



Title	重水素含有物質における重陽子の阻止能
Author(s)	水野, 忠彦; Mizuno, Tadahiko; 諸住, 高 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 93, 23-34
Issue Date	1979-01-31
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/41553">https://hdl.handle.net/2115/41553</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	93_23-34.pdf



## 重水素含有物質における重陽子の阻止能

水野忠彦\* 諸住 高\*

(昭和 53 年 9 月 29 日受理)

### Stopping Power for Deuteron in Deuterium-containing Materials

Tadahiko MIZUNO and Takashi MOROZUMI

(Received September 29, 1978)

#### Abstract

The stopping power and the range of 10 to 100 keV deuterons were determined in the deuterium-containing substances, such as  $\text{TiD}_2$ ,  $\text{ZrD}_2$ ,  $\text{PdD}$  and  $\text{D}_2\text{O}$ . The evolution rate of neutron due to deuteron irradiation was measured as a function of the energy of the incident deuteron  $E_0$ , and the relation between them was analyzed to determine the atomic stopping cross-section  $S_i$  of the concerned atomic species by using the well-defined value of the reaction cross-section of the  $(d, n)$  reaction. The relationship between  $S_i$  and  $E_0$  for each atomic species was given generally by the equation  $S_i = kE_0^p$ , in which  $k$  was in a range from 1.20 for deuterium to 6.80 for palladium atom, and  $p$  from 0.3 to 0.4.  $S_i$  was approximately proportional to square root of the atomic number of the target atom for constant deuteron energy.

The range  $R$  was obtained by the integration of the observed inverse stopping power,

$$-\int_{E_0}^0 (dx/dE)dE$$

The estimation of the local distribution of neutron evolution by using the above experimental data indicated that the main contribution to total neutron evolution was limited within a relatively small depth-range, namely approximately 40% of the deuteron range.

#### 1. 緒 言

10 ないし 100 keV 領域の陽イオン線にたいする物質の阻止能は、放射線損傷、イオンインジェクション、その他荷電粒子線にかかわる基礎データとして重要である。しかしこの領域は理論的にもまた実験的にも取扱いが困難であり、上下のエネルギー領域ほどにはよく解明されていない。たとえば Lindhard<sup>1)</sup>は Thomas-Fermi のポテンシャル障壁モデルを使って低エネルギーイオン粒子の散乱理論を導いており、また Schiøtt<sup>2)</sup>はこの理論によって飛程の評価を行っている。また森田ら<sup>3)</sup>は薄膜法によって銅、アルミニウム、金等の陽子、重陽子の飛程を求め、理論値との比較を試みている。問題のエネルギー領域は高エネルギー粒子と、低エネルギー粒子のいずれの延長とみることもできず、上の理論予測も精度が悪い。そのために極めて精緻な工夫をこらした実験によりデータを得る試みもいくつかなされている<sup>3)-10)</sup>。その一方法として Chu と Freedman<sup>11)</sup>による  $(d, n)$  反応を利用した重陽子の飛程測定例がある。

\* 原子工学科, 原子炉材料学講座

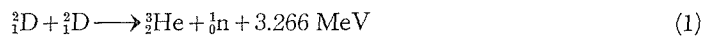
本研究は Chu らとは違った原理による  $(d, n)$  反応を使った重陽子の飛程測定法の開発を試みたものである。これによって著者らが先に開発した金属中の重水素分析法の基礎となる微分阻止能のエネルギー依存性のデータを得ることを目的としている。重水素を含有する物質に測定対象が限定されるが、 $\text{TiD}_2$ ,  $\text{ZrD}_2$ ,  $\text{PdD}$ ,  $\text{D}_2\text{O}$  氷などに応用して得た実験結果によってその有用性を実証することを意図している。また得られた測定結果を基にして、 $(d, n)$  反応法による材料中の重水素分析法にたいする基礎的問題について考察した。

## 2. 測定原理

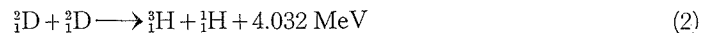
前述のように  $(d, n)$  反応を利用した飛程測定法として Chu らによるものがある。その方法は重水素を含む基質の上に金、アルミニウムの薄膜を蒸着し、重陽子を照射して中性子発生数を測定し重陽子の透過性を測るという原理によっている。

著者らの方法は重水素を含有する物質そのものの中における重陽子の透過性を測定するものであり、重水素の阻止能は基質のそれにくらべて比較的小さいので、それを補正して基質の阻止能を容易に求めることができる。この方法の原理を要約すると次のようになる。

重水素を含有する物質に  $E_0$  というエネルギーを持つ重陽子を打ち込むと、物質内の重水素原子核と



という中性子を発生する反応 ( $d, n$  反応) と、



という陽子を発生する反応 ( $d, p$  反応) が起こる。そのうち、前者の反応による中性子を、打ち込んだ重陽子のエネルギー  $E_0$  の関数として計数し、解析することによって阻止能とエネルギーの関係を求めることができる。

