小型加速器の応用

(法政大学) 森田 右, 山本 康博
(イオンビーム工学研究所)

核物理学を中心に発展してきたバンデグラフやサイクロトロンなどの小型加速器は、10年余り前から、きわめて多方面に利用されるようになり、それに伴っていろいろの新しい分野が開かれつつある。本稿では、最初これらの利用分野を列挙し、つづいて、これらの中から、筆者の興味に従って微量元素分析(PIXE)、後方散乱による物質構造の解析、材料の放射線損傷の研究、核医学への利用、年代測定をとりあげて解説を行う。

I. はじめに

Lawrence がサイクロトロンを発明したのが1930年で、Van de Graaff が初めて飛行機の格納庫の中に、静電高圧発生装置をつくったのが1931年だった。そして“奇跡の年”といわれる1932年から、ちょうど50年が経った。この年、中性子、陽電子、重陽子が発見され、またCockcroft-Walton による原子核の人工破壊実験が成功した。それから半世紀、サイクロトロンはAVF型の開発によってエネルギーも加速粒子も可変となり、バンデグラフ装置はタンデム型の開発によって重イオン加速へと発達するとともに、大型化の一途をたどってきた。

加速器は原子核物理学の研究手段として開発され発達してきた。より壊れにくい原子核を壊そうとして、より高いエネルギーのビームを求め、加速器は次々と大型化してきた。そして数100 MeV以上の加速器は素粒子の発生装置としてさらに大型化を続け、いまや国力の象徴になっている。

一方、核物理学の主流が数10 MeV以上の中・大型加速器に移っていくとともに、核物理屋に独占されていた小型加速器はこの分野から開放されていろいろの分野に応用され始め、次々に新しい領域が開かれるようになってきた。この傾向は、10年余り前から特に著しい。もともとLawrenceが最初のサイクロトロンを試作するときの趣意書に放射線生物学の研究などがあげられている。長いまわり道だったように思われる。現在の小型加速器の主な利用分野を列挙してみれば、

- (1) イオン注入による新物質の開発
- (2) 後方散乱, イオンチャネリングによる物質構造の解析
- (3) イオン・原子衝突による高電離イオンや荷電移行反応などの研究

- (4) 粒子励起X線(PIXE)による微量元素分析
- (5) 荷電粒子核反応による放射化分析
- (6) 放射線損傷のシミュレーション研究
- (7) 中性子ラジオグラフィによる材料非破壊検査
- (8) ラジオアイソトープの製造と核医学への利用
- (9) 高エネルギー質量分析による年代測定

このような広範囲にわたる加速器利用の全貌を、筆者の能力ではとてもカバーできないし、どうしても筆者の個人的関心による“つまみ食い”というか“食いちらし”にならざるを得ないことをお許し願いたい。

II. PIXE (Particle Induced X-ray Emission)

加速器による元素分析法の一つで、1970年スウェーデンのLund大学のJohanssonらによって始められた⁽¹⁾。加速器からの陽子など重粒子のビームがサンプル(ターゲット)にあたると、サンプル中の原子をイオン化し、イオン化された原子から各元素特有のエネルギーをもった特性X線が発生する。このX線を分析してサンプルの元素分析を行う方法で、最近のX線用半導体検出器の発達によって実用化された。この方法の特徴は“わずか数mgのサンプルがあれば、1回の測定でほとんどすべての元素をppmの領域まで分析できる”ということである。

そもそも元素分析には幾多の方法があるが、分析法として重要な性能は、(1)個々の元素に対する検出感度はそれほどよくなくても、全部の元素について、おおよその濃度を簡単にサーベイできるか、あるいは(2)ある程度手間がかかっても、特定の元素についてトコトン(ppb領域まで)精密に分析できるか、どちらかであ

Application of Small Accelerators: Susumu MORITA, Yasuhiro YAMAMOTO.

