

# ポスター発表

10月5日(木)

---



10月5日(木)

P-01 ~ P-06

# P-01 波形弁別法による液体 $\alpha$ 放射能インラインモニターの開発

(原研) ○ 臼田重和、三原明、阿部仁

## 1. 序論

溶液中の $\alpha$ 線の飛程はせいぜい数十 $\mu\text{m}$ であり、そのエネルギースペクトルはかなり歪む。そのため、液体中の $\alpha$ 放射能のみを計測することは容易ではない。通常、試料溶液と有機シンチレータを混合して液体シンチレーションカウンターを用いて測定する。その他、液滴又は液膜を至近距離からSi検出器を用いて測定する方法、ガラス又はプラスチックシンチレータを用いて試料溶液と接触させて測定する方法等も開発されてきた。しかし、 $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能が共存する場合、いずれも満足できる方法とはいえない。高速中性子と $\gamma$ 線を区別するために開発された $n$ - $\gamma$ 波形弁別法は、液体シンチレータを用いた $\alpha$ 線と $\beta$ ( $\gamma$ )線の弁別測定にも応用され、液体中の $\alpha$ 放射能のみの計測が可能になった。しかし、この方法を用いてインライン的に測定する場合、試料溶液は液体シンチレータと混合しなければならず、不都合なことが多い。

筆者らは、波形弁別が得られる固体シンチレータを用いて、液体中の $\alpha$ 放射能のみを $\beta$ ( $\gamma$ )放射能と区別して計測する方法を検討している。本発表では、CsI(Tl)シンチレータを用いて、ウラン溶液の時間スペクトルを測定し、液体中の $\alpha$ 放射能のみを計測した結果及びインラインモニタとして実用する場合の見通しについて述べる。

## 2. 測定システム

液体中の $\alpha$ 放射能をインライン的に測定するために作製したフローセルの断面図をFig.1に示す。溶液は中央のステンレス管( $\phi$  1/16")から入り、ステンレスセルに螺旋状に掘った溝とCsI(Tl)シンチレータの間を流れ、外側のステンレス管から出る。CsI結晶は潮解性を有するため、金蒸着した薄いマイラー膜を液とシンチレータの間にもうけ、CsI(Tl)シンチレータが溶出しないよう工夫した。また、 $\beta$ ・ $\gamma$ 線の検出効率を抑えるため、シンチレータはアクリル製のライトガイドに光学接着剤(NE581)で固定し、できるだけ薄いものを調製した。金蒸着マイラー膜を貫通した溶液中の $\alpha$ 線は、CsI(Tl)シンチレータを発光させ、その蛍光はライトガイドからフォトマル(PMT)に導入される。

液体中の $\alpha$ 放射能の測定システムをFig.2に示す。フローセル、PMT及びプリアンプを内蔵したプローブからの信号は、マルチモードアンプ(MHA)に入力される。MHAで増幅されたパルスは、ライスタウすだじげかず、みはらあきら、あべひとし

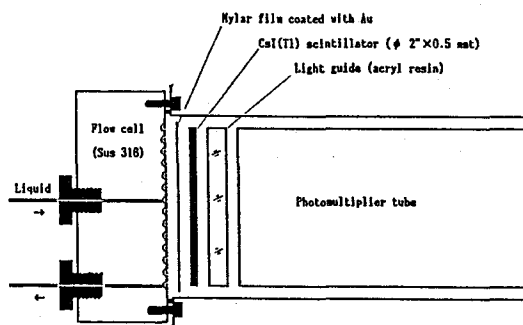


Fig.1 Cross section of flow cell assembly.

イムコンバータ (RTC) により立上り時間別に波形を弁別する。 $\alpha$  及び  $\beta$  ( $\gamma$ ) 領域に調整した2台のシングルチャンネルアナライザ (SCA) の出力は、マルチチャンネルスケーリング (MCS) モードで測定するためマルチチャンネルアナライザ (MCA) に入力する。即ち、それぞれの事象数の経時変化を検知することができる。同時に、RTC及びMHAからの出力をパルス波高分析 (PHA) モードでMCAに入力することにより、時間スペクトル及びエネルギースペクトルも測定することができる。

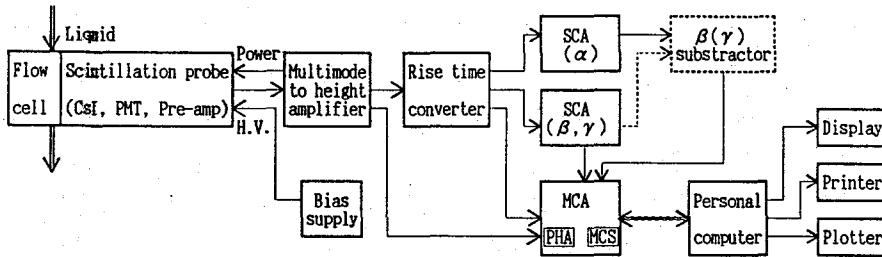


Fig.2 Block diagram of in-line monitor system for gross  $\alpha$  and  $\beta(\gamma)$  activities in liquid.

