

2018年11月27日

有償利用 Ar ビームによる試験試料照射とガンマ線測定

仁科センターでは RIBF 施設共用促進事業の一環としてリングサイクロトロンの中イオンビームを民間企業による半導体素子のシングルイベント効果 (SEE) の評価に有償で供している。E5A ビームラインで空気中に取り出されたビームは通過型検出器による強度測定とデグレーダによる LET 調整を経て客先の被検体に照射される。照射により被検体は放射化するが、その過程には大きく分けて 2 つあると思われる。1 つはビームが検出器・デグレーダ等の物質を通過する際に核反応で生成した高速二次核種の入射で、もう 1 つはビームが被検体中で起こす核反応である。前者は RIBF が提供するビームの不純物となり、後者は半導体素子の SEE に寄与すると思われる。そこでその生成過程を評価するため、核化学的方法を用いてその生成確率を測定したので以下報告する。

2018年7月に 95MeV/A の Ar ビームの有償利用を行った際に、別途照射した試験試料のガンマ線測定から RI 核種の生成確率を求めた。照射の構成を図 1 に示す。ビームは客先照射と同じ条件で金散乱体と Wobbler で一様分布化して大気中に取り出し、電離箱 (IC1) ・シンチレータ検出器と厚さ 2699.8 μm の Al デグレーダを通して試験試料に照射した。試料は 2 種類で、厚さ 0.5mm のシリコンウエハと厚さ 1mm のアクリル板をそれぞれ 3 枚重ねた。照射時間はそれぞれ 10 分間で、照射イオン数は IC1 の出力電流の積算値から求め、シリコンウエハでは 9.18×10^{10} 個、アクリル板では 9.69×10^{10} 個と推定された。①準備_ED 選_1807Ar_180730 提出版.xlsx の [1ED 考 1] によると、この厚さのデグレーダを通った Ar ビームのエネルギーは試料表面で 35.91 MeV/A で、その飛程は SRIM2013 によると Si 中で 902.8 μm 、アクリル中で 1394 μm となる。したがっていずれの試料でも一次 Ar ビームは 2 枚目の板の中で止まるが、飛程端から 3 枚目の板までの距離はアクリル中の約 600 μm に対して、シリコン中では 100 μm 程度で甚だ短い。

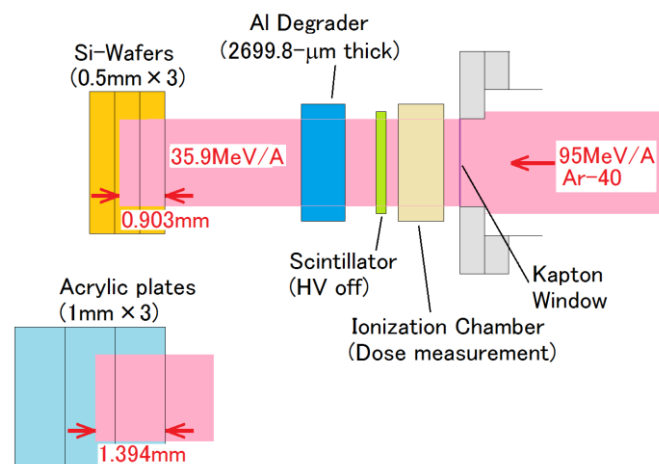


図 1 : 照射のセットアップ

照射した試料板はホットラボに移し、Ge 検出器 A の位置 3 でガンマ線を測定した。測定回数はアクリル板の 1 枚目が照射 7 分後から 29 日後まで 8 回、2 枚目が 12 分後から 106 日後まで 11 回、3 枚目が 17 分後から 26 日後まで 8 回、シリコンウエハの 1 枚目が照射 7 分後から 28 日後まで 9 回、2 枚目が 12 分後から 109 日後まで 11 回、3 枚目が 17 分後から 25 日後まで 9 回であった。

それぞれの試料板で測定されたガンマ線ピークのエネルギーと強度の分岐比および時間経過に伴う減衰率から、アクリルで Be-7 から Mn-52 まで 20 核種、シリコンウエハで Na-22 から Co-58 まで 23 核種を同定した（アイソマーも含む）。表 1 に核種とその半減期を、図 2 に核図表上の分布を示す。半減期が長く崩壊率が低い核種ではバックグラウンドに埋もれたピークを無理やり掘り出すようなことをしているので、同じピークが少なくとも 2 回の測定で見えていることを同定の条件とした。

