

重陽子融合反応を利用した
注入重陽子拡散の新しい測定法
(課題番号 11680511)

平成11年度～平成12年度科研費補助金
(基盤研究(C)(2))

研究成果報告書

平成13年3月

研究代表者 田岸 義宏
(筑波大学物理学系助教授)

はしがき

我々は、入射エネルギー100keV 以下での偏極重陽子ビームを用いて重陽子融合反応である $D(d, p)T$, $D(d, n)^3He$ 反応の反応機構を調べるため断面積および偏極分解能の測定を行ってきた。偏極重陽子標的として、重陽子化パラポリフェノール、 $(C_6D_4)_n$ の粉末をアルミ箔に真空蒸着した数 $\mu g/cm^2$ の非常に薄いものを用いている。重陽子ビームは重陽子標的で数 keV のエネルギーを失い、バックリングのアルミ箔で止まる。これらの実験において、 C_6D_4 が蒸着されていない部分に重陽子ビームが照射されても僅かであるが約 3MeV の反応陽子が観測された。入射重陽子ビームがアルミ箔中でそのエネルギーを失いその飛程に対応する深さ(約 $1\mu m$)で止り、物質中に拡散してゆく。拡散によって標的表面近くに移動してきた重水素原子は、入射してくる重水素ビームと衝突し重陽子融合反応 $D(d, p)T$ を起こす。観測された約 3MeV の陽子はこのとき放出されたものであることが分かった。実は、このような現象は、既に Ernest O. Lawrence によって1933年に観察されており *Physical Review* にその結果を報告している[1]。彼は、この陽子は、入射重陽子が壊れて生じたものと解釈していた。偏極重陽子ビームによる重陽子融合反応の研究においてはこのような注入重陽子と入射重陽子ビームとの反応は、バックグラウンドとして取り除かなければならない事象である。ここでは逆にこの反応を積極的に利用して注入重陽子の挙動の観測に応用してみた。

金属中に原子をイオン照射すると、金属独特の性質を反映した注入原子の拡散が起こる。現在、中でも金属中の水素同位体原子の挙動は非常に注目されている。例えば核融合炉壁は水素同位体のプラズマに常にさらされており、その炉壁にプラズマの持っているエネルギーで水素同位体が打ち込まれる。このため水素同位体の金属中での挙動は炉物理・炉工学の中でも照射損傷や腐食を語る上でも重要なテーマである。しかしその実験法には反跳粒子分析法や浸透法など大きな装置が必要とされる。現在非常に期待されている反跳粒子分析法にしても分析用に数十 MeV 程度の加速器とイオン注入のためのイオンガン(数十 keV)が必要とされる。

今回我々が開発した新しい方法の特徴は、重陽子ビームが注入する物質であり、そしてまたこの重陽子ビームが注入重陽子の診断用のプローブとしての二つの役割を持っている点である。従って重陽子ビームを連続的に照射しながら、実時間(Real Time)で注入された重陽子の情報が得られる極めて簡便な方法である。平成11年度科学研究費の補助を受け、専用の小型真空槽を製作し測定系を整備した。平成12年度から種々の物質に対しこの方法を適用し物質中における注入重水素原子の測定を行った。ここにこれらの結果について報告する。

研究組織

研究代表者： 田岸 義宏（筑波大学・物理学系助教授）

研究経費

平成 11 年度	3200 千円
平成 12 年度	600 千円
計	3800 千円

研究発表

学術論文等

- 1) N. Kawachi, T. Katabuchi and Y. Tagishi
Measurement of the longitudinal density distribution of the implanted deuterons by using the $D(d,p)T$ reactions
Tandem Accelerator Center University of Tsukuba Annual Report 1998, UTTAC-67, 1999 pp.95-97
- 2) T. Katabuchi, N. Kawachi and Y. Tagishi
Macroscopic migration of implanted deuterium along a gas-bubble network in silicon.
Journal of Applied Physics 86 (1999) pp. 3030-3035

口頭発表

- 1) 河地有木、片渕竜也、山口充孝、田岸義宏
「 $D(d, p)T$ 反応を利用した注入重陽子の内部密度分布測定」
1999年日本原子力学会（広島大学）
- 2) 田岸義宏
「筑波大学加速器センター研究紹介」
1999年日本原子力学会（新潟工科大学）
- 3) 田岸義宏
「 $D(d, p)T$ 反応を用いた注入重陽子拡散実験」
"短寿命核ビームを用いた拡散実験" 研究会 2001. 3 KEK

目次

はしがき	iii
1 序論	1
1-1 研究目的	1
1-2 研究特色	1
1-3 研究経過	2
2 注入重陽子の測定原理	3
2-1 D(d, p)T 反応について	3
2-2 標的表面付近における重陽子密度の時間変化の測定	4
2-3 標的中の重陽子数密度分布の測定	5
3 実験装置	7
3-1 イオン源	7
3-2 真空槽	7
4 測定の結果	11
4-1 種々の金属標的による注入重陽子密度の時間変化	11
4-2 単結晶・多結晶金属標的での陽子計数率の比較	14
4-3 標的溫度による陽子計数率の変化	19
4-4 標的内の注入重陽子の数密度分布の測定	21
5 考察	29
5-1 注入重陽子の堆積のみから生じる反応陽子数の見積	29
5-2 拡散による効果	32
5-3 標的内の重陽子密度分布	34
5-4 活性化エネルギーの導出	34
5-5 単結晶 Si での注入重水素によるフレーキング現象	37
まとめ	40
あとがき	41
発表論文	42
謝辞	52
参考文献	53

1 序論

1-1 研究目的

重陽子ビームを連続して標的物質に照射しながら、重陽子融合反応から放出される反応陽子数の照射時間に対する変化およびそのエネルギースペクトルを測定する事によって物質中に注入された重水素原子の拡散および深さ方向の重陽子分布を実時間で観察することのできる新しい測定方法を開発した。これまでの基礎的な測定および計算機シミュレーションの結果から、標的物質に対する重陽子の活性化エネルギーおよび拡散係数の導出が可能である事が分かった。今回種々の物質に対し、広い温度範囲にわたる測定から拡散係数および活性化エネルギーの導出を図り、他の方法で測定されている結果と比較検討し今回新しく開発した測定法の有用性を確立し、拡散の機構を調べる。

1-2 研究特色

今回の新しく開発した方法の特徴をあげる。

- (1) 重陽子ビームが注入する物質であり、そしてまたこの重陽子ビームが注入重陽子の診断用のプローブとしての二つの役割を持っている。
- (2) 注入重陽子原子の拡散および深さ方向の重陽子密度分布が実時間で観察できる。
- (3) 負の重陽子ビームは、電子親和力が小さいため絶縁物を含むあらゆる物質に安定して注入することができる。従ってこの方法では、金属のみならずあらゆる物質中での注入重陽子の挙動が観察できる。
- (4) 単結晶シリコン中での注入重陽子の振舞に関して極めて興味ある現象を発見した[2-5]。この応用として最近水素イオン注入による単結晶シリコン薄膜の製法[6, 7]として注目を集めており、フレーキング機構の解明が望まれている。
- (5) 標的物質の条件（温度、歪等）を変えることが比較的容易である。

核融合炉材料等の材料工学分野において重陽子の種々の物質中における拡散過程の研究は重要な課題である。今回開発した方法は以上のような特色を持ち、その適用範囲は広く、原子核実験技術の新しい応用である。現在までこのような観点から、重陽子融合反応の測定を行った例はない。

1-3 研究経過

本研究は平成8年度科学研究費・萌芽的研究の補助を受けスタートした。平成8年度から、筑波大学加速器センターイオン源室のイオンビーム入射ラインに小型の散乱槽を接続しテスト実験を開始した。平成10年度から定量的な測定が行えるよう次のように、装置の改良を行った。

(1)照射ビーム強度が標的上で一様になるようにビームを上下左右に振る偏向系を接続した。

(2)ビーム照射中、標的溫度を一定に保つためターゲットホルダーに恒温浴槽およびペルチエ素子を接続し溫度コントロールを可能とした。

平成11年度には実験を効率よく遂行するため占有の測定装置（放射線検出器、測定回路系等）を導入し、平成12年度から標的物質の種類、結晶構造、溫度等を変化させ重陽子照射の系統的な測定を行ってきた。その結果について報告する。

2 注入重陽子の測定原理

通常の固体内水素同位体の挙動の測定法では分析用のビームラインと注入用のビームラインの2本のビームを用いるものが多い。本研究では一つのイオン源のみを使い、また原子核実験技術から得られた一般的な手法を用いて固体内水素同位体の挙動の測定を試みた。

2-1 D(d, p)T 反応について

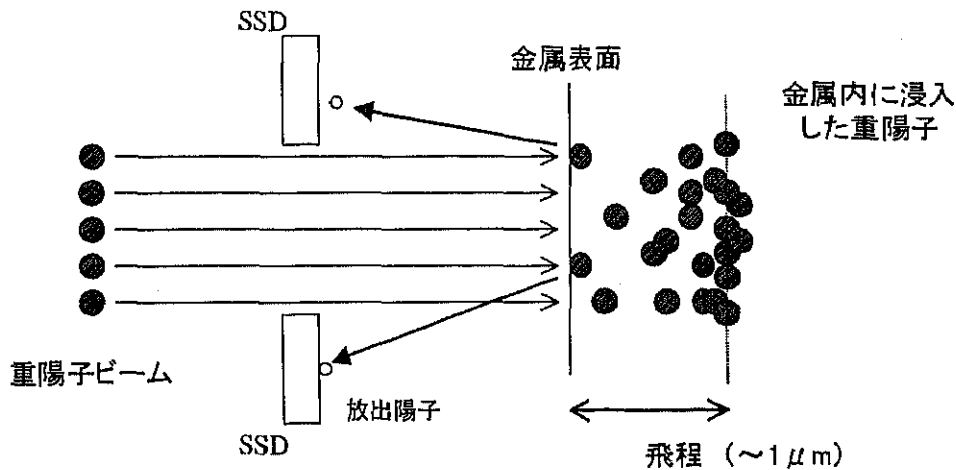
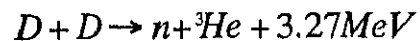
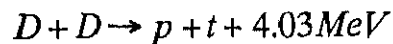


図 2. 1. 1 D(d, p)T 反応の概念図

上図に示すように約 100keV のエネルギーを持った重陽子ビームを連続的に物質に照射すると、この重陽子は物質中でエネルギーを失い約 1 ミクロン程度の深さで停止する。これらの注入された重陽子粒子は濃度勾配によって拡散を始める。そのうち標的の表面へ拡散してきた重陽子粒子と連続照射している注入重陽子が衝突して次のような核反応を起こす。



その結果 p, t, n, ${}^3\text{He}$ 粒子が放出される。ここで放出エネルギーが高く測定が容易な p (陽子) に注目する。この反応陽子の個数およびそのエネルギー値から以下に示すような情報が得られる。

2-2 標的表面付近における重陽子密度の時間変化の測定

下図に入射重陽子エネルギー120keV以下でのD(d, p)T, D(d, n)³He 反応の断面積を示す[8]。これから分かるようにその反応断面積は入射ビームのエネルギーが小さくなると指数関数的に減少する。従って放出される陽子は主として標的表面近傍の重陽子と連続照射の入射重陽子とのD(d,p)T 反応から生じたものである。

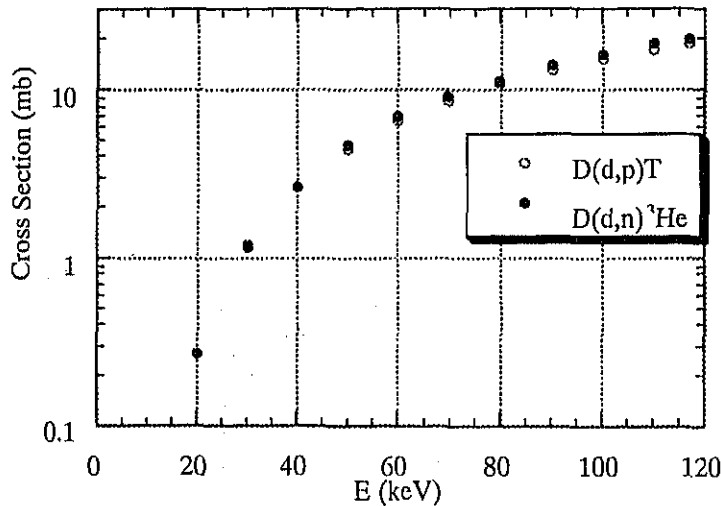


図 2. 2. 1 D(d, p)T 反応の断面積

例えば入射重陽子エネルギーを100keVとする。標的表面近傍での入射エネルギーが90keVになったとすると反応断面積は13mbであるのに対し、平均飛程付近の深さでの入射重陽子のエネルギーが20keV程度になるとするとその反応断面積は0.27mbと非常に小さな値になってしまう。つまり、表面近傍と飛程付近での反応断面積には約50倍違う。従って検出器に入ってくる放出陽子は主として表面近傍へ拡散してきた重陽子と入射重陽子とのD(d,p)T 反応であるといえる。以上のことを適用して、反応陽子の計数量(yield)を時間とともに観測することで、Real Time に注入重陽子の金属表面への拡散の状況を観測することが可能となる。

2-3 標的中での重陽子数密度分布の測定

D(d, p)T 反応における放出陽子のエネルギースペクトルから以下に示すように標的中での深さ方向に対する重陽子の密度分布に関する情報が得られる。

D(d, p)T 反応から放出される陽子のエネルギー値は入射重陽子のエネルギー値と放出される陽子の角度によって決まる。これは純粋に運動学で決まる値である。例えば 90° 付近に放出される陽子のエネルギーは D(d, p)T 反応の Q 値の $3/4$ (残りは 3 重陽子が持っている) になっている。それに比べ、測定角が前方もしくは後方では、入射粒子の持ち込むエネルギーが影響を及ぼすため放出陽子のエネルギー値に大きな角度依存性が生じる。つまり、測定角が $\theta = 160^\circ$ 程度の後方であれば入射重陽子エネルギーの違いによって放出陽子のエネルギーが大きく変化する。

