

第 69 回放射線科学研究会聴講記

標記研究会は 2019 年 7 月 16 日 (火) 午後 1 時から午後 5 時 10 分まで住友クラブにおいて開催した。今回は最初に昨年度の ONSA 奨励賞受賞者の関本 俊氏 (京都大学) の記念講演に引き続いて、松山英也氏 ((株) ソシオネクスト)、玉木長良氏 (京都府立医科大学)、梶田信氏 (名古屋大学)、堂井真氏 ((株) リガク) の 5 名の講師をお招きして開催した。記念講演及び前半 2 題の座長は児玉靖司大阪府立大学教授、後半 2 題の座長は吉田朋子大阪市立大学教授が務めた。講演会終了後、講師の先生方を囲んで技術交流会を行った。

1. (ONSA 奨励賞受賞講演)

研究用原子炉による放射化分析法を用いた固体地球化学試料中のハロゲン及び微量元素定量

京都大学 複合原子力科学研究所 関本 俊

放射化分析法は微量元素の分析手法として昔から使われている。講師はハロゲン分析の高度化を行った功績により 2018 年度の ONSA 奨励賞を受賞された。本講演はその受賞講演である。

最初に中性子放射化分析法 (Neutron activation analysis: NAA) についての説明があった。次にそれが応用された例として、講師も研究グループの一員であった、小惑星探査機はやぶさが持ち帰ったイトカワの微粒子の元素分析について話された (Science, **33** (2011) 1119-1121)。その後今回の受賞研究について紹介された。

NAA は元素の放射化に用いる中性子や検出に用いるガンマ線の高い透過力を用いて試料を非破壊で分析する手法で、多元素分析を非破壊で行える長所を持つが、試料を放射化させるために、原子炉或いは加速器が必要となり、実験施設に限られることが短所である。

ハロゲン元素は、地殻岩石やマントル物質など、地球化学分野において重要な情報となる。ハロゲンは元素により揮発性が大きく異なることから、1つのハロゲンに対する他のハロゲンの存在度を知ることは、岩石等の生成過程やその後の変成、つまりそれらの地上への堆積や溶融、沈み込みなどの地球化学的な現象を議論する上で役に立つからである。しかし、地殻岩石やマントル捕獲岩などの地球の物質中の、その存在度に関する正確な値はあまり報告されていない。固体試料中の微量ハロゲン元素の定量分析が困難であることに起因する。従来、岩石試料中の微量ハロゲンの定量分析には、誘導結合プラズマ質量分析法 (Inductively coupled plasma mass spectrometry, ICPMS) が用いられてきた。この場合、臭素やヨウ素は、数100~1100℃の過熱水蒸気で処理する熱加水分解 (pyrohydrolysis) 法により、試料からそれらの元素を抽出することにより定量可能であるが、フッ素、塩素の定量は不可能である。一方 NAA では、原理的に4つのハロゲン元素の定量分析が可能である。



図 1 講演中の関本講師

より精度の高い分析を行うには、ガンマ線スペクトル計測の際のバックグラウンドや干渉を減少させるために、中性子照射後の試料に化学処理を施し、目的元素を分離精製して分析する放射化学的NAA (Radiochemical NAA; RNAA) を用いることが有効である。関本博士は、このRNAA を駆使し、その地球化学的に重要なハロゲン元素の分析への応用を進めた。ハロゲン元素は、相互に反応性が微妙に異なるため、地球科学試料中のこれらの元素存在度は、試料の生成過程やその後の変質に対して多様で貴重な情報を与える。このようなハロゲン元素へのNAAへの適用において、関本博士は主にRNAAを改良し、ガンマ線のバックグラウンドの低減やキャリアの利用による精度の向上や化学処理時間の短縮（半減期25分のI-128の分析などで重要）を進めることにより、様々な地球科学試料中のハロゲン元素の正確な定量を実現した。図2はガンマ線測定の際のbackgroundを上げるMnを除去する前とした後の比較であり定量感度・精度の向上がみられる。