### 3. 結果及び考察

まず、フローセルを取外した状態で、ウラン及び  $^{137}\text{Cs}$ 等の固体線源を用いて、 $\alpha$ 線と $\beta(\gamma)$ 線が弁別できる時間スペクトルが得られるかを調べた。CsI(Tl)シンチレータを使用すると $\alpha$ 線と $\beta(\gamma)$ 線を弁別することができ、その分解能 (Figure of merit: FOM) は2.25であった。しかし、 $\beta(\gamma)$ 線がかなり多量存在すると、 $\alpha$ 領域への流れ込みが生じる。この場合、 $\beta(\gamma)$ 事象の一定の割合が $\alpha$ 領域に寄与すると仮定し、 $\beta(\gamma)$ 放射能サブストラクターを設け、 $\beta(\gamma)$ 寄与分を補正できる測定システムとした (Fig.2 点線参照)。次に、ステンレスフローセルを用いてウラン溶液を測定試料とした時間スペクトルを求めた。Fig.3は、 $111 \text{ g}^{235}\text{U}/\text{l}$ の30%TBP-n-ドデカンを試料溶液とし、外部から $^{137}\text{Cs}$ 線源で $\beta(\gamma)$ 線の寄与分を加えた場合の時間スペクトルを示す。FOMは1.9であり、液体中の $\alpha$ 線と $\beta(\gamma)$ 線が弁別できることを確認した。即ち、フローセルに試料を送液し、連続的に液体中の $\alpha$ 放射能を計測することによりインラインモニターとしての機能を発揮できる。しかし、CsI結晶は潮解性を有するので、金蒸着マイラー膜で包んでも長期使用は困難であると思われる。今後、膜の検討のほか、酸や有機溶媒に強いシンチレータの検討も行う予定である。

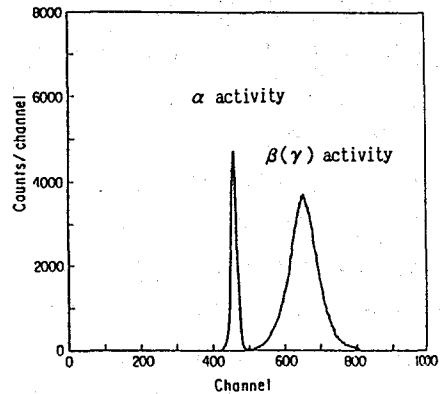


Fig.3 Rise time spectrum of  $111 \text{ g}^{235}\text{U}/\text{l}$  in 30% TBP-n-dodecane and  $^{137}\text{Cs}$  standard source.

DEVELOPMENT OF IN-LINE MONITOR FOR  $\alpha$  ACTIVITY IN LIQUID BY MEANS OF PULSE SHAPE DISCRIMINATION

Japan Atomic Energy Research Institute, Shigekazu USUDA, Akira MIHARA, Hitoshi ABE

## P-02 銅フタロシアニンにおける $^{64}\text{Cu}$ と $^{66}\text{Cu}$ のリテンションの同位体効果

(立教大原研, 立教大一般, 筑波大化) ○松浦辰男, 佐々木研一, 荏司準

1. はじめに われわれは $(n, \gamma)$  反応でつくられるホットアトムの反跳エネルギースペクトルを捕獲 $\gamma$ 線スペクトルのデータからモンテカルロ法で計算し, そのスペクトルを積分して得られる「理論的リテンション—しきいエネルギー」の関係を使って実験から求めたリテンションの最低値から「ホットアトムの出現エネルギー」をを求めることを試み, すてに $^{51}\text{Cr}$ や $^{103}\text{Ru}$ の核種に適用してもっともな値を得ている。本報では,  $^{64}\text{Cu}$  (半減期12.7h)と $^{66}\text{Cu}$  (半減期5.1m)について図に示すような反跳エネルギースペクトルが得られたので, 銅フタロシアニン(CuPc,  $\alpha$ および $\beta$ 型)をターゲットとして, リテンションの同位体効果がこれから予想される傾向と一致して現れるか, また出現エネルギーはどのような値になるか, ということ調べた。

2. 実験  $\beta$ -CuPc は市販の製品を昇華精製したものを,  $\alpha$ -CuPc はそのようにしてつくった $\beta$ 型結晶を濃硫酸にとかし再沈澱し乾燥させ, いずれも元素分析および粉末X線回折法で純度をチェックしたものを使用した。中性子照射は, 50mgの試料を粉末のまま, またはこの量を冷濃硫酸3mlに溶かしたものを, 種々の温度(室温, ドライアイス温度, 液体窒素温度)で立教大原研トリガ炉のF孔で2分間おこなった。照射後直ちに, 粉末試料は少量の冷濃硫酸に溶かし, 150~200 mlの水で希釈してCuPcの沈澱をつくり, ヌツェで濾過して, 濾液の一部と濾紙上の沈澱とをバイアルに取って, Ge(Li)-MCAで $^{64}\text{Cu}$ と $^{66}\text{Cu}$ に起因するそれぞれ0.511 および1.039MeVの $\gamma$ 線のピークを測定し, 照射直後の時点に外挿してリテンションを計算した。

3. 結果と考察 得られた結果を表に示す。これからわかることは,

- (1)  $^{64}\text{Cu}$ は $^{66}\text{Cu}$ よりも常にリテンションが小さい。これは図の反跳エネルギースペクトルから予想される傾向と一致する。
- (2) 固相の照射ではよく知られているように $\beta$ 型のリテンションは $\alpha$ 型よりもかなり大きい, その場合も同位体効果が現れている。
- (3) 硫酸溶液の照射ではリテンションは,  $\alpha$ ,  $\beta$ いずれの型のリテンションもいちじるしく小さくなり, 数値をよく見ると $\alpha$ 型のほうが $\beta$ 型よりもリテンションはむしろ小さいくらいであるが, 同位体効果のほうは固相の場合同様 $\alpha$ 型のほうが $\beta$ 型よりも大きく現れている。
- (4) 観察された最小のリテンション値( $^{64}\text{Cu}$ と $^{66}\text{Cu}$ についてそれぞれ0.22% および0.28%)より出現エネルギーを求めるとそれぞれ120eVと96eVという値になり, これは $\text{Cr}(\text{acac})_3$ でスカベンジャーを含むベンゼン溶液の室温のデータから $^{51}\text{Cr}$ について求められた16eVという値よりかなり大きい。この理由として, ①リガンドの大きさや構造の効果, ② $^{64}\text{Cu}$ と $^{66}\text{Cu}$ についての反跳エネルギースペクトルがまだ不正確なこと, などが考えられる。