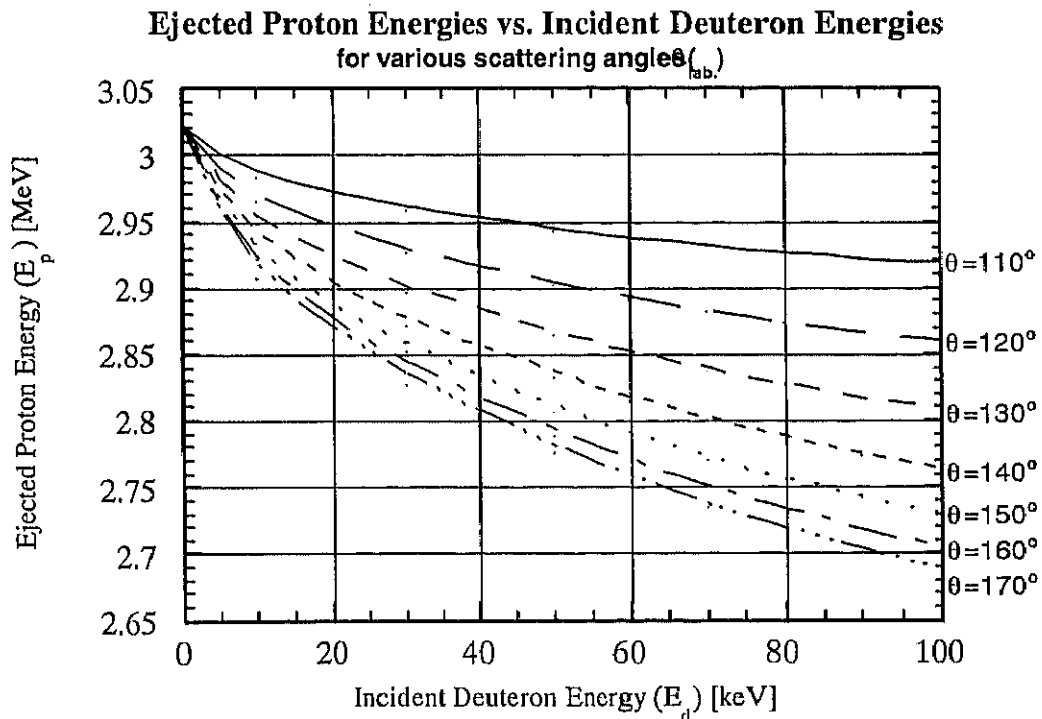


図 2. 3. 1 D(d, p)T 反応における後方角での入射重陽子エネルギーに対する放出陽子のエネルギー

例えば入射エネルギーに 20keV と 80keV の違いがあった場合、放出陽子エネ

ルギーの違いは放出角 $\theta_{c.m.}=110^\circ$ で $\Delta E \approx 0.05\text{MeV}$ である。それに対し放出角が $\theta_{c.m.}=160^\circ$ であれば $\Delta E \approx 0.16\text{MeV}$ となり入射重陽子エネルギーに対する放出陽子エネルギーの変化が大きくなる。従ってできるだけ後方に放出される陽子のエネルギースペクトルを分解能良く測定することによって入射重陽子が $D(d, p)T$ 反応を起こしたエネルギー即ちどの深さで反応が起こったかが分かる。従って放出陽子のエネルギースペクトルから標的内の深さ方向に対する重陽子の密度分布に関する情報が得られる。反応陽子のエネルギースペクトルから深さ方向の密度分布の情報を得るのは簡単で、ある標的から得られた放出陽子エネルギースペクトルを重陽子密度が一様な重水素化ポリエチレン(CD_2)_n を標的とした時得られるエネルギースペクトルを用いて規格化することによって、深さ方向の密度分布の情報が選られる。なぜなら重陽子の密度が一様である重水素化ポリエチレンから得られる陽子のエネルギースペクトル分布はゼロから入射エネルギーまでの $D(d, p)T$ 反応の微分断面積の分布を与えていることになるからである。

3 実験装置

3-1 イオン源

イオン源は筑波大学加速器センター9階に設置されているラムシフト型偏極イオン源(PIS)を用いた。デュオプラズマトロンイオン源から引き出された、約1keVのD⁺イオンをセシウム炉に入射し、次の電荷交換反応よりD⁻イオンビームを生成する。



イオン源全体に0~100kVの高電圧をかけることによって0~100keVのエネルギーを持ったD⁻イオンビームを得ることができる。ここで注意しなければならない事は、セシウム炉からは、約1keVのエネルギーを持った中性D⁰ビームが同時に生成されている事である。負のイオンD⁻ビームは、電子の親和力が非常に小さいため金属標的だけでなく絶縁物などの標的にも安定してイオン照射をおこなうことができるという利点を持っている。

3-2 真空槽

標的表面に炭素等の不純物が堆積しないようにするため真空槽をできるだけ高真空に排気する必要がある。そのためターボ分子ポンプを真空槽に直付けし、窒素トラップを接続した。その結果、真空槽内部の真空度は常に10⁻⁷torr程度に保つようにした。またイオン源の性質上、照射イオンであるD⁻ビームに混入して1keVで加速されたD⁰粒子が同時に放出されている。この電荷を持たない粒子を排除するために、真空槽の上流にDipole-Magnetを設置し5°イオンビームを曲げ真空槽を接続した。以下に真空槽内部の設置物について述べる。

・ Deflector

標的上で照射ビーム強度を一様にするためスリット(直径4mm)上流に、上下左右二組の偏向板を設置しこれに振幅約±200Vの三角波をかけ入射ビームを上下左右に数百ヘルツで振動させた。これからの実験では、初期値2μAのビーム電流を振動させて0.5μAになるようにして測定を行った。

・ Suppressor

金属標的にイオン照射をおこなうと2次電子がターゲット表面から放出される。この2次電子がファラデーカップの正確なDイオン電流の測定に支障を来すため、ターゲット表面付近に一定な電場面を作り2次電子を Suppress する。ここでは金属メッシュのものを使い、-300Vの電圧をかけた。

・ Target-holder

ビーム照射中、ターゲット温度を一定に保つためペルチエ素子（サーモモジュール）をはさみ込み、恒温水循環装置に接続した。またホルダー全体は移動機構により真空槽外部から約70mm程度上下に移動できる。ターゲットホルダーはファラデーカップの役目も担っている。電気的に絶縁した状態でビーム照射による熱を逃すため、ホルダーに恒温水を循環させる機構を組み込んだ。ターゲットホルダー・ターゲット台は熱伝導性の良い、銅製のものを用いた。ターゲットホルダー部全体図を下に示す。

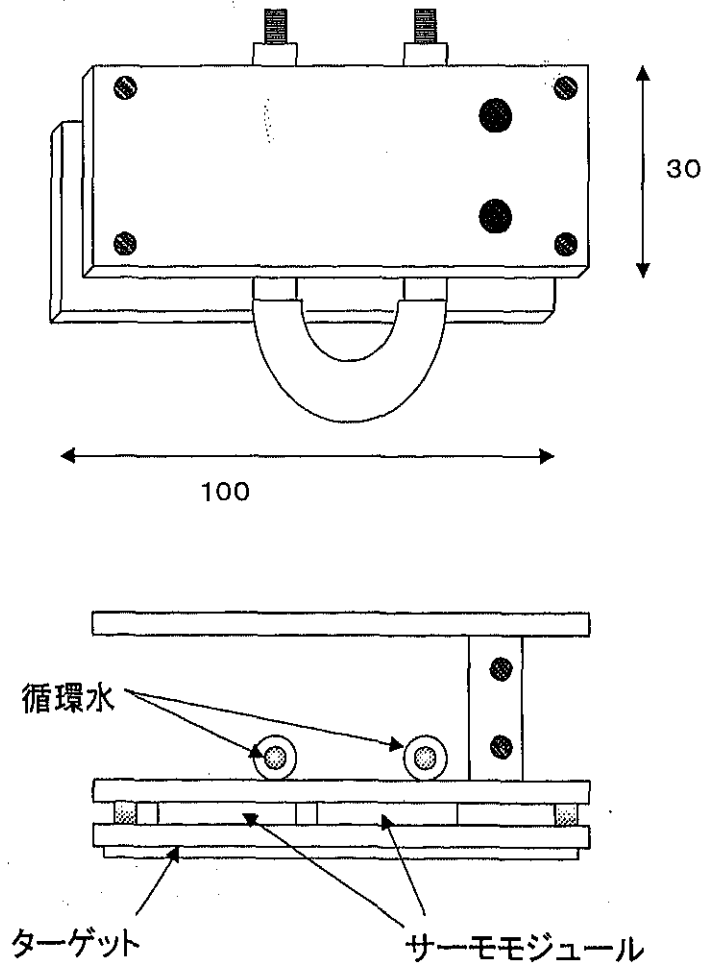


図 3.2.1 ターゲットホルダー部全体図

また、Target-holder は直線導入器での上下の移動が可能であり 1 回の実験で 5 ~ 7 回の測定が可能である。

・標的

種々の金属標的に対して測定を行ったがここでは、以下の標的に対して同実験条件で測定したのでこれらについて報告する。

- (1) 様々な金属をターゲットにした実験
9 種類 (Ti, Al, Ni, Ta, Cu, Au, Pt, Pd, Co) の金属
- (2) 単結晶, 多結晶ターゲットによる比較
5 種類 (Cu, Al, Pd, Ta, Mo) の金属。
- (3) ターゲット温度を変化させて, 拡散係数の温度依存性と $D(d, p)T$ 反応の反応率との相関を調べる実験
Pd 金属 実験(1)により, 測定時間の 10^4 秒 (~168min.) 以内で, 平衡状態に達していると判断したものを選んだ。

・検出器

浜松フォトニクス社製のシリコン半導体検出器(S4376 有感面積 $48 \times 48 \text{mm}$) 2 個使用した。大きな立体角 (約 0.7sr) を得るために、比較的大きめの検出器を用意した。この 2 個の検出器をビームラインに対して上下に設置した。このシリコン半導体検出器の信号を、Amplifier で増幅し、MCA (Multi Channel Analyzer) に入力し、1 channel 10 秒の MCS mode (Multi Channel Scaling Mode) で測定した。

ビーム強度強度も同様に DCI (Digital Current Integrator) に通した後、MCA の MCSR mode で測定した。検出器、スリット、標的付近の様子を下図に示す。

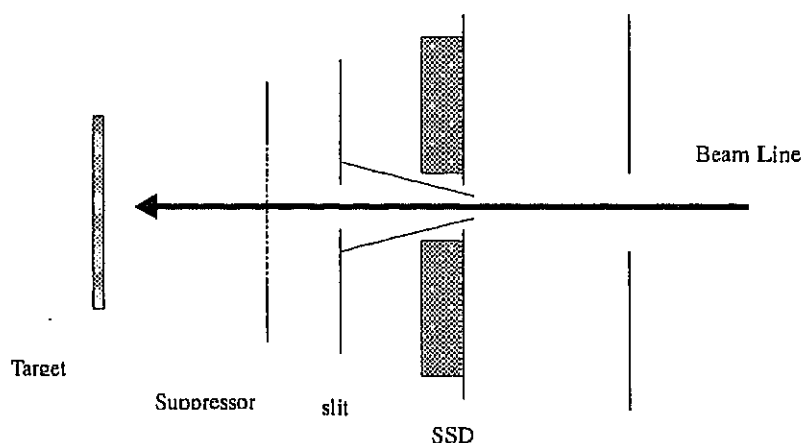


図 3.2.2 検出器・標的部概略図

真空槽内部の様子を下図に示す。

・寸法 250 / 500 / 250 mm

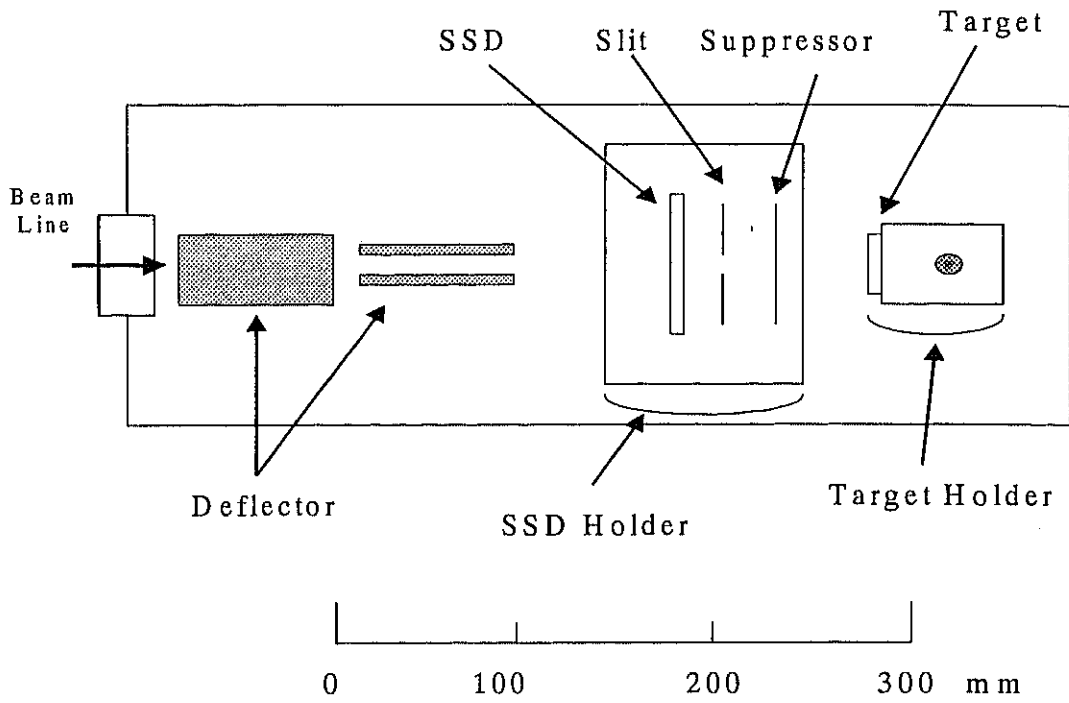


図 3.2.3 真空槽（上から見た図）

→ Beam line

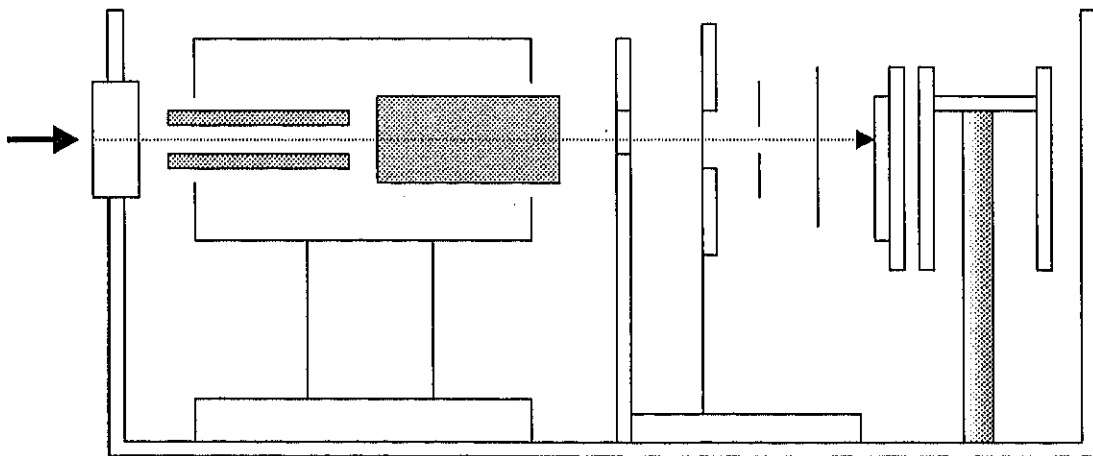


図 3.2.4 真空槽（横から見た図）

4 測定の結果

4-1 種々の金属標的による注入重陽子密度の時間変化

90keV に加速された約 $2\mu\text{A}$ の重陽子ビームを Deflector にかける電圧を調節して上下左右にビームを振動させ、標的上で $0.5\mu\text{A}$ になるようにした。また、MCA での設定を 1channel=10 秒に設定して、1024channel で自動的に stop させるようにした。つまり、測定時間は 2.8 時間程度である。測定温度は、恒温水循環装置とペルチエ素子を作動させた状態で、ほぼ室温の 23~27 度付近に設定した。以下に各種金属標的中の D(d,p)T 反応からの放出陽子の個数を MCA で測定した結果を示す。ここでは、計算によって 10 channel ごとの平均値をプロットしたものを示す。

