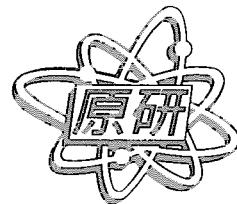


JAERI-Conf

JP0150010

2000-008



原研・大学プロジェクト共同研究 シンポジウム報告書

—「放射線高度利用研究の成果と今後の展望」—

1999年1月27日、国立教育会館、東京

2000年6月

原研・大学プロジェクト共同研究
放射線高度利用研究プロジェクト専門部会
大学・原研プロジェクト共同研究
放射線高度利用研究専門委員会

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

原研・大学プロジェクト共同研究
シンポジウム報告書
—「放射線高度利用研究の成果と今後の展望」—
1999年1月27日、国立教育会館、東京

日本原子力研究所高崎研究所
原研・大学プロジェクト共同研究
放射線高度利用研究プロジェクト専門部会

大学・原研プロジェクト共同研究
放射線高度利用研究専門委員会*

(2000年4月5日受理)

本報告は、平成11年1月27日、東京において開催された「原研・大学プロジェクト共同研究シンポジウムー放射線高度利用研究の成果と今後の展望ー」をまとめたものである。これまででも研究成果を発表する機会を設けてきたが、今回のシンポジウムではさらに放射線高度利用研究プロジェクトの将来を議論するという試みを初めて行った。研究発表では、(1) オンライン同位体分離器を用いた核分光・核物性、(2) 加速器放射線に関する研究(線源評価及び遮蔽)、(3) イオンビーム利用による材料解析法の研究、(4) 高分子材料のイオン照射ミクロ構造に関する研究、(5) 核融合炉材料に対する核変換生成物の影響に関する研究、(6) ポジトロン放出核種を用いた植物の生体機能解明、の各研究テーマで最近得られた成果が発表された。新しい研究テーマとして、“大気マイクロ PIXE 分析システムの開発とその応用”が提案され、8人のパネリストによって、本プロジェクトのこれまでの歩みと将来が議論された。

高崎研究所：〒370-1292 群馬県高崎市綿貫町1233

*東京大学原子力研究総合センター：東京都文京区弥生2-11-16

Proceedings of the Symposium on the Joint Research Project
between JAERI and Universities

—Status and Perspective of the Advanced Radiation Technology Project —
January 27, 1999, National Education Center, Tokyo, Japan

Committee for the Joint Research Project between JAERI and Universities
on the Advanced Radiation Technology
and

Committee for the Universities's JAERI Collaborative Research
on the Advanced Radiation Technology*

Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Watanuki-cho, Takasaki-shi, Gunma-ken

(Received April 5, 2000)

This report describes the Proceedings of the Symposium on the Joint Research Project between JAERI and Universities — Status and Perspective of the Advanced Radiation Technology Project —, held at Tokyo on January 27, 1999. After a series of conferences which had been held at the second or third year to present the main activities of this unique collaborative project system, the symposium was particularly focused on critical reviewing of the project and on its future. The scientific papers presented were the recent achievements in the themes: 1) nuclear spectroscopy and nuclear materials science with an isotope separator on-line; 2) radiation shielding and nuclear data for use of accelerators; 3) materials analysis methods using ion beams; 4) microstructure in polymer materials irradiated with ions; 5) effects of transmutation products in fusion-reactor materials; 6) physiological study of plants using positron-emitting isotopes. The new theme titled "Development and application of micro PIXE analysis in the atmospheric pressure" was proposed. Eight panelists discussed the future of the project.

Keywords: Joint Research Project, Radiation Technology, Ion Beams, Nuclear Spectroscopy, Nuclear Materials Science, Radiation Shielding, Nuclear Data, Accelerators, Materials Analysis, Polymer, Fusion-reactor Materials, Plant Physiology, Positron-emitting Isotopes, PIXE

*Research Center for Nuclear Science and Technology, The University of Tokyo

目 次

1.はじめに	1
河出 清 (放射線高度利用研究プロジェクト専門部会長、名大)	
2.研究成果報告	2
2.1 オンライン同位体分離器を用いた核分光・核物性研究	2
2.1.1 概要説明 河出清 (名大)	2
2.1.2 中性子欠損 La 核種の崩壊による原子質量・核構造の研究	4
長 明彦 (原研)	
2.1.3 微小角度散乱法による偏極不安定核ビームの開発研究	10
大坪 隆 (新潟大)	
2.2 加速器放射線に関する研究 (線源評価及び遮蔽)	14
2.2.1 概要説明 中村尚司 (東北大)	14
2.2.2 加速器遮蔽実験	16
中島 宏 (原研)	
2.2.3 荷電粒子による中性子、ガンマ線及び二次荷電粒子の生成	32
渡辺幸信 (九大)	
2.3 イオンビーム利用による材料解析法の研究	43
2.3.1 概要説明 楢本洋 (原研)	43
2.3.2 構造感応型イオン誘起 2 次電子分光	46
工藤 博 (筑波大)	
2.3.3 異種物質界面における吸着原子のその場イオンビーム解析法の開発とそれを用いた反応性原子の吸着過程の研究	57
柚原淳司 (名大)	
2.4. 高分子材料のイオン照射ミクロ構造に関する研究	63
2.4.1 概要説明 瀬口忠男 (原研)	63
2.4.2 ポリエチレンに生成する二重結合：線質(LET)と収量・分布の相関	65
工藤久明 (原研)	
2.4.3 ポリシランの架橋・切断反応における線質(LET)依存性	71
田川精一 (阪大)	
2.5 核融合炉材料照射損傷に対する核変換生成物の影響に関する研究	73
2.5.1 概要説明 関村直人 (東大)	73
2.5.2 トリプルビーム照射によるバナジウム合金のスエリング挙動	75
関村直人 (東大)	
2.5.3 多重イオン照射による鉄鋼材料のミクロ組織化	77
内藤 明 (原研)	
2.6 ポジトロン放出核種を用いた植物の生体機能解明	80
2.6.1 概要説明 久米民和 (原研)	80

2.6.2 イネ科植物における ^{11}C -メチオニンの動態	87
中西啓仁（東大）	
2.6.3 植物体内外における窒素の長距離移行のリアルタイム解析	94
林 浩昭（東大）	
3. 放射線高度利用研究の展望	102
3.1 TIARA におけるマイクロ PIXE 分析の展望	102
石井慶造（東北大）	
3.2 パネルディスカッション：これまでの歩みと展望	107
司会 勝村庸介（東大）	
原研 渡辺 宏（環境・資源利用研究部）、前川 洋（企画室）、 関根俊明（物質科学研究部）	
大学 伊藤泰男（東大）、河出 清（名大）、関村直人（東大）	
4. まとめと閉会の挨拶	111
萩原 幸（原研高崎研究所長）	
付録	112

Contents

1. Opening Address	1	
Kiyoshi Kawade (Chairman of the Committee for the Joint Research Project between JAERI and University on the Advanced Radiation Technology; Nagoya Univ.)		
2. Reports on the Joint Research Programs during the Period from 1994 to 1998	2	
2.1 Nuclear Spectroscopy and Nuclear Materials Science with an Isotope Separator On-Line		
2.1.1 Brief Outline		2
Kiyoshi Kawade (Nagoya Univ.)		
2.1.2 Decay Study of Neutron-Deficient La Isotopes for Atomic Masses and Nuclear Structure		4
Akihiko Osa (JAERI)		
2.1.3 Polarized Beam of Unstable Nuclei via Ion Beam Surface Interaction at Grazing Incidence		10
Takashi Ohtsubo (Niigata Univ.)		
2.2 Study on Accelerator Radiation (Source Term and Shielding)		14
2.2.1 Brief Outline		14
Takashi Nakamura (Tohoku Univ.)		
2.2.2 Shielding Experiments for Accelerator Facilities		16
Hiroshi Nakashima (JAERI)		
2.2.3 Production of Secondary Neutrons, Gamma-Rays, and Charged-Particles from Charged-Particle Induced Reactions		32
Yukinobu Watanabe (Kyushu Univ.)		
2.3 Materials Analysis Methods Using Ion Beams		43
2.3.1 Brief Outline		43
Hiroshi Naramoto (JAERI)		
2.3.2 Structure-Sensitive Ion-Induced Electron Spectroscopy		46
Hiroshi Kudo (Univ. of Tsukuba)		
2.3.3 Development of In-Situ RBS Analysis of Adsorbate Atoms at the Hetero-Interface and Study of Adsorption and Desorption Processes of Reactive Atoms		57
Junji Yuhara (Nagoya Univ.)		
2.4 Microstructure in Polymer Materials Irradiated with Ions		63
2.4.1 Brief Outline		63
Tadao Seguchi (JAERI)		
2.4.2 Double Bond Formation in Polyethylene by Ion Beam Irradiation		

— LET Dependence of Yield and Distribution	65
Hisaaki Kudoh (JAERI)	
2.4.3 LET Dependence of Cross-Linking and Chain Scission in Irradiated Polysilanes	71
Seiichi Tagawa (Osaka Univ.)	
2.5 Effects of Transmutation Products on Radiation Damage in Fusion-Reactor Materials	73
2.5.1 Brief Outline	73
Naoto Sekimura (The Univ. of Tokyo)	
2.5.2 Swelling Behavior in Vanadium as Studied by Triple Beam Irradiation	75
Naoto Sekimura (The Univ. of Tokyo)	
2.5.3 Microstrucural Change in Steels due to Multiple Ion Irradiation	
Akira Naito (JAERI)	77
2.6 Physiological Study of Plants Using Positron-Emitting Isotopes . .	80
2.6.1 Brief Outline	80
Tamikazu Kume (JAERI)	
2.6.2 ¹¹ C-Methionine Translocation in Barley	87
Hiromi Nakanishi (The Univ. of Tokyo)	
2.6.3 Real-Time Analysis of Nitrogen Translocation in Plants	94
Hiroaki Hayashi (The Univ. of Tokyo)	
3. Prospects of the Advanced Radiation Technology Project	102
3.1 Development of Micro-PIXE Analysis at TIARA	102
Keizo Ishii (Tohoku Univ.)	
3.2 Panel Discussion on the History and Future of the Advanced Radiation Technology Project	107
Chairman: Yosuke Katsumua (The Univ. of Tokyo)	
Panelists of JAERI: Hiroshi Watanabe (Dept. of Radiation Research for Environment and Resources.), Hiroshi Maekawa (Office of Planning), Toshiaki Sekine (Dept. of Materials Science)	
Panelists of Univ.: Yasuo Ito (The Univ. of Tokyo), Kiyoshi Kawade (Nagoya Univ.), Naoto Sekimura (The Univ. of Tokyo)	
4. Closing Remarks	111
Miyuki Hagiwara (Director General of Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment, JAERI)	
Appendix	112

1. はじめに

名古屋大学大学院工学研究科 河出 清

本プロジェクト共同研究は平成元年に始まり、今年は平成 10 年度に 3 年間の予定で始まった第 3 期の第 2 年目にあたります。

今回の発表は第一部の研究成果として（1）オンライン同位体分離器を用いた核分光・核物性、（2）加速器放射線に関する研究（線源評価及び遮蔽）、（3）イオンビーム利用による材料解析法の研究、（4）高分子材料のイオン照射ミクロ構造に関する研究、（5）核融合炉材料に対する核変換生成物の影響に関する研究、

（6）ポジトロン放出核種を用いた植物の生体機能解明、の各研究テーマについて報告があります。これらの発表を通じてイオンビーム利用研究の活況と明るい将来性を知って頂けるものと思います。

第二部の放射線高度利用研究の展望に関して、（1）平成 11 年度から新しい研究テーマとして提案される「大気マイクロ PIXE 分析システムの開発とその応用」に関して期待される成果と将来展望の報告、（2）プロジェクト共同研究のこれまでの歩みと将来展望についてのパネル討論、があります。

プロジェクト共同研究は大学と原研という組織の目的と環境の異なる研究者集団が共同で研究を行うという試みであり、社会的要請度が高くそれが発展させていきたい分野を、協力して研究計画を立て事前評価を行った上で研究を進め、3 年間で成果を得るというものです。研究の推進には研究テーマのスクラップアンドビルトと研究者間の相互啓発が基本となっております。研究施設が完成する以前に早めにプロジェクト共同研究を立ち上げるとともに開かれたプロジェクト共同研究を目指しました。10 年目という節目の今年、プロジェクト共同研究のあり方とこれまでの成果および将来展望について、原子力学会誌の特集号に「大学・原研プロジェクト共同研究—成果と展望—」として取りまとめて掲載されました^{*)}。

成果発表会が開催されるにあたり、研究者各位、原研、および東大原総センターの方々のご尽力とご努力に感謝申し上げます。

^{*)}日本原子力学会誌, Vol.41, No.10, 993 (1999)

2. 研究成果報告

2.1 オンライン同位体分離器を用いた核分光・核物性研究

2.1.1 概要説明

原研物質科学研究所 関根俊明
名古屋大学大学院工学研究科 河出 清

要旨 この5年間大学の4グループと原研が協力し、TIARAのAVFサイクロトロンに接続したオンライン同位体分離器（ISOL）を用いて不安定核の核分光学的研究、核スピン偏極ビームの開発、及びISOL用レーザーイオン源の開発を行ってきた。また、¹³³Csのメスバウア定数決定のために、¹³³Xeをイオン注入した金属について、発光メスバウア分光を行った。その中から本シンポジウムでは、新核種¹²⁵Prなど、希土類元素の中性子欠損不安定核の核分光学的研究、および核物性的応用を意図する核スピン偏極した不安定核ビームの開発について報告する。

Nuclear Spectroscopy and Nuclear Materials Science
with an Isotope Separator On-Line

T. Sekine and K. Kawade*

Department of Materials Science, JAERI, and

* Department of Energy Engineering and Science, Nagoya University

Abstract: Using the isotope separator on-line connected to the AVF cyclotron at TIARA, JAERI and four groups of universities have carried out in collaboration for the past five years spectroscopic studies of unstable nuclei together with developmental work for a nuclear spin-polarized beam and a laser ion source. In addition, emission Moesbauer spectroscopy of ¹³³Xe-implanted metals was done for the determination of the Moesbauer constant of ¹³³Cs. Two topics of them are presented in this symposium: decay spectroscopy of neutron-deficient rare-earth nuclei, including the new isotope ¹²⁵Pr; development of a nuclear spin-polarized beam of unstable nuclei, which aims at the application of unstable nuclei to the study of condensed matter.

Key words: Isotope separator on-line, Unstable nuclei, Decay spectroscopy, ¹²⁵Pr, Nuclear spin polarization, Condensed matter, Moesbauer spectroscopy, Ion implantation, ¹³³Xe, ¹³³Cs

重イオンを高エネルギー・高強度で加速できる TIARA-AVF サイクロトロンは極限領域の不安定核を生成させることができる。そのため TIARA 施設に不安定核の性質の研究とその応用を目的とするオンライン同位体分離器(ISOL)が設置された。本プロジェクト共同研究は参加グループが相補的に協力して ISOL 利用技術の向上を図り、ISOL 施設として国内の拠点の一つとすることを狙いとした。

研究の全体像は図 1 に示すように ISOL を共通基盤とし、不安定核の性質を研究する核分光学

的研究を主としながら、不安定核をプローブとする核物性的研究の展開を図った。第3期は次の4課題を実施している。

- 1) 希土類元素領域中性子欠損核の崩壊核分光(名古屋大学 山本洋)^{2,3)},
- 2) レーザーイオン源による希土類元素領域中性子欠損核のレーザー核分光(東邦大学 金衛国),
- 3) イオン注入原子のメスバウア一分光による核物性的研究(信州大学 村松久和)⁴⁾
- 4) 偏極核のイオン注入による核電磁モーメントの研究(新潟大学 大矢進)⁵⁾

これらの中から、中性子欠損希土類領域核の核分光及び核物性研究に向けた偏極核ビームの開発について成果を報告する。

- 1) T. Sekine, S. Ichikawa, A. Osa, M. Koizumi, H. Iimura, K. Tsukada, I. Nishinaka, Y. Hatsukawa, Y. Nagame, M. Asai, Y. Kojima, T. Hirose, M. Shibata, H. Yamamoto and K. Kawade, J. Radioanal. Nuclear Chem. **239**, 127 (1999).
- 2) A. Osa, M. Asai, M. Koizumi, T. Sekine, S. Ichikawa, Y. Kojima, H. Yamamoto and K. Kawade, Nucl. Phys. **A588**, 185c (1995).
- 3) M. Asai, T. Sekine, A. Osa, M. Koizumi, Y. Kojima, M. Shibata, H. Yamamoto and K. Kawade, Phys. Rev. C **56**, 3045 (1997).
- 4) H. Muramatsu, E. Tanaka, H. Ishi, H. Ito, M. Misawa, T. Miura, Y. Fujita, K. Omata, S. Muto, M. Koizumi, A. Osa, T. Sekine, M. Yanaga, K. Endo, H. Nakahara and M. Fujioka, Phys. Rev. B **58**, 11313 (1998).
- 5) T. Otsubo, S. Ohya, K. Hori, K. Kimura, S. Yachida, J. Goto, Y. Izubuchi, S. Muto, T. Sekine, M. Koizumi and A. Osa, Hyperfine Interact. **120/121**, 695 (1999).

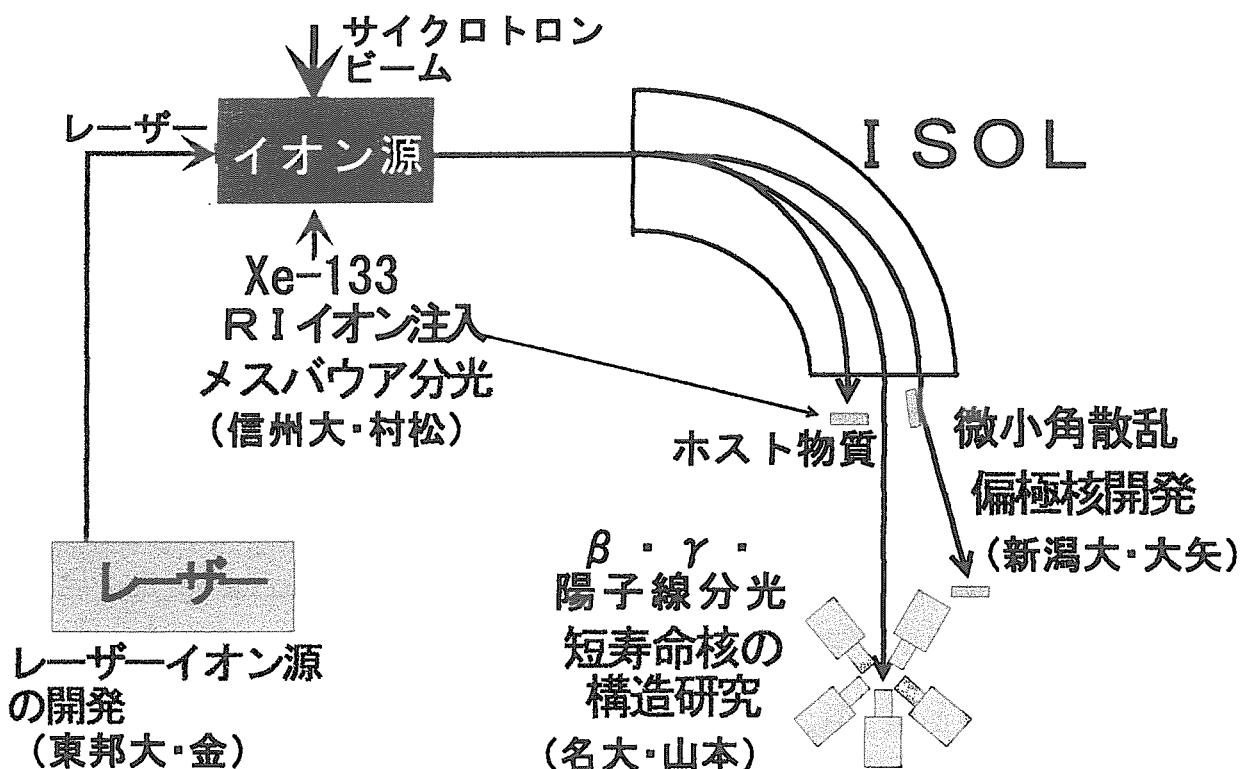


図1 TIARA-ISOLによる核分光・核物性研究のテーマ



JP0150011

JAERI-Conf 2000-008

2.1.2 中性子欠損 La 核種の崩壊による原子質量・核構造の研究

原研 長 明彦、小泉光生、関根俊明

名大工 浅井雅人、小島康明、廣瀬知明、柴田理尋、山本 洋、河出 清

京大炉 谷口秋洋

高崎研 TIARA の AVF サイクロトロンに付設した TIARA-ISOL を用いて原研大学プロジェクト共同研究として、平成 6 年度から行った研究の成果を報告する。短寿命核種核分光実験装置を用いて、より短寿命の原子核の研究が可能になり、新核種 ^{125}Pr ($T_{1/2}=3.3(7)\text{s}$)を発見した。また ^{36}Ar ビームの重イオン核反応で生成する原子核変形上の遷移領域に当たる La-Ce-Pr の中性子欠損核種の崩壊図式を作成した。このうち収量が多い La の崩壊に関しては更に詳細に、 $\gamma-\gamma$ 角度相関測定による $^{124,126,128,130}\text{Ba}$ の 0^+ 準位励起状態の研究、 β^+ 線最大エネルギー測定による $^{124-130}\text{La}$ についての崩壊エネルギー(Q_{EC})/原子質量の決定、 $\beta-\gamma$ 遅延同時計数測定による $^{122,124,126}\text{Ba}2^+$ 第 1 励起準位の決定を行った。これらの Ba 元素の核構造についての実験結果を理論計算と比較し議論を行った。

Decay Study of Neutron-Deficient La Isotopes for Atomic Masses and Nuclear Structure

Akihiko OSA¹, Mitsuo KOIZUMI¹, Toshiaki SEKINE¹, Masato ASAII², Yasuaki KOJIMA², Tomoaki HIROSE², Michihiro SHIBATA², Hirosi YAMAMOTO², Kiyoshi KAWADE², and Akihiro TANIGUCHI³

¹ Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute

² Department of Energy Engineering and Science, Nagoya University

³ Research Reactor Institute, Kyoto University

We report the decay spectroscopic studies with the TIARA-ISOL connected to an AVF cyclotron at the Takasaki site of JAERI between 1994 and 1998 under the Universities-JAERI Collaborative Research Project. Decay spectroscopic studies have been carried out for neutron-deficient La-Ce-Pr isotopes in the mass 120-130 region, which were prepared by on-line mass-separation following the fusion-evaporation reactions $^{92,\text{nat}}\text{Mo}(^{36}\text{Ar}, 3\text{pxn})$. The ^{125}Pr isotope was newly identified with a half-life of $3.3(7)$ s and its decay scheme was presented. The assignment of the 135.8-keV γ -ray to the decay of ^{125}Pr was supported by its coincidence with Ce X-rays and β^+ rays. Low-spin states in $^{124,126,128,130}\text{Ba}$ fed by the β^+/EC decay of their La parents were investigated by means of the $\gamma-\gamma$ angular correlation measurement. Q_{EC} -values/atomic masses of neutron-deficient $^{124-130}\text{La}$ were determined by β^+ -ray maximum energy measurement. Half-lives of the first 2^+ state in $^{122,124,126}\text{Ba}$ were measured using a $\beta-\gamma$ delayed coincidence method. The experimental results obtained for the nuclear structure of the Ba isotopes are discussed in comparison with theory.

Key words: TIARA-ISOL, γ -ray, β -ray decay scheme, atomic mass,

オンライン同位体分離器、核反応、重イオン、エネルギー準位、 γ 線、 β 線、不安定核、崩壊図式、原子質量

はじめに

TIARA-ISOL は日本原子力研究所高崎研究所イオン照射研究施設(TIARA)の AVF サイクロトロンに付設され 1993 年から実験を開始した。第 I 期で設置した短寿命核種核分光実験装置テープ装置の調整を行い、より短時間のテープ送り時間設定での運転を安定して行うことが可能になった。ISOL を用いた β 崩壊核分光では、 ^{36}Ar ビームの重イオン核反応で生成する原子核変形の上で遷移領域に当たる La-Ce-Pr の中性子欠損核種の崩壊について γ 線シングルス測定、 $\gamma-\gamma$ 同時計数測定を基本として崩壊図式を作成している。このうち収量が多い La の崩壊に関しては更に詳細に、 $\gamma-\gamma$ 角度相関測定による励起準位のスピン及び γ 遷移の多重極度決定、 β^+ 線最大エネルギー測定による崩壊エネルギー(Q_{EC})/原子質量の決定、 $\beta-\gamma$ 遅延同時計数測定による励起準位寿命の決定を行ってきた。

新核種 ^{125}Pr の発見

短寿命核分光実験装置テープ装置の調整により、テープ送り時間設定を短くして運転することが可能になり、より短寿命の原子核を測定することが可能になった。 $^{36}\text{Ar} + ^{92}\text{Mo}$ の反応生成物を質量分離し、X/ γ 線スペクトルマルチスケーリングによる β 半減期測定、 $\beta-\gamma$ 同時計数測定、X- γ 同時計数測定などを行い、質量数 125 で Pr の β 崩壊に伴う CeKX 線と同時計数する γ 線を見いだし未知核種 ^{125}Pr ($T_{1/2}=3.3(7)\text{s}$)の発見に成功した^[1]。

$\gamma-\gamma$ 角度相関測定

通常、 $\gamma-\gamma$ 角度相関測定は角度相関曲線を得るために必要な角度での測定を 2 台の検出器を使ったゴニオメータで行う。TIARA-ISOL では限られた実験時間内で必要な統計量を得るために、5 台の Ge 検出器を用いオンライン実験に適用できる $\gamma-\gamma$ 角度相関測定システムを開発した。この測定システムでは Ge 検出器を Fig. 1 の様に配置することにより、 $90^\circ, 100^\circ, 110^\circ, 120^\circ, 130^\circ, (130^\circ), 140^\circ, 150^\circ, 160^\circ, 170^\circ$ の 10 通り 9 角度の組み合わせができる、解析時にコインシデンスする γ 線を検出器間で入れ替えることにより 20 測定点が得られる^[2](Fig. 2)。TIARA-ISOL で分離した $^{124,126,128,130}\text{La}$ を測定し $^{124,126,128,130}\text{Ba}$ の励起状態について研究を行った。特に $^{124,126,128}\text{Ba}$ に関しては La 低スピン核異性体からの β 崩壊により、インビーム分光法では観測しにくい 0^+ 準位についての情報を得ることができた^[3](Fig. 3)。その結果、 0^+_2 準位のエネルギーは ^{128}Ba で最低になり、原子核の変形が更に進む ^{122}Ba 近傍では 0^+_2 準位と 0^+_3 準位が逆転することが予想される。

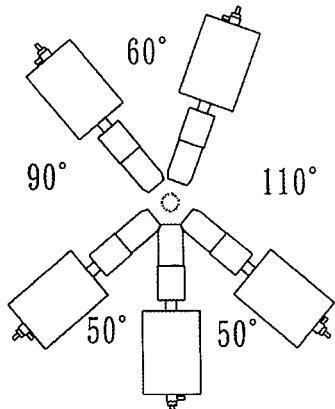


Fig. 1 Configuration of five HPGe detectors for $\gamma-\gamma$ angular correlation measurements.

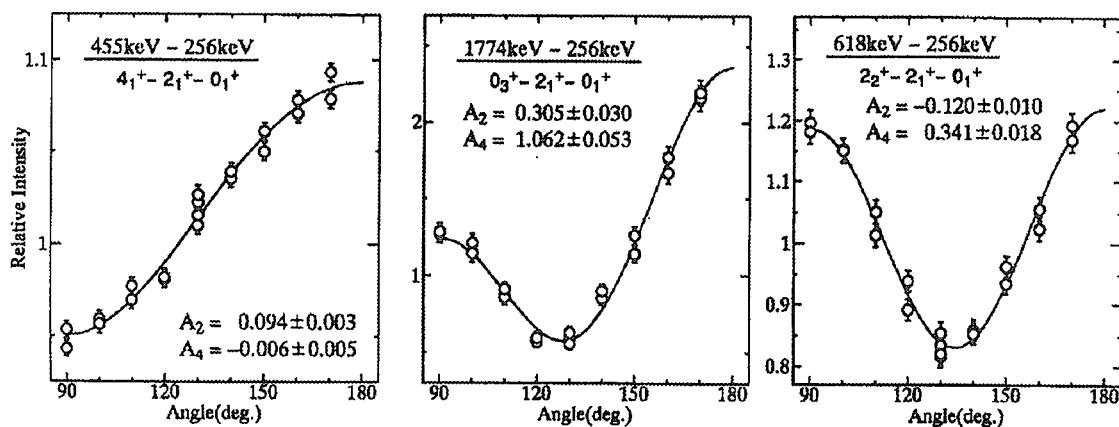
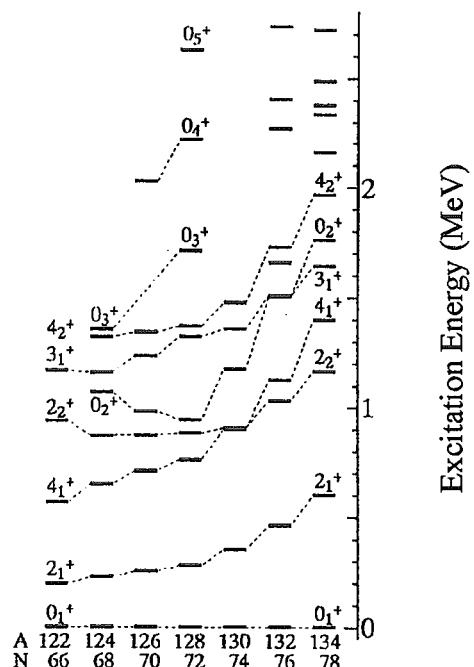
Fig. 2 Examples of $\gamma-\gamma$ angular correlation for cascades in ^{126}Ba .

Fig 3 Energy systematics of low-lying states in neutron-deficient Ba nuclei.

β^+ 線最大エネルギー測定

β^+ 線最大エネルギーは β^+ /EC 崩壊前の原子核の状態をつなぐ物理量として、 β 半減期などと共に重要な測定対象である。通常、低エネルギー光子検出器として使われる Be 入射窓を持つプレナー型 Ge 検出器を用いて β^+ 線最大エネルギーを測定し Q_{EC} 値を決定した。 β^+ 線最大エネルギーを測定するために予め Ge 検出器の単一エネルギー陽電子線に対する応答関数を京都大学原子炉実験所で実験的に求めた(Fig. 4)。Ge 検出器のエネルギー校正は ^{56}Co 線源及び塩素の熱中性子捕獲反応に伴う即発 γ 線を利用して 8.6MeV まで行った。 β^+ 線スペクトルは応答関数を使ってアンフォールディングした後、Fermi-Kurie プロットし直線フィッティングで β^+ 線最大エネルギーを求めた。この測定系により 50keV の精度で β^+ 線最大エネルギーを決定することができる。 $^{124,125,126,127,130}\text{La}$ について初めて実験的に Q_{EC} を得ることができ、 $^{128,129}\text{La}$ についても精度を向上させることができた^[4,5](Table 1)。2 中性子分離エネルギーを系統的に調べたところ、 ^{129}La において実験誤差を大きく超える変化が見られ、これは ^{128}La と ^{129}La の間で基底状態の核構造に大きな変化が生じている可能性を示唆している。

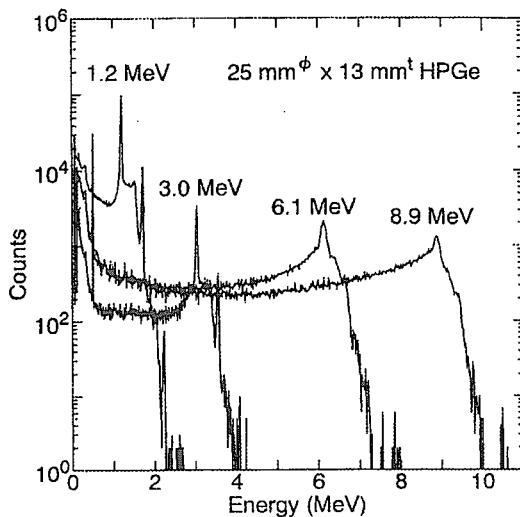


Fig. 4 Experimental response functions for monoenergetic positrons.

Table 1 Experimental Q_{EC} -values deduced from β^+ -ray maximum energy measurements.

Nuclide	$T_{1/2}$	Level (keV)	E_{β}^{\max} (keV)	Q_{EC} (keV)	
				Present work	Previous work
				Experimental	Evaluated
$^{124}\text{La(HI)}$	29s	2690.6	5200(160)	8930(110)	8800(300) [#]
		3094.9	4830(140)		
^{125}La	1.3m	1284.1	3650(90)	5950(70)	5640(390) [#]
		1311.0	3610(100)		
$^{126}\text{La(HI)}$	54s	710.9	5900(150)	7700(100)	7570(300) [#]
		1938.7	4780(120)		
$^{126}\text{La(LI)}$	<50s	2029.7	4860(400)	7910(400)	
^{127}La	5.1m	293.8	3700(100)	5010(70)	4690(250) [#]
		1674.0	2310(90)		
$^{128}\text{La(HI)}$	5.4m	2427.7	3370(100)	6820(100)	6650(400)
^{129}La	11.6m	110.6	2600(70)	3740(40)	3720(50)
		278.6	2440(50)		
^{130}La	8.7m	357.2	4260(120)	5660(70)	5600(210) [#]
		907.7	3740(90)		

[#]Evaluated by mass systematics.

励起準位寿命測定

我々は、偶 Ba 核 2^+ 第 1 励起準位の寿命について β - γ 遅延同時計数測定による結果を以前報告した^[6]。その後、反跳距離法で測定した ^{124}Ba 核 2^+ 第 1 励起準位の寿命が報告^[7]されたが、 β - γ 遅延同時計数測定での測定値との間に不一致が見られた。そこで TIARA-ISOL で $^{122,124,126}\text{La}$ を分離し、プラスチックシンチレーション検出器、 BaF_2 シンチレーション検出器、Ge 検出器を用いた β - γ - $\gamma(\tau)$ 遅延同時計数測定を行った。初期段階の解析では、 β - γ 遅延同時計数測定による結果は反跳距離法の結果に対して長い寿命を示していた。その後、解析方法を検討した結果、 β - γ 遅延同時計数測定では妨害事象として、検出器及びその周辺の絶縁物質中の陽電子寿命($\tau=350\sim 500\text{ps}$)やポジトロニウムが生成することによる消滅寿命が時間スペクトルに含まれることが分かった(Fig. 5)。妨害事象を考慮して解析した結果、 ^{124}Ba についても 2^+ 第 1 励起準位寿命は反跳距離法の結果と良く一致し、それらの値から得られる換算遷移確率 $B(E2)$ は ^{122}Ba も含めてパウリの排他律を考慮しない理論値に良く合うことが明らかになった(Fig. 6)。

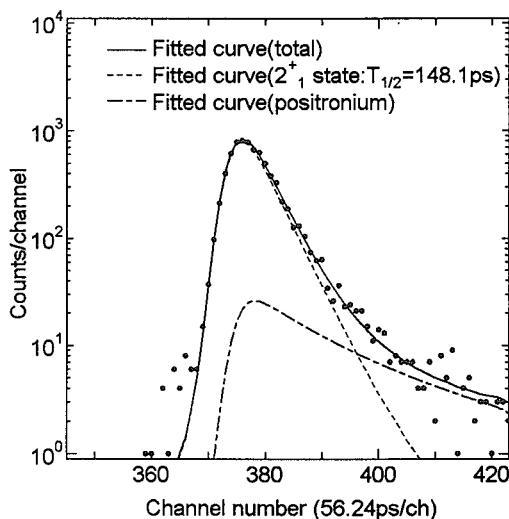


Fig. 5 Time distribution curve gated with the $2^+_1 \rightarrow 0^+_1$ transition of ^{126}Ba .

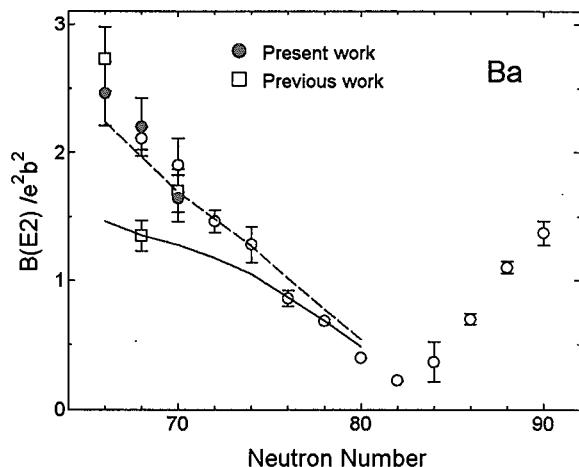


Fig. 6 $B(E2)$ values for Ba isotopes. The solid and dashed lines are the results of the IBM-2 calculation with and without the Pauli-blocking effect, respectively.

Table 2 Half-lives of the 2^+_1 state and the corresponding $B(E2)$ values for $^{122,124,126}\text{Ba}$ isotopes.

Nuclide	Excitation energy (keV)	$T_{1/2}$ (ps)	Present work $B(E2)$ ($e^2 b^2$)	Previous work $T_{1/2}$ (ps)	Previous work $B(E2)$ ($e^2 b^2$)
^{122}Ba	196.6	329(33)	2.46(25)	297(27) ^[7]	2.71(25)
^{124}Ba	230.0	183(19)	2.20(23)	297(26) ^[7] 191(8) ^[8]	1.35(12) 2.09(9)
^{126}Ba	255.8	146(16)	1.64(18)	141(14) ^[7] 126(14)	1.71(17) 1.90(21)

$$B(E2)[e^2 b^2] = \frac{28.29 \times 10^{13}}{(1+\alpha)(E_\gamma [\text{keV}])^5 T_{1/2} [\text{ps}]}$$

今後

TIARA-AVF サイクロトロンでは 1999 年度中に、ECR イオン源の増設を行う予定である。この新しいイオン源により、我々が実験に利用している $^{36}\text{Ar}^{8+}$ ビームの強度は、現行の約 200 p-nA から約 2 p- μA と 10 倍程度増強されることが期待される。1 次ビームの増強とイオン種の増加により、研究対象や測定方法の選択肢を拡大することが可能となる。今後、技術的に解決しなければならない点としては、ISOL ターゲット及びイオン源構造材の寿命があげられる。現在 $^{36}\text{Ar}^{8+}$ 195 MeV イオンビーム 200 p-nA で照射した場合、Mo ターゲットは 20~40 時間、イオン源構造材として使用している 1.5 μm 厚 Ta 金属箔は約 20 時間で亀裂・細孔が生じる。現在使用している表面電離型イオン源を改良し寿命を延ばすと共に、ターゲットの交換作業に伴う被曝の低減をはかる。また、表面電離型イオン源室内にガスの導入が可能なイオン源でのオフラインテスト時に $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}, \text{CCl}_4$ 等のガス導入に伴いイオン電流が 10 倍程度増加する現象が見られた。オンラインで $^{126}\text{La}, ^{130}\text{Pr}$ のイオン化挙動を観察した結果、イオン化効率の増加は観測されなかったものの、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ ガス導入に伴う金属イオン/酸化物イオン収量の変化が見られた。この領域の核分光では La に β^+/EC 崩壊すると考えられる核異性体が存在し、基底準位と各異性体の β 半減期等をそれぞれ決定するには元素単離の技術が不可欠である。この技術としては元素固有の 2 光子もしくは 3 光子共鳴吸収による元素選択性を持つイオン化法であるレーザーイオン源の開発を進めている。

参考文献/References

- [1] A.Osa *et al.*, " β^+ decay unstable praseodymium isotopes: $^{127}\text{Pr}, ^{126}\text{Pr}$ and the new isotope ^{125}Pr ," *Nucl.Phys.A* **588** (1995) 185c.
- [2] M.Asai *et al.*, "A five-HPGe detector system for $\gamma-\gamma$ angular correlation measurements for mass-separated short-lived nuclei," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **398** (1997) 265.
- [3] M.Asai *et al.*, "Energy systematics of low-lying 0^+ states in neutron-deficient Ba nuclei," *Phys. Rev. C* **56** (1997) 3045.
- [4] Y.Kojima *et al.*, "Measurement of Q_{EC} values of ^{126}La isomers," *Appl. Radiat. Isot.* **49** (1998) 829.
- [5] Y.Kojima *et al.*, " Q_{EC} measurements of $^{124,125,127-130}\text{La}$," *J. Phys. Soc. Jpn.* **67** (1998) 3405.
- [6] T.Morikawa *et al.*, "Lifetime measurement of the first 2^+ state in $^{122,124,126}\text{Ba}$," *Phys. Rev. C* **46** (1992) R6.
- [7] K.Uchiyama *et al.*, "Measurement of the lifetime of the first 2^+ state in ^{124}Ba ," *Euro. Phys J. A* **2** (1998) 13.



JP0150012

JAERI-Conf 2000-008

2.1.3 微小角度散乱法による偏極不安定核ビームの開発研究

大坪 隆、大矢 進、木村浩之、堀 一隆、谷内田聰、出淵善智、後藤 淳、
武藤 豪¹、長 明彦²、小泉光生²、関根俊明²
新潟大学理学部、KEK¹、日本原子力研究所²

我々はオンライン同位体分離装置(ISOL)からの不安定核を用いて微小角度散乱法による生成偏極の測定を行った。ISOLからの60keVに加速された¹²⁴Csビームを用い、核磁気共鳴を行うことで偏極量を測定した。得られた偏極は0.22(13)%であった。この小さな偏極量は真空度が高くないこと、¹²⁴Csの速度が最適ではないことが理由と考えられる。

Polarized beam of unstable nuclei via ion beam surface interaction at grazing incidence

T. Ohtsubo, S. Ohya, K. Hori, K. Kimura, S. Yachida, J. Goto, Y. Izubuchi,
S. Muto¹, A. Osa², M. Koizumi² and T. Sekine²

Department of Physics, Niigata University, Niigata 950-2181, JAPAN

¹Neutron Science Lab., High Energy Accel. Res. Org. (KEK), Tsukuba 305-0801, JAPAN

²Department of Materials Science, JAERI, Takasaki 370-1292, JAPAN

We have measured the polarization of unstable nuclei produced by the technique of the ion beam surface interaction at grazing incidence (IBSIGI). A 60 keV ¹²⁴Cs beam from the on-line mass separator was used. The NMR technique was employed for the observation of the nuclear polarization. A small polarization of 0.22(13)% was observed. The small value was interpreted with the velocity dependence of nuclear polarization comparing with the results observed with stable nuclei.