まつうらたつお, ささきけんいち, しょうじひとし

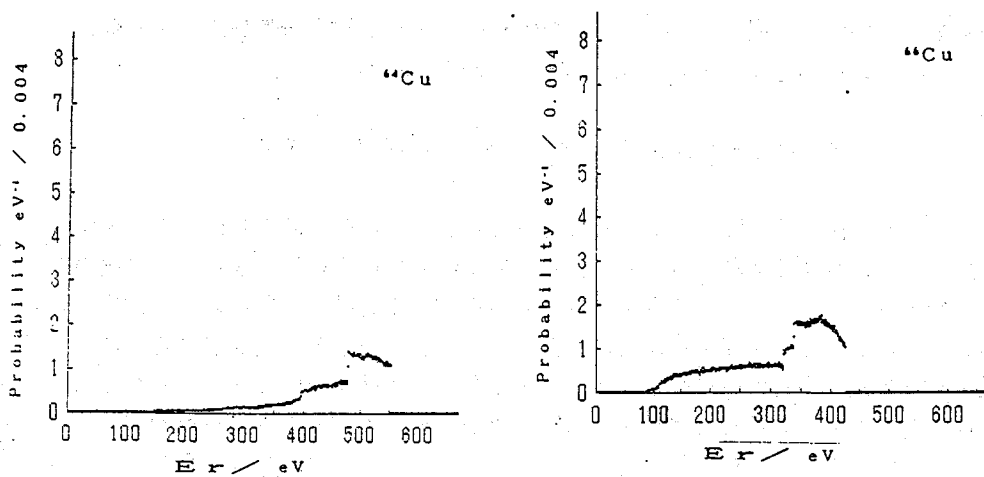


Fig. Computed Recoil Energy Spectra for  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{66}\text{Cu}$

Table. Retention Values of  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{66}\text{Cu}$  in Copper Phthalocyanine

Irrad. Phase	No. of Exp.	Crystal Form	Irrad. Temp.	Average Retention (%) <sup>a</sup>	Retention Ratio <sup>b</sup>	Aver. Value
				$^{64}\text{Cu}$	$^{66}\text{Cu}$	
SOLID	2	$\alpha$	RT	5.21	6.67	1.28
	2	$\alpha$	DT	6.22	7.89	1.27
	2	$\alpha$	NT	6.80	7.67	1.13
	2	$\beta$	RT	30.7	33.8	1.10
	2	$\beta$	DT	24.4	26.1	1.07
	2	$\beta$	NT	27.0	29.5	1.09
SOLUTION	4	$\alpha$	RT	0.38 <sub>6</sub>	0.46 <sub>5</sub>	1.20
	2	$\alpha$	DT	0.42 <sub>1</sub>	0.55 <sub>7</sub>	1.32
	2	$\alpha$	NT	0.36 <sub>9</sub>	0.50 <sub>5</sub>	1.37
	4	$\beta$	RT	0.30 <sub>2</sub>	0.35 <sub>9</sub>	1.19
	2	$\beta$	DT	0.37 <sub>1</sub>	0.44 <sub>4</sub>	1.21
	2	$\beta$	NT	0.44 <sub>6</sub>	0.50	1.15

<sup>a</sup> RT: room temperature, DT: dry ice temperature, NT: liquid nitrogen temperature

<sup>b</sup> Retention Ratio =  $^{66}\text{Cu}$  Retention /  $^{64}\text{Cu}$  Retention

ISOTOPE EFFECT OF RETENTION VALUE BETWEEN  $^{64}\text{Cu}$  AND  $^{66}\text{Cu}$  IN NEUTRON-IRRADIATED COPPER PHTHALOCYANINE

Institute for Atomic Energy, Rikkyo University, Tatsuo MATSUURA, Faculty of General Education, Rikkyo University, Ken'ichi SASAKI, Department of Chemistry, University of Tsukuba, Hitoshi SHOJI

## P-03 大気中の人工放射性核種濃度の経時変化(1974年から現在まで)

(名大理・愛知医大<sup>A</sup>) ○古川路明・小島貞男<sup>A</sup>・松田正幸

1. 大気圏内核兵器実験が初めておこなわれた1945年7月16日以来, 人工放射性核種の気圏内における移動については多くの調査研究が進められてきた. その結果として移動の機構についてかなりの知見が得られている. 地球規模の移動を知るには風向などを含む高層の大気の挙動に関する情報が必要であり, また地上への放射能の降下については問題になる時期の降雨の有無がもっとも重要である. 成層圏中に存在する放射能の平均滞留時間はおよそ1年であることが知られ, 対流圏からは10日以内に放射能が除去される. しかしなお明かでない部分が多いことを如実に示したのは1986年4月26日に起こったチェルノビル原子力発電所の事故であった. 環境放射能についてはなお一層の研究を必要としていると考えている. 我々は1974年以来種々の環境試料中の人工放射能に関する測定を続けているが, ここでは大気浮遊塵, 降雨および降下物中の $\gamma$ 線放射体の濃度の経時変化について報告する. その変化の追跡から放射性フォールアウトの大気圏内における挙動についていくつかの知見を得た.

