

放射線化学への応用

田畑 米穂、東京大学工学部
原子力工学研究施設

序

加速器の利用は放射線化学の基礎研究並びに工業利用と大きく二つに分類される。両分野における内外の現状について紹介し、将来の方向について展望する。

(1) 基礎研究における加速器の利用

放射線の化学効果に関する研究で最も重要なものの一つは、物質中における電子の挙動であり、化学効果を引き起こす前駆体の挙動を明らかにすることである。この研究のためには、短い中のX線、電子線または粒子線のパルスを用いて、短時間中に起る現象を動的に観測する必要がある。この種の研究には加速器が必要であり、最近では多くの加速器がこの目的のために使われている。

さらに、L.E.T.効果に関する研究も重要な研究課題であり、このために重イオン加速器が使用されている。極く最近に到って、L.E.T.効果を動的に観測しようとの試みもなされつつある。

1). X-RayまたはElectron Pulse Radiolysis

多くの研究が過去10数年来なされて来た。使用されている加速器は、LINAC, Van de Graaff および、Fettronである。 $\mu(10^{-6})$ 秒よりスタートして、 $n(10^{-9})$ 秒を経て現在では、pico(10^{-12})秒(正確には 10^{-11} secオーダー)に迫っている。

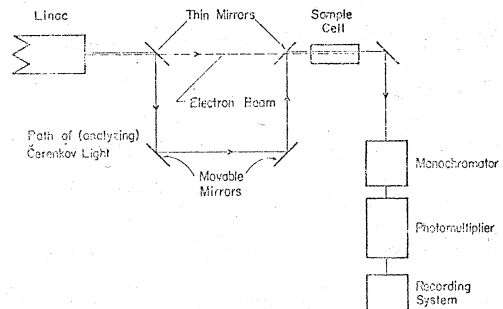


図1. Scheme of detection system for ultrafast pulse radiolysis (technique of Hunt and co-workers). The analyzing light, (thin line) derives from the Cerenkov radiation associated with a "fine-structure" electron pulse (broken line), from the linac passing through air. Unlike the electron beam, the light pulse is made to traverse a variable path between a set of mirrors before entrance into the sample cell. Light and electron pulses traverse the sample cell along the same path (for clearness of presentation they are drawn separated), but their temporal spacing when entering the cell depends on the length of the adjustable optical path length between the mirrors. The optical density of radiolytic intermediates produced by the electrons can be probed at variable time intervals with respect to the electron pulse by measurement of light intensity as a function of light path length.

Pico秒パルスラジオリシスは、カナダのToronto大学、Hunt教授によって始めて実現された。

Stroboscopic方式は、 n 秒パルスに含まれる微細構造(加速用高周波のサイクル数で決まる)を用いて行うものであり、分析光は加速電子が空気を走るとき発生するCerenkov RadiationをBypassさせて用いる。検出系のブロック、ダイアグラムを図1.に、電子の微細構造パルス、分析光シグナルおよび活性種の濃度変化の関係を図2に示す。使用している加

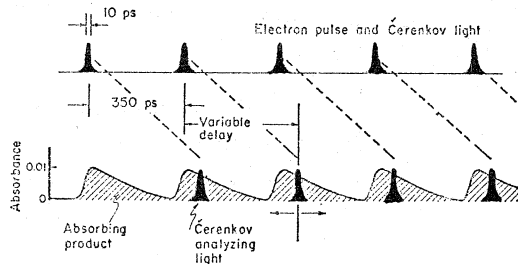


図2. Stroboscopic analysis of ultrafast pulse radiolysis signals. The upper drawing shows a sequence of fine-structure electron, and associated Cerenkov light, pulses after exiting from the accelerator. The lower drawing illustrates the transient absorption induced by the electron pulses in the sample and their temporal relation to the probing light pulses for a particular optical delay setting. Note that the first probing light pulse coincides with the absorption signal of the second electron pulse. (See Bronskill and Hunt.)

