

第57回放射線研究会 聴講記

標記研究会は平成27年7月17日（金）午後1時半から5時半まで住友クラブにおいて、高岡 義寛氏（京都大学）、松浦 寛人氏（大阪府立大学）、吉田 朋子氏（大阪市立大学）、菊池 崇志氏（長岡技術科学大学）の4名の講師をお招きして開催された。予報では、開催日に台風11号が関西を直撃とのことで開催が危ぶまれたが、前日の午後には大阪への直撃はないとの予報になり、開催することに決定した。しかし台風11号は広範囲の雨雲を引き連れて移動したため、開催日の数日前から、また通過後も広い地域に多量の雨を降らした。このような天候にも関わらず27名の参加者が熱心に聴講し、活発な質疑応答が行われた。

座長は前半2件を、大嶋 隆一郎ONSA専務理事が、後半2件を岩瀬 彰宏氏（大阪府立大学）が務めた。なお、講演会終了後、講師の先生方を囲んで技術交流会が行われた。

1. ナノクラスターイオンの生成とビーム応用

京都大学大学院工学研究科附属光・電子理工学教育研究センター 高岡 義寛

光・電子理工学教育研究センターは、工学研究科の附属施設で、1978年に創設されて4半世紀以上続いた「イオン工学実験施設」を改組して平成19年4月1日に設置された新しいセンターである。講演者の高岡講師は、イオン工学実験施設の初代の施設長で、「イオン工学」という言葉を作ってイオン工学技術体系作りを提唱し、クラスターイオンビーム技術を開発した高木俊宜教授、その後を引き継いだ山田公教授に繋がる研究者であり、現在センターの「ナノプロセス部門」を担当している。最初にイオンビーム技術の背景について、次にクラスターイオンの多様性の中の特異性について、最後にエキゾチックなビームの応用について講演された。イオンビームは「3本の矢」、即ち制御性（荷電粒子）、多種多様性（多電子粒子）汎用性（細束粒子線）という特質を併せ持つ粒子線である。応用分野としては図2に示すように、蒸着や注入によるナノレベルでの高機能表面形成、エッチングによる原子・分子レベルでの表面加工、ナノ粒子蒸着による触媒材料やバイオマテリアル創製を挙げることができる。

クラスターとは、数十から数十万個の塊状原子集団で、原子（分子）とバルク状態をつなぐ特異な性質をもつ微粒子であり、固体・液体・気体・プラズマとは異なる第5相状態である。生成方法としてはノズルビーム法、アブレーション法、ビッグバン法等がある。クラスターのサイズ分布はTOF（Time Of Flight）法で正確に測定できる。飛んでくるクラスタービームに電子線を照射して回折像を撮ることにより、クラスターの構造を知ることができる。水のク



図1 講演中の高岡講師

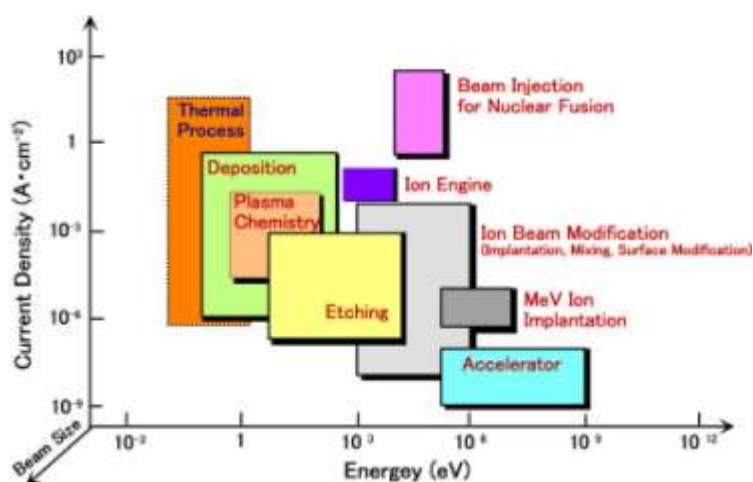


図2 イオンビームの応用

ラスターストリームはダイヤモンド構造であること、CO₂の場合は炭素が面心立方位置を占める立法晶であることを見出している。

クラスターストリーム照射効果はイオンと固体表面との相互作用であり、クラスターストリームの加速エネルギーがkeVであっても、1000個のイオンからクラスターストリームが構成されていれば、1個のイオンはeVオーダーのエネルギーしか持たないので、高密度の低イオン照射と考えることができる（図3参照）。