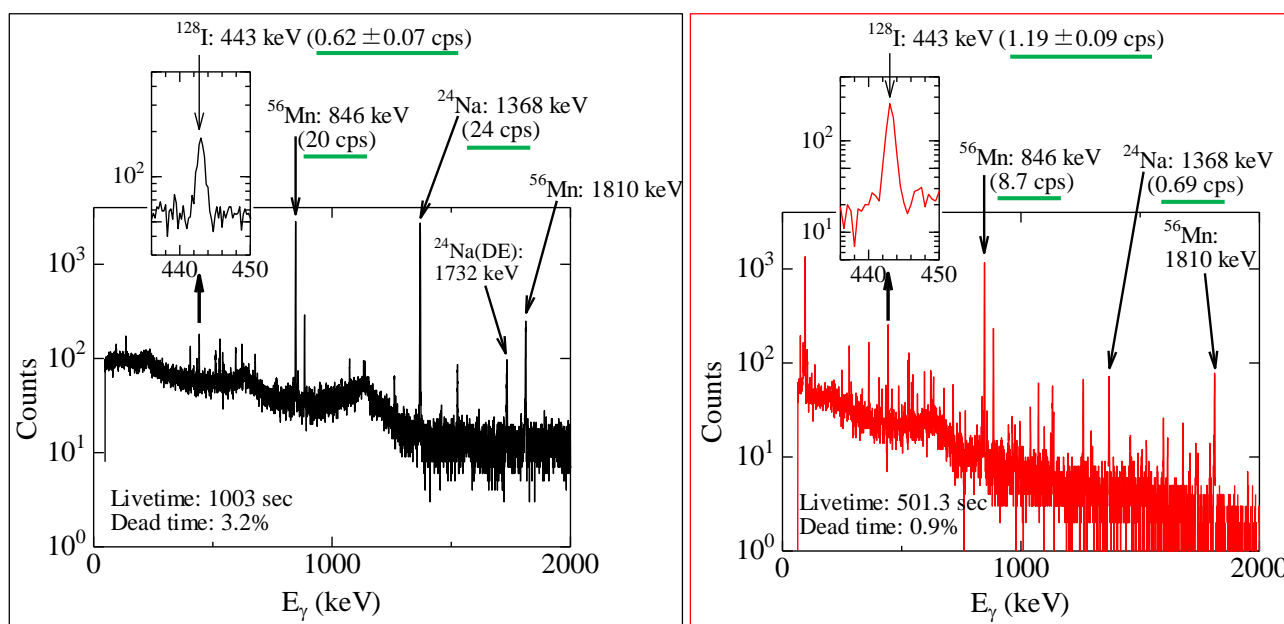


図2 Mnの除去前（左図）と後（右図）でのγ線測定結果の比較

日本の堆積岩標準試料中の微量ハロゲン元素（塩素、臭素、ヨウ素）を開発したRNAA法で正確に定量し、元素分析法として現在汎用的に用いられているICPMSの結果と比較した。その結果、図3に示すように、ICPMS法で得られた同試料中の臭素およびヨウ素の定量値は、RNAAで得られた値と比べて系統的に低い傾向を示した。これはICPMS法を用いる際の試料前処理、熱加水分解過程において、ハロゲン元素が定量的に回収できていないことを明らかにしたものである。図中のJLs-1、JDo-1等は採取された場所を示す。

更に講師は、本法を米国地質調査所が発行する標準物質中のハロゲン元素に適用した。13種・17試料の分析を行ったが、5試料の塩素、9試料の臭素及び全ての試料のヨウ素は講師らのRNAAが最初の報告例であった。一部の塩素、臭素、ヨウ素の報告値との差を指摘し、

