

特別講演

重粒子線検出のための原子間力顕微鏡によるトラック観察

横山 明彦*

Observation of etched tracks with atomic force microscope
for heavy-particle detection

Akihiko Yokoyama*

* 金沢大学 (教授, 理工研究域), Kanazawa University.

はじめに

固体飛跡検出器は様々の分野で, 放射線計測に利用されてきており, 特徴を生かした使われ方がされてきた. しかし核反応機構に関する研究には比較的利用例は少ない. 個人的には学生時代に雲母片を用いて停止負パイオンによる²⁰⁹Bi核の核分裂断面積測定 [1] に関わったことがあり, 残留放射能測定等の結果と併せて, 負パイオン吸収による原子核の励起エネルギーを見積もることに成功した. この経験が私にとって核反応研究における固体飛跡検出器利用に関わる重要な契機となった.

固体飛跡検出器とは, 雲母, 石英, ポリカーボネートなど絶縁性固体を使用し, そこにアルファ線などの放射線が入射して残った放射線損傷 (飛跡) を利用する手法である. この手法は一般にエネルギー分解や粒子弁別にはあまり適さないが, 最近では比較的エネルギー分解能の良いCR-39検出器 (アリル・ジグリコール・カーボネート重合体) が利用できるようになった. いずれにしろ化学処理によるエッチングによって飛跡を観測できるようにすること, 生成した穴 (エッチピット) を観測する事で荷電粒子の情報を得ることが基本となる.

一般に荷電粒子の物質中の阻止能は, 荷電粒子の運動エネルギー (E), 核電荷 (Z), 質量数 (A) の関数として知られる. よって原理的には飛跡部分の阻止能 (=局所的に粒子が落としたエネルギー) が固体飛跡検出器の飛跡部分の観測から得られれば, 検出器に入射した荷電粒子の情報が得られることになり, 粒子弁別への応用が期待される. また, エッチピットの形状 (深さおよび開口面積など) は飛跡部分と検出器部分のエッチング速度比の関数である. この速度比は損傷度 (阻止能) と直接的な関係にあるので, 必要とするエネルギー領域でCR-39についてこの関係

を求められれば, 阻止能を推定できることになる.

エッチピットの観測方法は, 光学顕微鏡が一般的に用いられている. これは光の屈折を利用し形状を観測するが, 分解能は1 μm 程度であり, 深さ方向の観測が難しい. 一方, 最近では原子間力顕微鏡 (AFM) を利用する方法も可能となり, nmオーダーの形状がわかるので, 短時間のエッチングで3次元情報の観測が容易になった. これにより, 事象の位置間隔が狭い, 高密度のエッチピットでも測定できるだけでなく, 長時間のエッチングでは情報が失われてしまうような飛程が小さい事象の情報の取得が可能になった. しかし現在のところこの手法が核反応生成物の観察に利用された報告例は多くない.

図1は, 金ターゲットにXe-129重イオンを照射したときに生成する核反応生成物について, 放射化法とよばれる手法, つまり照射後の残留放射能を測定することで生成物の定量をする手法によって生成物取率 (生成断面積) を測定した例 [2] である. この図でわかることの一つは質量数40以下のプロット点が少ないことであり, これは軽い生成物に測定可能な程度に長い半減期をもった生成物が少ないことを反映している. これらの反応生成物はフラグメンテーションによると考えられ

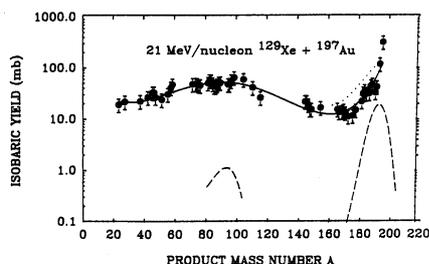


図1 ターゲットとキセノンイオンによるフラグメンテーション生成物の質量分布 [2]