表面高機能化プロセス用の液体クラスターストリームシステムの仕様は、蒸気圧：3気圧、加速電圧：1-9 kV、ドーズ量：1.0×10¹³~1.0×10¹⁶ions/cm²、イオン化電圧：200V、基板温度：室温である。

エタノールクラスターストリーム照射では、シリコン基板はSiO₂基板よりも約9倍深くスパッタされる。そのためSi、SiO₂基板に対して選択的スパッタリングが可能である。また熱とストリーム併用法も開発され、イオンストリームを熱源とする方法等が行われている。

最後に高分子表面にハイドロキシアパタイトを形成する生体材料の開発の話があり、クラスターストリームの魅力は新奇なプロセスで新奇な材料を作ることにあると話が締めくくられた。

質問では、アルゴン、エタノール、水のクラスターストリームの差についてあり、本研究の範囲である1分子当たり1-10eVでは分子は壊れないが、アルゴンは原子状になるとの説明がなされた。

表面の温度についてはpsからnsの短時間の原子励起によるものであるが、化学反応には十分な時間である。水のダイヤモンド構造は、水分子がダイヤモンド構造をとる。種々の基板からのフォトルミネッセンスの強度は、アルゴンクラスターストリーム照射では材料に依存しないが水クラスターストリームでは依存する。発光の起源は不明であるが、波長分析を今後行う予定とのことである。

講師が京都大学教授であることは世を忍ぶ仮の姿であり、本来は京都の真言宗の名刹・西明寺のご住職であらせられる。講演後の技術交流会では死んだ後どうなるかについて、参加者との間で白熱した議論が交された。

(義家敏正 記)

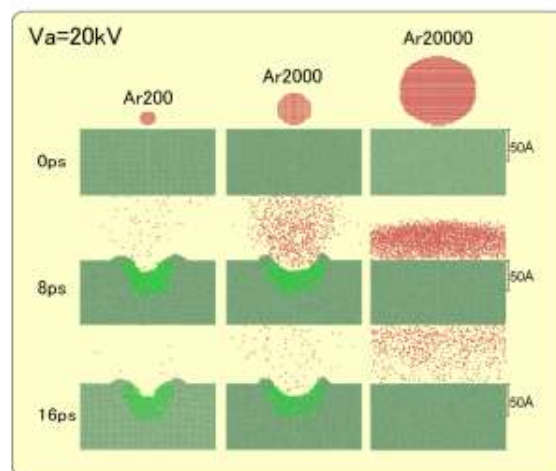


図3 アルゴンクラスターストリームのシリコン基板表面への衝突過程、分子動力学法によるシミュレーション結果

2. シース、プラズマから固体への輸送を支配する境界層

大阪府立大学大学院工学研究科量子放射線系専攻 准教授 松浦 寛人

講演は・序論（プラズマ、シースとは） ・熱流束の評価法（基礎的事項） ・バイアス電圧（グローブプラズマ） ・エネルギー反射係数（核融合のダイバータープラズマ） ・二次電子（ダイバーター模擬装置） ・ラジカル（大気圧プラズマ） ・熱流束の評価法（発展的課題）について行われた。プラズマという言葉は最初にラングミュアーが電離気体に対して命名したこと、物質の第4態であり、正負の荷電粒子、中性粒子、光子の集団からなる反応場で、荷電粒子、熱運動、巨視的中性の3条件が必要なことが説明された。図2に示すように、プラズマは、蛍光灯、核融合、雷や宇宙まで関連分野が多くあることが分かる。

プラズマと固体が接する境界面では、一般に固体は電子を吸収してプラズマに対して負に帯電し、その近くでは電氣的準中性が破れていて強い電場が生じている。この領域がシース（鞘）と呼ばれ、一種の電的な境界層となっている。シースに外部バイアス電圧を印可し、プローブ本体への電流応答からプラズマのパラメータを計測することができる。

プラズマ熱流束の評価では固体の熱量変化をモニターし、シース境界を通過する熱流束(エネルギー束)を評価する必要があり、プラズマ熱流速計測法を講師らは開発した。核融合炉ダイバーター模擬装置において、高精度のサーマルプローブで測定したイオン熱流束を解析することにより、ラングミュアープローブでは分からないイオン温度の評価に初めて成功している。図3はサーマルプローブによる熱伝導解析の原理である。プローブで得られた測定値を熱伝導逆問題として解くことにより、熱流を決定できる。更にタングステンをを用いたダイバーターの、プラズマ壁相互作用により生ずるナノ構造の紹介があった。