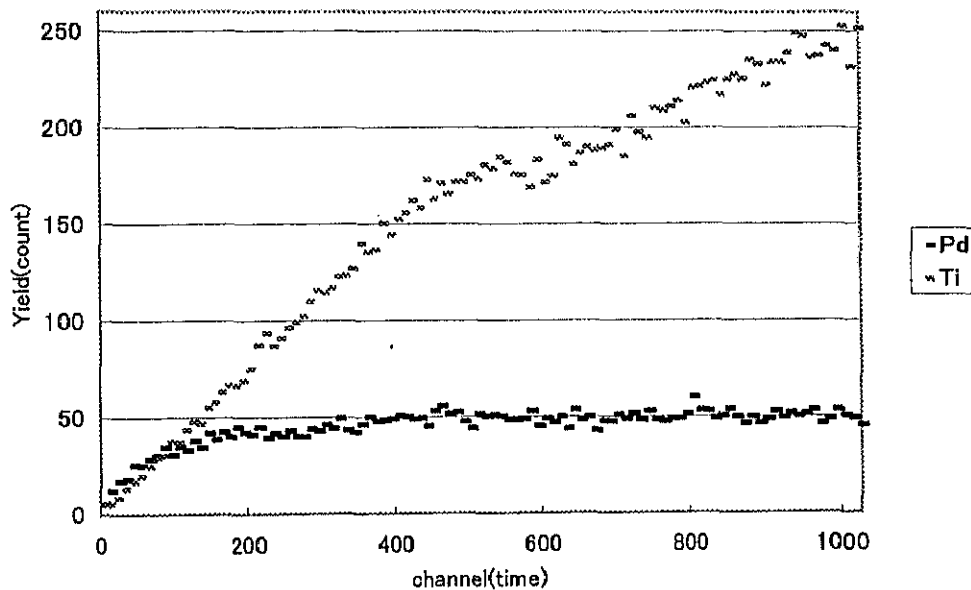


図 4.1.1 Pd と Ti の測定結果

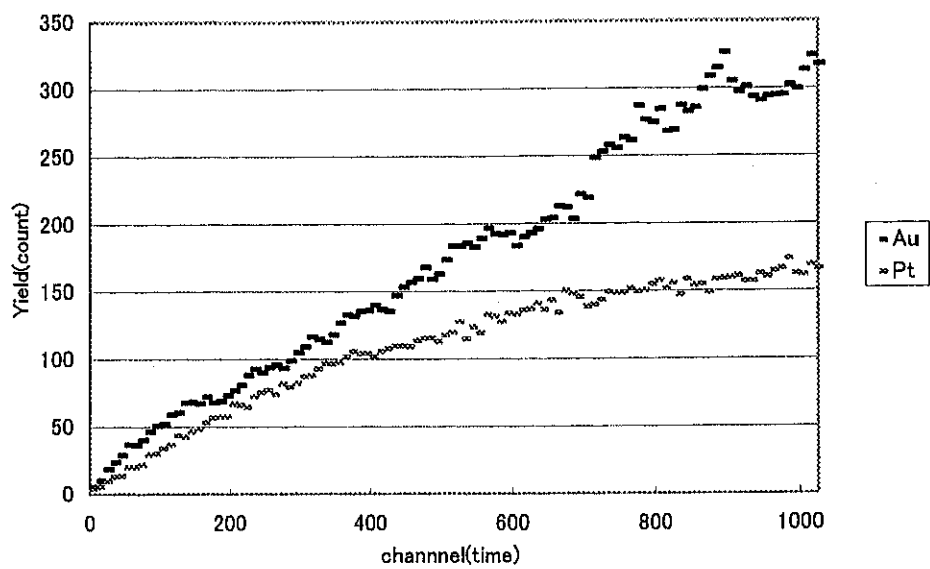


図 4.1.2 Au と Pt の測定結果

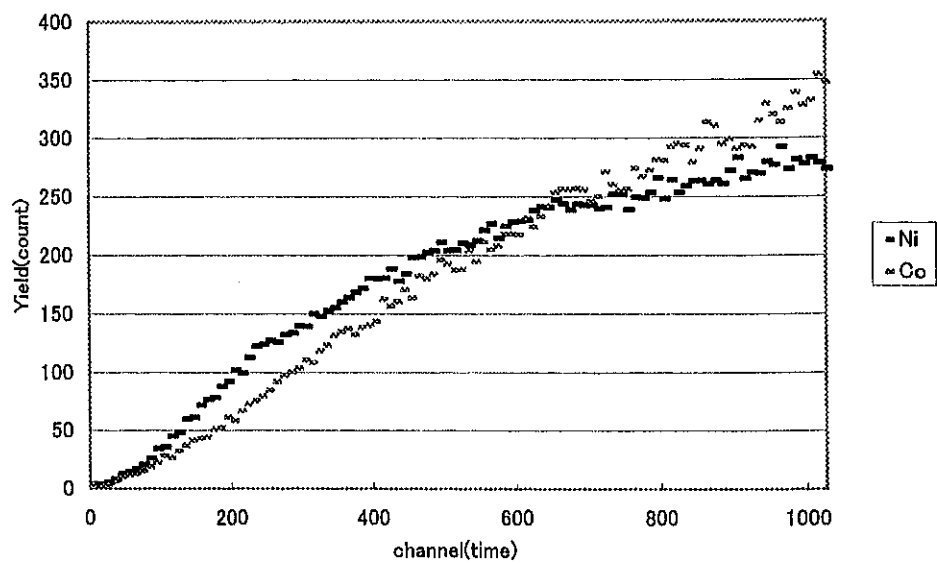


図 4.1.3 Ni と Co の測定結果

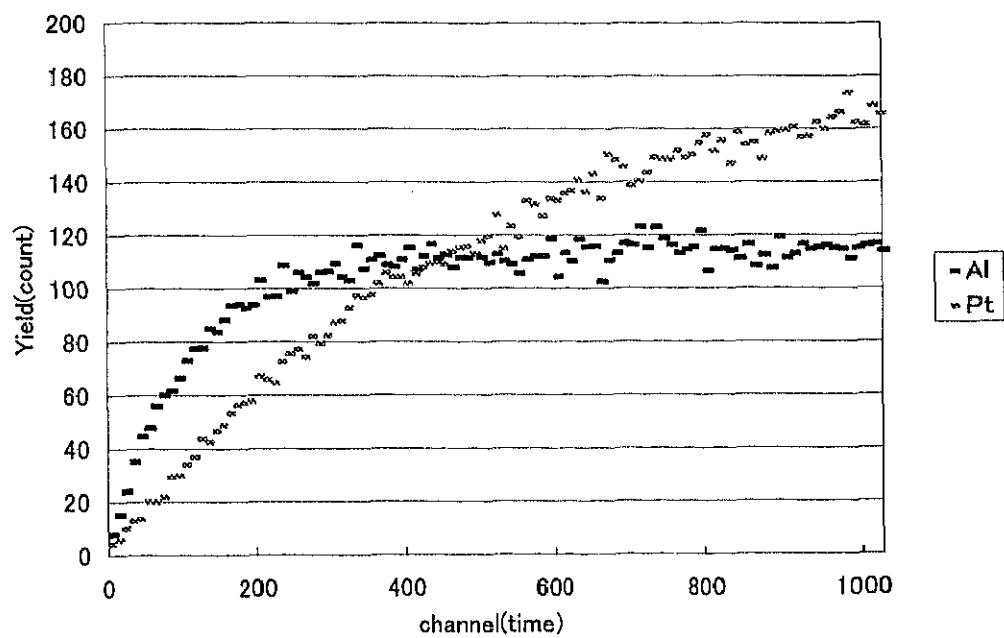


図 4.1.4 Au と Pt の測定結果

4-2 単結晶・多結晶金属標的での陽子計数率の比較

5種類 (Cu, Al, Ta, Mo, Pd) の金属において単結晶・多結晶金属標的での重陽子照射に対する陽子計数率の時間変化を測定した。単結晶金属はいずれも直径約 12mm、厚さ 1mm で面方位は(1, 0, 0)である。またビーム入射面は、研磨されており、面方位精度 $<2^\circ$ 、研磨粗さ $<0.03\mu\text{m}$ である。以下に結果を示す。

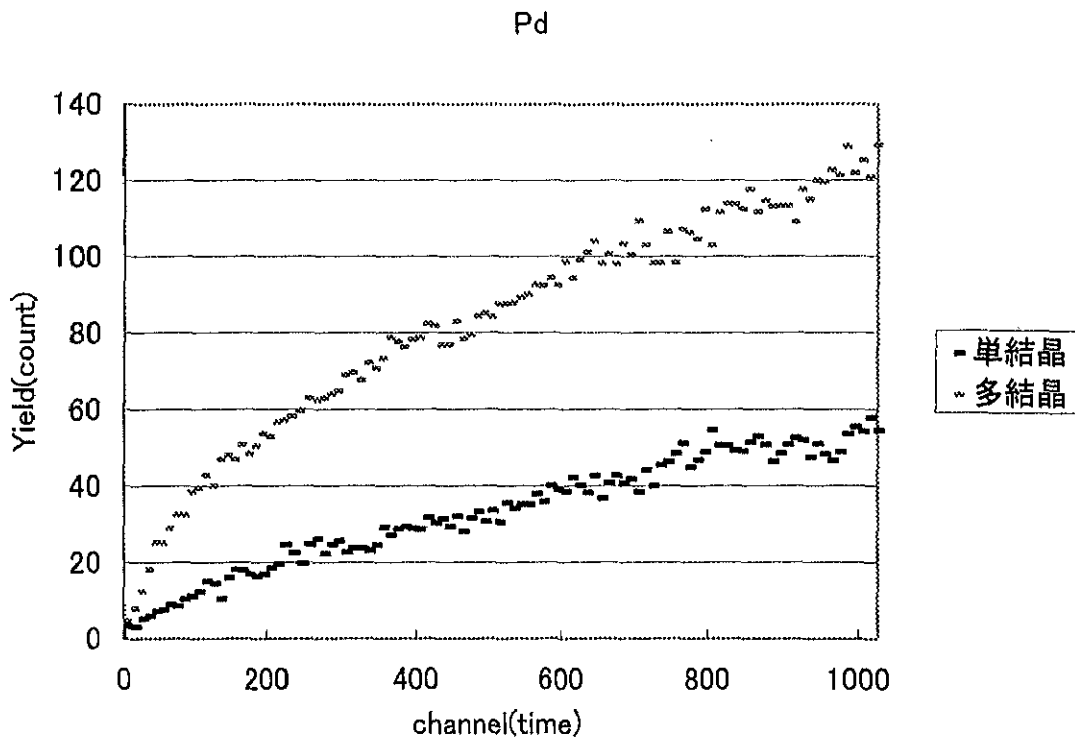


図 4.2.1 Pd の測定結果

照射条件：90 keV D^- , $0.5\mu\text{A}$, 1channel=10sec. 照射径 4mm。

単結晶標的：直径約 12mm, 厚さ 1mm. 方位(100)

多結晶標的：15×20mm, 厚さ 1mm。

反応陽子の収量の違いから、単結晶中では、照射重陽子の拡散は、明らかに多結晶中に比べて早いことが分かる。

Al

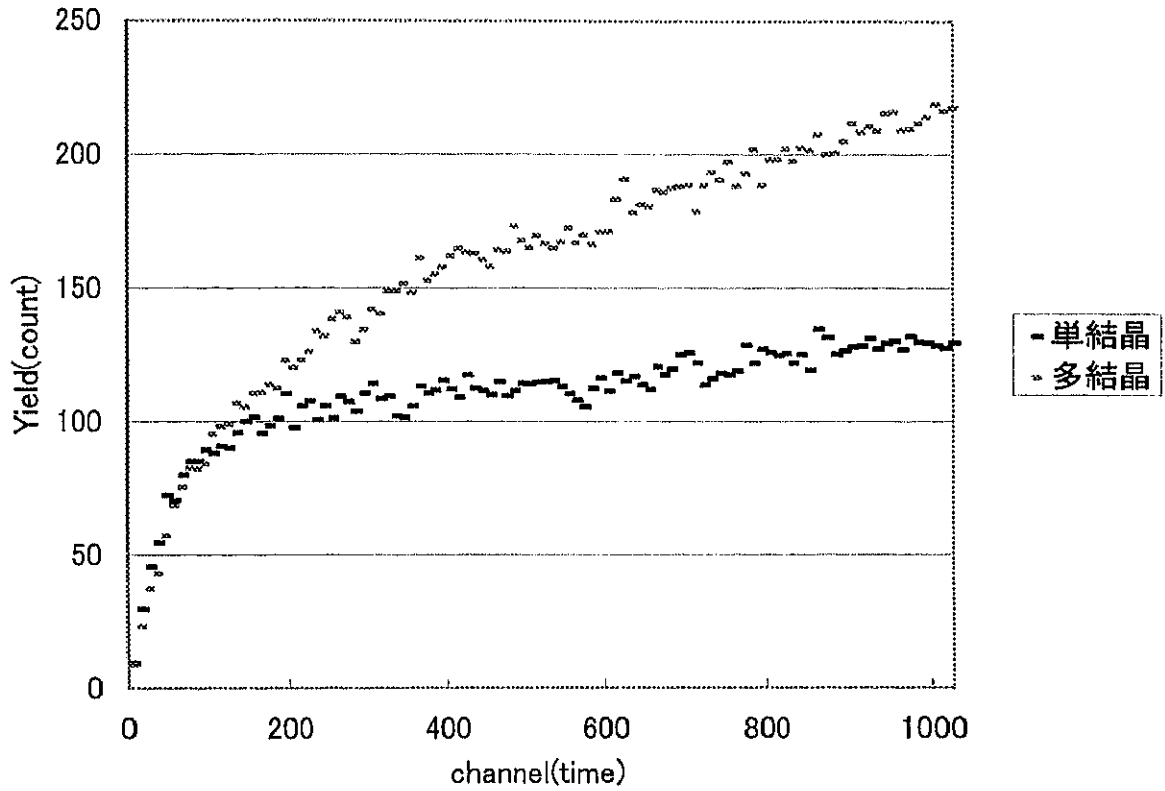


図 4.2.2 Al の測定結果

照射条件：90 keV D⁻, 0.5 μ A, 1channel=10sec. 照射径 4mm。

単結晶標的：直径約 12mm, 厚さ 1mm. 方位 (100)

