

< 2 > 新規産業開発研究

< 2 - a > 先導的探索 / 実証研究

サブテーマリーダー：光産業創成大学院大学 土屋 裕

(代理：光科学技術研究振興財団 コア研究室 研究リーダー 青島紳一郎)

小テーマ： 物質改変～高エネルギー粒子と物質の相互作用の調査研究

研究従事者：奥野健二（静岡大学理学部：共同研究機関）、

光科学技術研究振興財団 コア研究室 研究員 高橋宏典

(1) 研究の概要、新規性及び目標

研究の概要

フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に水素同位体のそれら同士の相互作用および物質との相互作用による中性子発生の可能性に関する調査および基礎的研究を進め、「放射性同位体生成装置」の特許を出願することができた。さらに、フェムト秒レーザーを利用したポロン薄膜中での $D - {}^3\text{He}$ 核融合反応による炭素 ${}^{11}\text{C}$ ポジトロン放射体の生成に向け、ポロン薄膜中での水素同位体およびヘリウムの挙動についての研究を進め、新規知見を得ることができた。

研究の独自性・新規性

高強度場における新しい物理の研究が大型施設を有する先端的な研究機関で始められている。本事業では小型のフェムト秒レーザーを用いたPET用を想定した短寿命放射性同位体を生成するテーマ「物質改変」を進めているが、本テーマでは、高エネルギー粒子と物質の相互作用の利用に関して、ポロン薄膜中での $D - {}^3\text{He}$ 核融合反応によるポジトロン放射体の生成に着目した点に研究の独自性・新規性がある。

研究の目標

フェーズ 1 では、高エネルギー粒子の固体中における化学的挙動の研究を行う。また、核融合炉施設のトリチウム表面汚染の挙動の研究を行う。さらに、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に水素同位体同士の相互作用および物質との相互作用による中性子発生の可能性に関する調査および基礎的研究を実施する。

平成 12 年度は、高エネルギー粒子の固体中における化学的挙動の研究を行う。また、核融合炉施設のトリチウム表面汚染の挙動の研究を行う。

平成 13 年度は、高エネルギー粒子の固体中における化学的挙動の研究を行う。また、核融合炉施設のトリチウム表面汚染の挙動の研究を行う。

平成 14 年度は、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に水素同位体同士の相互作用および物質との相互作用による中性子発生の可能性に関する調査および基礎的研究を実施する。

フェーズ 2 では、PET 用 RI 製造装置の小型化を目指して、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に高エネルギー水素同位体の発生とそれらと物質との相互作用に関する調査研究を進める。さらに、フェムト秒レーザーを利用したポロン薄膜中での $D - {}^3\text{He}$ 核融合反応による炭素 ${}^{11}\text{C}$ ポジトロン放射体の生成に向け、ポロン薄膜中での水素同位体およびヘリウムの挙動についての研究を進める。

平成 15 年度は、PET 用 RI 製造装置の小型化を目指して、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に高エネルギー水素同位体の発生とそれらと物質との相互作用に関する調査研究を進める。

平成 16 年度は、PET 用放射性同位体製造装置の小型化を目指して、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子の発生、およびそれらと物質との相互作用に関する調査研究を進める。

平成 17 年度は、PET 用ポジトロン放射性同位体製造装置の小型化を目指して、フェムト秒レーザーを利用したポロン薄膜中での $D - {}^3\text{He}$ 核融合反応による炭素 ${}^{11}\text{C}$ ポジトロン放射体の生成に向け、ポロン薄膜中での水素同位体およびヘリウムの挙動についての研究を進める。

(2) 研究の進め方及び進捗状況

フェーズでは、特に核融合に関連する高エネルギー粒子に関する研究をとして、高エネルギー粒子の固体中における化学的挙動の速度論的及び量子化学的研究、ならびにその宇宙及び核融合炉材料への応用を研究した。また、グラファイト単結晶またはダイヤモンドを対象材料としてX線光電子分光法および昇温脱離法を用いて、重水素の炭素との結合状態、および加熱時の重水素の脱離過程を評価し、結晶構造の違いによる重水素の化学的挙動の違いを明らかにした。さらに、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に水素同位体のそれら同士の相互作用および物質との相互作用による中性子発生の可能性に関する調査および基礎的研究を進め、レーザーを利用した小型中性子源の有用性がわかった。

