陽子照射したアルミニウム中のマグネシウム安定同位体生成断面積の測定

Cross Sections of Stable Magnesium Isotopes Produced in Aluminum by Proton

仁 藤 修*・源 生 礼 亮**・本 田 雅 健*

OSAMU NITOH, REISUKE GENSHO AND MASATAKE HONDA

(1976年10月7日受理)

Cross sections for production of stable magnesium isotopes by proton induced reactions in aluminum have been measured by mass spectrometry. Magnesium containing a few nano grams (10^{-9} g) of induced products was separated from the target, by solvent extraction of aluminum followed by cation exchange purification for magnesium. Average cross sections for a reaction $^{27}\text{Al}(p, \alpha)^{24}\text{Mg}$ are 140 ± 30 mb and 140 ± 30 mb in the ranges of 15-11 MeV and 11-6 MeV protons respectively, and for a reaction $^{27}\text{Al}(p, 2p)^{26}\text{Mg}$, 50 ± 10 mb by 15-11 MeV p.

1. 緒 言

最近, OrgueilやAllende いん石 (炭素質コンドライト) から分離された成分中の元素に同位体比異常のあるものがいくつか見出されている。Black¹⁾ (1972) は, Orgueil いん石から非常に ^{22}Ne に富んだ部分 (いわゆる Ne-E fraction) が抽出されたことを報告している。また, Clayton ら²⁾ (1973) は Allende いん石の Ca-Al に富む白色介在物中に酸素の同位体比異常を示すものがあることを見出した。引き続いて他の元素の同位体比についても調べられているが, Gray, Compston³⁾ (1974) や Wasserburg ら^{4), 5)} (1974~6) により, Allende いん石白色介在物中の Al/Mg 比の高い鉱物からマグネシウムについても変動が認められることが報告された。

このうち酸素の同位体比異常については, 異常に ^{16}O に富む成分が混入したものとして一応説明されており, 原子核合成時の α 過程の核反応による純 ^{16}O 成分が十分混合する前に固化し記憶しているのではない

か等, その起源について様々な議論があるが, 本質はよくわかっていない。

一方, マグネシウムについては, 高速陽子の照射によってできた放射性 ^{26}Al (半減期 7×10^5 年) が高アルミニウム鉱物内で (in situ) 壊変して ^{26}Mg 過剰の異常を与えたと考えられている。Heymann⁶⁾ ら (1976) は 5 MeV 前後の初期太陽系内の星雲中での高線束陽子照射を考え, $^{26}\text{Mg}(p, n)^{26}\text{Al}$ 反応を想定している。しかし p 過程も考えられるし, 酸素の同位体比が均一化していなかったことを考えると固体の標的への陽子照射を考える必要もある。宇宙線等による核反応を考える際, 高エネルギーによる核破砕反応 (x 過程) とともに, 特に初期の太陽宇宙線等を論ずる上では 50 MeV 以下の陽子照射が重要となってくる。上述のマグネシウム同位体に変動を与える核反応については, ^{26}Al を経由するもののほか直接マグネシウム同位体を生成するものも考えられ, 固体の標的では重要である。標的としてはアルミニウムのほかにマグネシウム, ケイ素等も考えられるがいずれにしてもマグネシウムの安定

* 東京大学物性研究所 (東京都港区六本木 7-22-1)

The Institute for Solid State Physics, University of Tokyo (7-22-1, Roppongi, Minato-ku, Tokyo 106, Japan)

** Present address: Branch of Isotope Geology, United States Geological Survey (Federal center, Denver, Colorado 80225, U. S. A.)

