

話 題

バイオ・材料科学研究用イオン加速器技術の開発

荒川 和夫*1・斎藤 勇一*2・倉島 俊*3・横田 渉*4

Development of Accelerator Technology for Biotechnology and Materials Science

Kazuo ARAKAWA*1, Yuichi SAITOH*2, Satoshi KURASHIMA*3 and Wataru YOKOTA*4

Abstract

The TIARA (Takasaki Ion accelerators for Advanced Radiation Application) is a unique worldwide facility for advancing the frontiers of biotechnology and materials science, consisting of four accelerators: a K110 AVF cyclotron, a 3-MV tandem accelerator, a 3-MV single-ended accelerator and a 400-kV ion implanter. The accelerator complex provides a variety of ion species from proton to bismuth in a wide energy range from keV to MeV. This report outlines the facility and the major beam applications, and describes the details of development of accelerator technology for biotechnology and materials science applications at TIARA.

1. はじめに

バイオ技術と材料開発研究専用の大規模イオン照射施設を造るという「放射線高度利用プロジェクト」は、1987年に始まった。日本原子力研究所高崎研究所（現在、日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所；以降、原子力機構）は、放射線化学の研究開発拠点として1964年に創設され、20年以上にわたりCo-60ガンマ線と電子線を用いて高分子の合成・改質、環境保全、食品照射など放射線の工業利用を目指した研究開発を進めてきた。1987年の第7回原子力長期計画に基づき、それまでの経験と実績を活かしてイオンビームによる放射線利用技術の一層の高度化を図るために、AVFサイクロトロン（K=110 MeV）、タンデム加速器（3 MV）、シングルエンド加速器（3 MV）及びイオン注入装置（400 kV）から成るイオン照射研究施設（TIARA: Takasaki Ion accelerators for Advanced Radiation Application）を建設した（図1）^{1-3）}。

加速器、特にサイクロトロンは原子核研究とともに発展し、非核分野での系統的な利用は放射線医学など一部の領域に限られていた。しかし、本プロジェクトでは、イオンが物質で起こす高密度の電離・励起、多様な相互作用や、イオンの透過力及び操作性などの特性を利用して、バイオ・材料分野における新たな研究

開発を目指した。一口に、バイオ・材料と言ってもその分野は極めて広く、イオン照射の形態も様々である。代表的な分野として宇宙用半導体素子、核融合炉材料、無機材料、有機材料の開発、生物へのイオン照射効果と突然変異誘発、短寿命RIの生物学・医学への応用、加速器・ビーム技術開発、遮蔽・放射化の基礎データ取得などが挙げられる。

特に、バイオ・材料試料に対するイオン照射効果を評価する尺度として、線エネルギー付与（LET: Linear Energy Transfer）が使われる場合が多く、このため広範囲なLETが要請される。TIARAでは水素からビスマスまでの様々なイオン種のビームを広範囲のエネルギーで提供するため、種類と特徴の異なる4基の加速器が導入された（図2）。また、イオンマイクロビーム（以降、マイクロビーム）など、原子核研究などには無かった新しい照射技術も導入された。

2. 施設の概要と特徴

2.1 加速器の概要

各加速器の主な諸元を表1に示す。いずれの加速器も実験に要求されるビーム性能と運転形態に適合させるために、様々な工夫や技術が取入れられている^{3）}。AVFサイクロトロン（以降、サイクロトロン）では、次のカスタマイズを建設時に行った。K値を100

*1 (独)日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所 JAEA (E-mail: arakawa.kazuo@jaea.go.jp)

*2 (独)日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所 JAEA (E-mail: saito.yuichi83@jaea.go.jp)

*3 (独)日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所 JAEA (E-mail: kurashima.satoshi@jaea.go.jp)

*4 (独)日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所 JAEA (E-mail: yokota.wataru@jaea.go.jp)