2. 試料の採取は名古屋大学理学部A館屋上においておこない, 浮遊塵はガラス・ファイバーろ紙を用いてハイ・ボリューム・サンプラーで採取し, 採取した空気の体積は1500~4000 m<sup>3</sup>であった(1974-87). 降雨試料はステンレス鋼製の採取装置により通常50 l程度を採取した(1985-). 降下物試料は0.56 m<sup>2</sup>の面積のホーロー・バットを用いて15~20日毎に試料を交換した(1981-). 核種の同定・定量は $\gamma$ 線スペクトロメトリーによっておこない, 計数効率市販の標準溶液を利用して決定した.

3. 測定結果の解析によって得られた知見を以下に示す.

1. この期間に大気中に人工放射性核種を供給したのは中国による大気圏内核兵器実験とソ連原発事故である.

2. Fig. 1に示す結果から明かな通り, 一種の擬平衡が成立した後の成層圏における放射能の平均滞留時間は約1年であり, 従来の結果とよく一致している.

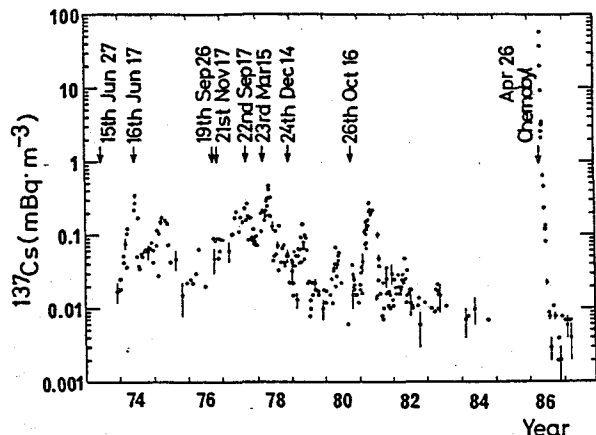


Fig. 1 Time Variation of  $^{137}\text{Cs}$  Concentrations in the Air.

ふるかわみちあき・こじまさだお・まつだまさゆき



3. ソ連原発事故によって大気中に放出された放射能による濃度の増加はこの測定が開始されて以来最大であり、1960年代を含めても $^{137}\text{Cs}$ のような長寿命核種の濃度は最大値を記録したと推定される。

4. 宇宙線生成核種として検出された $^7\text{Be}$ の濃度の時間変化は $^{137}\text{Cs}$ のそれとは異なる。この事実は後者が前者に比べてより高空から地上に降下するとして解釈できる。

5. 降下物試料中の放射能濃度の時間変化は浮遊塵のなかの濃度の変化と異なる挙動を示す。この事実に対する解釈は現在のところ明確ではない。

6. ソ連原発事故によって放出された放射能の大部分は一月以内に地上に降下したが、ごく一部は成層圏に残留し、現在もなお降下していると推測される。

7. 原発事故の際の放射能の放出に関する元素の分別作用については我々の測定結果とヨーロッパの各地で採取された試料の分析結果と比較検討し、その相連の理由について考察中である。もっとも重要なのは元素の揮発性の差であるが、時には化学形の問題がきわめて重要である。

これまでの測定結果は"Box Model"に従って解析した。その結果として得られた核兵器実験毎の放射能の降下速度の相連などについては討論会の当日に報告し、この様な測定の意義について議論する。

4. 今後の研究の方向として、特定の試料の中の多くの宇宙線生成核種の測定について考慮し、 $^7\text{Be}$ の他に $^{22}\text{Na}$ ,  $^{32,33}\text{P}$ ,  $^{35}\text{S}$ について予備的な測定を進めている。その結果を参考にしながら、人工放射性核種の大気中の濃度が減少すると予測される現在において、宇宙線生成核種と $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$ などのラドンの娘核種の測定の意義についても議論する予定である。

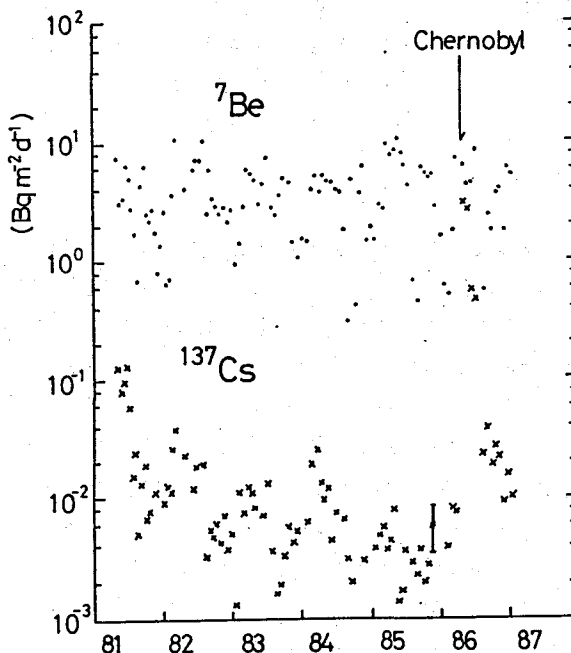


Fig. 2 Time Variations of  $^7\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  Deposition Rates.