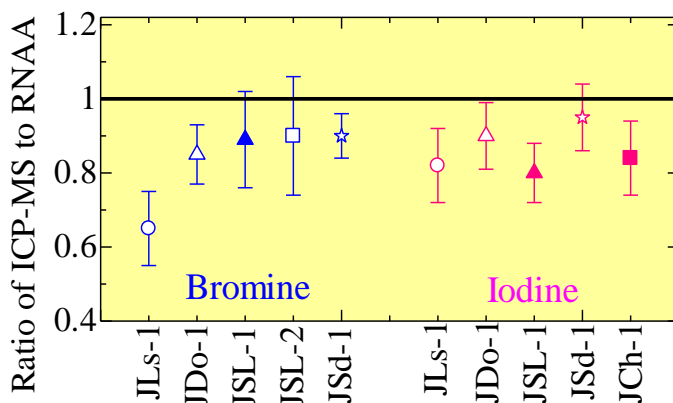


図3 RNAAの値とICPMSの値との比較

その原因を明らかにした。

京大炉は原子力規制委員会による新規規制基準対応のためしばらく休止していたが、2017 年後期より運転が再開した。講師の今後の活躍が期待される。

なお、講師は、2018 年度日本放射化学会奨励賞の受賞者にも選考された。小惑星探査機「はやぶさ」が持ち帰ったイトカワの微粒子の研究は2011年の発表であった。ONSA賞は過去5年以内の研究が対象なので、講師のONSA賞の受賞対象にはならなかったが、講師が μ g オーダの試料を取り扱って測定したものである。講演ははやぶさ2のC型小惑星「Ryugu」(リュウグウ) 再着陸が話題になっている時であり、時宜に合う講演であった。

(義家敏正 記)

2. 放射線が半導体デバイスに与える影響－見えない敵との闘い

株式会社 ソシオネクスト 松山英也

半導体材料に対する放射線照射効果の学術的報告は古くより膨大なデータが蓄積されてきたが、今回の松山講師の講演は半導体デバイス(LSI)のソフトウェアの話題であった。初めにソフトウェアに関する説明があった。ソフトウェアとはメモリーや電子デバイスの情報が全く何の前触れもなく突然反転する現象で、その原因は宇宙から飛来する放射線やデバイスのパッケージの構成材料にある。例えば配線材料の半田にもウランやトリウムなどが自然に含まれている場合があり、ソフトウェアの原因になりうる。ソフトウェアは製品異常とは異なり、電源を入れなおせば修復されて、再現性はないため、対策が難しい。しかしながら、デバイスの微細化、高密度化とともに近年のIoT時代ではあらゆるものが、ネットワークにつながり(Society5.0、図2)、私達の近未来の社会は電子デバイスに依存する生活となり、我が国でも2030年までに自動車の完全自動走行化が計画されている。統計によれば、2017年の世界のデバイスの出荷個数は275億個に上り、2020年には400億個を超えると予測されている。このことは近い将来、私達は命をも電子デバイスに託すことになることを示唆している。その意味でソフトウェア対策は喫緊のテーマである。歴史的には1975年に人工衛星に搭載の電子機器の異常が宇宙線によるものという報告があり、3年後の1978年にIntelからDRAMの α 線由来のソフトウェアが報告されて地上におけるソフトウェアが広く知られることとなった。1996年には富士通やIBMの研究によって中性子線によるソフトウェアの発生が報告された。近年の集積化により単ビットの異常に止まらず複数ビットの異常が生ずることもあり、ハードエラーの原因ともなる。ソフトウェアによる障害例はいくつか報告されている。大規模なものとして2000年にSun Microsystemsのワークステーションが原因不明のクラッシュをきたし複数の顧客に影響が出て、その原因究明対策に一年を要した。最終的にIBM社のSRAMの宇宙性由来のソフトウェアと結論された。また、2008年にシンガポールからオーストラリアに向かっていたカンタス航空の航空機が高度37,000フィートを飛行中に慣性基準装置に異常を生じて急降下し、機体自体には損傷はなかったものの、シートベルトを外していた多くの乗客が天井に身体をぶっつけ、客室内装備にも被害が出た事故があった。300頁以上もある事故調査報告書では、断定はされていないものの、ソフトウェア以外の可能性はあり得ないあるいは非常にあり得ないとされた。