重陽子が物質内を通過するとき、物質内の電子と原子核の双方とが Coulomb 的衝突を行い徐々にエネルギーを失い、速度を減じ、最後にはほぼ一定の深さ (飛程  $R$ ) において停止する。Monte-Carlo 計算によれば散乱による重陽子線の拡がりは  $5\sim 6^\circ$  程度であり事実上直進するとみなせる。重陽子エネルギーの減少とともに (1) の反応が起こる確率、すなわち反応断面積  $\sigma$  が逐次減少する。飛程  $R$  にいたるまで重陽子線の線束  $I$  はほとんど変化しないが、 $\sigma$  の減少によって物質中の重水素濃度  $C$  が深さによらず一定とすると、物質表面からの中性子発生が最も大きく内部に入るほど小さくなる。

簡単のため重陽子線が物質表面にたいし垂直に打ち込まれる場合を仮定した重陽子の飛行方向に一次元の取扱いをして定量化すると次のようになる。

深さ  $x$  の位置に  $dx$  の幅の層を考えると、その単位面積の体積素片からの中性子発生数  $dN$  は、

$$dN = \sigma(E) \cdot C(x) \cdot I \cdot dx \quad (3)$$

となる。ここで  $C(x)$  は重水素濃度 [ $\text{cm}^{-3}$ ],  $I$  は重陽子線束 [ $\text{cm}^{-2}$ ] である。物質の単位面積から発生する中性子数は (3) 式を  $x=0$  から  $x=R$  まで積分したものとなる。

$$N_t = \int_{x=0}^{x=R} dN = \int_0^R \sigma \cdot C \cdot I \cdot dx \quad (4)$$

物質内の重水素濃度一定の場合は

$$N_t = C \cdot I \int_0^R \sigma \cdot dx \quad (5)$$

となる。深さ  $x$  のかわりに、残余飛程 (residual range  $X=R-x$ ), すなわち、入射粒子の停止位置  $x=R$  から遡った距離  $R-x$  を用いれば、(5) 式は

$$N_i = C \cdot I \int_R^0 \sigma \cdot dX \quad (6)$$

となる。

入射エネルギーが  $E_0$  から  $E_0+dE_0$  に増大した場合、 $R$  は  $R+dR$  に増すが、 $N_i$  の増分  $dN_i$  は、残余飛程  $R$  から  $R+dR$  の付加によるものと考えればよいので

$$\begin{aligned} dN_i &= C \cdot I \cdot \sigma(E_0) \cdot dR \\ &= C \cdot I \cdot \sigma(E_0) \cdot (dR/dE_0) dE_0 \end{aligned} \quad (7)$$

となる。この式のなかの  $dE_0/dR$  は微分阻止能 ( $dE/dx$ ) に負号をつけたものと同じ意味を持っている。したがって

$$\left(\frac{dE}{dx}\right) = -\left(\frac{dE_0}{dR}\right) = \frac{-C \cdot I \cdot \sigma(E_0)}{dN_i/dE_0} \quad (8)$$

となる。すなわち、重水素を含む試料をターゲットとして種々のエネルギー  $E_0$  の重陽子で照射し、中性子発生数  $N_i$  を計りその関係を解析すれば阻止能  $-dE/dx$  を求めることができる。

### 3. 実験方法

#### 3.1 照射実験と中性子測定法

Pd を除く金属板試験片の場合は  $3\text{ cm}\phi$  の円板状にして 3.2 に示すような方法で電気化学的に重水素を吸収させてから Cockcroft-Walton 型加速器で重陽子照射を行った。測定装置は Fig. 1 に示すとおりである。重水素の場合は液体窒素デュワーの先端にとりつけた銅板上に結氷させたものを上記の加速器のターゲット部にとりつけた。照射に使用した重陽子の加速エネルギーは  $10\sim 100\text{ keV}$  の範囲で変化させ、線束は  $10\sim 30\ \mu\text{A}/\text{cm}^2$  とし測定中は一定値を保った。

ターゲットから発生した中性子は  $10\text{ cm}$  の厚さのパラフィンを通して熱中性子化し、 $\text{BF}_3$  デテクターによって計数した。入射重陽子の蓄積による測定誤差を避けるために加速電圧は  $100\text{ keV}$  から始めて  $10\text{ keV}$  ずつ下げ、各加速電圧の測定時間は約  $1\text{ min}$  とした。

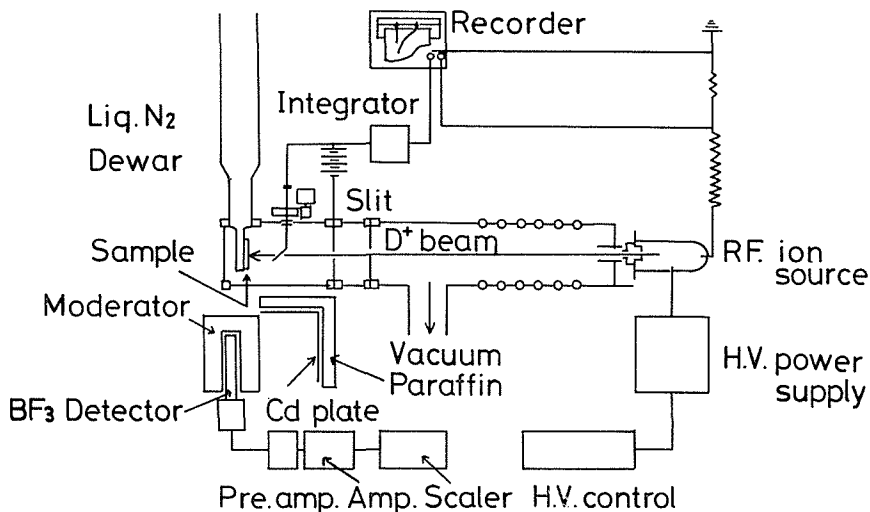


Fig. 1 Layout of the measuring system of  $(d, n)$  reaction.