Key words: nuclear polarization, atomic collision Å hyperfine interactions

Introduction

偏極した不安定核ビームは原子核構造の研究のみならず、物質中の原子核と電子との間の相互作用を調べるにも大変有用である。偏極した不安定核から放出される放射線の角度分布は偏極方向に対し異方性を持つため原子核の偏極を容易に検出することができる。そこで物質中に埋め込んだ偏極不安定核の核磁気共鳴を放射線の異方性の変化から観測することができる。この方法は放射線を検出するので通常のNMRと比べて効率が良く、物質中の希薄な不純物効果等には極めて有効である。

本研究では偏極不安定核ビーム生成法の一つである微小角度散乱法[1]の開発を行っている。この方法では高速な原子ビームを清浄な結晶表面に非常に小さい角度で入射し、表面原子と散乱させると、表面での相互作用の非対称性から偏極した原子が得られる。この原子偏極は自由空間を飛行中に原子核と電子との間での超微細構造相互作用により原子核偏極へと移行する。この結果、偏極原子核ビームが得られる。この方法はこれまで安定核ビームを用いた研究が行われており、最大20%程度の核偏極を原子からの偏光により間接的に観測されている[2]。本研究では微小角度散乱法により生じた核偏極を放出される放射線の観測から直接測定する。

実験

偏極した不安定核から放射される β 線の角度分布は

$$W(\theta) = 1 + v/c AP \cos \theta$$

で表される。ここで v は β 線の速さ、 c は光速、 A は崩壊によって決まる非対称パラメータ、 P は偏極(polarization)、 θ は偏極方向に対する β 線の放出角度である。偏極 P は磁気量子数 m の状態の占有率(population)を a_m とするとスピン I の核について $P = \sum m a_m / I$ で表される。これより偏極した原子核からの β 線の角度分布は非対称になる。従って β 線の計数の非対称度を測定することで偏極量を観測できる。偏極方向に対し 0° 及び 180° 方向に検出器を置いたとき、これらの β 線の計数の比は

$$R = N(0^\circ) / N(180^\circ) = \eta(1 + AP) / (1 - AP) \sim \eta(1 + 2AP)$$

と表される。ここで η は検出系の非対称度を表すパラメータで、 β 線のエネルギーは十分高いものとして $v/c \sim 1$ とした。最後の式は $AP \ll 1$ の場合を示している。検出器の非対称度パラメータを除くため、本研究では偏極の確認に核磁気共鳴を利用していている。磁気共鳴では各エネルギー準位間のエネルギーと等しい高周波を磁場を加え、共鳴吸収を起こさせる。特に速い断熱通過法(adiabatic fast passage)を用いると共鳴条件を満たすことで、偏極の向きを反転させることが出来る。偏極の反転前後について計数の比のそれぞれの比を取ると

$$R_1/R_2 = \eta(1 + 2AP) / \eta(1 + 2AP) \sim 1 + 4AP$$

となり、非対称度パラメータを打ち消すことが出来る。

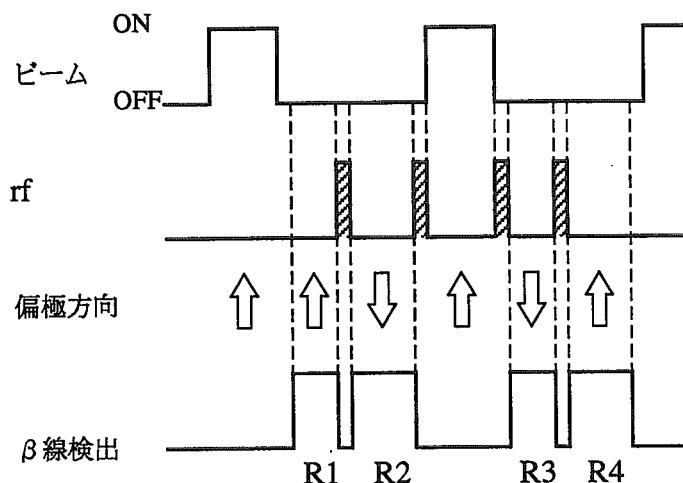


図1 タイムシーケンス

偏極の確認の際に用いたタイムシーケンスを図1に示す。ビームはパルスとして用い、二つのパルスで一つのサイクルになる。パルス後の時間に β 線の非対称度を測定する。 β 線の測定時間は二つに分けられ、パルス前後及びこの間にスピン反転用の高周波磁場を加える。図には各測定時間と偏極の向きの関係も示している。4つの測定時間のにそれぞれの比を取って偏極の変化量(effect)を導く。これは先の検出系の非対称度及びビーム照射後の時間依存性の打ち消しのために行う。

$$\text{effect} = R_1 / R_2 \cdot R_3 / R_4 \sim 1 + 8AP$$

実験はISOLからのビームを用いて行った。サイクロトロンからのビームの照射により生じた不安定核をISOLにより加速分離し、実験装置に導入した。用いたビームは ^{124}Cs で図2に崩壊図を示す。また実験装置を図3に示す。スリットを通った ^{124}Cs ビームは電場で約 2° 曲げられ、散乱体表面に非常に小さな角度で入射される。散乱体にはケイ素単結晶を用いた。散乱体から出てきた偏極ビームは偏極を保持するため0.1Tの静磁場中でストッパー物質内に埋め込まんだ。ストッパーには臭化ガリウム

(KBr)単結晶を用いた。埋め込まれた¹²⁴Csのうち、K位置に入ったものはそのイオン構造から偏極が保持することが期待できる。これは軽い核では確かめられている。散乱から埋め込みの間、原子から原子核へ偏極を移行するためには強い磁場が加わってはならないので、打ち消し永久磁石を取り付けている。偏極からのβ線は左右に置いたプラスチックシンチレータで検出する。これらは2mmの厚さのもの2枚からなっており、これらの同時計数を行う。磁気共鳴を起こすため、外部磁場に対し垂直方向にコイルを置き、高周波磁場を加える。¹²⁴Csの磁気モーメントは $\mu(^{124}\text{Cs}) = +0.673(3) \mu_N$ [3]で、外部磁場とこの値から共鳴周波数が与えられる。

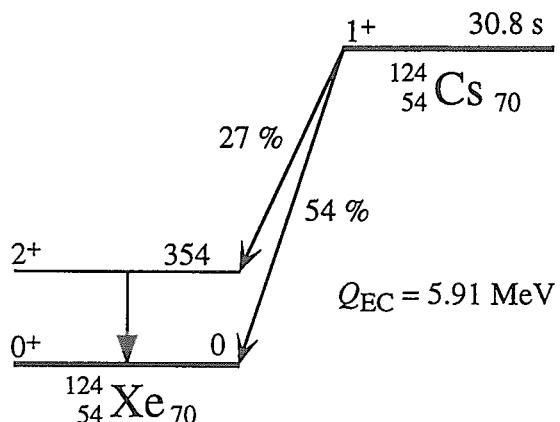
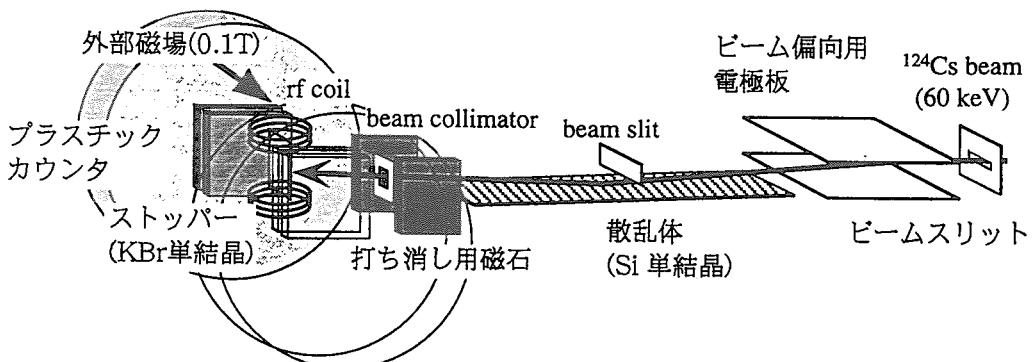
図2 ¹²⁴Csの崩壊図

図3 実験装置

図4に得られた結果を示す。得られた偏極量は $P = 0.22(13) \%$ であった。この値は微小角度散乱法としては小さな値であるが、傾斜薄膜法の値に近い。これは散乱体表面の清浄さが不十分であること [4]、入射エネルギーが最適化されていないことなどによるものと考えられる。

まとめ

オンライン同位体分離器(ISOL)からの不安定核ビームを用いて、微小角度散乱法による原子核偏極の測定を行った。得られた結果は安定核で得られている量に比べてかなり小さい。しかし同じ原理を利用した傾斜薄膜通過法と比較すると同程度である。これは装置が高真空でないため結晶表面が十分には平滑ではないためと考えられる。また、安定核で知られている生成偏極の速度依存性と比較すると必ずしも最適な速度でないことも偏極率が小さい原因と考えられる。

現在は質量数の小さい ^{21}N ($I^\pi = 3/2^+$, $T_{1/2} = 22.47$ s)を用い、速度を高くしたビームを持ちいて偏極量の確認を行っている。

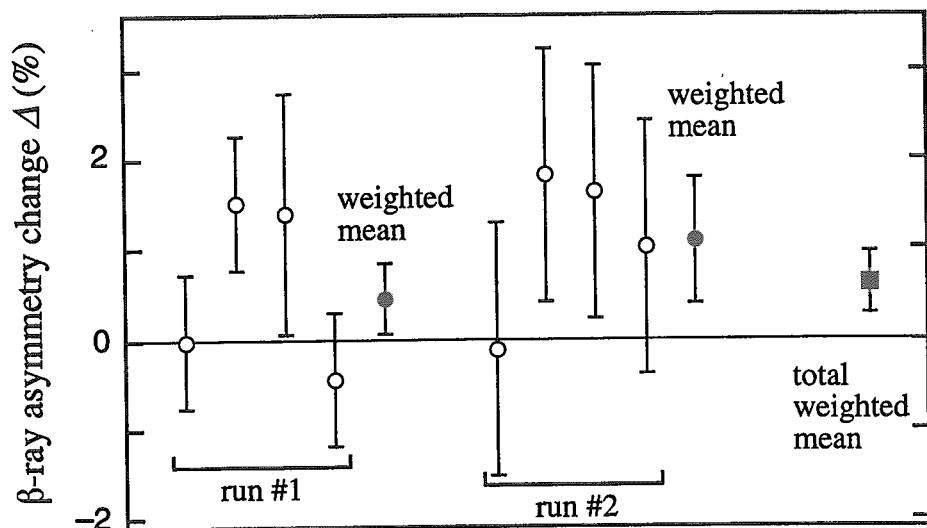


図 4 β 線非対称度変化の測定結果

Reference

- [1] H. Winter and R. Zimmy, Hyp. Int. 22 (1985) 237.
- [2] H.J. Andrä, Phys. Lett. 54A (1975) 315, H. J. Andrä and H. Winter, Hyp. Int. 5 (1978) 403, H. Winter, R. Zimmy, A. Schirmacher, B. Becker, H.J. Andrä, and R. Fröling, Z. Phys. A311 (1983) 267, H. Winter and H.J. Andrä, Hyp. Int. 24 (1985) 277, R. Freier and H. Winter, Hyp. Int. 73 (1992) 323.
- [3] P. Raghavan, Atomic Data and Nuclear Data Table 42 (1989) 189.
- [4] H.G. Berry, G. Gabrielse, and A.E. Livingston, Phys. Rev. A16 (1977) 1915.

2.2 加速器放射線に関する研究（線源評価及び遮蔽）

2.2.1 概要説明

中村尚司（東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター）

本研究は、(1) TIARA の第3軽イオン室のビームコースに単色中性子実験施設を設置し、40 - 90 MeV の陽子による $^7\text{Li}(p,n)$ 反応から生成された準単色中性子ビームを用いて、中性子核データ及び遮蔽データを求める実験を行うこと、(2) TIARA の第1重イオン室のビームコースに散乱槽を設置し、様々な重イオンをターゲットに入射して生成される中性子を測定すること、を目的として平成4年度から行われて来た。

(1) の中性子実験としてこれまで行われて来た研究テーマは次の通りである。

- 1) p-Li 準単色中性子場の開発と特性評価
- 2) 各種中性子検出器、中性子線量計の応答特性測定
- 3) 中性子の鉄、コンクリート、ポリエチレン遮蔽実験
- 4) 中性子放射化断面積の測定
- 5) 中性子による荷電粒子生成反応断面積の測定
- 6) 中性子散乱断面積の測定
- 7) 中性子の体系内線量分布の測定

(2) の荷電粒子入射実験として行われて来た研究テーマは次の通りである。

- 1) 軽イオンから重イオンまでの入射による厚いターゲットからの中性子生成量の測定
- 2) 陽子による荷電粒子生成反応断面積の測定

これらのテーマのうち、既に終了したものは(1)の1)、3)、4)と(2)の1)であり、残りは現在も研究が進められている。これらの研究の成果は多くの研究論文、国際会議プロシーディング、原研レポート、科研費報告書として出版されている。特筆すべきことは、このうちの(1)の1)、3)について、「高エネルギー準単色中性子場の開発と中性子遮蔽ベンチマーク実験」として、平成9年度に第30回原子力学会論文賞を得ていることであり、このプロジェクト共同研究が大きな成果をあげ、高く評価されている。

Study on Accelerator Radiation (source term and shielding)

General Description

Takshi Nakamura

Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University

This experimental study has been performed from 1994 to get (1) the neutron reaction cross section data and shielding data, using a quasi-monoenergetic neutron beam from the $^7\text{Li}(\text{p},\text{n})$ reaction bombarded by 40 to 90 MeV protons, and (2) the thick target neutron yields from various light and heavy ions.

The following research themes have been performed;

- 1) Development and characterization of p-Li quasi-monoenergetic neutron field,
- 2) Measurements of response functions of various neutron detectors and dosimeters,
- 3) Shielding experiment through concrete, iron and polyethylene,
- 4) Measurements of neutron activation cross sections,
- 5) Measurements of charged particle production cross sections by neutrons,
- 6) Measurements of neutron scattering cross sections,
- 7) Measurements of dose distributions in media,
- 8) Measurements of thick target neutron yields from various light and heavy ions,
- 9) Measurements of charged particle production cross sections by protons.

Among of these themes, 1), 3), 4) and 8) have already been finished and others are still going on. The obtained results have been published in many journal papers, JAERI reports and conference proceedings, and especially, as for the themes 1) and 3), our group got a good paper award from Japanese Atomic Energy Society in 1998.

Keywords: Quasi-monoenergetic neutrons, Shielding, Cross section data,
Thick target yield



JP0150013

JAERI-Conf 2000-008

2.2.2 加速器遮蔽実験

原研・中島宏、田中進、坂本幸夫、中根佳弘、高田弘、明午伸一郎、益村朋美、田中俊一、東北大・中村尚司、馬場護、黒沢忠広、中尾誠、京大・秦和夫、KEK・平山英夫、中尾徳晶、理研・上蓑義朋、国立歴史民俗博物館・今村 峰雄、放医研・高田真志

中間エネルギー領域の加速器施設遮蔽設計法の確立を目的として、原研高崎研 TIARA の AVF サイクロトロンを用いて、一連の加速器施設遮蔽実験を行った。本報告ではその中から、中性子深層透過実験及び放射線迷路ストリーミング実験について述べる。

Shielding Experiments for Accelerator Facilities

H. Nakashima, S. Tanaka, Y. Sakamoto, Y. Nakane, H. Takada, S. Meigo, T. Masumura, Sh. Tanaka (JAERI), T. Nakamura, M. Baba, T. Kurosawa, M. Nakao (Tohoku Univ.), K. Shin (Kyoto Univ.), H. Hirayama, N. Nakao (KEK), Y. Uwamino (RIKEN), M. Imamura (NMJH) and M. Takada (NIRS)

A series of shielding experiments was carried out by using AVF cyclotron accelerator of TIARA at JAERI in order to validate shielding design methods for accelerator facilities in intermediate energy region. In this paper neutron transmission experiment through thick shields and radiation streaming experiment through a labyrinth are reported.

Key words : Shielding Experiment, Accelerator Facilities, Intermediate Energy, Neutron Transmission, Radiation Streaming

1. 序

近年、加速器は工業、医療など広い分野にわたり、その利用が進められている。また、その利用を発展させるために、高エネルギー・大電流加速器施設の建設が計画されている。これらの施設設計のためには、放射線安全性と経済性の観点から、遮蔽設計計算手法の検証とこれに関する基礎データの取得が重要である。しかし、数十 MeV 以上のエネルギーを持つ粒子を発生させ、且つ遮蔽実験に適した加速器施設があまり無いことから、このエネルギー領域における遮蔽実験データはほとんど測定されていない。そのため、このエネルギー領域において、その設計手法の精度はほとんど検証されていない。

そこで、これらを検証するベンチマーク実験データの取得を目的として、原研高崎研 TIARA の AVF サイクロトロンを用いて、一連の遮蔽実験及び核データなど遮蔽設計基礎データの測定を行っている。施設遮蔽設計においては、1)深層透過、2)放射線ストリーミング、3)機器等の放射化、4)スカイシャイン等がその検討項目となるが、TIARA ではこれらのうち、1)から 3)までについて実験が行われている。本報告では、その中から、中性子深層透過実験及び放射線迷路ストリーミ

ング実験と、それらの実験結果を用いて行った遮蔽設計法の精度評価について述べる。

2. 加速器施設遮蔽設計法の現状

本研究で行った実験結果について報告する前に、簡単に 20 から 100 MeV エネルギー領域における遮蔽設計法の現状について触れてる。このエネルギー領域における加速器施設の詳細設計法は、二種類に大別される。

一つは、従来原子炉や核融合炉の設計に使用されてきた、ボルツマン輸送方程式に基づく計算コードによるもので、核データによる群定数を用いて計算する手法である。この手法では、遮蔽設計上問題になるのは主に中性子及び二次 γ 線であるという仮定に基づいているため、中性子核反応により生じる二次荷電粒子の影響を無視している。現在、中性子に関して 400 MeV までのエネルギー領域において、群定数セット HILO86[1]が使用可能である。HILO86 は、光学モデル及び HETC[2]による計算値を基にして、数少ない微分及び積分実験値を再現するように調整して作成されたものであるため、その精度は、従来の評価済み核データファイルに基づいて作成されてきたものと比べると大幅に劣る。また、このエネルギー領域では、弾性散乱角度分布は急激な前方性を示すため、HILO86 で用いている 5 次のルジャンドル関数で展開しようとした場合、実際には起こり得ない負の散乱確率を与えることがある。

今一つの手法は、素粒子物理用検出器の設計や宇宙船における被曝評価などに用いられている、核内カスケード・前平衡過程・蒸発モデルによる高エネルギー粒子輸送計算コードを用いる手法である。この手法の場合、核反応による二次荷電粒子等も全て追跡することができる。この計算コードは、中性子エネルギー 20MeV でボルツマン輸送方程式に基づく計算コードと接続して、そのエネルギー以下の中性子及び二次 γ 線の挙動の計算を行う。しかし、これらのモデルの使用下限は、約 100 MeV と言われており、20 から 100 MeV までのエネルギー領域における計算精度は明確にされていなかった。

近年、これらの問題に対して、LANL では、150 MeV までの中性子と陽子の評価済み核データファイル[3]が作成され、その一部が公開されている。更に、この核データファイルを基に、MCNP[4]の使用範囲を 150 MeV まで拡張した MCNPX[5]を作成し、高エネルギー粒子輸送計算コード LAHET[6]に接続する動きも見られる。しかし、未だ、MCNPX は公開されておらず、使用が制限されている。更に、評価されている核種数も限定されている。

これらの詳細計算手法では膨大な計算時間を必要とするため、加速器施設においても簡易計算法が用いられる。特に、加速器施設においては、原子炉等と同様に無数のダクト、通路等が存在するため、これらにおける放射線ストリーミングを評価する必要がある。この評価にモンテカルロ計算手法を用いた場合、大きな体系における比較的小口径のダクトから漏洩する放射線による線量のピーキングが計算されない場合がある。そのため、この評価に対しては、簡易計算手法を用いるのが一般的である。実際、TIARA の AVF サイクロトロンにおける通路等の遮蔽設計には、簡易計算法の一つである Tesch の式[7]が用いられた。この他に、中村・上蓑の式[8, 9]や秦の式[10, 11]などが提案されている。しかし、従来の加速器施設は、これらの精度評価実験を行うことを意図して設計されていないため、精度評価に理想的なストリーミング実験によってその精度が検証

されていない。

3. TIARA の準単色中性子場

遮蔽ベンチマーク実験に求められる条件として、1)線源条件が明確であること、2)実験配置が明確であり、計算における境界条件が明確であること、3)できるだけ多くの物理量（反応率、エネルギースペクトル等）が絶対値で測定されており、これらの測定に用いる検出器の検出効率、応答関数等が精度良く与えられていること等がある。

これらの条件のうち、線源条件を明確にするために、図1に示すように、TIARA のサイクロトロン加速器本体室内の LC コースに単色中性子発生装置を設置し、準単色中性子場を確立した。本装置では、45 から 90MeV の陽子を 2 MeV エネルギーロスに対応する厚さの ^7Li 濃縮ターゲットに当て、 $^7\text{Li}(\text{p},\text{n})$ 反応により準単色中性子を発生させる。その内 0 度方向に発生する中性子を、コンクリート遮蔽壁に設置した長さ約 2.2 m 直径約 11 cm のコリメーターを通して、第3軽イオン室に引き出す。一方、反応せずにターゲットを通過した陽子は、電磁石で曲げられ、本体室内のビームダンプに捨てられる。このことにより、第3軽イオン室では、入射陽子により、ターゲット以外で生じる中性子の寄与を非常に少なくすることができ、測定における S/N 比を上げるとともに、計算における境界条件を明確にしている。また、第3軽イオン室のコリメーター出口側の遮蔽壁には、遮蔽実験用に 1.2m X 1.2m 深さ 1.2m のくり抜きがある。この中に実験供試体を設置することにより、第3軽イオン室内に導かれた中性子による室内散乱中性子の影響を減らすことができる。このことによっても、計算における境界条件を明確にしている。

この中性子場における中性子強度の絶対値を測定するために、反跳陽子型カウンター・テレスコープ (Proton Recoil Counter Telescope :PRT) を用いて、第3軽イオン室のコリメーター出口において各陽子エネルギーにおける中性子収量の測定を行った。(表1) [12, 13] この測定における系統誤差は、3.3%(45MeV) から 6.2%(90MeV) で、その主因は PRT に用いたラジエター中に含まれる水素の微分散乱断面積の誤差によるものである。遮蔽実験中は、ファラディーカップ及び PRT で校正した ^{238}U 及び ^{232}Th 核分裂計数管を用いて、陽子電流及び中性子源において発生中性子数をモニターする。これらにより、測定値が絶対値で与えられることとなる。

また、サイクロトロン本体室と第3軽イオン室の間のコリメーターを抜けてくる、源中性子エネルギースペクトルを、PRT 及び液体シンチレーション検出器による飛行時間法を用いて測定し、線源条件として与えている。図2にこの中性子場におけるエネルギースペクトルを示す。飛行時間法による測定から、ピークエネルギー分解能は約 3MeV であり、約 5 MeV 以上の中性子エネルギースペクトルが得られている。5MeV 以上のエネルギースペクトルにおける単色ピーク成分の割合は、43MeV 陽子入射で約 43%、68MeV 陽子入射で約 30 % であり、エネルギーが上昇するとともにその割合が小さくなる。

この中性子場の最大の特色は、ビーム状で単色ピーク成分を持つ準単色中性子を得ることができることである。このことにより、ビーム軸状に置いた物質における単色中性子の散乱挙動を測定することができる。このような場は世界的にも他にあまり例がなく、遮蔽実験、検出器開発、核データの測定等に適した中性子場となっている。

4. 中性子透過実験[14, 15, 16, 17, 18, 19, 20]

この単色中性子源発生装置において発生する、約 40 及び 65MeV の準単色中性子を用いて、厚い遮蔽体における中性子透過実験を行った。本実験に用いた遮蔽体は、厚さ 10cm から 1.3m の鉄、厚さ 25cm から 200cm コンクリート及び厚さ 30cm から 183cm のポリエチレンである。測定に用いた検出器は、

- 1) MeV 領域の中性子エネルギースペクトルについて BC501A 液体シンチレーション検出器、
- 2) MeV 以下の領域の中性子スペクトルについてボナーボール検出器、
- 3) MeV 領域の中性子反応率分布について核分裂計数管及び固体飛跡検出器
- 4) 中性子線量当量について中性子レムカウンター

である。特に、液体シンチレーション検出器については、この中性子場や、東北大 CYRIC 及び理研における中性子場において、その応答関数を測定し、本実験に供している。[21]測定点は、それぞれの厚さにおいてビーム軸状と 20 cm 及び 40 cm off-center の点であり、先にも述べたように、遮蔽体における単色中性子の散乱に関するデータを得ている。

図 3 に各遮蔽体背後における MeV 領域の中性子エネルギースペクトルの変化の様子を、図 4 にビーム軸状と off-center における中性子エネルギースペクトルの変化を示す。この図から遮蔽体における中性子の減衰の様子が、物質によって大きく異なることが分かる。鉄とコンクリートを比較すると、深くなるにつれて、コンクリートの場合、低エネルギー成分の割合が増加していく。また、ポリエチレンの場合は、軽核のみで構成されているために、低エネルギー成分に構造がほとんど見られず、またピーク成分に比較して、低エネルギー成分の割合が最も低い。ビーム軸状と off-center での比較では、エネルギーが高くなるにつれて、中性子散乱の前方性がより顕著になるために、遮蔽体内での散乱角度がより大きくなる 40 cm off-center でピーク成分の割合が最も小さくなっている。

これらの実験データを基に、2 章で述べた詳細計算手法の中から代表的なものについて、その計算精度の検証を行った。一つは、低エネルギーモンテカルロコード MORSE-CG[22]及び HILO86 群定数セットの組み合わせによるもの、今一つは、Sn 法を用いた DOT3.5[23]及び HILO86 群定数セットの組み合わせによるもの、そして、高エネルギー粒子モンテカルロ計算コードシステム HERMES[2]である。図 5 に実験値とこれらの計算値との比較した結果を示す。ビーム軸状では、MORSE-CG による計算値が実験値を最も良く再現している。DOT3.5 による計算値は、ピーク部分においてファクター 2 度過小評価し、それ以外の部分では過大評価している。HERMES の結果は、弾性散乱を考慮しない場合、約 1 衍過大評価し、弾性散乱を考慮した場合でも、ファクター 2 度過大評価した。この図に示した HERMES の計算結果は、更に我々が Pearlstein's systematics[24]を用いて、全断面積及び弾性散乱断面積の取り扱いについて改良したものであるが、ピーク部分については、実験値を再現したものの、低エネルギー成分の部分でやや過大評価している。Off-center における比較でも、MORSE-CG による計算値は、ファクター 2 度実験値と異なっているものの、他の計算値に比べて比較的良好く実験値を再現している。一方、DOT3.5 による計算結果は、計算結果が発散した。また、改良した HERMES もピークを形成せず、大幅に過小評

価している。以上の結果を纏めると、MORSE-CG は、全体的にかなり精度良く実験値を再現し、このエネルギー領域の遮蔽設計には適用可能である。DOT3.5 に関して、本解析では離散角度分点として S_{16} を用いたが、この分点数の依存性を調べるために S_8 を用いた計算結果が更に過小評価したことから、少数の離散角度分点では、エネルギーが高くなることにより生じる鋭い前方微小角散乱を表現し得ないことが分かった。また、HERMES については、弾性散乱を考慮した計算が必要であることと、この弾性散乱の角度分布の取り扱いについて改良が必要であることを示した。ここで、更に MORSE-CG の計算精度を向上させるには、このエネルギー領域における精度の良い核データが重要であり、核融合炉遮蔽設計においても指摘されているように、ルジャンドル展開を用いない、二重微分断面積を用いた計算手法が有効である。

ところで、本ベンチマーク実験は、OECD/NEA における「加速器遮蔽専門家会議」において数十 MeV エネルギー領域におけるベンチマーク問題として取り上げられた。^[25]このベンチマーク計算には、先に検証した詳細計算手法以外の様々な計算コードが参加し、その精度検証が行われている。参加したコードは、MCNP4A、LCS^[6]、MARS13^[26]及び FLUKA^[27, 28]である。このうち、MCNP は先の分類の低エネルギーモンテカルロコードであり、それ以外は、高エネルギー粒子輸送計算コードである。図 6 にその結果の一部を示す。MARS や FLUKA の結果は 20~30% の精度で実験値を再現し、これらが非常に優れたコードであることを示した。

5. 迷路ストリーミング実験^[29, 30]

TIARA の第 2 軽イオン室とそれに続く長さ約 30m の 2 回屈曲通路は、図 7 に示すように、通路が第 2 軽イオン室と同一平面にあり、通路断面が単純矩形である。更に、線源がほぼイオン室の中央に設置されている。即ち、この体系は、加速器遮蔽施設における迷路ストリーミング計算精度を検証する実験を行うために、最適な幾何形状を持つように作られたものである。

実験に用いた中性子源は、室内に設置した Cu ターゲットを用いた 68MeVp-Cu 反応による白色中性子である。図 7 に示すように、陽子はターゲット室上方からターゲットに入射する。この実験における線源条件を明確にするために、このターゲットにおいて発生する中性子の角度微分エネルギースペクトルを放射化箔法を用いて測定した。^[31]

本実験に用いた検出器は、ターゲット室内においては、

- 1) 速中性子束について ^{238}U 及び ^{232}Th 核分裂計数管
- 2) 熱中性子束分布について金箔による放射化法と TLD

迷路内においては、

- 1) 中性子線量当量分布についてレムカウンター
- 2) MeV 領域の中性子エネルギースペクトルについて BC501A 液体シンチレーション検出器、
- 3) MeV 以下の領域の中性子スペクトルについてボナーボール検出器
- 4) 中性子反応率分布について固体飛跡検出器及び ^{238}U 及び ^{232}Th 核分裂計数管
- 5) 熱中性子束分布について TLD
- 6) γ 線線量分布について TLD 及び電離箱
- 7) γ 線スペクトルについて BC501A 液体シンチレーション検出器

である。

先ず、中性子線源の角度微分エネルギースペクトルについて、核内カスケード・前平衡・蒸発モデルを用いた NMTC/JAERI97[32] 及び MCNP-4B を用いて、解析を行った。この解析に用いている幾何形状では、銅ターゲットの形状を忠実に再現している。図 8 に陽子ビーム入射方向に対して 90 度方向のエネルギースペクトルの実験値と計算値の比較を示す。ファクター 2 程度 30MeV 以上で実験値を過大評価し、5MeV 以下で過小評価しているものの、大凡実験値を再現していることが分かる。そこで、室内及び迷路における解析では、この計算値を線源スペクトルとして、計算を行った。

室内及び迷路における実験の解析では、HILO86 群定数セットを用い、MORSE-CG 及び MCNP-4B により計算を行った。また、比較のために、最近 LANL で評価された、150MeV までの核データファイルから作成された群定数セットでも併せて計算を行った。しかし、この両者の群定数セットによる計算結果の違いは、ほとんど無いため、以下の実験値との比較では、HILO86 によるもののみを示す。

ターゲット室内における速中性子反応率分布の実験値と計算値との比較の結果を図 9 に示す。線源近傍では、比較的良い一致を示しているが、線源から離れ、室内散乱中性子による寄与が増すにつれて、計算値は実験値を過小評価する傾向にあり、壁近傍ではファクター 2 に達する。図 10 に迷路入り口部における中性子エネルギースペクトルの比較を示す。数百 keV 及び熱中性子領域を除いて、計算値は実験値を過小評価しており、特に MeV 領域の散乱線評価に問題があることを示している。図 11 は、室内における熱中性子束に関する実験値と計算値の比較を示しているが、計算値は大凡ファクター 2 から 3 過大評価となっており、スペクトル測定の結果と同様の傾向を示している。迷路内においても、室内同様にファクター 2 から 3 程度過小評価し、熱中性子に至る減速過程にも問題があることを示した。迷路部における中性子線量当量の比較においては、図 12 に示すように計算値はほぼ実験値を再現しているが、1 脚目でファクター 2 程度実験値を過小評価しており、室内散乱による MeV 領域中性子の過小評価の影響を受け続いている。しかし、2 脚目以降実験値と一致していることから、keV 領域の中性子と併せて、積分的には一致していることが分かる。

簡易計算手法の精度評価に関する結果を図 13 に示す。この図では、迷路入口部における線量を 1 に規格化して比較してある。TIARA の設計に用いた Tesch の式による計算結果は、1 脚目で最大ファクター 3 程度過小評価するものの、他の部分で非常に良く一致することを示し、その適用性が明らかとなった。この 1 脚目での違いは、Tesch の式[6]を評価する際に考慮された線源条件に対して、今回の実験では線源からの中性子が迷路入口に斜めに入射しているためと考えられる。また、中村・上巣の式[7, 8]についても比較したところ、2, 3 脚で減衰傾向が一致し、全体としてファクター 3 程度以内で一致することを示した。

6. まとめ

本研究では、加速器遮蔽設計手法の精度検証を行うために、TIARA の施設設計段階から遮蔽実験を行うに最適である工夫を行い、その特色を生かして、遮蔽ベンチマーク実験を行った。そし

て、本実験により得られたデータを基に、設計手法の精度検証を行い、いくつかの手法においてはその適用性を明らかにし、適用性に問題のある手法については、その精度向上の方向を示唆した。更に、本実験結果の意義は世界的にも認められ、既に各種計算手法の改良や核データ評価の積分テストに貢献している。このことは、今後建設が予定されている高エネルギー加速器施設の遮蔽設計のみならず、宇宙環境下における施設設計や被曝線量評価、高エネルギー物理学における検出器設計及び医療施設における粒子線照射効果や被曝線量評価等に大きな影響を与えている。

今後の研究課題は、粒子線の応答関数に関する実験的研究である。実際の施設設計において直接的評価の対象となる線量当量であるが、これは粒子線束と線量当量換算係数の積によって与えられるものであり、どちらも評価に足る精度を有している必要がある。本研究では、前者について精力的に研究を行ってきたが、後者に対する実験的研究は未だ行われていない。また、世界的に見てもこのエネルギー領域におけるデータはほとんど存在しない。本研究の目的である、施設遮蔽設計の精度向上のためには、線量当量換算係数に関する研究も行われて、初めて本研究は完結したと見るべきである。

参考文献

1. Alsmiller Jr. R. G., Barnes J. M. and Drischler J. D., "Neutron-Photon Multi-group Cross Sections for Neutron Energies up to 400 MeV (Revision 1)," ORNL/TM-9801, Oak Ridge National Laboratory (1986).
2. Cloth P., et al., "HERMES A Monte Carlo Program System for Beam Materials Interaction Studies", Jü1-2203 (1988).
3. Chadwick M. B., et al., "Cross-Section Evaluation to 150 MeV for Accelerator-Driven Systems and Implementation in MCNPX," Nucl. Sci. Eng., 131, 293 (1999).
4. Briesmeister J. F., ed., "MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code Version 4B," LA-12625-M, Los Alamos National Laboratory (1997).
5. Hughes H. G., et al., "Status of the MCNP™/LCS™ Merger Project," Proc. Radiation Protection and Shielding Division Topl. Conf., Nashville, Tennessee, April 19-23 1998, p. I-188, American Nuclear Society (1998).
6. Prahl R. E. and Lichtenstein H., "USER GUIDE TO LCS: THE LAHET CODE SYSTEM," LA-UR-89-3014, Los Alamos National Laboratory (1989).
7. Tesch K., Particle Accel., 12, 169 (1982).
8. Uwamino Y., Nakamura T. and Ohkubo T., Med. Phys., 13, 374 (1986).
9. 中村尚司、上蓑義朋、Radioisotopes, 35(2), 51 (1986).
10. Shin K., J. Nucl. Sci. Technol., 25, 8 (1988).
11. Shin K., Selvi S. and Hyodo T., J. Nucl. Sci. Technol., 23, 949 (1986).
12. Baba M., Iwasaki T., Kiyosumi T., Yoshioka Y., Matsuyama S., Hirakawa N., Nakamura T., Tanaka Su., Tanaka Sh., Nakashima H., Meigo S. and Tanaka R., "Characterization and Application of 20-90

- MeV $^7\text{Li}(\text{p},\text{n})$ Neutron Source at TIARA," Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Gatlinburg Tennessee, U.S.A., Vol.1, 90 (1994).
13. Baba M., et. al., "Characterization of a 40-90 MeV $^7\text{Li}(\text{p},\text{n})$ Neutron Source at TIARA Using a Proton Recoil Telescope and a TOF Method," to be published in Nucl. Instrum. Meth.
 14. Sakamoto Y., Nakashima H., Nakane Y., Tanaka Sh., Tanaka Su., Nakamura T., Baba M., Nakao N. and Shin K., "Shielding Experiments with Quasi-Monoenergetic Neutrons between 15 and 90 - MeV at AVF Cyclotron Facility TIARA," Proc. of ICRS8, p.809, Arlington, U.S.A. (1994).
 15. Nakao N., Nakashima H., Nakamura T., Tanaka Sh., Tanaka Su., Shin K., Baba M., Sakamoto Y. and Nakane Y., "Transmission Through Shields of Quasi-Monoenergetic Neutrons Generated by 43- and 68-MeV Protons : Part I - Concrete Shielding Experiment and Calculation for Practical Application," Nucl. Sci. Eng., 124, 228 (1996).
 16. Nakao N., Nakashima H., Sakamoto Y., Nakane Y., Tanaka Sh., Tanaka Su., Nakamura T., Shin K., and Baba M., "Experimental Data on Concrete Shield Transmission of Quasi-Monoenergetic Neutrons Generated by 43- and 68-MeV Protons via $^7\text{Li}(\text{p},\text{n})$ Reaction", JAERI-Data/Code 97-020 (1997).
 17. Nakashima H., Nakao N., Tanaka Sh., Nakamura T., Shin K., Tanaka Su., Takada H., Meigo S., Sakamoto Y., Nakane Y. and Baba M., "Transmission Through Shields of Quasi-Monoenergetic Neutrons Generated by 43- and 68-MeV Protons: Part II - Iron Shielding Experiment and Analysis for Investigating Calculation Methods and Cross Section Data," Nucl. Sci. Eng., 124, 243 (1996).
 18. Nakashima H., Nakao N., Tanaka Sh., Nakamura T., Shin K., Tanaka Su., Meigo S., Nakane Y., Takada H., Sakamoto Y. and Baba M., "Experiments on Iron Shield Transmission of Quasi-monoenergetic Neutrons Generated by 43- and 68-MeV Protons via $^7\text{Li}(\text{p},\text{n})$ Reaction", JAERI-Data/Code 96-005 (1996).
 19. Nakao N., Nakao M., Nakashima H., Tanaka Su., Sakamoto Y., Nakane Y., Tanaka Sh., and Nakamura T., "Measurements and Calculations of Neutron Energy Spectra Behind Polyethylene Shields Bombarded by 40- and 65-MeV Quasi-Monoenergetic Neutron Sources," J. Nucl. Sci. Technol., Vol.34, No.4, p348 (1997).
 20. Nakao N., Nakashima H., Nakao M., Sakamoto Y., Nakane Y., Tanaka Su., Tanaka Sh. and Nakamura T., "Experimental Data on Polyethylene Shield Transmission of Quasi-monoenergetic Neutrons Generated by 43- and 68-MeV Protons via $^7\text{Li}(\text{p},\text{n})$ Reaction", JAERI-Data/Code 98-013 (1998).
 21. Nakao N., Nakamura T., Baba B., Uwamino Y., Nakanishi N., Nakashima H. and Tanaka Sh., "Measurements of Response Function of Organic Liquid Scintillator for Neutron Energy Range up to 135 MeV," Nucl. Instrum. Methods., A362, 454 (1995).
 22. Straker G. R., Steven P. N., Irving D. C. and Cain V. R., "MORSE Code - A Multigroup Neutron and Gamma Ray Monte Carlo Transport Code," ORNL-4585, Oak Ridge National Laboratory (1970).
 23. Rhodes W. A. and Mynatt F. R., "DOT-III: A Two-Dimensional Discrete Ordinates Radiation Transport

- Code," ORNL/TM-4280, Oak Ridge National Laboratory (1979).
24. PEARLSTEIN S., "Medium Energy Nuclear Data Libraries; A Case Study, Neutron and Proton Induced Reactions in ^{56}Fe ," J. Astrophys., 346, 1049 (1989).
 25. Nakane Y., Sakamoto Y. Hayashi K. and Nakamura T., "International Comparison of Neutron Transmission Benchmark Analyses for Iron and Concrete Shields in Low, Intermediate and High Energy Proton Accelerator Facilities," Proc. on Shielding Aspects of Accelerators, Target and Irradiation Facilities, 151 (1997).
 26. Mokhov N. V., "The MARS Code System User's Guide Version 13(95)", FERMILAB-FN-628 (1995).
 27. Fasso A., Ferrari A., Ranft J. and Sala P. R., "FLUKA: present status and future developments," Proc. IV Int. Conf. on Calorimetry in High Energy Physics, La Biodola (Isola d'Elba), Sept. 20-25 1993. Ed. A. Menzione and A. Scribano, World Scientific, p. 493.
 28. Fasso A., Ferrari A., Ranft J. and Sala P. R., "FLUKA: Performances and Applications in the Intermediate Energy Range," Specialists' Meeting on Shielding Aspects of Accelerators, Targets and Irradiation Facilities. Arlington, Texas, April 28-29 (1994).
 29. 田中進、中島宏、中根佳弘、坂本幸夫、明午伸一郎、田中俊一、高田真志、黒沢忠広、中村尚司、中尾徳晶、今村峯雄、上蓑義朋、秦和夫、平山英夫、「迷路漏洩線の測定－第2軽イオン室内迷路漏洩線の測定－」、原子核研究, Vol.41, No.3, p.101 (1996).
 30. Tanaka Su., Nakane Y., Sakamoto Y., Nakashima H., Meigo S., Tanaka Sh., Kurosawa T., Nakamura T., Nakao N., Hirayama H. and Shin K., " Measurements of Neutron and Photon Leaked Through Three-Leg Labyrinth from 68-MeV Proton Target Room," Proc. on ANS Topical Meeting (1998).
 31. 坂本幸夫、中島宏、中根佳弘、明午伸一郎、高田弘、田中進、田中俊一、高田真志、黒沢忠広、中村尚司、中尾徳晶、今村峯雄、上蓑義朋、「迷路漏洩実験の線源中性子スペクトル」、原子核研究, Vol.41, No.3, p.95 (1996).
 32. Takada H., Yoshizawa N., Kosako K. and Ishibashi K., "An Upgraded Version of the Nucleon Meson Transport Code: NMTC/JAERI97," JAERI-Data/Code 98-005, Japan Atomic Energy Research Institute (1998).