図1 講演中の松山講師

記憶に新しい例として、横浜のシーサイドラインの逆走事故があるが、現時点では制御装置の断線とされているものの確率は低いがソフトウェアの可能性も残される。

斯様にソフトウェアは、頻度は小さくとも、社会基盤を揺るがしかねない事態を招きかねないため、その対策は必須となる。ソフトウェア対策に要求される信頼度は極めて高く、車の機能安全規格の最高位ではシステムは 10[FIT]である。ここで FIT とは 10^9 時間 (約 11 万年) あたりのデバイス 1 個あたりの平均故障率を意味する。すなわち 10[FIT] はデバイス 1 個あたりの故障発生率は 10^8 時間あたり 1 個の割合となる。一見天文学的数字に思えるが、デバイスの高密度化に伴い、その個数が 10 万個であれば、わずか 1000 時間あたり 1 回の故障頻度となり、現実的数字である。しかしながら実験的にそれを検証するにはたとえば 100 万個のデバイスを 100 時間稼働させる必要があり、実験には加速試験が必要となる。阪大核物理研究センターには地上における中性子のエネルギープロファイルと同等のプロファイルで 1 億倍の個数の中性子を発生できる加速器があり加速試験に対応可能である。理研のスーパーコンピュータ

「京」の開発には講師の所属する富士通グループが協力したが、開発前に同所での試験を行い、コスト増や開発遅延をきたすことなく「京」を完成できたとのことである。オンサの見学会では昨年秋に阪大核物理センターを訪れた際にその装置を実際に見ていたので印象深かった。「京」の運用は間もなく終了し、後継機である「富岳」にバトンタッチされるが、おそらくその開発にも生かされていることと思う。

講師が最後のまとめで強調されたように電子デバイスは量のみならず、社会のインフラにとってますます重要となっている現在では、放射線との闘いは継続し、従来看過されてきたような宇宙線由来のミュオンの影響に対する影響も対策として必要となる可能性も高い。産学の協力が一層望まれる。

(大嶋隆一郎 記)

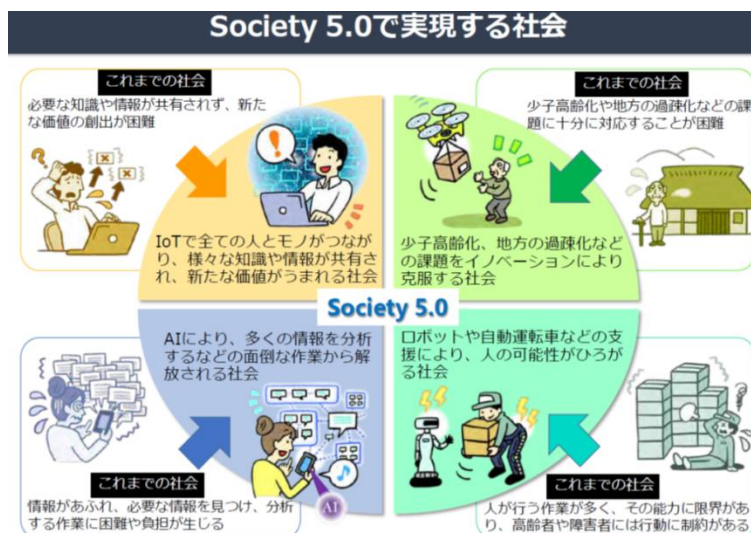


図2 Society5.0 で実現する社会 (内閣府 HP)

5.ソフトウェア対策

成功例(性能世界一を達成)



スーパーコンピュータ「京」を富士通のサーバ部門とデバイス部門(現ソシオネクスト社)の協力で、RCNPでの加速試験により問題がないことを事前に確認でき無駄なコスト増、開発遅延等を発生させることなく、予定通り性能世界一を達成出来た。

Copyright 2019 35 socionext

図3 ソフトウェア対策成功例(京)