表 1：ガンマ線測定で同定された核種。試料の A はアクリル、S はシリコン中で同定された核種を示す。

核種	半減期	単位	試料	核種	半減期	単位	試料
Be-7	53.22	d	A	K-43	22.3	h	AS
Na-22	2.6027	y	AS	Sc-43	3.891	h	AS
Na-24	14.997	h	AS	Sc-44	3.927	h	AS
Mg-27	9.458	m	AS	Sc-44*	58.6	h	AS
Mg-28	20.915	h	AS	Sc-46	83.79	d	AS
Al-29	6.56	m	AS	V-48	15.9735	d	AS
S-38	2.838	h	AS	Cr-49	42.3	m	AS
Cl-34*	32	m	AS	Mn-52	5.591	d	AS
Cl-38	37.24	m	AS	Mn-54	312.05	d	S
Cl-39	55.6	m	AS	Co-56	77.27	d	S
Ar-41	1.8268	h	AS	Co-57	271.96	d	S
K-42	12.36	h	AS	Co-58	70.86	d	S

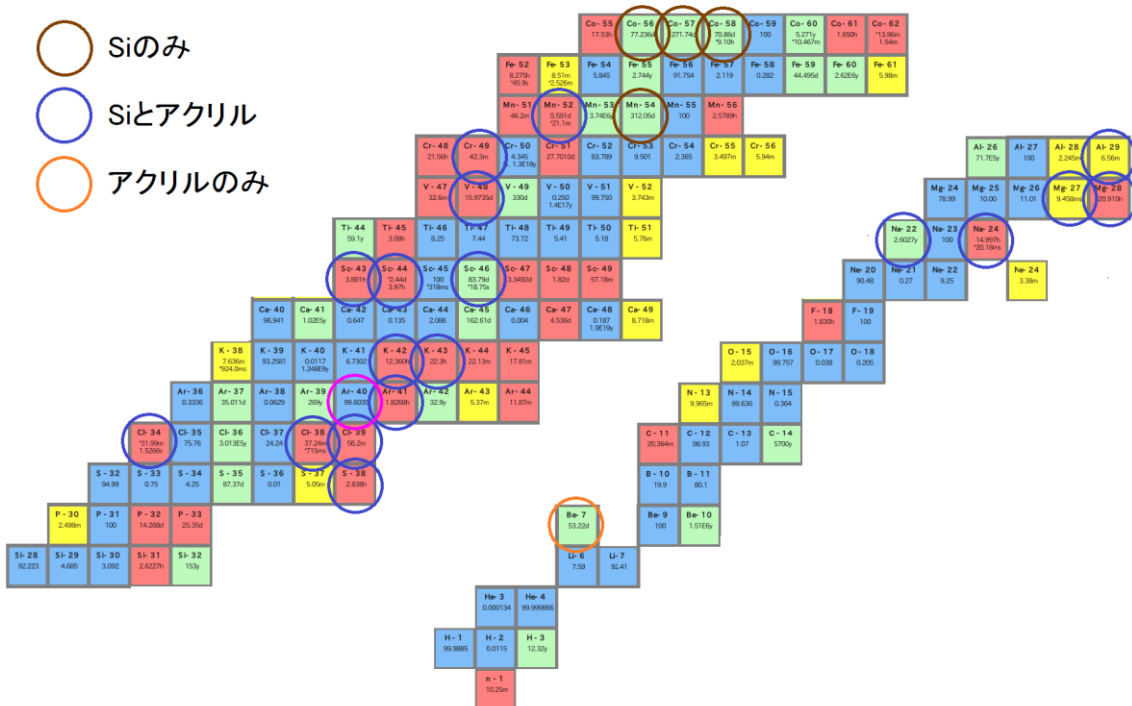


図 2 同定された核種

ここで同定されたのは、半減期が 7 分から 2 年までで、2000keV 以下のガンマ線を数%以上の分岐比で放出する核種に限られる。Na より軽い元素でこの条件を満たすのは Be-7 のみで、それより重い核種でも原子番号が偶数だと安定核が多く、また半減期が適当範囲でもガンマ線の分岐比がきわめて小さく同定不可能な核種が結構ある。