表1 単色中性子場における中性子フルエンス[12]

Proton Energy (MeV)	^7Li target thickness (mm)	Neutron energy at Peak (MeV)	Neutron fluence $10^9 \text{ n} (\text{Sr } \mu\text{C})^{-1}$
43	3.60	40.5	3.46($\pm 3.3\%$)
48	3.80	45.4	2.70($\pm 3.2\%$)
53	4.30	50.9	3.82($\pm 4.6\%$)
58	4.70	55.3	4.45($\pm 3.5\%$)
63	5.00	60.6	4.17($\pm 3.3\%$)
68	5.20	65.2	4.82($\pm 3.9\%$)
78	6.00	75.0	5.34($\pm 4.5\%$)
87	6.75	84.6	6.35($\pm 6.2\%$)

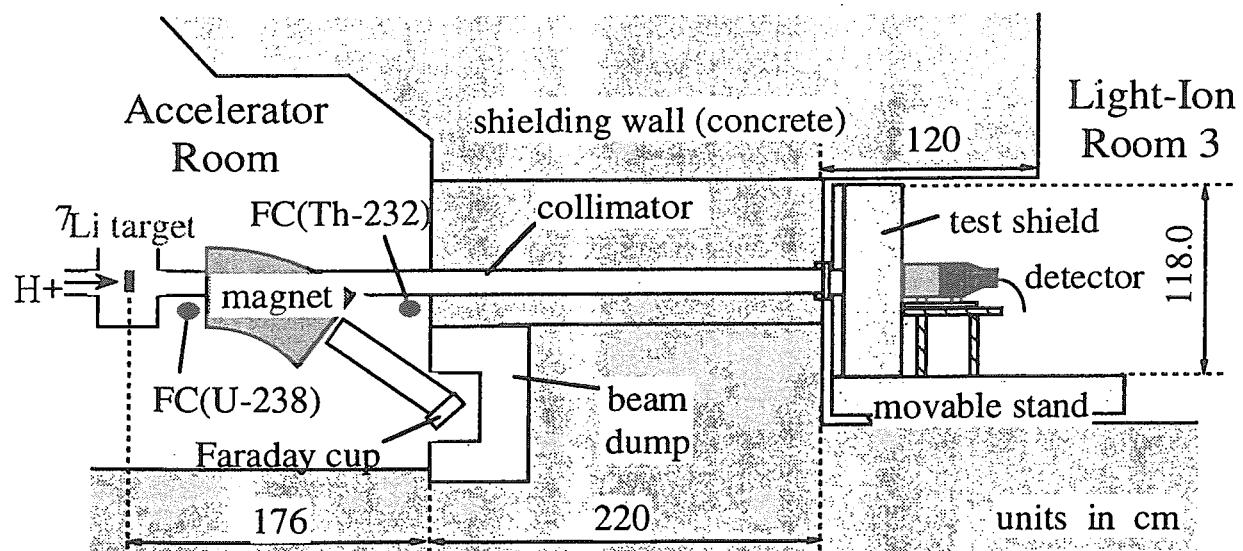
TIARA準単色中性子場断面図
サイクロトロンLCコース

図1 準単色中性子場断面図

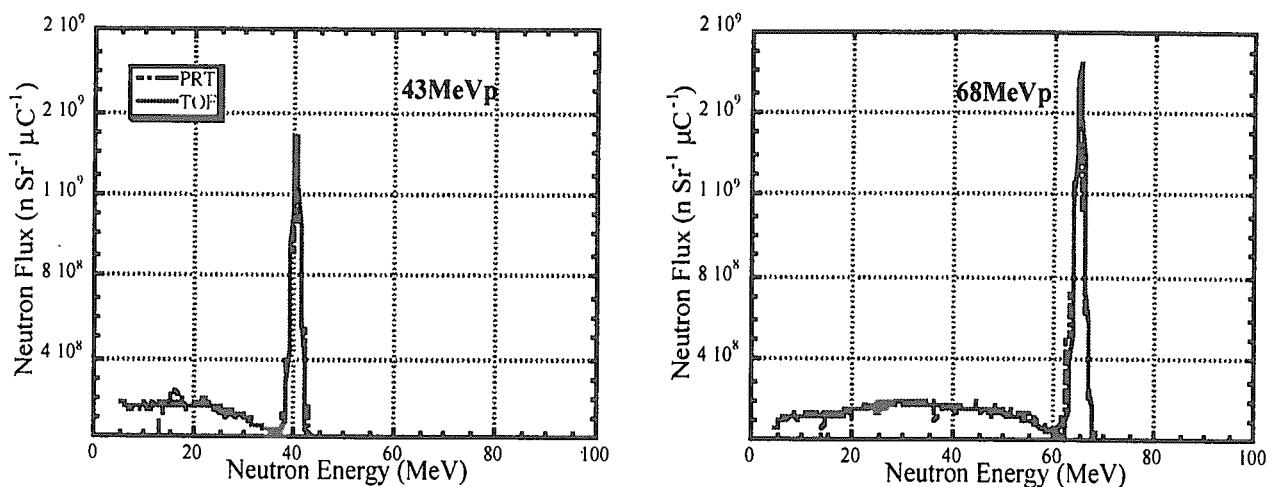


図2 源中性子エネルギースペクトル

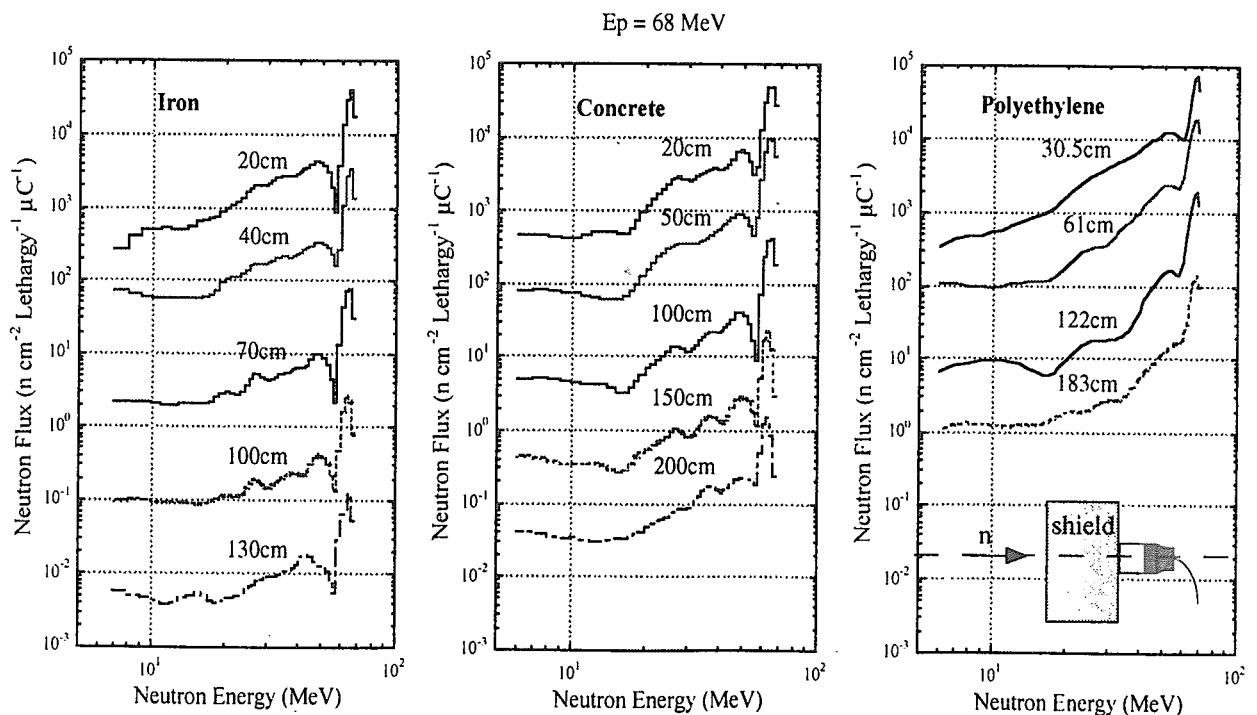


図3 各遮蔽体背後における中性子スペクトルの変化

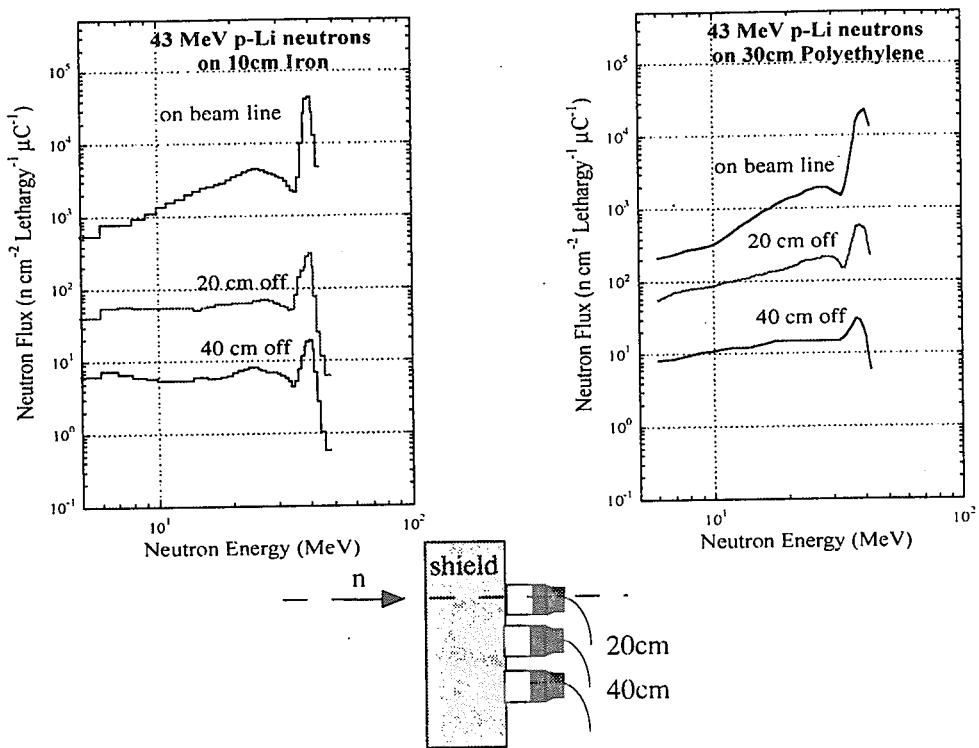


図4 ビーム軸状と off-center における中性子エネルギースペクトル

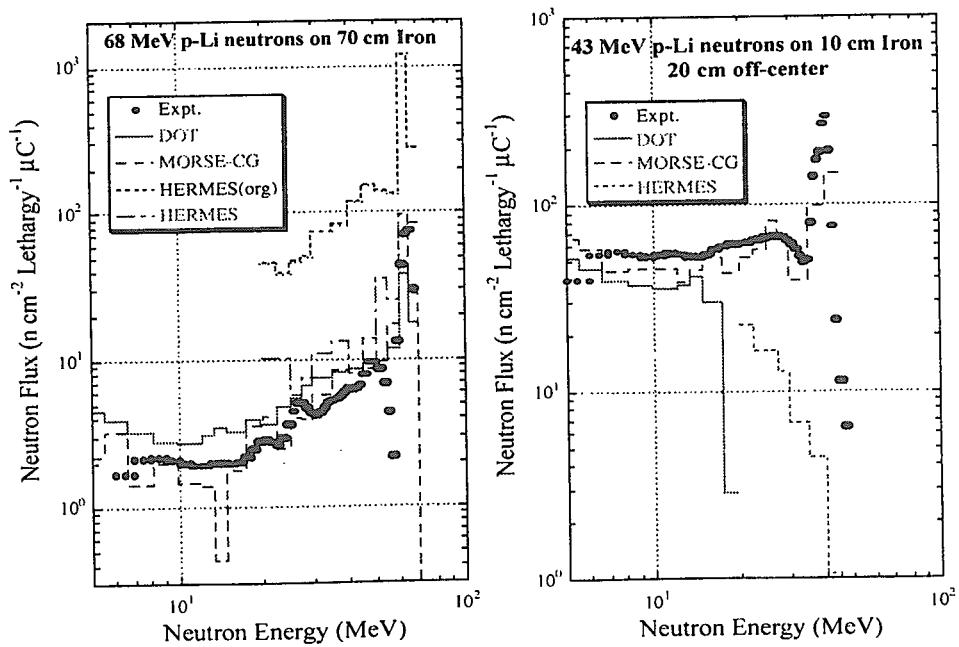


図5 中性子エネルギースペクトル測定値と計算値の比較

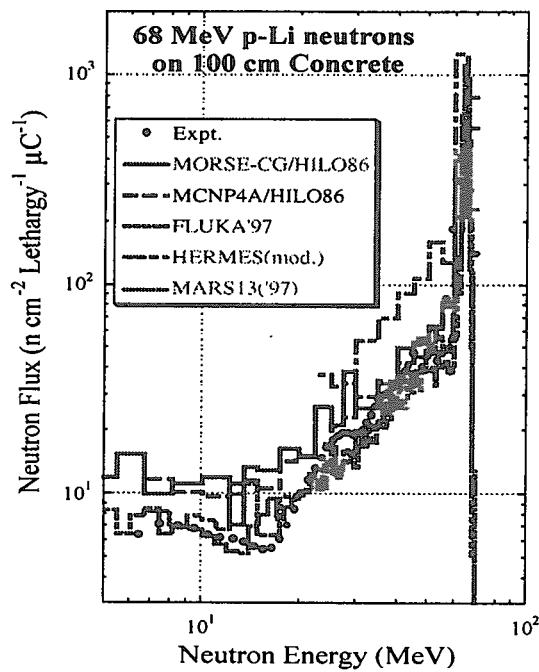


図6 国際ベンチマーク解析における中性子エネルギースペクトルの比較

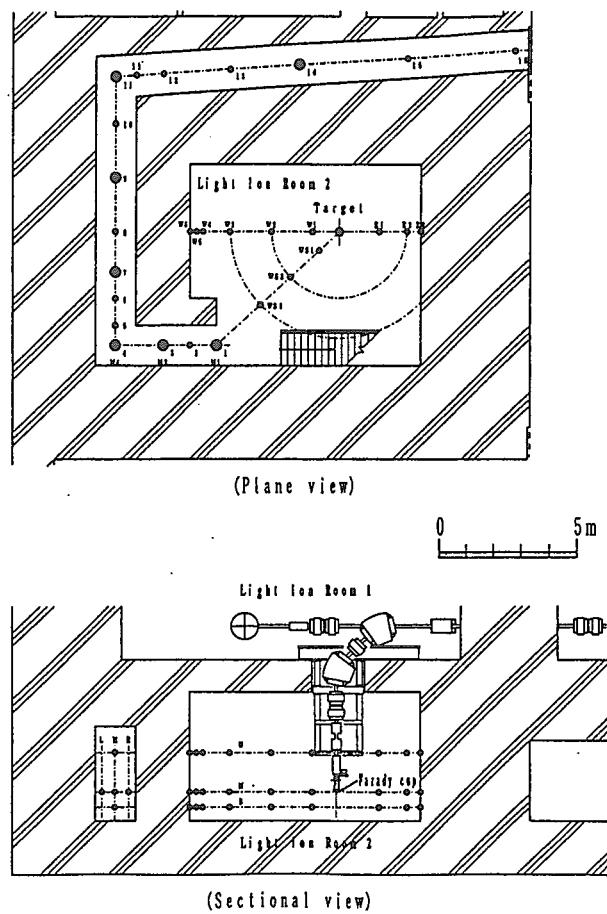


図7 迷路ストリーミング実験体系

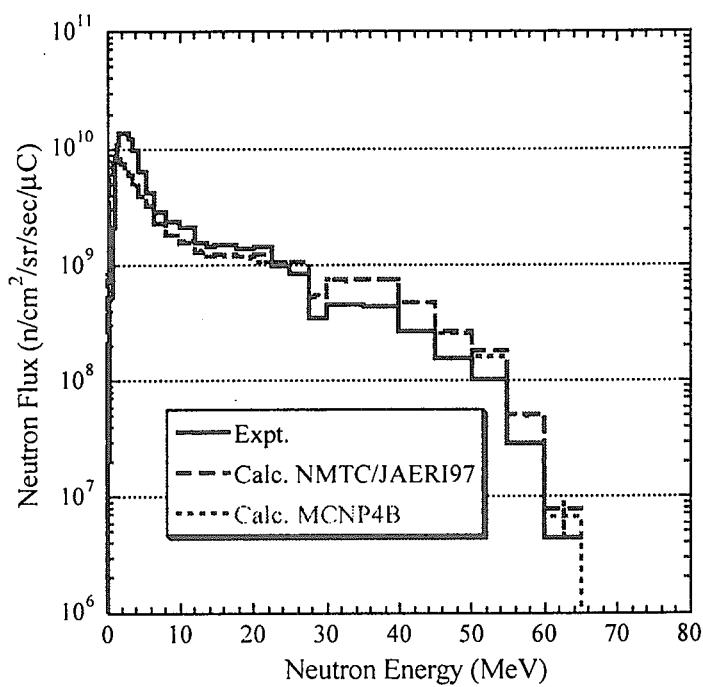


図 8 90 度方向源中性子スペクトルの比較

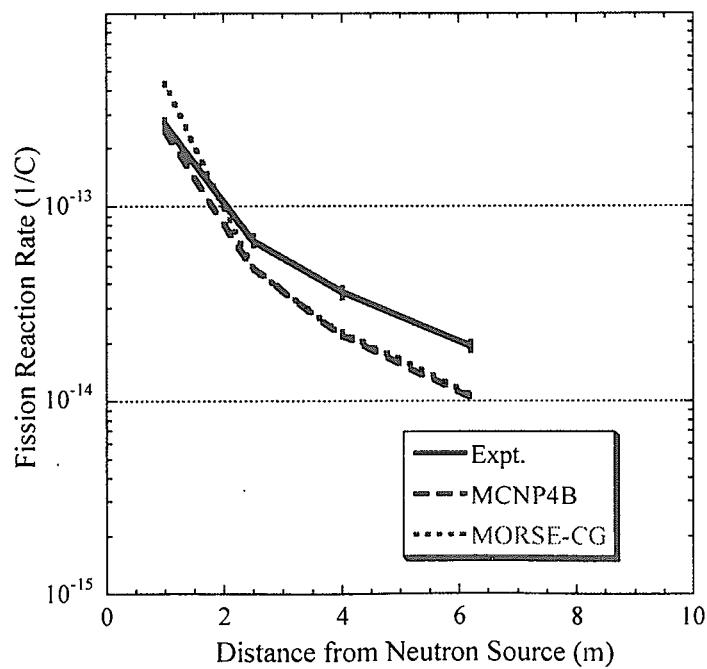


図 9 ターゲット室内における速中性子反応率分布実験値と計算値の比較

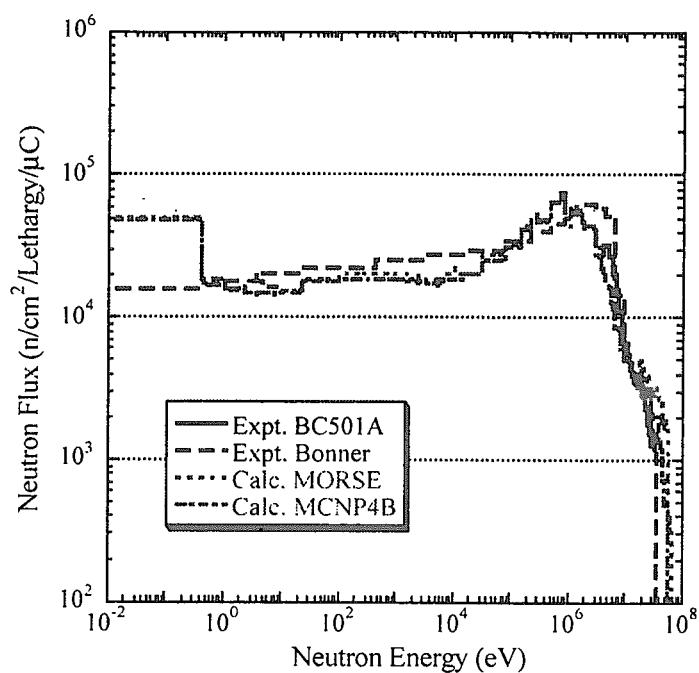


図 1 0 迷路入り口部における中性子エネルギースペクトル

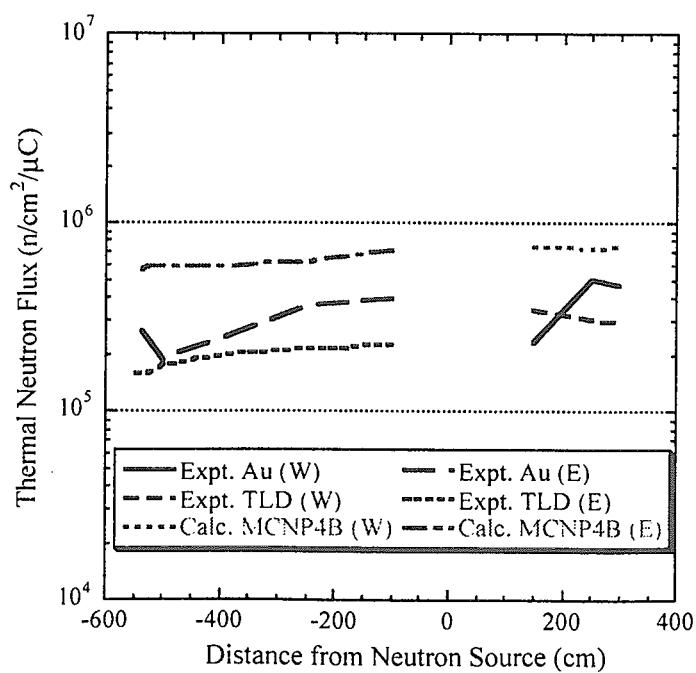


図 1 1 室内における熱中性子束に関する実験値と計算値の比較

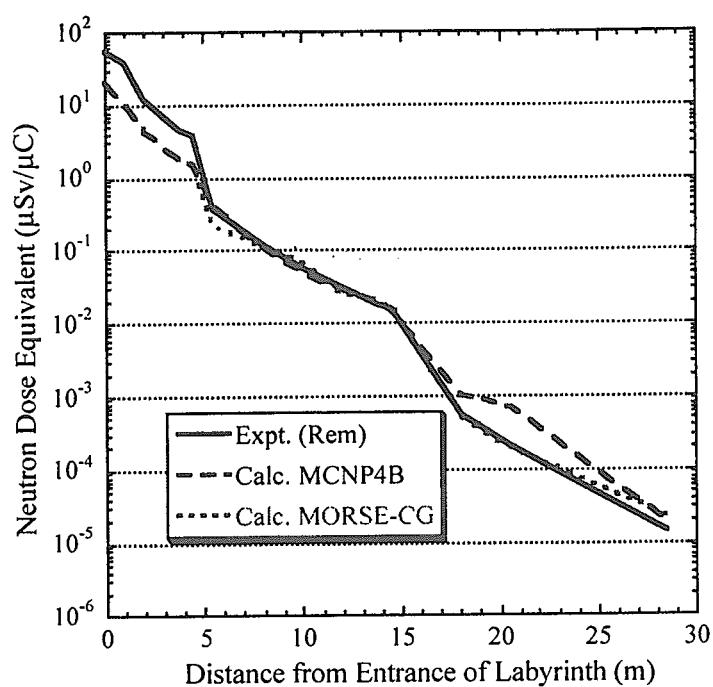


図 1-2 迷路内における中性子線量当量分布実験値と計算値の比較

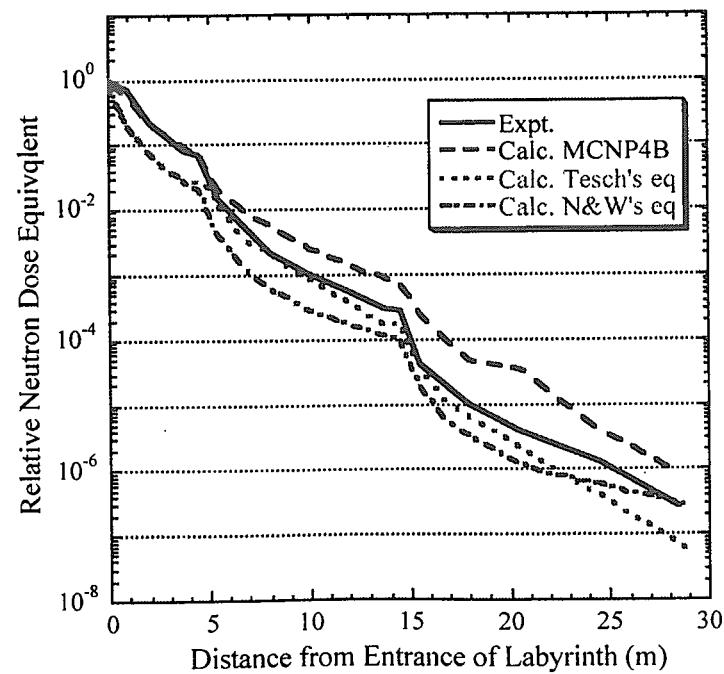


図 1-3 迷路内における相対中性子線量当量分布実験値と計算値の比較



JP0150014

JAERI-Conf 2000-008

2.2.3 荷電粒子による中性子、ガンマ線及び二次荷電粒子の生成

渡辺幸信¹⁾、原田正英¹⁾、山本晃央¹⁾、田中康弘¹⁾
秦 和夫²⁾、小野慎二²⁾、馬場 譲³⁾、松山成男³⁾、中村尚司⁴⁾
高田 弘⁵⁾、明午伸一郎⁵⁾、中島 宏⁵⁾、佐々敏信⁵⁾、田中 進⁶⁾、田中俊一⁶⁾
岩本 修⁵⁾、深堀智生⁵⁾、千葉 敏⁵⁾

¹⁾九大総理工、²⁾京大工、³⁾東北大工、⁴⁾東北大 CYRIC、⁴⁾原研東海、⁵⁾原研高崎

加速器遮蔽設計や被曝線量評価などで必要となる高エネルギー粒子輸送計算の精度向上のために、陽子、 α 粒子および炭素イオンビームを厚いターゲットに当て、放出される二次中性子・ガンマ線スペクトルを測定し、輸送計算コードによる計算結果との比較を行った。また、中高エネルギー領域の陽子核データ整備に向けて、陽子入射核反応からの軽イオン生成断面積を測定し、既存の実験データや評価値との比較・検討を行った。

Production of secondary neutrons, gamma-rays, and charged-particles from charged-particle induced reactions

Y. Watanabe¹⁾, M. Harada¹⁾, A. Yamamoto¹⁾, Y. Tanaka¹⁾, K. Shin²⁾, S. Ono²⁾,
M. Baba³⁾, S. Matsuyama³⁾, T. Nakamura⁴⁾, H. Takada⁵⁾, S. Meigo⁵⁾, H. Nakashima⁵⁾, T. Sasa⁵⁾,
Su. Tanaka⁶⁾, S. Tanaka⁶⁾, O. Iwamoto⁵⁾, T. Fukahori⁵⁾, and S. Chiba⁵⁾

¹⁾Department of Advanced Energy Engineering Science, Kyushu University,

²⁾Department of Nuclear Engineering, Kyoto University,

³⁾Department of Quantum Science and Energy Engineering, Tohoku University

⁴⁾Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University

⁵⁾Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai Establishment

⁶⁾Japan Atomic Energy Research Institute, Takasaki Establishment

Spectra of secondary neutrons and gamma-rays from stopping length targets irradiated by protons, alpha particles and carbon ions were measured and compared with calculations by nucleon transport codes used in the shielding design of accelerator facilities and dose evaluation. In addition, double-differential production cross sections of light ions emitted from proton-induced reactions, which are important as intermediate proton nuclear data, were measured and compared with available experimental and evaluated data.

Key words : Measurements, Charged particle, Secondary neutron, Secondary gamma-ray, Thick target yield, Proton, Double-differential production cross sections, Nucleon transport code, NMTC/JAERI, QMD, Preequilibrium emission, Intermediate energy nuclear data

1. 序

近年、高エネルギー加速器を利用した応用分野—放射性廃棄物消滅処理や核破碎中性子源、癌の粒子線治療など—が注目され、様々な施設の計画立案や建設が始まっている。こうした加速器施設の設計(例:遮蔽設計)や被曝線量評価などの放射線安全管理において、従来の原子炉設計よりかなり高いエネルギー領域の粒子輸送計算が必要となってくる。高エネルギー粒子輸送計算の精度向上にむけ、高精度輸送計算手法や計算コードシステムの開発及び、高エネルギー粒子と物質との相互作用基礎データの整備(高エネルギー核データ評価)が粒子線高度利用の基盤技術の確立のために急務である。¹⁾

そこで、本研究では、原研 TIARA 施設の AVF サイクロトロンを利用した大学・原研プロジェクト研究の一環として、荷電粒子入射反応で発生する二次中性子、ガンマ線や荷電粒子のエネルギースペクトルの高精度測定を行い、輸送計算コードのベンチマークテストや中高エネルギー領域の陽子核データの整備を進めてきた。実験は、AVF サイクロトロン第一重イオン室の HB-1 ビームライン上に設置した汎用散乱槽を用いて、以下の2テーマで行われた。

- (1) 厚いターゲットからの中性子およびガンマ線スペクトル測定（第Ⅰ期：H4～H8）
- (2) 陽子入射核反応からの軽イオン生成断面積測定（第Ⅱ期：H9～H11）

2 厚いターゲットからの中性子およびガンマ線スペクトル測定

本実験は、加速器遮蔽設計のための線源データ収集と高エネルギー粒子輸送計算コードの精度評価を目的に、主に京大・原研の共同研究として行われた。数十 MeV の入射エネルギー領域において、種々の厚いターゲットから発生する二次中性子およびガンマ線の入射エネルギーおよび入射イオン依存性を調査するために、系統的なスペクトルデータを取得し、輸送コード計算との比較を行った。以下に、二次中性子スペクトル測定および解析結果について報告する。なお、詳しい内容については文献^{2,3,4)}を参考のこと。

2. 1 実験方法および測定結果

図1に実験の配置図を示す。実験では、AVF サイクロトロンで加速された粒子を時間分解能約 2.5ns のパルスに成形して、飛程より厚いターゲットに入射させた。入射粒子としては、68 MeV 陽子、100 MeV α 粒子、220 MeV C を用いた。使用したターゲットは、68 MeV 陽子に対して Be(厚さ:30 mm)、C(31 mm)、Al(12 mm)、Au(6 mm)、Pb(8 mm) の5つであった。100 MeV α 粒子、220 MeV C に対しては、C(3.2 mm)、Fe(1.3 mm)、Zr(1.8 mm)、Au(2 mm)を選択した。入射粒子数はターゲットに接続した電流積分計で計測した。ビームをターゲットに入射した際に発生する二次電子を抑えるために、-500V の二次電子抑制電圧を印加した。ターゲットからの放出二次中性子は、直径5インチ、厚さ5インチの BC501A シンチレータを用いて、 0° , 15° , 30° , 45° , 60° , 90° , 120° の7角度で飛行時間法により測定した。室内散乱に起因するバックグラウンド成分を長さ 80cm の鉄シャドーバーをターゲットと検出器間に配置することで測定した。BC501A シンチレータに接続された光電子

増倍管(R4144)からの出力信号(パルス波高、パルス波形および飛行時間)を3次元データとして収集した。

測定された生データに対して、 $n-\gamma$ 分別のオフライン処理を行い、中性子 TOF スペクトルに変換した。検出器のバイアスは ^{137}Cs コンプトン端の半波高値(0.497 MeVee)に設定した。重陽子発光値と水素に対する中性子弹性散乱角度分布を修正した SCINFUL コード⁵⁾を用いて検出器の効率を計算した。得られた中性子スペクトルの結果の一例を図2～4に示す。エネルギー分解能および収量の誤差は、それぞれ 8 %、10 % であった。なお、この値は、アンフォールディング法に比べかなり小さい。

2. 2 輸送計算コードによる解析結果

測定データの解析には、(1) NMTC/JAERI コード + MCNP-4A からなる高エネルギー核子・中間子輸送コードシステムおよび (2) 量子分子力学(QMD) シミュレーションを導入した新しい計算手法²⁾を適用した。

核内カスケード(INC) モデルに基づく NMTC/JAERI コード⁶⁾に、前平衡粒子放出過程を取り扱えるオプション⁷⁾を加え、核子核子散乱断面積として、自由空間での断面積(Free) および核媒質効果を入れた断面積(In-Medium) を採用した場合の結果を比較した。また、入出射粒子の原子核平均場による反射・屈折の効果及び In-Medium 核子・核子散乱断面積を導入した計算(ISOBAR オプション⁸⁾)を行った。なお、ターゲット内で発生した 20MeV 以下の中性子の輸送は、MCNP-4A コード⁹⁾を用いて取り扱った。Au に対する 68MeV 陽子入射反応に対する計算値と実験値の比較結果を図2 に示す。NMTC/JAERI 計算結果は、Free 散乱断面積および In-Medium 断面積を使つたいずれの場合とも、45° より後方では実験と良く一致したが、0° ～30° 方向では、20MeV 以上の中性子放出を実験より極端に大きく評価している。一方、ISOBAR オプションの計算では、実験と一部不一致があるものの、後方角でも実験を概ね再現している。この結果より、原子核媒質効果を考慮する INC モデルを用いることで、入射エネルギー 200MeV 以下の領域で、NMTC/JAERI+MCNP-4A コードシステムの予測精度が向上することがわかった。

次に、INC の代わりに、QMD を導入した計算手法²⁾による解析結果を図3 及び4 に示す。QMD は、時間的に早い直接過程と前平衡過程を記述でき、これらの過程に統一して起こる反応を統計崩壊過程とみなし、統計崩壊モデル(SDM) で計算する。以下、本モデルを QMD+SDM モデルと呼ぶ。図3 はターゲット C、Al、Au に対する 68MeV 陽子入射の場合、図4 は 100MeV α 粒子入射の場合である。陽子入射の場合、C や Al のように軽い元素ターゲットに対しては、全角度領域にわたり良い一致を示している。一方、重い元素である Au の結果は、全体的に大きく過大評価することが分かった。 α 粒子入射では、前方角での不一致が目立つが、概ね実験値のスペクトル・角度分布の傾向を再現できている。以上、重い核種に対して、100MeV/u 以下の軽イオンを入射する場合には、QMD 計算のさらなる検討が必要であるが、今後、モデルの改良を通じて、QMD+SDM モデルは軽イオン入射反応における中性子線源評価の一つの有力な手法になることが期待される。

3 陽子入射核反応からの軽イオン生成断面積測定

高エネルギー粒子輸送計算では、入射粒子との核反応により生成される二次粒子の角度・エネル

ギー分布を表す二重微分断面積データ(DDX)が微視的な核データとして重要である。本研究では、中高エネルギー陽子核データ整備を目標にして、陽子入射核反応からの二次軽荷電粒子($p, d, t, {}^3\text{He}, \alpha$)および中性子の DDX 測定を計画し、主に九大・原研の共同研究として、平成9年度より TIARA での実験を開始した。

3. 1 実験方法

図5に実験装置の配置図を示す。AVFサイクロトロンで加速された陽子ビームを汎用散乱槽に導き、中央に設置したターゲット薄膜に照射し、放出される荷電粒子のエネルギー分布を新しく開発した広域 ΔE - E カウンターテレスコープ¹⁰⁾を使って測定した。入射陽子のエネルギーは 42 MeV および 68 MeV で、ターゲットは、C(厚さ 0.49 mg/cm²) および Al(0.99 mg/cm²) を選んだ。ガンマ線バックグラウンドを低減化するために散乱槽下流 3mにグラファイトからなるビームダンプを設置し、それに接続した電流積分計で入射ビーム電流量をモニターした。放出荷電粒子スペクトルを 25° ~ 150° の間で9点測定した。

使用したカウンターテレスコープの断面図を図6に示す。2台のシリコン半導体検出器からなる ΔE 検出器(それぞれ厚さ 30 μm, 500 μm)およびフォトダイオード読み出しの CsI(Tl)シンチレータ(厚さ 3 cm)からなる E 検出器で構成されている。それぞれの検出器からの信号は、CAMAC を使った多次元データ収集システムを用いて、3次元データとして収集した。 ΔE および E データのオフライン処理により、粒子弁別を行い、各放出角度ごとのエネルギースペクトルデータ(二重微分断面積: DDX)に変換した。データ処理の過程で得られた ΔE - E の二次元プロット図を図7に示す。放出軽荷電粒子として、 $p, d, t, {}^3\text{He}, \alpha$ 粒子がかなり良く分離できている様子がわかる。

3. 2 実験結果および解析

図8に、68MeV 陽子の ${}^{12}\text{C}$ による弾性散乱および非弾性散乱微分断面積の実験値と Soft-rotator model (SRM)を用いたチャンネル結合法(SRM+CC 法¹¹⁾)による計算結果との比較を示す。計算値は実験値と良好な一致を示し、SRM+CC 法の有効性を実証することができた。

次に、DDX 測定結果の一例を図9に示す。68MeV 陽子入射反応からの(a)放出二次陽子、(b)重陽子、(c) α 粒子の DDX 実験データと 61.9MeV 入射に対する Bertrand 等¹²⁾の実験値および LANL の最新評価ライブラリ(LA150¹³⁾)に含まれる 70MeV 入射の評価値(ここでは、弾性散乱を除く)との比較である。エネルギースペクトルの高エネルギー端近傍には、離散的な準位への遷移に対応するピーク構造が観測されているが、放出エネルギーが低くなるにつれて連続スペクトル領域が広がっている。この中間のエネルギー領域は前方に行くほど断面積が大きくなる前方ピークの角度分布をもっており、多段階直接過程(MSD)による前平衡粒子放出が支配的な領域である。連続部に着目すると、Bertrand 等の実験値とは誤差範囲内で良い一致を示す。高エネルギー端近傍は、入射エネルギーの違いを反映して、両者での違いが見受けられる。LA150 評価値との比較では、陽子放出 DDX は前方角で過小評価の傾向を示しているが、全体的には概ね実験値と良い一致を示している。重陽子放出 DDX については、スペクトルの形状の一致が悪い。また、 α 粒子放出 DDX についても、放出エネルギー 15~30 MeV に差異が見られる。 ${}^{12}\text{C}$ に対する結果は、重陽子と α 粒子放出 DDX を除いて、LA150 との一致は概ね良い。

現在、MSD 過程に着目したデータの解析を進めている。1つは、実験データに基づいて作成された Kalbach 系統式¹⁴⁾を使った角度分布の解析である。計算結果は本実験値と概ね良い一致を示したが、¹²C に対する α 粒子放出の場合には、角度分布の形状が大きく異なることがわかった。また、九大グループが提案している半古典歪曲波モデル(SCDW¹⁵⁾)による解析も同時に進めしており、²⁷Al(p,p')に対する予備的な計算結果は、後方角で過小評価の傾向が見られるものの、前方領域では実験値を良く再現している。

4.まとめ

本研究では、AVF サイクロトロン第一重イオン室の HB-1 ビームライン上に設置した汎用散乱槽を用いて、荷電粒子入射反応で発生する二次中性子、ガンマ線や荷電粒子のエネルギースペクトルの高精度測定を行った。第Ⅰ期(H4～H8)として、厚いターゲットからの生成中性子およびガンマ線スペクトルを測定し、高エネルギー粒子輸送コードのベンチマークテストに用いた。核反応モデルの改良や新手法の提案により、100MeV/u 以下の領域における予測精度向上に貢献した。第Ⅱ期(H9～H11)では、中高エネルギー領域の陽子核データ整備を目標に、陽子入射核反応からの軽イオン生成二重微分面積測定を始めた。現在、第Ⅱ期の研究テーマが継続中であり、DDX 計測システムが完成し、C 及び Al に対する実験データの測定が終了した段階である。今後は、さらに入射エネルギーやターゲットの質量数範囲を広げた系統的な測定を行い、研究成果を国内の JENDL 高エネルギー核データ評価作業に反映させていく予定である。

謝 辞

本研究の1部は、文部省科学研究費補助金(No.05302074 および No.09558059)の援助を受けた。

参考文献

- 1) 深堀智生等、「高エネルギー核データの現状と整備」、日本原子力学会誌 Vol. 40, (1998) pp.3.
- 2) S. Meigo et al., in Proceedings of Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, Italy, 19-24 May, 1997, ed. G. Reffo, A. Ventura, and C. Grandi (Italian Physical Society, Bologna, 1997) pp. 413.
- 3) S. Meigo et al., JAERI-Conf 97-005 (1997), pp.205.
- 4) 中村尚司、平成5, 6, 7年度科研費研究成果報告「高エネルギー粒子線の物質内挙動と輸送現象に関する研究」(1996), pp.339-358.
- 5) S. Meigo, Nucl. Instr. and Methods A401, 365 (1997).

- 6) Y. Nakahara and T. Tsutusi, NMTC/JAERI A Code System for High Energy Nuclear Reactions and Nucleon-Meson Transport Code, JAERI-M 82-198 (1982).
- 7) N. Yoshizawa et al., J. Nucl. Sci. Technol. **32**, 601 (1995).
- 8) H. Takada, J. Nucl. Sci. Technol., **33**, 275 (1996).
- 9) J.F. Briesmeister (Ed.), MCNP A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4A, LA-12625 (1993).
- 10) M. Harada et al., JAERI-Conf 97-005 (1997), pp.240.
- 11) E.S. Sukhovitskii et al., Nucl. Phys. **A640**, 147 (1998).
- 12) F.E. Bertrand and R.W. Peele, Phys Rev. C **8**, 1045 (1973).
- 13) M.B. Chadwick et al., LA-UR-98-1825 (1998); to be published in Nucl. Sci. Eng.
- 14) C. Kalbach, Phys. Rev. C **37**, 2350 (1988).
- 15) Y. Watanabe et al., Phys. Rev. C **59** (1999) in press; Sun Weili et al., JAERI-conf 98-003 (1998), pp. 282.

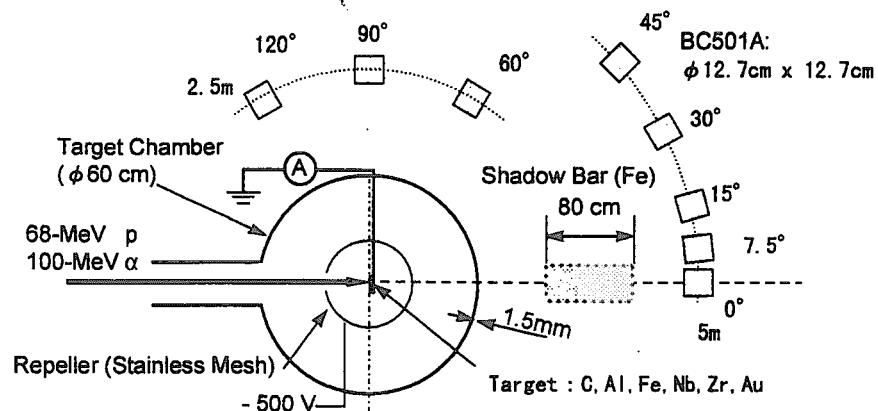


図 1: 厚いターゲットからの二次中性子スペクトル測定系の実験配置図

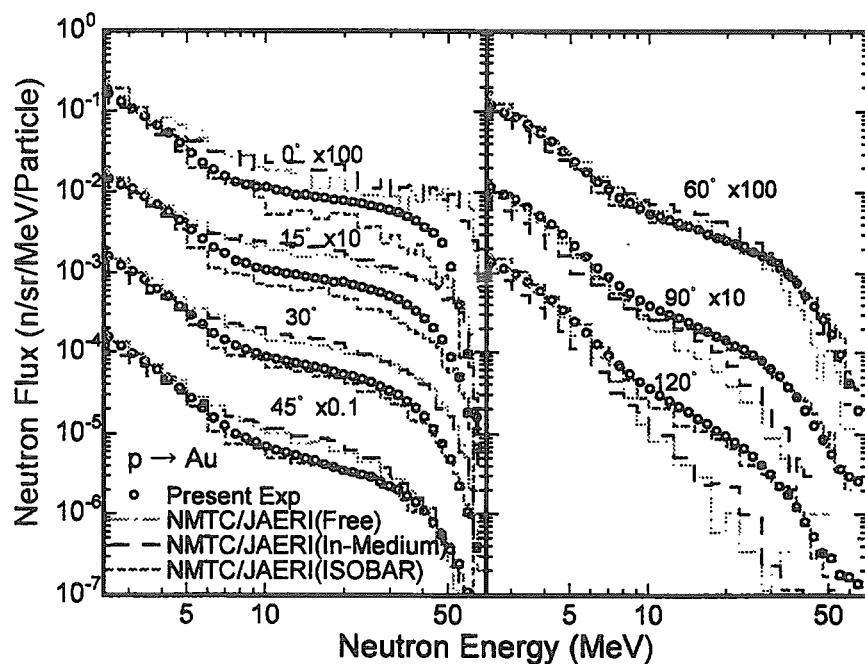


図 2: Au に対する 68MeV 陽子入射からの放出 2 次中性子スペクトルの実験値と NMTC/JAERI 輸送コードの計算結果との比較

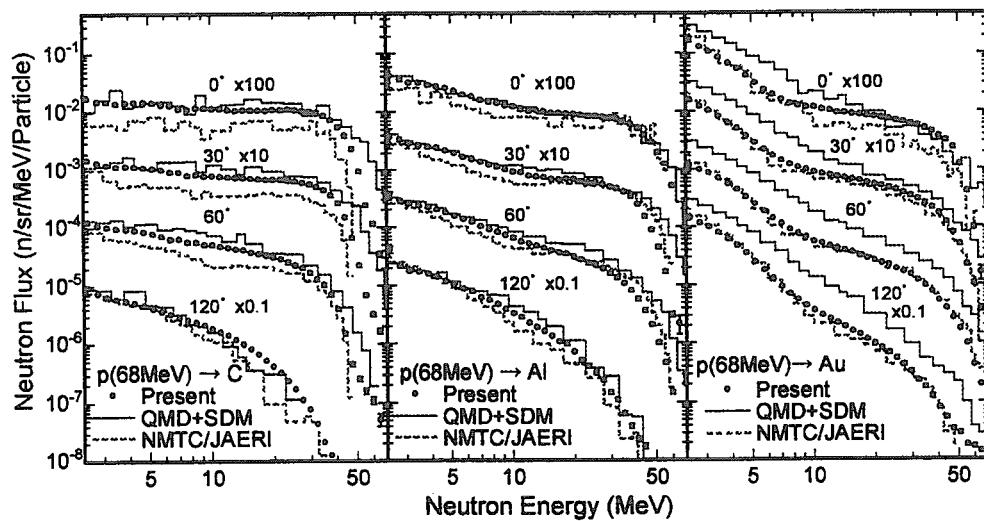


図 3: C, Al, Au に対する 68MeV 陽子入射からの放出 2 次中性子スペクトルの実験値と QMD+SDM モデルおよび NMTC/JAERI 輸送コードの計算結果との比較

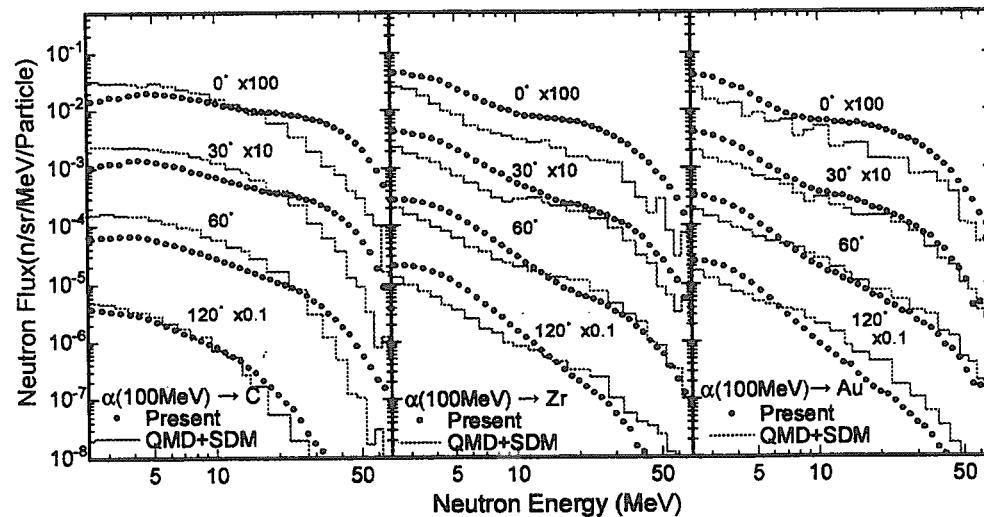


図 4: 100 MeV α 粒子入射からの放出 2 次中性子スペクトルの実験値と QMD+SDM モデル計算結果との比較

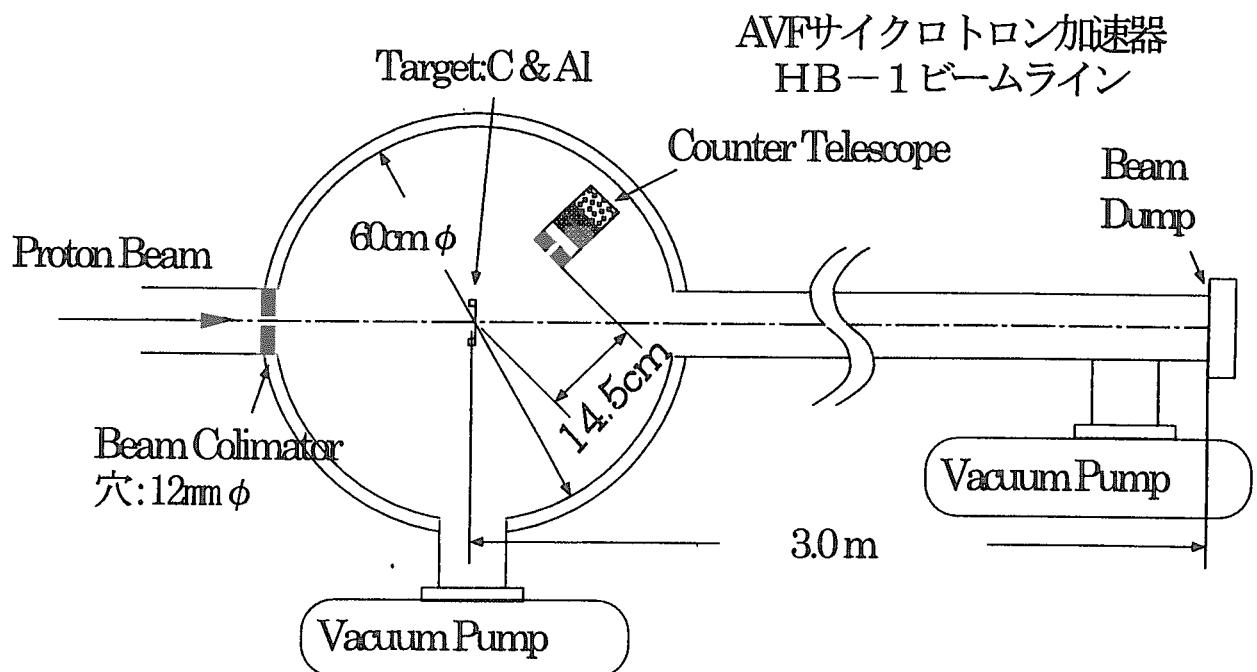


図5 陽子入射反応からの2次荷電粒子生成断面積測定系の実験配置図

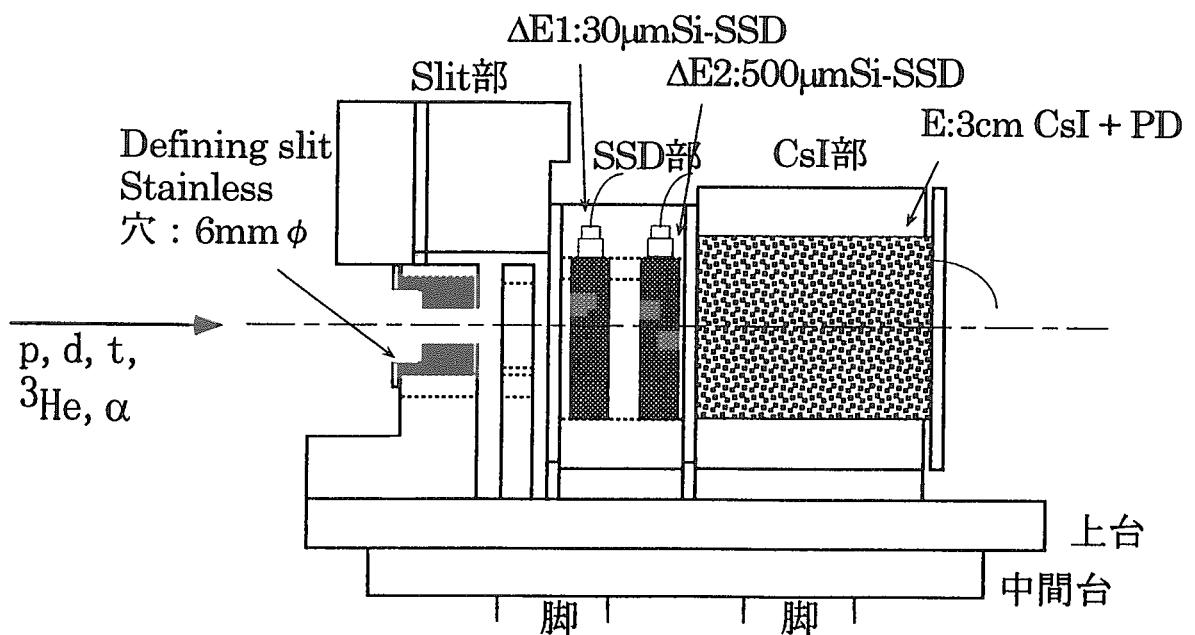


図6 広域ΔE-Eカウンターテレスコープの断面図

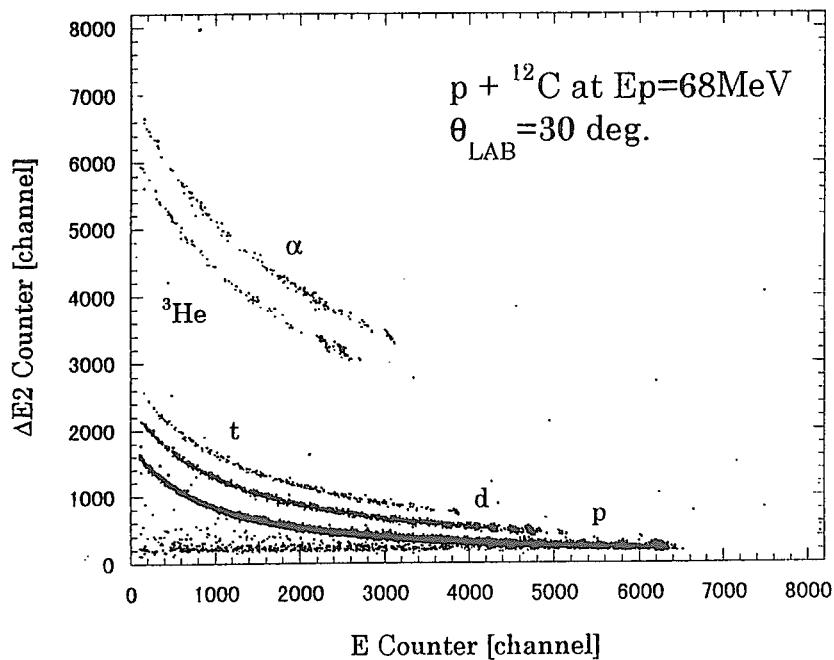


図7 ΔE - E 二次元プロットによる粒子弁別

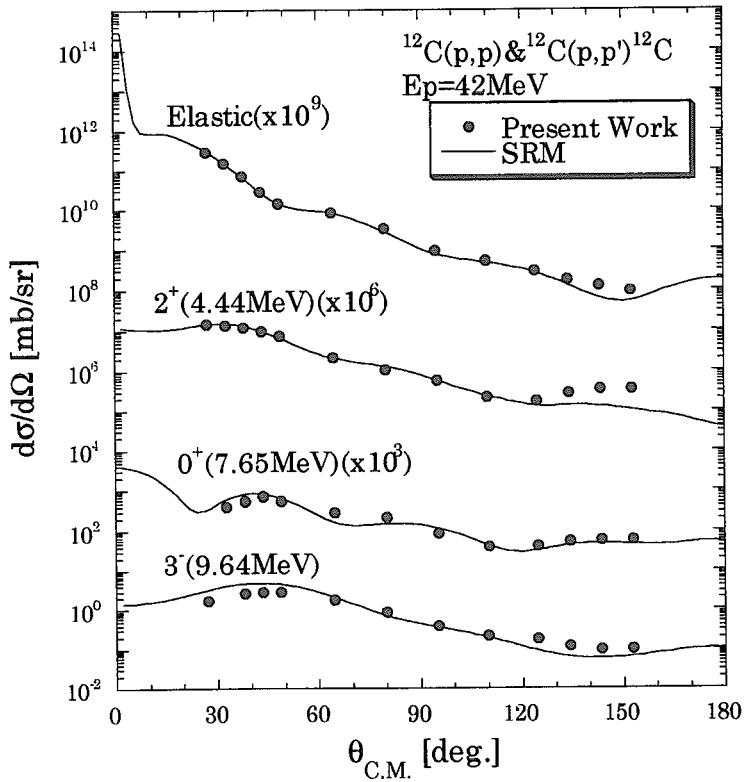


図8 42MeV 陽子の ${}^{12}\text{C}$ による弾性および非弾性散乱微分断面積の実験値と Soft-rotator モデルを用いたチャンネル結合法の計算結果との比較