3. PETを用いた新しい放射線治療

京都府立医科大学 放射線医学教室 玉木 長良

ポジトロン断層撮影法 (PET) は、生理的・生化学的機能情報の定量的映像化に優れた画像診断法であり、特にがんの診断・評価に広く利用されている。診断機器としてのPETの特徴は、高感度、高分解能であり、定量性が高いこと、さらに、生理的・生化学的イメージングができることにある。最近のPET検査の主な用途は、脳における神経伝達物質受容体の検査、心臓における血流の検査、及びがんの診断等である。がん細胞では、正常細胞に比べて多くのブドウ糖を消費する特徴がある。PETによるがん診断ではがん細胞のこの特徴を利用し、ポジトロン放出核種の¹⁸Fでラベルしたブドウ糖の類似物質であるフロデオキシグルコース (¹⁸F-FDG) のがん細胞への取込みを検出する。がん病変部位におけるFDG集積を定量的に評価するために、病変部位における最大放射能濃度 (Bq/ml) を体内平均放射能濃度 (Bq/g) で除した値 (SUVmax) を指標として用いる。もし、投与した¹⁸F-FDGが体内に均一に分布するとすれば、この値は1になる。したがって、ある部位でSUVmaxが1より大きくなれば、¹⁸F-FDGがその部位に集積していることを意味している。この値は、病変の活動性や治療効果判定、さらに予後の推定等に使うことができる。現在では、FDGを用いたPET (FDG-PET) は、悪性腫瘍の治療効果判定、さらには放射線治療計画への応用などに大きく貢献している。例えば、肺がんの症例では、術前にPET検査を行うことによって40%の症例で治療方針が変わるという報告がある。さらにがんの治療効果の判定においても、肺がんの放射線化学療法を行う前と後でFDG集積の変化を調べると、全ての症例で治療後にSUV値の低下が見られることが報告された。すなわち、これは、SUV値が治療効果を示す優れた指標になっていることを示している。悪性リンパ腫、食道がん、肺がん、頭頸部がん、子宮頸がんについて調べると、治療後にSUV値が大きく下がっている場合には予後が良いが、反応が小さかった場合には予後が悪いという結果が得られている。最近では、最適ながん治療法を選択するために、FDG-PETが活用されている。この場合、治療前にPET検査を行い、さらに治療途中でPET検査を行う。その結果、SUV値の変化が大きく、効果ありの判定では治療を続行するが、効果なしの判定では、治療方針の変更を検討する。それが患者さんのQOLを高め、



図1 講演中の玉木講師

図1 講演中の玉木講師

核医学診断から内用療法へ(Theranostics)

| | 画像診断用 (γ線) | 内用療法 (β線 α線) |
|---------|-------------------------------------|---------------------|
| 甲状腺がん | I-123, I-131 scan | I-131 |
| 褐色細胞腫 | I-131 MIBG scan | I-131 MIBG |
| 神経内分泌腫瘍 | In-111 Octreoscan Ga-68 DOTATATE | Lu-177 DOTATATE |
| 前立腺がん | Ga-68 PSMA* | Lu-177, Ac-225 PSMA |
| 悪性リンパ腫 | In-111 Zevalin# | Y-90 Zevalin |
| 骨転移 | Tc-99m MDP | Sr-89, Ra-223 |

*PSMA = Monoclonal antibody to prostate-specific membrane antigen

#Zevalin = ibritumomab tiuzetan (monoclonal antibody to CD-20)