(1982年 3月31日 受理)

第 1 図 人間の血液をマイラー膜にたらしして乾かし、3.5 MeV 陽子でたたいて得られたX線スペクトル

るといわれている。この観点からはPIXEは前者に属するといえよう。

PIXE スペクトルの 1 例を第 1 図に示す。これは人間の血液を薄いマイラー膜の上にたらしして乾かし、3.5 MeV の陽子でたたいて得られたX線スペクトルで、横軸がX線エネルギー、すなわち元素の種類を表わし、縦軸がX線強度、すなわち元素の濃度を表わす(イットリウムYのKX線が出てるのは標準元素として既知量を添加したためで、血液中に含まれていたもので

はない)。この図に見られるようにPIXEスペクトルには、常に連続X線のバックグラウンドが現れる。この連続X線は主に2次電子による制動放射であるが、これによってこの分析法の感度、すなわち検出限界が決まる。連続X線のカウントが常に統計的変動を行なっているため、特性X線の小さいピークは、この変動と区別できなくなるからである。第 2 図はJohanssonら⁽¹⁾が求めたPIXEの感度曲線で、横軸が検出しようとする元素の原子番号で、1 MeV と 3 MeV の陽子に対する感度を示し、軽元素ではKX線を、中以上の元素ではLX線を検出する方が高感度が得られる。

第 2 図 1 MeV と 3 MeV 陽子を用いた時のPIXE検出感度⁽¹⁾

る感度を示し、軽元素ではKX線を、中以上の元素ではLX線を検出する方が高感度が得られる。

第 3 図⁽²⁾は筆者らが求めた感度曲線で、横軸が検出しようとする元素の原子番号、縦軸が陽子エネルギーで、図中の数字は感度(最小検出可能量)を原子数 $\div 10^{10}/\text{cm}^2$ で表わしたものである。この図はKX線測定による軽元素の検出に対するものであるが、LX線測定による重元素検出に対しても似た曲線群が得られている。第 2 図と第 3 図の違いは、主にサンプルのバックグランドの種類や厚さなど実験条件の違いによるものであるが、いずれにせよPIXEで

は、2～6 MeV の陽子で ppm あるいはそれ以上の感度を得られ、また原子番号の全領域にわたって感度がファクター3以内しか変わらないこともこの方法の特徴である。前述のように少量のサンプルですむので、ppm のような相対濃度でなく、検出可能な最小絶対量では 10^{-12} g のレベルに達する。測定精度は ppm 領域で10%以下、通常数%と報告されている。

図中の数字に 10^{10} をかけたものが原子数/cm²を表わす。
T_mは2次電子制動放射の上限を、V_{dl}は最高感度点の軌跡を示す。

第3図 KX線測定によるPIXEの検出限界

PIXEは原理的には、X線によって原子をイオン化して特性X線を発生させる蛍光X線分析法と同じであるが、連続X線によるバックグラウンドが少ないだけ感度がよく、特に絶対量感度が優れている。したがって、この方法の応用としては、多量のサンプルを得るのが困難な、エアロゾル(空気汚染)の分析や、医学・生物学サンプルの分析に大いに威力を発揮している。すでに米国やスウェーデンでは、サイクロトロンやバンデグラフ装置がルーティンに、都市・ハイウェイ・工場内などの空気汚染の分析に使われており、興味ある結果が報告されている。医学・生物学利用の面で特に注目されているのがマイクロプローブの開発である。電場・磁場を使って入射ビームを数μmの拡がりに集束してきわめて局所的な元素分析を行う方法で、すでに毛髪1本の長さ方向に沿ってばかりでなく、その断面に沿っての元素分析も行われており、1μm以下に集束することができれば、1つの細胞内の各成分ごとの元素分析を行うことができるものと大きな期待が寄せられている。

加速器は一般に高価なので、このような分析法は非現実的と考えられるかも知れないが、1～3 MV程度のバンデグラフ装置はそれほど高価なものではなく、分析専用如果使用すれば1サンプル当たり数ドルですみ、米国ではすでに営業ベースで行われているという。わが国でも技術開発をかねてPIXE専用の加速器が設置されることを期待している。

Ⅲ. 後方散乱・イオンチャネリングによる物質構造の解析⁽²⁾

固体内に入射した高速イオンは、原子核あるいは核外電子との衝突によって減速をうけながら固体中を進む。このうち核に十分近づいたイオンは、Rutherford散乱によって広角散乱され、一部は固体表面からはねかえってくるが、このような粒子を後方散乱粒子といっている。