Table 1. Proton-induced reactions in aluminum leading to magnesium isotopes.

reaction	product half-life	Q-value (MeV)
$^{27}\text{Al}(p, 2n) ^{26}\text{Si} \xrightarrow{\beta^+} ^{26m}\text{Al}$	2.2s	-18.9
$(p, pn) ^{26m}\text{Al} \xrightarrow{\beta^+} ^{26}\text{Mg}$	6.4s	-13.3
$(p, pn) ^{26}\text{Al} \xrightarrow{\beta^+} ^{26}\text{Mg}$	$7.2 \times 10^5 \text{y}$	-13.1
$(p, 2p) ^{26}\text{Mg}$		- 8.3
$(p, p2n) ^{25}\text{Al} \xrightarrow{\beta^+} ^{25}\text{Mg}$	7.2s	-24.4
$(p, 2pn) ^{25}\text{Mg}$		-19.4
$(p, 3p) ^{25}\text{Na} \xrightarrow{\beta^-} ^{25}\text{Mg}$	60s	-24.0
$(p, 3n) ^{25}\text{Si} \xrightarrow{\beta^+, p} ^{24}\text{Mg}$	0.2s	-38.1
$(p, p3n) ^{24}\text{Al} \xrightarrow{\beta^+} ^{24}\text{Mg}$	2.1s	-41.3
$(p, \alpha) ^{24}\text{Mg}$		+ 1.6
$(p, 2p2n) ^{24}\text{Mg}$		-26.7
$(p, 3pn) ^{24}\text{Na} \xrightarrow{\beta^-} ^{24}\text{Mg}$	15h	-31.4

同位体を生成する核反応の励起関数を実験的に求めた例はない。

安定（長半減期）同位体を生成する核反応の断面積を求めるためには、一般に質量分析法による直接的測定が必要であるが、希ガス元素⁷⁾を除いてはあまり行なわれていないのが現状である。^{8),9)}陽子照射によってアルミニウムからマグネシウム同位体を生ずるすべての核反応をQ値とともに Table 1. に示した。

本実験では、高純度アルミニウム板を標的としサイクロトロンで陽子照射を行ない、生成したマグネシウムを化学分離して固体試料用質量分析計で測定した。今回は15MeVの陽子照射によるもので、それぞれ $^{27}\text{Al}(p, \alpha) ^{24}\text{Mg}$ および $^{27}\text{Al}(p, 2p) ^{26}\text{Mg}$ 反応によって生成したと考えられる ^{24}Mg および ^{26}Mg が測定された。これらの絶対量を求めることによって15MeV以下のエネルギー範囲でこれらの反応の断面積を求めることができた。

2. 実 験

2.1 試料

米国, Materials Research Corporation製の MARZ grade と称する高純度アルミニウム板(0.051 cm厚, 137mg/cm²)を表面をアセトンおよび希塩酸で洗浄して使用した。

2.2 陽子照射

アルミニウム板3枚を重ね、理化学研究所サイクロトロンで15MeV陽子により3.7時間照射した。積算照射量はファラディカップによって求め、84ミリクーロン(5.3×10^{17} protons)が得られた。

2.3 マグネシウムの分離

照射したアルミニウム板をGe(Li) 検出器によりガンマ線測定し、ビームの強く当たった部分(約115mg)だけを切断した。不純物の鉄より副成した ^{56}Co の放射能により切断した部分に当たった陽子の割合を求めた。切断したアルミニウム板をテフロンピーカー中で6N塩酸10mlに溶解したのち蒸発乾固、残った過剰の塩酸を飛ばした。蒸留水で50mlとし、アンモニア水を滴下してpH $\geq$ 7としたのち、アセチルアセトン20mlを

加えて30分振とうしアルミニウムイオンとよく反応させ、さらにクロロホルム20mlを加えてアルミニウムを有機相に抽出した。水相はさらにクロロホルムで2回洗浄した。水相をテフロンビーカーに移し、精製した圧縮空気気流中で赤外ランプ下に蒸発乾固した。残渣(塩化アンモニウム)を少量の王水で分解したのち1 N塩酸溶液として陽イオン交換樹脂(Dowex 50W-X8, 200~400mesh, 1 ml)に通しナトリウムを除いた。全1 N塩酸溶液中のマグネシウムを原子吸光法で定量した。マグネシウムは9カラムから13カラムまでに溶離したがこのうち10~11カラム分を質量分析測定用試料とした。用いた試薬のうち塩酸は精密分析用のものをさらに蒸留して用い、またアセチルアセトン(希アンモニア水と蒸留水で洗浄して用いた。アンモニア水、硝酸は精密分析用のものを、クロロホルムはスペクトル用のものをそのまま使用した。この化学分離の化学収率、および実験室汚染の量の測定は米国Oak Ridge国立研究所より購入した ^{26}Mg スパイク(=99.23%)を用いた同位体希釈法と、原子吸光法によって行なった。