空間配置と計数効率の同時校正のため加速器のターゲット位置に 5 mCi Ra-Be の中性子源において BF<sub>3</sub> デテクターの計数値と中性子発生数の関係を求めた。また重水素を含まない金属片をターゲット部において測定を行い、ターゲット以外の加速器各部において発生する中性子バックグラウンドを求め、補正した。

### 3.2 試料

各試料の調整は次に示す方法によった。

a) TiD<sub>2</sub> 試料：純度 99.6 w/o, 厚さ 0.5 mm の純チタン板を直径 3 cm の円板に切り出し、まず無水酢酸—過塩素酸浴中で電解研磨したのち、フッ化水素酸—硝酸浴中で 30 秒間エッチング処理して表面酸化物を除去した。純水で洗浄、乾燥してから 30°C の 15 w/o, DCl-D<sub>2</sub>O 溶液中で 100 mA/cm<sup>2</sup> のカソード電流で 20hr 電解し重水素化物層を形成させた。

b) TiD<sub>0.415</sub> 試料：カソード処理によって重水素を吸収したチタン円板を 10<sup>-6</sup> mmHg の真空中で 850°C 1hr. 処理して脱ガスし、次いで徐冷して重水素の再吸収を行なわせた。この方法によって吸収させた試片の組成は真空加熱抽気法による測定によって TiD<sub>0.415</sub> に相当することを確かめた。

c) ZrD<sub>2</sub> 試料：純度 99.8 w/o の原子炉級ジルコニウム板を 3 cmφ の円板状に切り出し、水酢酸—過塩素酸混合浴中で電解研磨し、さらにフッ化水素酸—過酸化水素混合液中に浸漬して表面酸化物を除去した。30°C の 5.8 w/o NaOD-D<sub>2</sub>O 溶液中で 10 mA/cm<sup>2</sup> のカソード電流で 12hr 電解し、重水素化物層を形成させた。ZrD<sub>2</sub> 試料の場合にはカソード処理した状態では水素化物の表面部分の水素濃度が量論組成を越えて多くなる傾向がある<sup>12)</sup>。そこで上述の測定に先立ち加速器のターゲット部に試料を装着した状態で数時間、10<sup>-5</sup> mmHg の真空中に放置しておきこの過剰部分を除去した。

d) Pd-重水素試料：純度 99.9%, 厚さ 1 mm のパラジウム板を 2×2.5 cm の長方形に切り、アセトン及びトリクロロエチレン中で超音波洗浄してから 1N・D<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 中で 100 mA/cm<sup>2</sup> のカソード電流で 12hr 電解処理した。

e) 重水氷：液体窒素により冷却した銅板に直接重水を塗付して氷結させた多結晶の氷を使用した。測定の直前まで冷却したまま 10<sup>-5</sup> mmHg の真空中に保存した。

走査電子顕微鏡観察により重水素化物厚さを決定し、真空加熱抽気法による重水素化物中の重水素量の測定によって上記の処理をした試験片中の重水素化物層の組成がそれぞれ TiD<sub>2</sub>, ZrD<sub>2</sub> に相当することを確かめた。また Pd 中の重水素量も真空抽気法により定量し、全試片に均一に分布するとして PdD の組成に相当することを確かめた。

## 4. 実験結果と考察

### 4.1 重陽子エネルギーによる中性子発生数の変化と微分阻止能

Fig. 2 は各試料の  $N_i/i$  たい  $E_0$  の関係の実測結果を示している。ただし  $i$  は電流 [ $\mu$ A] で示した重陽子線束であり (6) 式中のイオン数で示した線束  $I$  との関係は

$$I = ik, \quad k = 3.745 \times 10^{14}$$

となる。 $E^{-1/2}$  を横軸、 $N_i/i$  の対数を縦軸にとって、いわゆる Gamow プロットによって表わされている。いずれも良い直線関係となり

$$\frac{N_i}{i} = a \exp(-bE_0^{-1/2}) \quad : [n/\text{min} \cdot \mu\text{A}] \quad (9)$$

が成立する。この式の中の  $a$  と  $b$  はそれぞれの試料についての定数であり、それらの値は各試

料の重水素濃度  $C$  の値とともに Table 1 に示してある。

(9) 式を微分し (7) 式の関係を導入すると、微分阻止能

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{dE}{dX} = \frac{dE_0}{dR}$$

が重陽子エネルギーの関数として求められる。すなわち

$$\frac{dN_t}{dE_0} = C \cdot i \cdot k \cdot \sigma \left( \frac{dR}{dE_0} \right)$$