NEJM 369: 213-23, 2013

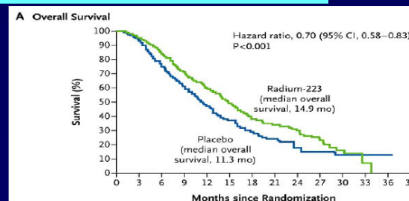


図2 Theranostics の適用例

それが患者さんのQOLを高め、

予後の改善につながることになる。これまでのPETとCTを組み合わせた画像診断を用いた放射線治療計画について、その利点と課題をあげると、利点としては、1) 腫瘍周囲の正常組織への線量を低減化できる、2) 周囲の浸潤病変への効果的な放射線照射ができることがあげられる。一方、課題としては、1) FDGの非腫瘍病変や生理的な集積との区別、2) FDGが集積しない腫瘍への応用、3) 呼吸による臓器変動への対処等があげられる。今後のPET-CTを利用した放射線治療計画として、CTで腫瘍の位置、FDGを用いたPETで腫瘍の活動量、さらにFMISO (^{18}F -fluoromisonidazole) を用いたPETで腫瘍の放射線感受性をそれぞれ把握し、これらの情報を総合して治療にあたるのが可能になってきている。最後に、theranosticsについて紹介する。これは、therapeutics (治療) とdiagnostics (診断) を合わせた造語である。がんの診断だけではなく、放射性核種からでる α 線や β 線を内用療法として利用するものであり、甲状腺がんや転移を伴った前立腺がん等で驚くほどの治療効果をあげていることが最近報告され、注目を集めている。日本ではまだ使えない放射性核種もあるが、theranosticsは、今後ますます普及していくがん治療法と考えられる。最後にまとめると、1) PETは、がんの診断だけではなく、治療効果判定に優れ、治療戦略に有効である、2) 低酸素イメージング等のPET画像から得られる情報は放射線治療に大いに貢献すると期待される、3) Theranosticsは、新しい内用療法としてがんの診断と治療を結ぶ架け橋となる。以上のように、玉木講師による本講演は、がんの診断を超えたPET利用の拡大と放射性核種を用いた診断と治療の融合等の新しいがん治療法進展に関する最新情報を紹介するものであり、講演後の質疑応答も活発に行われた。

(児玉靖司 記)

4. ヘリウムプラズマ照射による金属材料の表面改質

名古屋大学 未来材料システム研究所 梶田 信

タングステン (W) へのヘリウム (He) プラズマ照射によって W 表面に繊維状のナノ構造 (fuzz) が発見されて以来、梶田先生の研究室では直線型装置 NAGDIS-II を用いた照射実験により繊維状のナノ構造形成条件について詳細に調べられてきた。タングステンにおいては、表面温度 1000-2000K、He 入射エネルギー及びフルエンスはそれぞれ 20-30eV、 10^{25} m^{-2} 程度である時に、He バブルを内包した繊維状のナノ構造が形成される。梶田先生は、様々な金属にヘリウムプラズマ照射を施し、既にモリブデン、タンタル、ニッケル、鉄、レニウム、ロジウム、ルテニウム、イリジウム、白金、ニオブ、バナジウムで繊維状ナノ構造化が起こることを見出している。

実際の核融合炉でこの繊維状ナノ構造体が形成されるか否か、またナノ構造化のメカニズムに関しては現在も結論がついていないが、少なくとも初期のプロセスは、ヘリウムバブルの形成と深く関連しているようである。例えばヘリウムプラズマの入射エネルギーが 100 eV より低い場合、タングステン表面へのヘリウム原子の侵入深さは数 nm 程度であるが、その後ヘリウム原子がタングステンマトリックス中で拡散して、より深い領域へと移動しながらヘリウムクラスターやバブルが形成されていく。ヘリウムフルエンスの増加に伴い、表面にピンホールや凹凸が形成され、その後繊維状のナノ構造が形成されていくと説明されていた。



図1 講演中の梶田講師

梶田先生はナノ構造化に伴う様々な物性変化についても詳細に調べている。繊維状ナノ構造層の厚みが $3\mu\text{m}$ 程度になると多孔度は約 95%、表面積はヘリウムプラズマ照射前に比べて 20-30 倍に増加する。またタングステンでは熱伝導度は 2 桁減少し、仕事関数は 0.5 eV 程度増加することも実験的に評価されている。またナノ構造化することで金属材料は黒色へと変化し、紫外から近赤外までの光をほぼ全て吸収するようになる。