TIME VARIATIONS OF ARTIFITIAL RADIONUCLIDES CONCENTRATIONS IN THE ATMOSPHERE (1974 TO THE PRESENT)

Faculty of Science, Nagoya University, Michiaki FURUKAWA, Masayuki MATSUDA  
Radioisotope Research Center, Aichi Medical University, Sadao KOJIMA

# P-04

## 加速器質量分析による $^{10}\text{Be}$ ・ $^{14}\text{C}$ ・ $^{26}\text{Al}$ の測定

(日大文理<sup>1</sup>、東大核研<sup>2</sup>、東大原セ<sup>3</sup>、東大理<sup>4</sup>、東大宇宙線研<sup>5</sup>、共立薬大<sup>6</sup>)  
 ○永井尚生<sup>1</sup>、今村峯雄<sup>2</sup>、小林絃一<sup>3</sup>、吉田邦夫<sup>4</sup>、大橋英雄<sup>5</sup>、吉川英樹<sup>6</sup>、  
 山下 博<sup>4</sup>、本田雅健<sup>1</sup>

極微量の放射性核種を放射能測定によらず、加速器を用いて質量分析により測定する(加速器質量分析, AMS)というアイデアが1977年に提唱されて以来、各地で測定法の開発が行なわれ、現在では、表1に示すような核種の測定が行なわれている。

我々は東京大学原子力総合センタータンデム加速器において1980年よりAMSの開発を開始し、1982-3年に $^{10}\text{Be}$ の測定に成功した。その後加速器本体の故障により一時中断した後、1985年より再開し $^{10}\text{Be}$ の他に新たに $^{14}\text{C}$ 、1986年に $^{26}\text{Al}$ の測定が可能となった。現在この3核種についてルーティン測定を行なっている。1988年度の測定試料数は $^{10}\text{Be}$ :120,  $^{14}\text{C}$ :90,  $^{26}\text{Al}$ :50である。ここでは現在のAMSシステム及び性能について報告すると共に、応用例についても報告する。

表1 AMS測定対象核種

核種	半減期(年)
$^{10}\text{Be}$	$1.5 \times 10^6$
$^{14}\text{C}$	$5.73 \times 10^3$
$^{26}\text{Al}$	$7.05 \times 10^5$
$^{36}\text{Cl}$	$3.01 \times 10^5$
( $^{41}\text{Ca}$ )	$1.0 \times 10^5$
$^{129}\text{I}$	$1.57 \times 10^7$

### [測定]

東大タンデム加速器におけるAMSシステムを図1に示す。Csスパッタ型負イオン源(HICONEX834)にセットした試料から負イオンを15-18 kVで引出し、70kVで加速管に入射する。端子電圧は実用的には3.8MV程度が最高である。イオンの荷電変換はArガスによって行なう。加速後の核種は磁場(ME/q<sup>2</sup>)と電場(E/q)により、目的核種の検出の妨害となるイオン(同重体以外)を減少させ、SSDにより検出する。同重体については、 $^{14}\text{C}$ はHavar foil(1.8mg/cm<sup>2</sup>)により $^{14}\text{N}$ と弁別し、 $^{10}\text{Be}$ は更に $\text{N}_2$ ガスアブソーバーを用いて $^{10}\text{B}$ と弁別する。表2に、測定に関係する負イオン種・電流・加速電圧・加速管の透過効

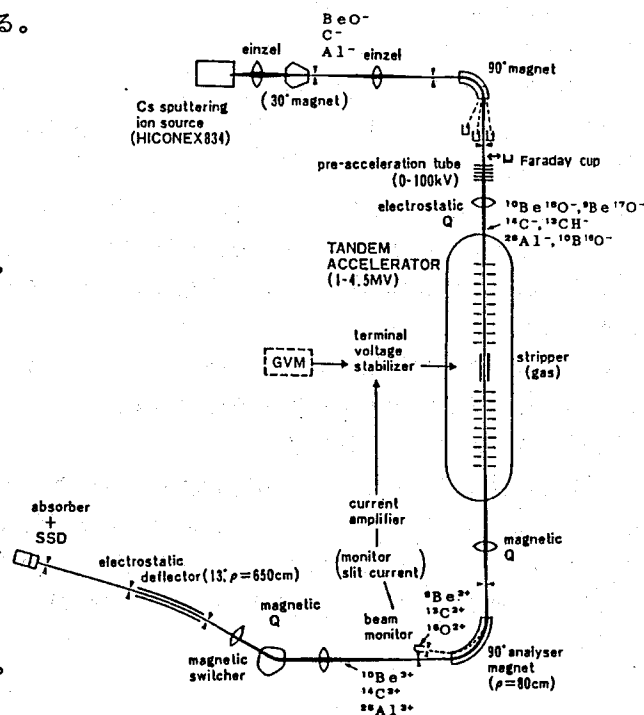


図1 東大タンデム加速器のAMSシステム

ながい ひさお、いまむら みねお、こばやし こういち、よしだ くにお、おおはし ひでお、  
 よしかわ ひでき、やました ひろし、ほんだ まさたけ

率・正イオン種を示す。我々のAMSシステムは他のシステム(目的核種と安定同位体を交互に加速・測定する)と異なり、目的核種の負イオンと同じ質量の分子イオンを同時に加速し、2種類の正イオン( $^{10}\text{Be}$ では $^{10}\text{Be}^{3+}$ と $^9\text{Be}^{3+}$ [表2])を同時に測定し、この比と負イオン電流の比( $^{10}\text{Be}$ の場合 $I_{25}$ と $I_{26}$ [表2])から目的核種と安定核種の比を求めている。この方式のため