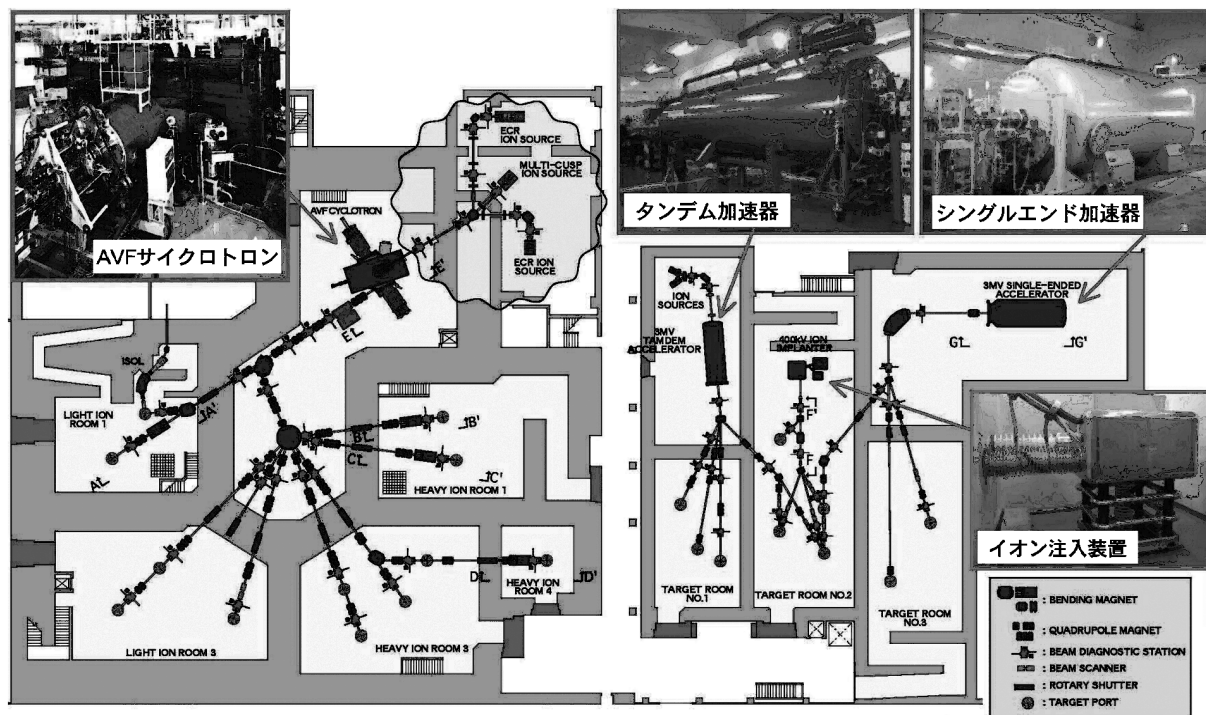


図1 TIARAの加速器の配置とビームライン

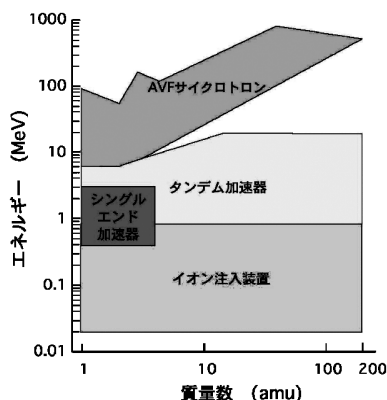


図2 TIARAで利用できるイオン種(質量数)とエネルギーの範囲

MeV から 110 MeV に変更し、上限エネルギーを拡大するとともに、ディー電圧を 60 kV まで安定に発生するために、RF 共振器をパネル方式から同軸型ショート板方式に変更した。外部イオン源方式を採用し、加速ハーモニクス $h=1, 2, 3$ に対応する中心領域を設計した。また、ハーモニクス切り替作業等の短時間化・効率化と運転員の放射線被曝量低減のために、インフレクター電極、プラー電極の交換システム、デフレクター電極遠隔引き抜きシステムを設置した。

タンデム加速器では、ターミナルに電荷を輸送するペレットチェーンの駆動モータをインバータ制御して

電圧安定度を 3 倍程度改善する等の開発を行った。シングルエンド加速器は、マイクロビームを形成するため、高い電圧安定度 $\pm 1 \times 10^{-5}$ を有する。設置当初は 3 MV の安定な維持に課題があったが、分割抵抗を無誘導化するなどの技術開発により放電が抑制され、かつ放電損傷が著しく改善された⁴⁾。

2.2 利用の特徴に対応する技術

TIARA における多目的のイオンビーム利用では、照射実験の内容に応じて①ビーム電流強度、②ビームのサイズと形状、③照射面積、④ビームパルスの幅・間隔などが柔軟に対応できることが要請される。

これらの要請に対し、それぞれ次のように対応している。①サイクロトロンではビームアテネータを設置し、ビーム電流量を $1 \sim 10^{-12}$ 倍の範囲で制御、②ビーム輸送系の四重極電磁石 (Q レンズ) で調整する他、4 箇所マイクロビーム装置を設置、③双極電磁石によるビームスキャナーを 3 箇所に備え、最大で $10 \times 10 \text{ cm}^2$ の面積を 5% 以下の不均一度で照射、④サイクロトロンの入射ビームラインと加速後のビーム輸送ラインにそれぞれ設置した P 型 (Pulse 型) チョッパーと S 型 (Sinusoidal 型) チョッパーを組み合わせ、 $1 \mu\text{s} \sim 1 \text{ ms}$ 間隔の単一パルスビームの形成を実現。