2.4 質量分析

A E I社製、表面電離型質量分析計、MS-5を用いてマグネシウムの同位体比を測定した。コレクターには浜松テレビ製17段Cu-Be二次電子増倍管(測定時端子電圧-3.0KVにおいて利得 2×10^5)を用い、直流増幅後の出力は1秒間ごとの積算値をデジタル電圧計(6桁)で読み取った。イオン加速電圧は6KV(固定)、走査はfunction generatorを利用し往復磁気走査により、一定条件で10往復以上させ一回のデータとした。試料は陽イオン交換樹脂を通した溶離液を蒸発濃縮し、そのままシリカゲルとともにテフロンチューブでレニウムフィラメント(切口0.028mm $\times$ 0.7mm)上に載せた。一度の測定に用いたマグネシウム量は $2 \sim 5 \times 10^{-8}\text{g}$ であった。またシリカゲルは、水ガラスを塩酸性で処理し水洗したものを用いた。

この方法による測定で、低温においては $^{23}\text{Na}^+$ が強く高質量側にスノを引き、これに伴って $m/e \approx 24.3$ にいわゆるghost peakが現われる場合もあるが、フィラメント電流2.5A付近でナトリウムは急速に減衰し、代ってマグネシウムのピークが急激に伸びて2.7Aから3.1Aの間で安定した測定を行なうことができた。通常2.7Aから0.1Aごとに5回の測定データを取った。さらに高温にするとシリカゲルが脱離するた

め、マグネシウムピークは不安定となり減衰してよいデータは得られなくなった。マグネシウム同位体比は照射していないアルミニウム板を同様に化学処理して含まれるマグネシウムの同位体比を測定して比較対照とした。

3. 結 果

照射後、標的を1カ月以上冷却したのち、Ge(Li)検出器によってガンマ線の測定を行なったところ、 ^{46}V 、 ^{56}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{76}Se 、 ^{139}Ce 等が見出された。アルミニウムから生じた放射能は認められず、いずれも不純物から生じたものでそれぞれ ^{48}Ti 、 ^{56}Fe 、 ^{65}Cu 、 ^{75}As 、 ^{139}La の(p,n)反応による生成物と考えられる。陽子は1枚目の標的(No.1)で15MeVから11MeVにエネルギーを減じ、さらに2枚目(No.2)で11MeVから6MeVに、3枚目(No.3)で6MeV以下となりこの中で止まっている。放射能はNo.1で最も強いものが多く、最強の ^{56}Co はNo.1で約 $6 \times 10^3\text{dpm}$ (照射終了時)であった。またQ値の小さい $^{75}\text{As}(p,n)^{76}\text{Se}$ (Q値;-1.7MeV)および $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$ (Q値;-2.1MeV)ではNo.2が最強の放射能をもち、No.3はいずれもきわめて弱い放射能を示した。

質量分析の結果をFig.1に示す。マグネシウムの同位体比を表わすためよく用いられる方法で、 ^{24}Mg に対する ^{25}Mg および ^{26}Mg の比で表わした。各点は一定温度で磁気走査を10往復以上行なった測定値にdiscrimination factorとして $\times \sqrt{m_2/m_1}$ の補正を行なったもので、誤差は $\sqrt{\sum(x-\bar{x})^2/n(n-1)}$ で示した。1回の測定でフィラメント温度は3ないし5段階変えてデータを得た。未照射試料は3回、標的No.1では2回測定を行なった。Fig.1には未照射試料から得たマグネシウム同位体比の平均値を通るmass fractionation lineを示した。またTable 2に各温度での値を平均したものを示す。平均値は重みつき平均値で、誤差はstandard deviationで表わした。