また、大気圧プラズマ中で中性であるラジカル粒子を測定する方法としてニッケル触媒プローブの紹介と、白金の触媒作用を用いた方法が説明された。

最後に、プラズマのシースはプラズマと固体の相互作用を支配するので、シース熱流束の実験的研究はこれの解明に役に立つこと。低压プラズマでは電子やイオンの寄与が支配的なので、熱流束のバイアス特性の解析で重要な情報が得られること。大気圧プラズマでは中性ガスやラジカルの寄与が支配的なため、表面反応を考慮した計測の開発が期待されると締めくくった。

タングステン表面の話は、次に講演する吉田講師の研究に関連するので、質疑



図1 講演中の松浦講師



図2 プラズマの使用例、文部科学省のウェブサイトより転載

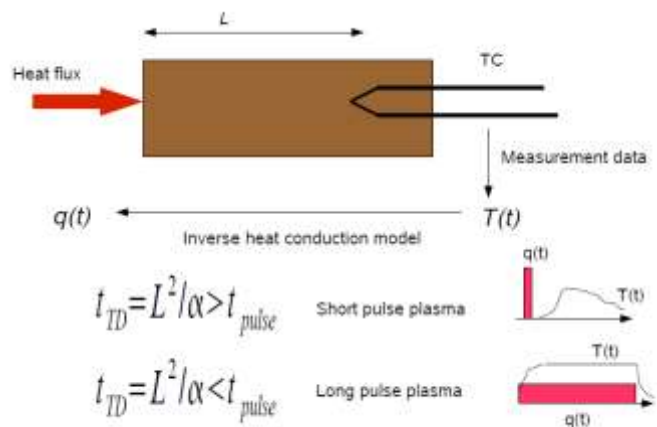


図3 サーマルプローブによる熱伝導解析、 α は熱拡散率

応用の最初に吉田講師にコメントが求められた。タングステンの構造変化により2次電子の放出が抑えられるとの話に対して、先端が尖っているので逆に電子が放出し易くなるのではないかと吉田講師の質問には、表面の粗さにより電子が吸収されることが主となるとの回答であった。タングステンの黒色への変化についての定説は無いが、タングステンが溶けてきたのではないことは確かである。ヘリウムイオンが熱空孔にトラップされて、バブル形成等の複雑な過程を経ていると考えられている。これは核融合科学研究所での分子動力学法によるシミュレーションでも再現されているとのこと。タングステンのような高温材料がプラズマで簡単に表面物性を変えられるならば、新しい素材を作る手法となると参加者から指摘があった。

昔、短波放送で海外のラジオ番組を聞いていたが、それは地球を取り巻くプラズマのお陰であると今回の講演で初めて知った。プラズマ計測と言え一般的には分光学的手法が主であると思われるが、本講演によりシースを用いた方法の有用性がよく理解できた。

(義家敏正 記)

3. イオン・プラズマ照射材料の光触媒への応用

大阪市立大学複合先端研究機構 教授 吉田 朋子

高温高密度のプラズマや高エネルギーイオンを材料表面に照射したとき、従来の方法ではできないような特異な構造が現れ、それが新たな材料機能を生み出すことがある。吉田講師には、タングステン (W) の酸化表面にヘリウム (He) プラズマを照射してできる特殊な構造が優れた触媒機能を持つこと、そして窒素 (N) イオンを照射した酸化チタンが可視光応答の触媒機能を有すること、について講演をいただいた。ここでは、前者の内容を報告する。

W板に対してまず入射エネルギー65-80eVでHeプラズマ照射を行い、その試料を大気中で酸化・加熱処理した。この試料について、メチレンブルー (MB) 脱色実験による光触媒性評価を行った。この実験において、講演者は、まず、XPS, EXAFS, XANES, SEMといった様々な手法を用いて、試料表面の元素組成比、酸化状態、構造変化を評価している。多彩な手法による材料表面評価が、本研究結果を非常に説得力のあるものに行っていると感じた。