バイオ研究の実験では流動性のある培地に散布した細胞試料などが多く、鉛直にすることが困難なターゲット

表1 TIARAの加速器の主な諸元

<p>AVFサイクロトロン 型式=AVFサイクロトロン(930型,住友重機械工業株) 磁石:$K_{\text{bending limit}}=110\text{ MeV}$, $K_{\text{focusing limit}}=95\text{ MeV}$, 最大平均磁場=1.64 T, 引出し半径=923 mm, セクター数=4 加速高周波:共振RF=11~22 MHz, ハーモニクス=1, 2, 3. ディー電極数=2, フラットトップ重畳波=5倍波 イオン源:マルチカスプイオン源=1台, ECRイオン源=2台</p>
<p>タンデム加速器 型式=バンデグラフ(9SDH-2, National Electrostatic Corporation) 加速電圧:電圧範囲=0.4~3 MV, 昇圧方式=ペレットチェーン, 電圧安定度=3×10^{-4} 負イオン源:RF荷電交換型負イオン源=1台, セシウムスパッタ型負イオン源=2台</p>
<p>シングルエンド加速器 型式:コッククロフト・ウォルトン型(NC-3000B, 日新ハイボルテージ株) 加速電圧:電圧範囲=0.4~3 MV, 昇圧方式=バランス型シェンケル, 電圧安定度=$\pm 1\times 10^{-5}$ イオン源:RFイオン源=1台</p>
<p>イオン注入装置 型式=コッククロフト・ウォルトン型(NH40SR, 日新電機株) 加速電圧:20~400 kV, 電圧安定度=$\pm 3\times 10^{-3}$ イオン源:フリーマン型イオン源=1台, mini-ECRイオン源(13 GHz, 10 W)=1台</p>

ットに対し水平に置いて照射するために, 4箇所の鉛直照射用ポートを備えている. また, 中性子暴露が核融合炉・原子炉用構造材料に与える効果を模擬するなどの目的で, タンデム加速器, シングルエンド加速器, イオン注入装置からの2~3種類のイオンを同時に照射できるチェンバーも備えている.

3. 加速器技術の開発

3.1 サイクロトロンの高度化

レンズ集束方式によりマイクロビームを形成する場合, イオンビームのエネルギー幅が大きいとレンズにおける色収差が無視できなくなる. 4.4節で述べるTIARAの数百MeV重イオンマイクロビーム形成装置では, $1\mu\text{m}$ のスポット径を得るために $\Delta E/E=2\times 10^{-4}$ 以下のエネルギー幅が必要である⁵⁾. しかし, サイクロトロンでは, 加速電場として高周波を用いているので, ビームのエネルギー幅は 10^{-3} のオーダーであり, その改善が必須であった. サイクロトロンにおいてビームのエネルギー幅を縮小する方法としてフラットトップ(FT)加速がある⁶⁾. これは, 基本波加速電圧に整数倍の高調波を加え, RF位相に対して台形状の電圧を作り, 電圧が一定な部分で均一なエネルギーゲインをイオンに与えるものである. この際に必要なn次高調波電圧は, 基本波電圧の $1/n^2$ である.

図3に基本波及び第5高調波を選択したときのFT加速のRF位相とエネルギー幅の関係を示す. 基本波の

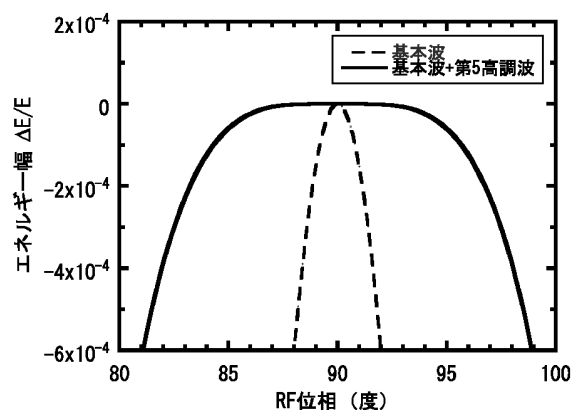


図3 加速RF位相とエネルギー幅の関係(基本波のみでの加速と第5高調波によるFT加速の比較)

みの場合は, ビームの位相幅を約 $2RF$ 度に制限すれば $\Delta E/E=2\times 10^{-4}$ を達成できるが, ビーム電流強度が激減し, 10^{-6} 台のわずかな磁場変動でエネルギー幅が大きく変化するなどの問題があり, 実用的でない. 一方, FT加速では均一な領域が約 $13RF$ 度と大きく拡大し, 大幅なビーム電流の減少を避けることができ, ビームを安定に供給することが可能となる.

以下, FT加速により高品位ビームを得るために必要な技術開発として, 磁場の高安定化とFT共振器の開発・ビーム加速について述べる.