RBS法(Rutherford Backscattering Spectrometry: 後方散乱法)は、試料内原子によって後方散乱される軽イオン(H⁺, He⁺, He⁺⁺など)のエネルギー分布を測定することによって、固体表面から～μm程度の領域の種々の物性を非破壊的に測定しようとするものである。

第4図はRBS法のシステムを示している。イオン発生器にはバンデグラフ装置を始めとする～MV程度の小型加速器が用いられる。散乱粒子の測定は、SSD(半導体検出器)とMCA(多重波高分析器)によって行われる。後述のチャネリング測定には、試料の結晶軸方向とビーム方向を0.1°程度、あるいはそれ以下に合わせる必要があるので、試料は2つ以上の回転軸をもつゴニオメータに取り付けられる。

第4図 RBS法およびチャネリング測定用実験配置図

RBS法の特徴は、試料の原子組成の分析だけでなく、不純物の深さ方向の分布などが測定できることである。これが可能となるのは次の3つの理由による。

(1) Rutherford散乱前後における入射粒子と散乱

粒子のエネルギー比が、入射粒子と散乱中心の質量と散乱角だけで決まること

- (2) 入射粒子の試料中でのエネルギー損失のため、たとえ同種の核による散乱であっても、その表面からの深さによって散乱粒子のエネルギーが異なること
- (3) 後方散乱粒子の数(イールド)は散乱中心原子の数に比例すること

RBS法において、イオンの結晶内におけるチャネリング現象を利用すると、上記のこと以外に、結晶構造に関する有用な知見が得られる。高速イオンを結晶の低指数軸あるいは面に平行に入射させると、イオンは結晶軸や面が形成するポテンシャルによって反発をうけるため、軸や面によって取り囲まれた“チャネル”の中を進行する。このような条件では、入射イオンは結晶原子にある程度以内には近づかないため、広角散乱をうける確率は小さくなる。したがって、結晶欠陥を含まない結晶をチャネリングの条件下で測定したRBSスペクトルは、そうでない場合に比べてイールドが1/20~1/50程度に減少する。

これに対し、結晶が何らかの欠陥を含んでいると、入射粒子から見て格子位置からずれた原子がチャネル内に存在することになり、これによって直接後方散乱されたり、散乱による方向変化のためにチャネル外にとび出し(ディチャネリング)たりするため、RBSイールドが増加する。したがって、変位原子の量と深さ方向の分布に関する情報が得られる。さらに最近、“ディチャネリング確率のエネルギー依存性”が結晶欠陥の種類によって異なることがわかってきた。例えば、積層欠陥ではディチャネリング確率がエネルギー依存性を持たないのに対し、転位ではエネルギーの $1/2$ 乗に比例する。第5図は、この性質を利用してSOS(Silicon On Sapphire)中の結晶欠陥種の同定を試みたものである⁽⁴⁾。Si/sapphireの界面付近で測定した結果は、Si層の中央付近および表面付近での測定結果と明らかに異なっており、界面付近に存在する結晶欠陥はディチャネリング確率のエネルギー依存性を示さない。これは、sapphire基板上にSiをエピタキシャルに成長させた時、Si層の厚さが増すにつれて結晶欠陥種が変化していることを示している。

チャネリングを利用したRBS法の重要な応用は、結晶中の不純物位置の測定である。不純物がある結晶軸上に存在する場合、イオンをその結晶軸に平行に入射させると、不純物原子は母結晶の原子に隠されてしまうため、不純物原子による散乱のイールドは減る。い

□: 表面近傍, △: 表面から800Åの深さ, ○: Si/sapphireの境界面におけるディチャネリング確率

第5図 SOSにおけるディチャネリング確率の入射エネルギー依存性

ろいろな結晶軸や面について、RBSイールドの入射角依存性を測定することによって、不純物原子の位置を0.1Å程度の精度で決定することができる。不純物原子の結晶内位置測定はチャネリングを利用しない限りきわめて困難であり、これだけを見ても、RBS法の有効さが理解されると思う。