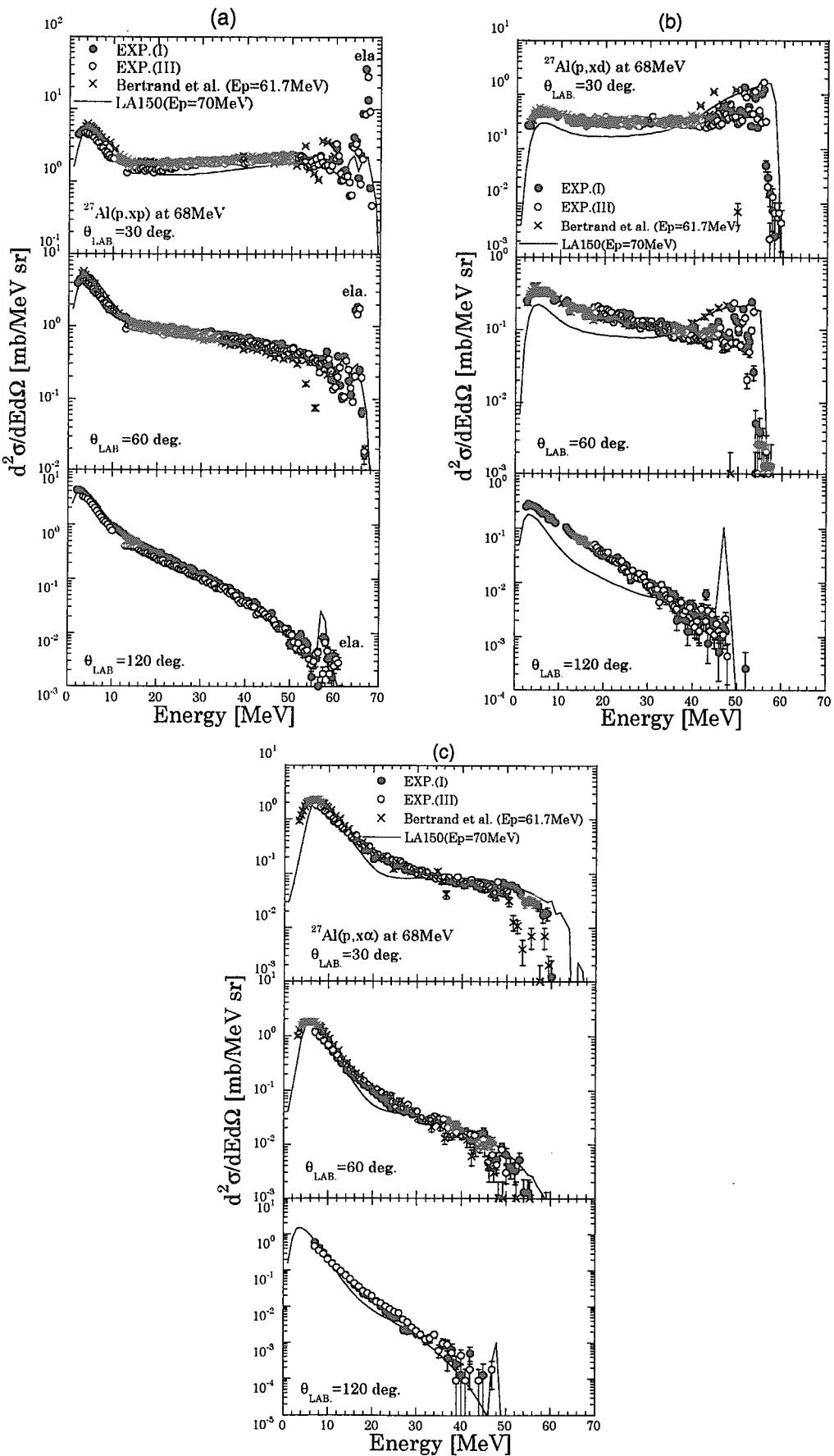


図9 ^{27}Al に対する 68MeV 陽子入射反応からの放出荷電粒子二重微分断面積の実験値と LA150 評価値との比較。黒丸および白丸が本測定値。(a) (p, xp) 反応, (b) (p, xd) 反応, (c) (p, xt) 反応



JP0150015

JAERI-Conf 2000-008

2.3 イオンビーム利用による材料解析法の研究

2.3.1 概要説明

原研・先端基礎研究センター 楢本 洋

ここでは、MeV領域のイオンと物質との相互作用に関する研究をベースにした材料解析法の高度化の研究（第1期）とその応用としての、表面・界面を介した異種元素の反応過程の解析（第2期）に関する研究の流れを紹介する。

Progress of Materials Analysis Methods Using Ion Beams

Hiroshi Naramoto

Takasaki-branch, Advanced Science Research Center, JAERI

Progress of materials analysis methods using ion beams is described briefly which has been performed in a collaboration with universities as research projects. The first phase was devoted for the development of advanced analysis system based on the interaction between ions and targets, and in the second phase the interaction process of impurity elements at the surface/interface was traced using the developed methods during the first phase.

*Ion Solid Interaction, Ion Beam Analysis, Surface, Interface, Reaction Mechanism, Non-equilibrium Processing

1. 目的

- *イオンと物質との相互作用に関する研究をベースに、MeV領域のイオンを用いた材料解析法の高度化に関する研究を行う。
- *新物質の創製や機能化に関する、表面・界面を介した異種元素の反応過程を原子レベルで追跡する。

2. 研究担当（順不同、敬称略；*印は大学側及び原研側担当者）

1) 1期(1994年-1996年) 「MeVイオンを用いた材料解析法の高度化とその応用」

- *東北大 山口貞衛 教授他：重イオンビーム反跳法による軽元素分析法の高度化
- 筑波大 工藤 博 教授他：イオン励起2次電子分析
- 名大 森田健治 教授他：In-situRBS法による固液界面における原子の吸脱着過程の研究
- 京都工芸繊維大 川面 澄助教授他：重イオン励起X線分光の状態分析への応用
- 立命館大 城戸義明 教授他：弹性散乱における核力の寄与と関連解析法の確立
- 九州大 木下智見 教授他：非金属無機結晶の高密度電子・格子励起効果

* 原研材料開発部 楢本 洋 主任研究員他

2) 2期(1997年-1998年) 「イオンビーム利用による表面・界面反応過程の研究」

* 名大 森田健治 教授他：透過チャネリング法による単結晶表面上の2元吸着原子の位置決定

筑波大 工藤 博 教授他：イオン励起電子分光による表層解析

東北大 山口貞衛 教授他：同時または連続イオン注入による固体内ナノ化合物結晶の合成

北海道大 大貫惣明 教授他：イオンミキシングにより形成される金属珪化物の安定性

九州大 木下智見 教授他：ナノ領域での物質形成と物性評価

* 材料開発部/先端基礎研究センター 楢本 洋 主任研究員他

3. 結論・成果(イオンビーム解析法の高度化と表面・界面反応への適用)

当該分野では、今まで研究プロジェクト組んで活動することは少なかったが、本プロジェクトでは原研 TIARA の加速器の特徴を生かした提案をベースにしたため、共通の接点で試料や情報の交換を行うことにより、当該研究が効率的に遂行された。更に、学際的なアイディアに基づく新しい研究テーマを迅速に実行でき、国際的な競争力を維持できたのも、プロジェクトならではの特長と思われる。以下に小項目別の成果について、概略を記す。

- 1) 2次電子分光器を創作して、イオン入射により生成する2次電子を分光することにより、蒸着膜表面層の格子歪みを従来よりも2桁高感度に解析可能であることを示した。更に、イオン散乱粒子とオージェ電子を同時に分光可能なチャネリングシステムを開発した。
- 2) 単結晶薄膜を窓材に用いた小型反応容器を真空槽内に設置して、固液界面での反応過程を In-situ RBS 法により解析可能にした。透過透過チャネリング法と組合わせることにより、通常の RBS 法では不可能な吸着重元素を識別して、2元系での表面反応解析が可能であることを示した。
- 3) 共鳴核反応を用いた阻止能の評価結果は、イオンビームハンドブックに収録され、一般の利用に供された。
- 4) TIARA の 3MV タンデム加速器からの各種のイオンを入射して、分子軌道形成過程により発生する X 線を検出して、不純物の結合状態を高感度に検出するための手法を確立した。
- 5) デュアルビームシステムを用いて、400kV 加速器からの軽元素イオンを注入しながら、タンデム加速器速器からの高エネルギー重イオンを用いた反跳粒子検出を行うことにより、定常状態における拡散挙動を解析可能であることを示した。
- 6) イオン注入過程で標的物質を非晶質化できれば、注入元素は加熱結晶化過程でも反応せず、自己凝縮してナノ微結晶を形成可能であることを示した。
- 7) 酸化物中での点欠陥集合体形成過程に対する、イオン・電子の重疊照射効果を明らかにした。特に Ti または V を添加することにより、転位ループの形成が抑制されることを見出した。
- 8) イオンビームを利用した金属・Si 間の非平衡反応では、生成する結晶質/非晶質間の安定性は、金属種、照射量及び温度により支配されることを明らかにした。

4. 成果・波及効果：

1) 成果発表状況

年 度	口 頭 発 表	会 議 錄 (Proceedings)	論 文 発 表
平成 6 年度	2 件	2 件	5 件
平成 7 年度	8 件	14 件	9 件
平成 8 年度	4 件	5 件	7 件
平成 9 年度	8 件	8 件	5 件
平成 10 年度 (11 年 1 月現在)	3 件	1 件	11 件
合 計	25 件	30 件	37 件

2) 波及効果

- * オージェ電子と散乱粒子の同時分光法の確立は、重元素物質表面での反応過程の結晶学的解析が可能になり、例えばダイアモンド合成過程の研究などに適用できよう。
- * In-situ RBS と透過チャネリング法の組合せは、原子力関連分野での固液界面での反応・物質移動過程の解析に有効となろう。
- * 固体内反応では、過飽和状態の形成と基板媒質の状態（結晶状態かどんな非晶質状態か）によってその後の核形成過程が異なり、ナノ構造パターンを制御した機能性物質のデザインが可能になろう。



JP0150016

JAERI-Conf 2000-008

2.3.2 構造感応型イオン誘起2次電子分光

工藤 博^A、山本春也^B、鳴海一雅^B、榎本 洋^B

^A筑波大物工、^B原研高崎

概要： 従来、オージェ電子分析に代表されるピーク検出型の電子分光においては連続エネルギースペクトルは単にバックグラウンドとみなされ、系統的な研究の対象にはならなかった。本研究では、電子励起断面積の大きい高速イオンを利用し、2体衝突過程により生成される2次電子の連続エネルギースペクトルスペクトルの測定からイオンチャネリングの初期段階であるシャドーイング効果を精密測定する実験技術を新たに開発した。さらに、基礎・応用両面にわたる一連の研究によって結晶ターゲットからの高速イオン誘起2次電子放出の総合的な知見を得て、固体の構造情報を得るための構造感応型イオン誘起2次電子分光を確立することができた。また本研究のいわば副産物として、従来の角度分解光電子分光との接点が明らかになり、角度分解イオン誘起オージェ電子分光の可能性が見出された。本研究における一連の実験では、広範囲のイオン速度(0.1 ~10 MeV/u)におけるデータを取得する必要上、イオン注入装置(TIARA 400kV)、シングルエンド加速器(TIARA 3MV)およびタンデム加速器(TIARA 3MV, 筑波大12MV)の計4台のイオン加速装置を併用した。

Structure-sensitive ion induced electron spectroscopy

Hiroshi Kudo^A, S. Yamamoto^B, Kazumasa Marumi^B, and Hiroshi Naramoto^B

^AInstitute of Applied Physics, Univ. of Tsukuba, ^BJAERI-Takasaki

ABSTRACT:

In many types of ion-induced electron spectroscopy, few attention has been paid to continuum-energy spectra of the emitted electrons from solid surfaces since such electron yield is regarded merely as a background in the electron spectroscopy of "peak-search type", for example, Auger electron spectroscopy. However, we have found that the continuum electron yield resulting from binary-encounter processes ("binary electron yield") in a crystal target sensitively reflects the ion-beam shadowing effect which is the first stage of ion channeling. The electrons typically in a keV energy range measured at a backward direction are those that are first recoiled by MeV ions in a forward direction and are backscattered by the target nuclei. Under channeling incidence conditions, the electrons are recoiled predominantly from the unshadowed atoms near the surfaces. The yield at energies lower than the binary-encounter peak energy E_B provides data for shadowing for all electrons in the target crystal, while that above E_B enables analysis of shadowing for inner-shells since the yield stems from the inner-shell electrons that have high orbital velocities. A new type of ion-beam analysis can be established using the structure-sensitive electron spectroscopy. For this purpose, knowledge on the production and transport processes of the

electrons is of fundamental importance. The important research results includes general knowledge of the production and escape processes of the binary-encounter electrons, rather than the shadowing phenomena associated with the incident ions. In the experiments, we have made joint use of the 400-kV ion implanter, 3-MV single-ended and tandem accelerators at JAERI-Takasaki, and the 12-MV tandem accelerator at the University of Tsukuba to cover a wide velocity range (0.1-10 MeV/u) of the ions.

Keywords: ion beam analysis, secondary electron, channeling, ion-beam shadowing

I. 研究の意義と目的

加速イオンの入射により固体表面から放出される電子の連続エネルギースペクトルは、例えばオージェ電子分光などの従来のピーク検出型の電子分光ではバックグラウンドとしてほとんど注目されなかった。実際、固体から放出される2次電子は放出前に弾性および非弾性散乱を受けるので、その生成断面積は気体ターゲットの場合（例えばRudd and Macekの解説, Case Studies in Atomic Physics, vol. 3, 1972, pp47）に比べて不明な点が多い。しかし実験を行ってみると、連続スペクトルにおける特定のエネルギー領域の電子収量（固体内でBinary-peak energy程度の反跳エネルギーで散乱された電子により生成されるので、以後「反跳電子収量」等と記す）の測定から、単結晶の表面近傍層における内殻電子、および全電子に対するイオンビームシャドーイング効果を分離して観測できることを我々は見出した。keV～MeVイオンの後方散乱分析が固体内の原子核を検出対象とするのに対し、この測定方法では固体内部電子を反跳放出させてサンプリング検出する点に本質的な違いがある。したがってシャドーイング効果を利用する固体材料解析において、反跳電子収量を用いれば従来のイオン後方散乱法とは質的に違う知見が得られることが予想され、イオンビーム解析の新たな展開が期待できる。

今日、MeV領域のイオンビームによる固体の表面あるいはサブミクロ表面層の解析にはラザフォード後方散乱に代表されるイオン散乱法が広く利用されている。しかしそれの半導体等の機能材料においてはナノメータ表面層の構造解析は重要課題であり、これに対応しうるイオンビーム解析法の開発が望まれる。我々が進めているイオン誘起2次電子分析法は表面敏感であるうえ計数率が高く、上記の目的にかなった分析法として有望である。さらに、物理現象としてはすでに十分な理解が得られているイオンビームシャドーイングを利用することによって、2次電子の生成および脱出過程についての詳細な知見が得られることが予想される。これは従来計算機シミュレーションによってしか扱うことができなかつた物理過程であり、研究対象としても重要な意味を持つであろう。

以上のような背景のもとで、我々は本研究期間内に新しいイオンビーム解析技術の確立のための基礎研究を行った。その際、従来のイオン後方散乱法によるシャドーイング測定においては検出されなかつた現象あるいは電子収量固有の効果の理解に重点を置い

た。研究内容は大別して「反跳電子の生成過程と固体内輸送(transport)過程」、「固体内イオンの荷電状態と反跳電子収量」、「固体内価電子の解析」、「結晶学的応用」の4課題であった。

II. 研究内容

[1] 実験装置

実験ではTIARAにおける3種類の静電加速器（イオン注入器、タンデムおよびシングルエンド加速器）と筑波大12MVタンデム加速器を用いて、0.1～10 MeV/uのイオン速度範囲における測定を行った。イオン誘起2次電子によるイオンビームシャドーイング効果の測定は我々の研究グループが独自に装置を開発し、加速器のビームトランスポートを含む実験技術を積み重ねて発展させたものである。電子分析器は我々が製作した2回偏向型の平行平板電子分析器（受容立体角～0.01sr）4台を使用し、超高真空条件下においてビームに対し結晶後方で電子スペクトルを測定した。電子の測定角度は多くの場合イオンビームに対して180°であった。この条件で測定された電子エネルギースペクトルは試料の表面法線の向きに依存しない。その理由は、表面からの放出電子収量の大部分が直進電子から成ることによる。さらに、180°方向の技術的利点は、結晶を傾けても電子分析器への入射軸は常に結晶表面上のビーム照射位置を通り、したがって信頼性の高い実験ができることがある。測定の概略をFig. 1に示す。

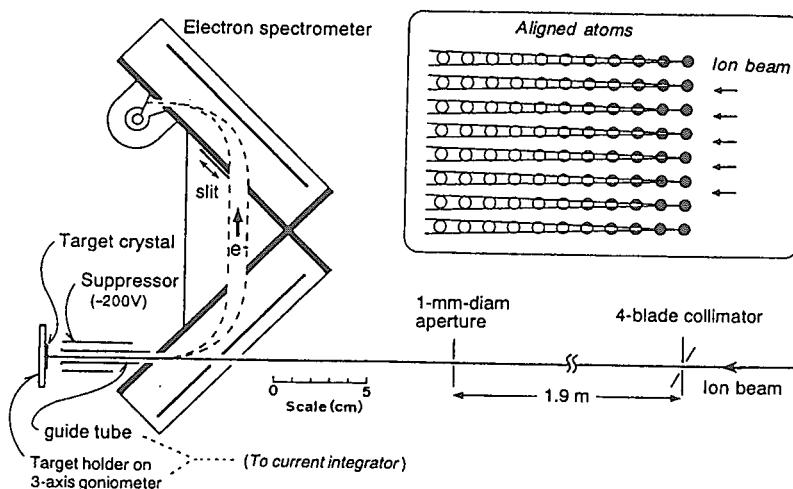


Fig. 1. Schematic arrangement for the high-energy shadowing experiment.

The inset illustrates the concept of high-energy shadowing (The circles schematically show the distribution of dense electrons); the target electrons inside the shadows do not collide with the incident ions .

[2] 反跳電子の生成と固体内輸送過程

固体分析への応用を目的として反跳電子収量の解析を高度化するためにはイオン誘起2次電子の生成と放出に関する実験による多角的なアプローチが必要である。本実験では0.1~2 MeV/uのHおよびHeイオンを用いて反跳電子収量の角度分解測定に相当する測定を行い、その生成と脱出過程についての知見を得ることができた。特に脱出過程についてのデータは、測定された反跳電子の平均的な深さ感度の議論において有用である。

結晶試料の角度分解光電子分光あるいは角度分解オージェ電子分光において回折現象が観測されることは周知であるが、特に強い回折ピークとして結晶軸方向への電子の収束効果（前方収束効果）が存在することが知られている。この効果は、単結晶に埋め込まれた放射性同位元素からの約100 keV以上の放出電子で観測される電子チャネリング効果と本質的に同じ現象とみなすことができる。したがって、一般に結晶から放出される電子の一部が収束効果を受けることは確実であり、問題はこの効果がイオン誘起2次電子放出に非等方性をもたらす程度に顕著であるかどうかである。もし放出強度が非等方的であれば、反跳電子を用いるシャドーイング効果の観測は複雑な解析が必要になるであろう。実験結果をFig. 2に示す。この測定では受容角 $2.3 \times 2.3^\circ$ の電子分析器を150° 方向に置き、(a)ではGe<111>結晶軸を電子分析器の入射軸方向付近($\theta = \phi = 0$ が分析器への入射軸方向)で角度走査した結果である。比較のため(b)にはGe<111>結晶軸をビーム方向付近($\theta = \phi = 0$ が<111>方向)で走査した場合を示す。これらの測定結果からイオン誘起電子放出における連続スペクトル電子収量には電子の放出方向の結晶方位に起因する非等方性は現れないことが明らかになった。これは電子収束軌道が短寿命であることによるものである。

一方、数回以上の非弾性散乱を受けていないオージェ電子ピーク収量は光誘起の場合と同じように前方収束効果を示すであろう。実際、イオン誘起によるSiのKLLオージェ電子(1.6 keV)について最近我々は前方収束効果を観測している。

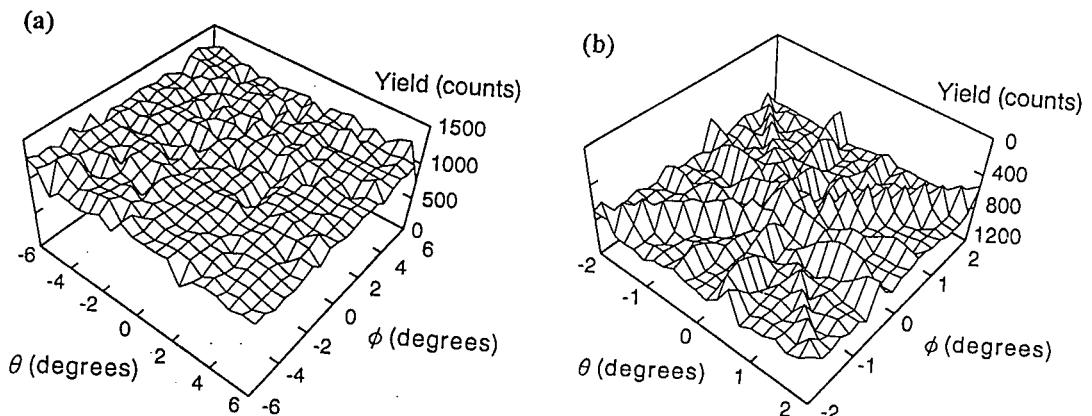


Fig. 2. 2.5 MeV H⁺誘起によるGeからの2.0-2.6keV電子収量の角度依存性（論文[8]）。

これらの一連の実験結果は連続スペクトル電子収量の測定および解析において電子分分析器の方向と受容角が制約を受けないことを意味している。このような反跳電子放出の特性に基づいて、我々は非焦点収束型の円筒鏡電子分分析器(CMA)の試作および測定テストを行った。この分分析器の受容立体角(約0.5 sr)は、従来我々が使用してきた2回偏向型の平行平板電子分分析器の約50倍であり、1pA程度のイオン電流においてもシャドーイング効果の測定が可能であることを示した。Fig. 3に約7 pAの20MeV O⁴⁺による測定例を示す。この計測技術を発展させれば、照射損傷の起きやすい材料例えは一部の誘電体結

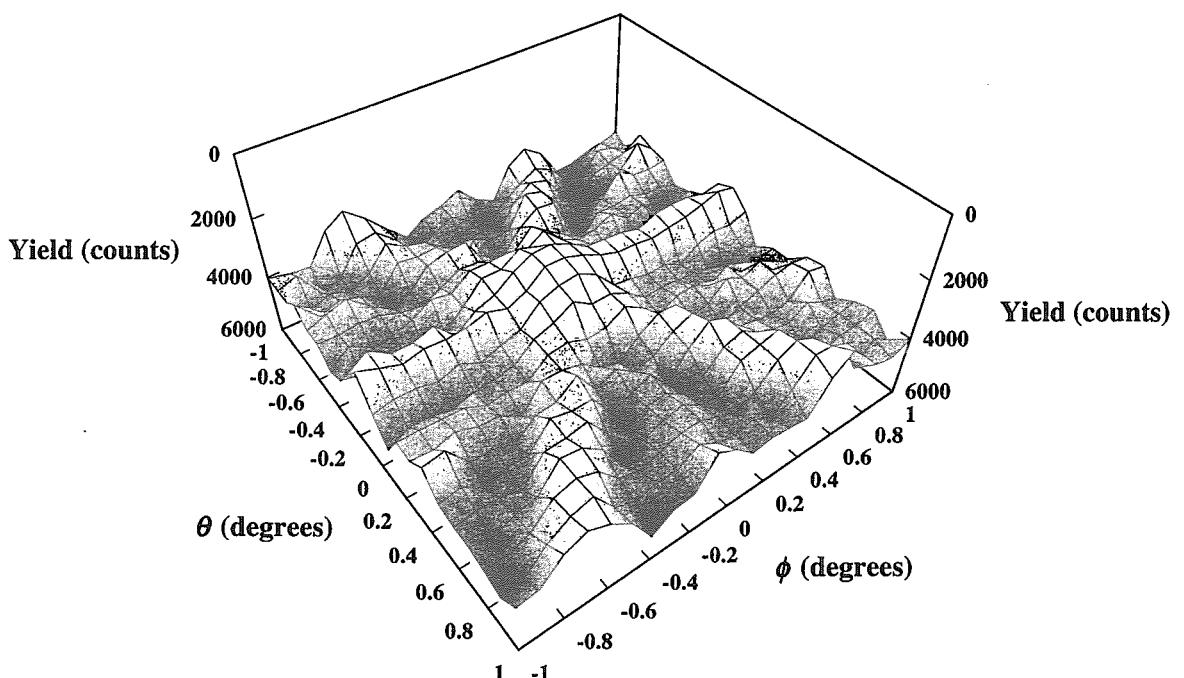


Fig. 3 . Shadowing pattern around Ge<111> for an angular range of $2\text{deg} \times 2\text{deg}$ measured with 2.0-4.1 keV electrons induced by 20 MeV O⁴⁺ collimated with a $25-\mu\text{m}$ -diameter aperture. The measurement time is 15 min under the beam current of $\sim 7 \text{ pA}$. For each of the 21×21 tilt angles, the beam dose is $4.5 \times 10^{12} \text{ O}^{4+}/\text{cm}^2$ for the counting time of $\sim 2 \text{ sec}$ (論文[9]).

晶のキャラクタリゼーションへの道が開ける可能性がある。また、将来において例えば陽電子チャネリングの結晶学的応用が検討される段階になったときに、これまでのようなRI線源による透過型測定ではなく加速陽電子ビームを用いた後方測定方式への転換が必要になるであろう。現在のところ平行度の高い陽電子ビーム($\sim 10\text{pA}$ 程度と予想される)に対しては、我々の開発した2次電子を用いる方法が利用できると思われる。

[3] 固体内イオンの荷電状態と反跳電子収量

高速イオンビーム($\sim \text{MeV/u}$)の結晶内シャドーイング効果において、イオンが内殻に

電子を捕獲していればイオンの核電荷のスクリーニングによって(i)シャドーイング効果の減衰、および(ii)前方反跳電子強度の増加が引き起こされることが一連の実験および解析により明らかになった。特に(ii)の効果はガスターゲットの0°電子分光によって最近数カ国の実験グループの得た結果と整合する。(i), (ii)はいずれも後方(180度)で測定されるkeV領域の2次電子収量を増大させるため、2次電子収量の解析からイオンの固体内部荷電状態を決定することができる。

Table I. Z_{in} , Z_{eff}^* (averaged values of Z_{eff} for <100> and <110>), and $\Delta Z = Z_{in} - Z_{eff}^*$ which corresponds to the number of captured ($\Delta Z > 0$) or lost ($\Delta Z < 0$) electrons in glancing collisions of the 2.5 MeV/u ions with the aligned Ge atoms. The values in the parentheses represent those for Si crystals (論文[5]).

Analyzed yield	Ion	Z_{in}	Z_{eff}^*	ΔZ
3.3 keV	C	4	5.7(4.8)	-1.7(-0.8)
3.3 keV	O	5	6.7(6.1)	-1.7(-1.1)
3.3 keV	Si	13	11.6(9.7)	1.4(3.3)
3.3 keV	Si	7	9.9(8.2)	-2.9(-1.2)
3.3 keV	S	13	11.3(10.3)	1.7(2.7)
3.3 keV	S	7	10.8(8.6)	-3.8(-1.6)
7.7 keV	C	4	5.4	-1.4
7.7 keV	O	5	6.3	-1.3
7.7 keV	Si	13	11.5	1.5
7.7 keV	Si	7	9.6	-2.6
7.7 keV	S	13	12.7	0.3
7.7 keV	S	7	11.0	-4.0

本研究では、2.5 MeV/uのイオン(原子番号Z=5~16)がGe結晶に<100>および<110>チャネリング入射した直後の非平衡荷電状態をこの方法によって決定した。結果をTable Iに示す。 Z_{in} は入射時の電荷、 Z_{eff}^* は決定された有効核電荷で Z (捕獲電子数)に等しく、さらに $\Delta Z = Z_{in} - Z_{eff}^*$ である。なお<100>, <110>の2方向について有効核電荷に有為な差は見出されなかった(Z_{eff}^* は2方向についての平均)。3.3keVおよび7.7keVにおける電子収量はそれぞれGeのM、L殻電子のシャドーイングに対応するが、表からわかるように Z_{eff}^* はほぼ同じであった。すでに報告した2.5MeV/uイオンについてのSi結晶における結果(表中の括弧内の数値)と比較すると、Ge結晶内におけるイオンの内殻電子数は1~2個程度少ないことが分かった。これらは結晶の原子列近傍における高密度電子領域を通過するイオンに特有な荷電状態であり、本研究によって初めて明らかにされた。

[4] 固体内価電子の解析

チャネリング入射条件では内殻電子の反跳が表面近傍に制限されるため、シャドーイ

ング効果を受けない結晶内価電子の反跳電子収量への寄与が相対的に増加する。したがって、バイナリーピークエネルギーよりも低エネルギーの電子収量から結晶内価電子の分布に関する知見を得ることができる。実際、SiおよびGe結晶についての解析を行って合理的な結果を得た。2.5MeV/uのイオンをSi結晶に入射させて測定した収量比Wとイオンの原子番号の関係をFig. 4に示す。また、SiおよびGe原子1個あたりのシャドーイング

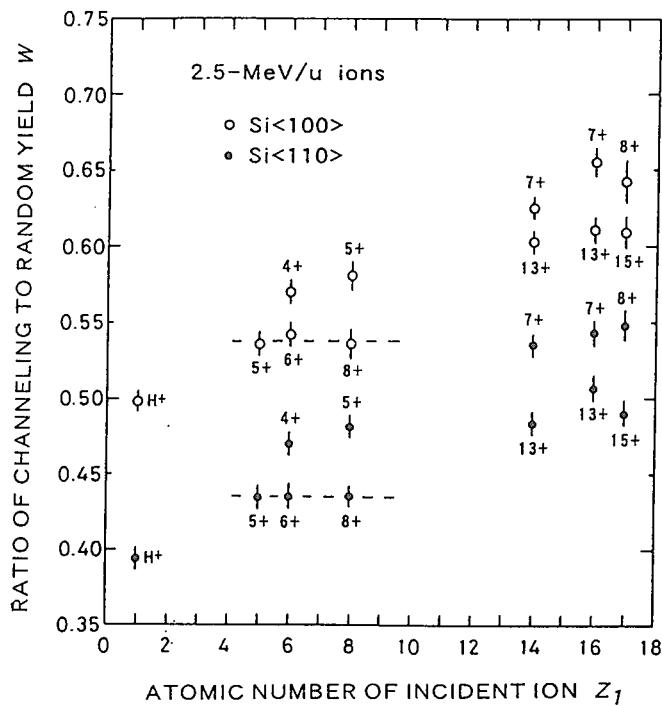


Fig. 4. Ratio of channeling to random electron yield at 3.3 keV, measured for 2.5-MeV/u various ions under Si<100> and Si<110> channeling incidence conditions. The incident charge states of ions are indicated near the plots. The dashed lines show the fully stripped levels (論文[2])。

を受けない電子数Nを主要な結晶軸方向について決定した結果をTable IIに示す。SiではNの値は価電子数4に大体等しいが、Geではこれより2-3程度大きい結果となっている。これは軌道半径の大きいGeのM殻電子（特に3d電子）の寄与によるものと考えられる。結晶方位によるNの違いは各チャネル内におけるイオンフラックス密度を反映している。

Table II. Effective number of unshadowed electrons N, analyzed with 6- and 8-MeV/u H⁺ and He²⁺. The estimated uncertainty in N is about ± 0.1 .

	Si<100>	Si<110>	Si<111>	Ge<100>	Ge<110>	Ge<111>
6 MeV/u	5.1	2.8	4.8	7.7	4.1	7.0
8 MeV/u	4.9	2.6	4.5	7.5	4.6	6.9

[5] 結晶学的応用

結晶性評価にバイナリーピークエネルギーよりも高エネルギーの反跳電子収量を用いることができる。結晶内の転位などのような格子歪みを高感度で検出するためにはチャネリングの臨界角が小さい条件、したがって高エネルギーイオンによる解析が有利である。反跳電子を用いる方法は、通常のイオン後方散乱法が利用できないような高エネル

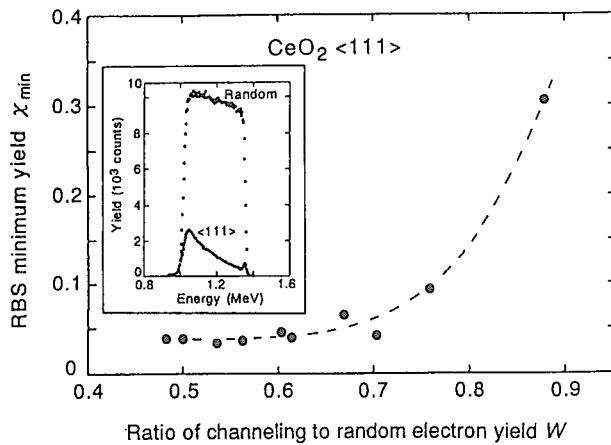


Fig. 5. χ_{\min} vs W plot for epitaxially grown CeO_2 . W was measured for 7.7 keV electrons induced by 3.5 MeV/u O^{8+} ($E_B=5.4$ keV), while χ_{\min} was measured with 1.5 MeV He^+ . The dashed curve was drawn as a guide for the eye. The inset shows typical RBS spectra for Ce in a 3000- Å thick CeO_2 crystal, measured with 1.5 MeV He^+ (論文[3]).

ギーイオンに対しても適用できる。Si上に種々の成長条件で作成したエピタキシャル CeO_2 試料を反跳電子分析およびラザフォード散乱分光（チャネリングの最小収量 χ_{\min} ）によって測定し格子欠陥感度を比較した結果をFig. 5に示す。この場合、 W はランダム方向に対する反跳電子収量比を表す。 W の測定に用いられた56MeV O^{8+} と χ_{\min} の測定に用いられた1.5 MeV He^+ において、前者のチャネリングの臨界角は後者の約1/3である。この違いのため、 CeO_2 中の格子歪みに対して W の値が χ_{\min} よりも敏感になっている。

すでにFig. 3に示したようにイオンビームの方向に対して直角な直交2軸の結晶回転角度の関数として高速イオン誘起2次電子を計数し、単結晶のシャドーイングパターンの像構成を行うことができる。2次電子はイオン・原子の近接衝突のみならず、遠隔衝突によっても生成されるため後方散乱イオンや内殻x線よりも計数率が高い利点がある。例えばMeVイオンの場合、100×100ピクセル、約3000 counts/pixelのパターンを0.5~1時間で測定することが可能である。得られるパターンは計数が多いため画質が高く、さらに表面近傍（数nm領域）に敏感であるためパターン画像を多用する新しい方式の結晶材料キャラクタリゼーションが実用に供されると期待される。Fig.6に5 keVのAr照射によるシャドーイングパターンの変化の様子を示す。

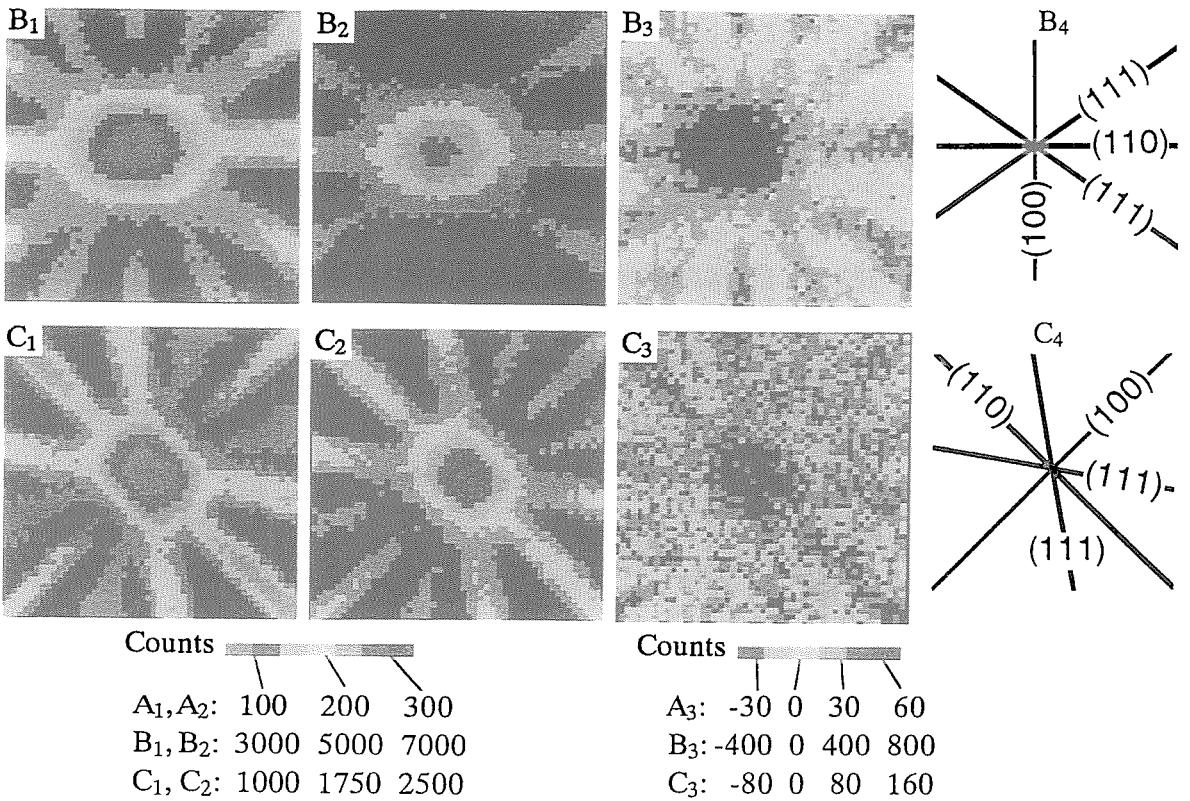


Fig. 6. 5 keVのAr照射によるSi<110>シャドーイングパターンの変化
(論文[4])。B₁, C₁: 照射前、B₂, C₂: $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ 照射後、B₃, C₃: 収量の増加 (B₂-B₁, C₂-C₁)。

III. 結論と展望

高速イオン誘起による2体衝突電子スペクトルの基礎研究は、1970年前後に原子物理分野で気体ターゲットを用いて展開された経緯がある (Rudd and Macek, Case Studies in Atomic Physics, vol. 3, 1972, pp47)。一つの捉え方として、本プロジェクト研究は上記70年代の研究を結晶ターゲットを用いて発展させ、固体に特有な2次電子の生成・脱出過程の知見を得て、固体解析への応用を見出したと言えるであろう。

以下に、本研究期間内における総合的研究から得られた知見をまとめた。

- (1) 0.1~10 MeV/uのイオン速度範囲において、固体からの反跳電子収量は連続エネルギースペクトルを形成し、イオン・電子の2体衝突過程特有のスケーリング則に従う。すなわち同速度のイオン種に対して電子スペクトルの形状は同じであり、電子収量はイオンの原子番号Zの2乗に比例するが、その際固体内においてイオンが内殻に電子を捕獲していれば遮蔽効果によるZの補正が必要となる。
- (2) 反跳電子強度に及ぼす結晶格子の効果はイオンビームシャドーイングによる反跳電子の生成断面積の減少のみであり、反跳電子の放出角度分布は放出方向の結晶学的対称性に依存しない。
- (3) チャネリング入射条件において結晶内でイオンが内殻に電子を捕獲している場合、

反跳電子収量はその生成段階において(i)シャドーイング効果の減少および(ii)遮蔽クーロン場による前方反跳の増加、の 2つの効果を受ける。この 2つの効果によって反跳電子収量は増大する。またこの現象を用いて結晶内におけるイオンの荷電状態を知ることができる。

- (4) シャドーイング効果が起きると表面近傍原子を除いて内殻電子の反跳はほとんど起きないため、結晶内価電子の反跳電子収量への寄与が相対的に大きくなる。したがって、バイナリーピークエネルギーよりも低エネルギーの電子収量から結晶内価電子の分布に関する知見を得ることができる。実際、SiおよびGe結晶についての解析を行って合理的な結果を得た。
- (5) 結晶学的応用としてシャドーイングパターンからエピタキシャル結晶の結晶性解析を行った。 Si上に成長したCeO₂ およびサファイア上の Nbについて従来のイオン散乱法と相補的な解析結果を得た。

本研究関連の発表論文

1. H. Kudo, K. Shima, T. Ishihara, H. Takeshita, Y. Aoki, S. Yamamoto, and H. Naramoto, *High-energy shadowing effect and its application to atomic and solid state physics*, Nucl. Instrum. & Methods, B90 (1994) 533-536.
2. H. Kudo, T. Fukusho, T. Ishihara, H. Takeshita, Y. Aoki, S. Yamamoto, and H. Naramoto, *Charge states of fast ions in glancing collisions with aligned atoms in Si crystals*, Phys. Rev. A50 (1994) 4049-4056.
3. H. Kudo, T. Fukusho, A. Tanabe, T. Ishihara, T. Inoue, M. Satoh, Y. Yamamoto and S. Seki, *High-Sensitivity Channeling Analysis of Lattice Disorder Near Surfaces Using Secondary Electrons Induced by Fast Ions*, Jpn. J. Appl. Phys. 34 (1995) 615-619.
4. T. Fukusho, A. Tanabe, H. Kudo, T. Ishihara, and S. Seki, *Planar Shadowing of Fast Ion Beams in Si and Ge Crystals Bombarded with 5 keV Ar+*, Jpn. J. Appl. Phys., 35(1996) 247-250.
5. H. Kudo, A. Tanabe, T. Ishihara, S. Seki, Y. Aoki, S. Yamamoto, P. Goppelt-Langer, H. Takeshita, and H. Naramoto, *Charge states of fast heavy ions in glancing collisions with aligned atoms in Single crystals (Invited paper at 16th International Conference on Atomic Collisions in Solids)*, Nucl. Instrum. & Methods, B115 (1996) 125-132.
6. H. Kudo, A. Sakamoto, S. Yamamoto, Y. Aoki, H. Naramoto, T. Inoue, M. Satoh, Y. Yamamoto, K. Umezawa and S. Seki, *Analysis of Misoriented Crystal Structure by Ion Channeling Observed Using Ion-Induced Secondary Electrons*, Jpn. J. Appl. Phys. 35 (1996) L1538-L1541.
7. H. Kudo, A. Tanabe, T. Ishihara, S. Seki, K. Umezawa, S. Yamamoto, Y. Aoki, P. Goppelt-Langer, H. Takeshita, and H. Naramoto, *Advanced ion beam analysis of materials using ion-induced fast electron*, Proc. 7th Int.Symp. on Advanced Nuclear Energy Research (Takasaki, 1996).
8. H. Kudo, S. Yamamoto, K. Narumi, Y. Aoki, and H. Naramoto, *Isotropy of ion-induced electron emission from crystal targets bombarded with MeV ions*, Nucl. Instrum. & Methods B132 (1997) 41-44.
9. H. Kudo, K. Takada, K. Narumi, S. Yamamoto, H. Naramoto, S. Seki, Nucl. Instrum. & Methods B142 (1998) 402-408.
10. A. Sakamoto, H. Kudo, T. Ishihara, S. Seki, K. Sumitomo, Nucl. Instrum. & Methods B140 (1998) 47-54.