3.1.1 磁場の高安定化

加速に必要なサイクロトロンの等時性磁場は, メイ

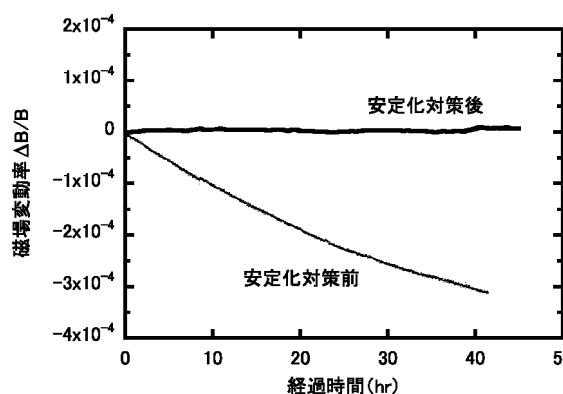


図4 鉄芯温度の安定化対策前後の磁場変動の比較（主電磁石コイル励磁電流 820.5 A）

ンコイルと12対のトリムコイルにより形成される。メインコイルは最大電流 900 A、最大消費電力は 250 kW である。これまで、サイクロトロンでは運転開始直後や加速運転パラメーター変更直後に、ビーム電流が不安定である（減少する）という現象が生じていた。TIARA のサイクロトロンに求められた高周波でのビーム切り替えを実施するためには、このビーム電流の不安定が大きな障害となった。この原因を調べた結果、メインコイル等から磁石鉄芯への熱伝導に起因して 10^{-4} 位の磁場変動が生じていることが明らかとなった⁷⁾。さらに、NASTRAN（有限要素法による大型汎用構造解析プログラム）を用いた電磁石の温度変化の非定常熱解析の結果に基づき、①鉄芯への入熱を防ぐために、メインコイルと鉄芯の間に水冷用のパイプを設けた銅板（水冷ジャケット）の挿入、及び②鉄芯と接しているトリムコイルの冷却水温度の一定化（入口、出口温度平均値の制御）の対策を行った。その結果、図4に示したように、磁場変動を $\Delta B/B = 1 \times 10^{-5}$ 以下に抑えることが可能となった。対策以前はビーム電流を一定に保つために数時間おきに最外周トリムコイルを微調整していたが、対策後はその必要はなくなり、極めて安定なビーム電流を達成している。

大型のサイクロトロンではビーム引き出しまでに数百回の加速を繰り返すので、僅かな磁場の変動でも加速 RF 位相が変わり、エネルギー幅も変動する。FT 加速を行うために要求される磁場安定性は、試算の結果 $\Delta B/B = 2 \times 10^{-5}$ 以下であるが、この電磁石の温度安定化対策により要求値を満たすことができた。

3.1.2 FT 加速技術

FT 加速を行うためには、高調波専用の共振器の設置が必要になる。電磁石が分離しているリングサイクロトロンでは、高調波用共振器の設置場所の確保が容

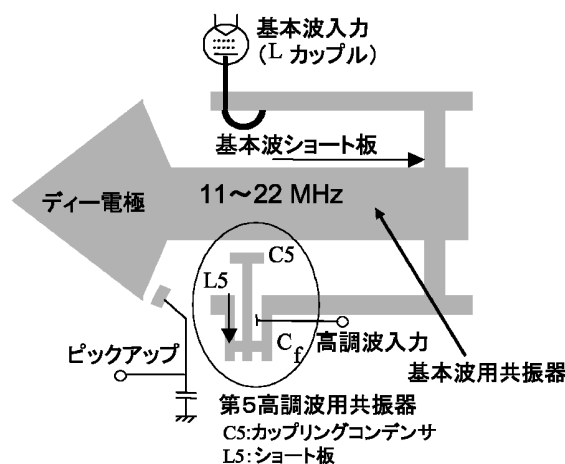


図5 サイクロトロン共振器の概要

易である。しかし、磁極一体型のサイクロトロンでは設置場所が無く、FT 加速が困難であった。近年、Conradie らの研究により、基本波と同一のディー電極に高調波を重ねる方法が考案され⁸⁾、以降、国内では理研、阪大、原子力機構のサイクロトロンで FT 加速の研究が行われている。

原子力機構のサイクロトロンには、加速電圧を発生させる基本波用共振器が2台設置されており、図5に示したようにカップリングコンデンサを介して FT 共振器を結合している。この取り付け位置は元々クライオポンプの取り付けポートであったために斜め下を向いており、床面までの距離が短く、ショート板の駆動ストロークに大きな制限がある。そこで、カップリングコンデンサの容量とショート板位置の両者ともに可変にし、小型で広い周波数範囲（基本波の5倍の 55~110 MHz）を得ることができる設計とした⁹⁾。詳細設計には電磁場解析コード MAFIA を使用した。

ディー電極が高調波の 1/4 波長に比べて十分短いとき、ディー電極の加速ギャップに沿った定在波の電圧分布は無視でき、実機における FT 加速の調整はそれほど困難を伴わない。しかし、930 型サイクロトロンのように引き出し半径が 923 mm と長く、かつ第5高調波を用いる場合、電圧分布が無視できず、110 MHz のときディー電極先端の最高電圧に対して引き出し半径付近では実測値で約 50% も電圧が落ち込む（自由空間での 1/4 波長は約 700 mm）。サイクロトロンでは加速回数の平方根に比例して平衡軌道半径が決まるので、外周ほどビームバンチは密集する。従って、電圧分布が存在する場合には、実機における FT 加速調整を行う前に高調波電圧設定値をシミュレーションにより求めることが必要である。我々は、実機で