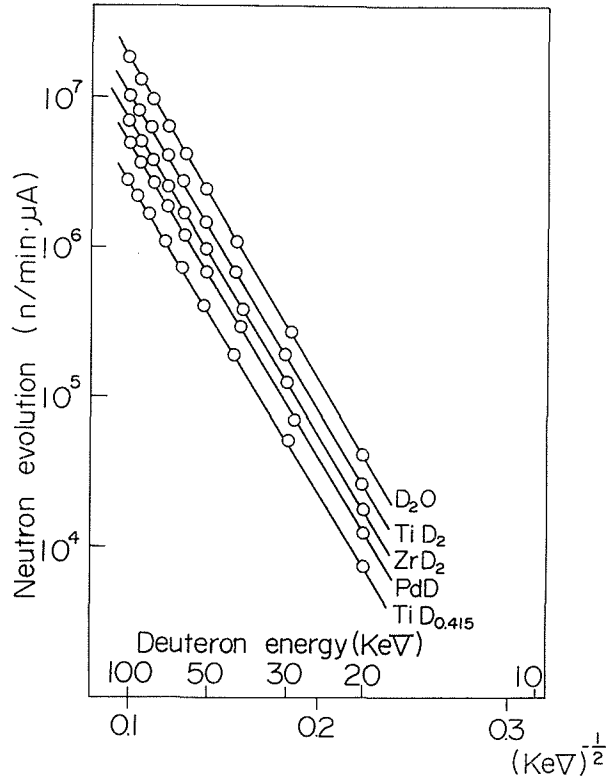


Fig. 2 Gamow plot for relationship between neutron evolution and deuteron energy

Table 1. Values of constants  $a$  and  $b$  given in eq. (9) for specimens used.

Specimen	Deuteron concentration	Constant in eq.9	
		a	b
TiD <sub>2</sub>	9.14 × 10 <sup>22</sup> (cm <sup>3</sup> )	1.19 × 10 <sup>9</sup>	47.9
TiD <sub>0.415</sub>	2.25 × 10 <sup>22</sup>	3.22 × 10 <sup>8</sup>	47.9
ZrD <sub>2</sub>	7.24 × 10 <sup>22</sup>	8.64 × 10 <sup>8</sup>	48.2
PdD	6.58 × 10 <sup>22</sup>	5.82 × 10 <sup>8</sup>	47.9
D <sub>2</sub> O	6.00 × 10 <sup>22</sup>	2.25 × 10 <sup>9</sup>	48.7

$$= \frac{a \cdot b \cdot i}{2E_0^{3/2}} \exp(-bE_0^{-1/2}) \quad (10)$$

であるから

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{2 \cdot C \cdot k \cdot \sigma \cdot E_0^{3/2}}{a \cdot b} \exp(bE_0^{-1/2}) \quad (11)$$

となる。

(*d, n*) 反応の断面積  $\sigma$  については多くの研究者によって信頼すべき実測値が提出されている。Fig. 3 はそれらを  $\log \sigma \cdot E_0$  たい  $E_0^{-1/2}$  の関係にまとめて示したものである。注目のエネルギー領域において直線関係が成立し、

$$\sigma(E_0) = (1.56 \times 10^2 / E_0) \exp(-46.32 E_0^{-1/2}) \times 10^{-24} \quad [\text{cm}^2] \quad (12)$$

によって表わされる。この式の中の  $10^{-24}$  は [barn] を  $[\text{cm}^2]$  の単位に換算する係数である。

(11) と (12) 式から

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{1.168 \times 10^{-7} C \cdot E_0^{1/2}}{a \cdot b} \exp\{(-46.32 + b) E_0^{-1/2}\} \quad [\text{keV/cm}] \quad (13)$$

が得られる。

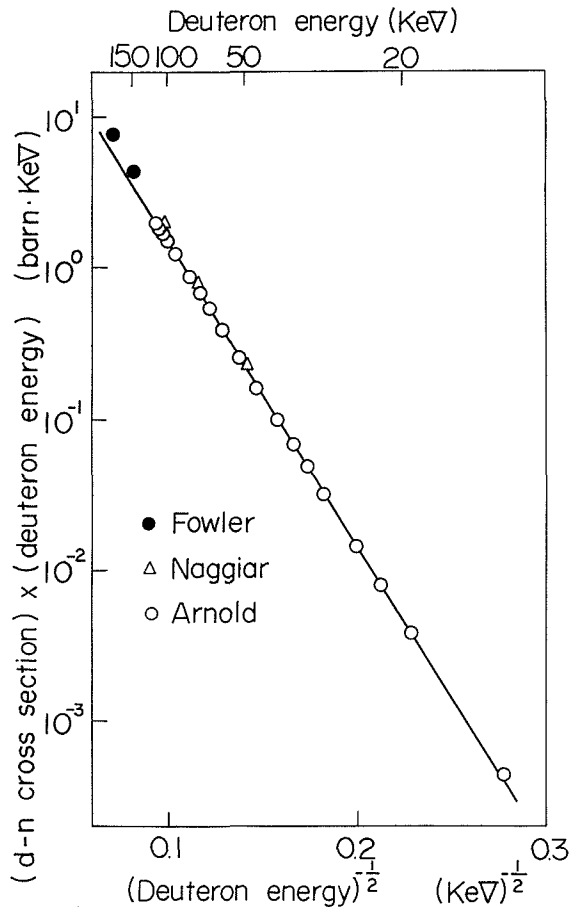


Fig. 3 Gamow plot for relationship between (*d, n*) reaction cross-section and deuteron energy.