Table 1から、15MeV以下の陽子照射によって起こり得る反応は $^{27}\text{Al}(p,\alpha)^{24}\text{Mg}$ と $^{27}\text{Al}(p,2p)^{26}\text{Mg}$ のみと考えられる。標的No.1とNo.2のマグネシウムの同位体比は未照射試料中のマグネシウムから明らかにずれており、核反応によって生成したマグネシウムによって変動していることがわかる。標的No.1試料の質量スペクトルの例をFig.2に示すが、未照射試料に比べ明らかに ^{26}Mg は高く、 ^{24}Mg も増加している。これ

Fig. 1. Isotopic ratios of magnesium recovered from proton-irradiated aluminum after mass discrimination correction ($\times \sqrt{m_2/m_1}$). The straight line shows the mass fractionation effect for non-irradiated samples. Several plotted points represent the ratios obtained at different filament currents. Errors are $\sqrt{\sum \Delta^2 / n(n-1)}$.

Table 2. Isotopic ratios of magnesium recovered from proton irradiated aluminum after mass discrimination correction. Each data refers to mean of several filament temperatures.

Sample	Run No.	$(^{25}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_c$	$(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_c$
Non Irrad.	1	0.12585 ± 34	0.13887 ± 82
	2	0.12673 ± 29	0.13919 ± 35
	3	0.12589 ± 20	0.14051 ± 21
Target No.1	1	0.12399 ± 28	0.14354 ± 74
	2	0.12351 ± 21	0.14323 ± 50
No.2	1	0.12308 ± 48	0.13612 ± 80
No.3	1	0.12557 ± 41	0.13802 ± 60

は Fig. 1 や Table 2 から明らかで、No. 2 では ^{24}Mg のみが増加している。

^{25}Mg は今回の照射条件では生成しないので、この同位体を基準にとって $^{26}\text{Mg}/^{25}\text{Mg}$ および $^{24}\text{Mg}/^{25}\text{Mg}$ で表わした各試料の全測定値の平均値、およびその分

布の範囲を Fig. 3 に示した。各温度での測定値を、それぞれ ^{25}Mg を基準にした比に直し、Table 2 と同じ方法で計算を行なった。数回測定を行なった試料においても総平均値として表わした。未照射試料の平均値を通る直線は mass fractionation line である。

陽子照射したアルミニウム中のマグネシウム安定同位体生成断面面積の測定

Fig. 2. Mass spectra of magnesium ($\sim 4 \times 10^{-8}$ g) extracted from proton-irradiated aluminum sheet. (Ep: 15-11 MeV) Filament current: 2.90A.

^{24}Mg および ^{26}Mg の変化率を見るため

$$\Delta^{24}\text{Mg} = \left| \frac{(^{24}\text{Mg}/^{25}\text{Mg})_T}{(^{24}\text{Mg}/^{25}\text{Mg})_N} - 1 \right| \times 100(\%)$$

$$\Delta^{26}\text{Mg} = \left| \frac{(^{26}\text{Mg}/^{25}\text{Mg})_T}{(^{26}\text{Mg}/^{25}\text{Mg})_N} - 1 \right| \times 100(\%)$$

T; 標的試料, N; 未照射試料

で計算した $\Delta^{24}\text{Mg}$, $\Delta^{26}\text{Mg}$ を Table 3 に示した。また Table 3 の最後の欄には原子吸光法で測定した溶離液中の回収マグネシウムの全量を示した。

使用したアルミニウム板中に不純物として含まれているマグネシウムは、アルミニウムを塩酸に溶解し標準添加法により原子吸光法で求めたが、0.6ppm 以下と見積もられた。したがって当初から存在するマグネシウムは180~240ng (10^{-8} g) 中30ng程度で大部分は実験室汚染と考えられる。また、 ^{26}Mg スパイクを用いた同位体希釈法と原子吸光法によって求めた化学分離の際の化学収率は約97%であった。