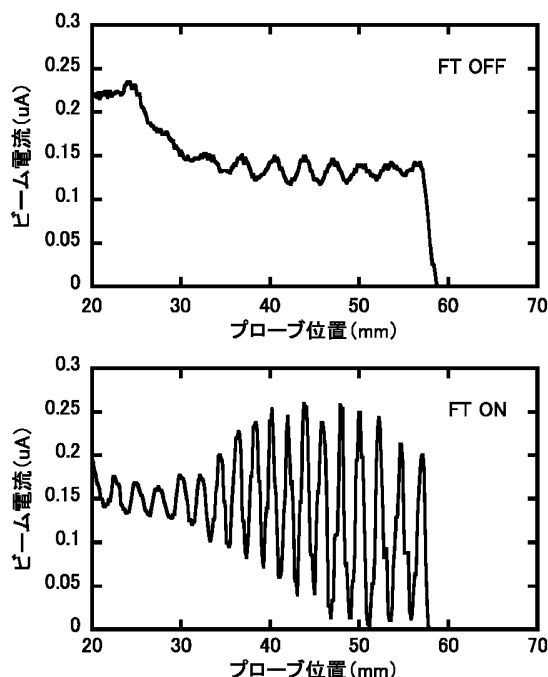


図6 デフレクタープローブで計測した引き出し領域付近の半径方向の電流分布. 上: 通常の基本波による加速. 下: 第5高調波を加えたFT加速. 加速イオンは260 MeV $^{20}\text{Ne}^{7+}$ ($h=2$)

測定した電圧分布を用いて、完全等時性を仮定したモデルにより、最適な第5高調波電圧と基本波電圧の比を検討した。この結果を基に、FT加速による260 MeV $^{20}\text{Ne}^{7+}$ ($h=2$) ビームの調整を行った結果、図6の下段 (FT ON) に示したように明瞭なターンセパレーションが得られ、サイクロトロンからのビーム引き出し効率は60%から95%へと向上した。図6の上段に示した基本波のみによる通常の加速 (FT OFF) の場合には、ターンセパレーションは確認できない。一方、エネルギー幅については、通常加速 (FT OFF) の $\Delta E/E = 1 \times 10^{-3}$ から、FT加速 (FT ON) により $\Delta E/E = 5 \times 10^{-4}$ へと縮小した。FT共振器の開発と平行して、ビーム位相幅を10 RF度以内に制御するために、インフレクター電極、プラー電極、位相スリットなど中心領域構成機器を新たに設計した。これにより、位相スリットの位置やギャップを調整することで、位相幅を高度に制御することが可能となった。260 MeV $^{20}\text{Ne}^{7+}$ を用いた実ビーム加速試験において、全幅で5 RF度以内にビーム位相幅を制御できることを確認した。

3.2 カクテルビーム加速技術

サイクロトロンは種々のイオン種を幅広いエネルギー範囲で加速できるという特徴を持っているが、加

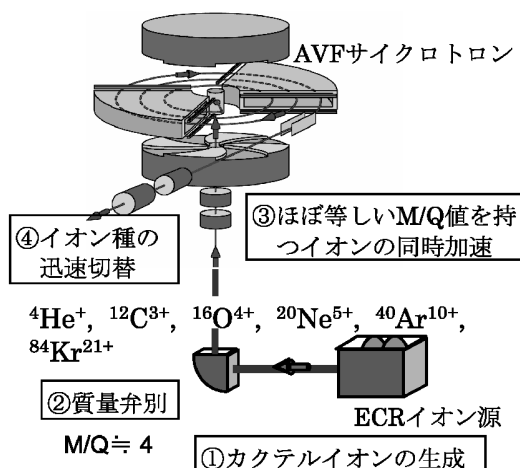


図7 カクテルビーム加速技術の概要

速イオン種・エネルギーの変更には、多数の運転パラメーターの変更が必要である。特に、イオン源におけるガス種の切り替えと多価重イオンを安定して生成させるには、一定の時間が必要である。また、サイクロトロン本体では、主電磁石のヒステリシスによる残留磁場の影響を小さくするため、サイクリック励磁が必要である。さらに、加速電圧や引き出し電圧が高い場合は、放電の問題から電圧が安定に保持されるまでに時間が必要な場合が多い。このため、運転パラメーターの変更には1~2時間、イオン種・エネルギーによっては3時間程度必要な場合がある。

既に述べたように、バイオ・材料科学分野におけるイオンビームの利用は、同一マシンタイム内で複数のイオン種やエネルギーを利用したいという要望が強い。そこで、サイクロトロンで加速するイオン種・エネルギーを短時間に切り替える方法としてカクテルビーム (Cocktail Beam) 加速技術を開発した。カクテルビーム加速技術は、質量対価数比 (M/Q , M は原子質量単位 u で表わしたイオンの質量, Q は価数) がほぼ等しい複数のイオン種が混在したビームを、同時にサイクロトロンに入射・加速し、1~2個の運転パラメーターの変更のみで、引き出すイオン種を短時間で切り替えるという技術である。図7に $M/Q \approx 4$ の場合についてのカクテルビーム加速の概略を示す。