平成12年度は、特に核融合に関連する高エネルギー粒子に関する研究を行った。高エネルギー粒子の固体中における化学的挙動の速度論的及び量子化学的研究、ならびにその宇宙及び核融合炉材料への応用を研究した。また、核融合炉におけるトリチウム化学の研究として、核融合炉施設材料のトリチウム表面汚染の挙動を研究した。

平成13年度は、特に核融合に関連する高エネルギー粒子に関する研究を行った。さらに、グラファイト単結晶またはダイヤモンドを対象材料として、X線光電子分光法および昇温脱離法を用いて、重水素の炭素との結合状態、および加熱時の重水素の脱離過程を評価し、結晶構造の違いによる重水素の化学的挙動の違いを明らかにした。

平成14年度は、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に水素同位体のそれら同士の相互作用および物質との相互作用による中性子発生の可能性に関する調査および基礎的研究を進めた。この調査研究を進めることにより、医療、工業等で汎用性のある小型中性子源の可能性を明らかにすることができた。具体的には、小型加速器で得られる高エネルギー粒子と物質との相互作用に主眼を置き、高エネルギー水素同位体と各種セラミックスおよび金属材料との相互作用の研究を進め、材料改変についての基礎データを取得した。

フェーズでは、PET用RI製造装置の小型化を目指して、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に高エネルギー水素同位体の発生とそれらと物質との相互作用に関する調査研究を進め、特許出願することができた。さらに、フェムト秒レーザーを利用してのボロン薄膜中でのD-³He核融合反応による炭素¹¹Cポジトロン放射体の生成に向け、ボロン薄膜中での水素同位体およびヘリウムの挙動についての研究を進め、イオン注入された重水素の化学的挙動の詳細を明らかにした。

平成15年度は、PET用RI製造装置の小型化を目指して、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に高エネルギー水素同位体の発生とそれらと物質との相互作用に関する調査研究を進めた。また、小型加速器で得られる高エネルギー粒子と物質との相互作用に主眼を置き、高エネルギー水素同位体と各種セラミックスおよび金属材料との相互作用の研究を更に進め、材料改変についての基礎データを取得した。

平成16年度は、前年度に引き続き、PET用放射性同位体製造装置の小型化を目指して、フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に高エネルギー水素同位体の発生、およびそれらと物質との相互作用に関する調査研究を進めた。

平成17年度は、PET用ポジトロン放射性同位体製造装置の小型化を目指して、フェムト秒レーザーを利用してのボロン薄膜中でのD-³He核融合反応による炭素¹¹Cポジトロン放射体の生成に向け、ボロン薄膜中での水素同位体およびヘリウムの挙動についての研究を進めた。

(3) 主な成果

グラファイト結晶中へ打込まれた重水素の化学的挙動の研究

プラズマ及び高エネルギーイオン、中性原子(水素同位体など)と炭素材料、シリコン材料、金属との相互作用の研究は、核融合材料開発にとって重要な研究課題となっている。この研究は宇宙における高エネルギー粒子と宇宙材料との相互作用の研究、また半導体材料開発研究にもつながる。本テーマでは、核融合炉プラズマ対向壁材料の候補材であるグラファイト中に打ち込まれた重水素の化学的挙動に関する研究をX線光電子分光法及び昇温脱離法を用いて実施した。その結果、グラファイト中での重水素の炭素との結合状態及び加熱時の重水素の脱離過程が明らかとなった。

