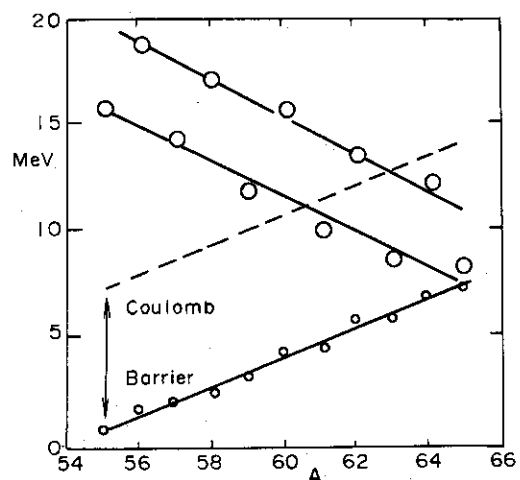


Fig. 2 Effective separation energies for Zn isotopes.

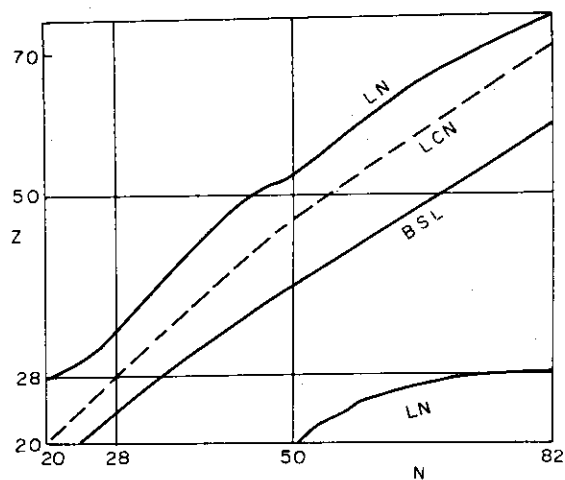


Fig. 3 Limit of nuclide (LN) and the lightest compound nucleus (LCN). BSL means beta stable line.

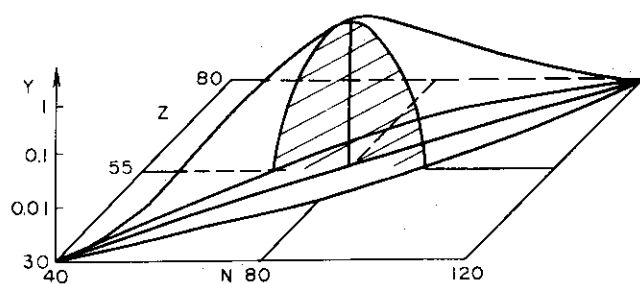


Fig. 5 Heavy ion fission yield⁴⁾

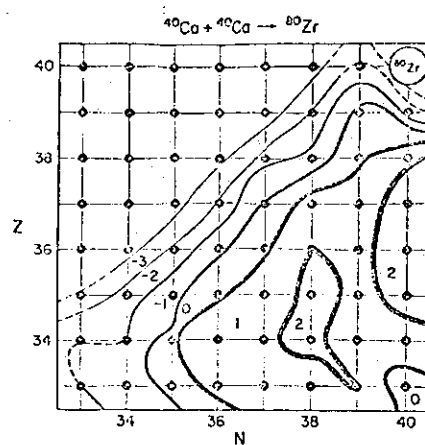
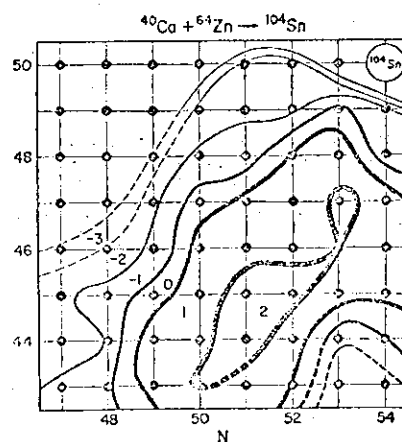


Fig. 4 Two examples of largest cross section for neutron deficient isotope production³⁾.

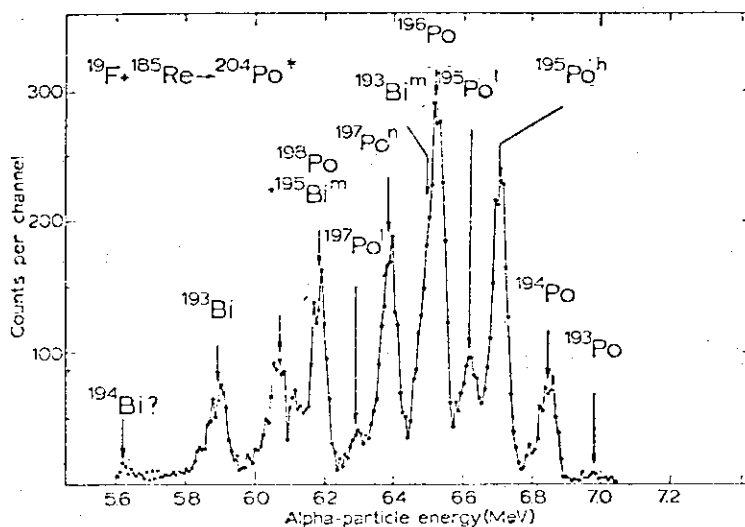


Fig. 6 Alpha-particle spectrum of neutron deficient Po isotopes⁵⁾.

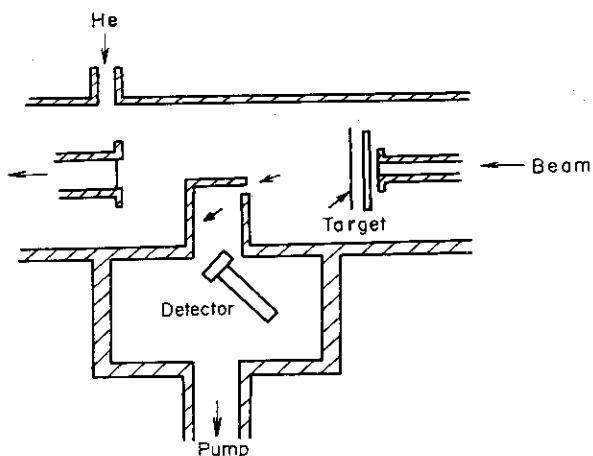


Fig. 7 Recoil experimental apparatus for alpha emitter⁶⁾.

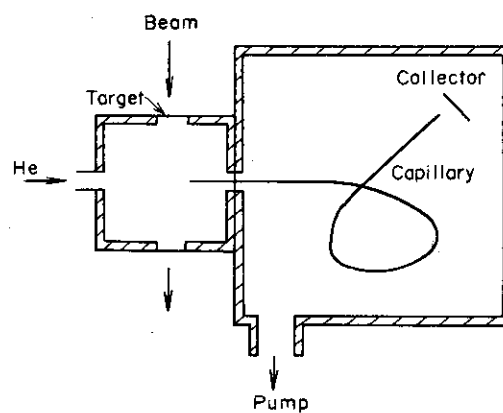


Fig. 8 A typical example of the helium jet apparatus⁷⁾.

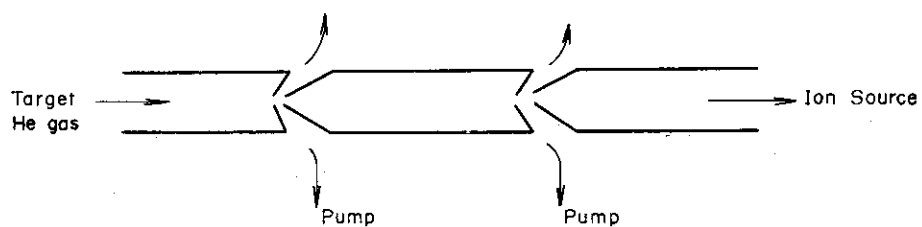


Fig. 9 Principle of helium jet separation.