これらの手法による評価から、Heプラズマ照射後のW表面では、図2に示すように、樹枝状のナノ構造が生成し、それによって比表面積は照射前と比べて30倍近くにまで増加している。また、ナノ構造体内部にHeバブルの存在も確認できた。しかし、WのL3吸収端EXAFSの結果から、この時点ではW原子は殆どが金属状態であることが分かった。

次にこれらの試料を大気中で加熱処理して、様々な表面酸化割合の試料を作り、光照射下でのMB脱色実験を行った。その結果、図3に示すように、表面酸化割合が増加すると反応速度は増えるが、60%の試料が最も大きな反応速度を示し、さらに酸化割合が増えると反応速度が減少した。これは、W (金



図1 講演中の吉田講師

属) $-WO_3$ 界面が高活性であることを示す面白い結果である。講演者は、この結果を、ナノ構造化した金属 W サイトが光を吸収し、励起した電子がナノ構造 WO_3 伝導帯に注入されることによる、と説明している。

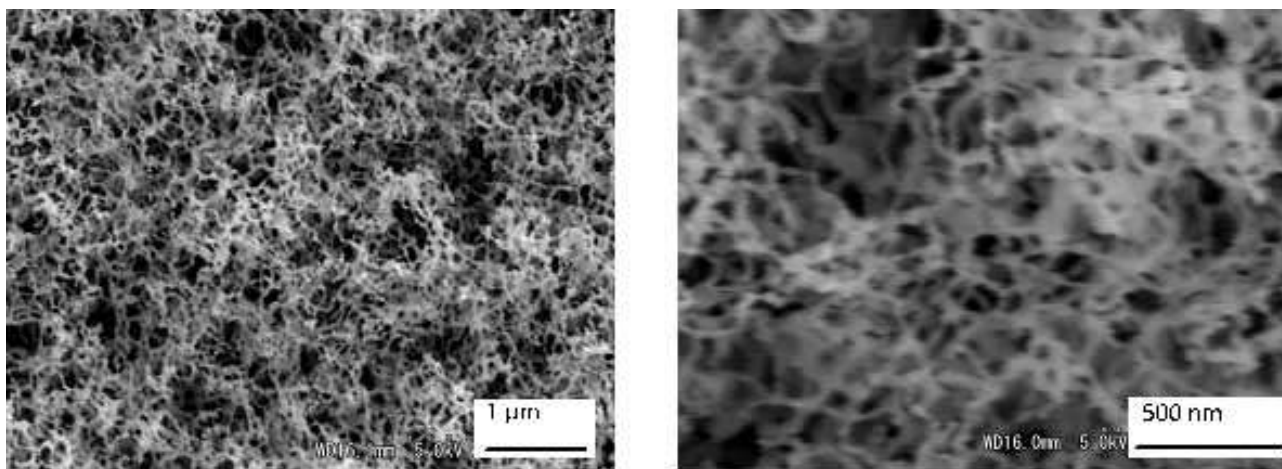


図 2 樹枝状ナノ構造化タングステンの SEM 像

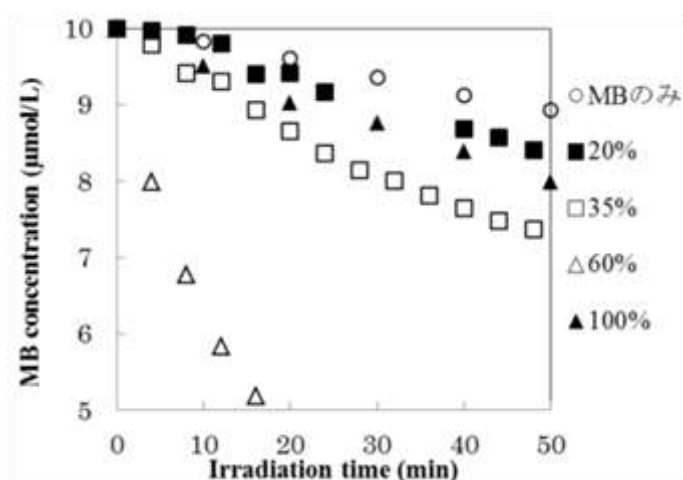


図 3 表面酸化割合の異なる試料を用いたメチレンブルー脱色反応結果

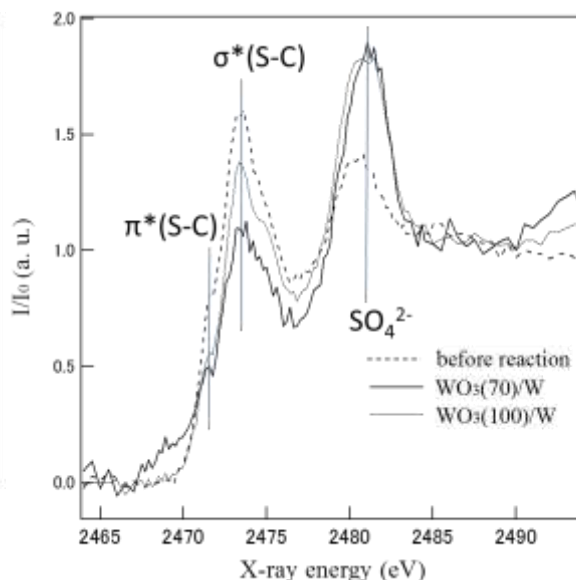


図 4 MB 水溶液及び $WO_3(70)/W$ または $WO_3(100)/W$ 存在下における光照射後の MB 水溶液の S K-edge XANES スペクトル

さらに、繰り返し MB 脱色反応の実験を行い、試料の耐久性の評価も行っている。その結果、酸化率 20、60%の試料では、繰り返し実験により反応速度が大きく劣化するのに対し、酸化率 100%の試料においてはほとんど劣化が認められなかった。反応前後の XPS スペクトルの変化から、劣化の原因は、金属 W サイトの酸化による $W-WO_3$ 界面の減少であるとした。一方、 WO_3 サイトは低活性ではあるが、安定なサイトであることが分かった。