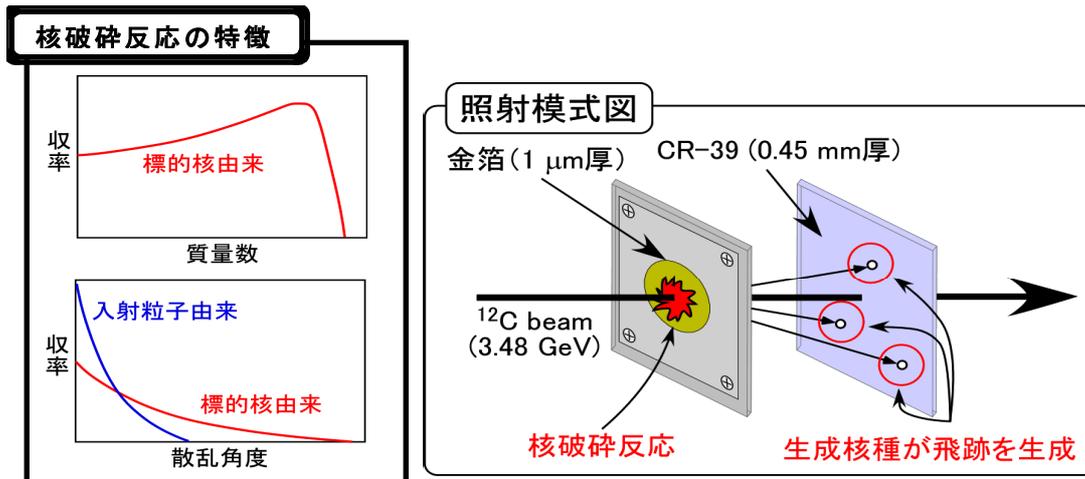


図2 核破碎反応の特徴と照射の模式図

るが、簡易に測定することが難しく、現在このような反応を利用する不安定核利用が盛んになりつつあるが、その見積りのために必要なデータが不足している。

本研究の目的は核反応によって生成する、核子当たり数MeVから数十MeVの領域（これは先に述べたフラグメンテーション生成物のエネルギー領域に相当する）での、固体飛跡検出器を用いた重粒子の弁別法の確立にある。放射壊変を前提としないこの測定法は、生成物の半減期によらず、放射化法の測定に対して相補的な役割を果たしうると期待できる。ただし、ここで注意して置きたいことは、固体飛跡検出では阻止能を見積もることしかできないため、質量、電荷、エネルギーをそれぞれ独立に決定できるわけではない。そのため、例えばフラグメンテーションのように質量と電荷、エネルギーがある程度相関することが分かっている反応について、例えばある領域の質量の平均値のような値を求めることが期

待できる最大の結果であろう。しかし、このような分解能が悪い分布であっても、様々な反応系についてデータを蓄積できれば重要なデータとなると期待している。

光学顕微鏡による飛跡検出（重イオン核破碎反応実験）

放射線医学総合研究所の重粒子照射施設において、高エネルギー重イオン粒子を真空下で金箔などの標的に照射し、核破碎反応生成物による損傷をCR-39に残す実験を行った。図2（左）は核破碎反応（フラグメンテーション）による生成物の質量分布と散乱角度分布の模式図を示し、図2（右）は照射の様子を示した。フラグメンテーションは入射粒子が壊れて生成するものと標的核が壊れて生成するものがある。それぞれで分布が異なる。表1は同研究所にて行った照射の一覧で、Au,Nb,Cuの3種類の標的核に対してArイオンまたはCイオンの照射を行った。

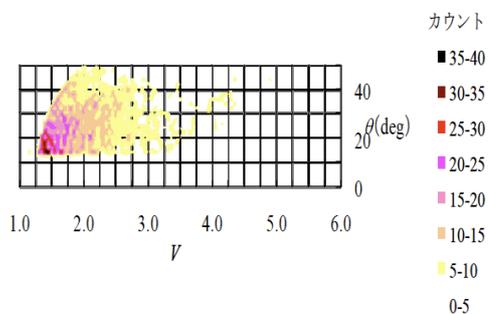


図3. 光学顕微鏡を用いて測定した、エッチング速度比と散乱角度の相関（650.4 MeV $^{40}\text{Ar} + ^{197}\text{Au}$ 反応の場合）