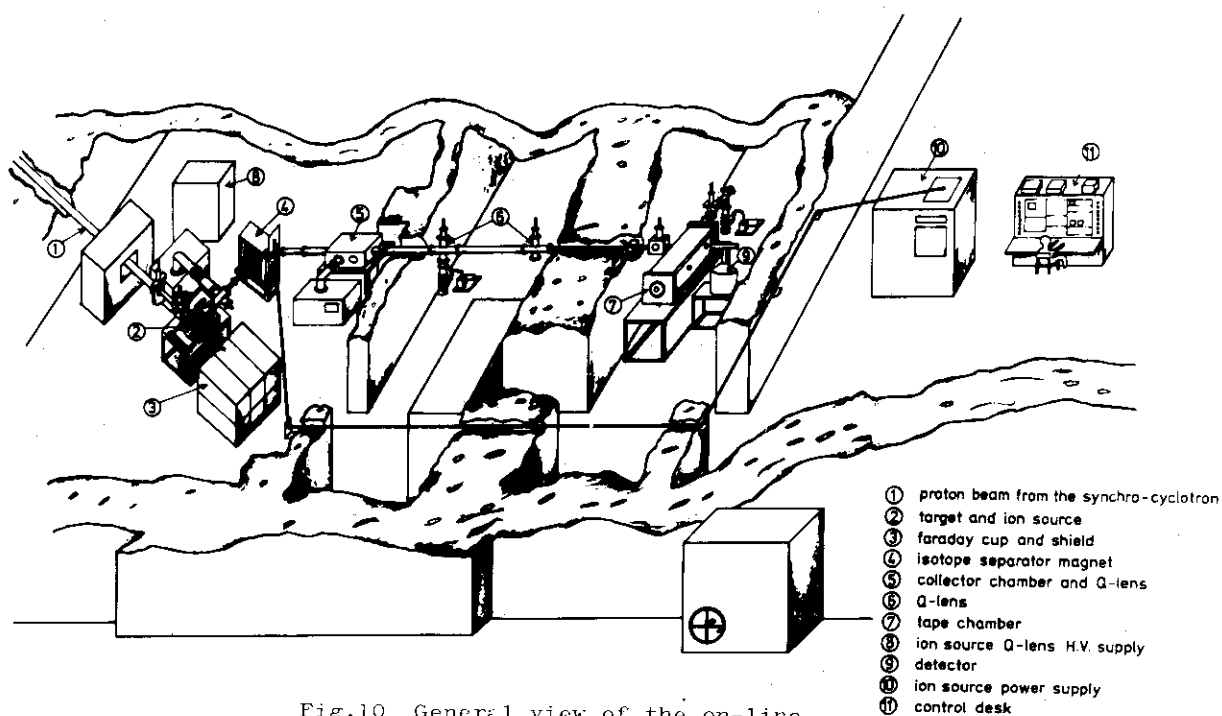


Fig. 10 General view of the on-line isotope separator at INS Tokyo.

3.2 重イオンによる反応断面積計算

東北大学工学部 古田島 久 哉, 武 田 靖,
篠 塚 勉, 竹 腰 英 子*
(仙台市荒巻字青葉)

An Evaluation for the (HI,xn) Reaction Cross Section

Kyuya KOTAJIMA, Yasusi TAKEDA,
Tsutomu SHINOZUKA and Eiko TAKEKOSHI*
(Faculty of Engineering, Tohoku University,
Aramaki, Sendai)

An expedient computer program based on the statistical model considerations has been coded and examined for evaluating the (HI,xn) reaction cross section.

1. 序

重イオン加速が比較的容易に行なわれるようになった現在, 重イオンビームを用いて物理学, 化学, 工学等における諸実験や, 有用なRIの製造を計画する時に, どのような種類の核反応がどの程度の割合でおこるかを簡単に知る事は, 基礎的な資料として重要な事である。

我々はその様な目的のための重イオン反応断面積を, $A \geq 40$ の核について広範囲に求める事を目的として, 統計模型を用いて計算を行なっている¹⁾。実際の計算に際しては, 断面積の精度より計算方法の簡単化という点に重点を置いて行なっているが, 今回は放出される中性子のエネルギーを単色から連続分布にして積分を実行し, 更に, 陽子と α 粒子の分岐についても考慮の対象とした。

2. 計算方法

一般に複合核反応断面積は, 複合核形成断面積 σ_c と, 粒子を放出して崩壊する割合 G_c の積で表わされる。

$$\sigma_c(\text{HI}, \text{xn}) = \sigma_c(\text{HI}) \cdot G_c(\text{xn}) \quad (1)$$

複合核形成断面積は, 入射粒子のエネルギー, スピンを E, s , 標的核のスピンを I とし, 複合核状態のエネルギー, スピンを E_c, J_c とすると

$$\sigma_c(E_c, J_c) = \pi \lambda^2 \sum_{s=|I-s|}^{I+s} \sum_{\ell=|J_c-s|}^{|J_c+s|} \frac{(2J_c+1)}{(2s+1)(2I+1)} T_\ell(E) \quad (2)$$

となる。一方, 励起エネルギー E_c , スピン J_c の状態からの中性子放出の割合は

* 日本原子力研究所, 茨城県那珂郡東海村

* Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Nakagun, Ibaraki.

$$R_n(E_c, J_c) = \frac{\Gamma_n(E_c, J_c)}{\sum_{\nu} \Gamma_{\nu}(E_c, J_c)} \quad (3)$$

と表わされ、各粒子 ν に対する崩壊の幅 Γ_{ν} は

$$\Gamma_{\nu}(E_c, J_c) = \frac{D(E_c, J_c)}{2\pi} \int_0^{E_c - E_b} \sum_{J_F} \Omega(E_F, J_F) \sum_{s_{\nu} \ell_{\nu}} T_{\ell_{\nu}}(E_k) dE_k \quad (4)$$

となる。ここで D , Ω は夫々、複合核状態の準位間隔及び終状態の準位密度、 $T_{\ell_{\nu}}(E_k)$ はエネルギー E_k , 角運動量 ℓ の粒子 ν に対する透過係数であり、又 E_b は放出粒子の結合エネルギーである。更に、スピン J_c の状態からエネルギー E_k の中性子を放出する事によってスピン J_F の状態へ崩壊する割合は、

$$G(J_c, J_F) = \frac{\Gamma(J_c, J_F)}{\sum_{J_F} \Gamma(J_c, J_F)} \quad (5)$$

と表わされ、各状態間の遷移の幅は係数を省略すると

$$\Gamma(J_c, J_F) = \Omega(E_F, J_F) \frac{(2J_c + 1)}{(2J_F + 1)(2s + 1)} \sum_s \sum_{\ell} T_{\ell}(E_k) \quad (6)$$

となる。従ってエネルギー E_c , スピン J_c の複合核状態からエネルギー E_k の中性子を一個放出して、エネルギー E_F , スピン J_F の状態へ崩壊する割合は(3)と(5)より

$$G_c(n) = R_n(E_c, J_c) \cdot G(J_c, J_F) \quad (7)$$

となる。

放出される粒子としては、中性子の他に陽子、 α 粒子を考えた。中性子のエネルギーは連続スペクトルを持つが、実際の計算に際しては、それを等面積に四分割し、中性子のエネルギーを四個のエネルギーに代表させて積分を実行した。多量に中性子を放出する一般の(HI, xn)反応については、各段階における中性子のスペクトルを全て四分割した上で(7)式を計算し、多重中性子放出の割合を求めた。以上述べて来た様に、問題は各段階における準位密度及び透過係数を求める事に帰着する。