Ⅳ. 放射線損傷のシミュレーション⁽⁵⁾

放射線が物質中を通過すると、電子の励起やイオン化のような電子的過程と、原子核との衝突による核的過程によってエネルギーを失っていく。半導体や化合物のような非金属材料では電子的過程が原因となって材料の損傷を生ずることがあるが、金属材料では電子過程では試料の加熱を生ずるだけで、ほとんど後遺症を残さない。他方、核との衝突では格子点原子をたたき出して格子間原子と空格子点を生ずる。これらの結晶欠陥は金属中を移動し、再結合して消滅するものもあれば、集団化してボイドとなり、試料の体積膨脹を生ずるものもある。この体積膨脹はボイド・スエリングと呼ばれ、中性子照射の場合には、 10^{22} n/cm²以上の線量で現れ、高速増殖炉や核融合炉の材料で重大な問題となってくる。中性子束が $10^{15} \sim 10^{16}$ n/cm²・sの高速増殖炉では1年以上の照射で問題になってくる。米国では増殖炉の燃料被覆材などについて、速中性子 2×10^{23} /cm² ($E \geq 0.1$ MeV)の照射に対してボイド・スエリング $\Delta V/V \leq 5\%$ という規格が要求されているということである。

ところが現存の原子炉での照射では損傷の形成は遅く、 10^{23} /cm²の照射を行うには日本の材料試験炉(JMTR)では約30年かかるし、高速実験炉「常陽」でも

2年近くかかる。したがって、重照射による損傷を短いタイムスケールで調べるには、何らかのシミュレーション手段が必要になる。速中性子でステンレス鋼に $1 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$ ($E \geq 0.1 \text{ MeV}$) の照射量を与えることは約 40 dpa に相当するということである。dpa とは displacement per atom, すなわち試料の1原子当たり平均何回はじきとばされるかという一種の照射単位である。

ところが、加速器からの重粒子線で照射すると、局所的ではあるがこの程度の損傷を与えるのは比較的短時間(数時間から1日程度)ですむ。重イオンでは弾性散乱の断面積が大きいため、中性子よりも数万倍以上の損傷を生ずるからである。第6図に、200 keV C^+ イオンと、14 MeV と 1 MeV 中性子によるステンレス鋼中の displacement damage を示す。もちろん、重イオン照射による損傷は中性子照射の場合のように一様に分布せず、表面付近に局限され、しかも飛程の終端付近に集中するとか、はじき出された原子が次の原子をはじき出していく2次・3次衝突過程の違いの影響とか、試料とは違った異種原子がイオンとして注入される影響とか、いろいろ検討すべき問題があることは事実である。

第6図 1 MeV および 14 MeV 中性子と 200 keV C^+ イオンによるステンレス鋼の損傷の比較

第7図は、304 ステンレス鋼を、200 keV C^+ イオンと速中性子(EBR-II)とで照射した時のスエリングの線量依存性を比較したもので、両者により対応関係が

あることが示されている。この図で、 C^+ イオンと速中性子とで試料の照射温度が違うのは、両者による格子欠陥生成レートの違いと、それらが再結合して消滅するレートの温度依存性—温度が低いと再結合して消滅する割合が大きくなる—を考慮したためで、理論的にも説明できている。重イオン照射でも高速炉照射の結果と一致しない例も報告されており、照射時の金属組織変化の比較など、さらに詳細な研究が進められている。

第7図 速中性子と200 keV C^+ イオンとによって 304 ステンレス鋼に生ずるボイド・スエリングの比較

このような予備実験に基づいて、主要な炉心材料である316ステンレス鋼に少量の他元素を加えて、スエリングに抵抗力のある合金を開発することが試みられている。

第8図は、200 keV C^+ イオン照射で得られた結果で、Ti, Zr, Nb を加えるとスエリングは減少するが、Al や V を加えると逆に増大することを示している。また図には示されていないが、Ti と Si をまぜて加えると、スエリングは驚くほど減少し、スエリングが最大になる温度が低温へ移ることなども見出されている。

ベースになる合金成分の種類や割合、添加する少量元素のコンビネーションなどを系統的に調べて、スエリングに強い炉心材料の開発が期待されるとともに、放射線損傷の基礎機構の解明、照射技術の開発など、これからの問題も多い。