多結晶標的：15 \times 20mm, 厚さ 1mm。

反応陽子の収量の違いから、Al 標的の場合も単結晶中では、照射重陽子の拡散は、明らかに多結晶中に比べて早いことが分かる。

Mo

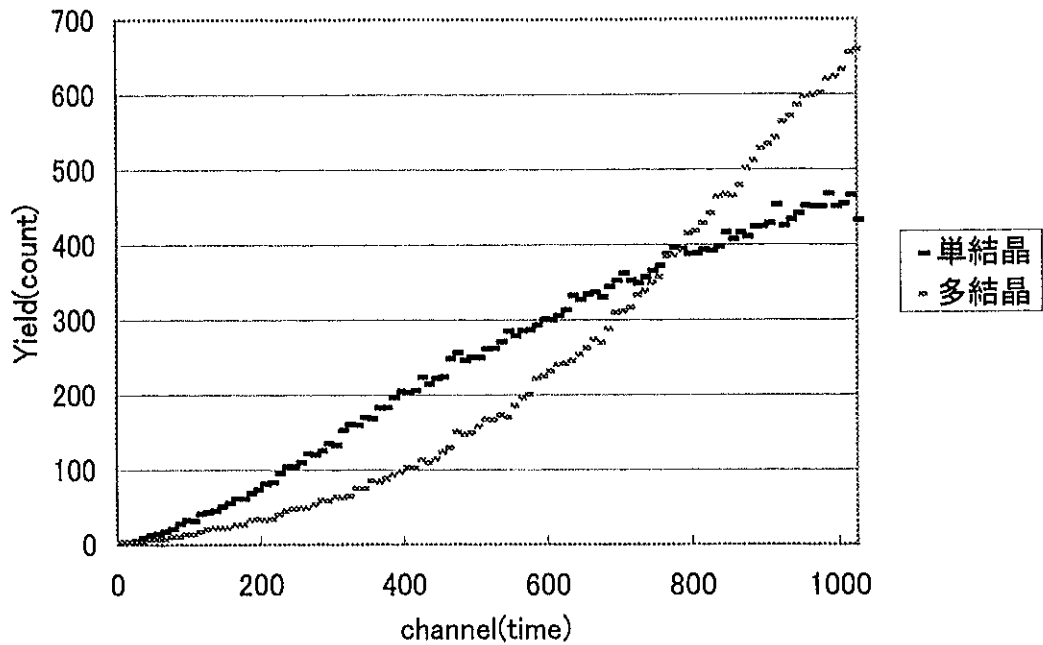


図 4.2.3 Mo の測定結果

照射条件：90 keV D⁺, 0.5 μ A, 1channel=10sec. 照射径 4mm。

単結晶標的：直径約 12mm, 厚さ 1mm. 方位(100)

多結晶標的：15×20mm, 厚さ 1mm。

多結晶 Mo においては、反応陽子の収量の立ち上がりが下に凸となり他の物質に比べて特異な変化を示している。すくなくとも照射重陽子の振る舞いが Mo 中では他の物質に比べて違っていることは確かである。

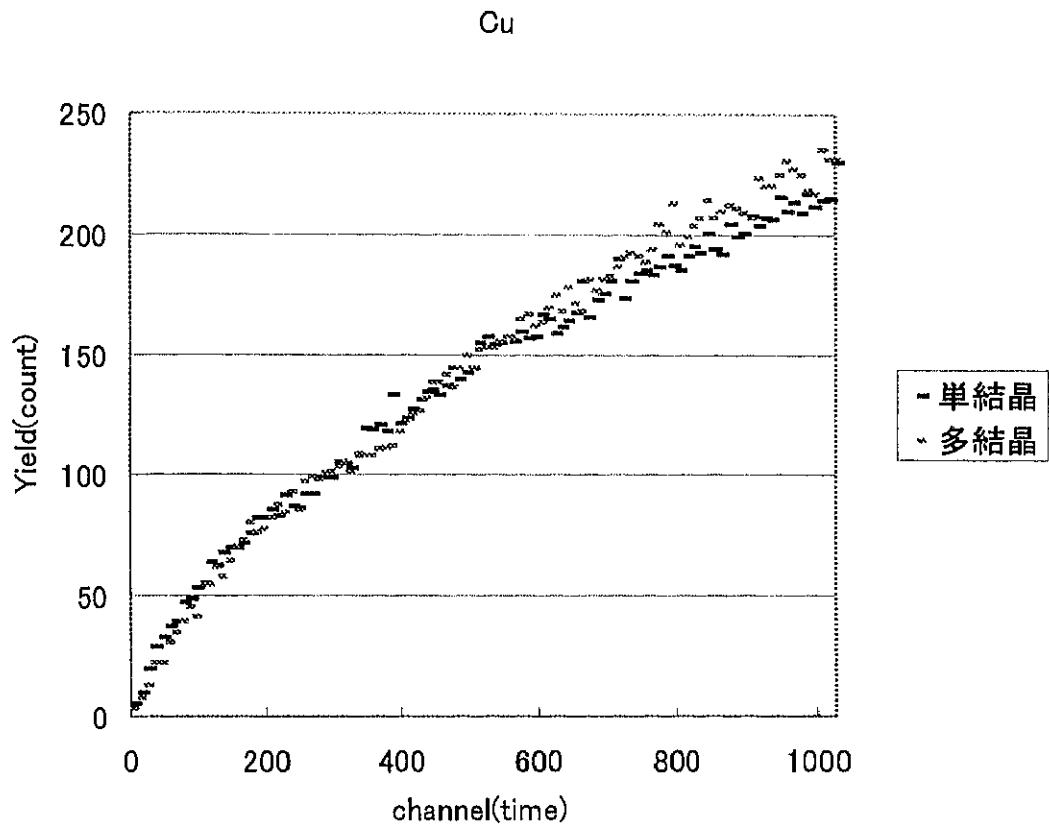


図 4.2.4 Cu の測定結果

照射条件：90 keV D^- , 0.5 μ A, 1channel=10sec. 照射径 4mm。

単結晶標的：直径約 12mm, 厚さ 1mm. 方位(100)

多結晶標的：15×20mm, 厚さ 1mm。

Cu 標的においては、単結晶と多結晶の差がまったく見られない。

Ta

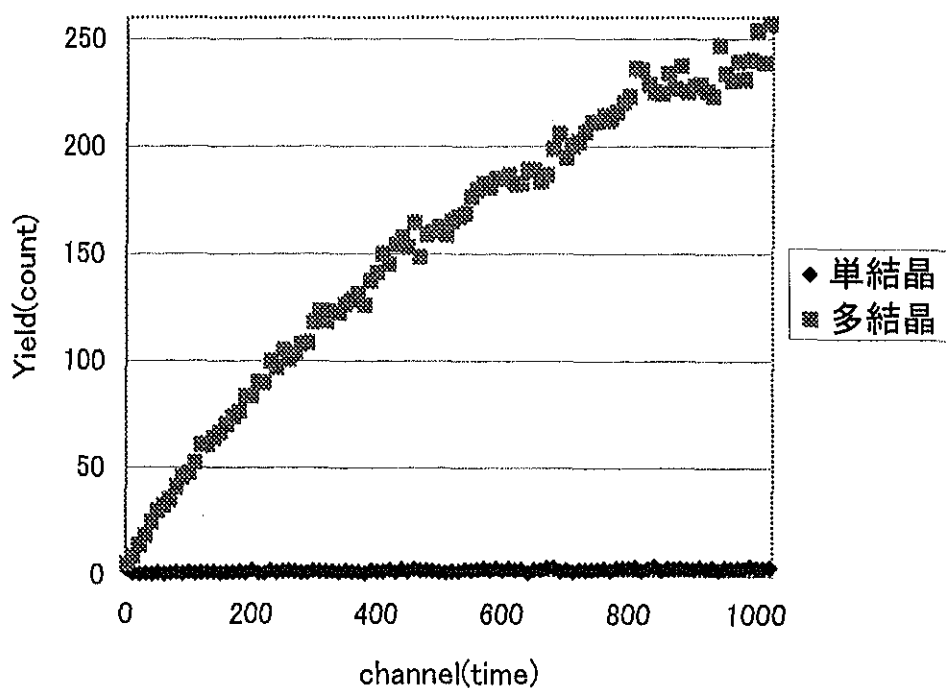


図 4.2.5 Ta の測定結果

照射条件：90 keV D⁺, 0.5 μ A, 1channel=10sec. 照射径 4mm。

単結晶標的：直径約 12mm, 厚さ 1mm. 方位(100)

多結晶標的：15×20mm, 厚さ 1mm。

Ta 標的では、単結晶と多結晶とで、注入重陽子の振る舞いがまったく違う。単結晶中では重陽子の拡散が異常に早いことを示しているのか、さらなる追試が必要と思われる。

4-3 標的溫度による陽子計數率

標的物質に一定の割合で重陽子ビームを照射した時、反応陽子の計數率の時間変化が一定になるような場合について考える。このような場合は、標的中の重陽子粒子密度が変化しないので注入した分だけビーム照射領域から拡散して逃げていくことになる。従って粒子密度即ち平衡に達した時の反応陽子の収量は、拡散係数に反比例することになる。種々の標的溫度で平衡に達するときの反応陽子の収量、即ち拡散係数の溫度依存性を測定することによって活性化エネルギーが求まる。その一例をPdに対して測定した。4-1節の實驗結果が示すようにPd中では注入重陽子の拡散が早く 10^4 秒程度の照射時間で陽子収量が平衡に達しているため、標的溫度 $-6^{\circ}\text{C}\sim 90^{\circ}\text{C}$ の間で測定した。その結果を図4.3.1に示す。

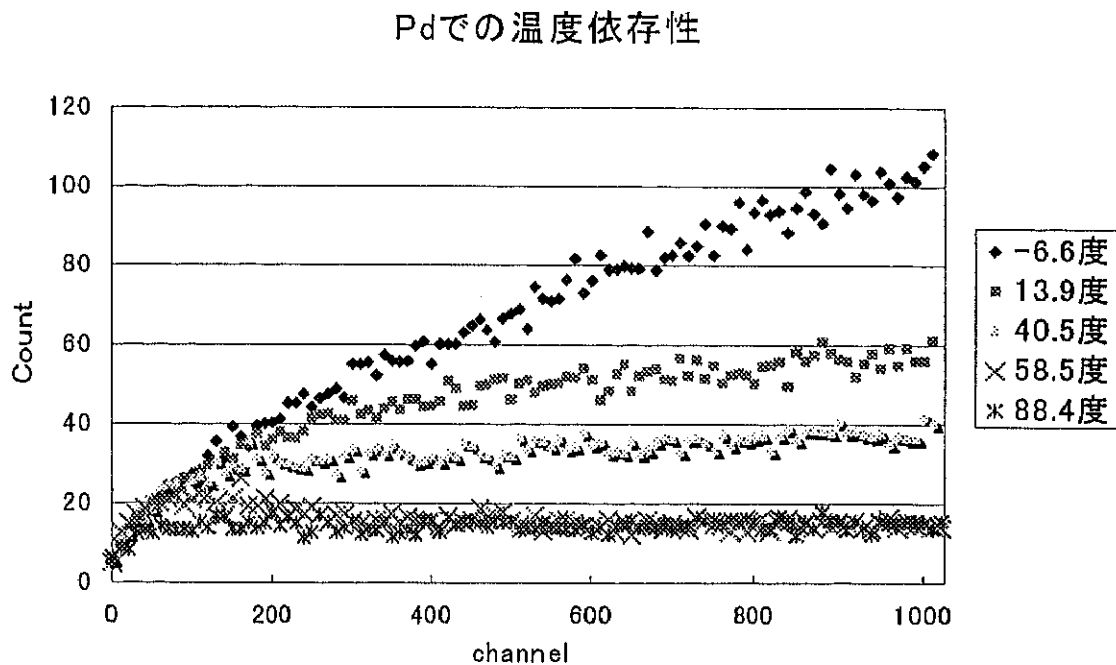


図 4.3.1 Pd 標的での反応陽子収量の溫度依存性

さらにもう一例として、SUS301 に照射した場合を示す。照射条件は、前述の Pd の場合と異なる。実験条件をまとめると、

- ・入射粒子 D⁻イオン
- ・エネルギー 90keV
- ・ビーム強度 3 μ A
- ・検出器 30mm \times 30mm Si-SSD
- ・立体角 90msr
- ・測定角度 140 $^{\circ}$
- ・標的溫度 0 $^{\circ}$ C \sim 60 $^{\circ}$ C

実験結果を図 4. 3. 2 に示す。

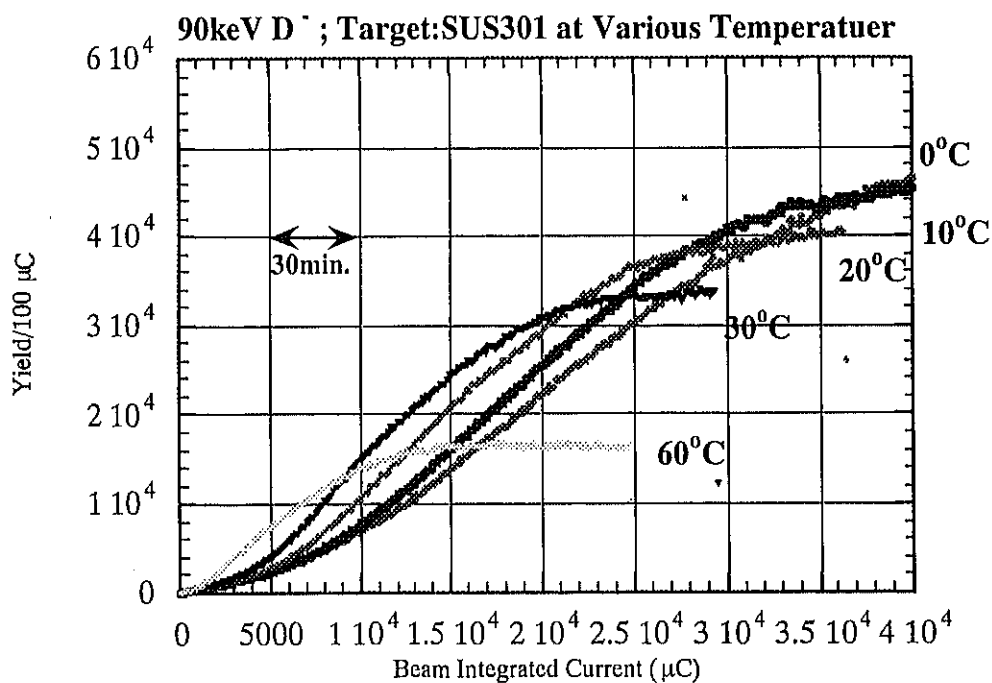


図 4. 3. 2 種々の温度における SUS301 標的に対する反応陽子収量の時間変化

4-4 標的内注入重陽子の数密度分布の測定

標的内注入重陽子数密度の測定結果の一例を示す。この測定では、30mm×30mmのシリコン半導体検出器を散乱角後方160°（立体角約20msr）に設置し反応陽子のエネルギースペクトルを測定した。できるだけ後方で測定した方が反応の運動学から分解能が良いことは、2-3節で述べたとおりである。

まず図4.4.1に代表的な入射エネルギー90keVにおけるD(d,p)T反応のエネルギースペクトルを示す。横軸がエネルギーで縦軸がカウント数である。ここでは陽子と3重陽子のピークが見られるが、放出陽子のエネルギースペクトルに注目する。