準位密度には次の様な4個の模型を用いて計算を試みた。

- 1) 単一粒子フェルミガス模型²⁾
- 2) Difused Well ポテンシャル中における単一粒子フェルミガス模型³⁾
- 3) ペアリング模型²⁾
- 4) 超伝導核模型

これらの模型による準位密度をFig. 1に示す。図に見られる様に、どの模型についても励起エネルギーに対しては同様のふるまいをしており、今回の我々の目的には、絶対値の大きさよりも、この様な励起エネルギーに対する状態密度の変化の傾向からの寄与の方が重要であろうと考え、以後の計算には1)の単一粒子フェルミガス模型を採用した。

荷電粒子に対する透過係数の計算には、次の様な2つの近似を入射粒子のエネルギーの範囲によって使い分けた。

- 1) $E \geq 0.95 B_H$ (B_H : ポテンシャル障壁の高さ) については放物線近似⁴⁾
- 2) $E < 0.95 B_H$ についてはWKB近似

一方中性子に対しては、井戸型の原子核ポテンシャルを持つ障壁に対する透過係数を用いた。

3. 計算結果及び実験値との比較

以上の様にして求められる計算結果がどの程度実験値を再現でき、更に調べられていない反応断面積の予測にどの程度の信頼性があるかを見るために $^{130}\text{Te}(^{12}\text{C}, xn)$ 反応について計算を行なった。

まず、入射エネルギーが50 MeVと70 MeVについての複合核形成断面積をFig. 2に示す。形成される複合核状態の平均のスピンは $19\hbar$ と $29\hbar$ であった。

Fig. 3に、放出される粒子に中性子のみを考えた時の結果を実験値⁵⁾と共に示す。 $(^{12}\text{C}, 4n)$ 反応については実験値がなく、又 $(^{12}\text{C}, 6n)$ 反応についてはデータが多少不確定であるので図には $(^{12}\text{C}, 3n, 5n, 7n)$ 反応についてのみ示した。両者を比較すると放出する中性子の数が大きくなると高エネルギー側へのティリングが大きくなるという傾向がかなり良く再現されており、更に各断面積曲線の位置や大きさの順序($\sigma(5n) > \sigma(7n) > \sigma(3n)$) についても比較的良く再現されている。

Fig. 4は放出される粒子として中性子の他に陽子、 α 粒子を考えた場合の結果である。この場合には、中性子の放出に伴って各断面積は急激に減少している。このような断面積の減少傾向は、計算では $3n$ 以上で起きているが、実験値では $5n$ までは増加し、それ以上で減少が起きている。

4. 結 論

今回は、1) 放出される中性子のエネルギーを単色から連続分布として積分を行なう、2) 陽子と α 粒子による分岐を考慮する、という二点について重点的に作業を行なった。1)については断面積の傾向をかなり良く再現する事ができた。即ち、中性子のエネルギーを単色と考えた場合には、一つのエネルギーに対しては一種類の反応しか対応しない様な結果が必然的に予想されるが、積分を実行する事により、より実験値に近い断面積の形が再現されるわけである。2)については、定性的には励起エネルギーが大きくなると放出される荷電粒子の平均のエネルギーが大きくなり、クーロン障壁が効かなくなって荷電粒子の分岐率が中性子の分岐率に近くなると考えられる。従って xn の x が増加するに伴って各断面積が減少するという傾向が考えられる。事実、実験値も $x > 5$ では減少の傾向を見せている。

References

- 1) 古田島久哉, 竹腰英子 : JAERI-1221, p114 (1972)
- 2) Lang D. W.: Nucl. Phys. 42, 353 (1963)
- 3) Beard D. B. and McLellan A.: Phys. Rev. 131, 2664 (1963)
- 4) Hill D. L. and Wheeler J. A.: Phys. Rev. 89, 1102 (1953)
- 5) Oganecian I. T. et al.: Conf. Dubna, p405 (1971),
Proceedings of the international conference on heavy ion physics.

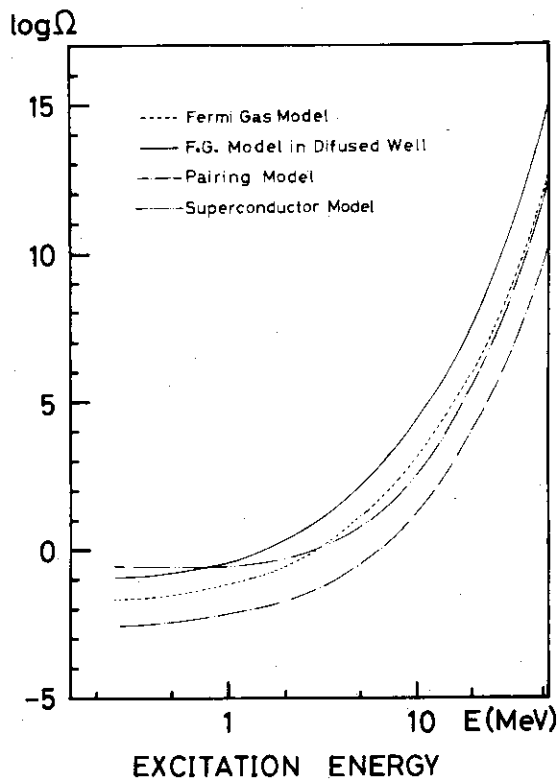


Fig. 1 Level densities for ^{180}W calculated by using four models.

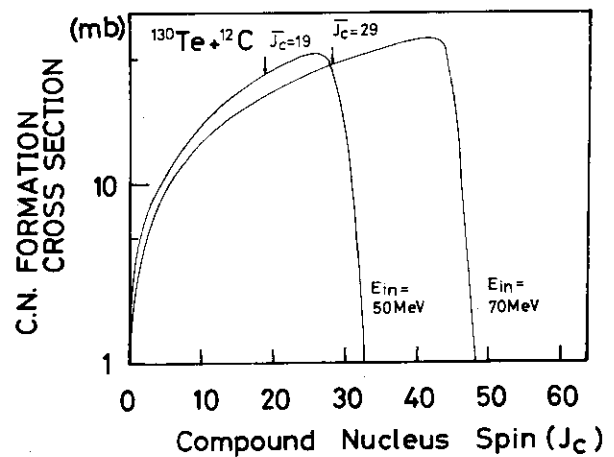


Fig. 2 Compound nucleus formation cross sections for the $^{130}\text{Te} + ^{12}\text{C}$ reaction. Incident energies are 50 MeV and 70 MeV.

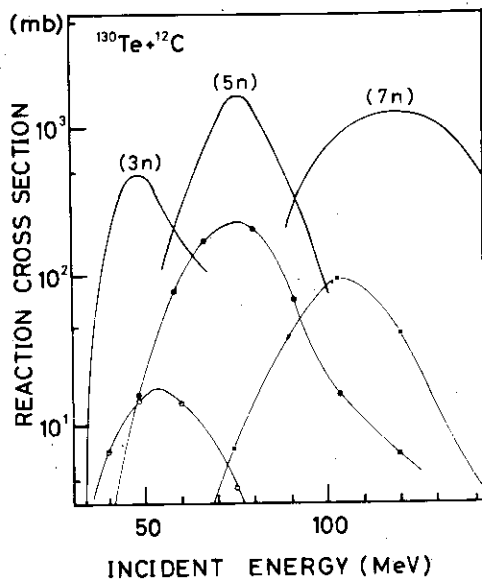


Fig. 3 Experimental and calculated reaction cross sections for the $^{130}\text{Te}(^{12}\text{C}; 3, 5, 7n)$ reactions. Only neutron evaporation is considered.