JP0150017

JAERI-Conf 2000-008

2.3.3 異種物質界面における吸着原子のその場イオンビーム解析法の開発とそれを用いた反応性原子の吸着過程の研究

森田健治、柚原淳司、石川 大、中村大輔、曾田一雄

山本春也^{A)}、鳴海一雅^{A)}、榎本 洋^{A)}、斎藤和雄^{B)}、大貫敏彦^{C)}

名大工、原研高崎研^{A)}、名工研^{B)}、原研東海研^{C)}

液体と接触する固液表面に吸着する核種を真空側から高エネルギーイオンビームを用いてその場後方散乱測定できる装置を開発し、Si(100)薄膜結晶表面のSiO₂酸化膜上に吸着されたPb層の種々の異なる水溶液中への溶解速度を測定した。SiO₂膜表面上のPb原子は純水やpH値が9以上のアルカリ性水溶液中へ溶解せず、pH値が5の酸性水溶液中へ溶解することが観測された。後者におけるPb層の被覆率は水溶液への接触時間と共に直線的に減少した。この結果は、Pbの溶解がゼロ次反応であることを示している。また、結晶表面上の吸着核種の原子位置を決定する方法の確立を目指す予備実験として、MeVイオンビームの入射面と反射側のSi(111)表面に吸着された吸着種(Au,Ag)からの透過チャネリング収率の角度依存性が測定された。透過チャネリング粒子の後方散乱収率の角度依存性から、この表面の原子配列構造を提案した。

Development of in-situ RBS analysis of adsorbate atoms at the hetero-interface and study of adsorption and desorption processes of reactive atoms

K. MORITA, J. YUHARA, D. ISHIKAWA, D. NAKAMURA, K. SODA,

S. YAMAMOTO^{A)}, K. NARUMI^{A)}, H. NARAMOTO^{A)}, K. SAITO^{B)}, T. OHNUKI^{C)}

NAGOYA Univ., JAERI Takasaki^{A)}, National Industrial Research Institute of Nagoya^{B)}, JAERI Tokai^{C)}

An in-situ RBS system has been developed for measuring heavier nuclides adsorbed at the inner surface of a thin lighter window specimen of liquid container in order to determine the rate constants for their sorption and release at the liquid-solid interface. The dissolution of Pb layers deposited physically on the SiO₂ surface of Si(100) crystal into water solutions with different pH values has been measured. It is shown that Pb atoms do not dissolve into alkaline water, but into acid water, and that the dissolution in the latter case is the zero-th order reaction kinetics. The transmission channeling measurement with high energy ion beam has been shown to be powerful for determining the relation of the lattice position to the substrate structure. The lattice sites of Au and Ag on the Si(111) surface are proposed and discussed.

Keywords : in-situ RBS, liquid-solid interface, transmission channeling, lattice site, silicon, lead, gold, silver

1. 背景

これまでMeV He⁺イオンビーム等を用いるラザフォード後方散乱(RBS)分析は、材料表面における吸着原子の動的挙動や、材料表面層の元素分析に適用され、その技術がきわめて有効であることが示してきた。これまでのイオンビーム分析は、主として真空中に置かれた材料表面・界面の解析に用いられてきた。最近、固・液界面における原子の吸・脱着過程が、高レベル放射性同位元素の深部地層への長期閉じ込め技術に関連して注目されている。そこで、固・液界面における吸着原子の被覆量や吸着原子のサイトをその場測定する技術を確立することは、界面に存在する原子の吸・脱着挙動の評価においてきわめて重要である。また、上記のその場イオンビーム固液界面原子分析法が確立されれば、固液界面における金属の結晶成長、結晶成長に対する放射線の与える影響、歪んだ表面における吸着原子の動的挙動などの研究を進展させることもできる。

本研究の目的は、高エネルギーイオンビームを用いるRBS分析により、固・液界面

に吸着した原子のその場測定する装置を試作し、その分析方法を確立するとともに、固・液界面における原子の吸・脱着の動的過程の解析に資することである。具体的には、加速器のビームラインに結合できる加速器に対する保護装置を装備したターゲットチャンバーを作成し、岩石の主成分であるSiO₂に吸着した核分裂RIの安定同位元素のPb原子のpHを調整した水溶液中への脱離の速度係数を求める。さらに、透過チャネリング法による異種物質界面における界面原子の吸着サイトのその場イオンビーム解析の可能性を実証する。

2. 実験

Si薄膜単結晶試料は、Siウェハーを裏面よりHFとHNO₃混合溶液およびEDP溶液にてエッティングすることにより作成した。固液界面の実験では、膜厚5.5 μmの単結晶Si(100)薄膜表面に、Pb原子を24ML吸着させたものを試料として用いた。この試料を、今回、開発したチャンバーに取り付け、試料の裏面から9MeVHeイオンビームを入射し、薄膜試料を透過して表面の基板および吸着原子により後方散乱されたイオンの収率を測定した。ここで、開発

したチャンバーの概略をFig.1に示す。水溶液のpH値は、少量のHNO₃やNH₃OHを滴下することにより調整された。

透過チャネリング実験では、膜厚1.3 μmの単結晶Si(111)薄膜表面にAuおよびAgをそれぞれ0.7および1.1ML蒸着させたものを試料として用いた。この試料をMD1チャンバー中のゴニオメーターに取り付け、タンデム加速器から発生した6MeV⁷Liイオンを透過チャネリングさせた。AuおよびAgからの散乱イオンのエネルギー差の大きい後方散乱収率のLiイオンビームの入射角依存性を測定した。

3. 結果および考察

(1) 固液界面の吸着原子のその場RBS分析

24MLのPb原子が吸着したシリコン薄膜試料における9MeVHeイオンビームによる典型的なRBSスペクトルをFig.2に示す。ここで、(a)は、水溶液に接触させる前、(b)は、pH5のHNO₃水溶液に27分間さらした後のRBSスペクトルである。ここで、Fig.2の320～420chは、シリコン薄膜によるもので核反応による鋭いピークが見られた。また、600ch付近にPbによるピークがあるがわかる。次に、試料容器

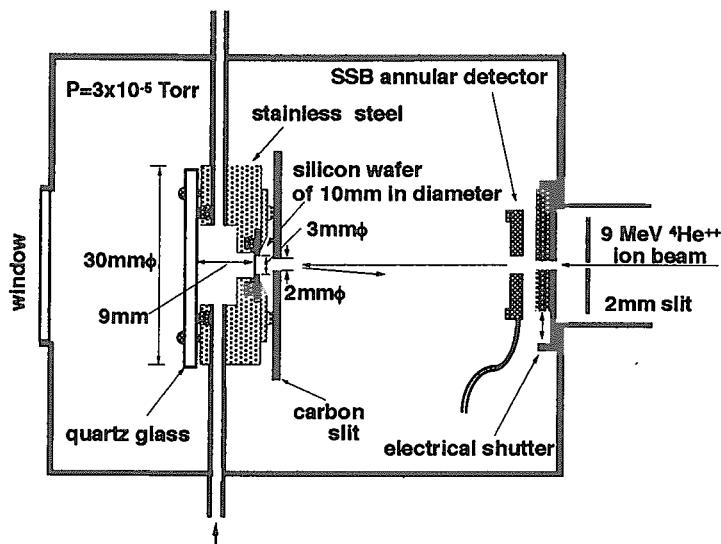
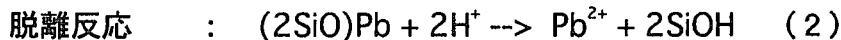
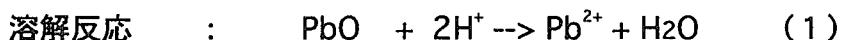


Fig.1 Experimental arrangement of an in-situ RBS system for measuring nuclides adsorbed at the liquid-solid interface

内に水溶液を導入し、時間の関数としてPb膜を測定した結果をFig.4に示す。pH7の水溶液やpH9の水溶液に接触させた時は、Fig.3 (a) および(b) に示すように、Pbの厚さは全然変化しなかった。このことは、Pb原子が中性およびアルカリ性の水溶液中へ溶解しないことを示している。他方、pH5の水溶液に接触させた時は、Fig.3 (c) に示す様に、Pbの厚さは時間と共に直線的に減少することが観測された。このことは、Pb原子の溶解は零次反応であり、Pb原子がPb膜から一様に水溶液中へ溶解することを示すと結論される。このデータから求めた溶解係数は $6.7 \times 10^{-13} \text{ atoms cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であった。

次に、PbのSiO₂表面からの溶解のメカニズムについて議論する。PbのSiO₂表面への吸着および溶解（脱離）反応は、次の二つが考えられる。



ここで、Pb²⁺がSiO₂表面へ吸着するという直接的な証拠はこれまでにない。もし、Pb²⁺がSiO₂表面への吸着が、 γ -Al₂O₃表面へのそれと似ているとすれば、Pbは、一原子層のみのはずである。本実験では、Pb原子層が約24MLあることや、Pb原子を真空中にて蒸着後大気開放していることから、PbはほぼすべてPbOとして存在していると考えられる。

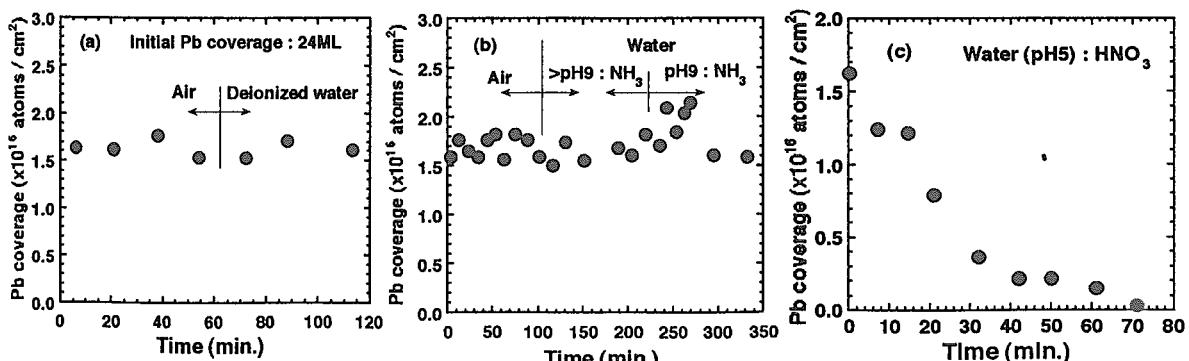


Fig.3 Pb coverage as a function of time elapsing after injection of deionized water (a), after injection of alkaline water (b), and after injection of acid water (c)

本実験では、24MLのPbがすべて溶解したときの溶液中のPb濃度は、およそ 3×10^{-9} mol cm⁻³であると求められる。ここで、Wolelyらにより、pH5、pH7、及びpH9の水溶液へのPbの飽和溶解度は、 1×10^{-3} 、 2×10^{-6} 、及び 1×10^{-9} mol cm⁻³と報告されているので¹⁾、pH7およびpH9の水溶液で、Pbの被覆率の減少が観察されなかつたのは、溶解速度が小さいためであると考えられる。ここで、PbOの溶解速度が水素イオンの濃度の二乗に比例するとすると、pH7での水素の濃度はpH5の1/100なので、約 7×10^9 atomscm⁻² s⁻¹となる。そのため、今回のpH7およびpH9の水溶液での実験においての濃度変化が観察されなかつたと考えることができる。

PbOの溶解速度についてはこれまで報告されていない。CaAlSiOの溶解速度は、Murakamiらにより、pH=4.56で種々の温度（90, 150, 210°C）においてなされている²⁾。一般に、溶解反応速度は温度に比例するので³⁾、これらの実験結果より25°Cでの溶解速度は、 3×10^{15} atomscm⁻² s⁻¹と求められる。PbOとCaAlSiOは、化学的な性質が異なるかもしれないが、pH5でのPbOの溶解速度（ 6.7×10^{13} atomscm⁻² s⁻¹）がpH4.56でのPbOの溶解速度（ 3×10^{15} atomscm⁻² s⁻¹）より低いということは、pHが小さいほど溶解速度が大きいということと矛盾しないため、本研究でのPbOの溶解速度は妥当な値であると考えることができる。

(2) 異種界面のRBS-透過イオンチャネリング

厚さ $1.3 \mu\text{m}$ のSi(111)単結晶薄膜にAu及びAgを蒸着した試料に、ランダム及びチャネリング条件で入射された6MeV⁷Liイオンの後方散乱スペクトルをFig.4に示す。なお、実験条件の概略をFig.4の挿入図に示す。チャネリング条件におけるAu及びAgのピークがランダム条件のそれに比べ高エネルギー側にシフトしていることが分かる。これは、チャネリング条件におけるSi中の入射Liイオンのエネルギー損失がランダム条件に比べて小さいためである。Fig.5にSi、AuおよびAgからの散乱収率の入射角度依存性を示す。Fig.5からAuに対する収率曲線は<111>軸から0.07°ずれた角度でオフアクシスピークを示し、Agからの収率曲線はフラックスピークと<111>軸から0.15°ずれた角度付近においてオフアクシスピークを示すことがわかる。これらの収率曲線はSi(111)表面上のAu、Agが特定のサイトを占有するとを表わしている。

これらのピーク位置からAuおよびAgの吸着サイトを特定するためSi<111>軸チャネル内における入射イオンのフラックス分布の入射角度依存性を計算した。計算ではLiイオンとSi原子との相互作用ポテンシャルとしてトーマスフェル

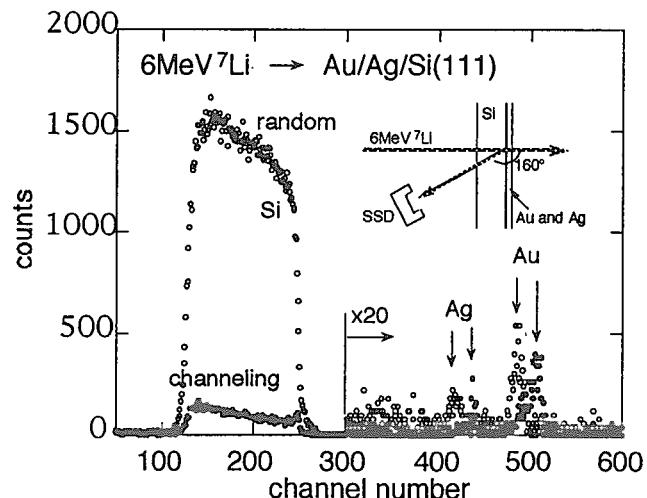


Fig.4 Energy spectra of ions scattered from the Ag/Au//Si(111) surface at channeling and random incidence. Experimental geometry is also inserted in the figure.

ミポテンシャルのモリエール近似を用い、格子振動をデバイモデルに基づき考慮した。Si原子列から 0.7 \AA 離れた場所におけるイオンのフラックス分布とSi原子列から 0.4 \AA 離れた場所及びチャネル中心におけるイオンのフラックス分布の和の入射角度依存性の計算結果をFig.5中に示す。それらはそれぞれAuおよびAgの散乱収率の入射角依存性とピーク位置が一致する。従ってこれらの事実はAuはSi原子列から 0.75 \AA 離れた場所に、Agはチャネリング軸のセンター付近およびSi原子列から 0.4 \AA 程度離れた場所に存在することを示唆する。

これらの結果からこの表面の原子配列構造を考察した。今回用いた試料表面はAu及びAgの被覆率から $2\sqrt{3}\times 2\sqrt{3}$ 構造に近い構造であると考えられる。Auの吸着サイトは $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Au表面と同様にトライマー構造をとっていると仮定すると、Fig.6のような構造がSi(111)- $2\sqrt{3}\times 2\sqrt{3}$ -(Au,Ag)表面の構造モデルとして考えられる。本研究により透過チャネリング測定では基板原子列と吸着原子との距離が決定できることが示された。今後は、Si<100>およびSi<110>軸での散乱収率の入射角度依存性を調べ、AuおよびAgの吸着層とシリコン第一原子層との距離を決定する。

これらの結果は、液体と接触する固体表面に吸着した原子の吸着量や吸着サイトをその場決定できることを示しているので、今後、原子の吸・脱着の動的過程を明らかにする予定である。

4.まとめ

液体と接触する固液表面に吸着する核種を真空側から高エネルギーイオンビームを用いてその場後方散乱測定できるサンプルチャンバーを開発し、日本原子力研究所高

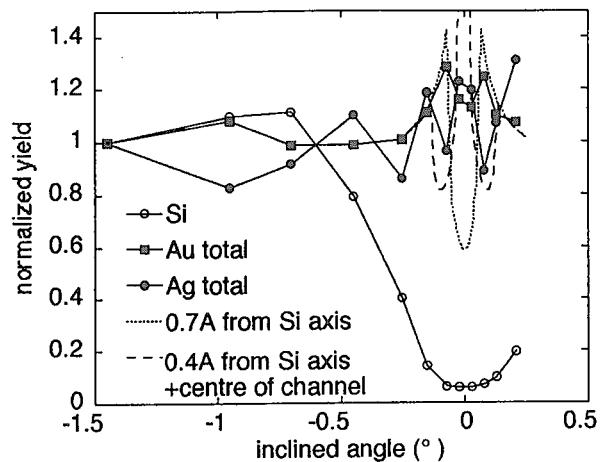


Fig.5 Plots of the Au and Ag yields as a function of incident angle relative to the <111> axis.

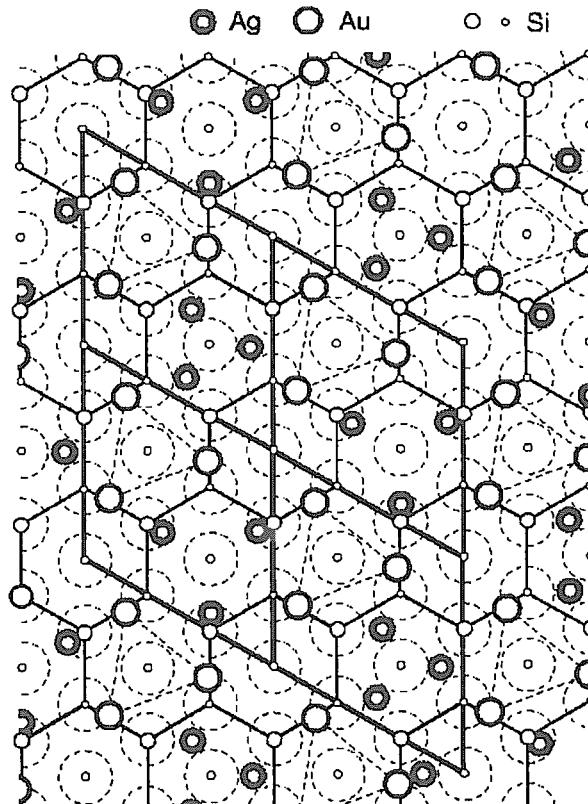


Fig.6 Structural model of the Si(111)- $2\sqrt{3}\times 2\sqrt{3}$ -(Au,Ag)surface

崎研究所のTIARAの3 MeVタンデム加速器のビームラインに設置した。

この装置を用いてSi(100)薄膜結晶表面のSiO₂酸化膜上に吸着されたPb層の種々の異なる水溶液中への溶解挙動が観測され、SiO₂膜表面上のPb原子は純水やアルカリ性水溶液中へ溶解せず、pH値が5の酸性水溶液中へ溶解することが観測された。このときのPbの溶解反応は零次反応であり、溶解係数は 6.7×10^{13} atoms cm⁻² s⁻¹ であった。

結晶表面上の吸着核種の原子位置を決定する方法の確立を目指す予備実験として、MeVイオンビームの入射面と反射側のSi(111)表面に吸着された吸着種(Au,Ag)からの透過チャネリング収率の角度依存性が測定された。透過チャネリング粒子収率の角度依存性から、この表面の原子配列構造を提案した。

参考文献

- 1) T. J. Wolely, EQ3NR, A Computer program for geochemical aqueous speciation-solubility calculations : Theoretical manual, usersguide, and related documentation (version 7.0), UCRL-MA-110662 PT III, p.246, Lawrence Livermore Laboratory, University of California (1992)
- 2) T. Murakami, T. Kogure, H. Kadohara, T. Ohnuki, Formation of Secondary Minerals and its Effect on Anorthite Dissolution, American Mineralogist, in press (1998)
- 3) A. R. Roe et al., EXAFS Investigation of Aqueous Langmuir (ed.) (1990)

発表論文

- 1) K. Morita, J. Yuhara, R. Ishigami, B. Tsuchiya, K. Saitoh, S. Yamamoto, P. Goppelt-Langer, Y. Aoki, H. Takeshita, and H. Naramoto, An In-Situ RBS System for Measuring Nuclides Adsorbed at the Liquid-Solid Interface, Rad. Phys. and Chem., 49, No.6 (1997) pp603-608
- 2) K. Morita, D. Ishikawa, J. Yuhara and K. Soda, Behavior of Binary Metal Adsorbates on the Si(111) Surface under Thermal Annealing and Ion Bombardment Using RBS, Application of Accelerators in Research and Industry, AIP Press, in press (1999)
- 3) K. Morita, J. Yuhara, R. Ishigami, B. Tsuchiya, K. Soda, K. Saitoh, T. Ohnuki, S. Yamamoto, Y. Aoki, K. Narumi, and H. Naramoto, In-Situ RBS Studies on Dissolution of Pb Atoms from the SiO₂ Surface into Water Solutions, Rad. Phys. and Chem., submitted (1999)



JP0150018

JAERI-Conf 2000-008

2.4. 高分子材料のイオン照射ミクロ構造に関する研究

2.4.1 概要説明

日本原子力研究所高崎研究所

瀬口 忠男

大阪大学産業科学研究所

田川 精一

要旨

高分子材料に対するイオン照射効果において、線質(LET)の効果をフリーラジカル、アニオニンラジカル、二重結合、架橋・切断などの生成物を分析する方法で検討した。ラジカルや二重結合の生成に質的な違いは小さく、そのG-値はLETが高くなると、低減する傾向にある。しかし、LET依存性は高分子によって異なるものの、その度合いはLETの変化に比べて小さく。ポリシランにおいてはLETが大きくなると架橋 / 切断の比が増大するという質的な効果が見出された。アラニンやTCNBに捕捉されたラジカル収率から、イオントラックの径のLET依存性を計算した。

Over view for Study on Ion Beam Irradiation Effects of Polymer Materials in the Micro-structural Changes

Tadao Seguchi, Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment, Japan Atomic Energy

Research Institute, Takasaki 370-1292 Japan

Seiichi Tagawa, The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University, Mihogaoka 8-1, Ibaraki, 567-0047 Japan

Key words: Polymer, Ion Beam, Irradiation effect, LET, Microstructure, Double bond, Free radical

Summary

Linear Energy Transfer (LET) dependency on ion beam irradiation effects of polymer materials was investigated by the product analysis. The products such as free radicals, anion radicals, double bonds, crosslinking/chain scission were detected by various analytical techniques and their yield and behavior were compared. The LET dependency was very small in the yield of double bond formation for polyethylene and also in the yield of radicals. However, the probability of crosslinking/chain scission for polysilane was much depended on LET. By the analysis of radicals trapped in alanine or in tetracyano-benzene, the size of ion track was estimated as a function of LET.

本研究は高分子に対する照射効果における放射線の線質(Linear Energy Transfer: LET)の依存性を解明することを目的としたものである。平成元年から5年までの第1期のプロジェクト研究において、イオン照射技術と分析技術が確立され、高分子の照射効果に線質の違いが見出された。この原因を解明するためには、イオン照射の場合のミクロ構造の観察が必要であるとの結論に至り、第2期の研究に進展した。その研究計画の骨子は、高分子マトリックスにイオン飛跡に沿ってエネルギーが付与され、そこで引き起こされる化学反応の領域はトラック構造を形成すると考えられることから、そのトラック内での反応生成物を測定分析し、生成物の種類や収量がLETによりどのように変化するか、また、トラック構造とLETとの関係を解明することである。

本研究には、早稲田大学・浜義昌研究室、大阪大学・田川精一研究室、北海道大学・吉田宏研究室、群馬大学・平塚浩士研究室と原研高崎研究所の極限材料研究室とバイオ技術研究室が参加し、3年間継続した。それぞれ、特徴ある分析手段を利用して、その分析に適した高分子試料を用いたが、イオン照射は出きる限り共通したイオン種を用いて、場合によっては同一条件で照射した。

浜グループはポリエチレンに生成する二重結合を顕微赤外分光で検出する方法により、入射イオンの深さ方向の収量の分布を $10 \mu\text{m}$ の分解能で解析した。この結果二重結合の収率(G-値)は、軽イオンの場合には、 γ 線照射と同一になり LET にほとんど依存しない。しかし、Kr, Xe 等の重イオンの場合には、G-値は $1/2$ 程度に低下したが、生成物の分布が TRIM コードの線量計算と異なっていた。重イオンについては、LET の依存性解決には新たな課題を乗り越える必要がある。田川グループはポリシランの分子量変化の分析とゲルの生成量を測定して、架橋・切断の反応から LET 効果を検証した。プロトン等の低 LET では、分子鎖切断のみが起こるのに対して、C イオン以上では、架橋が優先していることを見出し、LET が化学反応を質的に変化させているという結論に至った。吉田グループはアラニン結晶に生成するラジカルを ESR で分析し、その収量と LET との関係をイオントラックのモデルで詳細に解析した。ラジカルはトラック内で生成し、その G-値は LET が増大すると 1 衍程度低下するが、その効果は LET よりもイオン種に依存する。トラックが重なるところではラジカル生成が無いとして、トラックのサイズ(円筒モデルの半径)を求めるとき Ar イオンで $15\text{--}18 \text{ nm}$ 、He イオンでは 5 nm 程度であり、LET が大きくなるとトラックのサイズが増大するとの結論である。平塚グループは TCNB (tetra-cyano-benzene) に生成するアニオンラジカルを分光法で検出し、イオン照射の線量とアニオンラジカルの濃度の関係からイオントラックの大きさを解析した。トラックの重なりが起こるとアニオンラジカルは消滅するとの仮定から、C イオン程度の LET ではトラック半径が 20 nm 、Ar イオンでは 60 nm 前後の値を求めた。しかし、アニオンラジカルの収量(G-値)は LET の依存性が小さいという結果を得た。

以上のように各グループの取り扱った個々の高分子においては、それぞれに合理的な結論を得た。しかし、一般的に高分子照射効果における LET 依存性という観点からは、相互に矛盾する結論であり、統一的な解釈が得られていない。各グループの努力により、蓄積された技術と得られたデータの信頼性は高いと判断される。従って、それぞれのデータ解析方法など妥当性を再検討することにより、統合できる新しいモデルとそのメカニズムが見出される可能性がある。



JP0150019

JAERI-Conf 2000-008

2.4.2 ポリエチレンに生成する二重結合：線質(LET)と収量・分布の相関

工藤久明¹、杉本雅樹¹、瀬口忠男¹、浜義昌²、井上憲介²、鬼頭昌利²、岡壽崇²

¹原研高崎研究所材料開発部、²早稲田大学理工学総合研究センター

Double bonds formation in polyethylene by ion beam irradiation – LET dependence of yields and distribution

Hisao Kudoh¹, Masaki Sugimoto¹, Tadao Seguchi¹, Yoshimasa Hama², Kensuke Inoue²,
Masatoshi Kito² and Toshitaka Oka²

¹Japan Atomic Energy Research Institute, Takasaki Radiation Chemistry Research
Establishment, Department of Material Development,

²Waseda University, Advanced Research Center for Science and Engineering

Abstract- Double bonds formed in polyethylene upon ion beam irradiation were measured by micro-infrared spectroscopy (micro-FTIR). Trans-vinylene bond at 964 cm⁻¹, which was a major product, was monitored along ion penetration depth, and compared with absorbed dose evaluated with TRIM code. In the case of ions from proton to Ne, the depth profiles in the yield and dose was well coincident with dose, and the yield was almost the same with that by gamma rays irradiation. In the case of heavy ions of Ar, Kr and Xe, the depth profile of double bond deviated appreciably from that of dose, and the yield was about half. For heavy ions with multi-charge, the charge accumulation in polymer matrix might happen during irradiation, and also TRIM-code for dose determination also should be considered.

Key Words: Double bond, Polyethylene, Ion beam, LET, Infrared spectroscopy

緒言 ポリエチレンの放射線照射効果において、架橋や水素の発生とともに二重結合が生成される。この二重結合は安定であるため、この生成量を指標としてイオンビーム照射による線質(LET)効果を検討した。LET はイオンの種類とエネルギーによって大きく変化する。本研究では軽イオンのプロトンから重イオンのキセノンの各種のイオンおよびγ線を照射し、二重結合の生成量とイオン入射の深さ方向（飛程）についての分布を測定分析し、LET の依存性を比較検討した¹⁻³⁾。

実験方法 使用したポリエチレンは低密度(0.92g/cm³)の厚さ 2 mm のシートである。これを TIARA サイクロトロンのイオン照射チャンバーにセットして、真空中で照射した。H⁺(10MeV) から Xe²³⁺(450MeV)までの各種イオンをビームスキャンして均一に照射した。使用したビームの種類とエネルギー・阻止能・飛程を Table 1 に示す。阻止能や飛程は TRIM95 コードから求めた。いずれの場合にもイオンの飛程はポリエチレン試料の厚さより小さく、貫通しない条件であり、照射量は試料表面の吸収線量で数 10kGy から数 100kGy である。照射後、試料をイオンビームの入射方向にミクロトームでスライスして厚さ約 300 μm の試験片を切り出した。これを顕微赤外分光計で測定し、イオンビーム飛程に対する二重結合の生成量分布を求めた。照射から赤外分光測定までの方法を Fig. 1 に示す。

Table 1. Characterization of the ions.

Ion	mass	Energy MeV	Beam Current mA	S.P. /surface *1	Depth μm	S.P. / max. *2 keV/ μm
				keV/ μm		
H ⁺	1	10	0.2	4.6	1190	102.7
H ⁺	1	20		2.6	4180	102.7
D ⁺	2	10	0.1	8.2	686	102.7
He ²⁺	4	20	0.1	32.9	342	282.8
C ⁵⁺	12	220	0.02, 0.1	101.0	1230	974.8
O ⁵⁺	16	100	0.1	408.4	155	1301.3
O ⁶⁺	16	160	0.05	285.8	334	1301.3
O ⁷⁺	16	225	0.01, 0.05	220.5	596	1301.3
O ⁷⁺	16	335	0.01, 0.05	160.6	1192	1301.3
Ne ⁶⁺	20	120	0.05	632.4	126	1658.7
Ne ⁷⁺	20	260	0.05	360.9	433	1658.7
Ne ⁸⁺	20	350	0.03	287.6	715	1658.7
Ar ⁸⁺	40	175	0.05	2015.9	70	3308.0
Ar ¹¹⁺	40	330	0.05	1429.3	163	3308.0
Ar ¹³⁺	40	460	0.02	1167.2	264	3308.0
Kr ²⁰⁺	84	520	0.01, 0.02	4762.7	98	6256.1
Xe ²³⁺	129	450	0.01	9069.1	58	9490.8
γ-ray		1.1, 1.3	11.1 Gy/s *3			0.15

*1 S.P./surface : Stopping power at ion incidence.

*2 S.P./max. : Stopping power at Bragg peak.

*3 Dose rate in Co-60 γ-ray irradiation.

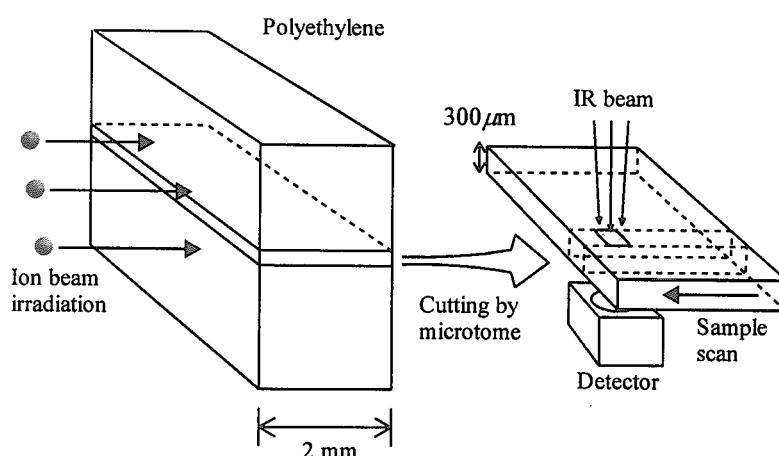


Figure 1. Ion beam irradiation to LDPE and FT-IR measurement.

結果と考察 赤外(IR)吸収スペクトルにおいてイオンビームを照射すると、二重結合として波数 964cm^{-1} のトランスビニレン($-\text{CH}_2\text{-CH=CH-CH}_2-$)が顕著な増加を示し、他に $910, 990\text{cm}^{-1}$ の末端ビニル($-\text{CH}_2\text{-CH=CH}_2$)と 890cm^{-1} のビニリデン($-\text{CH}_2\text{-C(=CH}_2\text{)-CH}_2-$)が検出されたが、その強

度はトランスピニレンに比べると微弱であった。したがって、トランスピニレンの収量と分布を指標として解析した。 γ 線照射の場合には、試料の深さ方向に対する IR 吸收強度すなわち濃度はほぼ一定であるが、イオン照射では、Fig. 2 のように、深さとともに強度が増大し、いわゆるブレッジ曲線状の挙動を示す。このような吸収のプロファイルを、イオン阻止能の計算コード TRIM(ver. 95)から求めた吸収線量のプロファイルと比較した。Fig. 3 に、3 水準の照射に対する吸収の深さプロファイルと、TRIM による阻止能とフルエンスの積とした線量との比較を示す。IR 吸収のプロファイルは線量のそれとは一致せず、特にピーク近辺で大きくずれている。また、TRIM による飛程よりも深い位置にも吸収が観測される。

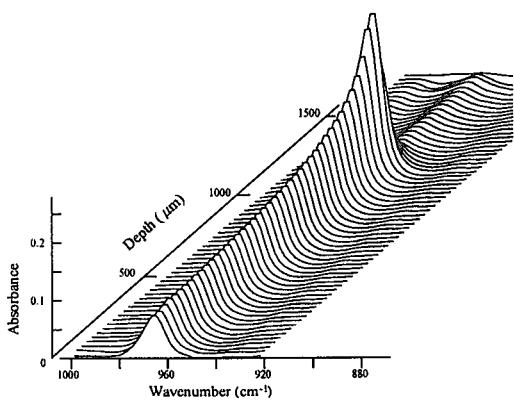


Figure 2. Three-dimensional display of micro FT-IR absorbance map in depth of LDPE sheet irradiated by H^+ (10MeV) at room temperature under vacuum. The dose at the surface was 0.1 MGy.

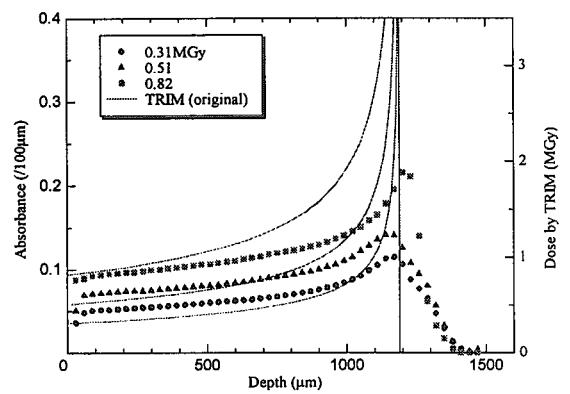


Figure 3. Depth-profiles of absorbance by trans-vinylene at 964cm^{-1} (symbols, left axis) and dose by TRIM (solid lines, right axis). The dose at the surface was 0.31(●), 0.51(▲), 0.82(◆) MGy.

ところが、トランスピニレンの生成量が線量の増大に対して飽和することがわかった。Fig. 4 に、ガンマ線の線量に対する吸収の変化を示すが、トランスピニレンの生成収率は約 100kGy を越えると低下する。この γ 線の結果を考慮して Fig. 3 の線量に対するトランスピニレンの生成量を補正した結果を Fig. 5 に示すが、ピーク近辺を除けば線量に一致する。つぎに、赤外分光計の幾何学的配置は Fig. 6 に示すものであり、これによる補正を行った。赤外分光のビームは試料表面で直径 10 または $30\mu\text{m}$ に調整されているが、立体角約 30 度で入射するため、厚さ $300\mu\text{m}$ の試料背面では約 $160\mu\text{m}$ に拡がる。Fig. 6 でハッチを施した、赤外線が通過した部分に存在するトランスピニレンの吸収が、焦点を合わせた位置の吸収として認識される。Fig. 7 に示すように、赤外線の拡がりを挿入図の a~c のように変化させてシミュレーションした結果、もとのプロファイルが実線のように表面が平坦でピークが鋭いものであっても、実際に観測されるプロファイルは、試料表面では吸収信号が下がること、ピークが鈍ってくること、ピーク位置が上流に移動すること、飛程よりも深い位置に吸収が現れることが示されている。

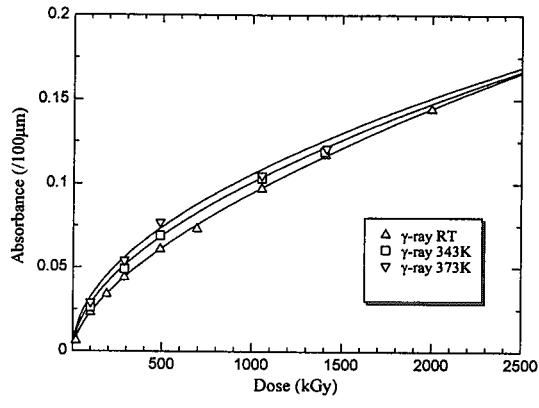


Figure 4. FT-IR absorbance (at 964cm^{-1} , trans-vinylene) of LDPE irradiated by γ -rays under vacuum at room temperature, 70°C , 100°C .

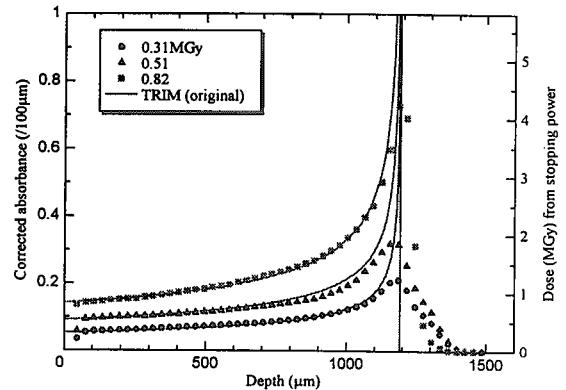


Figure 5. Depth-profiles of corrected absorbance (symbols, left axis) and dose from stopping power by TRIM (solid lines, right axis).

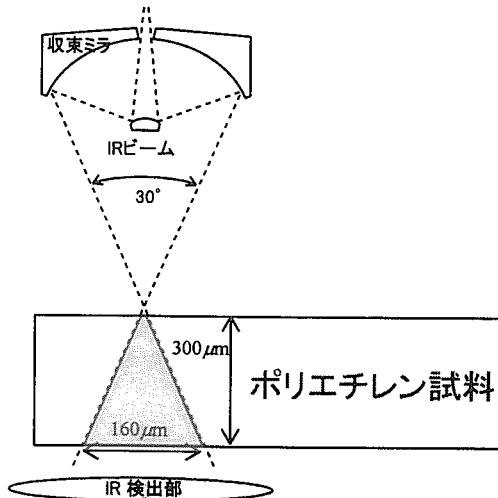


Figure 6. Geometry of FT-IR system.

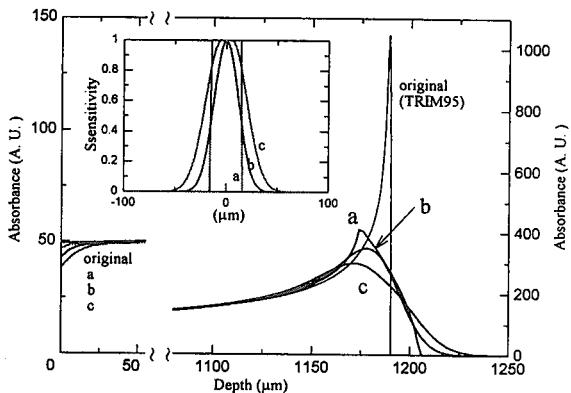


Figure 7. Change of the original profiles to the observed one for IR beam having shape shown as a, b and c in the inserted figure.

上記のような、線量に対する IR 吸収の飽和と赤外線の拡がりを考慮して H^+ イオン照射に適応すると、Fig. 8 に示すように、吸収プロファイルは TRIM による線量の深さプロファイルと一致した。D (10 MeV), He (20 MeV), C (225 MeV), O (100, 160, 225, 335 MeV), Ne (120, 260, 350 MeV) の各イオンの場合について、同様の補正を行ったところ、吸収プロファイルは線量とほぼ一致することを確認した。例として Ne の場合を Fig. 9 に示す。LET は深さとともに大きくなるが、それに伴ってトランスビニレンの生成量が上昇し、収率(G 値)は一定であることがわかる。また、図の両側のタテ軸を比較すると、単位線量あたりのトランスビニレン生成量は γ 線の場合とほぼ同じである。このことはトランスビニレンの生成量は H から Ne まで LET に依存しないことを意味している。一方、Ar, Kr, Xe の重イオンでは、Ar (175, 330, 460 MeV) の場合を Fig. 10 に、また Kr²⁰⁺ (520 MeV) の場合を Fig. 11 にそれぞれ示すように、補正を行った

後もトランスビニレンの吸収と線量のプロファイルとは大きく異なり、吸収のピークは線量のピークよりも浅い位置に現れた。この原因は、重イオンの場合には飛程が短いので、顕微赤外の光路補正に厳密性が欠けることが考えられる。また、多荷イオンを比較的短時間で照射するため、ポリエチレン内での電荷蓄積の効果を検討する必要もある。実際、高分子材料の電子線照射では、入射する電子と蓄積された負電荷との間に働く斥力により、照射効果の深さプロファイルが上流側にシフトすることが報告されている⁴⁾。更に重イオンでは、飛程より深い位置にIR吸収が見られるように、とくに低速の重イオンに対するTRIMコードの適用性が十分であるか否かの検討も課題である。

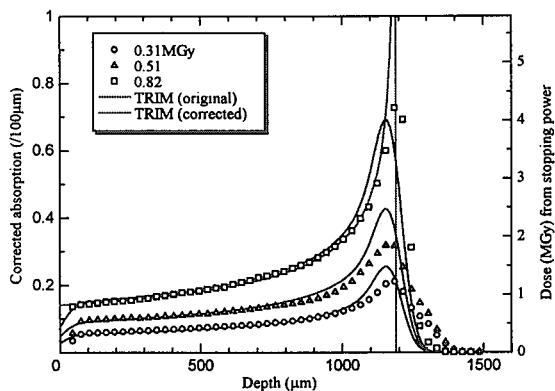


Figure 8. Depth profiles of IR absorbance (corrected) (symbols, left axis) and calculated dose (corrected) (solid lines, right axis) for LDPE irradiated by H^+ (10MeV).

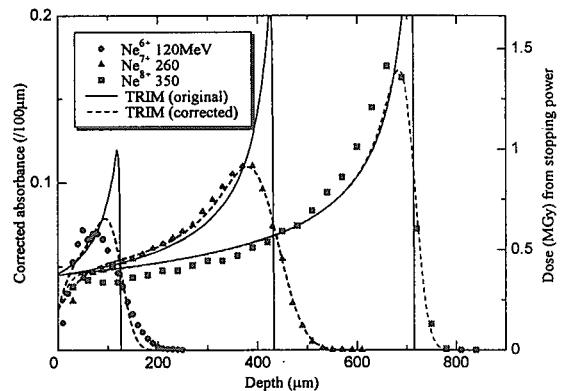


Figure 9. Depth profiles of IR absorbance (corrected) (symbols, left axis) and calculated dose profiles (corrected) (solid lines, right axis) for LDPE irradiated by Ne ions.