速器の性能は次の通りである。

エネルギー 30 MeV以上, 電流 30 nsパルスに対して 1 A, 微細構造パルスに対して約 30 A.
 マイクロ波周波数 2.86×10^9 Hz, 微細構造パルス間中 0.35 ns, ビーム直径 4 mm以下.
 最近, Argonne National Lab.において, Pico秒 Pulse Radiolysis のための加速器が開発された。
 LINACの配置, 構成を図3に示す。

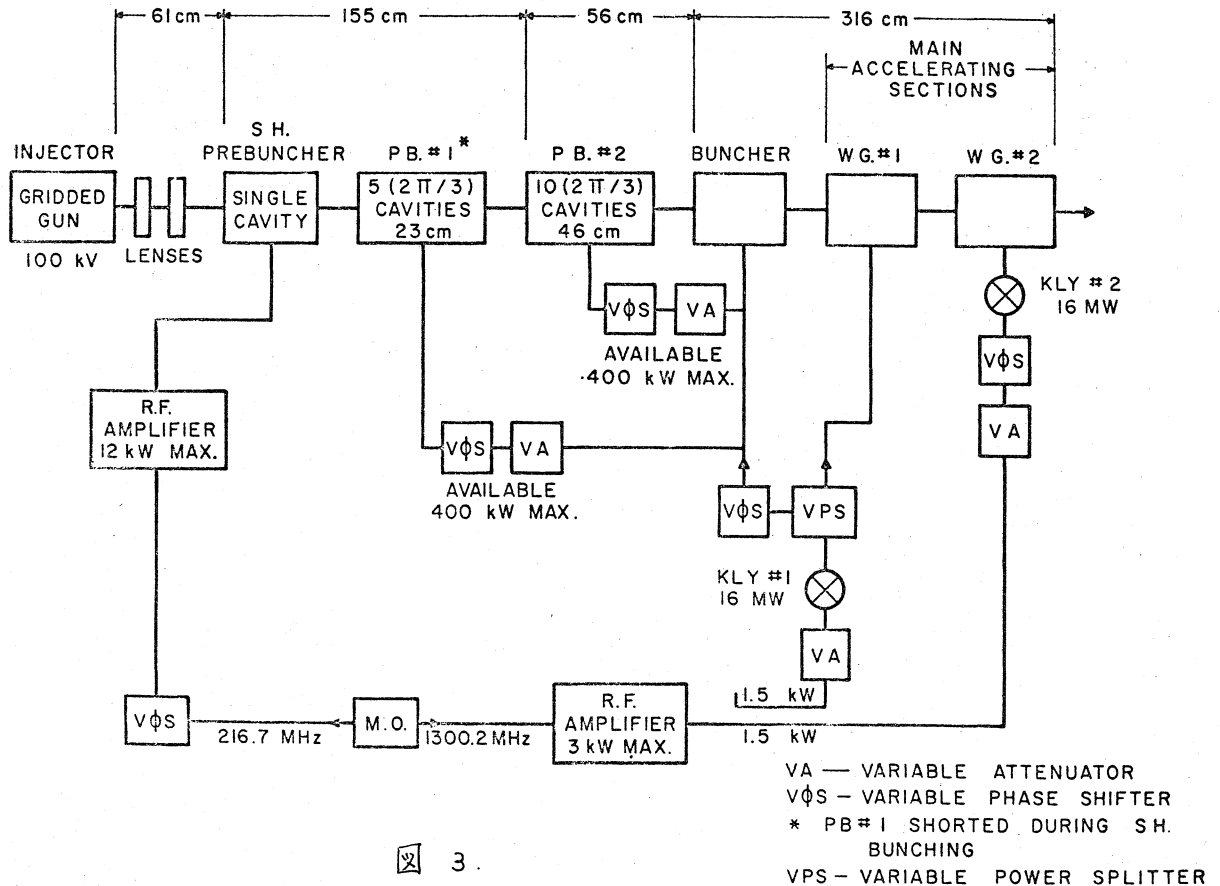
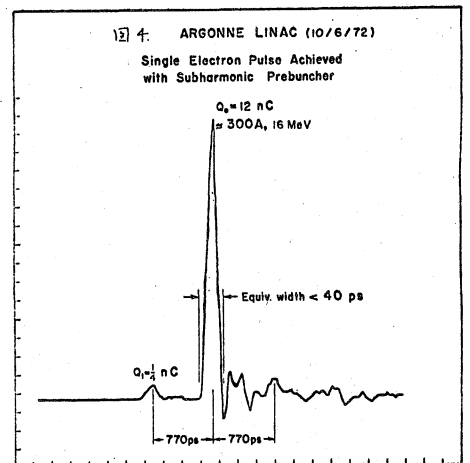