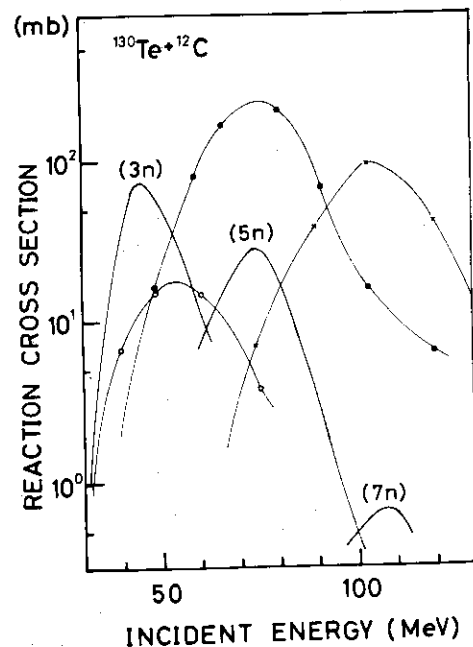


Fig. 4 Experimental and calculated reaction cross sections for the $^{130}\text{Te}(^{12}\text{C}; 3, 5, 7n)$ reactions. Branching for proton and alpha particle is included.

3.3 重イオンによる新しいRI等の生成

理化学研究所 橋 爪 朗, 天道 芳彦
加藤 武雄, 熊谷 秀和
(埼玉県和光市広沢 2-1)

On the Production of New Radio-Isotopes by Heavy - Ion Bombardment

Akira HASHIZUME, Yoshihiko TENDOW,
Takeo KATOU and Hidekazu KUMAGAI
(The Institute of Physical and Chemical Research,
Wako-shi, Saitama)

The possibility of the production of new neutron deficient radioisotopes by the heavy ion reactions is briefly discussed. After the short comment on the new isotopes confirmed by our laboratory, technics to measure the half-life in millisecond region by a mechanical beam chopper are explained. An existence of new isomer in ^{204}At with $T_{1/2} = 9.7$ ms produced by the $^{197}\text{Au}(^{12}\text{C}, 5n)^{204}\text{At}$ reaction is tentatively proposed.

新しいRIあるいはisomerをみつけるためには β 崩壊に対して安定な原子核と陽子あるいは中性子数が大きく異なる核種を作らなければならない。このうち中性子欠損核を作るために一般に利用されている方法はp, dあるいは α 粒子などの軽粒子によって惹き起こされる反応によるもの、重イオン反応によるもの、spallationによる方法などがある。どの方法が優れているかは狙っている領域によって異なり一概には結論することはできないが、重イオン反応を利用する反応は少なくともZが70程度以上の重い原子核で、しかも中性子数が安定核種より10以上少ないRIを作るのに最も能率の良い方法である¹⁾。この様な安定核種より離れた所にあるRIについては単にそれ自身が新しいということだけではなく、崩壊のQ値に関連して質量公式をより広い範囲に適用する問題や、原子核の形、陽子放出などの点から興味を持たれている。また β 崩壊のQ値が大きいので娘核種の比較的高い励起エネルギーまで調べることができる。

しかし実際に重イオンを標的にぶつけた場合、持ち込まれるエネルギーと角運動量が大ききこともあって、軽粒子によって惹き起こされる反応と比較して競合反応のチャンネルが沢山あり、その結果生成するRIも多種にわたるのが普通である。例えば ^{232}Th などの超ウラン元素をHIで衝撃した場合、複合核を経由する反応以外にtransfer反応が起って衝撃粒子が $^{18}\text{O} + 4n \rightarrow ^{22}\text{O}$, $^{22}\text{Ne} + 4n \rightarrow ^{26}\text{Ne}$ あるいは $^{18}\text{O} - 2p + 2n \leftarrow ^{18}\text{C}$, $^{22}\text{Ne} - 2p + 4n \rightarrow ^{24}\text{O}$ のようにpickupまたはexchange反応により逆に中性子の多い新しいRIが見出された例もある²⁾。

複合核を経過する反応に関して、より中性子の少ない原子核を作るためには励起された状態から陽子と中性子の放出される割合の比 Γ_p/Γ_n が問題であるが、陽子および中性子のeffectiveな結合エネルギーをそれぞれ B_p^* および B_n^* とすれば放出の割合は

$$\frac{\Gamma_p}{\Gamma_n} = \exp \left[\frac{B_n^*}{T} - \frac{B_p^*}{T} \right]$$

で表わされる。³⁾ (T は励起状態の温度である。 A が100以上の原子核ではほぼ $\Gamma_p/\Gamma_n=1$ であることが知られており、中性子数が非常に少ない原子核を作るには陽子放出が邪魔となって生成量が急激に少なくなる。しかし上記の条件を限界と考えても150種以上の新しいRIがHIによる反応で作られる可能性がある。陽子の結合エネルギーが0となる限界までにはまだずっと中性子数の少ない所にあり、そこまで中性子の蒸発によって達するのはyieldが非常に小さくなって不可能に近い。

質量数の大きい所ではこれらの反応に加えて核分裂反応も起るので生成RIのZおよびAの確認が大切なものとなって来る。

Zの確認のためには化学分離を行わなければならないが、古典的な方法は高々数秒まで、気相や液相を上手に利用して数百ms程度の分離時間で目的とするRIを抽出することもできる。しかしむしろこれらは特殊な技術であって普通は数分ないと分離が困難である。抽出が問題でなく、単にZ数の確認ならば α 線、 β 線または γ 線との同時計数を取り、特性X線のエネルギーで目的を達することができる。

質量数の確認には勿論質量分析器または分離器が用いられるが現在加速器とon lineで稼動している装置はイオン源の関係もあって分析時間にmsecから数十msecが必要のようである。一般に半減期が1秒以下のRIではoff-lineの測定よりもin beamでの測定が主力を占めるようになってくる。われわれは半減期が数msecより数百msecの範囲の核種からの γ 線を測定するために機械的なビームチョッパーを新しく製作したので以前見出した新しいRI ^{81}Y , ^{104}In および ^{100}Ag などについて簡単に触れた後、チョッパーを用いた新核種の探査の結果を報告する。