Table 1 のなかの  $a$ ,  $b$ ,  $C$  値を代入すれば, (13) 式は各試料についてそれぞれ次のようになる。

$$\text{TiD}_2: -\frac{dE}{dx} = 1.87 \times 10^5 E_0^{1/2} \exp(1.58E_0^{-1/2}) : [\text{keV/cm}] \quad (14)$$

$$\text{TiD}_{0.415}: -\frac{dE}{dx} = 1.70 \times 10^5 E_0^{1/2} \exp(1.58E_0^{-1/2}) \quad (15)$$

$$\text{ZrD}_2: -\frac{dE}{dx} = 2.03 \times 10^5 E_0^{1/2} \exp(1.76E_0^{-1/2}) \quad (16)$$

$$\text{PdD}: -\frac{dE}{dx} = 2.76 \times 10^5 E_0^{1/2} \exp(1.62E_0^{-1/2}) \quad (17)$$

$$\text{D}_2\text{O}: -\frac{dE}{dx} = 6.37 \times 10^4 E_0^{1/2} \exp(2.38E_0^{-1/2}) \quad (18)$$

上の各式は物質中に打込まれた重陽子がエネルギーを減衰する途中の状態にも適用できるので,  $E_0$  のかわりに  $E$  においても成立する。

重水素の結合相手となっている Ti, Zr, Pd, 又は O, 1 個あたりの阻止能, 言い換えれば, 分子阻止能  $S_t$  に換算すると

$$\text{TiD}_2: S_t = \frac{2}{C} \times \frac{-dE}{dx} = 4.10 \times 10^{-15} E^{1/2} (1.58E^{-1/2}) \quad (14')$$

$$\text{TiD}_{0.415}: S_t = \frac{0.415}{C} \left( -\frac{dE}{dx} \right) = 3.14 \times 10^{-15} E^{1/2} (1.58E^{-1/2}) \quad (15')$$

$$\text{ZrD}_2: S_t = \frac{2}{C} \left( -\frac{dE}{dx} \right) = 5.61 \times 10^{-15} E^{1/2} \exp(1.76E^{-1/2}) \quad (16')$$

$$\text{PdD}: S_t = \frac{1}{C} \left( -\frac{dE}{dx} \right) = 4.19 \times 10^{-15} E^{1/2} \exp(1.62E^{-1/2}) \quad (17')$$

$$\text{D}_2\text{O}: S_t = \frac{2}{C} \left( -\frac{dE}{dx} \right) = 2.12 \times 10^{-15} E^{1/2} \exp(2.38E^{-1/2}) \quad (18')$$

なお, (14')~(18') 式は単位を  $[\text{eV} \cdot \text{cm}^2/\text{molecule}]$  として表わしてある。

(14) と (15) 式によれば重水素含有量が相当異なるにもかかわらず微分阻止能  $(-dE/dx)$  への影響は約 10% 程度である。したがって, 試料の組成が少量論組成からずれていても  $-dE/dx$  の決定自体には大な誤差をまねかない。しかし (14')~(18') 式等による分子阻止能  $S_t$  の決定にあたっては, 大きな誤差となるので, 後者の正確な決定を目的とする場合は組成が正確にわかった試料が必要である。

#### 4.2 原子阻止能の評価

全阻止能  $S_t$  は殻電子の寄与  $S_e$  と原子核の寄与  $S_n$  からなる。たとえば,  $\text{TiD}_2$  の場合には

$$S_t(\text{TiD}_2) = S_e(\text{Ti}) + 2S_e(\text{D}) + S_n(\text{Ti}) + 2S_n(\text{D})$$

となる。荷電粒子速度  $v$  が水素原子の第 1 Bohr 軌道電子速度  $v_0$  にくらべて

$$v < v_0 Z_1^{2/3}$$

が成立する条件では電子に起因する阻止能  $S_e$  は

$$S_e \cong 8\pi e^2 a_0 \frac{Z_1^{7/6} \cdot Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \cdot \frac{v}{v_0} \quad (19)$$

となる。 $Z_1$  と  $Z_2$  は荷電粒子と阻止原子の原子番号,  $a_0$  は Bohr 半径,  $e^2 = 14.397 \times 10^{-8} \text{ eV} \cdot \text{cm}$  である。一方  $S_n$  については  $v = 0.015 v_0 Z_1^{2/3}$  の付近で  $S_n$  の  $S_t$  にたいする寄与が最大となり, その  $S_{n,\text{max}}$  は

$$S_{n\cdot\max} = \frac{\pi^2}{2.7183} \cdot \frac{e^2 a_0 Z_1 Z_2 M_1}{Z_1^{1/3} (M_1 + M_2)} \quad (20)$$

となる。 $M_1$  と  $M_2$  はそれぞれ荷電粒子と阻止原子の質量である。

たとえば 50 keV の重陽子で  $\text{TiD}_2$  を照射した場合について (19) と (20) 式で評価すると次のようになる。まず、電子による阻止能は  $S_e(\text{Ti}) = 1.60 \times 10^{-14} \text{ eV}\cdot\text{cm}^2/\text{atom}$ ,  $S_e(\text{D}) = 0.677 \times 10^{-14} \text{ eV}\cdot\text{cm}^2/\text{atom}$  となる。原子核による阻止能は 1 keV のとき最大となり、その値は  $S_{n\cdot\max}(\text{Ti}) = 0.818 \times 10^{-15} \text{ eV}\cdot\text{cm}^2/\text{atom}$ ,  $S_{n\cdot\max}(\text{D}) = 1.96 \times 10^{-15} \text{ eV}\cdot\text{cm}^2/\text{atom}$  となる。10~100 keV では、 $S_n$  の値はこれよりも小さくなり、Schiff<sup>23)</sup> の解析データによると 50 keV においては  $S_n$  は、この値の 25% くらいになるので  $S_n$  の  $S_t$  にたいする寄与は 3% 以下と見積られ、事実上無視できる。したがって (14')~(18') 式によって示した  $S_t$  の値は  $S_e$  のそれとして差つかえない。