次に、グラファイト等の結晶における重水素の化学的挙動の違いを明らかにするために、X線光電子分光法および昇温脱離法の有効性を調査・検討し、グラファイト結晶中へ打ち込まれた高エネルギー重水素と結晶欠陥との相互作用を実験的に検討した。X線光電子分光から、グラファイト結晶は一旦アモルファス化するものの、更に重水素照射量が増加するに伴い再結晶化してダイヤモンド構造に近づくことがわかった。また、昇温脱離法から、重水素は格子間に存在するのみならず複数の化学的状態で存在することがわかった。上記結果から、打ち込まれた重水素と結晶欠陥の間には化学的相互作用が存在することが明らかとなった。

レーザーを利用した中性子発生の可能性についての調査研究

フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に水素同位体のそれら同士の相互作用および物質との相互作用による中性子発生の可能性に関する調査として、レーザーを利用した中性子発生の可能性について調査した。

想定される小型中性子発生装置の概念図を図1に示す。ガスジェットから重水素を真空中に高速放射し、断熱膨張により重水素クラスターを形成させる。ここへ超短パルス高密度レーザーを集光照射することによってD-D核融合反応を生じさせ、重水素からヘリウムHeと中性子nを得る。こうして得られた中性子等の発生技術は医療用放射性元素の製造、非破壊検査に応用されることが期待される。

D-³He核融合反応を利用した同位体生成の可能性についての調査研究

フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に水素同位体のそれら同士の相互作用および物質との相互作用による中性子および高エネルギー陽子発生の可能性に関する調査として、慣性静電閉じ込め(Inertial Electrostatic Confinement: IEC) D-³He核融合反応を利用した医療用放射性同位体製造の可能性についての基礎研究を調査した。

米国Wisconsin-Madison大学のCipitiとKulcinskiはIEC装置によるD-³He反応により生成する高エネルギー(14.7 MeV)プロトンを用いてPET用RI製造の可能性の検討を進めている¹⁾。彼らはHeが金属に打ち込まれるとバブルを形成する性質を利用して、予め³Heを埋め込んだモリブデン陰極に60~90 keVの重水素イオンD⁺を打ち込み、D-³He核融合反応により生成した高エネルギープロトンとモリブデンとの反応によりポジトロン放射体である^{94m}Tcの生成を実証した。この手法はサイクロトロンや加速器を用いる医療用RI製造に比べてかなり安価であるとともに、中性子の発生量も最低限に抑えることが出来、装置の放射化を最低限に抑えることが出来るものと思われ、小規模な医療機関においても設置可能なものと推測できる。

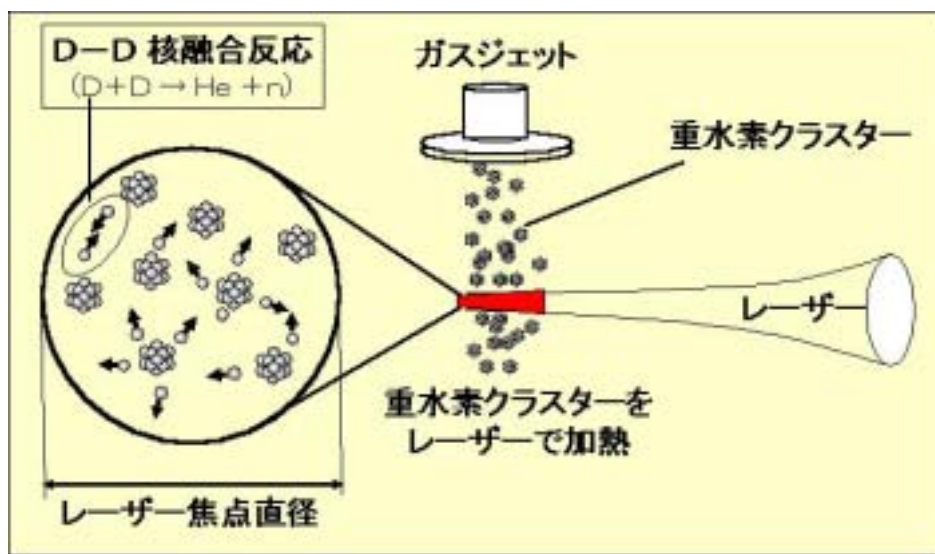
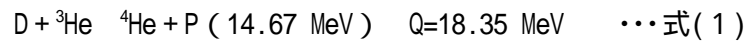