図 3.

sub-harmonic buncherを用い微細構造の一つを単パルスとして取出すことに成功している。その一例を図4に示す。大量の電子を単パルスにバンチすることに成功しており、この結果この単パルスを用いた Radiolysis が可能になり、またこれらを繰返して使う Singl Pulse Straboscopic Pulse-Radiolysis も十分余裕をもって行い得るようになった。後者の系統図を図5に示す。この場合 Čerenkov Radiation をより効率よく出すために、稀ガスのセルを使用している。電子は L-バンドの高周波で加速され、大きい電流値を得ている。



我が国では、北海道大学が S-バンド 45 MeV の LINAC に よって、Pico 秒パルスの装置 完成を目指して積極的な努力 をつづけている。東京大学工 学部原子力工学研究施設では、 高速中性子源炉²やよい。と連 動して、炉のパルス化をする と同時に Pico 秒パルスの Radiolysis を計画して、昭和 49 年度より 建設を進めており、51 年度末 に完成の予定である。LINAC の性能は下記の通りである。

- 過渡モード： 電子ビーム電流 2A, パルス中 10ms, ビーム径 4mmφ, バンチ中 20ps, 電流変動 ± 3%/5min, ± 6%/60min
- 単パルスモード： 出力電荷量 300pC 以上
- 1/6 RF 同期モード： 出力電荷量 1nC 以上 / 微細構造パルス パルス中 10ms

全体の LINAC システムの系統図を 図 6 に示し、フカン図 を 図 7 に示す。

一方、大阪大学産業 科学研究所は、Pico 秒 パルスを取り出す LINAC の建設を昭和 50 年度 よりスタートした。

2) L.E.T. 効果に 関する研究

重イオンを直接試料 に照射して、その放射 線効果について研究 するいわゆる L.E.T.

効果の研究は広く行われているが、研究の量と内容は必ずしも十分とは言えない。諸外国では、フランスの Saclay 研究所の 3GeV プロトンのシンクロ・サイクロンを使った研究、スイスの CERN の 600 MeV のプロトンのシンクロトロンを用いた研究、米国では、エール大学、プリンストン大学およびメリーランド大学の加速器を用いた研究などが挙げられよう。我が国では、理研のサイクロンによる D^+ , He^{2+} , C^{4+} , N^{4+} の照射による研究があり、纏まった研究として注目されよう。