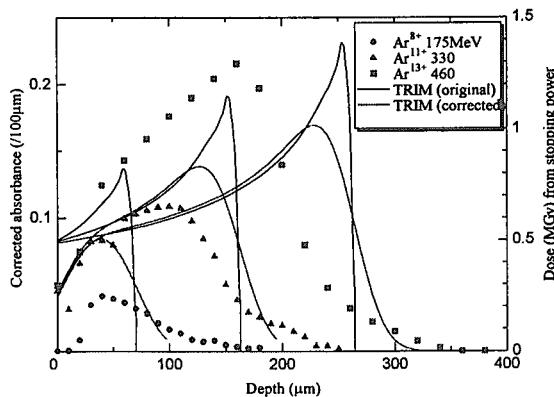


Figure 10. Depth profiles of IR absorbance and of dose from stopping power calculated by TRIM for LDPE by Ar ion irradiation.

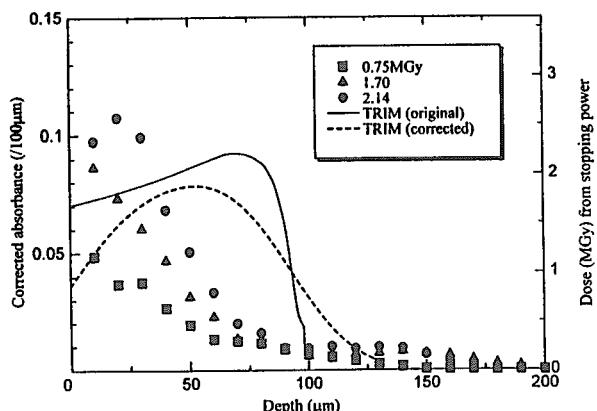


Figure 11. Depth profiles of IR absorbance and of dose from stopping power calculated by TRIM for LDPE by Kr ion irradiation.

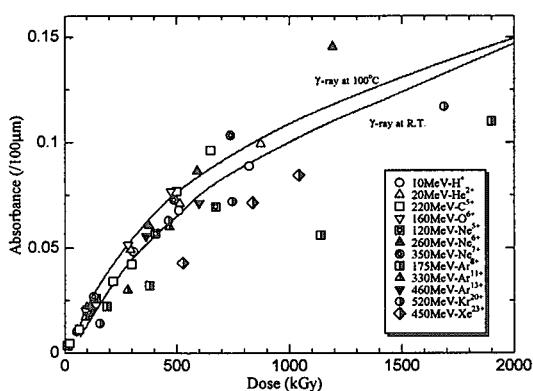


Figure 12. IR absorbance and dose at surface for LDPE irradiated by various ions.

試料表面近傍での、線量に対するトランスビニレン生成量を Fig. 12 に示す。H から Ne までの軽～中イオンの場合には、 γ 線に対する生成挙動とほぼ一致し、LET 依存性はほとんど現れない。Ar, Kr, Xe の重イオンでは見かけ上、軽イオンの場合の 1/2 程度に低下する。これは、TRIM による線量評価を基準にすれば、LET が大きくなると LET 効果が発現して生成量が減少すると解釈することもできる。しかし、Fig. 10, 11 のようにプロファイルが大きくずれるために、LET 効果が現れたとは結論できない。

結論 ポリエチレンに生成するトランスビニレンの分析からは、H から Ne までの軽～中イオンでは LET 効果は極めて小さいことがわかった。ただし、Kr や Xe のような多価の重イオンでは、二重結合の生成量プロファイルは計算で求めた線量プロファイルから大きく異なっていることが判明し、TRIM コードの適用性や電荷蓄積などの再検討が必要である。現在はトランスビニレンだけでなくエンドビニルやビニリデンを含めた収量・分布^{5,6)}や、原子間力顕微鏡(AFM)を用いた表面の形状変化について解析を行っている。

参考文献

- 1) M. Sugimoto, H. Kudoh, T. Sasuga, T. Seguchi, Y. Hama, K. Hamanaka, H. Matsumoto, JAERI-Conf 97-003, 269 (1997)
- 2) Y. Hama, K. Hamanaka, H. Matsumoto, H. Kudoh, T. Sasuga, T. Seguchi, Radiat. Phys. Chem., 46, 819 (1995)
- 3) Y. Hama, K. Hamanaka, H. Matsumoto, T. Takano, H. Kudoh, M. Sugimoto, T. Seguchi, Radiat. Phys. Chem., 48, 549 (1996)
- 4) R. Tanaka, H. Sunaga, N. Tamura, IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-26, 4670 (1979)
- 5) 鬼頭昌利、井上憲介、岡壽崇、佐村明、浜義昌、工藤久明、杉本雅樹、瀬口忠男、第 40 回放射線化学討論会講演要旨集、79 (東海、1997)
- 6) 岡壽崇、井上憲介、鬼頭昌利、鶴尾方一、浜義昌、工藤久明、杉本雅樹、瀬口忠男、第 41 回放射線化学討論会講演要旨集、9 (神戸、1998)



JP0150020

JAERI-Conf 2000-008

2.4.3 ポリシランの架橋・切断反応における線質(LET)依存性

大阪大学産業科学研究所 田川精一

1. はじめに

我々が原研・大学プロジェクト共同研究（放射線高度利用研究）「高分子材料のイオン照射ミクロ構造に関する研究」として、大阪大学と原研との共同研究で行った研究を中心にポリシランの架橋・切断反応における線質（LET）依存性について報告する。

2. 高分子のイオン照射

高分子への電子線やイオン照射効果の最も大きな特徴は非常に低エネルギーのイオンビームを除き、弾性散乱の効果は無視でき、ほとんど非弾性散乱、特に電子励起であるイオン化や励起によって引き起こされるということである。特に、高分子へのイオンビーム照射の特徴はイオンビームが電子線やガンマ線に比較してLET（阻止能）が大きい、すなわち局所的なイオン化や励起の密度が高く、いわゆる高密度励起効果などの特徴的な反応を起こすことがある。

3. ポリシラン

ポリシランとは、シリコン原子間の σ 結合によって主鎖が構成された高分子であり、従来の炭素原子が主鎖の高分子とは大きく異なった様々な物性を示すことが知られている。これは結合に関与している σ 電子が主鎖方向に非局在化し、共役系を構成していることに起因すると考えられる。ポリアセチレンに代表される π 共役系高分子とは異なる σ 共役系高分子で、近紫外領域の強い吸収帯および発光帯、光分解性、非線形光学効果、光伝導性などが報告されている。

4. 主査切断・架橋のG値における線質（LET）依存性と温度効果

ポリシランに光、 γ 線、電子線、低LETのイオンを照射すると主として主鎖切断が起り分解するが、高LETのイオン照射すると主として架橋が起り高分子量化し溶媒に溶けなくなった。

次に、312K付近に相転移温度を持つ、ポリジヘキシルシラン(PDHS)の照射効果に見られる顕著な照射温度依存性について調べた。PDHSは全ての温度領域で、 γ 線、電子、低LETイオン照射に対し高分子主鎖分解反応が主導的であった。一方、高LETのイオン照射では、照射温度を254Kから375Kまで変化させた際、相転移温度(313K)上下の温度にて照射効果は大きく異なった。相転移温

度以下では、イオンビーム照射に対し高分子は架橋反応によって高分子量化し、高分子ゲル生成した。一方で相転移温度より高い温度領域においては全く逆の結果を示した。すなわち非晶状態におけるPDHSではこの高分子は明らかに分解型であり、さらに高い効率でアブレーションが起こした。

このように、非常に大きな線質効果と照射温度依存性を持つ高分子であった。

5. イオン照射ミクロ構造とG値

イオン照射ミクロ構造とG値イオン照射では、イオン照射ミクロ構造を反映して、よく使用されているチャールスビー式から求めた架橋のG値は実際の架橋のG値よりも小さく出る。

6. 反応中間体の時間分解測定

上述の312K付近に相転移温度を持つ、PDHSのイオン励起発光挙動をイオンビームパルスラジオリシスの装置を用いて、照射温度を254Kから375Kまで変化させて測定した。まず相転移温度よりも高温領域(354K)、すなわち非晶状態における発光スペクトル変化では、非晶状態の高分子主鎖に起因する発光バンド(330 nm)が減衰して行くだけという単純な変化を示すのみにとどまり、これは明らかにポリマーの主鎖分解に伴う発光減衰であると思われる。

相転移温度より十分に低い温度領域において(270K)の照射下では、メインバンドの発光は照射を長時間にわたって続いているにも関わらず、あまり急速には減衰しない。しかしながら相転移時に現れるべき330 nmの発光バンドはそれほど強くないながらもここでも観測されており、低温下においてもイオントラックの局所的な高温状態が発生し、アニールされずにそのまま冷却したものではないかとも考えられるが、低温での330 nmの発光バンドの帰属及び生成機構については今後詳細に検討する必要がある。

7. イオン照射ミクロ構造と機能発現

ポリシランはアモルファス高分子の中で最大の正孔の移動度を持っているが、イオン照射によって、さらに向上させることができた。また、ポリシランを光伝導性高分子として利用するときの最大の泣き所である、光劣化性とキャリアーの生成効率の悪さをイオン照射によって改善することができた。

化学的な方法では行えなかった改質が、イオンビーム照射で行えた理由は完全に解明されていないが、イオン照射ミクロ構造が重要であると考えている。すなわち、イオンの飛跡に沿って円筒状に高分子架橋反応が促進され、3次元骨格構造を有するポリシランを創成し、結果として高次元化された骨格構造を持つシリコン材料が得られたものと考えられる。



JP0150021

JAERI-Conf 2000-008

2.5 核融合炉材料照射損傷に対する核変換生成物の影響に関する研究

2.5.1 概要説明

大学側代表者：関村 直人（東京大学大学院工学系研究科システム量子工学専攻）

原研側代表者：菱沼 章道（原研東海研物質科学研究所核融合炉材料研究開発推進室）

1. はじめに

TIARA のトリプルビーム照射装置を活用した核融合炉材料照射損傷における核変換生成物効果研究は、平成9年度よりプロジェクト共同研究として開始され、本格的成果が得られつつある。現在、バナジウム合金（東京大学グループ）、SiC/SiC 複合材料（東北大學グループ）、FCC 金属材料・銅合金（広島大学グループ）、アルミナ・トリチウム増殖材料（原研グループ）に関する研究が進められているが、ここではトリプルビーム照射試験の有効性と研究の背景を述べた後、プロジェクトの特徴について紹介する。

2. 核融合炉材料研究における TIARA トリプルビーム照射装置の有効性・位置づけ

(1) 核融合炉 1.4 MeV 中性子照射環境における材料損傷の特徴

核融合炉構造材料の照射損傷は、はじき出し損傷量が高いこと（重照射損傷）と核変換生成物（特にヘリウム、水素）が多量に生成することの2つの大きな特徴を持つ。はじき出しを起こす重イオン照射とヘリウムイオンと水素イオンの注入を同時に行うことによって、これらの特徴を模擬するのが、トリプルビーム照射試験であり、現在、世界で唯一のフルに稼働しているのが TIARA の装置である。

(2) 材料挙動評価モデリングの核融合炉材料開発における重要性

長期間にわたる照射試験が必要な中性子照射試験に比べ、イオン照射試験は短時間での試験が可能である。また、核融合炉材料開発と試験のための照射用強力中性子源は、その実現が遅れており、材料損傷の機構に基づいた材料設計と挙動評価モデルの開発の必要性が高い。

(3) 構造材料・機能性材料開発の必要性

重照射に耐える材料（特にブランケット構造材料）の開発は、原型炉以降の核融合炉開発に本質的に重要である。また低放射化特性に優れる新材料は、核融合炉の魅力をより高めるものと期待される。

(4) サイエンスと工学をつなぐ研究領域、研究課題

材料の照射損傷は、ミクロ短時間現象に関する固体物理、材料科学から、長期信頼性を有する機器設計、寿命予測に至る広い分野へ貢献しうる研究領域であり、核融合理工学の中核をなすものである。

3. 研究プロジェクトの構成とそのポイント

(1) 材料ごとの開発段階分類と大学と原研の役割分担

原子力委員会核融合会議のもとでの議論でも明かなように、核融合炉用の低放射化構造材料では、その開発段階に差違がある。低放射化鉄鋼材料は工学材料段階にあり、実使用条件での寿命制限の定量評価が行われる工学実証段階の一歩手前になり、中性子照射試験を含め、原研が主として研究を担当している。これに対し、バナジウム合金及び SiC/SiC 複合材料は、魅力的な特性を持つが未だ素材開発段階にあり、大学を中心とした核変換生成物挙動研究を含む基礎的な研究成果が重要である。

(2) 照射試験、照射後試験技術開発と研究成果の活用

イオン照射試験と被照射試料評価手法の高度化の面では、大学と原研の協力が、東大等におけるデュアルビーム照射試験の経験に基づいた試料ターゲット部開発、イオン照射後ミクロ組織観察手法高度化、表面微小機械的特性評価試験技術開発などに生かされている。限られたトリプルビームマシン

タイムを活用するために、イオン入射方向への断面ミクロ組織観察技術も本プロジェクトで開発されている。また研究の計画と実務に関する打ち合わせ等については、大学からの客員研究員を含む核融合炉材料研究開発推進室での議論が活用されている。

トリプルビーム照射されたバナジウム合金等で得られつつあるヘリウムと水素の非加算的な照射効果については、国内外の研究者による核変換生成物効果を含まない原子炉を用いた中性子照射研究の成果と比較検討されるとともに、合金開発と日米協力等における新たな中性子照射試験の立案に貢献しつつある。

2.5.2 トリプルビーム照射によるバナジウム合金のスエリング挙動

東京大学大学院 工学系研究科 関村 直人、与那嶺真一、荒井 良夫、沖田 泰良、森岡 智昭
日本原子力研究所 東海研究所 内藤 明、沢井 友次、浜田 省三、三輪 幸夫

1. 核融合炉構造材料としてのバナジウム合金

バナジウム合金は、低放射化特性に優れた金属材料であり、高温強度が高い、液体金属との両立性が良いなどの利点があることから、原型炉以降の核融合炉第一壁ブランケット構造材料として、国内では主として大学連合において、材料開発と基礎的データの充実が図られつつある。しかし、中性子照射下ではヘリウム多量生成について DHCE 法（動的ヘリウム注入法）による限られた範囲での研究例があるが、水素の影響を含む系統的な核変換生成物効果に関する研究は行われていない。

2. イオン照射実験の概要

イオン照射用試料は、純バナジウム (99.8%) の他に、V-5Cr、V-5Fe の各 2 元系モデル合金及び候補材料としての V-5Cr-5Ti 合金であり、予め 3 mm φで 0.25 mm 厚に打ち抜き板状試料とした後、高真空中で 1000°C・1 時間のアニールを行っている。これらを原研高崎研 TIARA トリプルビーム照射装置において、トリプルビーム照射 ($12\text{MeV}\text{Ni}^{3+} + 1\text{MeV He}^+ + 360\text{keV H}^+$)、2 種のデュアルビーム照射 ($12\text{MeV}\text{Ni}^{3+} + 1\text{MeV He}^+$ 、 $12\text{MeV}\text{Ni}^{3+} + 360\text{keV H}^+$) 及びシングルビーム照射 ($12\text{MeV}\text{Ni}^{3+}$) を行った。照射温度は 600 及び 700°C、照射量は 30dpa までとし、ヘリウムと水素の注入率は He, H (appm)/dpa 比で各々を 10 及び 20 と変化させた。照射後試料は、電解研磨によりヘリウム、水素注入領域まで表面を取り除き、背面研磨により薄膜として、加速電圧 200 kV の透過型電子顕微鏡でミクロ組織観察等を実施している。

3. 研究成果の概要

図 1 は、600°Cで 30dpa のトリプル、デュアル、シングルビーム照射された純バナジウム中に形成されたキャビティの総体積を示したものである。キャビティの形成は、はじき出し損傷による空孔の集合によるものであり、対をなす格子間原子が新たな格子点を形成することによって、キャビティ総体積にほぼ相当する材料のふくれ（スエリング）をもたらす。バナジウム合金に溶解度を持つ水素は単独ではスエリングに影響しないが、ヘリウムはスエリングを増加させることがわかる。しかし核融合炉照射条件を模擬したトリプルビーム照射ではスエリングは大きく増加し、ヘリウムあるいは水素の効果を各々調べたデュアルビーム照射試験結果の単純な重ね合わせでは予測しない注目すべき結果が得られた。

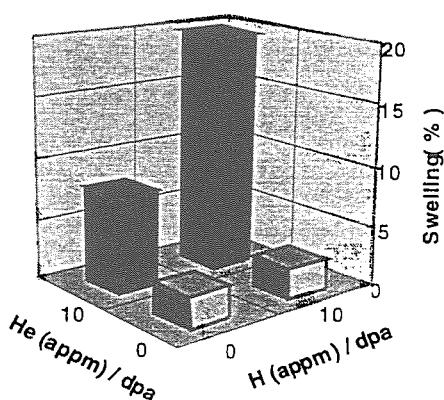


図 1 バナジウムの照射によるスエリング
(600°Cで、30dpa の照射)

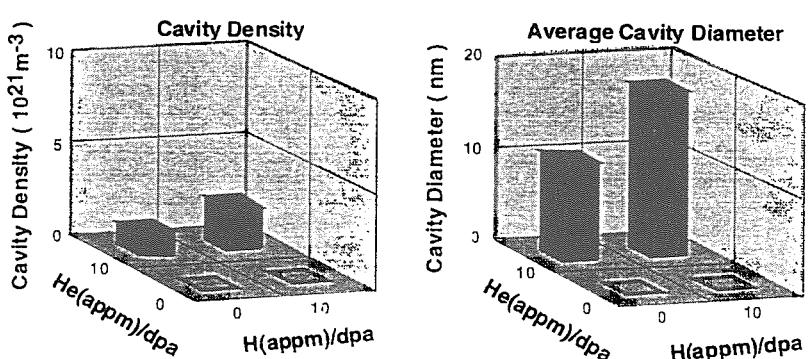


図 2 V-5Cr-5Ti 合金のキャビティ密度とキャビティ平均径
(600°Cで、30dpa の照射)

図2は、3元系実用合金(V-5Cr-5Ti)の600°Cで30dpaの各種照射条件におけるキャビティ密度と平均径を示したものである。チタンの添加によりヘリウムが存在しない場合のキャビティ形成は抑えられているが、水素との同時注入ではキャビティの密度、径ともに増加させることができた。

これらは、転位組織発達に伴う点欠陥シンク強度変化への水素効果とキャビティ核形成に対するヘリウム、水素効果の結果であると考えられ、点欠陥反応速度論に基づいたミクロ組織発達過程のモデル化を進めている。

2.5.3 多重イオン照射による鉄鋼材料のミクロ組織化

内藤 明

日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部 照射解析研究室

超高純度 Fe-P 合金の照射損傷組織と極微小硬さとの関係、および低放射化フェライト鋼のスエリング挙動を調べた。ミクロ組織-硬さ関係モデルの構築や精密化には、 $0.4 \mu\text{m}$ 以下の浅い領域での高い精度の測定が必要であること、ヘリウムガス原子がスエリングを著しく増大させることが明かとなった。

Microstructural Change in Steels due to multiple ion irradiation

A. Naito

Radiation Effects and Analyses, Materials Science and Engineering
Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute

Relationship between radiation damage structure and ultra-micro hardness in high purity Fe-P alloys, and swelling behavior in reduced activation ferritic/martensitic steels irradiated with multiple ion-beam were investigated. Measurements of higher accuracy within a depth under $0.4 \mu\text{m}$ were required for modeling on a microstructure-hardness relation. Gas atoms of helium remarkably increased the swelling level of ferritic steels.

Key words: Radiation damage, Fe-P alloys, Microstructure, Ultra-micro hardness, Reduced activation ferritic/martensitic steels, Helium, Swelling

1. イオン照射した超高純度 Fe-P 合金の損傷組織と極微小硬さとの関係

1.1 目的

照射による材料の強度特性変化は、照射損傷によって生じるミクロ的な材料の組織変化に依存する。これに関するモデルの構築や精密化には、照射条件制御が容易なイオン照射の利用が有効である。しかしながらイオン照射によって形成される損傷は局部的であるため、 μm オーダーの微小な領域から測定値を得る必要がある。本研究では超高純度 Fe-P 合金において、照射損傷組織と極微小硬さとの関係を実験的に調べる。

1.2 方法

供試材は超高純度鉄およびPをそれぞれ0.05、0.3 wt% 添加した超高純度 Fe-P 合金の3種類である。照射は原研 TIARA のトリプルビーム照射実験装置を用いて、11.3 MeV Fe^{3+} のシングルビーム照射を行った。照射温度は200 °C、損傷速度は図1に示すようにイオン入射面から $2 \mu\text{m}$ のピーク位置で $1 \times 10^{-3} \text{ dpa/s}$ 、損傷量は7 dpaである。照射後、クロスセクション法により透過電子顕微鏡用試料を作製し、損傷組織の観察を行った。極微小硬さ試験は、室温で照射面からビックカース圧子を荷重0~0.98 Nの範囲内で押し込み、荷重と圧子の変位を連続的に測定することにより行った。

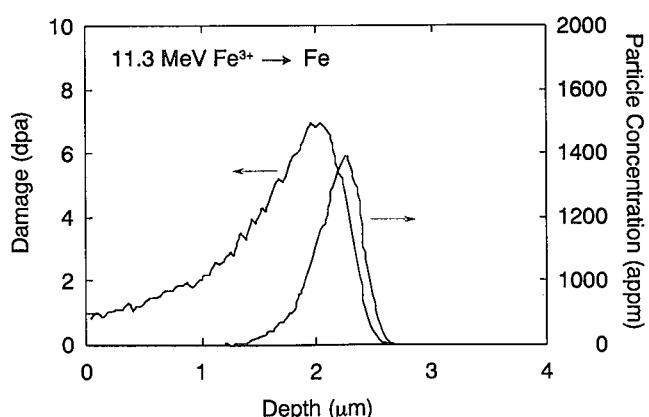


図1 TRIM コードにより計算した弾き出し損傷量
および入射イオン濃度

1.3 結果

図2にイオン入射面から深さ $2\text{ }\mu\text{m}$ の位置でのミクロ組織観察結果を示す。いずれの試料においても格子間原子型転位ループと思われる微細な照射欠陥集合体が観察された。転位ループはFeにおいては比較的不均一に分布しているが、P濃度が高くなるほど均一度は高まり、微細かつ高密度に分布している。図3に示すように転位ループ数密度は 10^{22} m^{-3} のオーダーでP濃度とともに増加し、サイズはnmオーダーで減少した。

0.3P非照射材と照射材の極微小硬さ試験結果を図4に示す。照射材では表面から約 $0.4\text{ }\mu\text{m}$ の押し込み深さまで硬化領域が認められ、その硬さは非照射材の2.2倍の大きさであった。つまり損傷ピーケ深さの $1/5$ 程度の深さに相当する

圧子押し込み位置まで照射欠陥集合体の生成に起因する硬化が検出された。ミクロ組織-硬さ関係モデルの構築や精密化には、さらに浅い領域での高い精度の測定が必要である。

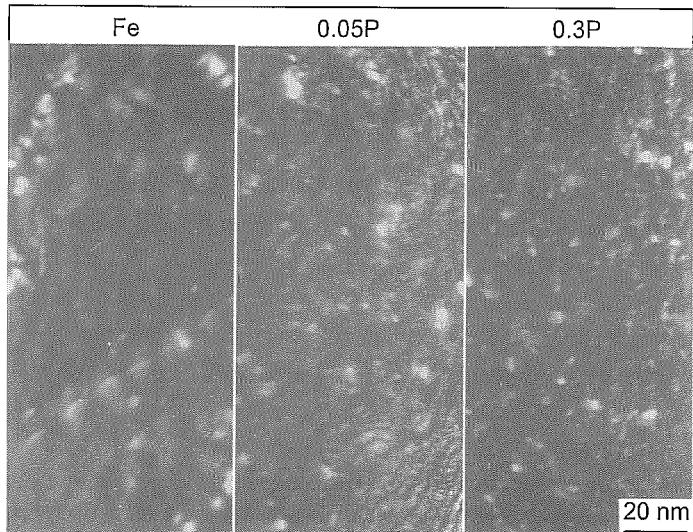


図2 イオン入射面から深さ $2\text{ }\mu\text{m}$ の位置での照射損傷組織

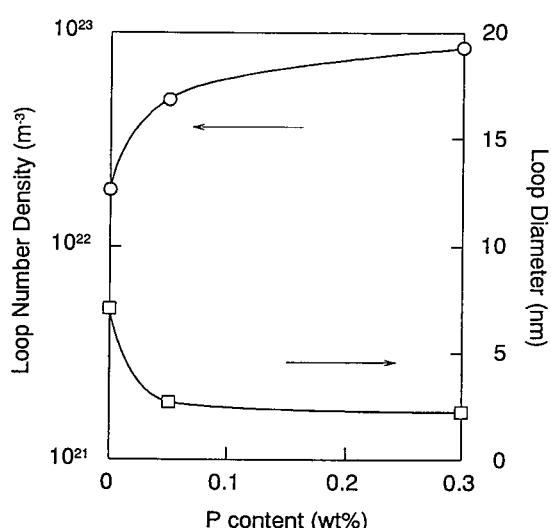


図3 転位ループ数密度およびサイズのP濃度依存性

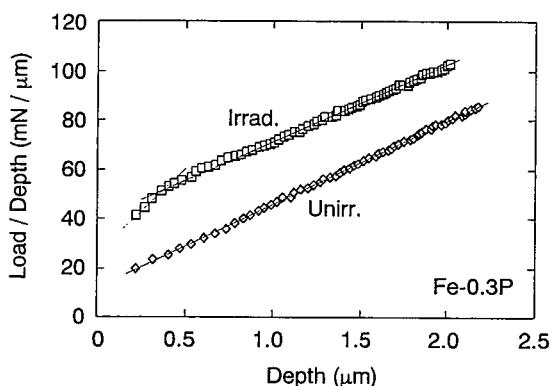


図4 非照射材と照射材の極微小硬さの比較

2. 多重イオンビーム照射による低放射化フェライト鋼のスエリング挙動

2.1 目的

低放射化フェライト鋼は、原型炉以降の核融合炉ブランケット構造材料の有力な候補材料の一つである。核融合炉中性子照射条件下では核変換によりヘリウムや水素などのガス原子が多量に生成されるため、スエリングや脆化の問題が引き起こされる可能性がある。本研究では多重イオンビーム照射実験により、低放射化フェライト鋼のミクロ組織変化、特にスエリングに対するヘリウムの影響を調べる。

2.2 方法

供試材はF82H、JLF-1、比較材としてのHT9の3鋼種である。照射は上記1の実験と同様に、11.3 MeV Fe^{3+} のシングルビーム照射と1.2 MeV He^+ とのデュアルビーム照射を行った。照射温度は450

および 500 °C、照射量は 50~65 dpa、He/dpa は 0~20 appm である。照射後、クロスセクション法により透過電子顕微鏡試料を作製し、損傷組織の観察を行った。

2.3 結果

全ての鋼種、温度において、シングルビーム照射ではキャビティは観察されなかったのに對し、デュアルビーム照射では図 5 に示すように 1~50 nm の大きさのキャビティが観察された。キャビティの平均サイズ、数密度、スエリング量は図 6 に示す通りである。図 7 に示すように、He/dpa が 0 appm のときには 60 dpa 程度の高照射量まで照射してもスエリング量は 0 % であるのに対し、核融合炉条件に近い 20 appm のときには 450 °C 照射の場合で約 1 % もスエリングを起こしていた。核融合炉条件レベルの He/dpa 量がスエリングを著しく増大させることが明かとなった。

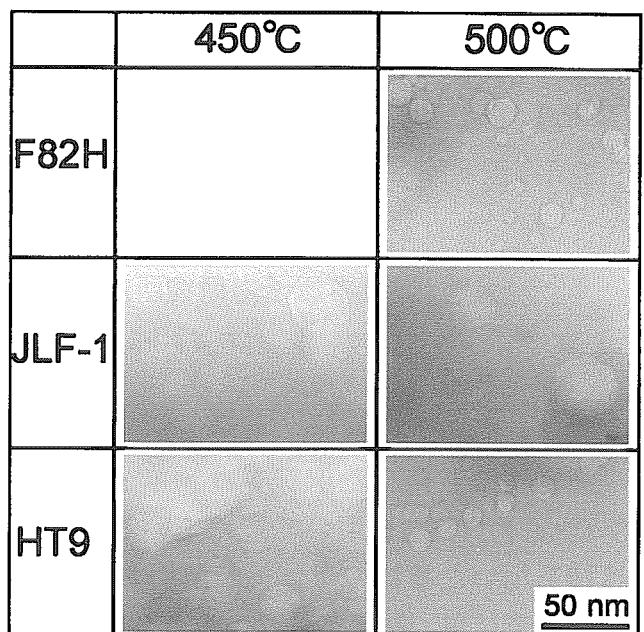


図 5 デュアルビーム照射により各試料中に形成されたキャビティ

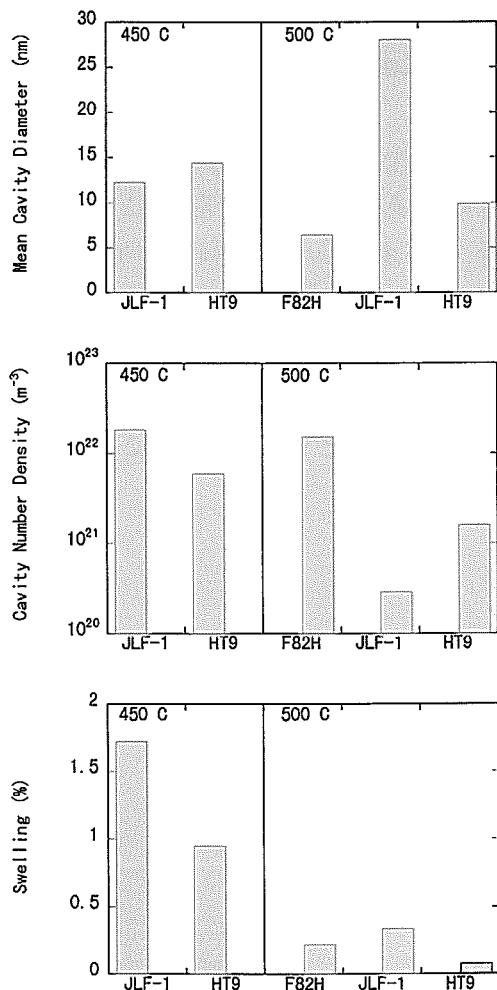


図 6 キャビティの平均サイズ、数密度およびスエリング量

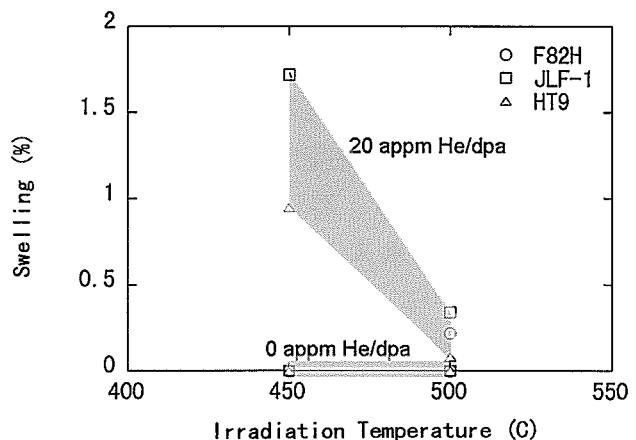


図 7 0 および 20 appm He/dpa のときのスエリング量の比較



JP0150024

JAERI-Conf 2000-008

2.6 ポジトロン放出核種を用いた植物の生体機能解明

2.6.1 概要説明

久米民和

日本原子力研究所高崎研究所 環境・資源利用研究部
〒370-1292 高崎市綿貫町1233

植物用に開発したポジトロンイメージング装置 (Positron Emitting Tracer Imaging System, PETIS) を用いて進めている原研-大学プロジェクト共同研究「ポジトロン放出核種を用いた植物の生体機能解明」研究の概要を示した。

本研究には、茅野充男教授を代表とする5つのグループが参加し、PETISを用いて生きた植物体内における¹³N化合物や¹¹C化合物などの移行を連続的に画像化し、植物の有する高度な機能の検討を進めている。PETISは、2台の放射線2次元位置検出器を対向配置し、反対方向に放出される消滅 γ 線 (511 keV) を検出して2次元画像を得ることができる。本装置は、検出面積：48 x 50 mm、画像分解能：約2.4mmであり、ほぼリアルタイムでの処理が可能である。

本プロジェクト研究では、¹³NO₃⁻や¹³NH₄⁺を用いてイネやダイズにおける窒素の動態が調べられており、特に短時間での計測にPETISが有効であることを明らかにした。また、微量元素や水ストレスに関して、鉄栄養ストレス下でのオオムギにおける¹¹C-メチオニンの動態、¹⁸F-水を用いた耐乾性植物の貯水機構などの研究が進められている。¹¹C-メチオニンの植物体内移行速度計測では、世界で初めてアミノ酸転流のリアルタイムでの可視化に成功した。このようにPETISは、オートラジオグラフィーなどの従来法では行えなかった生きた植物体内における物質移動の有効な解析手法として、植物による環境保全や食糧増産などの研究発展に寄与できるものと期待される。

Outline of Research on Plant Physiological Functions using Positron Emitting Tracer

Tamikazu KUME

Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment,
Japan Atomic Energy Research Institute,
1233 Watanuki, Takasaki, Gunma 370-1292, Japan

Application of Positron Emitting Tracer Imaging System (PETIS) for the plant has been investigated under JAERI-Universities Joint Research Project. Five university groups are studying a dynamic image of plant transport or a static image of the result of tracer movement using ^{11}C (half-life 20 min), ^{13}N (10 min), ^{18}F (110 min), etc.

The PETIS consisted of two-dimensional block detectors (48 x 50 mm square) which were composed of a $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ scintillator array coupled to a position sensitive photomultiplier tube. In the system, the plant samples are placed at the mid position between the two opposing detectors and annihilation γ -rays from the samples are detected in coincidence. The positron emitting tracer images are obtained by accumulating these signals. The spatial resolution was 2.4 mm and images with a good S/N ratio can be obtained in real time.

Using TIARA AVF cyclotron, $^{13}\text{NO}_3^-$, $^{13}\text{NH}_4^+$, ^{18}F -water, ^{11}C -methionine, etc. were produced and supplied to the plants. The transport of these raveled compounds introduced into plants was followed dynamically by PETIS.

The results show that the system is effective in observing the uptake and transport of nutrients in plants and is useful for the study of physiological functions of plants.

Key Words: positron emitting tracer, imaging system, ^{11}C -methionine, $^{13}\text{NO}_3^-$, ^{18}F -water, short-life isotope, plant

1. はじめに

ポジトロン放出核種は、消滅時に透過力の高い γ 線を放出するため、生体外から非破壊で計測可能であり、生きたままの生体内における物質の吸収、移行、代謝を画像化して計測することができる。短寿命、非破壊計測の特徴を生かして、核医学の分野では、ポジトロン断層法（Positron Emission Tomography、PET）が、脳、心臓、腫瘍などの診療及び脳機能解明、精神・脳神経疾患、加齢・老化機構、循環器疾患などの研究に用いられている¹⁾。

原研・高崎研究所では、TIARA AVFサイクロトロンの設置に伴い、ポジトロニイメージングの植物への利用についての検討を開始した。医療用PETは、3次元の画像を得るために大掛かりな装置となっており、高価である。これに対し、植物分野の研究では葉などの偏平な試料を対象とするので、小型の2次元画像解析装置が適している。我々は浜松ホトニクス（株）との共同研究により植物用ポジトロニイメージング装置（Positron Emission Tracer Imaging System, PETIS）を開発し、世界で最初の実用機（図1）を設置した²⁾。

ここでは、本装置を用いた原研一大学プロジェクト共同研究「ポジトロン放出核種を用いた植物の生体機能解明」研究の概要を紹介する。本研究には、茅野充男教授を代表として、以下の5つのグループが参加している。

1. 林 浩明助教授（東大）グループ：イネにおける窒素吸収の制御機構の検討
2. 大山卓爾教授（新潟大）グループ：ダイズの窒素固定と硝酸吸収の解析
3. 有馬泰紘教授（東京農工大）グループ：インゲンの硝酸吸収サイトと根粒形成に対する化合態窒素ストレス
4. 森 敏教授（東大）グループ：オオムギの鉄栄養ストレスに関する研究
5. 中西友子助教授（東大）グループ：植物における水及び微量元素の動態研究

2. ポジトロニイメージング装置（PETIS）³⁾

ポジトロンは近傍の電子と結合して消滅し、反対方向に一対の γ 線（511 keV）を放出する。対向配置した γ 線2次元入射位置検出器で同時計測することにより、同一の消滅事象のみによる γ 線を選択的に検出する。ポジトロンの消滅位置は、それぞれの検出器での γ 線検出位置を結ぶ線上と試料の設置面の交点となる。すなわち、本計測では、試

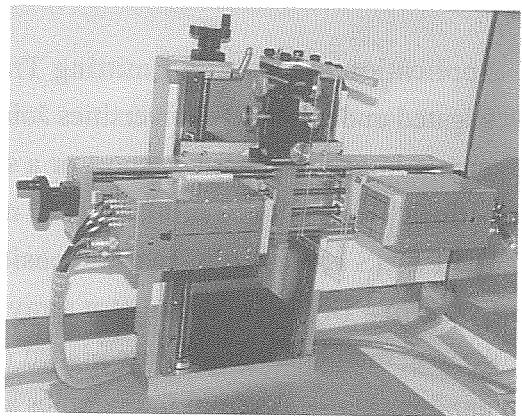


図1. 植物用ポジトロニイメージング装置(PETIS)

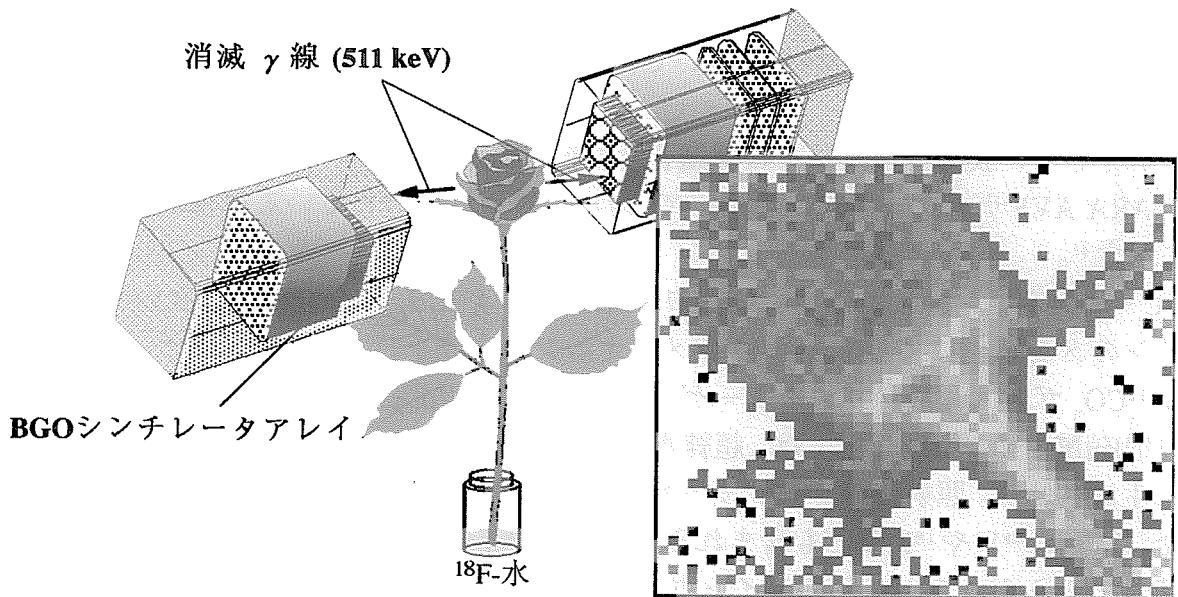


図 2. PETIS 計測部の構造及び得られたバラの画像

料を検出器間の中央に固定し、イメージの生成を行う（図2）。この単純なイメージ生成法により、PETで行われているような試料の全周からの収集データを用いて画像再構成するといった手法に比べ、S/N比の良い画像を得ることが可能である。本装置の視野（計測範囲）は $48 \times 50\text{ mm}$ 、空間分解能は約 2.4 mm であり、市販PETの空間分解能 $3 \sim 4\text{ mm}$ に比べ優れた解像度が得られている。データの収集は、設定された計測時間ごとに収集する方式であり、最短の収集時間は5秒である。計測中、ディスプレー上に計測された逐次イメージ、積算イメージ及び計数値の時系列グラフが表示される。また、計測後、任意の点における時系列グラフを用いた解析を行うことができる。

PETISの視野の狭さをカバーするため、図3に示す多点検出装置（Positron Multi-Probe System, PMPS）を開発し、植物の任意の部位における定量的な計測を試みている。本装置は、4対の超小型BGOシンチレーター（ $10 \times 10 \times 20\text{ mm}$ ）が用いられ、これを超小型光電子増倍管に接続した形となっている。また、検出器内にプリアンプが内蔵され、検出器と信号ユニット間を 10 m のケーブルで接続できるようにしておらず、検出器の計測試料へのセッティングの自由度の向上を図っている。植物に密着させることができるので検出効率が高く、簡便に植物の任意の部位4カ所での

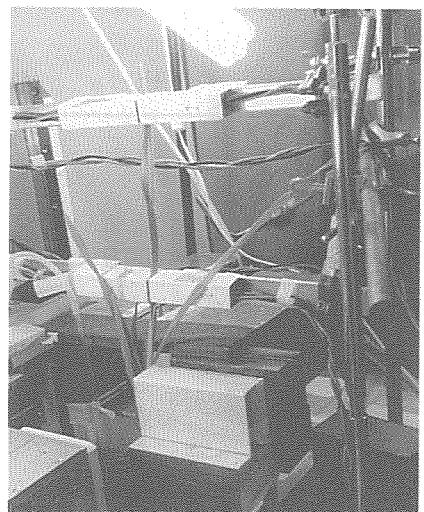


図 3. ポジトロン多点検出装置(PMPS)

同時計測が可能である。

現在、2台のPETISとPMPSを用いて、植物における計測を行っている。

3. ポジトロン放出核種及びその標識化合物の製造法

TIARA AVFサイクロトロンを用いて、植物実験用に製造している核種と生成反応を表1に示す⁴⁾。

¹¹C-メチオニンは、¹¹CO₂から[¹¹C]ヨウ化メチル(¹¹CH₃I)を合成し、次いでホモシステインのメチル化による[S-methyl-¹¹C]メチオニンの合成を行う。¹¹C-メチオニン合成に用いる¹¹CO₂ガスは、窒素ガスをターゲットとして、¹⁴N(p, α)¹¹C反応により製造される。

[¹³N]硝酸イオン(¹³NO₃⁻)は、超純水をターゲットに用いて¹⁶O(p, α)¹³N反応により水中に生成させる。照射後のターゲット水には、¹³NO₃⁻の他に¹³NO₂⁻や¹³NH₄⁺が存在する。また、微量の⁴⁸Vや¹⁸Fなども含まれる。これらの不純物を除くため、陽イオン交換及び塩基性アルミナカラムを回収ライン中に設置し、回収と同時に精製を行っている。

[¹⁸F]フッ素イオン(¹⁸F⁻)の製造は、ターゲットに超純水を用いて、¹⁶O(α, pn)¹⁸F反応によって製造する。不純物としてターゲット容器のチタン窓から副生する⁴⁸Vが含まれるが、陽イオン交換樹脂を用いて除いている。

表1. TIARAにおいて製造されているポジトロン放出核種とターゲット特性⁴⁾

核種	半減期	反応	入射エネルギー	ターゲット	目的トレーサー
¹¹ C	20min	¹⁴ N(p, α) ¹¹ C	11 MeV	N ₂ ガス	¹¹ CO ₂ ¹¹ C-メチオニン
¹³ N	10min	¹⁶ O(p, α) ¹³ N	16 MeV	H ₂ O(水)	¹³ NO ₃ ⁻
¹⁸ F	110min	¹⁶ O(α, pn) ¹⁸ F	42 MeV	H ₂ ¹⁶ O(水)	¹⁸ F-水溶液 ¹⁸ F-グルコース
⁴⁸ V	16day	⁴⁵ Sc(α, p) ⁴⁸ V	45 MeV	Sc foil	⁴⁸ V水溶液

4. 植物機能研究への応用

森(東大)らのグループは、鉄栄養ストレス下でのオオムギにおける¹¹C-メチオニンの動態研究を行っており、世界で初めてアミノ酸転流のリアルタイムでの可視化に成功した。また、林(東大)らのグループは、¹³NO₃⁻や¹³NH₄⁺を用いてイネにおける窒素の動態を調べており、特に短時間での計測にPETISが有効であることを明らかにした。これらの研究成果は別稿で紹介されるので、ここでは他の3グループの研究の概要を紹介する。

4.1 耐乾性植物における水の動態研究

中西ら（東大）のグループ⁵⁾は、¹⁸F-水を用いて、耐乾性植物ササゲにおける水の挙動を調べている。ササゲは、初葉節と第一本葉節間の肥大部分が、水分貯蔵の役割を果たしている。乾燥処理により本組織から優先的に水分が他組織に移行することが、中性子ラジオグラフィ法で確かめられている。しかし、中性子ラジオグラフィでは水の動態計測は行えないもので、この点をPETIS法で検討している。この結果、ササゲ及びインゲン（耐乾性なし）とともに、吸収した水は数分で初葉節と第一本葉節間の茎及び第一本葉に吸収され、約10分以内に一定値を示す。30分室温で乾燥処理後、ササゲは乾燥前と同様の水分動態が茎及び葉で示されたが、インゲンは乾燥後はほとんど水分吸収が行われないことが判った。PETISを用いることにより、ササゲが乾燥下でも水分吸収能を高く維持しているという、生きた植物の活動度を直接知ることができることが示された。

4.2. ¹³NO₃⁻を用いた窒素の動態研究

有馬ら（農工大）⁶⁾のグループは、¹³NO₃⁻を用いて硝酸態窒素の根における吸収・同化サイトについて、根粒菌感染可能部位である根毛伸長域との位置関係について検討している。インゲンの根茎部から派生した側根1本だけを取り出し、¹³NO₃⁻を2分間供給した後洗浄し、PETISでの計測を行った。この結果、根の先端部及び根端から2～3cmの2ヶ所に¹³N濃度の高い部位が認められ、30分の計測期間中大きな位置変化は認められなかった。これらのことから、根の先端及び根端から2～3cmの2ヶ所が、主要な硝酸態窒素の吸収・同化サイトと推定されている。根端から2～3cmの部位は比較的若い根毛領域であり、根粒菌感染領域と重複するか、またはごく近接するものと推察されるという興味ある結果が得られている。

大山ら（新潟大）⁷⁾は、ダイズにおける窒素の転流について検討している。硝酸前処理、培地キャリアー硝酸の濃度、培地への通気などが、¹³NO₃⁻の移行を変動させることが明らかにされている。また、根粒着生の影響、アルミホイルや透明ビニールで包んだ葉での¹³Nの著しい移行阻害などの検討結果から、硝酸からの窒素の葉身への初期移動は、蒸散に依存する部分が多いと推定されている。¹³Nは、窒素の移動と分布を経時的に観察するのに有効であり、定量的解析に適している¹⁵Nとの併用により、窒素の動態研究がさらに発展するものと期待される。

5. おわりに

植物用のポジトロンイメージング装置の開発により、生きた植物体内における物質の移行をほぼリアルタイムで可視化できるようになった。PETIS法による計測は、サイクロトロンによるポジトロン放出核種の製造、標識化合物の合成、植物への供給、計測・解析といった一連の作業とそのための装置や人員が不可欠であり、現在のところ原研・高

崎研でのみ実施可能である。原研-大学プロジェクト共同研究は、このような限られた条件下で研究を効果的に進める上で、重要な役割を果たしている。今後、研究が進展し、PETIS法が植物研究の重要な一手法として確立されることを期待する。

なお、計測技術の開発などに協力して頂いている浜松ホトニクス（株）、ポジトロン放出核種の製造及び標識化合物の合成を担当して頂いている原研・アイソトープ開発室をはじめとする関係者各位に、心より謝意を表します。

文献

- 1) 鳥塚莞爾監修: クリニカルPET、先端医療技術研究所 (1997)
- 2) Kume, T., Matsuhashi, S., Shimazu, M., Ito, H., Fujimura, T., Adachi, K., Uchida, H., Shigeta, N., Matsuoka, H., Osa, A. and Sekine, T.: *Appl. Radiat. Isot.*, 48, 1035-1043 (1997)
- 3) 内田博、大村知秀、鈴木寿博、辻淳憲、山下貴司、藤村卓、松橋信平、久米民和：放射線と産業、No. 80、p.6 (1998)
- 4) Ishioka, N. S., Matsuoka, H., Watanabe, S., Osa, A., Koizumi, M. and Sekine, T.: *Synthesis and Applications of Isotopically Labelled Compounds 1977*, (Heys, J. R. and Melillo, D. G. eds.), p.669, Wiley, Chichester (1998)
- 5) 中西友子：放射線と産業、No. 80、p.21 (1998)
- 6) 松波寿弥、有馬泰絃、渡邊浩一郎、松橋信平、石岡典子、内田博、久米民和：第35回理工学における同位元素研究発表会要旨集、p.6 (1998)
- 7) 佐藤孝、大竹憲邦、大山卓爾、松橋信平、石岡典子、久米民和、内田博：第35回理工学における同位元素研究発表会要旨集、p.5 (1998)



JP0150025

JAERI-Conf 2000-008

2.6.2 イネ科植物における ^{11}C -メチオニンの動態

中西啓仁¹, Bughio Naimatullah¹, 石岡典子², 内田 博³, 辻 淳憲³, 松橋信平²,
長 明彦², 関根俊明², 久米民和², 森 敏¹

(¹ 東大院・農学生命科学, ²原子力研究所, ³浜松ホトニクス)

^{11}C -メチオニンの鉄欠乏(-Fe)オオムギ体内での移行を PETIS(positron emitting tracer imaging system) 法により測定した。切断葉から吸収させた ^{11}C -メチオニンはまず、葉基部の discrimination center へ移行し、その後、他の葉、特に新葉へ移行したが、根への移行はほとんどみられなかった。根から吸収を行った場合には、対照区(+Fe)オオムギでは discrimination center へ迅速に移行した後、葉への移行も観察されたが、鉄欠乏植物では地上部への移行はほとんど観察されなかった。これは、オオムギが鉄欠乏時に鉄獲得のために根より放出するムギネ酸の前駆体としてのメチオニンが地上部から供給されているのではなく、根の中でメチオニンサイクルを通して供給されていることを示唆するものである。

^{11}C -methionine Translocation in Barley

Hiromi Nakanishi¹, Naimatullah Bughio¹, Noriko-Shigeta Ishioka²,
Hiroshi Uchida³, Atsunori Tsuji³, Shinpei Matsuhashi², Akihiko Osa²,
Toshiaki Sekine², Tamikazu Kume² and Satoshi Mori¹

¹Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo,

²Japan Atomic Energy Research Institute, ³Hamamatsu Photonics Co.