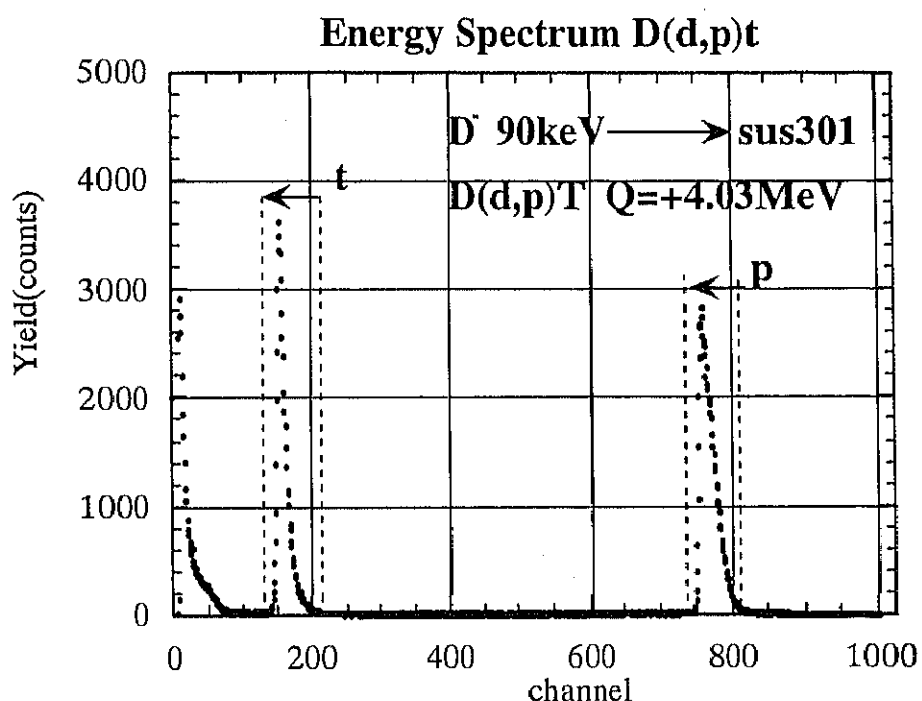


図4.4.1 90keVで重陽子を照射したときの代表的なD(d,p)T反応のエネルギースペクトル。放出陽子のピークのチャンネルが2.73MeVに相当する。

次に代表例としてTiとMoの放出陽子エネルギースペクトルを図4.4.2に示す。このようなエネルギースペクトルのプロファイルの違いが注入重陽子の密度分布を表している。これらのスペクトルを重陽子が一様に分布していると思われる重水素化ポリエチレン標的にビーム強度を絞った重陽子ビームを照射し重水素化ポリエチレン標的中の重陽子とのD(d,p)T反応から放出される陽子のエネルギースペクトル（図4.2.3）で規格化した。

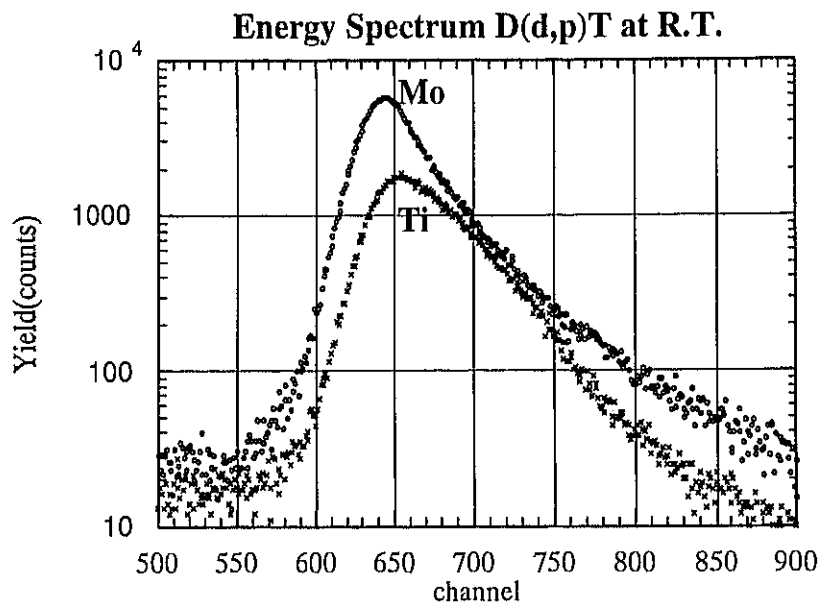


図 4.4.2 放出陽子エネルギースペクトルのプロファイルの違い。標的はモリブデンとチタンである。ターゲットの温度は両方とも室温である。入射エネルギーは90keV。

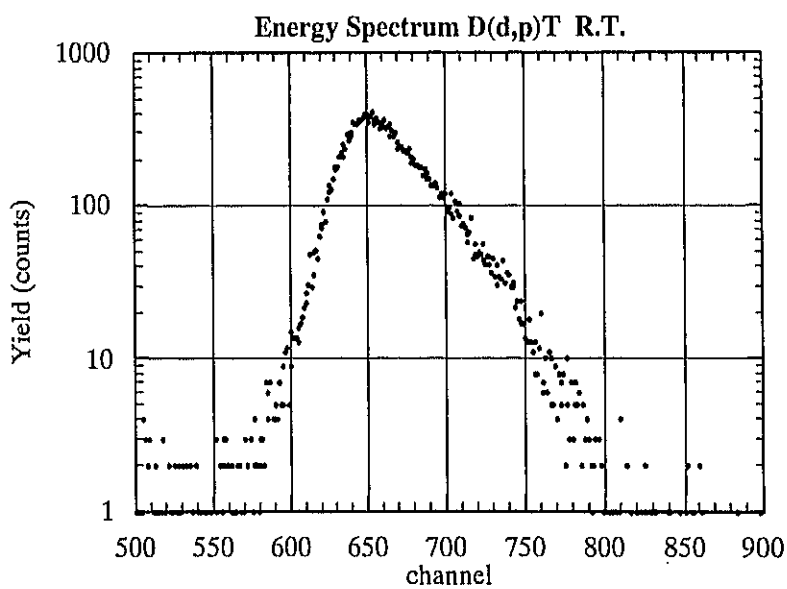


図 4.4.3 重水素化ポリエチレンを用いたエネルギースペクトル。入射エネルギーは同じく90keV。このスペクトルを用いて規格化をおこなう。

次に深さ方向の重陽子密度分布の時間変化を示す。飛程付近では入射重陽子のエネルギーが低くなりまた反応断面積が著しく減少するため十分な陽子数が得られないため誤差が大きくなり正確な値が求まらない。しかし表面近傍では十分な統計が得られかなり正確な密度分布が得られていると思われる。

図 4.4.4 に Ti 標的、また図 4.4.5 に Mo 標的に対する注入重陽子の深さ方向に対する重陽子密度分布を示す。これらのスペクトルは、図 4.4.2 を図 4.4.3 で規格化して求めた。

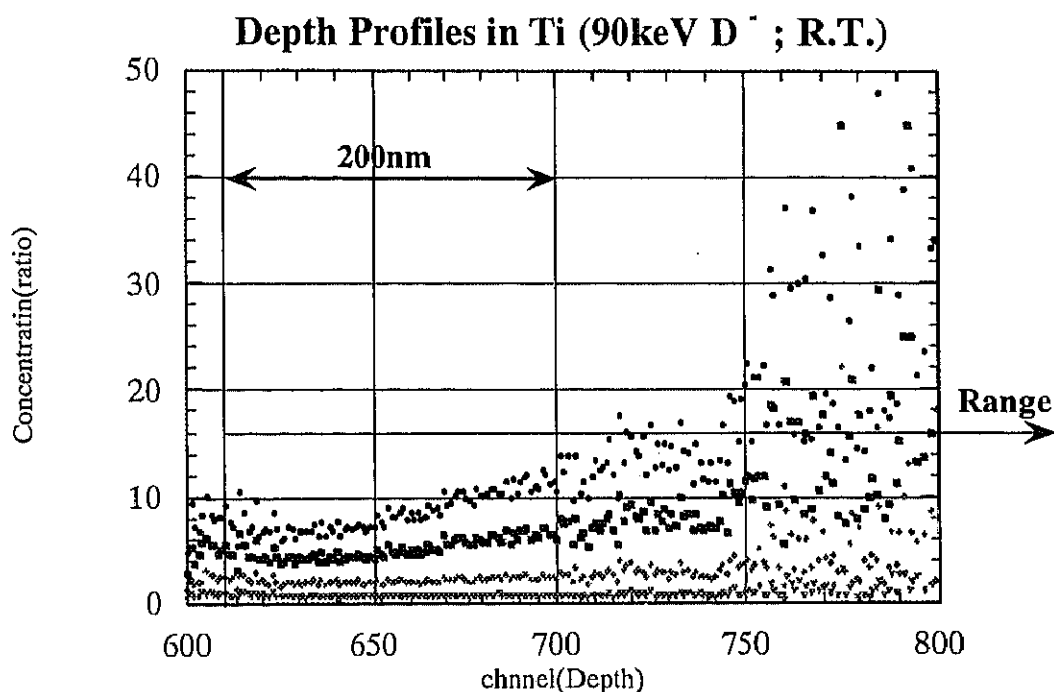


図 4.4.4 深さ方向の重陽子密度分布の時間変化（入射量依存性）。実験条件：入射エネルギー90keV. ターゲット Ti. 標的溫度 20℃
 グラフ下からそれぞれ重陽子入射量が $4.46 \times 10^{18} D/cm^2$ 、 $8.93 \times 10^{18} D/cm^2$ 、 $1.34 \times 10^{19} D/cm^2$ 、 $1.71 \times 10^{19} D/cm^2$ の場合を示す。

次に Mo 標的の結果を図 4.4.5 に示す。

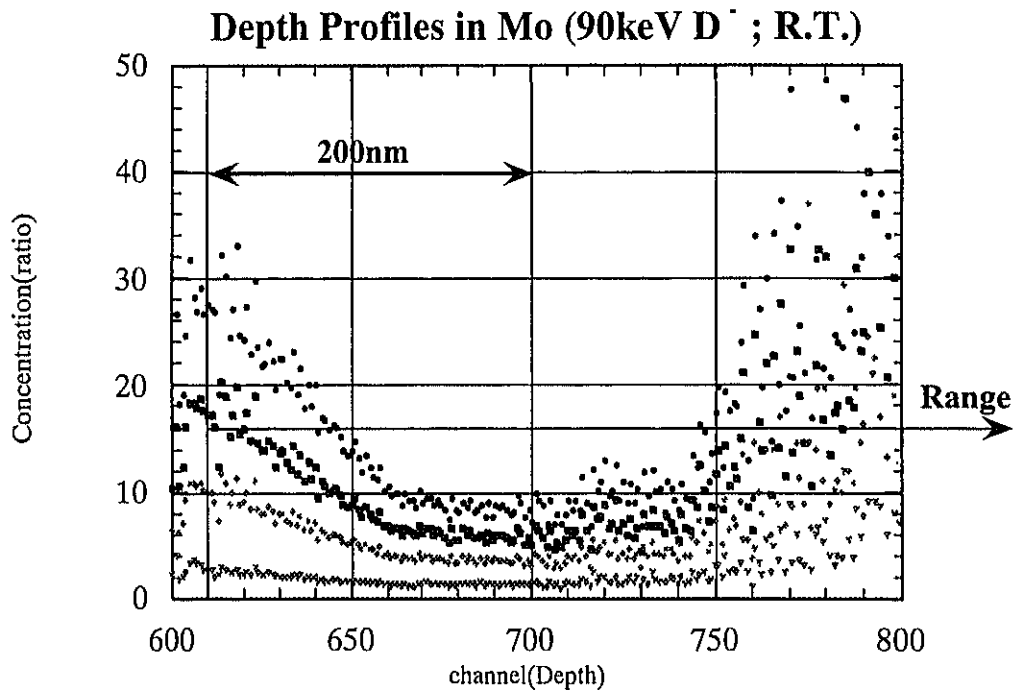


図 4.4.5 深さ方向の重陽子密度分布の時間変化（入射量依存性）。実験条件：入射エネルギー90keV. ターゲット Mo. 標的溫度 20°C
 グラフ下からそれぞれ重陽子入射量が $4.47 \times 10^{18} D/cm^2$ 、 $8.93 \times 10^{18} D/cm^2$ 、 $1.34 \times 10^{19} D/cm^2$ 、 $1.79 \times 10^{19} D/cm^2$ の場合を示す。

4-5 金属以外の標的における結果

同じような照射実験を単結晶 Si で行くと図 4.5.1 の下図に示すように、反応陽子の計数率は、金属に照射した場合とまったく異なる時間変化を示している、即ち反応陽子の計数率に不連続な増加(Jump)が観測された。しかも興味ある事に Si の照射面に図 4.5.2 に示すようにリング状の模様が観察された(flaking crater)。リングの形成と反応陽子の計数率の Jump との間に相関があり、反応陽子の計数率が不連続に増加するたびに新しいリングが形成されていく事が分かった[2-5]。

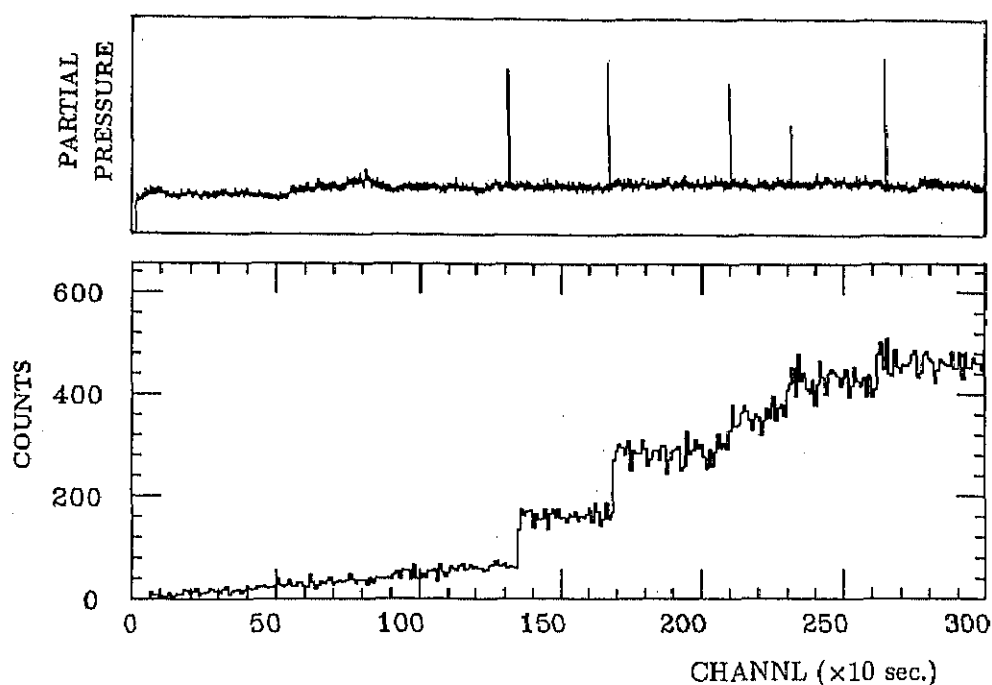


図 4.5.1 90keV, 1 μ A, の D 光束 (直径約 1mm) を Si に照射した時の反応陽子の計数率の時間変化 (下図) および散乱槽内の質量数 4 のガスの分圧変化 (上図)。