2. 二三の新しいRIについて

- (i) ^{81}Y : YのRIについて質量数の小さい方は $A=82$ までであった。 ^{81}Y は $^{75}\text{As} (^{12}\text{C}, 6n)$ 反応で作られることが予見できたので ^{81}Y の原子質量を半実験式から外挿して求めたところ約66 MeVの値が得られた。反応の最大値はこれより20 MeV 程度大きな所にくるが、これは理研サイクロトロンで十分達することのできるエネルギーである。70より90 MeVエネルギーを持つ C^{4+} イオンで10分間粉末状金属砒素を照射した後、6N硝酸で溶解し12%の弗化アンモンを加えてイットリウム沈澱を得、 γ 線を測定した。照射終了後より化学分離を終るまでの時間は長くて4分程度である。イットリウムの沈澱から出る γ 線に428および469 keVの γ 線が認められ、励起関数、崩壊生成物(特に $^{81\text{m}}\text{Kr}$ の γ 線)などから ^{81}Y ができていると判断された。半減期は5.0分である。
- (ii) ^{100}Ag : 銀の中性子欠損核についてはすでにH. BakhruとR.I. Morseが1967年に $\text{Mo} (^{11}\text{B}, xn)$ 反応で ^{99}Ag より ^{102}Ag までのRIを報告しており、⁴⁾その半減期はTable 1のようになっている。このうち ^{102}Ag に関しては β 線、 γ 線の各エネルギー、 $\beta-\gamma$ および $\gamma-\gamma$ 同時計数などについて詳しく調べられているが、質量数が101以下のRIについては β^+ 線の測定による半減期の報告のみしかなくない。われわれは92%に濃縮された ^{92}Mo をターゲットにして $^{92}\text{Mo} (^{12}\text{C}, 4n)$ 反応で ^{100}Ag を作成した。短半減期のため化学分離は行なわなかったが ^{100}Pd の $4^+ \rightarrow 2^+ \rightarrow 0^+$ の遷移と判断される665.8および75.4 keVの γ 線が観測されその半減期は $1.9 \pm 0.3 \text{ min}$ であった。⁵⁾この半減期はBakhru等の結果とは異っており、準安定準位の可能性を含めて今後検討しなければならない問題である。

(iii) ^{104}In : 銀の場合と同様にして 98% に濃縮された ^{96}Ru をターゲットにして 80 MeV の C^{4+} で衝撃したとき $^{96}\text{Ru} (^{12}\text{C}, 4n) ^{104}\text{Sn} \rightarrow ^{104}\text{In}$ で ^{104}In が生成する。これは $^{96}\text{Ru} (^{12}\text{C}, p3n) ^{104}\text{In}$ の反応によっても確認された。 ^{104}In の半減期は $25 \pm 6 \text{ min}$ および $4.5 \pm 0.2 \text{ min}$ の半減期があり、⁵⁾ どちらがアイソマーであるかは判明していない。観測された γ 線のエネルギーは 658 および 835 keV で、このエネルギーは $^{102}\text{Pd} (\alpha, 2n) ^{104}\text{Cd}$ で得られた ^{104}Cd の 658 (2^+) および 1493 (4^+) の励起準位間の遷移エネルギーと一致する。

3. ミリカンド領域の半減期の測定

半減期が 1 秒以下になると先に述べたように沈澱法、イオン交換法あるいは溶媒抽出法等の正統派の化学分離は行うのが困難になってくる。新しい RI 発見の手がかりとなるものは先づ半減期であるが、われわれはサイクロトロンで加速されたビームを機械的なチョッパーにより断続して、ビームでターゲットが照射されていない間に γ 線の減少する割合を観測する方式を確立した。その概念図を Fig. 1 に示す。サイクロトロンで加速され、振分け電磁石で所定のコースにきたビームは $2 \times 2 \text{ mm}^2$ 程度のスリットを通過し、その直後に置かれたチョッパーで間引される。チョッパー本体は真空中で長時間連続運転の可能な小型 DC モータに取りつけられた穴のあいたアルミニウム円板より成る。幸いなことに放射化されたターゲットからくる γ 線を Ge (Li) 検出器で測定するために必要なビーム強度はチョッパーの手前で数十 nA 程度であるので発生する熱量は 5 W 位に相当し特に装置を冷却しなくても連続運転が可能である。ビームが円板を通過するときの時刻は豆電球と phototransistor の系によって検出し、後者からのパルスはパルス整形した後 X-tal oscillator を内蔵する time base generator の gate を開く。更にこれにより binary scaler が働き、その出力は 2 次元で使われている波高分析器の時間軸を決める。時間が経過しあらかじめ定められた時間軸の最大値になって binary scaler が overflow すると、time base generator の gate および Ge (Li) 検出器から波高分析器に至る回路の gate を閉じる。現在の方式ではビームの遮断されている時間内に測定時間が入るようにモーターのスピードを調整しなければならないが、binary scaler はビームが通過してから常に一定の遅れの後に作動し始めるのでモーターの回転むらによる時間のふらつきは計数を終って休止している時間に僅か影響を及ぼすのみである。以前は X-tal oscillator と binary scaler の代わりに鋸状波を作って時間軸を決める ADC の DC 入力に入れていたが、時間の calibration が不正確なので現在の方法に改めた。

以上述べた方法により、衝撃粒子としては主に C^{4+} イオンを使ってミリ秒程度の半減期を持つアイソマーを探索した。ここでは一例として Au を 90 MeV の C^{4+} イオンで衝撃した時の γ 線スペクトルを Fig. 2 に示す。この時のスペクトルは 256 (エネルギー軸) $\times$ 16 (時間軸) にとった。時間軸のスケールは 5 ms/channel である。図から明らかなように 366 および 380 keV の γ 線が減少していることがわかる。Fig. 3 はこの 2 つの γ 線の半減期の測定を示したもので 9.7 ms の値が得られた。Au ($^{12}\text{C}, xn$) 反応の励起関数については 1967 年に T.D. Thomas および G. Gordon らの報告⁶⁾ があり、またその生成物である At の RI に関しては 1970 年に J.M. Dairiki⁷⁾ の報告がある。 ^{204}At について彼等の提案している崩壊図を Fig. 4 に示したが、Fig. 2 で示したスペクトル中の半減期の長い γ 線は 587 keV を除いてよく崩壊図のものと一致している。Fig. 5 は C^{4+} の入射エネルギーを変化させ励起関数を詳べたものである。上記 γ 線を含めた 5 本の γ 線はいずれも 87 MeV 近辺で相対強度が最大値を持っており ($^{12}\text{C}, 5n$) 反応の結果生じた RI であると判断

される。半減期が9.7msで減少する366および380 keVの γ 線に関する励起曲線はFig. 5のようになり、最大値はほぼ一致しているが曲線の立上り部がややなだらかなのである。 $(^{12}\text{C}, 5n)$ と $(^{12}\text{C}, 6n)$ 反応ではピーク値が8MeV程度ずれなければならないことからやはり $(^{12}\text{C}, 5n)$ 反応によって生じたものと考えることができるであろう。しかし励起曲線がなだらかな立上りを示す理由はよく判っていない。また金よりZ番号の一つ小さな白金を標的にして γ 線スペクトルを同様に調べてみたが、上記2本の γ 線は認めることができなかったのもわれわれは $(^{12}\text{C}, xp, yn)$ 等の反応によるものではないと考えている。従って、2つの γ 線は ^{204}At の励起準位に起因するもので746keVの所に半減期9.7msの新しいIsomeric stateが存在すると思われる。

References

- 1) Rudstam G.: Arkiv f. Fysik 36, 9 (1967)
- 2) Artukh A. G., Avdeichikov V. V., Erö J., Gridnev G. F., Nikheev V. L., Volkov V. V. and Wilczynski J.: Int. Conf. on the Properties of Nuclei far from the Region of Beta-Stability, 1, 47 (1970), Geneva.
- 3) Diamond R. M.: *ibid*, 1, 65 (1970).
- 4) Bakuru H. and Morse R. I.: Nucl. Phys. A100, 145 (1967).
- 5) Inamura T., Hashizume A., Kato T., Tendow Y.: J. Phys. Soc. Jap. 30, 884 (1971).
- 6) Thomas T. D. and Gordon G.: Phys. Rev. 126, 1805 (1962).
- 7) Dairiki J. M.: UCRL 20412 (1970).