最近、梶田先生は、ナノ構造化に伴う表面積や光吸収率の増大に着目し、ヘリウムプラズマ材料の光触媒への展開を図っている。例えばナノ構造化したタングステンを大気中で部分的に酸化させた試料を用いると、メチレンブルー脱色反応を光触媒的に進行させることができる。特筆すべき点は、この反応が近赤外光照射によっても進行することであり、W-WO₃ ナノ構造界面が重要な役割を果たしているようである。他にもニオブ、バナジウム、チタンの繊維状ナノ構造体を用いた、メタノール水溶液からの水素生成やエチレン分解反応にも成功され、これら金属ナノ構造体に他の異種金属酸化物を堆積させたハイブリッド光触媒の作製など、研究テーマを益々拡張されている。金属材料のプラズマ照射効果に関する物理学的基礎研究から機能性材料化学への応用まで、梶田先生の幅広い研究を大変興味深く聴講させていただいた。

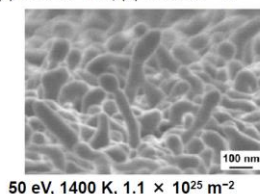
5. リガクの製品紹介と業界動向

リガクといえば、すぐ X 線回折計を思い出すほど、私達にはなじみのある企業である。堂井講師はまずリガクの紹介をした後、現在講師が主に担当している蛍光 X 線分析装置のリガクのラインアップとそれを支える要素技術に関して講演を行った。リガクの創始は 1951 年で、当初は理学電機と称しており、すでに 70 年近い歴史を有している。1961 年になって大阪高槻に兄弟会社として理学電機工業がスタートした。オンサの歴史をひも解くと、発足当時の理事にすでに理学電機工業のお名前が残されている。その後、1986 年に販売会社としての株式会社リガクが設立され、2004 年に理学電機とリガクが合併、さらに 2008 年に理学電機工業が合併して現在のリガクが誕生した。同社は国内のみならず、世界中で事業を展開し

ナノ構造形成のフルエンス依存性

- Pin-holeが出来る。
- ロッド状の構造が形成される。
- (掘られるプロセス + 伸びるプロセス)
- ナノ構造化する。

He fluence: (a) $6 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$, (b) $1.1 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$, (c) $1.8 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$, (d) $2.4 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$



50 eV, 1400 K, $1.1 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$

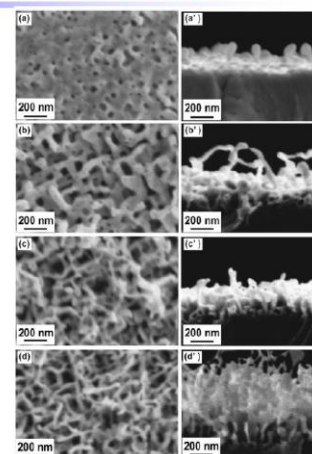
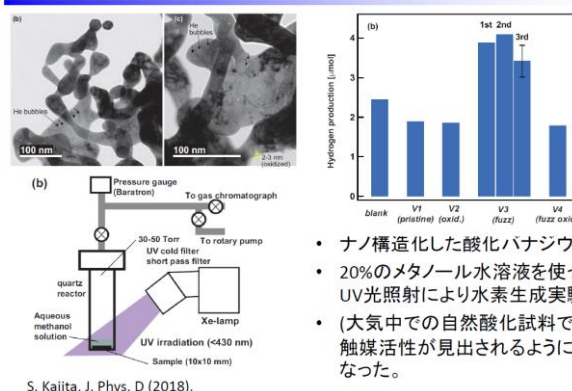


図2 ナノ構造形成のヘリウムフルエンス依存性

酸化バナジウム ナノ構造化により、光触媒活性が発現



- ナノ構造化した酸化バナジウム。
- 20%のメタノール水溶液を使ってUV光照射により水素生成実験。
- (大気中での自然酸化試料で)光触媒活性が見出されるようになった。

S. Kajita, J. Phys. D (2018).

図3 ナノ構造化による光触媒活性の発現例

(吉田朋子 記)