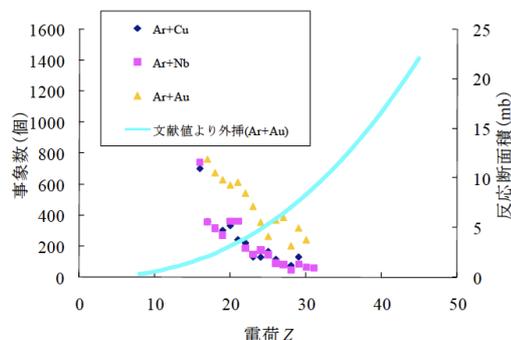


図4 Arイオンによる各反応系の生成物電荷分布

表1 実験に用いた反応系

標的	照射イオン	エネルギー $E_{lab}(A \text{ MeV})$	総入射粒子数 $/10^{10}$
Au	^{40}Ar	650	6.6
Nb	^{40}Ar	650	6.6
Cu	^{40}Ar	650	13
Au	^{12}C	400	4.7

図3は、光学顕微鏡を用いて測定した、エッチング速度比と散乱角度の相関を示したもので、何本かのラインが左下から右上に伸びて見える。角度の小さな領域で明らかに速度比が小さい、つまりエネルギーが大きくなる傾向を示しており、この傾向から、観測しているものの主体が入射粒子由来と考えられる。

図4はArイオン照射で観測された事象の電荷分布の推定結果を以前の放射化法によるAr+Auの実験結果の外挿値と比較したものである。これを見ると飛跡検出器では電荷の大きい成分は検出効率が悪いことがわかる。これは飛程が短いためエッチングによってエッチピットが失われたと思われる。図5はC+Auの系の場合であるが、同様に電荷が大きくなると観測できなくなる様子がわかる。

以上の結果をまとめると、光学顕微鏡を用いた測定において、エッチング速度比と散乱角度の相関が確認され、入射粒子由来生成物を測定できた。しかし、核電荷が大きい成分は、飛程が短くなるので、エッチングで消えている可能性がある。つまり、エネルギーの低い成分、質量（あるいは核電荷）が大きい成分が測定されていない。もう一つの問題はさしあたりいくつかの指標に基づいて同定を行ったが、再現性のある同定の

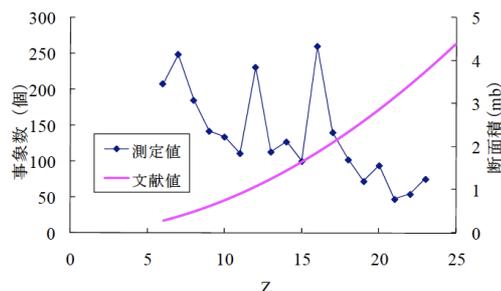


図5 C+Au反応系の生成物電荷分布

方針が確立されてない。そこで、次のステップとして、エッチングが少なくても観測可能な原子間力顕微鏡 (AFM)を利用することとし、エッチング条件の最適化を図りながら、較正実験と照射試料の測定を試みた。

原子間力顕微鏡による飛跡観察

既知の核電荷、質量数、エネルギーを持つ粒子をCR-39に打ち込み、そのエッチピット形状をAFMで観測する実験によって、標準データを取得する。また、同じくAFMで測定した核破砕反応生成物の事象について観測し、標準データを利用した同定を試みた。