Table 1. Neutron deficient isotopes of Ag reported by H. Bakuru and R. I. Morse⁴⁾

Isotope	Half-life
^{102}Ag	4 ± 1 min
$^{102\text{m}}\text{Ag}$	17 ± 1
^{101}Ag	10 ± 1
^{100}Ag	8 ± 1
^{99}Ag	3 ± 0.5

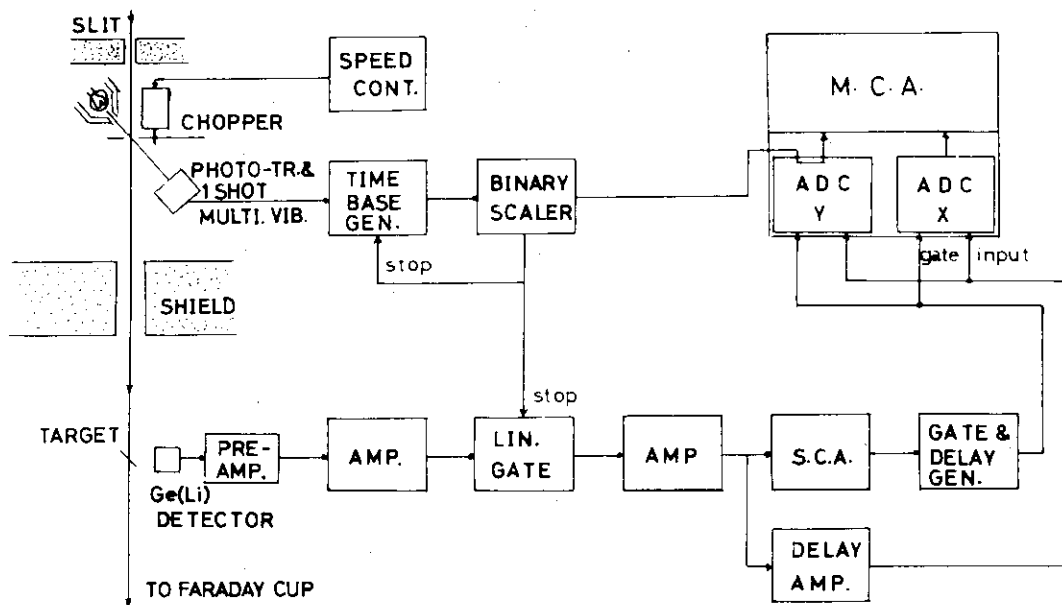


Fig. 1 Schematic diagram to study the half-life in millisecond region with mechanical beam chopper.

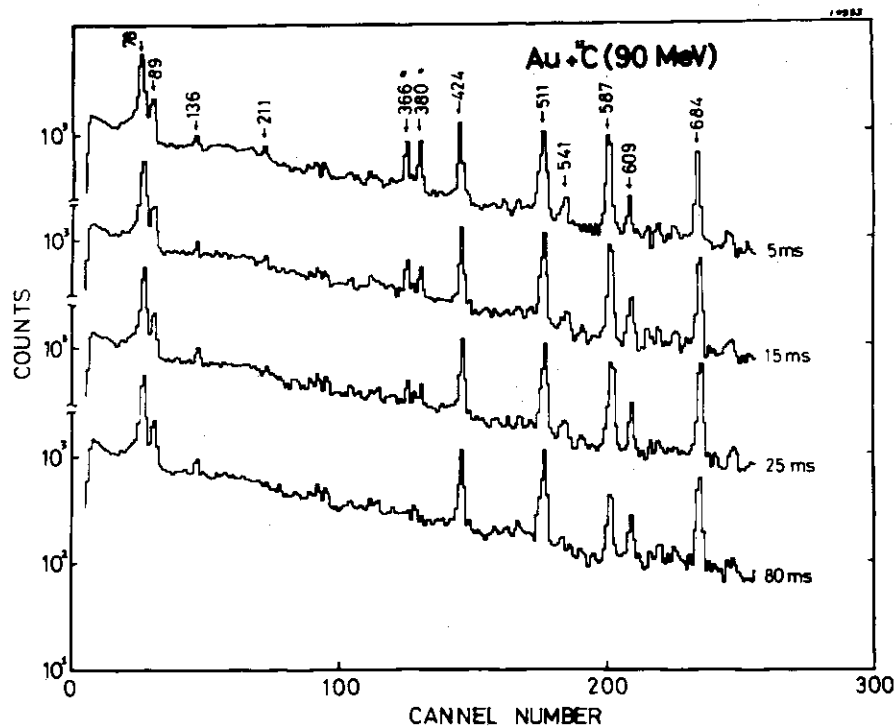


Fig. 2 The delayed γ -ray spectra between 5 ms to 85 ms after the bombardment of Au by ^{12}C ions are shown.

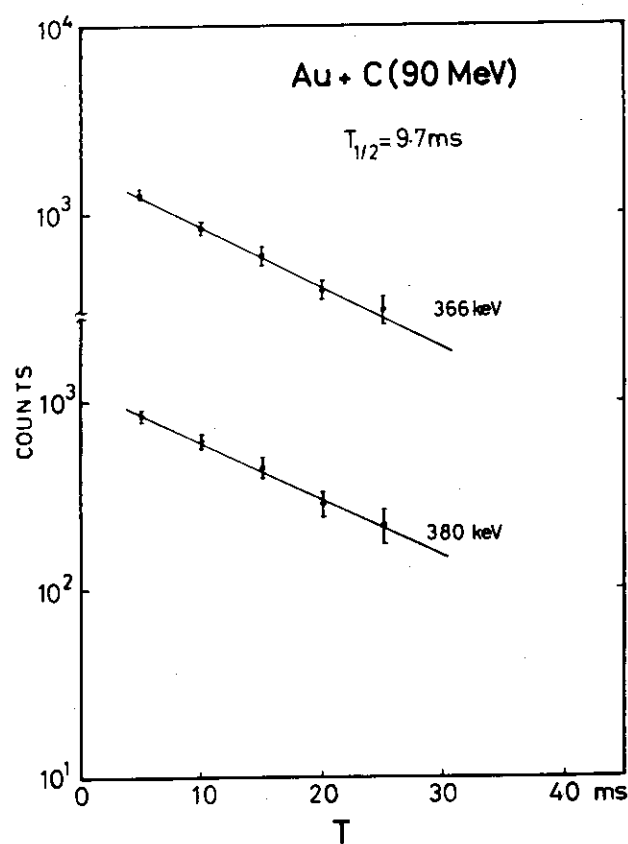


Fig. 3 Examples of decay curves of de-exciting 366 and 380 keV γ -rays.

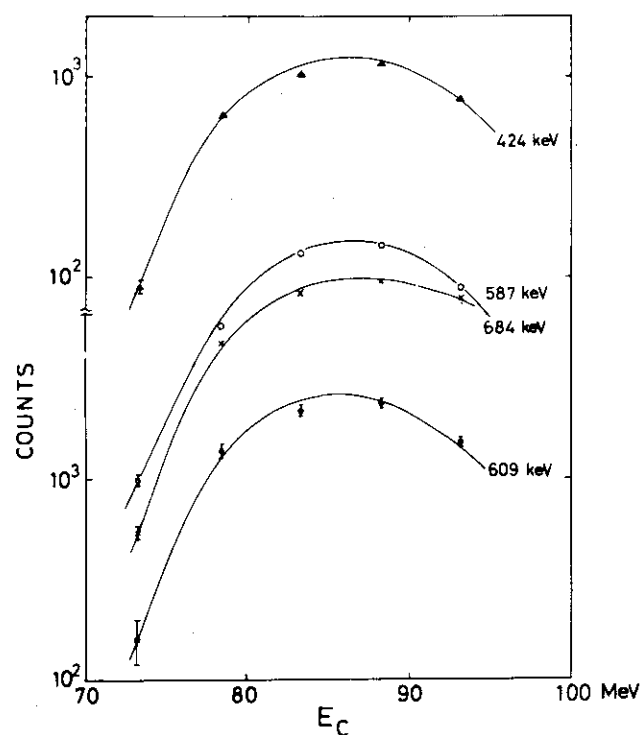


Fig. 4 Decay scheme of ^{204}At proposed by Dairiki⁷⁾.