図1 小型中性子発生装置概念図

この手法を応用して、陰極に炭素、あるいは窒素を構成元素に持つ材料を使うことにより、 ^{11}C 、 ^{13}N 、 ^{15}O などのPET用RIの製造に応用できるものと思われる。また、これに関連して、レーザーを用いたD- ^3He 慣性核融合反応により発生する高エネルギープロトンを利用したPET用RIの製造システムの提案も可能なものと思われる。

そこで、フェムト秒レーザー照射により重陽子Dを発生させ、式(1)に示す反応を利用して高エネルギー(14.67 MeV)のプロトンを発生させる小型で効率の良いPET用RI生成装置を検討した。



従来のサイクロトロンを用いて高エネルギーのプロトンを得る方法とは異なり、入射する重陽子Dは高々数100 keVと低いエネルギーで良いという利点がある。この知見をもとに、上記反応をレーザー励起による重陽子Dを利用しておこなう「放射性同位体生成装置」(出願番号2005-39685)を特許出願した。

1) B.B. Cipiti and G.L. Kulcinski, Embedded D-3He Fusion Reactions and Medical Isotope Production in an Inertial Electrostatic Confinement Device, Fusion Sci. Technol., in press (2003).

ボロン中における水素同位体およびヘリウムの挙動の研究

フェムト秒レーザー照射により生成する高エネルギー粒子、特に水素同位体のそれら同士の相互作用および物質との相互作用による基礎的研究の一環として、始めに、ボロン結晶と高エネルギー重水素との相互作用に関する研究を昇温脱離法(TDS)およびX線光電子分光法(XPS)により行った。図2に示すTDS実験の結果から、ボロン多結晶に打ち込まれた重水素は、2つの放出過程、即ち、結晶内では少なくとも2つのトラップサイトに捕捉されているものと考えられる。これは高エネルギーで打ち込まれた重水素がボロン結晶の および 型結晶構造にそれぞれトラップされている可能性を示唆しているものと考えられる。その捕捉量に関しては、グラファイトの1/5程度であった。このボロンの重水素捕捉量が少ないという特徴は、ボロンを核融合炉第一壁材料として用いたとき、第一壁材料中のトリチウム保持量を大きく低減し、核融合炉の安全性をさらに高めるものと思われる。

次に、 ^3He を注入したボロン薄膜に高エネルギー重陽子を打ち込む方法を検討した。具体的には、PCVDにより基板上にボロン膜を成膜しておき、そこにイオン照射により ^3He を注入した。ボロン薄膜中におけるHeの挙動を測定した結果、図3に示すようにヘリウムはほぼ室温付近から800 Kまでの範囲で放出され、かつその存在状態は2つあることが類推された。