若狭湾エネルギー研究センターのタンデム加速器による ^{12}C 粒子を真空下でAl箔に照射し、弾性

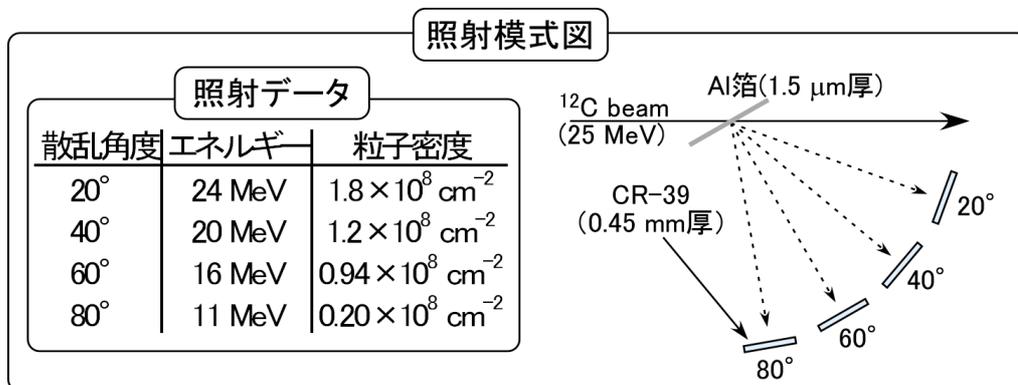


図6 若狭湾エネルギー研究センターのタンデム加速器による照射実験の模式図

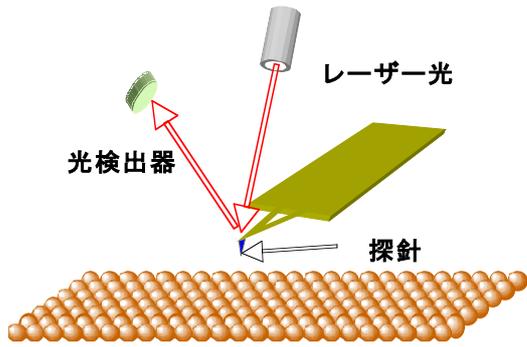


図7 原子間力顕微鏡の測定原理

散乱された ^{12}C 粒子をCR-39に打ち込んだ。散乱された粒子は散乱角度によって決まったエネルギーを持つので、既知の核電荷、質量数、エネルギーの損傷をCR-39に残し、損傷度合いとエッチピットの大きさの関係をj得ることができる。(図6参照)

この実験に先立って粒子の運動エネルギーの違いによるエッチピット形状の変化を予測するため、予めSRIMコード[3]によって阻止能の見積もりを行った。この手法では表面だけをエッチングするので、表面部分の阻止能が重要になる。エッチング条件の最適化を図りながら、この損傷度合いの違いとエッチピット形状を比較し、校正の方法を確立することが必要となる。計算結果からエネルギーの増加に伴い、阻止能の減少が期待された。

原子間力顕微鏡の原理について、図7に示した。カンチレバーと呼ばれるシリコン製のチップの先端にレーザー光が当たっており、光検出器が反射光量を検出する。カンチレバーには非常に鋭利な先端を持つ探針が付いており、探針を試料に近付けると両者の間に原子間力による引力や斥

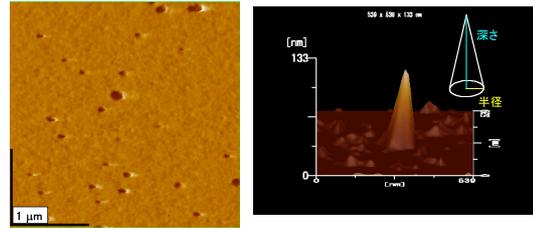


図8 原子間力顕微鏡による観測画像

力が働く。ここで光検出器が検出している光量は電圧として変換され、印加電圧によって伸縮するという特徴を持つピエゾ素子に送られている。探針が原子間力の働く力を一定に保つことによって試料との距離を維持しようとするのに対し、カンチレバーは固定されているため、試料表面に凹凸があるとカンチレバーは上下に反る。これによって光検出器への反射量が変化し、試料台への印加電圧も変化する。すると電圧に応じてピエゾ素子が伸縮して反ったカンチレバーが元に戻るよう設定されている。このようにして試料表面を走査し、印加電圧の変化量から試料表面の凹凸についての画像が得られる。

図8はAFMで観測した画像の例を示した。CR-39の表面画像が左の図で、典型的なエッチピットを拡大した3次元画像(反転し、深さ方向を強調)が右の図である。

粒子較正実験のいくつかのエネルギー(11–24MeV)でエッチング条件を6N-NaOH (45°C)にしてAFMで半径と深さを測定したところ、エッチピット形状にばらつきが大きいことがわかった。一方、エッチピット半径の平均値と損傷量の相関では比較的良い結果を得た。これは核破碎反応生成物の同定に利用できる可能性を示唆した。またエッチピット形状のばらつきについては、短