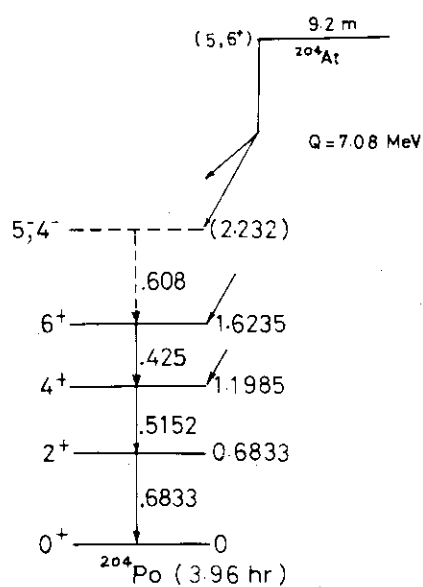


Fig. 5 The excitation functions of the $^{197}\text{Au}(^{12}\text{C}, 5n) ^{204}\text{At}$ reaction.

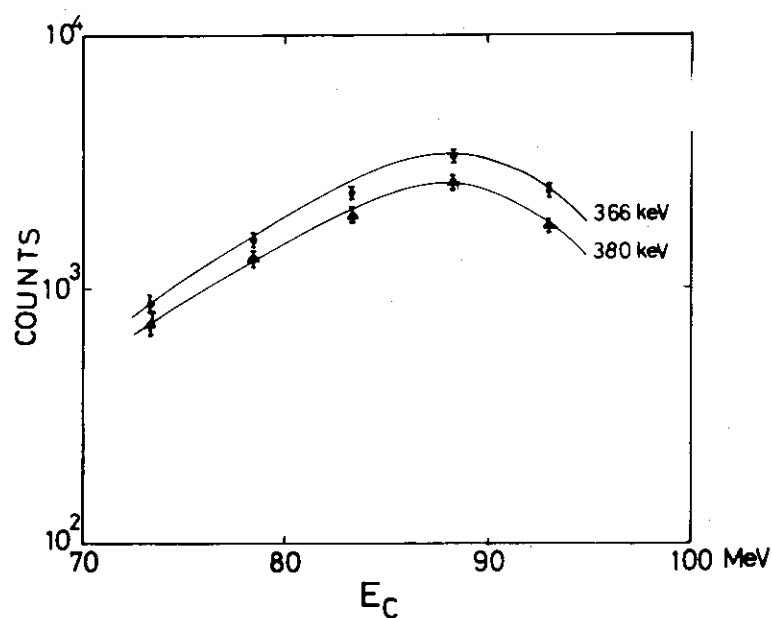


Fig. 6 Excitation functions measured by 366 and 380 keV γ -rays when Au was bombarded by ^{12}C ions.

3.4 重イオン生成RIの利用

日本原子力研究所 田 中 吉左右
(茨城県那珂郡東海村)

The Preparation of Radioisotopes by Heavy Ion Bombardment and the Use

Kichizo TANAKA
(Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki)

The author proposes the technical problems concerning with the preparation of radioisotopes for nuclear medicine in heavy ion bombardment and a possible method of characteristic use.

RI利用の観点から重イオン反応をとりあげた具体的な資料は現在までのところ公表されていない。この理由として考えられることは、このような問題がすべて今後の課題として残されているのか、あるいは、利用にたいする何らかの障壁があるのではないかということである。

ここでは2つの課題に限定してそれらの問題点を提供したい。その一つはRI利用の面からタンデム静電加速器に何が期待できるかという問題であり、もう一つは重イオン反応をRI利用に供するさいの技術的な課題が何であるかということである。

サイクロトロンを含めて加速器はそれが誕生した当初には中性子治療のような利用が積極的に進められたが、原子炉の出現により一時中断されていた。しかしここ数年来とくにRI利用の医学方面における急速な進展と、加速器製作技術の進歩により荷電粒子用加速器の特徴とその重要性が再認識されてきたという歴史がある。

RI製造用機器としての観点からみると、加速器が原子炉と比べてきわめて優れている点は何かといえば加速器には臨界問題のような厳しい安全性の制約がないことで、今後とも建設されるポテンシャルがなお高い機器と考えてよい。

現在核物理以外にもその利用が考えられている加速器の例として、Sears & Montgomery社のカタログで比較すると、具体的利用例はTable 1のようである。このなかでは荷電粒子用静電加速器の有力な機能が材料研究や中性子発生にあるのは当然であるが、これと並んでRI製造も一つの重要な機能であることが記されている。

つぎにいくつかのRI製造用機器における特徴と問題点をTable 2のように比較してみた。原子炉のばあいには (n, γ) 反応を、電子ライナックの場合は (γ, n) 反応を対象とみてよい。サイクロトロンでは陽子を加速する場合を、20 MVタンデム加速器は重イオンを加速するものとする。この表から判断する限りタンデム型重イオン加速器には三つの大きな特徴のあることがわかる。その一つは生成核種が無担体RIであることである。二番目は生成核種の種類がきわめて多いことであり、その詳細は吉沢康和氏による綜説(Part 3, 3.1参照)に示されているように、現在知られているすべての核種を調製できるばかりではなく、なお未踏の領域の核種をもその対象としていることであり、さらにもう一点はサイクロトロンと並んで無担体RI製造原価が低いということである。

ある。このことは R I 利用において無担体 R I 利用度の高い分野でその特徴が発揮されることを示している。

Fig. 1 および M. Blan の計算結果によれば中重核においては主に $(HI \cdot Xn)$ 反応がおこるので重イオン反応による R I 生成は中性子欠損核種の生成に有利であるという特徴がある。

この事実とビームの経済価値から考えて、ここで生成する R I は治療用をのぞく核医学利用あるいはこれと等価の利用価値をもつトレーサー利用たとえば生命科学への利用が効果的な利用先であると考えてよい。

このような利用目的においては、利用量も一件あたり数ミリキュリーとわずかでよい場合が多く、半減期も何時間以下といった短かいものが要求されており、また生成核種の性質の上からも医用診断技術の精度向上の観点から消滅放射線が有効であるのでポジトロンを放出する中性子欠損核種の要請度が高いように、その利用目的と重イオン加速器による R I 生成の特徴とがよく符合している。

Table 3 に現在核医学で利用されている R I と将来利用されるポテンシャルの高い R I の具体例を示した。

これらの核種の選別条件として考えられることは、1) 明確な用途があるにも拘わらず、他の方法では生成せずしかも他に代用核種のない同位体の供給をはじめとして、2) 原子炉による生産が不可能か経済的に著しく不利であり加速器の中でも重イオン加速器の利用が有利である場合とか、3) 従来の製造法あるいは利用法の上から問題提起がなされている R I についてそれが重イオン加速器の利用により回避される見通しがある場合などである。これらの核種のなかでは ^{123}I や ^{52}Fe の利用がとくに注目され、現在それらの対象核種については効果的な製造法の開発がまたれている。しかしこれまでのところでは重イオン反応を利用した具体的な研究例が十分でない。

R I 生成に関する技術的問題点は、Table 4 に示されている Thick Target yield に関する問題点に要約される。重イオン反応の励起函数や重イオン粒子の種々の媒体中での阻止能に関する情報の精度向上が期待されている。