これらの値から溶離液中のマグネシウムの中で核反応によって増加したマグネシウム量が求められる。切断した標的中全体に生成したマグネシウムは、No. 1 で ^{24}Mg が7.4ng, ^{26}Mg が2.9ng, および No. 2 では ^{24}Mg が7.2ngと求められた。 ^{56}Co 放射能から切断した部分に当たった陽子数は No. 1 で全粒子数の82.7%, No. 2 では80.0%であった。以上から核反応の式を用

Fig. 3. Isotopic composition of magnesium from aluminum by proton-irradiation in three energy regions; No. 1: 15-11 MeV, No. 2: 11-6 MeV, No. 3: < 6 MeV. ^{25}Mg is used for normalisation since its production in the above energies is negligible. Error bars are standard deviation.

Table 3. Excess of ^{24}Mg and ^{26}Mg showing the effect of proton-irradiation in three energy regions. Total amount of magnesium recovered after chemical extraction is shown in last column.

	E_p	$\Delta^{24}\text{Mg}$	$\Delta^{26}\text{Mg}$	Mg in eluent
Target No.1	15-11MeV	+1.9±0.4%	+4.9±0.8%	242ng
No.2	11- 6MeV	+2.5±0.5%	+0.2±0.8%	184ng
No.3	6- MeV	+0.5±0.5%	-0.4±0.7%	186ng

$$\Delta^{24}\text{Mg} = \{ ({}^{24}\text{Mg}/{}^{25}\text{Mg})_T / ({}^{24}\text{Mg}/{}^{25}\text{Mg})_N - 1 \} \times 10^2 \%$$

$$\Delta^{26}\text{Mg} = \{ ({}^{26}\text{Mg}/{}^{25}\text{Mg})_T / ({}^{26}\text{Mg}/{}^{25}\text{Mg})_N - 1 \} \times 10^2 \%$$

T: Target

N: Non-irradiated sample

Table 4. Production cross sections of ^{24}Mg and ^{26}Mg in aluminum by proton irradiation.

	E_p	${}^{27}\text{Al}(p, \alpha){}^{24}\text{Mg}$	${}^{27}\text{Al}(p, 2p){}^{26}\text{Mg}$
No.1	15-11MeV	140±30mb	50±10mb
No.2	11- 6MeV	140±30mb	< 10mb
No.3	6- MeV	< 30mb	—

いてこれらの核反応の断面積を計算したのが Table 4 である。

4. 考 察

初期太陽宇宙線や類似の核反応を考える上で重要な 50MeV 以下の陽子照射により、安定同位体を生成する核反応の断面積を求めることが今回の実験の目的であるが、アルミニウムを 15MeV 陽子で照射し、核反応によって生成したマグネシウムを同位体比の変動として測定することができた。核反応生成物をできるだけ純粋に抽出し、感度のよい質量分析を行なうことによってこのことは可能となる。これまで主に放射能測定のみにより放射性核種の生成断面積が調べられてきたが、今回の測定は、天然では重要な安定同位体を生成するような核反応について質量分析法によって測定が可能なことを示した。これは同位体比に変動を及ぼす核反応条件等の検討を加える上で、欠けていた実験データを与えることになり、さらにデータを蓄積して

いくことにより、地球化学や宇宙化学の分野において重要な情報を提供するものと思われる。

実験室汚染に関しては、試薬中のマグネシウム濃度を調べ、精密分析用試薬についてもさらに蒸留し使用するようになり、乾固は精製した空気中で行なうようになりして改善を重ねて来たが、現在まだ一回の化学分離の過程で 0.1μg を越えるマグネシウムが加わってしまい、核反応生成物のマグネシウムが希釈されてしまっている。使用試薬の量を最少限に留め、実験手順をできるだけ簡易化するなどして実験室汚染をさらに減らすことが必要である。使用した高純度アルミニウム板は帯溶融法によって作られており、その中に含まれているマグネシウムは mass fractionation を受けている可能性がある。今回は実験室汚染の方がはるかに多かったため未照射アルミニウムから化学分離したマグネシウムの同位体比は試薬のそれとほぼ一致した。今後さらに 50MeV 程度までのエネルギー範囲で測定を行なう予定であるが、この領域では ^{25}Mg も