リングを、走査型電子顕微鏡(SEM)で観察すると図 4.5.3 に示すようにリングは底が平な溝になっておりその深さは、リングの断面の透過型電子顕微鏡写真(TEM)から約 $1\ \mu\text{m}$ である事が分かった。これは、90 keV の重陽子の Si 中での飛程に相当する。電子顕微鏡の観察からこのリング模様は、注入された重陽子が重水素ガスとなって吹出した結果形成された溝(クレーター)であると判断できる。この事は、散乱槽に質量分析器を接続して質量数 4 のガスの分圧を観測する事によって確認された。質量数 4 のガスの分圧と反応陽子の Yield の時間変化を図 4.5.1 に示す。陽子の計数率の Jump と質量数 4 のガスの分圧の Jump がきれいに対応している。

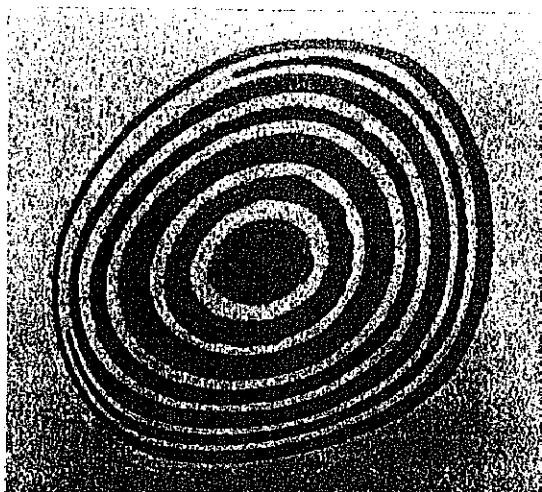


図 4.5.2 単結晶シリコンに室温で 90-keV D⁺ビームを全ドーズ量 2.3×10^{18} 個/cm² 照射後のシリコン表面写真

1 mm

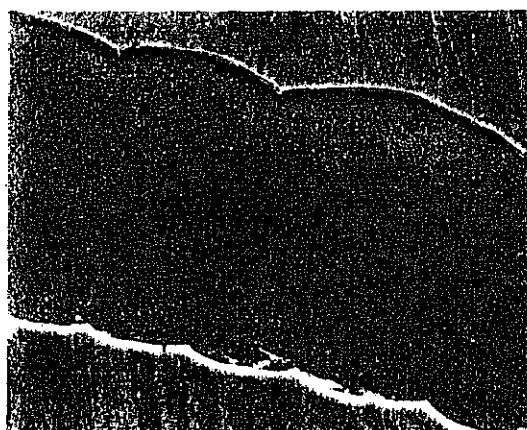


図 4.5.3 単結晶シリコンに室温で 90-keV D⁺ビームを全ドーズ量 9×10^{17} 個/cm² 照射後のシリコン照射表面クレーターの電子顕微鏡写真(SEM)。深さは約 $1\ \mu\text{m}$ で、90-keV D⁺ビームの飛程に等しい。

10 μm

重水素ガスが噴出すると反応陽子の計数率が増加する理由は次のようにして考えられる。注入された重陽子が重水素ガスとなってリング状に吹出す際、溝の底の表面層近くにはいくらかの重陽子が捕獲されて残っている。これらの重陽子は入射重陽子ビームと衝突する際表面近くにあるため高いエネルギー（～90 keV）で反応する。重陽子融合反応の断面積は、エネルギーの増加と共に急激に増加するため計数率に Jump が生じることになる。

一連の実験の結果クレーター形成に必要な照射線量はビーム径によらずほぼ一定の値、即ち臨界線量(critical dose)があり室温では $6.3 \pm 0.1 \times 10^{17} \text{D/cm}^2$ であることが分かった。

標的温度の依存性を見るために、同じ結晶構造を持ったSi, Ge, GaAsに照射ビーム条件を同じにして室温と液体窒素温度(80 K)で照射効果を調べた。照射は、90 keV D-ビーム0.6 μA 、ビーム直径1 mm、で行った。図4.5.4に照射ビームの積分量に対する陽子の計数率の変化を示す。観測結果をまとめると次のようになる。

- (1) 計数率は、最初のJumpが起こるまでは、照射ビーム量に対して直線的に増加する。しかも室温と80 Kとで全く同じ変化をしている。この事は、これらの結晶中では、注入重陽子の拡散が軸方向には起こっていない事を示している。
- (2) 計数率の傾きは、GeとGaAsは同じで、Siより大きい。この傾きの違いは、注入重陽子の軸方向の飛程の揺らぎがSi中に比べてGeとGaAs中では、わずかに大きい事によるものと思われる。なぜならばこのように低いエネルギーでの重陽子融合反応では、わずかなエネルギーの増加で大きく断面積が増加するからである。
- (3) 最初の計数率のJumpが起こるまでの線量は、80 Kの場合室温に比べて、Si, Ge, GaAsでは、それぞれ1.6, 2.5, 1.8倍になっている。低温でこれら結晶のYield Strengthが増加しそのため臨界量が増加したものと思われる。

Siなどで見られるような陽子の計数率の間欠的なJumpは、単結晶の CaF_2 でも観測され、照射面に同心状のクレーターが形成された。これに対して多結晶の金属やガラス（パイレックス、石英）では、金属で見られるような連続的な計数率の変化を示し、照射面にクレーターの形成は見られなかった。

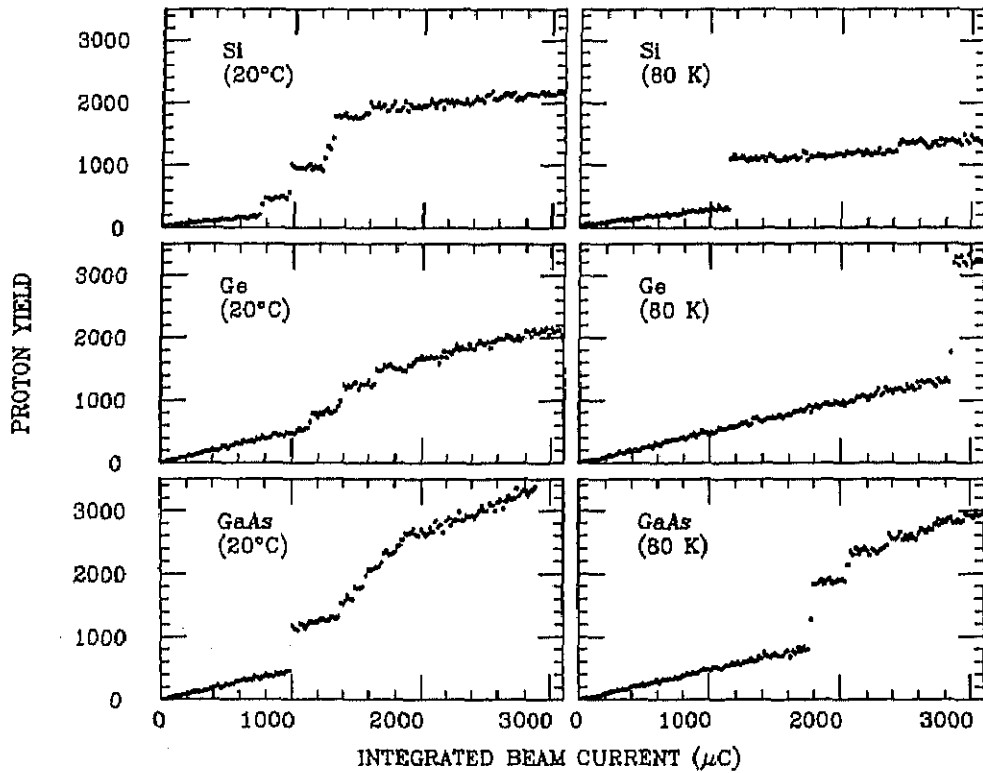


図4.5.4 単結晶Si, Ge, GaAsに重陽子ビームを連続照射したとき、D(d, p)T反応から放出された反応陽子の計数率の時間変化。各データ点は20 μC照射したときの反応陽子数。

照射条件：・ビームエネルギー 90-keV D⁻ ・Total dose 2.3×10^{18} ions/cm²
 ・標的溫度 20°C、80K

5 考察

5-1 注入重陽子の堆積のみから生じる反応陽子数の見積

まず初めに拡散が全くおこらず、注入した重陽子が飛程付近に堆積するのみであった時、その蓄積された重陽子と連続照射された重陽子との反応によって放出される陽子の数量を以下の手順に従って見積もった。

(1) 注入重陽子の深さ方向の分布

注入重陽子の深さ方向の分布を計算機シミュレーションコードSRIM[9]でシミュレーションした。35000個の重陽子をAl金属にうち込んだときの金属内部の様子を、SRIMでシミュレーションしたのち、その数量を深さ方向の軸に射影することで、金属内重陽子のプロファイルを作成した。その結果を図5.1.1に示す。深さの単位はオングストローム、重陽子の入射エネルギーは90 keVとした。連続照射された重陽子と反応をおこすのは、表面から飛程付近までの重陽子と考えて、その範囲のみを、最小二乗法を用いて多項式でフィッティングした。その結果を

$$\rho(x) = 7 \times 10^{-19} x^4 - 9 \times 10^{-15} x^3 + 4 \times 10^{-11} x^2 - 6 \times 10^{-8} x + 2 \times 10^{-5}$$
とした。

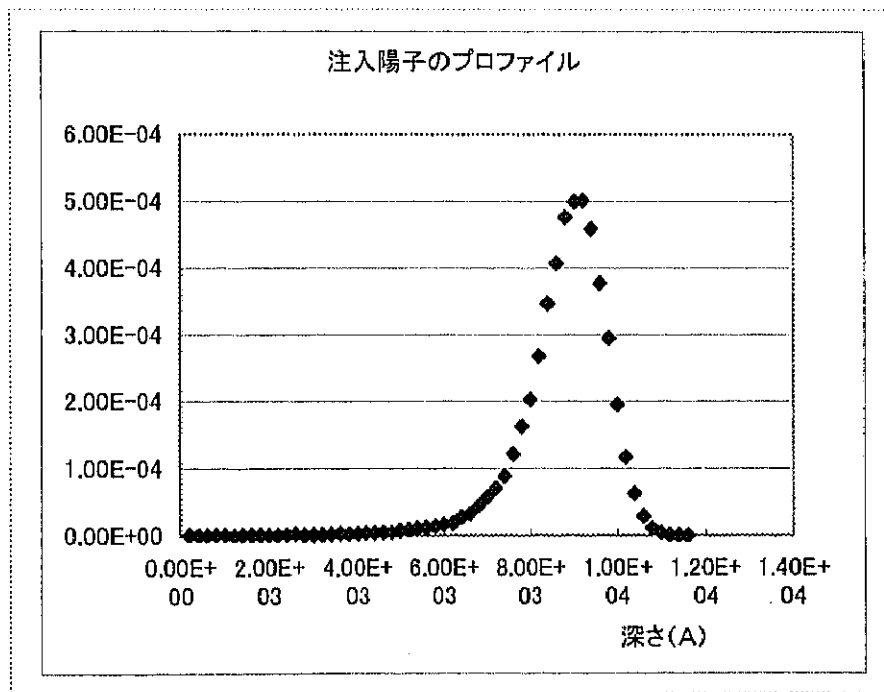


図5.1.1 アルミ標的金属内の深さ方向の注入重陽子分布

(2) エネルギー損失の見積り

(1)と同様に、SRIMを用いてAl標的における重陽子の入射エネルギーとそのときのエネルギー損失を算出した。(図5.1.2)またその数値表より、[エネルギー]-[飛程]をプロットして(図5.1.3)、2次多項式でフィッティングした。その結果を

$$E(x) = 5 \times 10^{-7} x^2 - 0.0146 x + 91.102$$

とした。

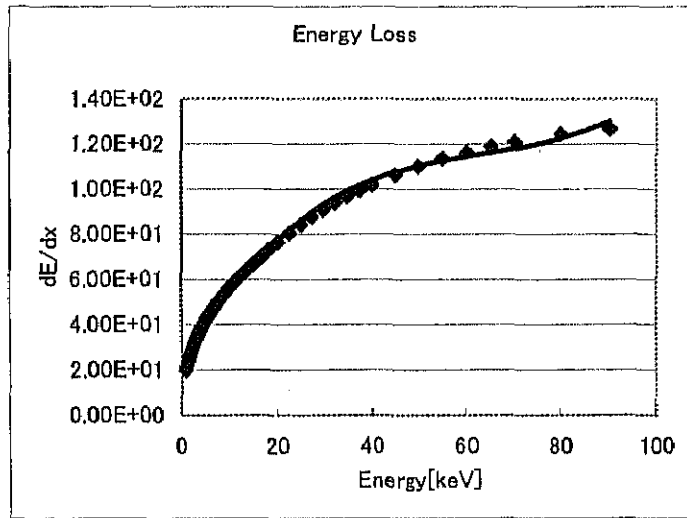


図5.1.2 Al標的における重陽子のエネルギー損失

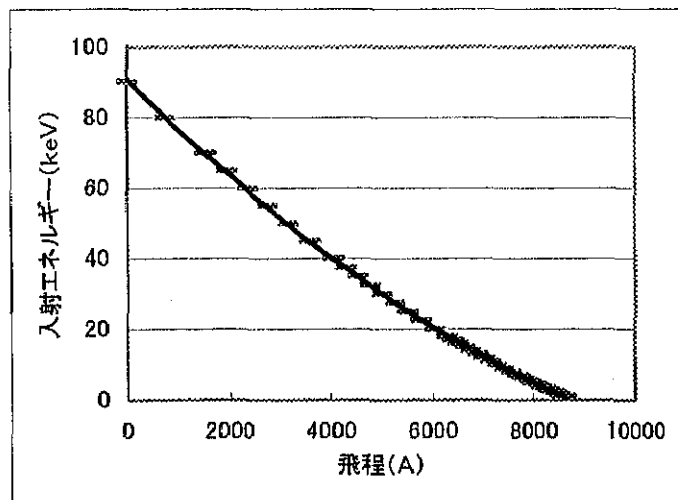


図5.1.3 Al標的における重陽子エネルギーに対する飛程

(3) D(d, p)T反応の断面積

今回の実験にあわせて、散乱角を $\theta = 155$ 度としたときの反応断面積を、入射エネルギーを変えて計算した。反応断面積として参考文献[13]のデータを用いた。そのデータを3次の多項式でフィッティングし、

$$\sigma(E) = -2 \times 10^{-6}E^3 + 4 \times 10^{-4}E^2 - 7.3 \times 10^{-3}E + 0.0279$$

とした。結果を図5.1.4に示す。

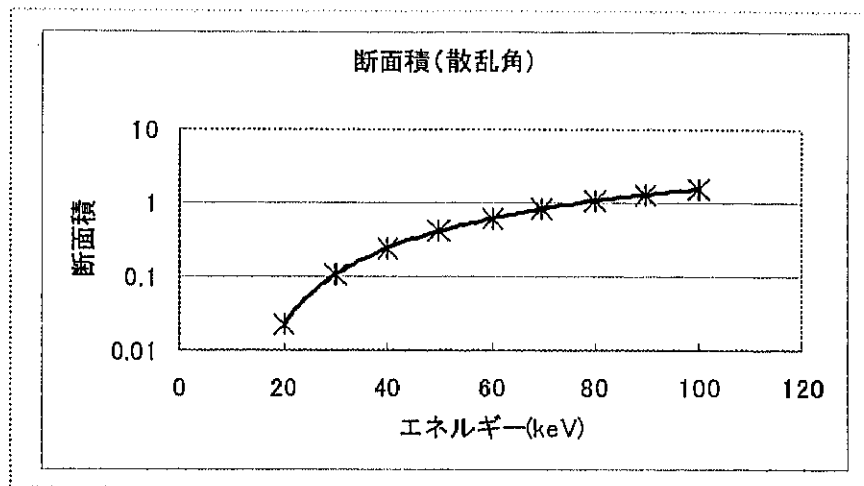


図5.1.4 D(d, p)T反応の反応断面積

以上のデータを用いて反応陽子の収量を次の式から計算した。

$$\text{Yield(時間)} = \int_0^R \sigma(x)\rho(x)dx \times \text{立体角} \times \text{入射個数} \times \text{時間}$$