表2 測定に関係するイオン種

核種	負イオン (電流, nA)	加速電圧 透過効率	正イオン
$^{10}\text{Be}$	$(^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-)$ $^9\text{Be}^{17}\text{O}^- + ^9\text{Be}^{16}\text{OH}^-$ ] $I_{26}=1-10$	3.5 MV 1 %	$^{10}\text{Be}^{3+}$ $^9\text{Be}^{3+}$
	$^9\text{Be}^{16}\text{O}^-$ ] $I_{25}=50-300$		
$^{14}\text{C}$	$(^{14}\text{C}^-)$ $^{13}\text{CH}^-$ ] $I_{14}=0.1-10$	3.0 MV 10 %	$^{14}\text{C}^{3+}$ $^{13}\text{C}^{3+}$
	$^{13}\text{C}^- + ^{12}\text{CH}^-$ ] $I_{13}=20-500$		
	$^{12}\text{C}^-$ ] $I_{12}=500-10000$		
$^{26}\text{Al}$	$(^{26}\text{Al}^-)$ $^{10}\text{B}^{16}\text{O}^-$ ] $I_{26}=10-30$	2.5 MV 10 %	$^{26}\text{Al}^{3+}$ $^{16}\text{O}^{2+}$
	$^{27}\text{Al}^- + ^{11}\text{B}^{16}\text{O}^-$ ] $I_{27}=10-30$		

めに、イオン源の変動や加速管透過率の変動等の影響を受けずに高精度の測定が可能である。表3に東大タンデム加速器におけるAMSシステムの現状を示すが測定精度(再現性)は、トップレベルにあるが、検出感度は世界的レベルと比較して $^{10}\text{Be}$ ・ $^{26}\text{Al}$ は10-100倍程劣っているが、その理由は主としてイオン源の性能の差による。

表3 東大タンデム加速器のAMSの現状

核種	化学形	試料量	感度**	再現性
$^{10}\text{Be}$	BeO	0.1-0.5 mg	$3 \times 10^{-14}$	2-3 %
$^{14}\text{C}$	C	1 ~ 5	$3 \times 10^{-16}$	1-2
$^{26}\text{Al}$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	0.2 ~ 2	$1 \times 10^{-13}$	2-4

\* 安定核種の重量

\*\* バックグラウンドレベル(安定核種に対する比)

[応用]

現在(1)-(7)のテーマについて測定を行なっているが、本討論会に未報告のテーマを中心にして応用例の報告を行なう予定である。

- (1) 中性子・高エネルギー光子による $^{10}\text{Be}$ ・ $^{14}\text{C}$ ・ $^{26}\text{Al}$ 生成核反応断面積測定
- (2) 隕石中の $^{10}\text{Be}$ ・ $^{26}\text{Al}$ 測定(深度分布、核種生成のシステムティクス)
- (3) 雨水中の $^{10}\text{Be}$ 測定(大気中の $^{10}\text{Be}$ 生成速度)
- (4) 熔岩中の $^{10}\text{Be}$ 測定(プレートの沈み込み-島弧火山のマグマ発生機構)
- (5) 考古学試料(古人骨、木片等)・文化財(鉄器等)の $^{14}\text{C}$ 年代測定
- (6) 火山ガスの $^{14}\text{C}$ 測定
- (7) 有孔虫の $^{14}\text{C}$ 測定(堆積物の年代測定)

MEASUREMENTS OF  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$  AND  $^{26}\text{Al}$  BY ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY

College of Humanities and Sciences, Nihon Univ., Hisao NAGAI and Masatake HONDA  
 Institute for Nuclear Study, Univ. of Tokyo, Mineo IMAMURA  
 Res. Center for Nuclear Science and Technology, Univ. of Tokyo, Koichi KOBAYASHI  
 Faculty of Science, Univ. of Tokyo, Kunio YOSHIDA and Hiroshi YAMASHITA  
 Institute for Cosmic Ray Research, Univ. of Tokyo, Hideo OHASHI  
 Kyoritsu College of Pharmacy, Hideki YOSHIKAWA

(理 研) の 荒谷美智, 矢野倉 実, 南 正樹  
(東芝総研) 斎藤和男

### はじめに

一般に薄膜が関与する基礎研究において、単に基板物質上に薄膜が積層されているという最も単純な場合でも、実際には多層膜系を取扱っていることになる場合が多い。それは基板物質表面の予期しない不純物や介在物が結局は界面の不純物となり、薄膜積層中には仮に問題がないうとしても、積層後、あらたな表面吸着や不純物付着により何らかの表面層が形成されるためである。また、近年、種々のセンサーをはじめとして、オーミック接触面、ショットキーバリアダイオード等の電子デバイスで重元素を含む数層の多層膜系が多く用いられるようになり、その非破壊評価法へのニーズが高まっている。われわれは、これまで理研重イオン線型加速器からの重イオンビームを用いて、前方反跳粒子、前方散乱粒子、後方散乱粒子に着目する分光法を展開してきたが、上記のようを、より複雑な系への適用を目指した全方位ラザフォード散乱分光法を確立しようとしている。上記のようを、意図しない不純物層も含めた、二、三の試料について報告する。

### 原理および方法

重イオンを用いる方法の決定的な利点は、弾性反跳イオンの生成が容易であり、従って前方反跳法が主体となることである。われわれの意図しない不純物物質は、軽元素から構成される物質が多いから、これらに対しては前方反跳法が好適である。今、多層膜系が、単体より成るものとして  $M_2$  とする。入射イオンを  $M_1$  とすると、

$$K(\theta) = \frac{E_2}{E_0} = \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_2)^2} \cos^2\theta$$