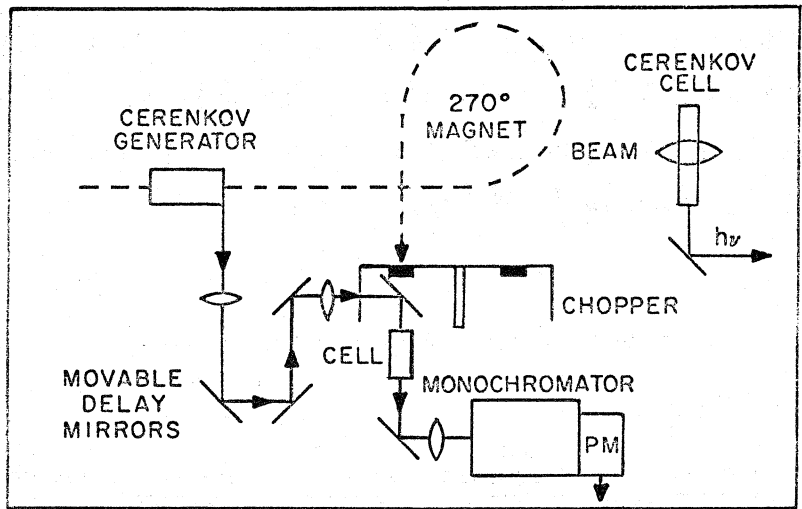


図 5. PICOSECOND PULSE RADIOLYSIS APPARATUS USING CERENKOV ANALYZING LIGHT

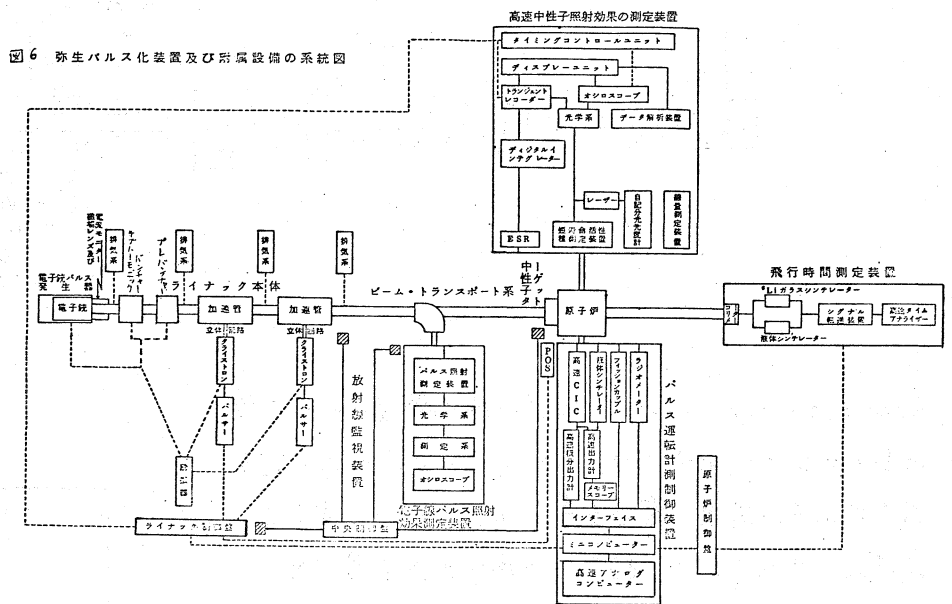


図 6 発生パルス化装置及び附属設備の系統図

3) Heavy Ion Pulse Radiolysis

Argonne National Laboratory のグループにより、サイクロトロンよりの H^+ , D^+ , He^{2+} イオンのパルスを用いた研究が進められており、最初の結果が昨年のも第4回 International Congress on Radiation Research (Seattle) で発表された。生物に対する放射線効果、放射線治療と関係が深く、重要な境界領域における研究課題と云えよう。

4) Fission Neutron Pulse Radiolysis

重イオンは一般に透過性が悪く、Pulse Radiolysisの研究では困難が伴う。高速中性子のパルスは物質中での透過性はよく、 H や D の豊富な系では、これらの原子を反跳により叩き出し、叩き出されて生成した H^+ や D^+ により、凝縮相や固相の原子、分子を内部から照射することが出来る。従って高速中性子パルスの強力なものが得られれば、 $L.E.T.$ 効果を動的に観測、研究することが出来る。 $LINAC$ よりの電子のパルスを高速中性子源炉の炉心に打込み (σ, n) 反応により強力な高速中性子パルスを用いた Pulse Radiolysis が計画されている。前述の「やよい」との連動で得られる高速中性子パルスを利用することを東京大学原子工学研究施設で計画している。