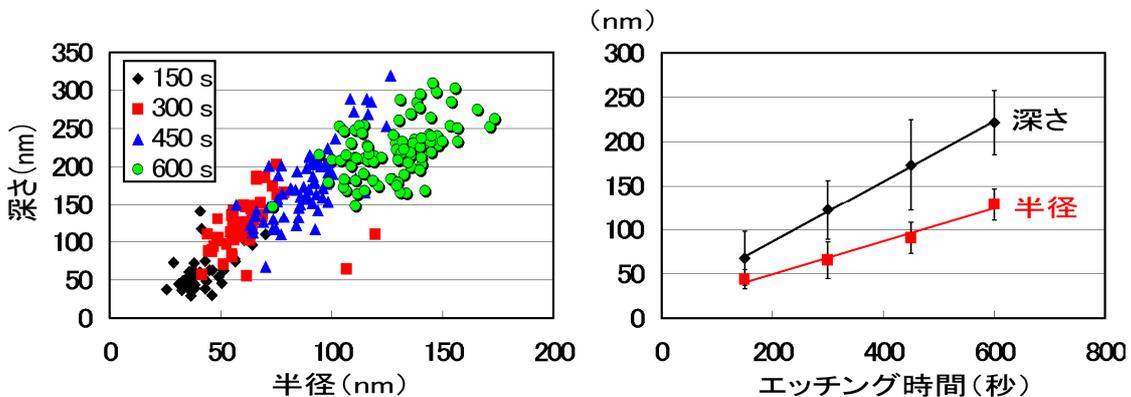


図9 6N-NaOH (70°C)の場合のエッチピット形状分布とエッチング時間に対する形状変化

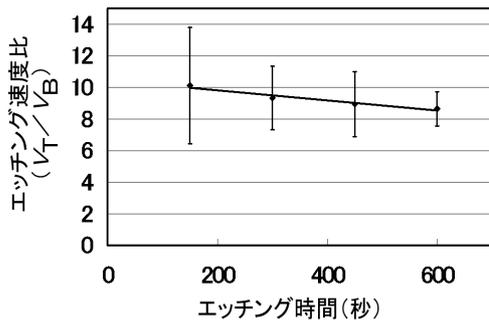


図10 エッチング速度比のエッチング時間依存性

時間のごく浅いエッチングではエッチング条件が大きく影響することが考えられる。そこで粒子較正実験においてエッチング条件を 6N-NaOH (70°C)に変え、またエッチング時間を変えてみた。(図9参照) エッチング温度を上げると形状のばらつきは小さくなった。また深さ、半径とエッチング時間に明確な比例関係が得られた。これは前の条件に対して向上した結果である。この実験によって、精度の高い核反応生成物の同定には

エッチング条件の厳密な規定が必要であることが示された。

粒子較正実験において、深さから算出したエッチング速度比のエッチング時間依存性を見ると、時間と共に減少する傾向が見られた。(図10参照)

放射線医学総合研究所において290 MeV/u ^{12}C + ^{197}Au の実験系でAFMによる観測を行った。図11に示した結果では、28°で飛び出してきた生成物は、100nm以下の半径、深さを持つエッチピットが多く存在し、角度と生成核種の相関が観測されているように見えるが、予想した角度との相関とは一致しなかった。

核破砕反応の系統性から生成物と損傷度合いの相関を算出し、 ^{12}C の較正実験の結果から核破砕反応生成物の粒子同定を行い、その結果を図12に示した。この結果は狭い範囲の質量分布を示し、核破砕反応の生成分布に正確に対応しているとは考えにくいので、 ^{12}C 以外の他の核種についても較正実験を行って、較正の精密化を図る必要があると考えている。