^{11}C -methionine was supplied to barley plants through a single leaf or via the roots and real time ^{11}C movement was monitored using a PETIS. In Fe-deficient plants, ^{11}C -methionine was translocated from the tip of the absorbing leaf to the 'discrimination center' at the basal part of the shoot and then retranslocated to all the chlorotic leaves, while a negligible amount was retranslocated to the roots. In Fe-sufficient plants, methionine was translocated from the absorbing leaf to the discrimination center and then only to the newest leaf on the main shoot. A negligible amount was also retranslocated to the roots. Although, in Fe-sufficient plants, methionine translocation was observed from absorbing roots to shoots, in Fe-deficient plants, only a little amount was translocated from roots to shoots. In conclusion, methionine from the upper portion of a plant is not used as a precursor of mugineic acid under Fe-deficiency conditions.

Key words: barley, ^{11}C -methionine, discrimination center, Fe-deficiency, mugineic acid, PETIS, phytosiderophore, root

1. はじめに

石灰質土壌のようなアルカリ土壌では、鉄が不溶態となり、植物に利用されにくくなっている。このような鉄欠乏条件下では、オオムギなどのイネ科植物においては三価鉄のキレーターであるムギネ酸類が根で合成され、分泌される[1]。ムギネ酸類はメチオニンを出発材料として生合成される(図1)[2][3]。この「根でのムギネ酸合成のためのメチオニンがどこから供給されるのか」ということは、ずっと問題であった。ここでわれわれは、オオムギ体内でのメチオニンの移行を¹¹C-メチオニンを用いたPETIS(positron emitting tracer imaging system)法により明らかにした。実験に使用したオオムギは、コントロール条件(対照区)、鉄欠乏条件、鉄欠乏条件のものにコールドのメチオニンを与えて育てたもの、イオウ欠乏条件の4つである。これらに¹¹C-メチオニンを経葉あるいは経根吸収させ実験を行った。

なお、PETIS法の詳細については「放射線と産業」誌80号(1998年)特集「植物のポジトロンイメージング」を参考にしていただきたい。

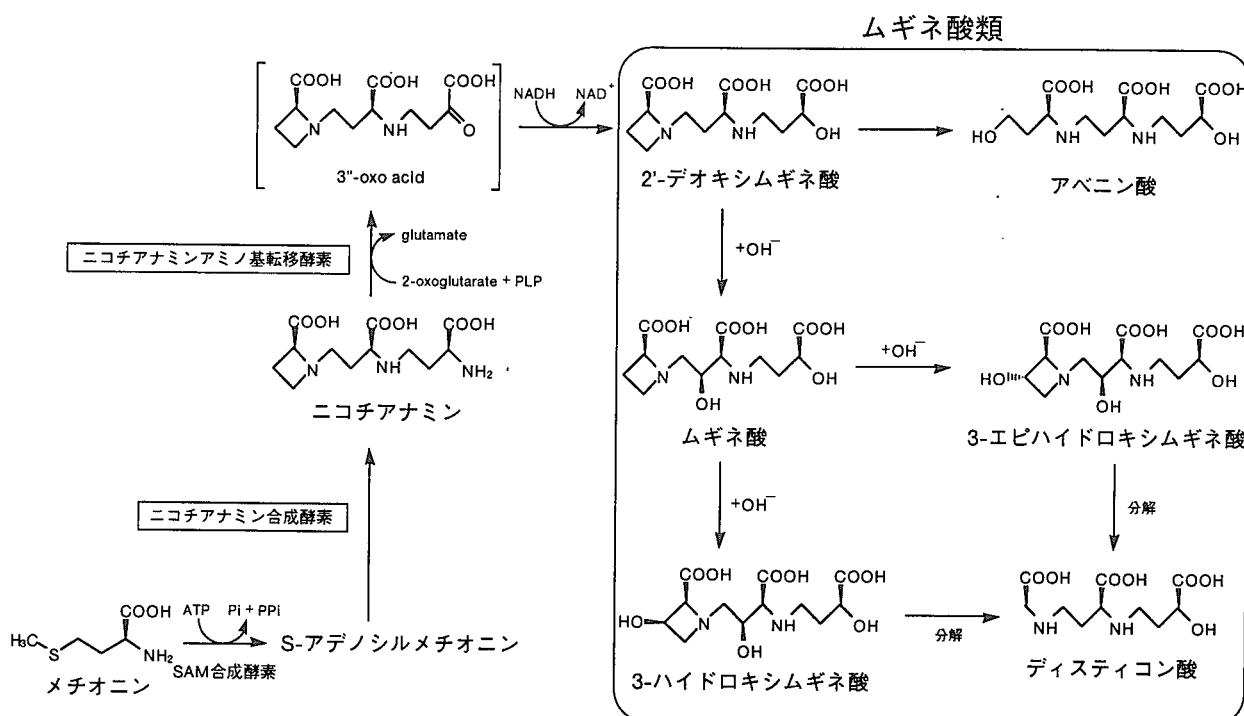


図1. 鉄欠乏イネ科植物の根におけるムギネ酸類の生合成経路。

2. 実験方法

播種後3~4週の水耕栽培したオオムギ(*Hordeum vulgare* L. cv. Ehimehadaka no. 1)を用いた。鉄欠乏処理は播種後3週間目より開始した。イオウ欠乏処理は実験の1週間前、メチオニン前処理は、鉄欠乏処理したものに実験の3日前よりコールドのメチオニンを水耕液に入れて行った。¹¹CO₂→¹¹CH₃I→¹¹C-メチオニンにより有機合成した¹¹C-メチオニンをオオムギの根あるいは切断葉より吸収させた。¹¹Cの移行はポジトロンイメージング装置により経時的に計測した。吸収実験の後、BAS1500により移行の結果も解析した。吸収の時間は1時間~1時間30分、BAS1500での露光(10~30分間)はPETIS観測後に行った。

3. 実験結果

3-1. 切断葉からの投与

図2に鉄欠乏オオムギを用いた場合の結果を示す。aが植物体、bがBASの像を示している。a、bの数字は対応する葉令を示している。切断葉から¹¹C-メチオニンを入れると、2~3分で図に矢印で示した葉基部の'discrimination center'(以下d.c.と略す)に到達した[4][5]。¹¹Cは5番の主茎の最新葉、1-2

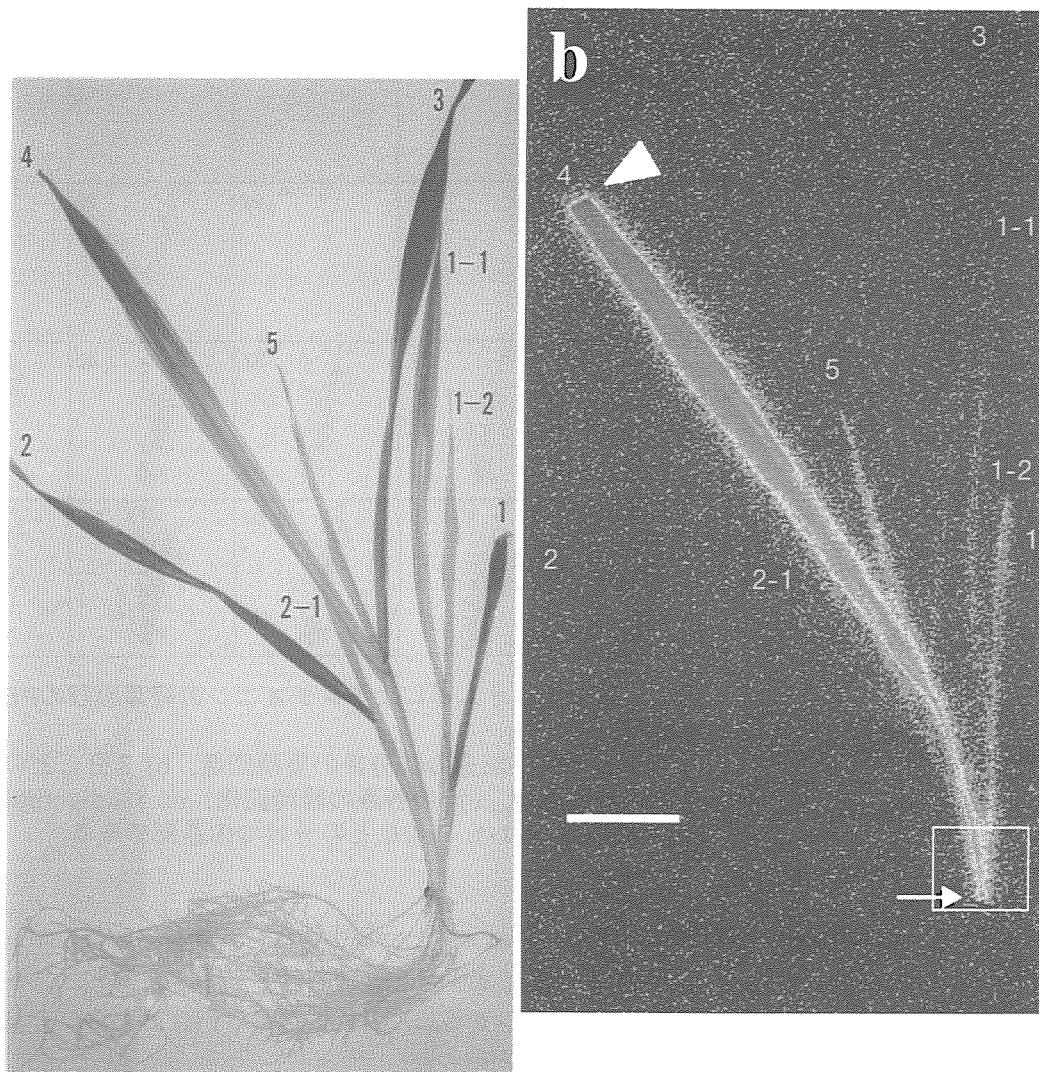


図2. 鉄欠乏オオムギにおけるメチオニンの経葉吸収.

a) 植物体, b) BASによるイメージ. 1, 2, 3葉には全く転流していない. 5, 1-1, 2-1などの新葉に転流している. 根には全く転流していない. 矢印で示した部位が discrimination center.

で示した第1分けつの最新葉などに多く移行した. これらの部位はもっとも強く鉄欠乏クロロシスを呈している部分である. 一方, 1, 2, 3で示した主茎の古い葉には全く移行しなかった. 根には投与後150分経っても¹⁴Cは移行しなかった. このd.c.周辺の四角で囲った部分のPETIS法での画像を図3に示す. 図3bは実験を始めてから3分ごとの画像で, 約19分目あたりから像が検出された. 図3aは60分間の画像の集積像である. 図3cは図3aで示した1, 2, 3, 4各部位の放射能の経時的な値をグラフにしたものである. カーブ3, 2, 1は主茎であり, カーブ1がd.c.で, カーブ4が第1分けつの強くクロロシスを示している最新葉である. ¹⁴C-メチオニン投与後19分目から放射能がd.c.を経由した後, カーブ4に約25分め頃から徐々に移行していた. コントロールオオムギの場合には, 葉の先端から10分以内にd.c.へ移行したが, 全体の葉への移行性が悪く, 主茎の最新葉にのみ移行した. 根への移行も観察されなかった[6].

3-2. 経根吸収

3つの実験の結果を以下に示す. 1) 鉄欠乏オオムギとコントロールオオムギとの比較, 2) 鉄欠乏オ

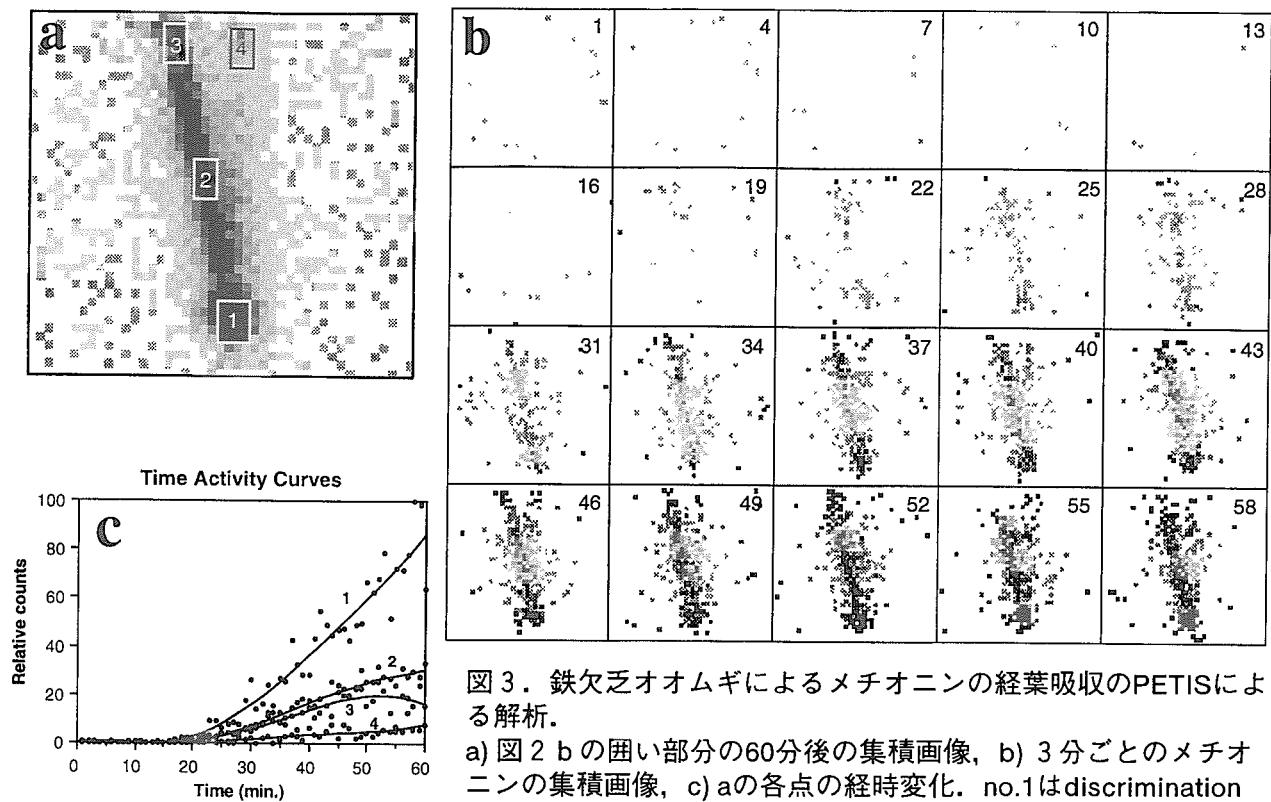


図3. 鉄欠乏オオムギによるメチオニンの経葉吸収のPETISによる解析。

a) 図2 b の囲い部分の60分後の集積画像, b) 3分ごとのメチオニンの集積画像, c) aの各点の経時変化. no.1はdiscrimination center, no.4は1-1, 1-2などの分けつの基部である。

ムギと¹¹C-メチオニン吸収実験の3日前からコールドのメチオニン処理をした鉄欠乏オオムギとの比較, 3) 根のメチオニン濃度を下げるために実験前1週間イオウ欠乏処理を行ったオオムギとコントロールオオムギとの比較の3つである。合成した¹¹C-メチオニンを等量に分け, 2台のPETIS装置にそれぞれセットした2つの区の植物に同時に投与し, 実験・測定を開始した。

(1) コントロールオオムギ(control)と鉄欠乏処理オオムギ(-Fe)との比較(図4)

図4 b, dは根からの吸収のBASの像である。90分間PETIS法で測定した後, 20分間BASで感光させた。コントロールオオムギでは, 最新葉を最大としてほぼすべての葉に¹¹Cが移行したのに対して, 鉄欠乏処理では大部分が根にとどまり, 地上部への移行はわずかであったことがわかる。図7 aに示したPETISによるd.c.への集積の様子を見ると, コントロール, 鉄欠乏ともに吸収直後のd.c.への移行は迅速であるが, その後の移行の量に大きな違いがあることがわかる。鉄欠乏処理ではコントロールの約16%にまで低下している。コントロールオオムギでは根でのメチオニンは十分に足りているのに対して, 鉄欠乏オオムギでは根中のメチオニンがおそらくはムギネ酸合成に使われているために, 地上部への移行はみられなかつたものと考えられる。

(2) 鉄欠乏オオムギ(-Fe)とメチオニン前処理したオオムギ(-Fe+Met)との比較(図5)

鉄欠乏処理では¹¹C-メチオニンの地上部への移行はほとんどみられなかつたのに対し, 鉄欠乏処理を行ったものに¹¹C-メチオニン吸収実験3日前からコールドのメチオニンを与えておいたものでは, ¹¹C-メチオニンの地上部への移行がみられた。すなわち, あらかじめ吸収させておいたコールドのメチオニンが根でのメチオニン不足をある程度補い, 余った分を地上部へと転流させているようである。d.c.への量も1.5倍増化した(図7 b)。

(3) イオウ欠乏オオムギ(-S)とコントロールオオムギ(control)との比較(図6)

根内のメチオニン濃度を下げるためにコントロール栽培の水耕液からイオウを除いたもので1週間培養を行い, 実験を行った。¹¹C-メチオニンを与えると, 吸収した根でまずメチオニンが利用され, 地上部への移行は減少した。この場合のd.c.への蓄積は約40%にまで減少した(図7 c)。

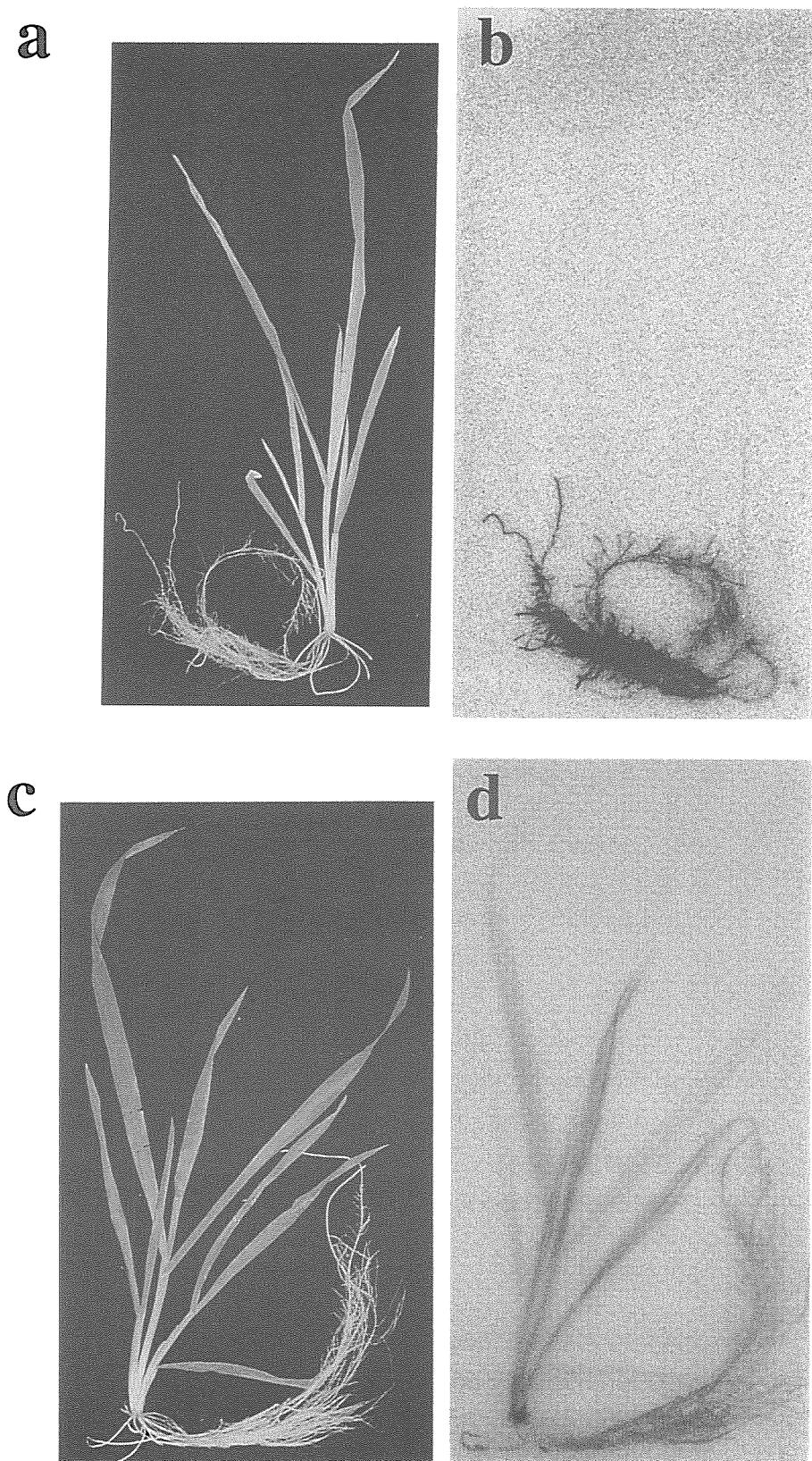


図4. 鉄欠乏オオムギへの経根吸収実験。
a,b) 鉄欠乏オオムギ, a:植物体, b:BASによるイメージ
c,d) コントロールオオムギ, c:植物体, d:BASによるイメージ

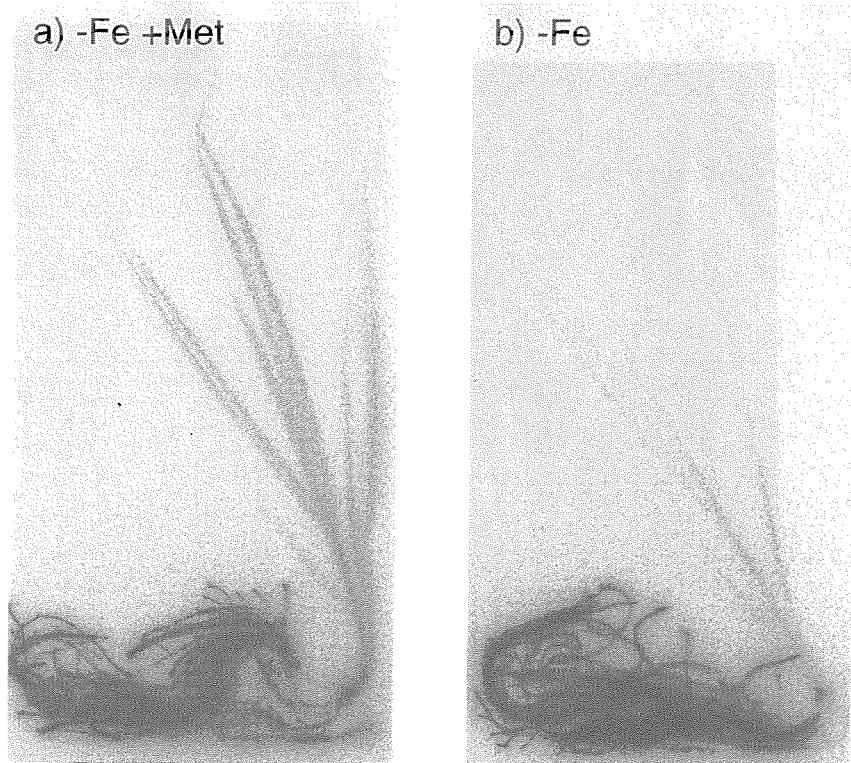


図5. 鉄欠乏オオムギをメチオニン前処理した時の
 ^{11}C -メチオニンの経根吸収.
a) メチオニン前処理, b) 鉄欠乏処理のみ.

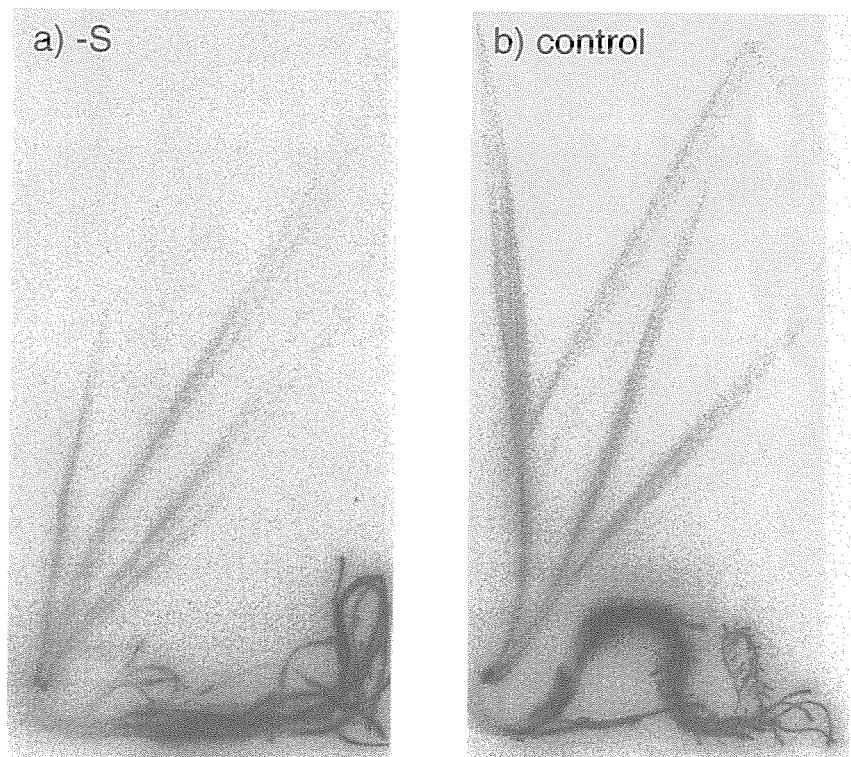


図6. 硫酸欠乏オオムギでの ^{11}C -メチオニンの経根吸収.
a) 硫酸欠乏理, b) コントロール.

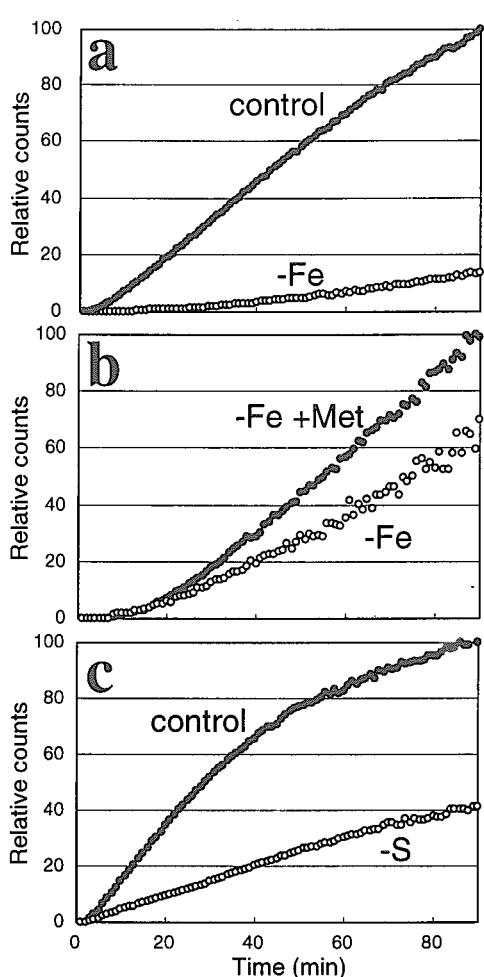


図7. 図4, 5, 6で示した各処理における discrimination centerでの放射能の経時変化。
a) 鉄欠乏処理,
b) 鉄欠乏処理+メチオニン前処理,
c) 硫酸欠乏処理。
グラフは各区での最大値を100として示した。

以上の3つの実験の結果から、根内のメチオニン濃度に応じて、地上部へのメチオニンの供給量が決定されていることがわかった。また、鉄欠乏処理が根内のメチオニン濃度を劇的に減少させていることから、鉄欠乏条件下ではムギネ酸合成のためのメチオニンの要求量が非常に大きいことがわかった。

4. 結論

以上の結果をまとめると、以下のようなになる。
①オオムギのd.c.には経根吸収、経葉吸収いずれの場合にも、もっとも急速に¹¹C-メチオニンが取り込まれた。ここはイネ科植物体内でもっとも活発に代謝および転流が行われている部位と考えられる。
②経葉吸収の場合、鉄欠乏条件下ではクロロシスの葉に優先的に¹¹C-メチオニンが取り込まれた。クロロシス新葉では鉄欠乏ストレスの結果、エチレンが多量に発生しているのかもしれない。なぜなら、メチオニンはエチレンの前駆体でもあるからである[7][8]。鉄欠乏処理の有無に関わらず、¹¹C-メチオニンは地上部から根部へはほとんど移行しなかった。
③根部から地上部への¹¹C-メチオニン移行は根部内のメチオニンの要求量に応じて変化していた。鉄欠乏処理オオムギでは根部からのメチオニンは地上部へはほとんど移行せず、根でのメチオニンの要求量が非常に大きいことがわかった。したがって、根部のムギネ酸合成の前駆体としてのメチオニンは地上部からではなく、根内でYang Cycle(メチオニンサイクル)を介して供給されている[9]。
④本実験は高等植物のアミノ酸転流に関して世界で最初の動的な像を示したものである。

参考文献

- Takagi S (1976) Soil Sci Plant Nutr 22: 423.
- Mori S, Nishizawa NK (1987) Plant Cell Physiol 28:1081.
- Shojima S, Nishizawa NK, Fushiyama S, Irifune T, Mori S (1990) Plant Physiol 93: 1497.
- Mori S (1998) Iron transport and storage in microorganisms, plants and animals. Sigel A, Sigel H (eds), vol. 35 of Metal Ions in Biological Systems. 216.
- 稻学大成1巻(形態編) p.99 農文協.
- Nakanishi H, Bughio N, Matsuhashi S, Ishioka SN, Uchida H, Tsuji A, Osa A, Sekine T, Kume T, Mori S (1999) J Exp Bot (in press).
- Yang SF, Hoffman NE (1984) Plant Physiol 35: 155.
- Morgan PW, Hall WC (1962) Physiologia Plantarum 15: 420.
- Ma JM, Nomoto K (1993) Plant Physiol 102: 373.



JP0150026

JAERI-Conf 2000-008

2.6.3 植物体内心における窒素の長距離移行のリアルタイム解析

林 浩昭

東京大学大学院農学生命科学研究科応用生命化学専攻
植物栄養・肥料学研究室

抄録 植物根より吸収された窒素は、維管束系を通じて器官間移行している。根から吸収された窒素は導管により地上部へ運ばれ、葉の中でアミノ酸やタンパク質に合成され利用される。そして、葉の中で合成されたタンパク質は一旦アミノ酸まで分解され、筛管を通じて他の葉や貯蔵器官へ運ばれていく。

このような植物体内での窒素移行がどのように起こっているのかあるいはこの移行過程にはどのような制御機構が存在するのかを知ることは、植物の窒素利用効率を上げる意味からも非常に重要である。本研究では、 ^{13}N と ^{15}N を利用し植物体内での窒素の移行の様子をリアルタイムで測定しようとするものである。特に、 ^{13}N に関しては、植物用に開発されたポジトロンイメージング装置により短時間の窒素の動きを可視化した。 ^{15}N を用いた実験では、葉からの窒素の移行過程を、筛管内を流れる液を連続的に直接採取し、その ^{15}N 濃度を求めることにより明らかにした。いずれの実験からも、植物体内では非常にダイナミックな窒素の移行が起こっていることが示された。

Real-time analysis of nitrogen translocation in plants

Hiroaki Hayashi

Dept. Applied Biological Chemistry,
Graduate School of Agricultural and Life Sciences,
The University of Tokyo

Abstract:

Nitrogen absorbed by roots is transported to the leaves through xylem vessels and then retranslocated to the new leaves, such as root and storage organs through sieve tubes. It is very important to know how this nitrogen movement occurs in the plants and what mechanisms are involved in controlling this movement in order to increase the efficiency of fertilizer.

In this experiments, ^{13}N and ^{15}N was used to detect the nitrogen circulation in plants, in combination with the technique for positron detection in real time and for collection of

sap in sieve tubes and analysis of ^{15}N in it. By using ^{13}N , nitrogen movement from root to shoot was analyzed within 10 min after ^{13}N was applied to the roots. On the other hand, nitrogen retranslocation through sieve tubes was detected by the analysis of ^{15}N in the phloem sap over 6 hrs. All data suggest the dynamic translocation of nitrogen in rice plants.

Key words: ^{13}N , ^{15}N , Nitrogen, Phloem, Positron, Rice, Translocation, Xylem

はじめに

高等植物の成長にとって、低濃度存在する土壤中の硝酸イオンを効率良く吸収し、これを植物体各所に分配することは、非常に重要なことである。根より吸収された窒素化合物は、高等植物の通導組織である維管束内の導管により、地上部の必要部位へまず分配される。硝酸イオンを吸収している植物では、窒素は、硝酸イオンの形態で、導管を通じて地上部へ送られる。導管から積み降ろされた窒素化合物は、葉の葉肉細胞内へ取り込まれアミノ酸を経て、様々なタンパク質や、生体成分に代謝されていく。一方、葉の細胞で代謝された窒素化合物は、アミノ酸まで分解され維管束内の篩管により再び成長途上にある葉や根、貯蔵組織へと運ばれていく。つまり、根より吸収された窒素は、植物体内で何度も再利用されながら、最終的には貯蔵組織へと運ばれていく事になるのである。このような窒素の動きをより短時間で詳細に明らかにするためには、放射性同位元素である ^{13}N を用いた解析、その中でもリアルタイムでの窒素の移動の可視化が重要になってくる。

本研究では、最近開発された植物用PET⁽¹⁾をもちいて短時間の窒素化合物の移行の可視化を行ったものである。また、定量的な研究のためには実際に植物体内の導管や篩管内を流れている液（導管液、篩管液）の採取とその分析が必要になってくるが、特に篩管液採取とその ^{15}N 分析の組み合わせによる植物体内窒素移行の解析⁽²⁾と植物用PETによる解析を比較しながら、植物体内の窒素の移行の様子を述べてみたい。

方法

本研究では、日本で最も重要な作物であるイネを植物材料として選び、吸収された窒素のイネ体内での移行の様子をリアルタイムで追跡することおよび移行の程度を明らかにすることを目的としている。

原子力研究所高崎研究所のTIARA-AVFサイクロトロンにより、 $^{16}\text{O}(\text{P},$

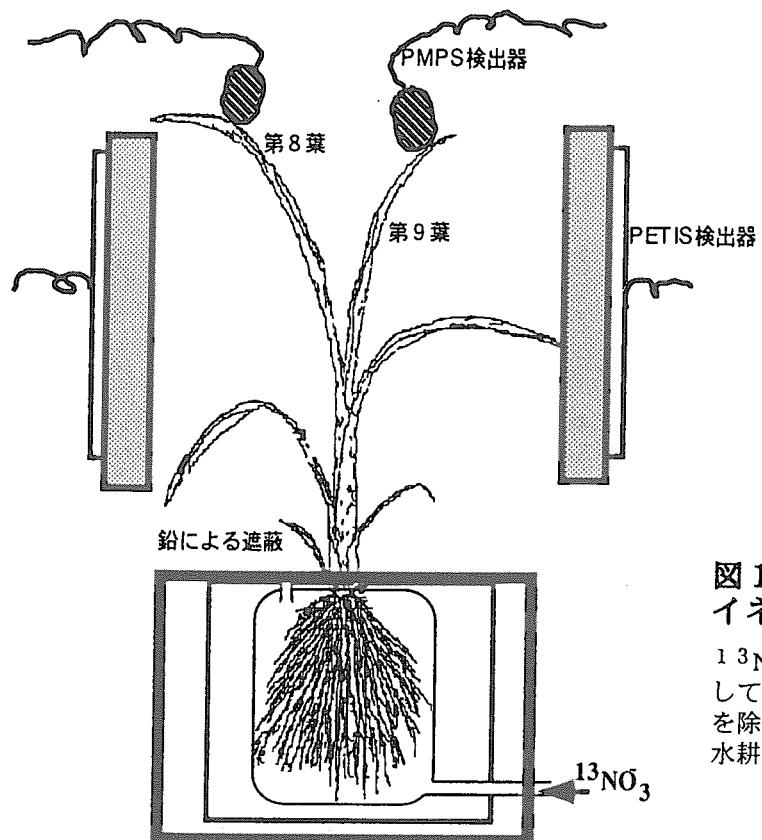


図1 PETISとPMPSによる
イネ体内の ^{13}N 移行測定の様子

^{13}N は硝酸イオンの形で根に水耕液として与えた。吸収開始後10分で、 ^{13}N を除き、通常の硝酸イオン(^{14}N)を含む水耕液にシリングジを用いて交換した。

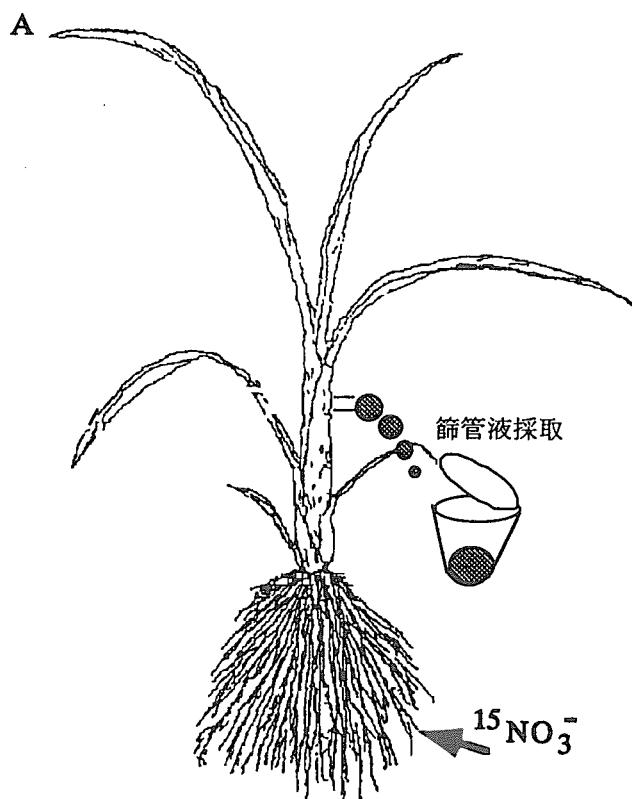


図2 ^{15}N を用いた硝酸イオン
吸収実験と筛管液採取の模式図

A: 筛管液はトビイロウンカの切断口針より採取可能である。筛管内は、陽圧であり、口針切断により自然に筛管液があふれてくる。得られた筛管液は、 $0.2\text{--}0.5\mu\text{l}$ ずつ採取し、そのまま発光分光法による ^{15}N の分析サンプルとした。

B: 筛管液を吸汁しているトビイロウンカ。体長は約7mm。口針をレーザーメスで焼き切ると切り口より筛管液があふれ出てくる。

α)¹³N反応により作り出された¹³NO₃⁻は、イオン交換カラムにより精製して用いた。50—100MBqの¹³NO₃⁻を5mlの水耕液に混ぜ、イネ (*Oryza sativa var Kantou*) に吸収させた。

窒素源としてアンモニウムイオン (0.71mM)のみを与えて水耕栽培し、地上部が約40センチメートルほどに成育したイネ (9葉期) を¹³N吸収実験の開始8時間前より窒素源として硝酸イオン(0.71mM)のみを与えたて実験に用いた。なお、他の必須元素は最適濃度で与えられている。また、硝酸イオンを与えることで根での硝酸イオン吸収のためのトランスポーターが誘導される。吸収液には窒素源として硝酸 (0.71mM) のみを含むものを用い、これに¹³Nでラベルした硝酸イオンを加えて、イネに吸収させた。

図1に示すような¹³N吸収容器にイネを入れ、ポジトロンイメージング装置 (PETIS) とポジトロン多点検出装置 (PMPS) を用いて¹³Nでラベルした硝酸イオンの移行を測定した。PETISでは¹³Nを根に与えてから30秒ごと、30分間イメージを、PMPSでは15秒ごと30分間データを取得した。PETISによる計測は、第7葉、第8葉、第9葉の分蘖部が測定できるように、また、PMPSは第8葉と第9葉の先端近くが測定できるようにセットした (図1)。

¹⁵Nの移行を測定する実験では、硝酸イオンを窒素源として成育させた8—9葉期のイネに¹⁵Nでラベルした硝酸イオン (99.8atom%)を窒素源として与えた。¹⁵Nを与え始めてから8葉の葉鞘より篩管液を採取した。篩管液の採取は、図2に示すように、篩管液を吸汁しているトビイロウンカの口針を切断し、その切り口より流れ出てくる液を採取することにより行った。採取量は1時間当たり1μlと極少量であるが、この方法により、篩管内を流れている液を他の細胞の汚染を極めて少なく採取することができる。篩管液内には、200mM程度のアミノ酸が窒素として含まれており、0.2-0.5μlの篩管液で、その¹⁵N濃度を測定することが可能である。尚、篩管液内に含まれる硝酸イオン濃度は数mM程度であり、篩管内窒素の大部分はアミノ酸が占める。¹⁵N濃度は発光分光法で測定した。