5) 常磁性共鳴吸収測定装置と加速器との組み合わせ

同上装置のマグネットの中心に穴をあけ、加速器より電子線を導入して、空洞共振器内の試料に放射線を直接照射し、生成した不安定なラジカルを放射線照射下に測定するものである。定常濃度法は、米國 Mellon Institute の Radiation Lab. と東京大学の我々の研究室で実現されている。パルス照射による測定実験については、米國 Argonne の研究所において研究が行われている。最近、カナダ、スエーデンなどでこの種の研究がスタートした。加速器としては、バンテグラーフ、ダイナミトロン、線型加速器などが使われている。Mellon Institute で行われている装置の原理図と典型的な実験例の一つをそれぞれ図8, 9に示す。なお、東京大学で行われている研究設備のブロック・ダイヤグラムと、キャビティ部分のデウアイスをそれぞれ図10, 11に示す。プラスチック・クリスタル中における不安定ラジカル種や、氷中におけるH原子の挙動について、新しい知見を得ている。

6) SORの利用

高エネルギー電子のストレージ・リングよりの軌道放射線の放射線化学への応用が他の多くの分野での利用とともに計画されているが、詳しい紹介が同シンポジウムでも行われるので省略する。次に我が国における放射線化学の基礎研究での加速器利用状況を簡単に紹介する。

a) $LINAC$ …… 北大、東北大、京大原子炉、大坂研、原研(東海)、名工試、

東京原子工学研究施設(建設中)、阪大産研(昭和50年度スタート)

b) サイクロトロン …… 理研

c) Van de Graaff …… 理研、原研(大阪、高崎)