(R : 飛程)

立体角・入射個数の値は今回の測定条件に合わせて、立体角=0.70 [sr]、入射重陽子の個数は、 $0.5 \mu\text{A}$ すなわち $n=3.13 \times 10^{12}$ [個/秒]として見積もった。

その結果を図5.1.5に示す。

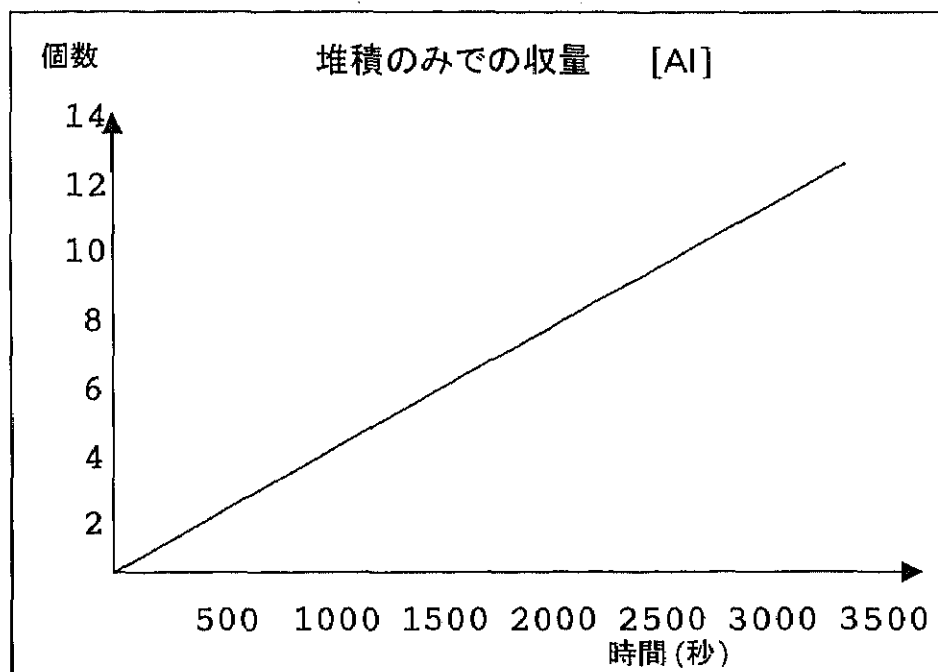


図5.1.5 拡散が起こらない場合の放出陽子の計数率

まず上の図を見て分かることは、堆積のみで拡散がないとした場合、 $D(d, p)T$ 反応からの反応陽子の収量は小さく直線的に増加する。この収量は図4.1.1に示したAl標的の実験結果の1/10以下である。金属標的に照射した場合、照射軸方向の注入重陽子分布に拡散の寄与が重要であるといえる。一方これに対して4.5節で見てきたようにSi, Ge, GaAs等の単結晶に照射した場合、拡散が殆ど起こっていないと言える。なぜなら、反応陽子の収量が非常に少なく標的温度によらず直線的に増加している事で分かる。そしてある一定の臨界量に達すると重水素ガスとなって標的表面から噴出する。

5.2 拡散による効果

放出陽子計数の時間変化が示しているのは、標的表面近傍における重陽子密度の時間変化である。今回の実験で用いた重陽子ビームの標的中での平均飛程はたかだか $1\ \mu\text{m}$ 程度なので、ビームの入射軸方向の情報は非常に短時間の変化のため、定性的には標的内の2次元方向の重陽子の拡散効果が重要である。もっとも単純な1次元の拡散方程式から軸方向の拡散を見積もってみる。

1次元の拡散方程式は

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \nabla^2 c$$

と書ける。これを無限に長い棒の一方所に時刻 $t=0$ で全量 M の溶質をおいたときその解は

$$c(x,t) = \frac{M}{2\sqrt{\pi Dt}} e^{-x^2/4Dt}$$

$$\text{ただし } M = \int_{-\infty}^{\infty} c(x,t) dx$$

となる。このうち $0 \leq x$ の範囲にあるものの割合を求めると

$$\frac{1}{\sqrt{\pi Dt}} \int_0^x e^{-x'^2/4Dt} dx' = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{x/2\sqrt{Dt}} e^{-y^2} dy = \text{erf}\left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}}\right)$$

である。従って距離 x の位置での濃度が十分な値に達するには

$$x \approx \sqrt{Dt}$$

であるためこの実験において、入射重陽子が飛程付近でエネルギーを失い標的表面近傍まで十分拡散してくる時間は数十 msec 程度になる。我々の測定では約 10 秒間隔で陽子数を計測しているため入射軸方向の拡散過程は今回の測定では無視できるといえる。即ち標的表面近傍に常に重陽子が供給され、そこから重陽子が平面状に拡散していくと考えられる。

図 4.1.1-4.1.4 に示したように、拡散係数が大きいとされる標的を用いた場合は反応陽子収量の成長は非常に少なく横這いである。それに比べて拡散係数が小さいとされる金属では標的の近傍での重陽子密度が入射量に比例して大きく成長していく様子がわかる。

今回の測定で最も興味ある結果は、4-2 節で示した単結晶金属と多結晶金属での注入重陽子の比較である。金属の種類によってその振る舞いがまったく違うのは、非常に興味ある事である。特に Cu では単結晶と多結晶で注入重陽子の挙動にまったく違いが見られないが、図 4.2.5 に示した Ta では、単結晶に対して陽子の計数は、1 channel (10 秒) に対して 2~3 個しか検出されないという結果を得た。検出器系の異常あるいは、チャネリング効果による影響ではないことを確認している。このような結果は、単結晶 Ta 中での重陽子の拡散が異常に早いことを示しているのか、さらなる追試が必要である。現在異なる結晶方位の Ta 標的に対して同じような測定実験を準備している。また Al, Pd 標的に対しては、単結晶の方が重陽子の拡散は大きい事を示している。Mo 標的に対しては、陽子収量の立ち上がりは他の物質に比べて特異な変化をしている。理由は分かりませんが、少なくとも注入重陽子の振る舞いが Mo 中では他の物質に比べて違っていることは確かである。

5-3 標的内の重陽子密度分布

注入重陽子の標的内の重陽子密度の分布は拡散を調べる上で有効な情報を与える。拡散係数が大きく拡散しやすいと思われるものは内部の数密度が低く、それに比べて拡散係数が小さいものは数密度が高くなっている。また図 4.4.4 と 4.4.5 で示したように入射量が増えるにしたがって内部の重陽子密度が増加していく様子が分かる。Ti と Mo を比較した場合、Ti 内部にはほぼ一様に重陽子が分布しているが、Mo 内部では表面近傍での重陽子の堆積が顕著である。

なお、4-4 節で述べた方法では標的内部の飛程付近での内部密度は評価できない。これは飛程付近では、入射重陽子のエネルギーが小さくなり核反応断面積が減少し十分な反応陽子収量が得られないためである。もし飛程付近での注入重陽子分布を正確に知りたければ、入射重陽子のエネルギーを上げて反応陽子のスペクトルを測定すればよい。たとえば 50keV のエネルギーで注入して 100keV のビームでプローブすればよい。しかしこれでは常に実時間で観察できるというこの方法の最も大きな特徴を生かしたことになる。

注入重陽子の拡散現象で大切なことは、注入重陽子が単に濃度勾配によって標的中を拡散していくだけという単純な過程に従わないということである。注入重陽子が標的中でどのような確立で捕獲されるかという捕獲の過程が重要である。従って標的内部の重陽子分布の情報は重要である。測定原理で述べたように密度分布の分解能を上げるには、反応陽子をできるだけ後方でかつ測定角度の広がりを小さくする必要がある。その結果反応陽子の検出収量が少なく十分な統計が得られなくなることが問題である。

5-4 活性化エネルギーの導出

一般に重陽子の拡散の速い標的ではある程度注入すると反応陽子の収量が図 4.3.2 や 4.3.3 のように一定値に近づく。このような場合一定値の収量の温度依存性から活性化エネルギーを次のようにして見積もることができる。

拡散係数の温度依存性は、次のように書ける。

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$$

ここで E_a は活性化エネルギーを与える。平衡に達した時の反応陽子の収量は、拡散係数に反比例することになるから、温度の逆数を横軸、収量の逆数の対数

を縦軸としてプロットすれば直線関係が得られその傾きから活性化エネルギーが導出されることになる。図 4.3.1 のデータで各温度での平衡状態での収量の平均値を用いてプロットすると図 5.4.1 のようになる。ここで測定時間内で平衡に達しなかった-6.6℃のデータは用いなかった。

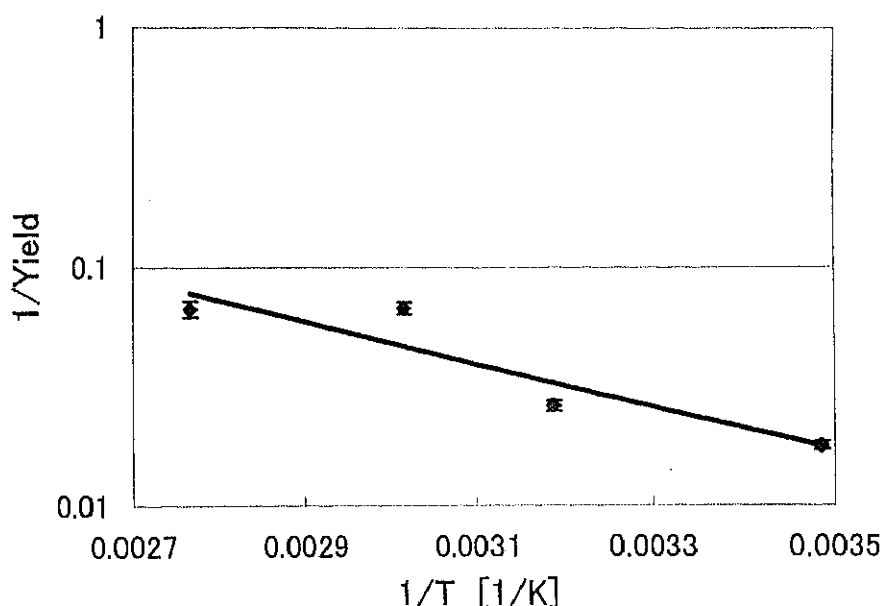


図 5.4.1 Pd 標的での平衡状態における陽子収量と標的溫度との関係

図の直線は、最小自乗法によって求めたものである。この直線の傾きから活性化エネルギーとして $E_a = 176 \pm 56$ meV なる値を与える。この値は、Pd 中への重陽子拡散の活性化エネルギーとして報告されている 206 meV に近い値を与えている [10]。

次に SUS301 標的に対して同様の解析を行った。平衡状態における陽子収量と標的溫度との関係を図 5.4.2 に示す。低温時の場合、平衡に達するまで長時間かかり十分な測定が行えていないため外挿値を用いた。

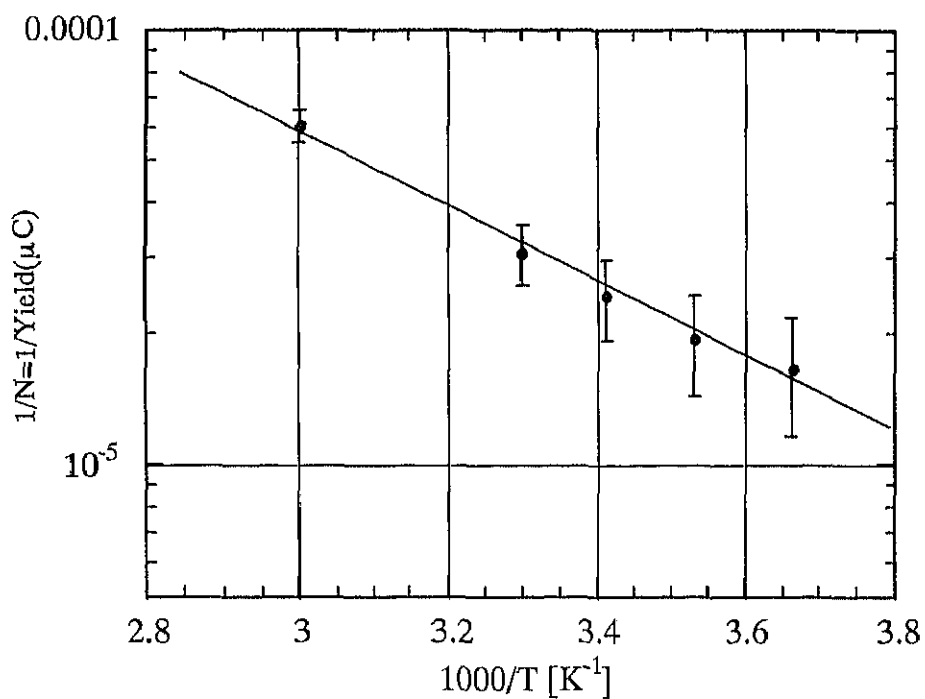


図 5.4.2 SUS301 標的での平衡状態における陽子収量と標的溫度との関係

この傾きから活性化エネルギーを求めると、

$$E_a = 170 \pm 77.3 \text{ [meV]}$$

となった。ほかの方法で測定された鉄中での重水素拡散の活性化エネルギー値 64meV[11]と比較して2倍程大きな値を与えているが、この違いは、SUS301 のような化合物と鉄単体の違いによるものと思われる。

5-5 単結晶 Si での注入重水素によるフレーキング現象

固体中に水素やヘリウムのようなイオンを注入した結果として固体表面が剥離する現象(フレーキング, flaking)が知られている。以前、我々はSi, Ge, GaAsに重水素イオンを注入したときに新しいタイプのフレーキング現象が観測されることを報告した[4, 5]。それは、図4. 5. 2に示したように表面が剥離した結果できるクレーターが巨視的な同心円状のパターンを形成するというものである。この現象の最大の特徴はフレーキングの結果形成されたクレーターがmmオーダーの巨視的な構造を持つということである。過去に多くの研究者がイオン照射による表面変形現象を研究してきているが、このような巨視的なリング状パターン形成現象の報告はなかった。通常は照射表面に直径数10 μm のクレーターがランダムに形成されるだけである。

我々はリング状フレーキングの形成メカニズムについて調べその結果を文献[12]に報告した。ここでその概略を述べる。

リング状フレーキングの特徴についてまとめておく。

- (1) ある臨界注入量で瞬間的な重水素の噴出が起こる。
- (2) その結果、クレーターが照射表面にひとつ形成される。注入量の増加と共にリング状クレーターがひとつずつ同心円状に形成されていく(図4. 5. 2)
- (3) クレーターの深さは注入重水素イオンの平均飛程と一致する(図4. 5. 3)。
- (4) リング状パターンの形成はシリコンの結晶方位と関係がない。