^{123}I や ^{52}Fe についてはその具体的成果を機器の建設後にまつことにして、 ^{67}Ga の例につき得られている励起函数を示すと Fig. 2 のようであって重イオン反応の中でも $^{59}\text{Co} (^{16}\text{O}, X)$ 反応が他の ^{14}N や ^{12}C の反応と比べて著しく高い反応断面積をもっていることを示すことができる。タンデム加速器は重イオン反応と同時に P や d, α のような軽い粒子についても高い精度のビーム利用が期待でき、このような励起函数の測定すなわち R I 製造技術の基礎を確立する上できわめて有力な機器であることは疑いない。

つぎに R I 利用技術の向上に積極的に貢献する一つの手がかりとして重イオン反応に伴う化学的效果の応用を触れておきたい。とくに核医学利用であるとか生命科学への利用の場合には ^{18}F や ^{11}C , ^{14}N のような短寿命核種の複雑な標識化合物が利用される傾向にある。それらの合成技術として知られている反跳標識技術に重イオン反応を利用した場合を想定すると、きわめて興味深い問題点に遭遇する。それは重イオン反応の場合同じ運動エネルギーでも陽子や中性子の反応と比べて、いちじるしく高い運動量の持込みが期待されることである。これがホットアトム過程や放射線化学過程におよぼす効果に伴って標識化合物の生成にどのような寄与をもたらすかを明確にすることにより、重イオン反応に特有の標識技術を産み出す可能性が期待される。

TABLE 1 Functions of multi-purpose accelerator

Electron Linacs 1 ~ 100 MeV	Cyclotrons 100 ~ 400 MeV	Electrostatic 0 ~ 100 MeV	Meson Factories
1) Inspection and surveillance of nuclear materials	1) Isotope production	1) Radiation damage with neutrons and charged particles	1) Isotope production
2) Polymerization of plastics	2) Radiation therapy with protons and alpha particles	2) Isotope production	2) Radiation therapy with negative pions
		3) Neutron cross section measurement	3) Mu-activation analysis for medical diagnosis
		4) Neutron activation analysis	

TABLE 2 Comparison of advantages and disadvantages of isotope production in several machines

	Nuclear Reactor	Accelerators		
		Electron Linac	Cyclotrons (protons)	Electrostatic (heavy ions)
QUANTITY	large	much smaller	small	much smaller
SPECIFIC ACTIVITY	low depend on irradiation time	very low depend on irradiation time	high independent	high independent
NUMBER OF RADIONUCLIDES	relatively small	small	practically all	practically all plus unknown
TARGETS	no special demands	relatively easier than cyclotron	heat resistance vacuum resistance good thermal conductivity	locally relatively severe than cyclotron
TARGET INVENTORIES	much larger many kinds	small single	small single	small single
MULTI-PURPOSE IRRADIATION	proper	severe	severe	severe
NEEDS OF CHEMICAL MANIPULATION	rare	usually not required	required	required
PROJECTILE COST	low	high	high	a little higher than cyclotron
COST/mCi	low	high	high	high
COST/CARRIER FREE RI	high	very high	low	low

TABLE 3 An example of the present and the potential use of radioisotopes in nuclear medicine (except therapy)

The Present Use			Potential Use	
NUCLIDES	APPLICATIONS	% (1966)	NUCLIDES	APPLICATIONS
^{51}Cr	Diagnosis(blood volume)	3.1	^{11}C	
^{59}Fe	Diagnosis	0.3	^{13}N	
^{75}Se	Diagnosis(scanning)	0.2	^{18}F	scanning(bone)
$^{99\text{m}}\text{Tc}$	Diagnosis(scanning)	6.7	^{43}K	Diagnosis
^{125}I	Diagnosis, scanning	63,9	^{47}Ca	metabolism
^{131}I			^{52}Fe	Diagnosis
^{197}Hg	Diagnosis(scanning)	2.6	^{67}Cu	
^{203}Hg	Diagnosis	5.2	^{67}Ga	Diagnosis
^{198}Au	Diagnosis	4.1	$^{113\text{m}}\text{In}$	Diagnosis(scan)
Others	---	13.9	^{123}I	Diagnosis

TABLE 4 Problems on the radioisotope production in the use of heavy ion accelerator

THICK TARGET YIELD

$$Y = \frac{pfI}{Mz} (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_{th}}^E \frac{\sigma}{\xi} dE \times \text{const}$$

Y = Thick target yield (mCi/μA-h)

p = Number of atoms in the target

f = Natural isotopic abundance

I = Beam intensity (μA)

M = Atomic weight (g)

z = Atomic number of the incident particle

ξ = Stopping power

σ = Cross section

Stopping power of heavy ion in the target

Excitation function of heavy ion induced reaction

Separation and preparation technics for the radioisotope use

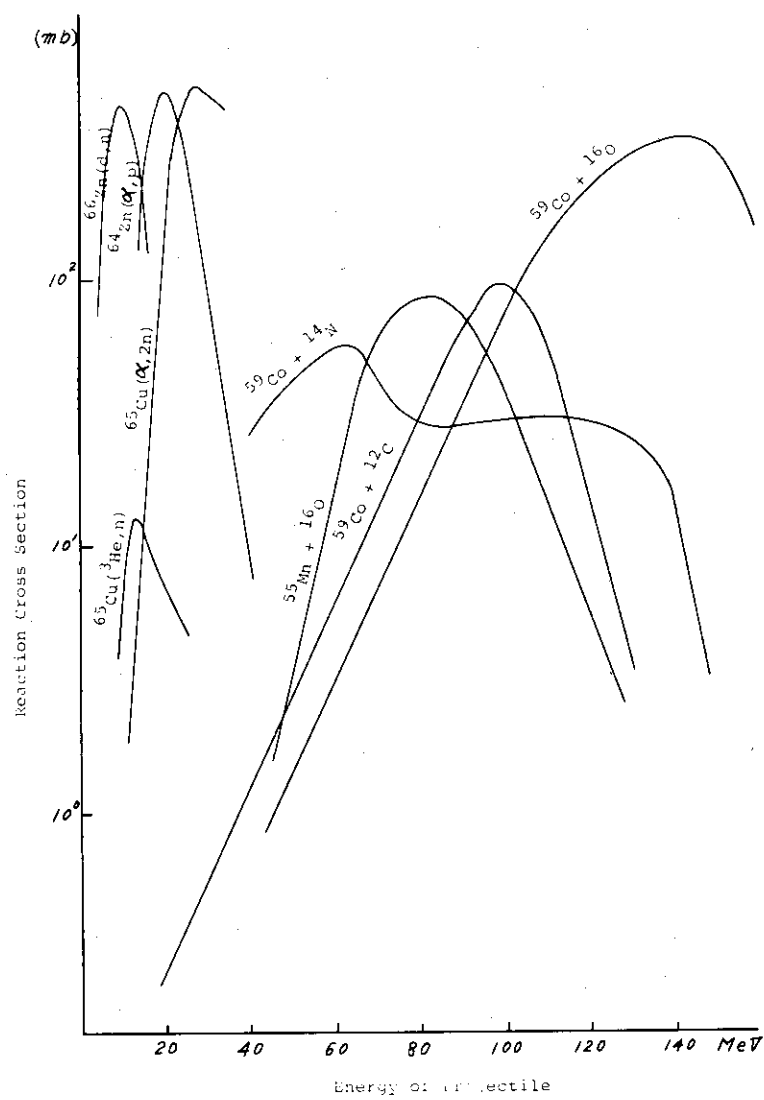


Fig. 1 Excitation functions to produce ^{67}Ga