d) ダイナミトロン …… 東大

e) Febtron …… 東北大、原研(高崎)、東工大、理研(0.6 MeV)、名大、東大(1.8 MeV)。

Ⅱ 応用分野における加速器の利用

省略

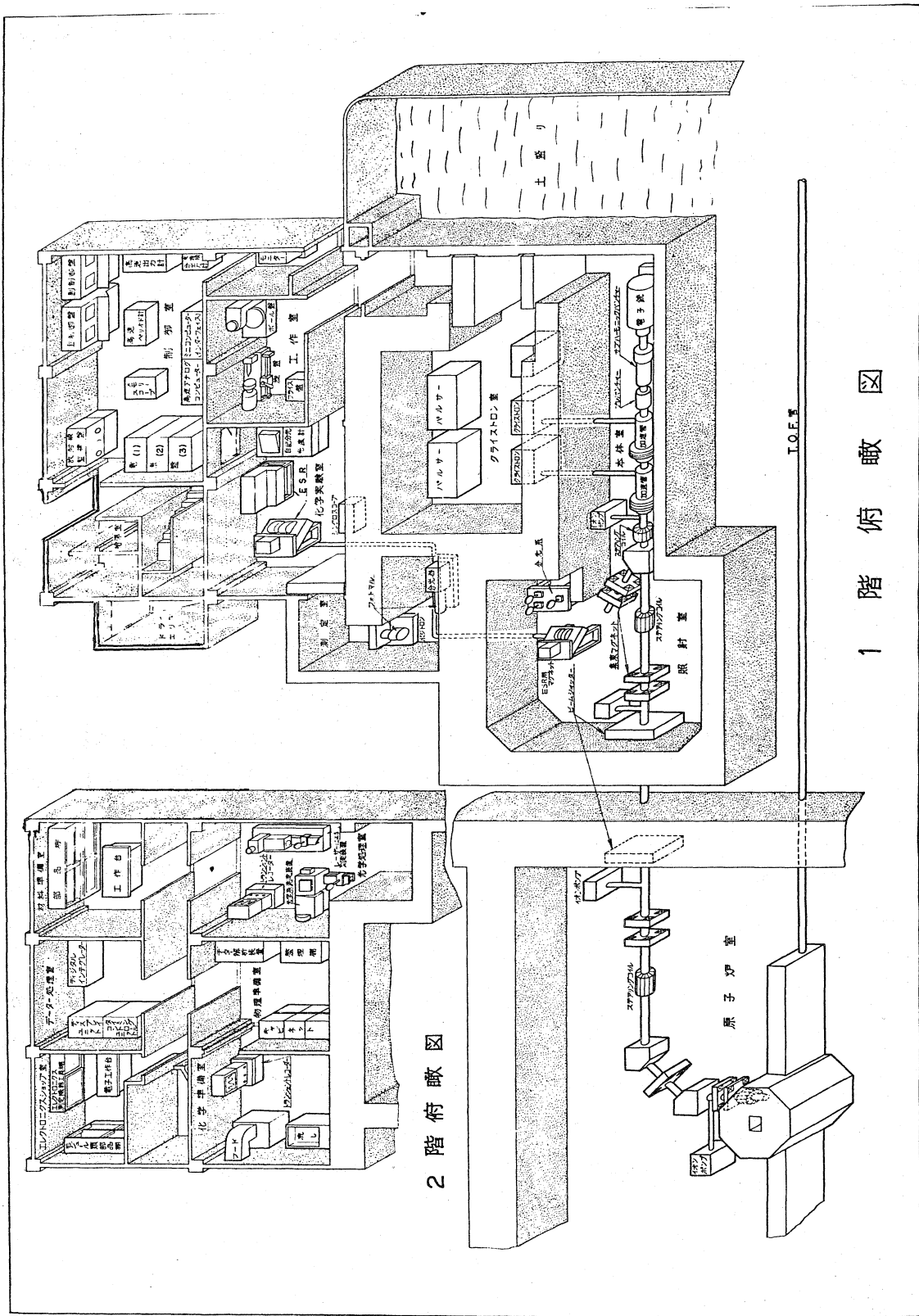


図7. 東京大学工学部原子力工学研究施設高速中性子源炉“やよい”パルス化装置と電子線パルス実験設備

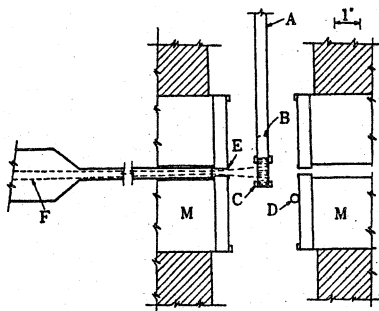


図 8. 放射線照射中 ESR 測定装置

A: 導波管, B: 空洞しぼり, C: 変調コイル, D: NMR プローブ,
E: シム, F: パンデグラフ加速器よりの 2.8 MeV 電子線ビーム,
M: 電磁石 (中心軸に電子線を通すための孔が貫通している。)
試料液体は空洞の下部に満たされている。図には示されていないが、
空洞は液体窒素の蒸発でえられる低温の窒素ガスを流す冷却装置で低温
($-130^{\circ}\sim-183^{\circ}\text{C}$) に保たれる。