我々は、この論文でリング状パターンをつくりだすと思われる注入重水素の巨視的移動の実験的証拠をはじめて報告した。さらに表面剥離のメカニズムを明らかにするためにフレーキングに必要な臨界注入量のいくつかのパラメータについての依存性を調べた。そして、これらの実験結果に基づいて、重水素の巨視的移動と表面剥離を説明するパーコレーション・モデルを提案した。

このリング状パターンはシリコン中に打ち込まれた重水素の巨視的な移動によって生み出されているものと考えた。しかし、シリコン中に打ち込まれた重水素は注入層に形成された欠陥の未結合手にトラップされてしまい、ほとんど動けないと考えられる。この事は、図4. 5. 4に示したように反応陽子の計数率が標的溫度によらず、照射ビーム量に対して直線的に増加していることから分かる。したがって、重水素原子の拡散の代わりに、重水素分子が、ガスバブルが結合してできたネットワークに沿って動くと考えた。もし、巨視的なガスバブルのネットワークが存在すれば、重水素分子は巨視的な距離を動くことができる。そこでガスバブルの巨視的なネットワークが存在するのを実験的に調べるために新しい実験方法を開発した。この方法は、図5. 5. 1に示したステップによって重水素ガスの巨視的移動による重水素密度の減少を調べるというもので

ある。つまり、あらかじめ高密度で重水素を注入しておいた試料の一部分に細い重水素ビームでフレーキング・クレーターを作ってやる。そして、クレーターから巨視的に離れた位置でこの重水素密度を核反応 $D(d, p)T$ 反応を用いて測定する。この測定された密度をStep 2のフレーキングをやらなかった試料の密度と比較することで重水素密度の減少が起こるかを調べた。実験結果から、注入量が 5.4×10^{17} D/cm²より上で重水素が減少することが分かった。

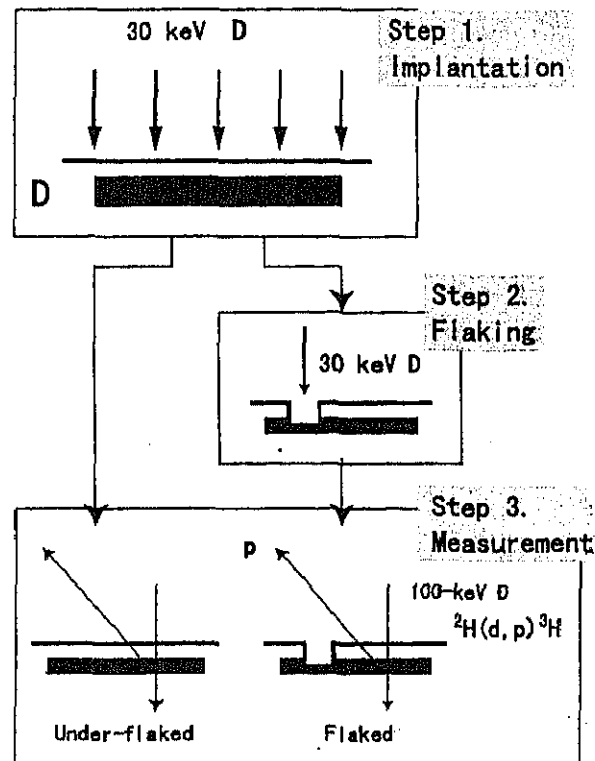


図5.5.1 Gas-bubble network 模型を検証するための実験手順。

さらに、我々の予測しているガスバブルのネットワークについて定量的に論じるために、パーコレーション理論に基づいたモデルを提案した。このモデルは我々がはじめて提案するものである。まず、パーコレーション理論についてであるが、これは統計物理の理論の一つであり、格子の中にランダムに分布した占有格子点同士のつながりを扱うものであるこの理論は非常にシンプルでかつ一般的なので、幅広く応用され成功を収めている。この理論によれば、ランダムにばらまかれた占有格子点の密度がある閾値を越えたとき、巨視的なネッ

トワークが存在する。我々は、ガスバブルのネットワークの形成はパーコレーション理論で扱えると考え、ガスバブルのパーコレーションモデルを提案した。このモデルによれば、ネットワークに含まれる重水素ガスの密度、すなわちネットワークに沿って動くことのできる重水素の密度は、 $(\Phi - \Phi_c)^\beta$ に従うはずである。ここで、 Φ は注入量、 Φ_c はネットワークが出現する注入量、 β は臨界指数と呼ばれる次元不変量である。もし我々のモデルが正しければガスバブルは2次元のパーコレーションを起こすはずであり、 β は $5/36 = 0.1388\dots$ になるはずである。そこで、重水素の減少量を上述の式で最小自乗フィッティングして、 β をもとめた。その結果、 $\beta = 0.104 \pm 0.025$ が得られた。これは、2次元系のパーコレーションの理論値に比較的近い値である。このことから、重水素の減少はガスバブルのネットワークに沿った重水素ガスの移動で解釈できることが分かった。

重水素の巨視的移動だけでなく、表面の剥離までのプロセス理解するために、フレーキングに必要な注入量(臨界注入量)のビーム強度依存性と入射エネルギー依存性を調べた。臨界注入量を調べることで最終的な表面の変形過程について研究することができる。この過程は、パーコレーション的描像ではなく、弾性論的なものとなる。実験結果によれば、臨界注入量はビーム強度には依存しなかった。一方、入射エネルギーが高いほど臨界注入量が高くなることが分かった。モンテカルロ計算コード TRIM の計算によれば、入射エネルギーが高いほど重水素の飛程付近でのストラグリングは大きくなるので、臨界注入量での飛程での重水素の密度は入射エネルギーに依存せず一定値になることが分かった。この入射エネルギーには依存せず、重水素密度がある値に達したときにフレーキングが起こるという事実は弾性論的過程がフレーキングを起こす寸前に起こることを示している。つまり、巨視的なドーム状の空洞が生じて表面変形を起こす過程は、爆発的に進行する。

最後に、得られた実験結果から、リング状フレーキングの形成を定性的に説明できることが分かった。リング状フレーキングはビームが一様ではないときに起こることが分かっている。そして、フレーキングを起こす臨界注入量と重水素が巨視的移動を起こす注入量との間に差があるため、クレーターができるとその近傍の重水素密度はクレーターを通して減少する。そのため、最初のクレーターがビームの中心にできると、その周りの重水素密度が減少するために、次のクレーターは最初のクレーターから離れた位置にできると考えられる。結論として、我々の提案したモデル、つまり重水素ガスがガスバブルのパーコレーションネットワークを通じて巨視的移動を行うというモデルは、実験結果をよく説明することが分かった。そして、巨視的移動によって、リング状フレーキングの定性的説明が可能だということが分かった。

まとめ

ここに注入重陽子の拡散の新しい測定法を提案してきた。その大きな特徴は、重陽子ビームが注入する物質であり、かつこの重陽子ビームが標的内部に注入された重陽子の診断プローブの役割をしている点である。従って反応陽子の収量の時間依存性を観測することによって実時間 (Real Time) で注入重陽子の挙動を観測することができる。また原子核反応の運動学より反応陽子のエネルギーをできるだけ後方角で測定することによって標的内部の重陽子分布の情報が得られるのも大きな特徴のひとつである。

今回の科学研究費の交付により実験を効率よく遂行するため検出器系および測定系の整備を行った。特に反応陽子の検出器として大容量のシリコン半導体検出器を導入し検出の立体角を大きくすることによって検出効率が上がり、低いビーム強度 ($\sim 0.5 \mu\text{A}$) でも十分な計数が得られ、ビーム照射による標的温度変化を最小に押さえることが可能となった。照射ビーム強度が標的上で一樣になるようにビーム偏向系およびビーム照射中標的温度を一定に保つためターゲットホルダー系等の改良を行った。

物質中での注入重陽子の挙動を調べるため次のようなパラメーターに対して測定を行った。(1)標的物質の種類 (Al, Co, Ni, Cu, Pd, Au, Pt) (2)結晶構造、単結晶・多結晶の違い (Al, Cu, Mo, Pd, Ta) (3)温度変化 ($-5^\circ\text{C} \sim 90^\circ\text{C}$)。今回の測定で得られた最も大きな特徴は、金属元素の種類によって、単結晶と多結晶のあいだで反応陽子数の時間変化に著しい違いが観測されたことである (図 4.2.1~4.2.5)。例えば銅では単結晶と多結晶に差がまったく見られないが、タンタルでは単結晶と多結晶とで、注入重陽子の振る舞いがまったく違う。図 4.2.5 に示したように単結晶タンタル中では重陽子の拡散が異常に早いように観測された。単結晶と多結晶中での注入重陽子の挙動に関して今後さらに系統的な測定を行っていく予定である。

今回のような重陽子ビームを注入しながら重陽子の挙動を調べる場合注入重陽子が単に濃度勾配によって標的中を拡散していくだけという単純な過程に従わないということである。注入重陽子が標的中でどのような確率で捕獲されるかという捕獲の過程が重要である。従って標的内部の重陽子分布の情報は重要である。測定原理で述べたように密度分布の分解能を上げるには、反応陽子をできるだけ後方で測定する必要がある。そのためアニュラー型のシリコン半導体検出器を設置しできるだけ後方角度で反応陽子のエネルギーを測定し注入重陽子の深さ方向に対する分布の情報を得ることが重要である。今後これらの測定量を合わせて注入重陽子拡散機構の解明を行う。

あとがき

本研究の発端は偶然で、重陽子融合反応の断面積測定においてバックグラウンドとして取り除かなければならない事象が見つかり、それを逆に応用したものである。最初は、90keV、数 μ Aの負の重陽子ビームを種々の金属標的に照射しながら反応陽子数の時間変化を測定した。すると、照射時間に対する反応陽子の計数率が金属の種類によって大きく異なることが観測された。この違いは、標的中での重陽子の拡散の違いによるものであることが分かった。そして重陽子融合反応から放出される反応陽子数の時間変化を測定する事によって物質中に注入された重水素原子の拡散を実時間で観察することのできる新しい測定方法としてこの方法の開発がはじまった。

我々は注入ビームとして負の重陽子ビームを用いている。この負の重陽子はその電子親和力が非常に小さく金属以外の絶縁物に対してもチャージアップすることなく安定して照射することができる。そこで我々は、単結晶シリコン中での重陽子の拡散を調べる実験を行った。4.5節で述べたように反応陽子数の時間変化が金属標的の場合とまったく異なり注入量がある値に達すると不連続に反応陽子の計数率の増加が観測された。これは注入重陽子密度が臨界に達し結晶内で重陽子融合反応いわゆる“常温核融合”が起こり突発的に陽子が放出されたのではないかというような希望的な憶測もなくはなかった。そしてまた照射シリコン表面に現れたリング状のきれいな模様、電子顕微鏡による観察、質量分析器による重水素ガスの噴出の観測等により注入重陽子の挙動が次第にあきらかになっていった。

現在測定系の整備が整いこれからさらに定量的な測定を行っていく。特に単結晶と多結晶で注入重陽子の挙動に大きな差が見られた。これらの差の解釈に関してはさらなる測定、例えば温度依存性の測定、拡散に寄与しないトラップされた重陽子がどのような分布をしているか等の測定が必須である。また最近核融合エネルギー源として、中性子の発生を伴わない ${}^3\text{He}(d, p){}^4\text{He}$ 反応が注目されている。ここで問題になるのは、 ${}^3\text{He}$ と重陽子のプラズマ中では重陽子融合反応も同時に起こりそこから中性子が発生する。この反応は重陽子を偏極させることによって抑制できるという提案がなされている[13]。この観点から偏極した重陽子同士での重陽子融合反応断面積の測定は大変興味のある実験であるが、今の段階では、このような低エネルギーで実験可能な偏極した標的重陽子を作るのが困難なので行われていない。そこで我々は、ラムシフト型偏極イオン源からの偏極重陽子ビームを注入した偏極重陽子標的の開発研究も平行して行っており、偏極核融合の問題に対する答えを実験から出したいと思っている。

謝辞

本研究はすべて筑波大学加速器センターのタンデム加速器のイオン源室で行われました。このイオン源室にはラムシフト型偏極イオン源、スツパッタリング型重イオン源そして加速器質量分析用イオン源の三台のイオン源が設置されており、各種実験に応じて安定したビームを加速器に供給しています。本研究は、ラムシフト型偏極イオン源がタンデム加速器に接続されていない時に、そのビームラインに移動可能な小型散乱槽を接続して、最大100kVに加速された負の重陽子ビームを用いて実験を行ってきました。イオン源室では他の測定室とは異なり実験を行う空間的なスペースが限られており、そのなかでこれら一連の研究を能率よく行うことができたのは加速器センター長の古野興平教授をはじめセンター技官の方々のご協力によるものでここに感謝いたします。

重陽子融合反応におけるバックグラウンド陽子の観測から、シリコン中での注入重陽子のフレーキング現象、そしてその機構の解明に至る一連の研究の中心となって活躍されてこられた片淵竜也助手。定量的な測定が行えるように装置の様々な改良を行い、基礎的な実験データーを提供してくださった筑波大学物理学研究科大学院生の河地有木君。拡散のシュミレーション計算をはじめ有益な議論をしてくれた物理学研究科大学院生の山口充孝君。ここで報告した殆どのデーターを測定してくれた大学院生の河地有木君と筑波大学自然学類4年生の井門みずき君。

最後になりましたが、最初に単結晶シリコンウェハーを提供していただきました筑波大学物理工学系の工藤博教授。それによってまったく予期せぬ現象が観測され本研究の発端となりました。その後シリコンの照射表面にリング状の模様が発見され、その照射表面の断面を透過型の電子顕微鏡によって撮影してくださった光技術開発株式会社の田村誠男博士。また走査型電子顕微鏡による照射表面の写真撮影をしてくださった筑波大学地球科学系の指田勝男助教授。これらによってリング状の模様の構造が明らかになってきました。

この研究は、これら皆様方の協力がなければこのような成果を上げることができなかったと思っております。本当に皆様方のご協力に感謝いたします。

参考文献

- 1 E.O. Lawrence et al., Physical Review(1933)56.
- 2 田岸義宏、原子核研究 vol.39 no.4 (1994)1.
- 3 田岸義宏、原子核研究 vol.40 no.5(1994)47.
- 4 Y. Tagishi and T. Katabuchi, Phys. Lett. A195(1994)99
- 5 Y. Tagishi et al.,in Proceedings of the Ninth International Conference on Ion Beam Modification of Materials, Canberra, 1995, p.837
- 6 M. Bruel,Electron. Lett. 31(1995)1201
- 7 M. K. Weldon et al., J. Vac.Sci.Technol. B 15(1997)3519
- 8 R. E. Brown and N. Jarmie, Phys. Rev. C41(1990)1391
- 9 J.F. Ziegler and J. Biersack, SRIM, 1998
- 10 深井 有 : 「拡散現象の物理」 (朝倉書店、1988)
- 11 深井 有 : 日本金属学会報、24(1985)707
- 12 T. Katabuch, N. Kawachi and Y. Tagishi, J. Appl. Phys. 86(1999)3030
- 13 R. M. Kulsrud, H. P. Furth and E. J. Valeo, Phys. Rev. Lett. 49(1982)1248