結果および考察

図3にイネの根より取り込まれた¹³Nの地上部への取り込みの様子をPETISにより可視化したものを見た。吸収開始後3分以内には、ほぼ8葉の先端付

近まで ^{13}N が到達していることが分かる。その後、葉の ^{13}N 量は、時間の経過と共に増加していることが分かる。この実験では、20分間 ^{13}N を与え続けた。20分程度の移行追跡では、根から葉への導管による一時的な移行の様子を見ていると思われる。導管内の窒素化合物は、主として硝酸イオンであり、葉に送られた硝酸イオンは今後還元され、タンパク質などへ代謝されていく。この図では、代謝された ^{13}N が篩管を通じて再移動する様子は捉えられていない。

図4には、10分間 ^{13}N を吸収させその後 ^{14}N を吸収させたときの ^{13}N の移行の様子をPETISおよびPMPSにより同時に測定した結果を示した。PETISによる分析の結果を部位別に数値化したものと同じ植物の8葉と9葉の先端付近をPMPSにより測定している。PETISでは、視野全体、葉の上部、葉の下部の三箇所の地点での放射能の変化を表わした。PMPSおよびPIPESともほぼ同様の傾向を示しているが、PMPSによる測定は、よりばらつきが少なくなっている。

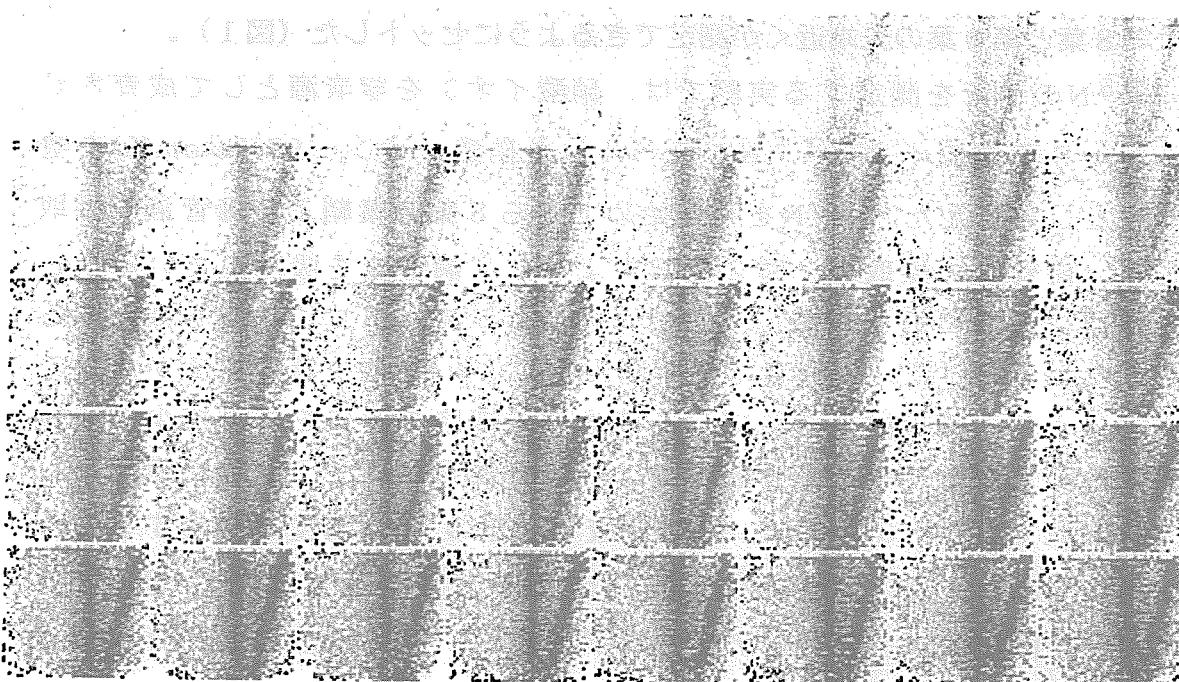


図3 PETISによる ^{13}N の植物体内の移行の画像化

硝酸イオン(0.71mM)を含む水耕液に ^{13}N でラベルした硝酸イオンを加え植物に与えた。30秒間にごとに放射能を積分し、それぞれを画像にした。20分間分、40枚の画像として時間経過の順に連続して表した。

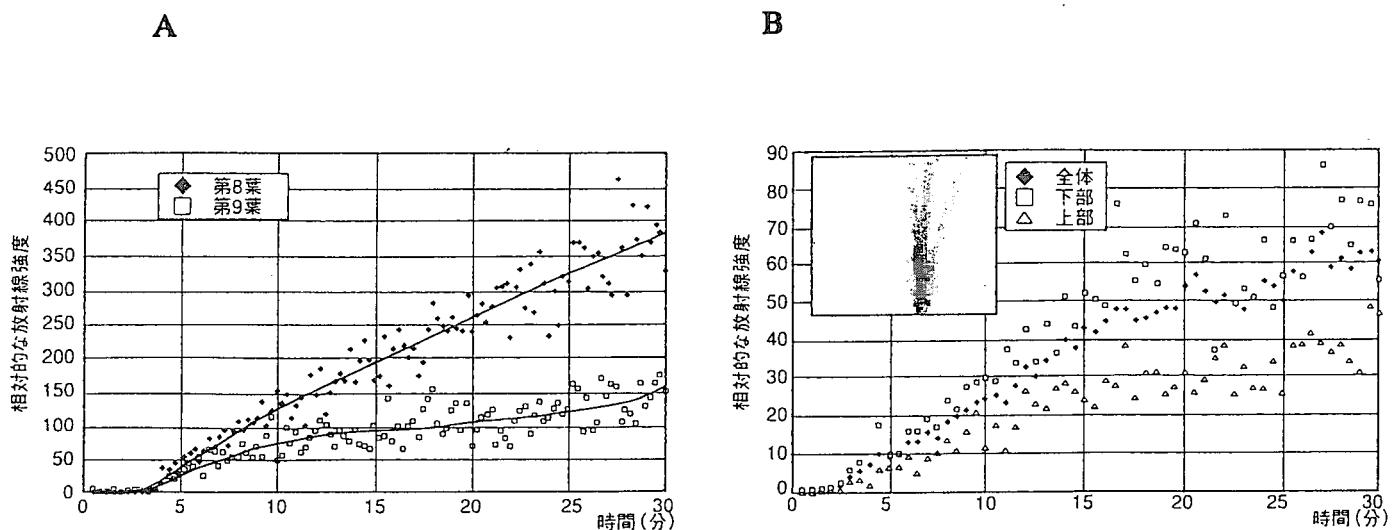


図4 ^{13}N の植物体内の移行のPMPSおよびPETISによるリアルタイム解析

A:PMPSによる ^{13}N のモニタリング。検出器は最大展開葉（8葉）の先端付近と展開途上にある新葉（9葉）の先端に設置した（図1）。

B:PETISによる ^{13}N のモニタリング。Aと同時に測定した。左上の囲みの中には30分間の積算値を計算し可視化した。◆は、画面全体の ^{13}N の変化を、□は第8葉の基部を、△は8葉の上部の ^{13}N の変化を計算し数値化した。

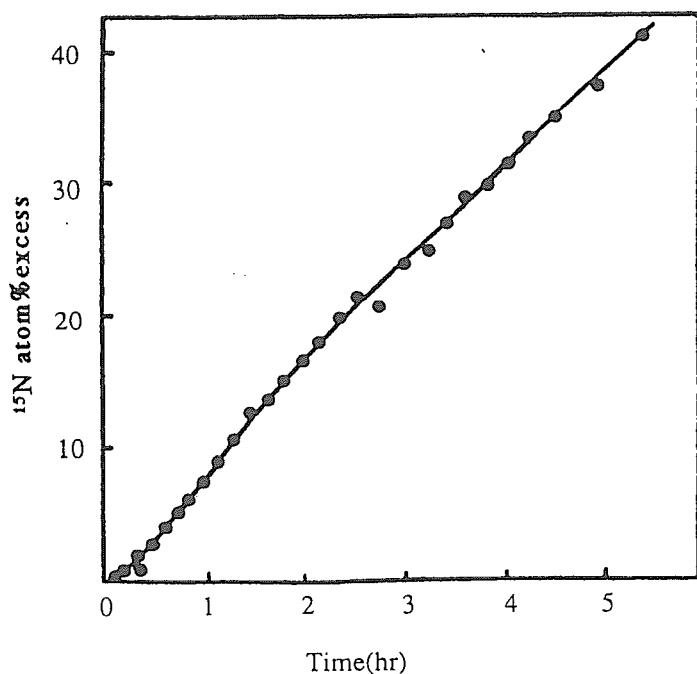


図5 ^{15}N の植物体内での移行の解析：篩管内の ^{15}N 濃度の変化⁽²⁾

^{15}N ラベルの硝酸イオンを根に与え始めてから篩管液の採取を始めた。

篩管液は同一地点より連続して6時間にわたって採取することができた。

両検出器とも、約3分で根より吸収した ^{13}N を葉で検出している。硝酸イオン(^{13}N)の移行を見てみると、完全展開葉である8葉には時間の経過と共にほぼ直線的に ^{13}N の量が増加している。この植物では、 ^{13}N の吸収時間は10分であり、その後は ^{14}N 一硝酸イオンを吸収させているが、8葉においては、10分以降も ^{13}N の増加が起こっている。それに比べて、新しい葉である9葉では、10分以降の ^{13}N の増加はほとんど起きていない。このことは、根より吸収された硝酸イオンが、最大展開葉である8葉に優先的に取り込まれていることおよび他の葉に取り込まれていた ^{13}N が8葉に再移行していることを示していると考えられる。吸収された窒素化合物は、硝酸イオンの形で地上部まで移行しそこでアミノ酸、タンパク質に代謝された後、再びアミノ酸の形で再移行する。8葉での ^{13}N 量の連続的な増加は、植物体内での窒素の移行が活発に起こっていることを如実に示しているといえる。

^{15}N を用いた実験においては、根より与えた ^{15}N は、ほとんどがアミノ酸の形に代謝されており(データーは示さず)、吸収開始後15分程度より、篩管内で ^{15}N の検出が可能であった。その後 ^{15}N 濃度は直線的に増加し、5時間後には約35 atom%excessになった(図5)。このことは、篩管内を流れている篩管液中の窒素の35%は、その前5時間以内に吸収された窒素であることを示しており、葉よりの窒素の再移行が、比較的短時間内に活発に起っていることが分かる。PMPSによる測定では、 ^{13}N を根より除いた後でも ^{13}N の蓄積が8葉で増することが見い出されているが、 ^{15}N の結果と考え合わせると、この増加は他の成熟葉より8葉への篩管による窒素転流の結果であると考えることができよう。

^{13}N と ^{15}N を用いた実験により、導管や篩管を通じた窒素の移行が、非常に活発であることを改めて確認することができた。また、生きたままの植物体を利用した研究として、これほど鮮明に窒素の移行および再移行の様子を明らかにした例は他には少ない。今後は、植物のより微妙な生理状態の変化に応じた窒素移行動向の変動解析や養分の吸収移行に異常を持つ変異株の解析などを、PIPESとポジトロン放出核種を用いて行っていくことがますます重要になってくると考えている。

4. おわりに

ポジトロンイメージング装置(PETIS)による ^{13}N 移行の大まかな把握と可

視化を行った後に、必要部分の精密な分析が、PMPSによって行なうことにより、非常に短時間の窒素化合物の移行状況を調べることができるのは画期的なことである。窒素は植物にとって極めて重要な元素であり、移動することができない植物は、利用できる限られた窒素を有効に植物体内で何度も利用しながら、最大限に成長し次世代を残していく。今回の測定により得られた結果は、植物体内の窒素が、選択性をもって必要な箇所に優先的に移行していることを示している。

最後に、本研究を進めていくにあたっては、日本原子力研究所高崎研究所の久米民和氏、松橋信平氏、日本原子力研究所東海研究所の石岡典子氏をはじめとする日本原子力研究所の関係各氏、浜松ホトニクス（株）の内田博氏、辻淳憲氏には、本研究に対する全面的なご協力を頂いた。また、茅野充男東京大学名誉教授には、研究の立ち上げおよび遂行に大きなご支援およびご助言をいただいた。本研究は、原研一大学プロジェクト研究として行われている。関係各氏に深く感謝致します。

参考文献

- (1) T.Kume, S.Matsuhashi, M.Shimizu, H.Matsuoka, A.Osa and T.Sekine: *Appl.Radiat. Isot.* 48 (1997) 1035.
- (2) H.Hayashi, Y.Okada, H.Manoh, T.Kume, S.Matsuhashi, N-S.Ishioka, H.Uchida, and M.Chino: *Plant and Soil* 196 (1997) 233.



JP0150027

JAERI-Conf 2000-008

3. 放射線高度利用研究の展望

3.1 TIARAにおけるマイクロPIXE分析の展望

石井慶造、松山成男、杉本明日香、後藤敬一、井上淳一、室園慶介、濱野毅、山崎浩道、岩崎信

東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻

横田 聰

東北大学農学部植物環境応答実験施設

神谷富裕、酒井卓郎、西堂雅博、田中隆一

日本原子力研究所、高崎研究所、TIARA

内藤豊、及川将一

イオン加速器株式会社

約1ミクロン径のイオンビームを試料に照射するPIXE（: Particle Induced X-ray Emission）を用いると、ミクロン領域の微量元素分析を行なうことができる。これはマイクロPIXE法と呼ばれ、例えば細胞内の元素の空間分布を画像化できるので、生物、医学の分野の発展において強力なツールとして期待されている。東北大学と高崎原研は、これまで、元素分布画像化システム、大気中マイクロPIXEなどマイクロPIXE法の基礎技術開発を行なってきた。そして、その研究成果のもとに、大学・原研プロジェクト共同研究が来年度よりスタートするはこびとなった。癌細胞の放射線とアポトーシスの研究、有害エアロゾルのマイクロ分析の研究などを通して、ビームによる試料損傷低減、X線検出器システムの大立体角化などの基礎技術に加えて、マイクロPIXEの応用に必要な他の技術についての開発研究が今後行なわれる。

Development of Micro-PIXE Analysis at TIARA

K.Ishii, S.Matsuyama, A.Sugimoto, K.Goto, J.Inoue, K.Murozono, T.Hamano, H.Yamazaki, and S.Iwasaki
Department of Quantum Science and Energy Engineering, Graduate school of Engineering, Tohoku University,

S.Yokota

Germfree Plant Laboratory, Faculty of Agriculture, Tohoku University

T.Tomohiro, T.Sakai, M.Saido and R.Tanaka

Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment, JAERI

Y.Naito and S.Oikawa

Ion Accelerator Co. Ltd.

By making use of PIXE (:Particle Induced X-ray Emission) method in which a sample is irradiated by ion beams of the spot size of about 1 μm, trace elements in a micron-meter region of the sample can be analyzed. This method is called micro-PIXE, and is expected to be a powerful tool for biology and medicine. Tohoku university and Takasaki JAERI have developed basic techniques on micro-PIXE, for examples, imaging technique of elemental distribution and micro-PIXE analysis in air. On the basis of these fruits, a project of collaboration between Tohoku university and Takasaki JAERI starts April 1999. Basic techniques such as reduction of beam irradiation damage, enlargement of the solid angle of x-ray detection system and other techniques required for application of micro-PIXE will be developed through studies in apoptosis of tumor cells induced by irradiation and micro-analysis of noxious aerosol.

Key words: micro-PIXE, micro-beam, PIXE, Trace element, in-air PIXE, micro-PIXE in air

1. はじめに

数MeV/aamuのエネルギーの重荷電粒子ビームをミクロン径にしたマイクロビームは、様々な目的に利用できる。例えば、マイクロイオンビームを試料に照射し発生する特性X線を測定すると、ミクロン領域の元素分析を行なうことができる。これはマイクロPIXE法と呼ばれ、その技術はこの十年、長足の進歩を遂げ、細胞内の元素の空間分布を画像化できるまでに至っている。

東北大学量子エネルギー工学専攻と原研高崎研TIARAは、これまでこのマイクロPIXE法の基礎技術開発を行なってきた。そして、その研究成果のもとに、応用技術開発とマイクロPIXEの応用研究を原研・大学プロジェクト共同研究として来年度よりスタートするはこびとなった。ここでは、これまでのマイクロPIXE技術の開発研究の成果と今後の原研・大学プロジェクト共同研究の内容について紹介する。

2. マイクロPIXEシステム

重荷電粒子マイクロビームの開発の歴史は古く、1950年代まで遡る¹⁾。重荷電粒子マイクロビームシステムは、電子顕微鏡の電子銃を静電加速器にして、収束レンズを強収束4極電磁石または超伝導ソレノイドにしたものである。実用的な重荷電粒子マイクロビームシステムが開発された²⁾のは1980年頃である。そして、同時期に開発された超微量元素分析法であるPIXE法の発展とともにその技術も発展した。現在では、1ミクロン以下のビームスポットで、ビーム強度が数100 pA/ μm^2 のマイクロビームが実現されている。³⁾

ここで、PIXE^{4, 5, 6)}とは、Particle Induced X-ray Emission（粒子線励起X線）のことであるが、重荷電粒子をバン・デ・グラーフ加速器などの静電型加速器または、サイクロトロンなどの加速器で数MeVのエネルギーに加速して試料に照射し、その結果、発生する元素固有のエネルギーを持つX線つまり特性X線を測定して、元素分析する方法を今では一般にPIXEと言っている。重荷電粒子を用いなくても電子を数10 keVに加速して試料に照射しても特性X線が発生して元素分析できるが、数MeVの重荷電粒子衝撃と数10 keVの電子衝撃では、特性X線の発生断面積は同定度であるが試料からの連続のバックグラウンドの強度が全く異なる。重荷電粒子線の作る連続のバックグラウンドの強度は、電子線のものの約1000分の1である。⁵⁾ PIXEが高感度であるのはこの理由である。PIXEに必要な重荷電粒子のエネルギーは、それほど高くなく数MeVである。陽子ビームの場合は、その最適エネルギーは理論的に3MeV近傍であることが予想されている。⁷⁾ このPIXEによる元素分析法は、ppmより高い感度で分析でき、しかも、同時に多元素分析できるなど非常に優れているので、医学、歯学、生物学、環境汚染、大気汚染、考古学、文化財調査、資源探索、犯罪走査、半導体や金属学、宇宙塵の研究等に幅広く応用できる。

通常のPIXEでは、ビームスポットは2~3 mmで行なわれているが、ビームのサイズを1ミクロン以下にしたマイクロイオンビームでは、例えば、細胞中の微量元素の分布を調べることができる。これは、マイクロビームを試料上を走査しながらX線スペクトルを収集して元素の空間分布画像を得る方法でマイクロPIXE⁸⁾と呼ばれている。マイクロPIXEに基づいた微量元素分析法は非常に優れているので、細胞内での新陳代謝を調べることによる病原因の解明または診断など医学、生物学において強力な研究手段として、現在、積極的に応用されつつある。また、鉱物の元素分布画像より鉱物資源の探索などにも応用されている。

マイクロビームのスキャンは、電場のほうが電磁石によるスキャンより容易である。図1は、我々が開発したマイクロPIXEデータ収集システムである。⁹⁾ 本システムは、ビームを連続スキャンさせてX線のイベントごとにそのX線を発生させたビーム位置を読むようになっている。このため、ビームの量が時間的に変化しても、元素分布画像に影響を与えないし、試料の冷却時間があるため試料損傷を幾分かは和らげる。ただし、この方法では、フレーム収集する場合は、画素の数×X線スペクトルのチャンネル数のメモリーが必要である。例えば、128×128画素の画像で各位置に512chのX線スペクトルを1chに4バイトのサイズで蓄えると、1試料のデータに33MBのデータメモリーを必要とする。そこで、本システムでは、リストモードでデータ収集できるようになっている。この場合は、イベントの数×(イベント番号、位置情報、エネルギー情報)となり、数万イベントの場合は、こちらの方がメモリーを必要としない。メモリーが自由に利用できなかった頃は、ビーム位置ごとにX線スペクトルを測定した。したがって、測定が終らないと元素分布画像は見れないし、また測定中に照射している場所としてない場所との間の歪みが生じたりする可能性があった。NaおよびF原子核などは、陽子ビームで衝撃すると γ 線を強く発生するのでこれらを測定して元素濃度分布を調べることができる。図1の我々のシステムは全部で8chのデータ入力をもつている。このため、試料から γ 線を測定して元素分析するPGF法およびラザフォード散乱および核反応

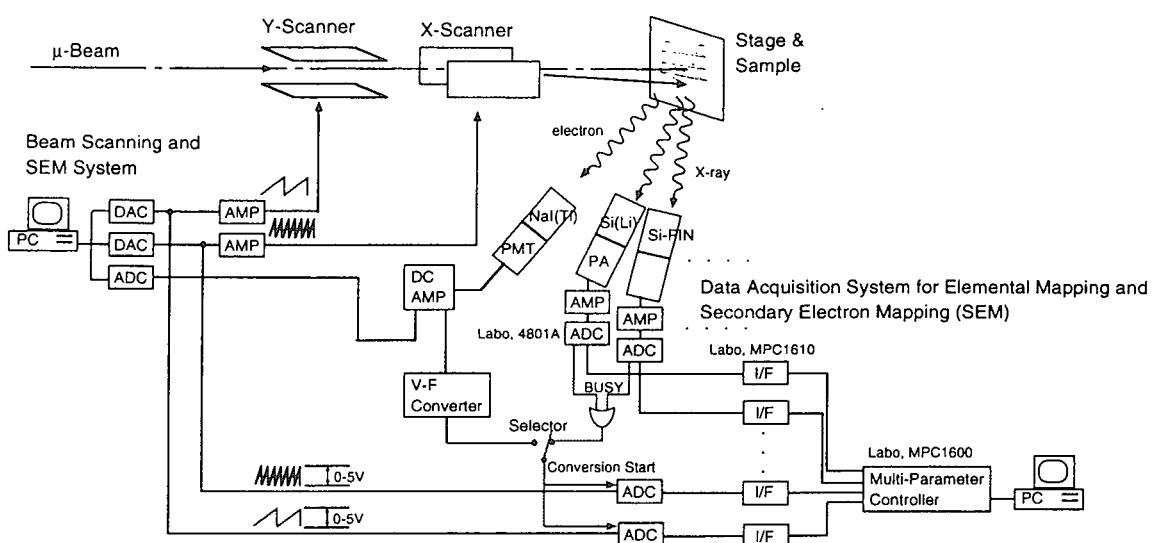


図1 マイクロPIXEデータ収集システム⁹⁾
生成荷電粒子の測定による元素分析法も同時に実行ができる。

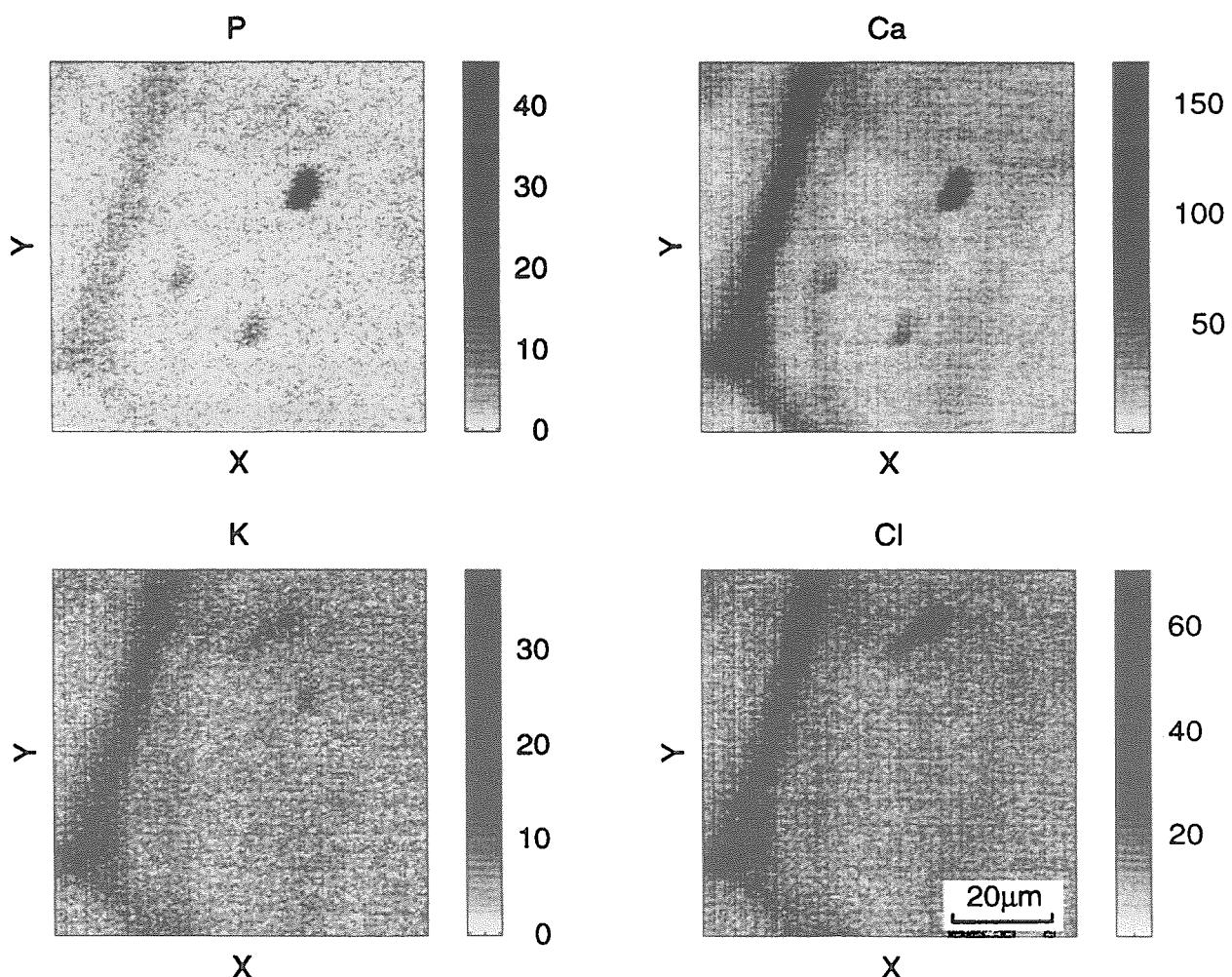


図2 紫露草の細胞のマイクロPIXE画像⁹⁾
図2は、高崎原研T IARAの2MeV、1ミクロン径の陽子マイクロビームを用いて本システムで測定

した紫露草の細胞の元素分布画像である。植物細胞の場合は纖維質であるため、比較的ターゲット作成が楽であるが、動物細胞の場合は、作成工程において工夫が必要とされる。例えば、細胞一つ々を分析できるようにするためには、電気泳動などによって細胞を組織から遊離させて凍結乾燥してターゲットにする。この場合、凍結乾燥の仕方によって細胞は縮んでしまい正しい形態画像は得られない。マイクロPIXEでは、液体窒素で直接凍結乾燥しないで、イソペンタンを介して細胞を凍結乾燥させて細胞の原形が変わらないようにしている。現在、動物細胞のマイクロPIXE分析がT I A R Aで進められている。

3. 大気中マイクロPIXE¹⁰⁾

通常のマイクロPIXEでは、試料は真空中でビーム照射される。真空での極度の局所照射では、試料の加熱、チャージアップなどにより、照射中に試料が破壊されてしまうことが多い。そこで、マイクロビームを大気中に取り出す技術が開発された。7.5ミクロンのカプトン膜により、真空から大気にビームを取り出す方法が検討された。ミクロン径のビームスポットにビームを照射するので、局所的加熱のためカプトン膜は、短時間で破壊されることが予想されたが、我々の実験結果から、1ミクロンスポットで2MeV、数10ピコアンペアの陽子ビーム照射に7.5ミクロンのカプトン膜は24時間以上の耐久性があることが分った。大気中マイクロPIXEでは試料は空気又は他のガスの中に置けるので、試料の交換は真空操作が要らなくなり、また冷却もできるようになった。さらに、ビームがガス中を通過するのでビームで生成される電荷がすぐ中和し試料のチャージアップ効果も無くなつた。

4. 原研・大学プロジェクト共同研究

本プロジェクトでは、当面、原研高崎研究所T I A R A、東北大学大学院工学研究科、東北大学大学院農学研究科、東北大学加齢医学研究所、東北大学医学部、岩手医科大学医学部、岩手医科大学サイクロトロンセンター、秋田大学教育文化学部、京都大学大学院エネルギー科学研究科の9研究グループが開発および応用研究を行なうが、技術開発および応用研究の進展に鑑みてさらに複数グループが今後参加することも考えられる。

技術開発としては、1) 試料そのまま状態での分析、試料の空気または稀ガス冷却など試料操作が自由にできる大気中マイクロPIXEの開発、2) 生の状態又は生きた状態での生体試料を分析するために大立体角でのX線検出により試料の損傷を極力低減できるマイクロPIXEシステムの開発、3) マイクロPIXE分析の領域設定のための光学顕微鏡等による試料形態の確認と試料のミクロン単位での移動システムの開発、4) 細胞サーチのためのマイクロPIXE用染色技術の開発、5) マイクロPIXE分析のための孤立細胞抽出方法の開発、6) マイクロPIXE分析のための凍結乾燥方法の開発、7) エアロゾル微粒子の構造解析を目指したマイクロPIXE分析技術の開発など大気マイクロPIXE分析システムとその応用技術に関するハードおよびソフトの開発研究を行なう。以上のマイクロPIXE技術開発研究の成果のもとに、細胞内での化学状態分析^{11), 12), 13)}を可能にするシステムの開発、細胞内での元素の3次元的濃度分布を与えるマイクロPIXE-CT¹⁴⁾の開発を更に進める。

これらの技術開発と平行して、放射線照射による細胞死の解明と放射線治療評価を目指してがん細胞のマイクロPIXE分析、心臓病病体生理機構の解明を目指して心筋細胞のマイクロPIXE分析、環境汚染物質の細胞内代謝解明のための微細藻類細胞のマイクロPIXE分析、大気中エアロゾルの動態・降雨洗浄機構の解明をめざしてエアロゾル微粒子のマイクロPIXE分析を行なう。

4. まとめ

様々な状態でのミクロン領域の元素分布がマイクロPIXEで自由自在に測定できるようになることによって、細胞の分析を中心とした生物、医学研究¹⁵⁾ばかりでなく、岩石の創成機構、岩石の探索など地質学への応用¹⁶⁾、原子炉材料研究への応用など、多くの分野への活発な応用が期待される。

参考文献

- 1) R.E.Zirkle and W.Bloom, Science, 117, 487(1953).
- 2) J.A.Cookson, Nucl. Instr. Meth., 165 477(1979).
- 3) F.Watt and G.W.Grime (eds.), Principles and Applications of High-Energy IOn Microbeams, Adam Hilger, Bristol (1987).
- 4) "PIXE", S.A.E.Johansson and J.L.Campbell, John Wiley & Sons, New York, 1988.
- 5)" PIXE分析法の基礎" 石井慶造、N M C C 共同利用研究成果報文集 3、9 (1995)
- 6)" PIXEによる微量元素分析" 千葉 廉 編、日本原子力学会誌、26卷、827 (1984) .
- 7) K.Ishii and S.Morita, Nucl. Instr. & Meth.in Phys.Res. B34, 209(1988).
- 8)" マイクロPIXEとその応用" 石井慶造、応用物理学会、放射線
- 9) S.Matsuyama et al., JAERI-Review 98-016,p 254(1998).
- 10) S.Matsuyama et al., to be published in IJPIXE.
- 11) R.L.Watson et al., Phys. Rev. Lett. 35, 254 (1975).
- 12) K.Ishii et al. Vacuum 39, 97(1989).
- 13) 李野由明 他、第16回PIXEシンポジウム予稿集、38 (1998) .
- 14) A.Saint et al., Nucl. Instr. & Meth.in Phys.Res. B75, 504(1993).
- 15)" バイオPIXEの現状" 、石井慶造、森田右、RADIOISOTOPES, 42, 579(1993).
- 16) S.Murao and S.H.Sie, IJPIXE, 5, 97(1995).

3. 2 パネルデスカッショニン：これまでの歩みと展望

パネラー：

司会 勝村庸介（東大）

原研 渡辺 宏（環境・資源利用研究部）、前川 洋（企画室）、関根俊明
(物質科学研究所)

大学 伊藤泰男（東大原総センター）、河出 清（名大）、関村直人（東大）

パネラーの発言要旨は次ぎのようであった。

勝村：パネルデスカッショニンの進め方についてパネラーと意見を交換したのであるが、未来を議論すべきであって過去の経緯を議論することは意味がないという意見もあったが、初めの考え方が現在どうなっているかを明らかにすることも意味があると考える。このプロジェクトを始めたのは原研と大学の研究者がお互いに刺激しあって良い研究成果を挙げようという発想であった。放射線高度利用プロジェクトの第一期（5年間）のTIARAによる実験の期間は約1年であったが、施設が完成する前に先行研究をスタートさせたことが一つの特徴であった。第2期以降のプロジェクトの期間として3年としたことは適当と考える。

渡辺：第一期に参加したが、この時期のプロジェクトの目的は、放射線高度利用研究計画の策定（昭和62年）から装置完成（平成4年）に向けて、ユーザーグループを組織し、意欲を持続させながら円滑に研究を開始できるようにすることであり、現在とは異なる状況があった。しかし、テーマの立て方は現在と変わっていないのではないか。

イオンビームによる生物影響では、放射線耐性の原因を明らかにするために1種類のバクテリアに研究材料を絞って、原研と4大学が、放射線耐性に関する各種因子の研究を分担した。5年間の集中的な研究で直接的成果を上げただけではなく、その後の研究に大きな影響を与えた。

河出：第一期から共同研究を進めて来ており、共同研究の進め方についてコメントしたい。

プロジェクト研究の魅力として次ぎの3点が挙げられる。

- ①大学では長年培った技術を原研の大型装置で応用することにより、成果を出しやすい。原研からの技術支援が得られるのも有りがたい。
- ②大学の使命である人材育成にとっても、世界的な研究の機会として学生に実体験が与えられた。
- ③イオンビーム研究者は、これまで分散して研究してきたが、TIARAといういわばセンターへ集合し、そこで人と人が競合しながら研究に従事できるようになった。

反省点は次ぎのようである。

- ①プロジェクト性を追求するには、大学側のまとまりを強める必要がある。
- ②共同研究への重点化、例えばマシンタイム、旅費が必ずしも十分ではない。また、新規テーマについては、特に重点的に配慮することが必要と思われる。
- ③継続性という点では、3年間は拘束期間と考えて継続させる配慮が必要と思われる。
- ④新規参入者に対するテーマ選定の公明性を確保し、他の人にも分かるように

スタートさせること。

- ⑤次期加速器計画などでは、早い段階から情報の提供、成果の発信を行い、マシンの計画に適確に反映させる必要がある。

関根：現在プロジェクト共同研究の専門部会幹事を務め、第一期から今日までオンライン同位体分離器(ISOL)を用いる核化学的研究とポジトロン放出核種を用いる植物機能研究に関わってきた立場からコメントしたい。

大学の人達と非常な意気込みで、ヨーロッパのセルンのISOLを意識してプロジェクト共同研究をスタートさせ、現在では国内で最も幅広く使用されているISOLになっている。

評価できる点は次ぎの通り。

- ①原研は大学の技術を使用できる。
- ②大学に教官や学生が参加する。
- ③他分野との融合により学際研究が実現する。

一方、大学に対する注文として

- ①目的の明確化、
- ②大学をまとめるリーダーが欲しい。

反省点として、

- ①原研は長期に安定したリーダーがいない。
- ②資金的なサポートが十分ではない。

伊藤：私は内藤奎爾、町末男氏らとともに、プロジェクト共同研究の立ち上げに関わった一人で、今までその運営に関わって来た。これまで研究面では内容的には変わっているが、その立脚している制度等の問題点は変わっていない。東大原子力研究総合センターから見た制度的な面について述べたい。

- ・ 大学側から見たプロジェクト共同研究は、原研施設共同利用の枠組みの中で運営されている。これは原研が外に対して開放している研究施設に対し、原総センターが利用料を支払って大学の人達が利用する制度であって、予算が認可されている。
一方、原研が制定した協力研究制度がある。これは前述の施設以外の施設も利用して、大学が原研の研究者と研究協力できる制度であるが、原研の研究課題に協力するものに限られている。これは次ぎに述べる事情による。
- ・ 中曾根科学技術長官時代のいわゆる矢内原原則（大学の自主的な学問を保証するため、大学の原子力に関することがらについて科学技術庁は関与しない）が今も続いている。原研もこの制約の中にある。
- ・ この制約があるため、協力研究実施のための予算は大学側でも原研側でも認められない。しかし、国の研究所と大学とに断絶があるというのは世界のどこにもなく、当時原子力長期計画の中で大学と原研の協力が必要であるとの認識が示されたこともある。予算の枠組みを打破する方法としてプロジェクト研究研究を立ち上げたという経緯がある。
- ・ 原総センターはプロジェクト共同研究で次のような役割を果たしている。
 - ①旅費支給、テーマの開拓
 - ②大学人の取りまとめと折衝

- 大学と原研の間には断絶があるが、どちらにも協力の必要があることは明らかである。省庁再編のなかでは、研究に社会的背景を持って、大学の人達が原総センターを足場にして力の結集を図り、断絶を意図的に排除・修復して良い関係作りを目指すことが必要と考える。現在手持ちの枠組みを運用していくだけでは限界がある。

関村：これまでの話はプロジェクト共同研究の外にいる人には分かりにくい。外側の視点からコメントしたい。大学と原研の研究者（の役割）は、90%オーバーラップしており、10%の差も強調しない。プロジェクト共同研究に次ぎのような期待を持っている。

- 放射線高度利用プロジェクトの3期の実績を元に、原子力における加速器利用分野をリードする。先端性を追い求めて、総合科学として原子力の発展に寄与する。放射線利用技術の高度化を図る。
- 何（人・物）と協力して共同研究しているのか。TIARAにユニークな装置があるので研究するという段階の次ぎには、人と人との関係が問題である。大学、原研の研究者間の競争が不充分である。プロジェクトを立ち上げ、チームを作り、研究者間の競争を経て次ぎの研究に発展させることが大切である。人材育成・教育に関しても、原研の研究者に貢献して欲しい。
- 原子力は、学術としての体系化を意識するよう要請されている。放射線高度利用研究プロジェクトもその体系・構造が意識され、それを表に出すことが評価において重要である。
- 矢内原原則についてコメントしたい。学術会議から、平成10年11月に「21世紀の研究についての見解」が出された。これには、
 イ) 原子力研究は大学と複数の研究機関が密接に協力することが重要である。
 ロ) 大学の原子力研究を充実させるために抜本的な改革をはかる。
 が謳われている。プロジェクト共同研究はイ)に該当する。ロ)は矢内原原則が原子力の発展を阻害したことを明確に宣言したものである。この時点から、研究の有り方も変える必要がある。

前川：今年度新設された研究協力推進室は、開かれた研究所を目指して制度を充実させる役割を担っている。以下に私見ではあるが、プロジェクト研究に対する考えは次ぎのようである。

- プロジェクト共同研究は、何らかのブレークスルー、或いは新しい概念があれば良い。これによって次の新しい発展がある。
- プロジェクト共同研究は、共同作業としてお互いに人材、予算、設備を出し合って、最小限の努力で最大の成果を期待する。希少な設備であるTIARAで有効な成果を挙げて欲しい。
- プロジェクト共同研究の要件は、
 イ 課題が魅力的である。
 ロ 課題はスクラップアンドビルドされること。
 ハ 目的、目標が明確であること。
 ニ 既成の枠からの脱却をはかるように努力すること。
- プロジェクト共同研究のテーマの起こし方はそう簡単ではない。原研では、

黎明研究制度、基礎研究制度から新しいものが出て来ることを期待している。

萩原：（閉会の挨拶も兼ねて発言し、4.に収録）

勝村：研究成果の発表だけではなく、このような「枠組み」、「心構え」、「研究への刺激」に関する議論が必要である。

4. 閉会の挨拶（パネルディスカッションのまとめを兼ねる）

パネラーの方々はそれぞれ違った角度から貴重な意見を述べられた。これをまとめるのは難しいので、これらの意見を記憶にとどめて、これからプロジェクト共同研究を進めて行きたい。

放射線高度利用研究を立案した頃は、大方の意見では高崎に加速器を作つても来る人は少ないから、ユーザーグループの組織化を図れというものであった。これがプロジェクト共同研究を立ち上げる一つの動機であった。事実、マシンの周りに少し人がいるというような状況が数年続いた。しかし、今日では多くのユーザーがいて、マシンタイムが足りない、もっと欲しいと強く要求されている。

プロジェクト共同研究以外の研究テーマにもいいテーマがある。透明性を持ってマシンタイムを決定する時に、プロジェクト共同研究にマシンタイムを多く割り当てようすると、プロジェクト共同研究と他との違いが明らかに見える必要がある。こういう視点からプロジェクト共同研究について（専門部会の議論の中で）しばしば少し厳しいコメントをしている。

パネラーからも指摘があつたが、プロジェクト共同研究に社会性が必要ではないか。社会からの問題解決の要求にどう取り組んでいるか。問題に直接回答しなくとも、基盤的な問題に貢献する必要がある。これには今回のシンポジウムで発表されたポジトロンによる植物機能研究の手法で果実中の物質の動態を観察したいというような要求、或いはマイクロ PIXE によって医学的に重要ながん、脳疾患などに関する知見を得たいということが当てはまる。

原子力長計において放射線利用をどう位置付けるかということを考えると、放射線利用は我々にとって身近な原子力利用と見ることができる。その視点では医学、食料、環境問題等が前述のようにプロジェクト共同研究と関連づけることが望まれる。

社会性を付与することによって、プロジェクト共同研究がプロジェクトらしく、より発展させたい。

日本原子力研究所高崎研究所長 萩原 幸

付 錄

原研・大学プロジェクト共同研究シンポジウム
—「放射線高度利用研究の成果と今後の展望」—
平成11年1月27日10:00～17:00
[第二会場 602号室]

開 会 挨 拶

河出 清（放射線高度利用研究専門委員会委員長・名大）
10:00～10:05

[第一部] 「研究成果報告」

(セッション1) オンライン同位体分離器を用いた核分光・核物性

10:05～10:50 座長 大島真澄（原研）

10:05 概要説明

河出清（名大）

10:10 (1) 中性子欠損 La 核種の崩壊による原子質量・核構造の研究
長 明彦（原研）

10:30 (2) 微小角度散乱法による偏極不安定核ビームの開発研究
大坪 隆（新潟大）

(セッション2) 加速器放射線に関する研究（線源評価及び遮蔽）

10:50～11:35 座長 林克己（日立エンジニアリング）

10:50 概要説明

中村尚司（東北大）

10:55 (1) 加速器遮蔽実験
中島 宏（原研）

11:15 (2) 荷電粒子による中性子、ガンマ線及び二次荷電粒子の生成
渡辺幸信（九大）（演者交代）

(セッション3) イオンビーム利用による材料解析法の研究

11:35～12:20 座長 今西信嗣（京大）

11:35 概要説明

榎本洋（原研）

11:40 (1) 構造感応型イオン誘起2次電子分光
工藤 博（筑波大）

12:00 (2) 異種物質界面における吸着原子のその場イオンビーム解析法
の開発とそれを用いた反応性原子の吸着過程の研究
柚原淳司（名大）

休 憩（12:20～13:10）

(セッション4) 高分子材料のイオン照射ミクロ構造に関する研究

13:10～15:55 座長 鶴尾方一（早大）

- 13:10 概要説明
瀬口忠男（原研）
- 13:15 (1) ポリエチレンに生成する二重結合：線質(LET)と収量・分布の相関
工藤久明（原研）
- 13:35 (2) ポリシランの架橋・切断反応における線質(LET)依存性
田川精一（阪大）
- (セッション5) 核融合炉材料に対する核変換生成物の影響に関する研究
13:55～14:40 座長 鈴木雅秀（原研）
- 13:55 概要説明
関村直人（東大）
- 14:00 (1) トリプルビーム照射によるバナジウム合金のスエーリング挙動
関村直人（東大）
- 14:20 (2) 多重イオン照射による鉄鋼材料のミクロ組織化
内藤 明（原研）
- (セッション6) ポジトロン放出核種を用いた植物の生体機能解明
14:40～15:25 座長 茅野充男（東京農大）
- 14:40 概要説明
久米民和（原研）
- 14:45 (1) イネ科植物における¹¹C-メチオニンの動態
中西啓仁（東大）
- 15:05 (2) ¹³N-硝酸イオンの植物体内における長距離移行のリアルタイム
解析
林 浩昭（東大）
- [第二部] 「放射線高度利用研究の展望」
- (セッション1) 11年度新規テーマ：大気マイクロ PIXE 分析システムの開発と
その応用
15:25～15:45 座長 小林紘一（東大）
- 15:25 TIARAにおけるマイクロ PIXE 分析の展望
石井慶造（東北大）
- (セッション2) パネルディスカッション：これまでの歩みと展望
15:45～16:55 司会：勝村庸介（東大）
パネラー：[原研] 渡辺宏（高崎研）、前川洋（企画室）、関根俊明（物質科学部研究部）
[大学] 伊藤泰男（東大原総センター）、河出清（名大）、関村直人（東大）

閉会挨拶
萩原 幸（原研高崎研究所長）
16:55～17:00

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表す場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ポアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストーカス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{18}
9.80665	1	2.72407	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	$= 4.184 \text{ J (熱化学)}$
3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^5	3412.13	2.65522×10^6	2.24694×10^{25}	$= 4.1855 \text{ J (15 }^\circ\text{C)}$
4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{19}	$= 4.1868 \text{ J (国際蒸気表)}$
1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{21}	仕事率 1 PS (仏馬力)
1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{18}	$= 75 \text{ kgf}\cdot\text{m/s}$
1.60218×10^{-19}	1.63377×10^{-20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	1	$= 735.499 \text{ W}$

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10^{-11}
3.7×10^{10}	1	

照射線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

線量当量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10^{-4}	1

(86年12月26日現在)