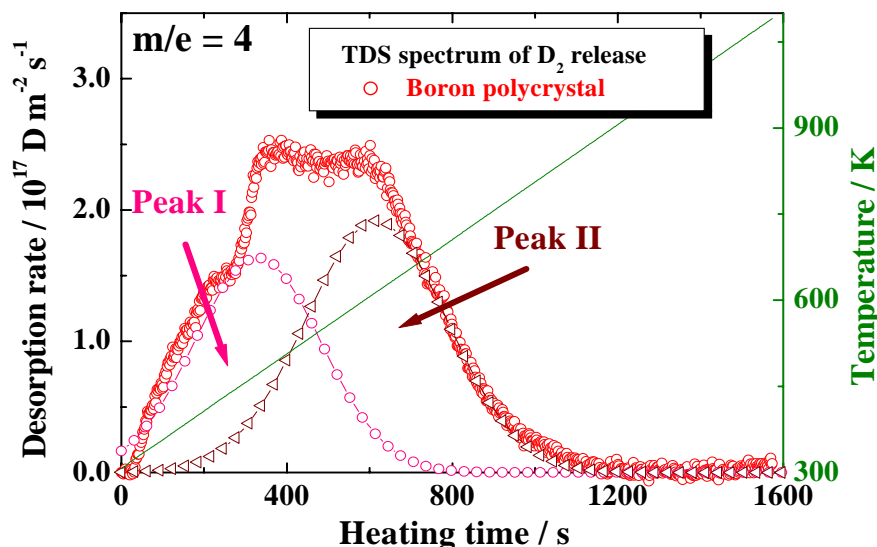


図2 多結晶ボロンから放出された重水素昇温脱離スペクトル

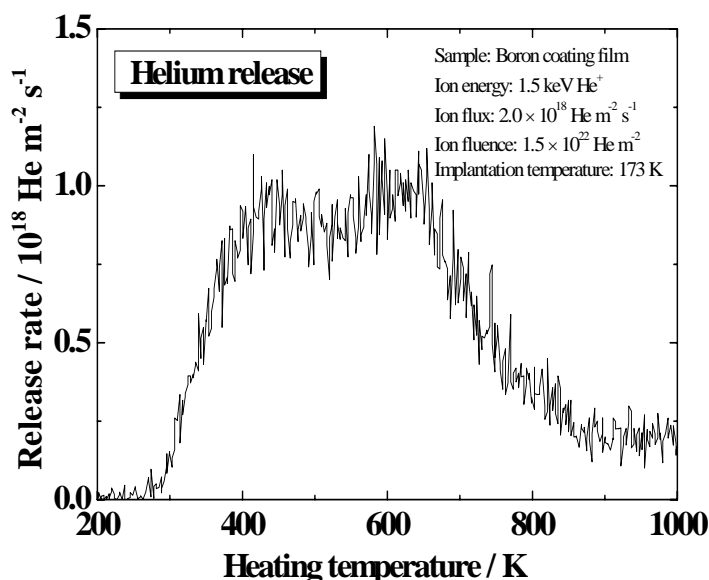


図3 ボロンコーティング薄膜からのヘリウム脱離挙動
(ヘリウム滞留量: 9.83×10^{20} He m^{-2} , ボロンコーティング薄膜純度; B:94%, C:3%, O:3%)

引き続きボロンコーティング膜における高エネルギー粒子の挙動の研究を行った。核融合炉関連研究として、ボロンコーティング膜における不純物が重水素滞留量に及ぼす影響に関する実験を進め、図4に示すように酸素を含んだものと高純度のものそれぞれのボロン膜からの重水素 TDS スペクトル比較から、どちらの場合においても二つの脱離過程の存在が明らかとなった。また、酸素の有無において重水素のそれぞれの脱離サイトにおける量的変化が示唆された。

次に、特にボロン膜中に存在する不純物酸素が膜に注入された重水素イオンの挙動にどのような影響を与えるかを解明するためにより詳細な実験を行った。11%の酸素含有ボロン薄膜に高エネルギーで注入された重水素の TDS スペクトルを図5に示す。ピーク分離をおこなった結果、酸素含有ボロン薄膜では高温側に現れた新たな脱離過程を含む3つの脱離過程の存在が明らかになった。この3つの脱離過程は、低温側から順に B-D-B、B-D、および O-D 結合からの重水素の脱離過程であることが示唆された。以上より、酸素不純物を含んだボロン薄膜においては、膜中の酸素が重水素の捕捉サイトとして働き、重水素の滞留量を増加させる可能性があることが示された。この実験結果は、ポジトロン放射体発生装置の開発の観点からは、酸素を含むボロンコーティング膜のほうが重水素の滞留量が増加し、反応をより効率的に起こす可能性があることを示唆している。