それぞれの核種に対する放射能値を照射終了時点まで外挿してその時点の RI 核の数を求め、さらにビーム強度が一定であると仮定して照射中の減衰を補正して照射中の RI 核生成総数を求め、入射イオン数で除してその核種の生成確率とした。

図 3 にそれぞれの核種に対してアクリル板とシリコンウエハで得られた生成確率を比較する。生成確率は板 3 枚の合計である。また緑色の線は参考データで、2016 年 10 月の Ar ビーム有償利用の際にアルミ積層板を試験試料として行ったガンマ線測定の結果である。このときはデグレーダの厚さが 2800 μm および 3200 μm で、ガンマ線強度の長時間減衰は測定していない。照射条件は異なるが今回の測定と結果の傾向が一致している。

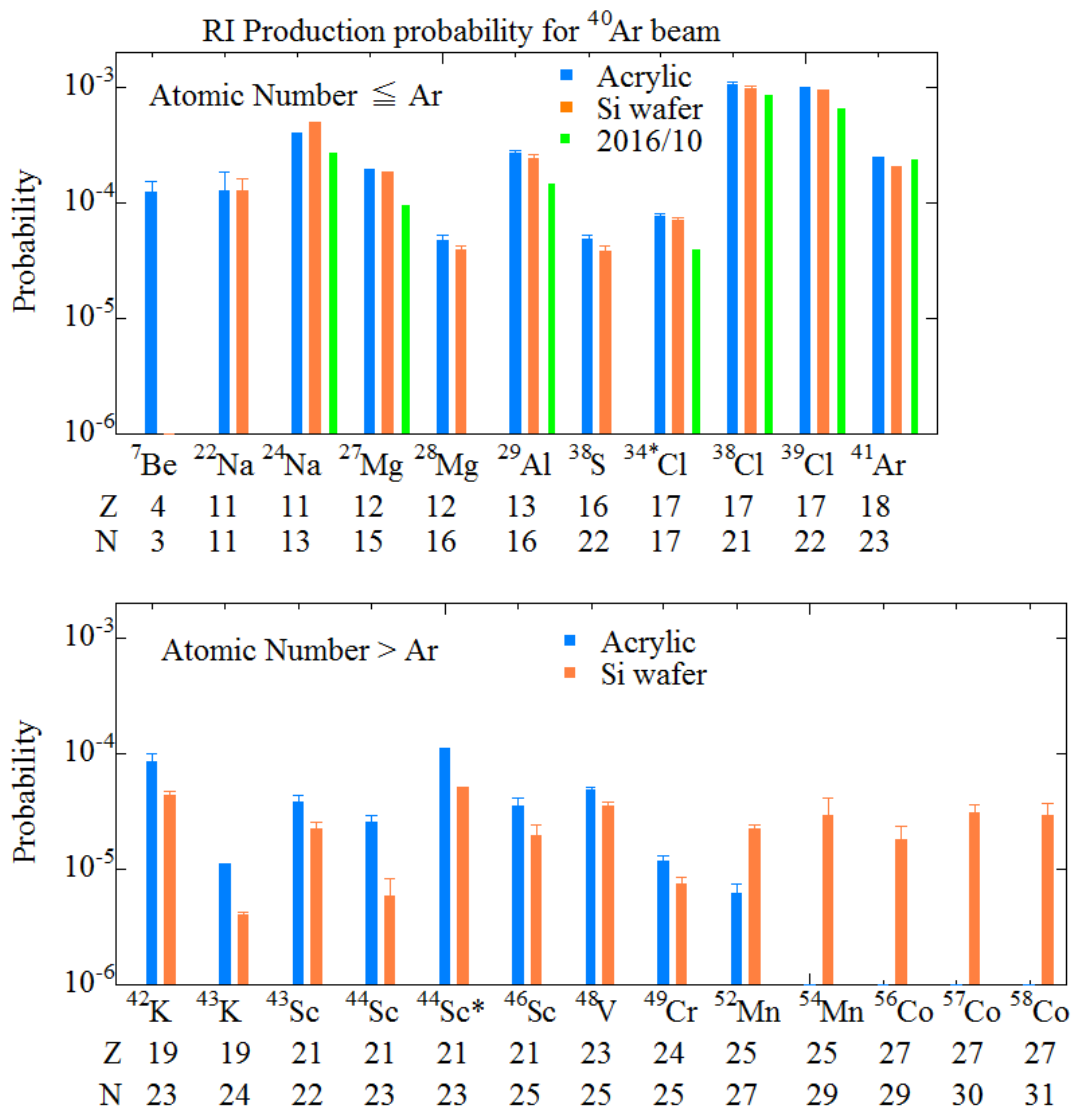


図 3 : ガンマ線測定で得られた RI 生成確率

Be-7 を別として、核種は大きく 3 つに分類される。Ar までの核種の生成確率はアクリルとシリコンの間ではほぼ同じであるのみならず、2016 年 10 月のアルミでも似たような結果が得られているので、上流の核反応で生成した核種が試料に入射したと思われる。Ar-41 以外は高エネルギーの核破砕反応が候補である。それ以上の核種では試料中の核反応が重要で、K から Cr までの元素ではアクリルの方が生成確率は高く、生成過程の有力候補は融合反応である。Mn-54 以上の核種はシリコン中でのみ同定されたが、そもそもアクリル中では生成できない。これも融合反応によると考えられる。それぞれの試料で板 3 枚の生成確率分布を求めた。前述の通り SRIM 計算によると一次 Ar ビームは 1 枚目の板を通過して 2 枚目で止まる。Ar ビームの飛程終端から 3 枚

目までの距離はシリコンで約 0.1mm、アクリルで約 0.6mm であるがビームの飛程はアクリルの方が 1.6 倍長いのでシリコンの厚さに換算すると 0.39mm となる。