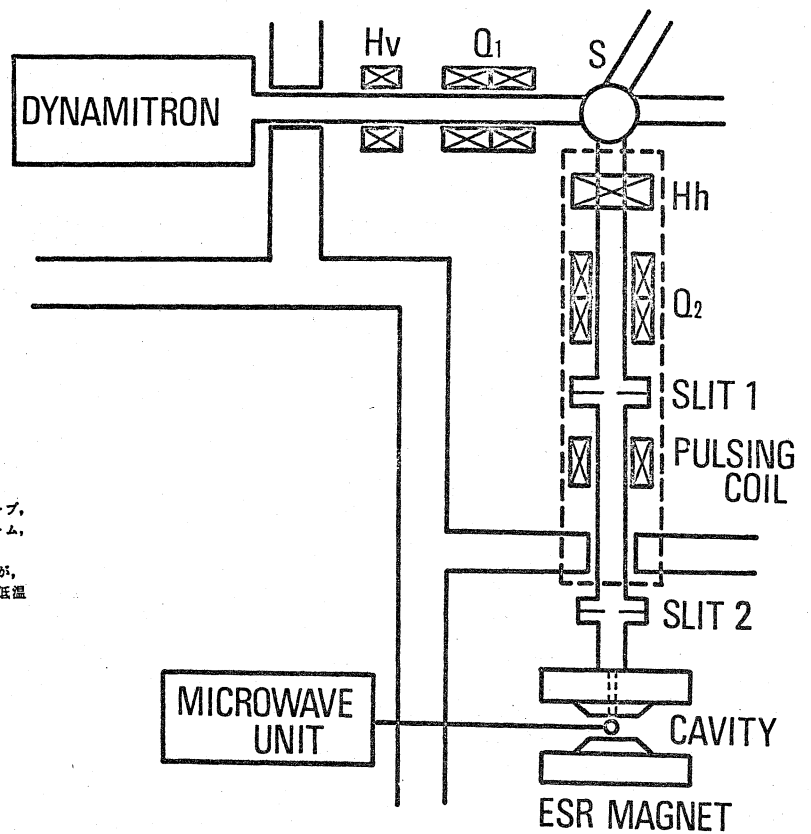


図 10. 東京大学における電子線照射下における
ESR 測定装置と設備

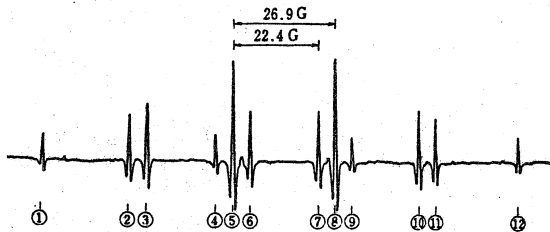


図 9. 液体エタンの電子線照射でえられるエチルラジカルの ESR 吸収曲線
(-180°C , 2.8 MeV 電子線同時照射)

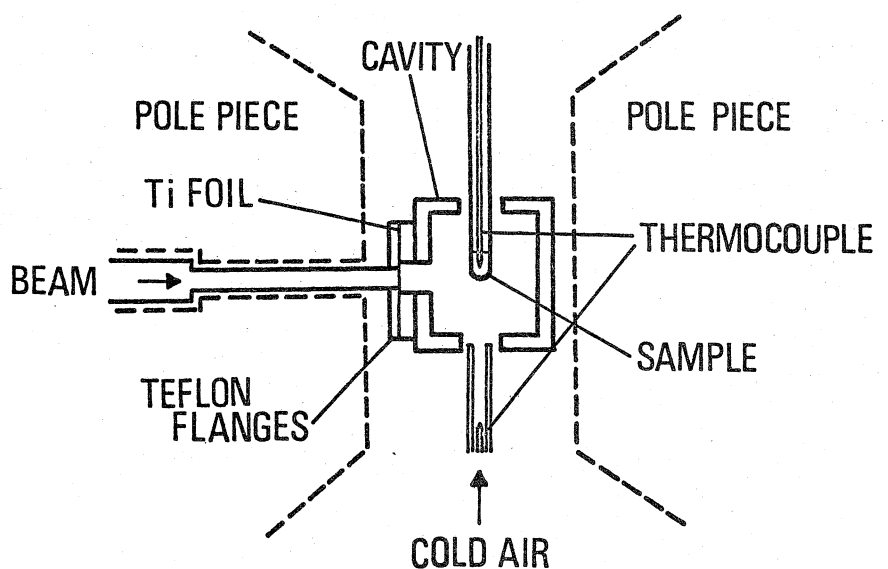


図 11. 同上 ESR Cavity 付近の構造