さて、MB 脱色実験は簡便に反応性を見るのに適しているが、光触媒反応が本当に進行しているかどうかを見るには、脱色反応前後の MB 分子状態変化を明らかにする必要がある。そこで、光照射による触媒反応前後の MB 水溶液を硫黄 (S) K 吸収端での XANES 測定で評価した。その結果、S-C 結合に由来するピークが減少し、 SO_4^{2-} に由来するピークが観測された (図 4)。一方、暗室に置いて MB 分子の試料への吸着を促した実験における MB 水溶液の S K 吸収端 XANES スペクトルでは SO_4^{2-} 由来のピークは観測されない。このことから、たしかに光触媒反応により、MB 分子の S-C 結合が切断、分解し、最終的に SO_4^{2-} になることが確認される。

本講演では、放射光施設での測定も含む様々な手法を用いてプラズマ照射材の表面状態の変化や触媒特性を評価し、そのメカニズムに着実に迫っていく様子が非常にわかりやすく説明されていて、聴講していた学生にも大変よく理解できたようである。今後、プラズマやイオン照射といった手法を用いて、さらなる材料の高機能化が講演者の手によって実現されることを大いに期待したい。

(岩瀬彰宏 記)

4. 空間電荷効果が支配的な荷電粒子ビーム物理学とその応用

長岡技術科学大学原子カシステム安全工学専攻 准教授 菊池 崇志

第 42 回放射線科学研究会（エキゾチックビームシリーズ <8>）で東京工業大学・堀岡一彦教授に「重イオンビームを用いた高エネルギー密度状態の生成と実験室惑星科学」のタイトルでご講演をお願いした。筆者（岩瀬）は以前に高エネルギー加速器の開発と応用に関して大型科研費申請を堀岡教授を中心に行ったことがあり、菊池講師も同じグループであった。その縁で今回エキゾチックビームシリーズでの講演をお願いした。十分に「エキゾチック」な講演をお願いしたこともあり、相当難しい内容であったが、冒頭に大電流電子加速器を利用した放射線化学と応用の話を持ってくるなど、できるだけわかりやすいように工夫された講演をしていただいた。

さて、今回の講演のテーマは、「空間電荷効果が支配的なビーム」である。講演では、まず、長岡技術科学大学・極限エネルギー密度工学研究センターが所有する大電流電子加速器 ETIGO-III と、それを用いた放射線化学応用研究の紹介をされた。ETIGO-III 加速器は、エネルギーが最大 8 MeV、パルス幅 100ns で、kA オーダーの大電流ビームを発生する