生成されすべての同位体が変動することになるので、各同位体の生成量について評価は困難になろう。

今回のデータから ^{24}Mg を生成する反応の励起関数は 6 MeV 付近で急に立ち上がり、 $^{27}\text{Al}(p, 2p)^{26}\text{Mg}$ 反応の始まるあたりに 200mb 近くの peak をもつゆるやかな曲線を描き、その後 $^{27}\text{Al}(p, 2p2n)^{24}\text{Mg}$ 反応が起こるまでゆっくり減少するものと思われる。また、今回のエネルギー範囲では ^{26}Mg を生成する反応は最も Q 値の低い (p, 2p) 反応のみが起っており、この反応は 15 MeV よりもやや高いエネルギーの所で最大になると思われる。一方、 $^{27}\text{Al}(p, pn)^{26}\text{Al}$ 反応は $\leq 15\text{MeV}$ から立ち上がり、23MeV で最大の 170mb となることが放射能測定から報告されている。¹⁰⁾ $^{27}\text{Al}(p, pn)^{26m}\text{Al}$ 反応もこれとほぼ平行して起こるものと思われる。したがって ^{26}Mg を生成する反応は 15 MeV 以上で (p, 2p) 反応も加わることになり、さらに 20 MeV を越すエネルギー範囲では $^{27}\text{Al}(p, 2n)^{26}\text{Si} \xrightarrow{\beta^+} ^{26m}\text{Al}$ 反応も加わってくる。 ^{26}Mg は ^{24}Mg の約 1 / 7 の同位体存在度であるため、核反応によって生成した ^{26}Mg は同じ量の ^{24}Mg の 7 倍も同位体比に変動を与えることになる。 ^{26}Mg についてもおよそ同様であり、 ^{24}Mg の変動幅はいずれにしてもあまり大きくならないはずである。

宇宙線の強度（微分スペクトル）がエネルギーに対して指数関数として表わされる ($dJ/dE = kE^{-\gamma}$, $\gamma = 3 \sim 4$) ことを考えた時、これらのエネルギー範囲での ^{26}Mg 生成は、Allende いん石中に見出された ^{26}Mg excess 異常と関連して興味深い。

最後にサイクロトロンによる陽子照射の際ご協力いただいた理化学研究所野崎 正氏、放射能測定で協力していただいた東京大学物性研究所堀江絹子氏、ならびに原子吸光法によるマグネシウム定量の際ご助力下さった東京大学原子核研究所今村峯雄氏に感謝致します。

文 献

- 1) D. C. Black, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **36**, 377 (1972).
- 2) R. N. Clayton, L. Grossman and T. K. Mayeda, *Science*, **182**, 485 (1973).
- 3) C. M. Gray and W. Compston, *Nature*, **251**, 495 (1974).
- 4) T. Lee and D. A. Papanastassiou, *Geophys. Res. Letters*, **1**, 225 (1974).
- 5) T. Lee, D. A. Papanastassiou and G. J. Wasserburg, *Geophys. Res. Letters*, **3**, 41 (1976).
- 6) D. Heymann and M. Dziczkaniec, *Science*, **191**, 79 (1976).
- 7) J. R. Walton, A. Yaniv, D. Haymann, D. Edgerley and M. W. Rowe, *J. Geophys. Res.*, **78**, 6428 (1973).
- 8) C. M. Raisbeck, J. Lestrangues and F. Yiou, *Phys. Letters*, **57B**, 186 (1975).
- 9) C. Perron, *Thesis, Orsay*, (1975).
- 10) M. Furukawa, K. Shizuri, K. Komura, K. Sakamoto and S. Tanaka, *Nucl. Phys.*, **A174**, 539 (1971).