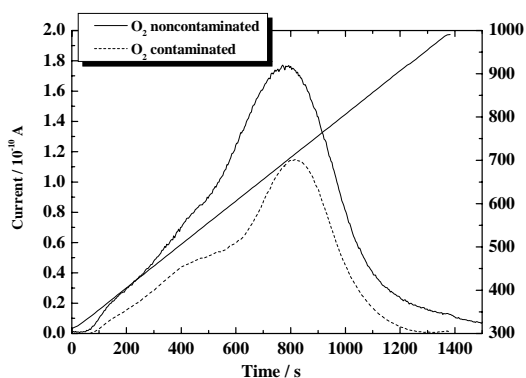


図4 重水素 TDS スペクトルに及ぼす酸素不純物効果

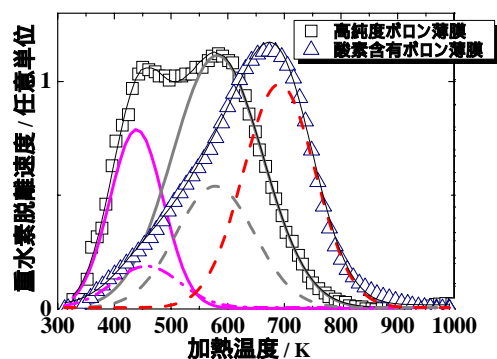


図5 解析後のそれぞれのボロン薄膜からの重水素 TDS スペクトル



(a) PCVD 装置



(b) 昇温脱離 (TDS) 装置

図6 改造・整備された実験装置

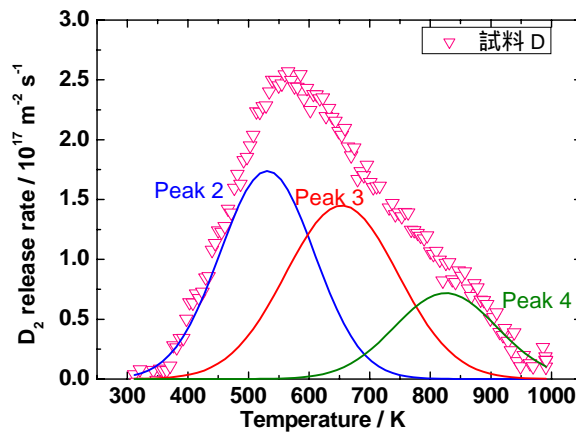


図7 酸素含有ボロン膜における重水素TDSスペクトルのピーク解析

平成 17 年度では、ボロン薄膜中の炭素不純物が水素同位体の膜内における移行挙動に及ぼす影響を調べるために、静岡大学理学部の装置の改造を行った。図 6 に改造・整備された実験装置を示す。PCVD 装置は、ボロンをコーティングする時に使用する。また、昇温脱離 (TDS) 装置は、高純度ボロン薄膜を加熱処理し、内部にある重水素の化学結合状況を知るために使用する。

これらの実験装置を用いて、比較的の不純物として混入しやすい酸素を用いて予備的膜精製をおこなった結果、数 10 % 程度の酸素含有ボロン膜の調整に成功し、ボロン薄膜中での水素同位体およびヘリウムの挙動についての研究を進め、さらに、炭素不純物導入のためのガス流量、基板 (Si 結晶) 温度等を変化させ成膜条件の最適化を図った。

酸素含有ボロン膜に関しては、昇温脱離法 (TDS) を用いて更に詳細な実験および解析を行い、図 7 に示すような結果を得た。すなわち、酸素含有不純物にイオン注入された重水素は、B-D-B、B-D および B-O-D の化学結合を作り存在することが明らかとなった。

特許件数：1 論文数：12 口頭発表件数：11

(4) 研究成果に関する評価

国内外における水準との対比

本テーマでは、D - ³He 核融合反応に着目して「放射性同位体生成装置」の特許出願を行うことができた。また、TDS 及び XPS 装置を用いて薄膜中にイオン注入された重水素の化学的挙動に関する新規知見を得て論文発表することができた。このように、本テーマの研究成果は世界レベルの研究水準にある。

実用化に向けた波及効果

本研究は、将来の核融合炉材料開発、宇宙材料開発、半導体材料開発につながるものである。
「放射性同位体生成装置」(出願番号 2005-39685)

(5) 残された課題と対応方針について

残された課題は特になし。フェーズ Ⅱ では、静岡大学において独自の予算で調査研究を継続するとともに、将来的には参画企業が「放射性同位体生成装置」の実現を目指す。