第8図 316 ステンレス鋼に他元素を加えた時のボイド・スエリングの変化

V. 核医学への利用

病院の放射線科という言葉には昔から馴れているが、近頃は核医学という言葉をよく聞くようになった。放射線医学というのは、主としてX線を診断・治療に使う分野として発達し、最近では高速中性子、中間子、重イオンなどによる腫瘍の治療が開発されつつあり、陽子ラジオグラフィなども放射線医学に入るのではないと思う。これらも加速器の利用であるが、小さくとも中型以上の加速器を必要とするので本稿からは省く。これに対して、ラジオアイソトープの医学研究・診断・治療への利用は核医学と呼ばれている。どちらも放射線を利用することには変わらないが、技術的に大きく違うためであろう。RIの医学利用としては、昔から ^{131}I によるパセドウ氏病(甲状腺機能障害)の治療など、いろいろ使われてきた。

しかし、以前からのRI利用に比べ、最近特に“サイクロトロン核医学”などと注目されているのは次の理由によるものである。昔から使われてきたRIは原子炉で大量生産されるもので、したがって、そのほとんどは遅中性子捕獲によってできる母核の同位体であり、陰電子放射体である。これに対して、加速器からの荷電粒子による核反応では、中性子不足核—陽電子放射体—もつくりことができ、これらは母核とは異なった元素のRIで、キャリアーフリーの高い比放射能のものをつくれる。また、加速器で現地生産すれば短寿命RIを使うことができ、患者の被曝や廃棄物処理

の問題がなくなるなど多くのメリットがある。

特に陽電子放射体は、0.51 MeVの消滅 γ 線を2個、 180° 方向へ放出し、この γ 線は体外から測定できるので、サンプルを切り取る必要がないばかりでなく、 180° 方向においた2つの検出器のコインシデンス測定によって、正確な位置決定と体内の運動を追跡することができる。体をとり巻くように検出器群を配置し、それらのコインシデンス測定をコンピュータで画像処理して、体の断層内のRI分布を再現できるようにしたのが、エミッションCT、あるいはポジトロンCTと呼ばれる装置である。X線CTによって形態学的な検査・研究に革命的な進歩がもたらされたように、エミッションCTによって機能学的な検査・研究に画期的な進歩が期待されている。

現在、陽電子放射体として用いられているのは、主として、 ^{11}C (半減期 20 min)、 ^{13}N (100 min)、 ^{15}O (2 min)、 ^{18}F (110 min)などで、 ^{11}C 、 ^{13}N 、 ^{15}O は生体を構成している物質そのものであり、 ^{18}F はグルコースなど代謝に必要な物質の標識に使われている。いずれも13 MeV陽子程度の超小型サイクロトロンで製造できるので、baby cyclotron, compact cyclotronあるいはin-house cyclotronなどと呼ばれ、核医学専用に設計され、市販されるようになってきている。

これらで製造できる核種は限られているが、 ^{11}C 、 $^{11}\text{CO}_2$ 、 $^{13}\text{NH}_3$ などの簡単な化合物から、すでに実用化されている ^{18}F デオキシグルコース(^{18}F -DG)をはじめ、開発されつつある標識化合物とそれによる研究分野は広大なものである。半減期が短いのでRI製造後、分離・合成・消毒・検査などの操作が速やかに行われることが必要で、簡単な化合物では、ボタン操作だけでルーティンに供給できる標識薬剤の自動合成装置(ケミカル・ブラックボックス)がすでに開発されている。使用目的に適した複雑な標識化合物をいかに速く合成するかは、核医学の進歩に不可欠な薬品合成分野となってきた。 ^{18}F -DGを用いた画像処理によって脳疾患の診断に、次々と新しい成果が報告されつつあるとともに、全身用ポジトロンCTによる腫瘍診断にも新しい見通しが開かれつつある。

VI. 加速器による年代測定⁽⁶⁾

^{14}C による年代測定はすでによく知られている。すなわち大気中のチッ素原子核に宇宙線による中性子が衝突して、 $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ 反応でできた ^{14}C が半減期5,730年で β 崩壊していく。したがって、大気中では宇宙線で作られ出される ^{14}C と、崩壊でなくなって