= ここで  $\theta$  は、ビームに対する

検出器の角度、 $E_0$  は  $M_1$  の入射エネルギー、 $E_2$  は反跳粒子のエネルギー、 $M_1$  と  $M_2$  が  $M_2 < M_1$  とし、入射粒子と検出角を決めると、 $K(\theta)$  は  $M_2$  だけの関数になる。  $dK(\theta)/dM_2 = 0$  より、 $M_2 = M_1$  までは単調増大であるが、平均勾配は  $\cos^2\theta/M_2$  となる。  $dK(\theta)/dM_2$  は反跳イオンの  $M_2$  依存性を示すものであることから、  $dK(\theta)/dM_2 = \cos^2\theta/M_2$  から  $M_2$  を求めるとこのような  $M_2$  に対しては質量分解能とエネルギー分解能が最適となる。そこでこれより小さい質量に対して最善の条件をあたえることがわかる。すなわち  $M_2/M_1 \leq 0.375$  である。今不純物原子として、炭素、窒素、酸素を考えると、 $M_1$  として 32~43 のものが最適と考えられる。これを満たすものは、われわれのイオン源ではアルゴンイオンとなる。  $\theta$  を決めた場合  $M_2$  が 40 に近くなると  $M_2$  依存性が低下するので、より前方での測定がのぞましいが、試料中でのビームの行路は長くなる。  $M_2 > 40$  に対しては、反跳粒子ではなく、散乱粒子に着目して観測を行う。散乱アルゴンの場合、アルゴンより軽い核によるものも、検出角によっては考慮に入れなければならぬ。  $M_2/40 < \sin^2\psi$  で決まる角より前方に検出器を置く場合には、検出器の直前に吸収板を入れて散乱粒子を除去する。

あらたにみち、やのくらみのる、みちみまき  
さいとうかずお

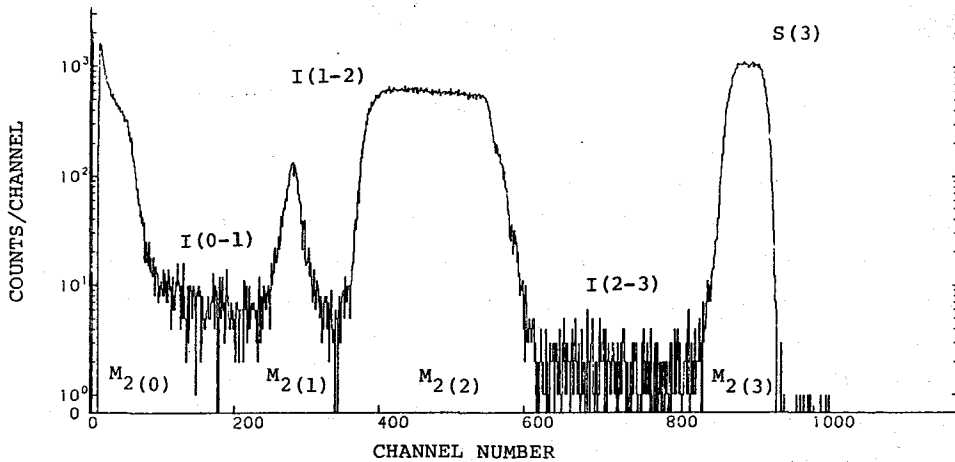


図1 基板物質上の三層の多層膜系に対する散乱-反跳スペクトル

**結果と考察**

核子あたり 1.25 MeV の  $Ar^{4+}$  イオンを入射粒子として、検出角  $57^\circ$  で観測した基板物質 ( $M_2(0)$ ) 上の三層の多層膜系 ( $M_2(1)/M_2(2)/M_2(3)$ ) に対する散乱-反跳スペクトルの典型的な一例を図1に示した。0, 1, 2, 3 はそれぞれ基板, 層1, 層2, 層3を示している。厚さは 30 nm / 400 nm / 100 nm である。界面はそれぞれ I(0-1), I(1-2), I(2-3), 表面は S(3) である。この多層膜系は 1, 2, 3 の順に積層したまの試料であり、特別な加熱処理はしていない一種の標準試料であるが、順次積層して過程での熱の影響を受けている。表面 S(3) と界面 I(1-2) の  $M_2$  側が切り立っていることは、その物質移動を意味する。とくに界面(1-2)では微量の  $M_2(1)$  が大量にある  $M_2(2)$  中へ移行していることはあっても、その逆は起っていない。その他の界面ではいずれも、相互に移行が認められ、試料積層過程で受ける熱による拡散が一種のバックグラウンドとして評価される。このような基本的な試料に特定の加熱処理がほどこされ、それらの加熱試料について散乱-反跳スペクトルを測定し、深さ分布の変化と種々の物理的性質の対応関係を調べ、また、二つの他方法による評価も行なった。

検出される粒子の試料内での深さについては、反跳粒子に着目した観測では

$$\alpha = \frac{K(\theta) E_0 - E_{ob}}{\frac{K(\theta)(dE/dX)_1}{\sin \theta_t} + \frac{(dE/dX)_2}{\sin(\theta - \theta_t)}} \quad \text{となる。} \quad \text{ここで } E_{ob}$$

は散乱-反跳スペクトルで、特定のピークについてこの任意のエネルギー値、 $(dE/dX)_1$ ,  $(dE/dX)_2$  はそれぞれ入射(散乱)粒子, 反跳粒子の試料中での阻止能である。散乱粒子に着目した観測では  $(dE/dX)_2 = (dE/dX)_1$ ,  $K(\theta)$  は散乱の運動学因子を用いる。

HEAVY-ION SCATTERING SPECTROSCOPY USING RILAC APPLIED TO CHARACTERIZATION OF MULTI-LAYERED FILMS CONTAINING HEAVY ELEMENTS.