サイクロトロンでイオンを加速するときの等時性の条件は、次の式で表せる。

$$2\pi \frac{f_{RF}}{h} = \frac{Q}{M} \cdot \frac{eB}{uc^2} \quad (1)$$

ここで、質量 $m = uM$ で u は原子質量単位、電荷 $q = eQ$ で e は電気素量、 f_{RF} は RF 周波数、 h は加速ハー

モニクス数, B は磁場強度である. (1)式から明らかなように, f_{RF} は M/Q に逆比例しており, M/Q がほぼ同じイオンはサイクロトロンで加速することができる. 厳密には, サイクロトロンの引き出し半径の最後まで加速されるためには, f_{RF} と M/Q が完全に合致することが必要であり, わずかな M/Q の違いをもつイオンは, 加速の途中で加速位相から外れ, 引き出し半径まで到達しない. しかし, M/Q の差に相当する僅かな量だけ f_{RF} を変更すれば, 異なった M/Q のイオンを引き出すことができる. 例えば, イオン種の M/Q の差 $\Delta(M/Q)$ が $1/1000$ 程度の場合, f_{RF} で 10 kHz 程度の変更で対応できる. また, (1)式に示したように, M/Q は B に比例しているので, $\Delta(M/Q)$ 分に相当する磁場強度を変更することでも引き出すイオン種を変えることができるが, 一般に, 電磁石の磁場強度を変えるとヒステリシスにより再現性が問題となる. 幸いなことに, サイクロトロンには主電磁石で発生した磁場を補正する手段として, トリムコイルを装備している. トリムコイルを用いることにより, この問題を避けることができる. トリムコイルによる磁場補正量は $(\Delta B/B) = 10^{-4}$ オーダーであり, カクテルビーム加速ではこの量で対応できる.

(1)式から, 磁場が一定のときの分解能 R は以下の式で定義される.

$$R = \left| \frac{Q/M}{\Delta(Q/M)} \right| = \left| \frac{f_{RF}}{\Delta f_{RF}} \right| \quad (2)$$

$M/Q \div 4$ イオンで実測した結果, $\Delta f_{RF}/f_{RF} = 3.8 \times 10^{-4}$ であり, 分解能は $R = 2600$ である. 従って, 分離可能な $\Delta(Q/M)/(Q/M) \geq 3.8 \times 10^{-4}$ であり, これより差の小さい異種イオンに対しては分離が困難である. しかし, 分解能は加速過程での回転数に比例することから, 加速電圧を下げても回転数を増やすことにより向上させることができ, 加速電圧を 22.68 kV から 16.38 kV に低下させた場合, 分解能は $R = 3600$ に向上する.

一方, 非相対論的に扱える領域において, 加速粒子の核子当たりのエネルギーは次の式で表される.

$$\frac{E}{M} = \frac{1}{2} uv^2 = \frac{1}{2} u \left(2\pi \frac{f_{RF}}{h} R_{ext} \right)^2 \cong \text{const} \quad (3)$$

ここで, v は速度, R_{ext} は回転半径 (この場合は引き出し半径) である. 即ち, 運動エネルギーは質量に比例するので, イオン種に応じて異なるエネルギーが得られる. カクテルビーム加速技術では, f_{RF} 又は磁場のどちらの方法を用いても, 数十秒~数分に変更でき

る. さらに, サイクロトロンの主磁場強度 B は一定に保持しているため, サイクロトンから引き出されたイオンは外部ビーム輸送系の電磁石系の磁気剛性率を一定としたまま, 実験チェンバーまでビームを輸送できる. 現在, TIARA では $M/Q \div 2, 4, 5$ のシリーズのカクテルビームを実験提供しており^{10,11)}, 数時間の実験で5種類程度のイオン種 (LET) の利用を実現している.

3.3 クラスタイオン生成・加速技術

3.3.1 クラスタイオンの魅力

これまで, 1 原子当り eV オーダーの運動エネルギーの低エネルギークラスタイオンは, 半導体デバイスへの極浅接合形成やラテラルスパッタリングによる表面平坦化などへの応用に利用されつつある¹²⁾. 一方, ボーア速度付近からそれ以上の速さを持つ高エネルギークラスタイオンは, ナノメータの領域に複数の原子が衝突し, それぞれがほぼ同時に電子励起を引き起こす (多電子系・多原子系の多体系間的高速衝突現象). したがって, 単原子イオンが同じ場所に時間を置いて複数回衝突するのは異なり励起過程が複雑になり, 新しい照射効果が現れることが期待される. 例えば, ウランを 1 GeV 程度に加速したときに得られる約 2500 eV/Å (標的シリコン, SRIM による計算) と同程度の LET が, フラーレン (C_{60}) を用いた場合は, 単純に炭素原子 1 個の 60 倍になると仮定すると, 12 MeV のエネルギーで得られることになる. 従って, 小型加速器とクラスタイオンを組み合わせることにより, 材料開発や表面分析¹³⁾などで新たな利用の展開が期待される. 多体系間的高速衝突による物質との相互作用のメカニズムは, まだ不明な点が多く固体物理や放射線物理のテーマとしても魅力的なものである.