さて (14') 式と (15') 式の差は、重水素含有差に相当するから

$$\begin{aligned} S_e(\text{D}) \approx S_t(\text{D}) &= \frac{S_t(\text{TiD}_2) - S_t(\text{TiD}_{0.415})}{2 - 0.415} \\ &= 0.609 E^{1/2} \exp(1.58 E^{-1/2}) \times 10^{-15} \text{ [eV}\cdot\text{cm}^2/\text{atom}] \end{aligned} \quad (21)$$

となる。

重水素と対となっている各原子の阻止能は (14')~(18') の各式による値から、(21) 式の重水素にたいする値に組成による倍数をかけて差し引けば求められる。それぞれの計算結果を Fig. 4 に示した。これらの結果は近似的には

$$S_e \approx S_t = k E^p \quad (22)$$

で表わされる。 $k$  および  $p$  の値は Table 2 に示した。

LSS 理論によれば  $p$  の値は 0.5 となるが、著者らの実測値は全般的にこの値にくらべて小さくなる。この表には Morita<sup>23)</sup> ら、Ormord<sup>23), 4)</sup> らの測定値も併記してあるが、彼らの値にも同様

Table 2. Values of  $k$  and  $p$  given in eq. (22).

The data given by the present (with no mark) and also the previous authors are indicated.

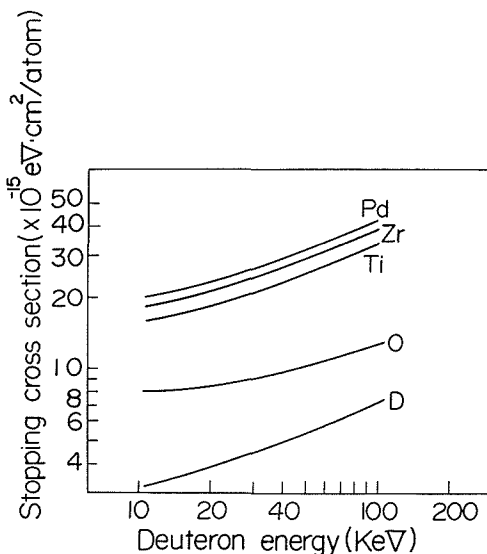


Fig. 4 Estimated stopping cross-section of several atoms for 10-100keV deuteron.

Stopping material	k		p
	Experimental	Theoretical	
D	1.20	0.90	0.377
Be <sup>△</sup>	1.83	1.64	0.435
C <sup>△</sup>	2.53	1.85	0.40
O	3.10	1.90	0.31
Al <sup>△</sup>	2.55	2.10	0.430
Ti	5.40	2.28	0.392
Cu <sup>△</sup>	4.16	2.30	0.391
Zr	6.40	2.35	0.375
Pd	6.80	2.45	0.385
Ag <sup>△</sup>	5.64	2.46	0.407
Au <sup>△</sup>	6.83	2.50	0.381

<sup>△</sup> Morita et al.

<sup>△</sup> Ormord et al.

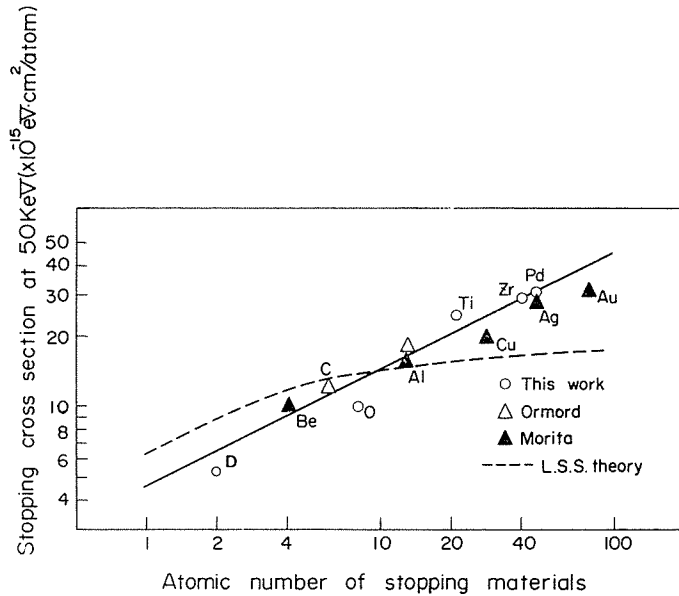


Fig. 5 Atomic stopping cross-section for 50 keV deuteron as function of atomic number.