Ar より重い核種は 2 番目の板すなわち一次イオンの飛程末端付近に限定される。それより軽い核種は複数の板で検出されるが、板番号順の分布を図 4 に示す。

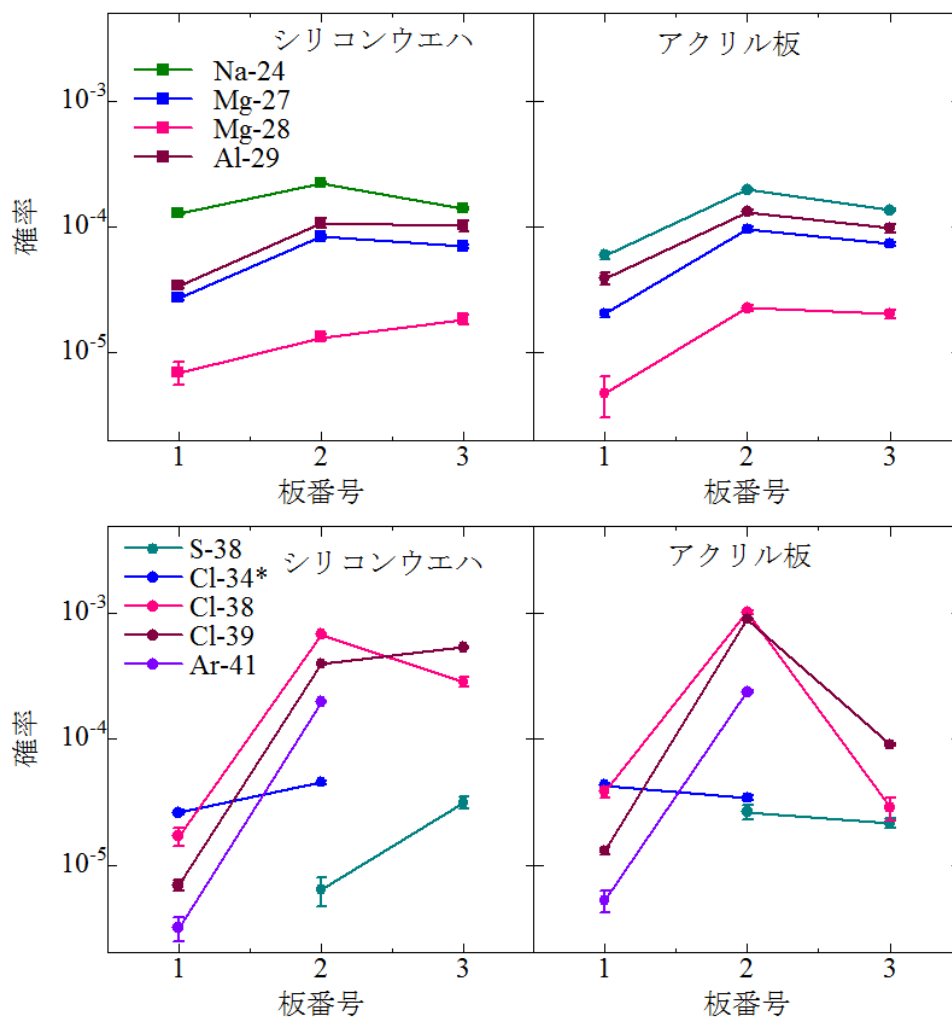


図 4：板ごとの RI 核種分布。

核種の板番号分布は原子番号により 2 つに分類できる。Na から Al までの核種は 3 枚の板に広く分布して核種による違いは目立たないのに対して、S から Ar までの核種はより局在して核種により分布が異なる。同じ元素でも同位体により分布が異なり、上流から Cl-34, Cl-38, Cl-39 の順で分布する。なおシリコンウエハとアクリル板で 2 番と 3 番の強度比が異なるのは、飛程末端の位置の違いによると思われる。