Radiochemistry Laboratory, RIKEN, Michi ARATANI, Minoru YANOKURA, Masaki MINAMI  
Research & Development Center, Toshiba Corporation, Kazuo SAITO

(広島大工) ○田中慎二、坂本浩基、広川健、西山文隆、木曾義之

1. PIXE法では通常X線発生断面積の大きいプロトンビームを照射して実験が行なわれるが、プロトンの透過力は比較的大きく例えば2 MeVで入射したプロトンは、Tb金属では試料表面から18  $\mu\text{m}$ 程度で1 MeVまで減衰する。一方ヘリウムイオンビームもPIXE分析に使用できるが、Stopping cross sectionが大きいいため同じ2 MeVで入射した場合、2.5  $\mu\text{m}$ 程度で1 MeVに減衰する。このような特徴を利用すると薄膜試料の深さ方向の元素分布についてある程度の知見が得られ、RBS法と併用することによってより精度の高い組成分析が可能になる。またHeイオンを使用した場合、制動輻射によるバックグラウンドが低いという利点もある。

本講演では光磁気記録媒体としての基礎的知見を得るために作成されたTb-Fe (Co) 薄膜を $\text{H}^+$ -PIXE法および $\text{He}^+$ -PIXE法で分析した結果について報告する。

2. スライドガラスを基板とした薄膜試料を2 MeVで加速した $\text{He}^+$ および $\text{H}^+$ ビームで照射し、PIXEスペクトルを測定した。試料は本工学部磁気工学研究室で高周波スパッタ装置 (ULVAC-1104ES) を使用して作成された。測定にはVan de Graaff型加速器 (日新ハイボルテージ製AN-2500型) および周辺装置を使用した。またスペクトル解析には演者らの解析プログラムPIXISを使用した。<sup>1)</sup> 解析に使用したHe照射時の特性X線相対強度データベースは演者らが別途作成したものである。

3. 図-1はTb-Fe薄膜について測定したPIXEスペクトルの例である。これらの試料の厚さはRBS法によると0.11  $\mu\text{m}$ および1.09  $\mu\text{m}$ であった。

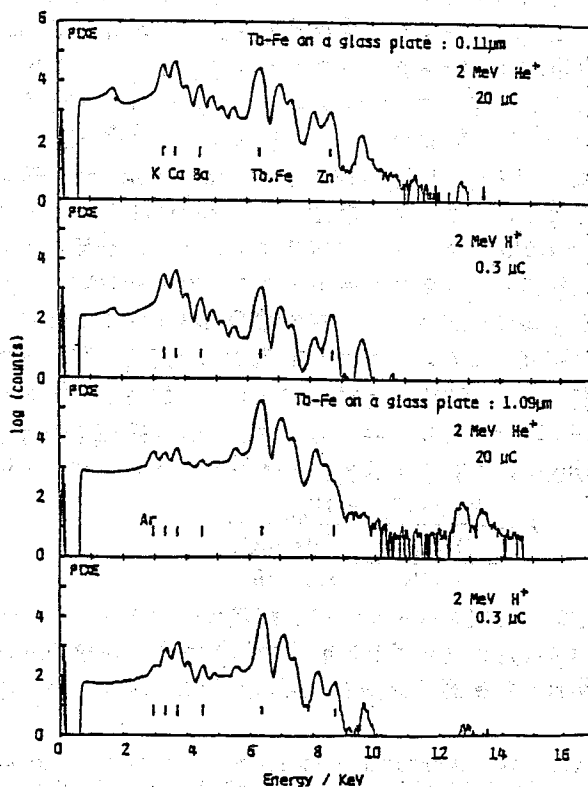


図-1

たなかしんじ、さかもとひろき、ひろかわたけし、にしやまふみたか、きそよしゆき

これらの薄膜のスペクトルの強度変化よりZn、Ba、CaおよびKが基板に含まれている事、雰囲気ガスであるArが薄膜に取り込まれている事などがわかる。なおこれらのうちZnやBaについては明瞭なピークが測定されているにも関わらず、RBS法では薄膜のスペクトルに重なっており確認が困難であった(講演3B09)。

一般にPIXE法による厚い試料の定量分析では、X線の自己吸収およびビームエネルギーの低下に伴うX線発生断面積の低下に対する補正を行なう必要がある。しかし本試料の場合、主ピークであるTbの $L\alpha_1$ 遷移(6.275KeV)とFeの $K\alpha_1$ 遷移(6.403KeV)は接近しているため自己吸収効果の影響はほぼ同じであり、またX線発生断面積の低下は実測によればほぼ同じであったので、両者のピークカウントを用いれば特に補正の必要はないと考えられる。表-1にTb-Fe、Tb-Co薄膜の分析結果を示した。H<sup>+</sup>-PIXE法とHe<sup>+</sup>-PIXE法の結果は実験誤差(約10%)内で一致した。なおこれらの結果はRBS分析の結果とも良く一致していた。なお基板の組成についてはThick targetとしての取扱が必要で、今後検討する予定である。

表-1 Tbを1とした場合のFe、Coの組成(PIXE法)と薄膜の厚さ(RBS法)

	H <sup>+</sup> -PIXE	He <sup>+</sup> -PIXE	厚さ(μm)
1) Tb-Fe	1:2.9	1:2.8	0.11
2) Tb-Fe	1:4.6	1:4.0	1.09
3) Tb-Fe	1:1.5	1:1.5	1.20
4) Tb-Co	1:2.9	1:3.1	0.09
5) Tb-Co	1:5.4	1:6.1	0.21
6) Tb-Co	1:5.1	1:5.7	0.24

謝辞) 試料を御提供いただいた広島大学工学部磁気工学研究室の皆様へ感謝します。

#### 文献

- 1) T.Hirokawa, F.Nishiyama, and Y.Kiso, Nucl. Instr. and Meth. B31(1988)525.

#### PIXE ANALYSIS OF Tb-Fe FILM MADE BY RF SPATTERING

Faculty of Engineering, Hiroshima University, Shinji TANAKA, Hiroki SAKAMOTO,  
Fumitaka NISHIYAMA, Yōshiyuki KISO