の傾向がみられる。また阻止能の実測値は LSS 理論によるよりも 20 ないし 30% 程度大きくなる傾向が認められた。

Fig. 5 は 50 keV 重陽子にたいする各原子の阻止能を原子番号の関数として示している。 $S_e \approx S_i$  は  $Z^{1/2}$  にほぼ比例して増大することがわかる。LSS 理論による値 ( $Z_1=2$ ,  $v=v_0$  として (19) 式で計算した値を点線で示してある。) とは、定性的に類似しているが、若干不一致がある。その原因としては LSS 理論の基礎となっている諸仮定にあると考えられる。

### 4.3 飛程の表式

飛程は (14)~(18) の各式の阻止能を  $E_0$  から 0 に到るまで積分することによって求められる。(22) 式を考慮すると

$$R(E_0) = \int_0^{E_0} \frac{dx}{-\left(\frac{dE}{dx}\right)} = \frac{1}{k} \frac{1}{1-p} E_0^{-p+1} \quad (23)$$

となる。Table 2 の各物質にたいする  $k$ ,  $p$  の値から次式が導かれる。

$$\text{TiD}_2: R(E) = 0.45 \times 10^{-5} E^{0.61} \quad (\text{cm/keV})$$

$$\text{ZrD}_2: R(E) = 0.368 \times 10^{-5} E^{0.63} \quad (\text{cm/keV})$$

$$\text{PdD}: R(E) = 0.300 \times 10^{-5} E^{0.61} \quad (\text{cm/keV})$$

$$\text{D}_2\text{O}: R(E) = 1.06 \times 10^{-5} E^{0.63} \quad (\text{cm/keV})$$

各式による計算結果は Fig. 6 に示すとおりである。これらの値は ( $d, n$ ) 法による金属表面などの重水素濃度を分析できる最大限の深さを示している。

重陽子エネルギーの低下とともに  $\sigma$  の減少があるため、表面の重水素からの中性子発生が、深部の重水素からのそれに著しく優勢する効果があり、深部の濃度情報がマスクされる傾向がある。このことは次節において改めて論ずる。

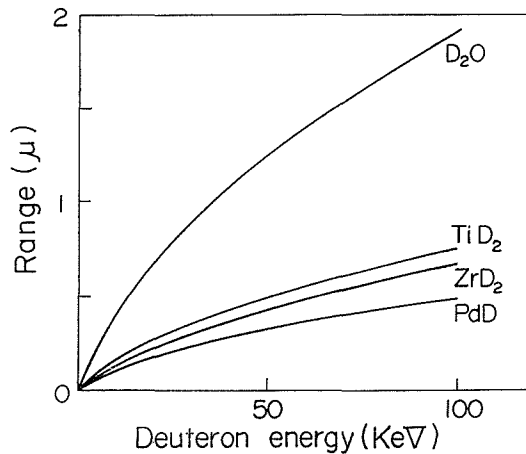


Fig. 6 Range of deuteron in deuterium-containing substances as a function of deuteron energy

#### 4.4 ( $d, n$ ) 反応を重水素濃度分布測定に利用できる可能性について

阻止能および反応断面積のデータが明らかになった結果、( $d, n$ ) 反応を物質中の重水素を定量分析する方法として利用できるようになった。当初の目論見では、重陽子のエネルギーを高めると材料のより深い部分に到達することになり、 $N_t$  たい  $E_0$  の曲線を解析することにより、重水素の濃度プロファイルを求められるかもしれないと期待した。しかし、上に得られたデータを基にして詳しく検討してみると、必ずしもこのような期待どおりにはならないことがわかる。TiD<sub>2</sub> 試料を例にして、以下にこの点について考察してみる。

Fig. 7 は 100 keV の重陽子を TiD<sub>2</sub> に打込み、深さ  $x$  による重陽子エネルギー  $E$  の変化を (14) 式により求め、また (12) 式による ( $d, n$ ) 反応断面積の重陽子エネルギーによる変化と対比して、試料深さ  $x$  による反応断面積  $\sigma$  の変化を求めたものである。図の上辺には深さ  $x$  に対する重陽子エネルギー  $E$  の値が記入されている。

Fig. 8 は Fig. 7 をもとにして重陽子の入射エネルギー  $E_0$  を種々変えたときに  $W = \sigma(E)/\sigma(E_0)$  の深さ  $x$  による変化を求めたものである。このときの  $W$  の値は内部の重水素からの中性子発生と表面の重水素からの発生確率の比を示すものであって、いいかえれば、重水素濃度が同一である場合に全中性子発生数にたいする寄与率を示す重み関数に相当する。50 keV から 100 keV まで  $E_0$  を変えた場合の  $W$  の深さ  $x$  による変化が比較されているが、いずれの場合も表面からの寄与が最大であることがわかる。エネルギー  $E_0$  が高くなると深部からの寄与がわずかに増大する傾向が示されているが、 $N_t$  の増大にたいしては表面領域からの発生数の増加が大きく加わるために、重陽子の到達深さの増大による効果がこれにかくされてしまう。

既報において、階段状の重水素分布と Fick 拡散にしたがう分布を仮定して  $N_t - E_0$  曲線を求めて比較してみたが、両者の曲線はわずかに傾斜が変る程度で、大きな差違がなかった。その理由は上のような特性によって生ずることが明らかになった。