このような分布の違いは実は新しいことではなく、すでに前述の 2016 年 10 月の Ar ビーム有償利用の際にアルミの積層板で測定した。その結果を図 5 に示す

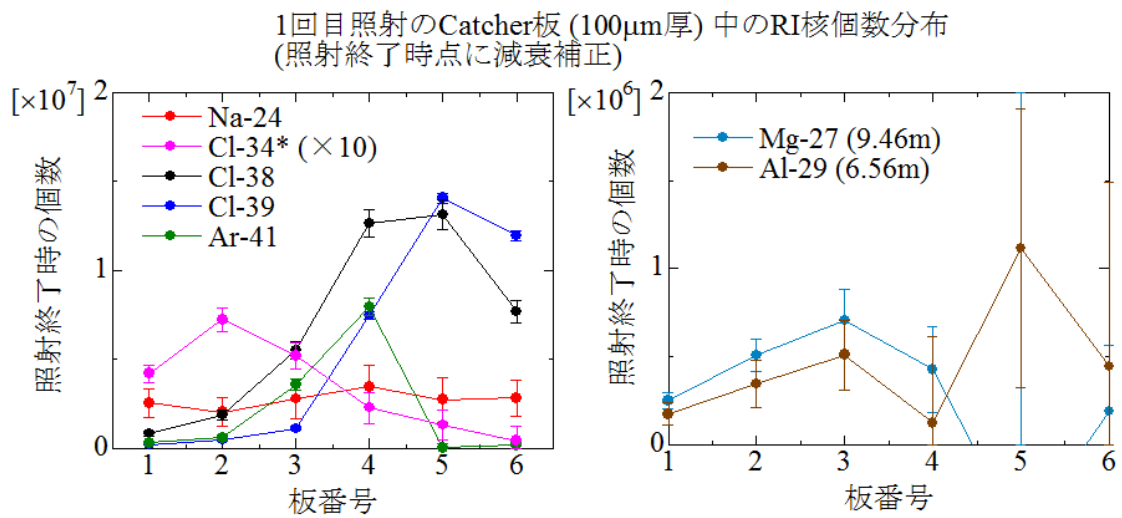


図 5 : 2016 年 10 月にアルミの重ね板で測定した RI の深さ分布。

前述のように Ar 以下の核種は上流の物質で生成した二次核種であるが、S から Ar までの核種は核破砕反応あるいは中性子捕獲で一次 Ar ビームから生成したと考えられる。同じ原子番号で同位体によらず同じ速度で生成したとすれば、LET は同じで重い同位体ほど大きなエネルギーを持つので飛程は長くなる。一方 Al 以下の軽い核種はデグレーダの Al 原子核が起源で、核反応により前方に反跳されたと考えられる。正面衝突なら反跳速度が入射イオン速度より大きくなることは可能である。今後 PHITS 計算と比較を予定している。