3.3.2 タンデム加速器を用いた加速

タンデム加速器では, セシウムスパッタ型負イオン源 (SNICS II) を利用してクラスタ負イオンを生成している. このイオン源では, カソードペレットに充填された試料をセシウム (Cs) でスパッタすることにより, 水素からビスマスまで, ほとんどの元素の負イオンを生成することが可能である. 通常, このイオン源は元素の単原子イオン生成に用いられるが, スパッタにより単原子イオンとともに分子イオンやクラスタイオンも同時に生成される. これらの生成比は, スパッタカソードの温度や試料密度などで変わり, 炭素クラスタの場合, 低温で高密度の方が, クラスタイオンが生成されやすい傾向にある¹⁴⁾. TIARA では, それらを最大 70 keV まで加速し, 90

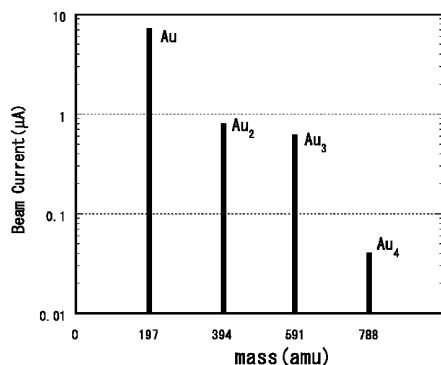


図8 イオン源からの金クラスターイオンの質量スペクトル

度分析電磁石 ($m/\Delta m=100$:スリット幅1mmの時)により, 目的とする原子数で構成されたクラスターイオンを選択し, タンデム加速器に入射する. 例として, 金(Au)を試料にしたときの, 質量スペクトルを図8に示す.

イオン源で生成されたクラスター負イオンはタンデム加速器に入射され, 加速器中央部に位置する高電圧ターミナルに向かって加速される. 大部分のクラスター負イオンは, ターミナル内の荷電変換セクションで荷電変換ガスである窒素との衝突で解離するが, 一部は解離せずに正イオンに荷電変換される.

効率的にクラスターイオンを加速するには, 荷電変換ガスの流量調整がポイントとなる. この流量は真空度として, 加速器直近の接地レベルにあるCold Cathode Gaugeでモニターしている. 荷電変換ガスを流さないとき 10^{-7} Pa後半のベース真空度で, 単原子イオンを加速する場合の真空度は, 10^{-5} Pa台から 10^{-4} Pa台に保持している. 一方, クラスターイオン加速時は真空度を 10^{-6} Pa台に調整することにより, クラスター正イオンを観測することができる. これは, 通常の単原子イオンの加速では, ガスとの衝突による荷電変換断面積のみがビーム強度に大きく影響するが, クラスター加速の場合, これに加えて, クラスターイオンの解離断面積が影響するためである. この二つのバランスにより, ほとんどのクラスターイオンで 10^{-6} Paの前半にビーム電流値のピークがある. 例として, 炭素クラスターについての結果を図9に示す. タンデム加速器では, B, C, Al, Si, Cu, Ge, Ag, Au, C_{60} の加速を実現している.

クラスターイオンの照射に起因して生じる2次イオン数¹⁵⁾や高分子の損傷形成¹⁶⁾等の物理量をクラスター構成原子数で割って, 原子1個当たりの作用に換算した収量と, それと同速度の単原子イオンによる

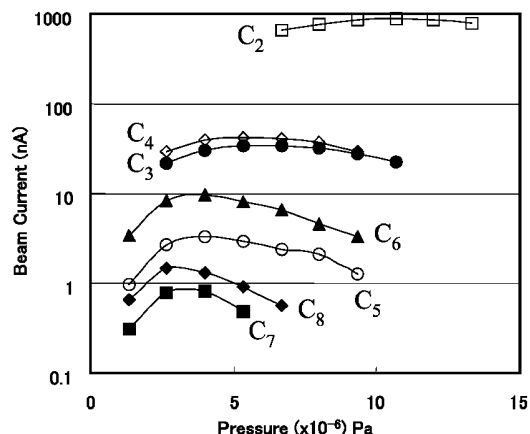


図9 炭素クラスタービーム電流の荷電交換ガス圧依存性(エネルギー:6MeV)

収量を比較した場合, クラスターイオンの方が大きな照射効果が観測されるなど, 新しい知見が得られつつある.

3.3.3 イオン注入装置を用いた C_{60} の加速

イオン注入装置では, フリーマン型イオン源を用いてフラーレンイオンを加速している. 予め不活性ガス等で生成したプラズマ中に, オープンで気化させたフラーレン蒸気を導入し, イオン化する. このときのオープン温度は, 460°C から 480°C 程度が良い. フラーレンは酸素などの活性なガス中では 400°C 程度でも熱的に不安定になり, 分解するため注意が必要である¹⁷⁾. 現在, 本装置では最大 $2\mu\text{A}$ のフラーレンイオン(C_{60}^{1+} :加速電圧350kV)の生成・加速に成功しており, 2価及び3価のイオンも確認している. TIARAでは, このフラーレンイオンビームを用いて, 2次イオン量の増大を利用した高感度SIMSの開発や材料の表面改質の研究が進められている.

4. イオンマイクロビーム形成技術

エネルギーがMeV領域のマイクロビームは, 主に軽イオンビームによる内殻電子励起X線放出(PIXE: Particle Induced X-ray Emission), ラザフォード後方散乱(RBS), あるいは核反応(NRA)等, 物質との相互作用の素過程を利用した微細試料の非破壊的な微量元素分析において利用されてきた. TIARAでは分析利用ばかりでなく, イオンビームのLETの大きさを利用した材料の加工, 細胞試料への照射による放射線応答機構の解明など, 局所的なエネルギー付与によって引き起こされる現象の機構解明等の新たな研究への利用を目指した.