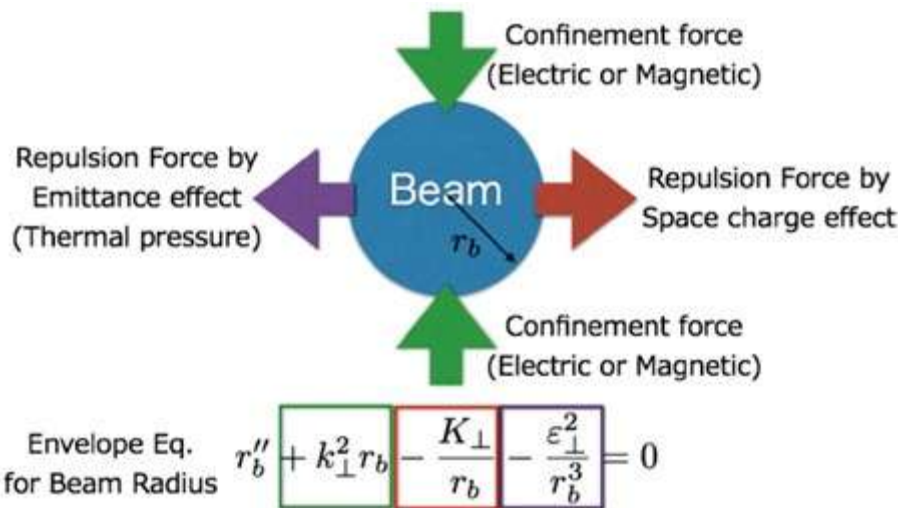


図 1 講演中の菊池講師

ことのできる線形誘導加速器である。大電流ビームという特徴を活かして、気体への照射による排ガス処理、水棲微生物への放射線影響、水環境汚染物質の分解処理などの応用研究がなされているとのことである。筆者も、長岡技術科学大学を訪問したときに ETIGO 加速器を見学したが、3 台の ETIGO 加速器があり、それとは別にイオンビーム分析に用いる静電イオン加速器も設置されていて、広い分野におけるビーム物理・ビーム工学研究ができる恵まれた環境を有していると感じた。

応用研究紹介の後は、本題の「空間電荷効果が支配的な荷電粒子ビーム」の話に入っていた。荷電粒子ビームはビーム自身の要因である熱運動と空間電荷効果による発散と外部から印加される収束磁場との釣り合いでビーム半径が決まりビーム輸送が行われる(図 2 参照)。ビームが大電流・高密度である場合、個々の粒子間に働くクーロン力が支配的になり、それらをすべて考慮した多体問題を解かなければならないため、限られた条件以外では解析的な取扱いは困難となり、より一般的には数値シミュレーションを用いた解から荷電粒子ビームの挙動を予想する。空間電荷が支配的なビームは、プラズマ物理と関連の深い挙動を示し、また粒子ビームの熱エネルギーと電磁エネルギーの交換・散逸といった、物理現象として非常に面白い特徴を持つとのことである。

大電流・高密度荷電粒子ビームの研究では、上に述べた理論的・数値的アプローチに加えて、実験に



Space charge > Emittance? ⇔ Space charge < Emittance?

図2 荷電粒子ビーム半径方向のバランス

よるアプローチもまた重要である。しかし、空間電荷効果が支配的な状況を作り出す大電流・重イオンビーム加速器の建設は困難であるため、強い空間電荷効果の状況を模擬できる電子ビーム小型装置での実験が行われている。

講演の最後は、粒子ビーム慣性核融合に関する話で締めくくられた。高強度レーザーを燃料標的へ均一に照射することで急激な圧縮過程を起こし、高温・高密度プラズマの生成と核融合

反応を引き起こす慣性閉じ込め型の核融合システムは、磁場閉じ込め型と並んで盛んに研究されているが、高強度レーザーの代わりに大強度粒子ビーム加速器を使う慣性核融合発電システムの検討もまたされている。この方式では、まさに、空間電荷効果が支配的である大電流の重イオンビームを生成し、それを制御・輸送することが必須である。

「空間電荷効果が支配的なビーム」は、筆者などが材料の照射効果の研究で使う低電流の荷電粒子ビームに比べてはるかに大電流ビームかつ高密度ビームであるため、ビームの状態そのものが非常にエキゾチックであり、それを物理の対象とする「荷電粒子ビーム工学」という研究分野が、本講演を聞くことにより、筆者にとって大変新鮮で興味深いものとなった。今後、理論・数値計算や電子ビームによる模擬実験を踏まえて、大強度高エネルギー重イオンビーム加速器の実現とそれをを用いた実験が期待される

(岩瀬彰宏 記)