Fig. 9 は 50 keV と 100 keV の重陽子を重水素濃度が一樣な TiD<sub>2</sub> に入射したときの、中性子発生数にたいする表面から  $x$  の深さまでの積分寄与率を示している。いずれの場合も飛程  $R$  の 40% 以内の寄与が 90% をこえることがわかる。むしろ、この性質を基にして 0.1  $\mu\text{m}$  オーダーの表面領域の情報を得る目的に利用するのが適切であることが結論される。

著者はこのことを考慮して、重水素濃度分布測定にあたっては、化学的方法によってエッチン

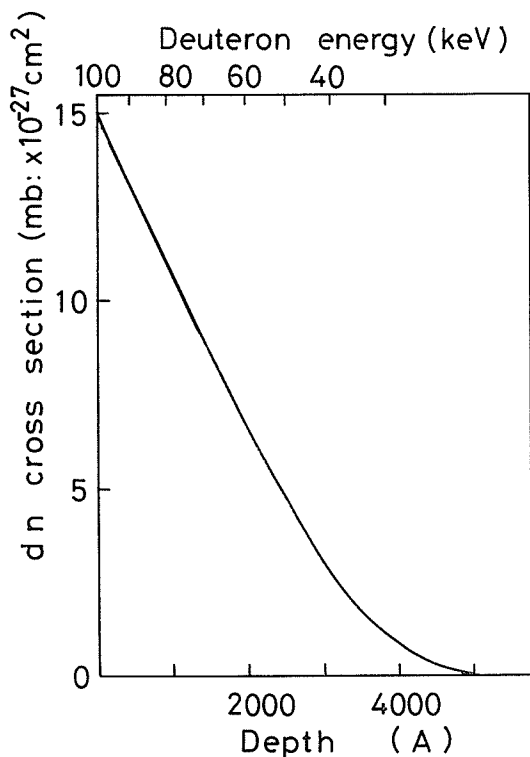


Fig. 7 Depth distribution of  $(d, n)$  reaction cross-section in  $\text{TiD}_2$ , for initial deuteron energy of 100 keV.

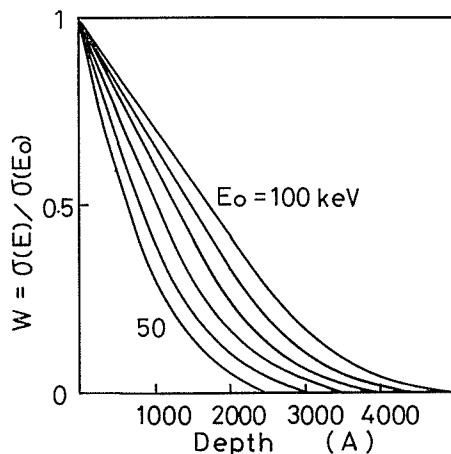


Fig. 8 Normalized  $(d, n)$  reaction cross-section for deuteron which have initial energies of 50 to 100 keV, as a function of depth in target substance  $\text{TiD}_2$ .

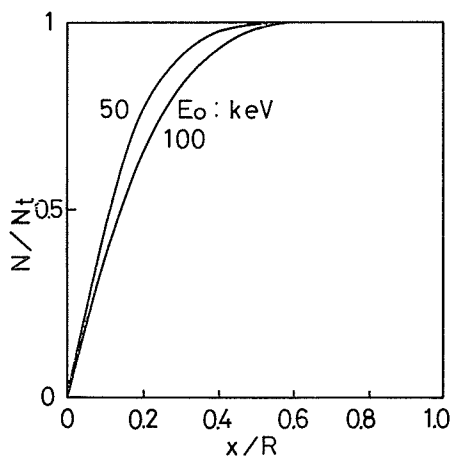


Fig. 9 Integrated distribution of neutron evolution rate as a function of depth in  $\text{TiD}_2$  for deuteron having initial energies of 50 to 100 keV.

グして試料表面からの溶解除去を行い、その後  $(d, n)$  法により溶解除去した面近傍の重水素濃度を決定し、この操作をくり返し行って分布曲線を求める方法を採用することにした。この方法によれば、相当厚く成長した重水素含有層にたいしても濃度プロファイルが決定できる利点がある。その応用例については別報<sup>12)</sup>に報告した。

## 文 献

- 1) LindLard. J, Scharff. M, and Schiøtt. H. E.; Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk., 33 (1963), No. 10.
- 2) Schiøtt. H. E.; Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk., 35 (1966), No.9, p. 1.
- 3) Ormord. J. H.; Can. J. Phys., 41 (1963) p. 1424.
- 4) Ormord. J. H.; Can. J. Phys., 43 (1965) p. 275.
- 5) Morita, et al.; J. Phys. Soc. Japan., 25 (1968), No. 6, p. 1525.

- 6) Morton. A. H.; *Phys. Rev.*, 165 (1968). p. 415.
- 7) Freeman. N. T.; *Can. J. Phys.*, 46 (1968) p. 467.
- 8) Daviss. J. A., et. al.; *Can. J. Chem.*, 38 (1960) p. 1535.
- 9) White. W.; *J. Appl. phys.*, 38 (1967) p. 3660.
- 10) White. W.; *Phys. Rev.*, 187 (1969) p. 499.
- 11) Chu. Y. Y, and Freedman. L.; *Nucl. Inst. Methods*, 38 (1965). p. 254.
- 12) 諸住・水野・倉知; 防食技術, 投稿中.