株式会社 リガク 堂井 真



図1 講演中の堂井講師

ており、アフリカを除く5大陸に海外支社があり、サービス体制も整っているようである。現在リガクの製品は、大学・研究機関における基礎研究からあらゆる産業分野での工程管理分析などに利用されているが、唯一医療分野にはあえて進出していない。それは企業の方針とのことである。リガクのコア技術は大別して1. X線解析、2. イメージング、3. 非破壊評価、4. 熱物性評価、5. レーザー分光である(図2)。

この中で高槻の支社が担当する蛍光X線分析の特徴は(a)迅速である、(b)非破壊である、(c)化学状態に影響されない、(d)同族元素の分析が可能、(e)分析元素範囲が広く精度が良い、(f)定性分析が容易、(g)厚さ測定が可能(反射率利用)、(h)試料準備が容易などが挙げられる。これらの特長から応用範囲は全産業にわたっており、原材料の分析から製品の工程管理、廃棄、リサイクル材の分析まで多岐にわたっている。分析の原理はX線を照射された試料から励起される特性X線を測定

して試料中の構成元素を定量決定するが、測定方式には波長分散型とエネルギー分散型がある。図3は現在リガクから市場に出ている蛍光X線分析装置のラインアップである。波長分散型は元素の分別能力が高く、高係数率にも対応し安定度も高いが、装置が大型となり、高価格である。それに対してエネルギー分散型は小型で価格も低い。

蛍光X線分析装置はX線発生装置、分光器、X線検出器・計数回路、データ解析部から構成される。

X線発生装置はX線管と高圧電源で構成され、X線管には高輝度、安定、長寿命が要求される。西播磨のSPring-8に代表される大型放射光施設は別にして、一般の実験室では回転対陰極型が高輝度X線源として主流である。筆者の学部の卒業研究時代にはまだ一部のX線発生装置のターゲットは電気メッキで自作していたことを思うと隔世の感があるが、現在のX線発生方法はほぼ

限界にきているとのことであつた。波長分散型に用いられる分光結晶には単結晶と人工多層膜が使用されるが、目的にかなった最適の結晶作成(結晶加工)がノウハウになっているようである。効率よく散乱X線を集光させるためには、分光結晶を湾曲させることが行われるが、近年は縦横両方向に湾曲させる技術の進展に伴って両面加工可能な結晶の種類が増えている。一方では天然には存在しない大きな面間隔の人工多層膜分光結晶が、軟X線の分光に利用されるようになり、軽元素の分析能力が大幅に向上した。技術の進歩はすばらしいと感じる。散乱X線の検出器には波長分散型では主にシンチレーション検出器あるいは比例計数管が使用され、エネルギー分散型では半導体検出器が用いられるが、高価なので、特定の用途には安価な比例計数管が代用出来る場合もある。

今回はエネルギー分散型装置に関しては詳しく触れなかったもので、改めてデータ解析の手法と併せてご講演頂けることを期待している。
(大嶋隆一郎 記)



図2 リガクのコア技術と事業領域の紹介

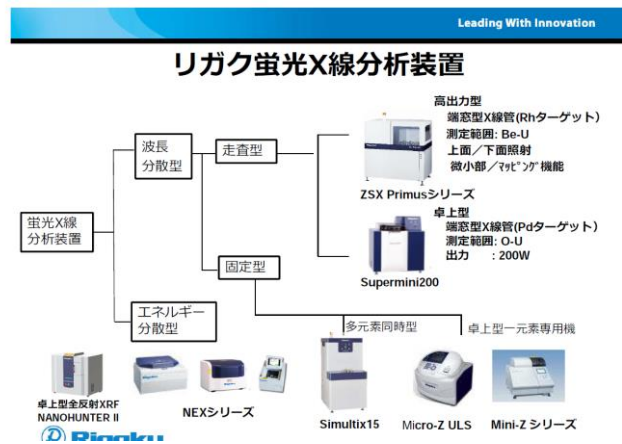


図3 リガクの蛍光X線分析装置のラインアップ