いくもののが放射平衡に達しており、C 1 g 当り 13.5 decays/min, すなわち ^{12}C 原子 5×10^{23} 個の中に ^{14}C 原子が 6×10^{10} 個含まれている。動植物が生きている間は新陳代謝によって、これと同じ濃度の ^{14}C が体内に含まれているが、死んで代謝が止まると ^{14}C は体内に固定され、崩壊して減っていく。これで古代建築の木材やミイラなど、多くの試料の 5×10^3 年から 5×10^4 年にわたる年代が測定されてきた。

しかし、 ^{14}C 原子は 1 g C 中に 6×10^{10} 個も含まれているのに、 β 崩壊するのを待っていて測定するため、わずか 13.5 decays/min ということになり、測定が難しくなる。質量分析器で ^{12}C と ^{14}C 原子を直接ふり分ければ、ずっと精度のよい測定ができるはずである。しかし、通常の質量分析器では、 $^{14}\text{C}^{+}$ と $^{14}\text{N}^{+}$ や $^{12}\text{CH}_2$ イオンなど、比電荷がほとんど等しい原子分子と分離できず、バックグラウンドの除去が至難の業となって成功しなかった。

数年前から加速器を使う方法が開発されつつある。 ^{14}C を数 10 MeV まで加速してストリッパで電子をはぎとり、 dE/dx カウンタと E カウンタを用いて丸裸の原子核の質量と電荷を決定する方法で、核物理学の

分野で粒子選別器として開発されてきた技術を用いる。これによれば、 $^{14}\text{C}^{+}$ と $^{14}\text{N}^{+}$ などは容易に区別される。このように加速器を高エネルギー質量分析器として使うと、 10^{-18} レベルの微量元素分析ができ、従来の放射能測定では数 g 以上の試料を使って 5×10^4 年ぐらいいまでしか測定できなかったのが、数 mg の試料で 10^5 年ぐらいいまで測定できるものと期待されている(第 9 図)。

また、この方法は ^{14}C だけに限らず、宇宙線によって大気中につくられる放射性同位体なら、同じように適用することができ、 ^9Be (1.5×10^6 yr), ^{26}Al (1.1×10^6 yr), ^{36}Cl (3.1×10^5 yr) などの濃度測定によって、深海の沈殿物の年代やその動き、石筍成長の年代測定など水文学、地理学、海洋学など、いろいろの分野への応用が期待されている。

Ⅶ. おわりに

ビーム・フォイル分光学を含むイオン・原子衝突についても述べたいし、放射化分析と中性子ラジオグラフィも残っているが、すでに予定の紙数を超過して最初にお断わりしたように“食いちらし”になってしまった。各テーマごとに、それぞれの分野の専門家に相当のページ書いて頂ければ、ちゃんとした論文ができと思うが、本稿のようなサーベイも、それなりの価値があるものと評価して頂ければ幸いである。

—参考文献—

- (1) JOHANSSON, S.A.E., JOHANSSON, T.B.: *Nucl. Instrum. Methods*, **137**, 473 (1976); 森田 右: “微量元素分析”, 加速器とその応用, (1981), 丸善.
- (2) YAMADERA, A., ISHII, K., SERA, K., MORITA, S.: *ibid.*, **181**, 15 (1981).
- (3) CHU, W.K., MAYER, J.W., NICOLET, M.A.: “Back-Scattering Spectroscopy”, (1978), Academic Press.
- (4) YAMAMOTO, Y., SUGIYAMA, T., HARA, A., INADA, T.: *J. Appl. Phys.*, **53**, 793 (1982).
- (5) TERASAWA, M.: *Proc. Int. Symp. Small Accelerators and Their Applications, Taipei*, (1982); 石野 榮: ニューマトロン通信, No. 5, 7 (1981).
- (6) MULLER, R.A.: *Science*, **196**, 489 (1977); *Physics Today*, p. 23 (Feb. 1979).

第 9 図 カナダと米国のグループが開発しているタンデム型バンデグラフ装置を用いた年代測定装置