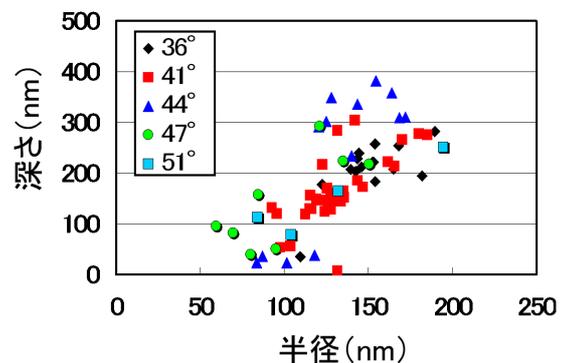
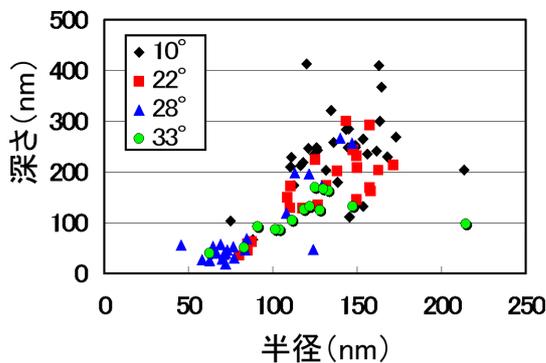


図11 290 MeV/u ^{12}C + ^{197}Au 反応の生成核種のエッチピット形状の相関

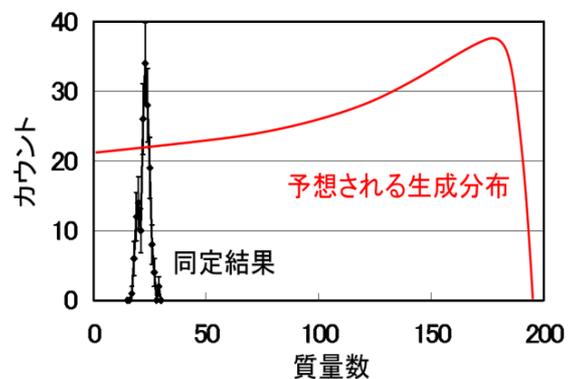
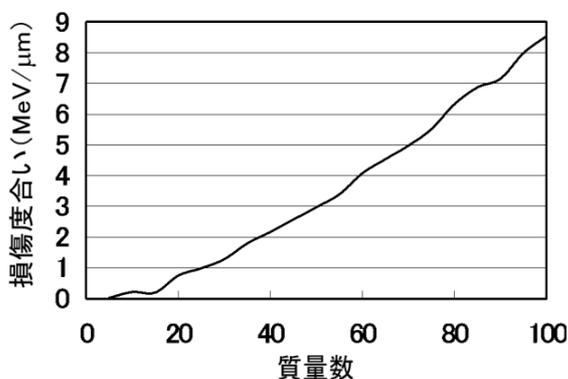


図12 較正実験結果をもとに推定した観測した核反応生成物損傷度合いと質量分布

まとめ

今回の一連の実験で、原子間力顕微鏡によって、エッチング時間の短い10nmオーダーの深さ、半径を持つエッチピットが観測出来ることがわかったが、これらのエッチピットでは、これまで用いられてきた半径とエッチング速度比の関係式が成り立たないかもしれない。なぜなら深さ方向の損傷度合いは一定であると予想されるが、時間と共にエッチング速度比が小さくなっていく傾向が見られた。また、 ^{12}C を用いた較正実験によってエッチピット半径と損傷量との関係が得られたが、一般の核反応生成物への適用性にはまだ問題がある。核電荷、質量数、エネルギーが同じ荷電粒子でも、深さ、半径にばらつきがあり、これはエッチング条件に依存するようである。

文献

- [1] A. Shinohara, A. Yokoyama, S. Moriyasu, T. Saito, and H. Baba, Fission and Particle Evaporation Following Stopped-Negative-Pion Absorption in ^{209}Bi , Nucl. Phys., A456, 701-716 (1986).
- [2] A. Yokoyama, W. Loveland, J. O. Liljenzin, K. Aleklett, D. J. Morrissey, and G. T. Seaborg, Fragmentation of ^{197}Au by 21 MeV/nucleon ^{129}Xe , Phys. Rev. C, 46(2), 647-654 (1992).
- [3] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, The Stopping and Range of Ions in Solids, Pergamon Press, New York, (1996).