マイクロビームの形成方式には, ①焦点距離の短い

精密電磁石で集束する「レンズ集束方式」と、②微小孔を通してビームを引き出す「コリメート方式」がある。レンズ集束方式は、スリットと電磁石の組み合わせによりイオンビームを集束させるもので、加速器から引き出されたイオンビームから良質な部分のみを切り出し、切り出したビームの像を焦点距離の短い精密電磁石で集束させ、その縮小像を試料面に結像させる。MeV エネルギー領域のイオンビームには、強力な集束力のある Q レンズが用いられる。Q レンズの集束作用は、ビーム軸について非対称となるため、ビーム全体を集束させるには、少なくとも 2 つ以上の電磁石が必要である。この非対称レンズの組み合わせの結果として得られる焦点は、Stigmatic Focusing と呼ばれる。

また、目的とするターゲット表面上で得られる最小ビーム径に大きな影響を及ぼす要因としては、大きく分けて①レンズに起因するものと、②外的要因に起因するものがある。レンズに起因するものとしては、レンズ固有の収差とレンズに寄生する収差がある。レンズ固有収差としては、色収差と球面収差がある。レンズ寄生収差としては、レンズ相対回転角度誤差と励磁変動がある。このうち、実際のビーム調整には、レンズの相対回転角度誤差と入射ビームのエネルギー分散に起因する色収差が大きく効いてくる。外的要因としては、機械的振動、漂遊磁場、残留ガスによるビームの散乱や光学系の熱的変動などがある¹⁸⁾。TIARA においては、機械的振動と室温変化による影響が無視できない。これまで TIARA で開発したイオンマイクロビーム形成装置を表 2 に示す。

4.1 MeV 級重イオンマイクロビーム形成

本装置は、タンデム加速器で加速されたエネルギー

10~20 MeV の重イオンビームをビーム径 $1\ \mu\text{m}\phi$ に形成することを目標として開発したもので、マイクロスリット、発散制限スリット、精密 Q レンズなどから構成されている。本装置では Q レンズの寸法誤差に起因する光学収差の影響を最小限に抑えるために、磁極とヨークは一体物として放電加工により $\pm 10\ \mu\text{m}$ 以内の精度で製作している。また、レンズ系の位置や回転を精密に調整する機構と機械的振動の影響を抑えるための防振架台を設け、15 MeV Ni イオンでビーム径 $1\ \mu\text{m}\phi$ を達成した¹⁸⁾。

4.2 軽イオンマイクロビーム形成技術

イオンビームによる局所分析を目的として、レンズ集束方式のマイクロビーム形成装置を開発した。シングルエンド加速器で加速されたイオンビームは、曲率半径 1.5 m、二重集束 90° 分析電磁石で偏向された後に、磁極長 80 mm、ボア径 10 mm の二連 Q レンズにより集束される。Q レンズからターゲットまでの距離は 0.2 m、マイクロスリットから Q レンズまでの距離は約 8 m あり、レンズ系の縮小率は 12×60 である。イオンビームを Q レンズでサブミクロンレベルのサイズに集束するときの最大の阻害要因となる色収差を抑えるため、電圧安定度 $\pm 1 \times 10^{-5}$ のシングルエンド加速器を採用し、世界最高水準のビーム径 $0.25\ \mu\text{m}\phi$ を 2 MeV の He イオンで実現した¹⁹⁾。

4.3 大気マイクロ PIXE 分析技術

数 MeV に加速した荷電粒子を原子に衝突させときに発生する X 線は、元素に固有であるため特性 X 線と呼ばれ、かつその発生断面積は非常に大きいので、微量元素分析に利用されてきた。この原理に基づいた元素分析法は、PIXE と呼ばれている。これまで PIXE に用いられてきたビームのサイズは、数 mm 径

表 2 TIARA で開発したマイクロビーム形成装置

性能	MeV 級重イオン用	MeV 級軽イオン用	数百 MeV 級重イオン用	
		レンズ集束方式 ビーム径: $1\ \mu\text{m}\phi$ エネルギー: 10~20 MeV	レンズ集束方式 ビーム径: $0.25\ \mu\text{m}\phi$ エネルギー: 1~3 MeV	コリメート方式 ビーム径: $5\ \mu\text{m}\phi$
主な用途	○照射利用 ・半導体シングルイベント効果研究 ・光学素子開発	○分析利用 ・細胞内微量元素分布測定 ・大気中の微粒子個別分析 ○微細加工 ・プロトンビーム描画	○照射利用 ・局所狙い撃ち照射による生きた細胞の放射線応答機構の解明 ・突然変異誘発による植物育種 ・半導体素子の TIBIC	
特長	・シングルイオンヒット	・マイクロ PIXE, PIGE 分析	・大気中細胞へのシングルイオンヒット ・高速・高精度ビーム照準	

PIGE: Particle Induced Gamma-ray Emission, TIBIC: Transient Ion Beam Induced Current

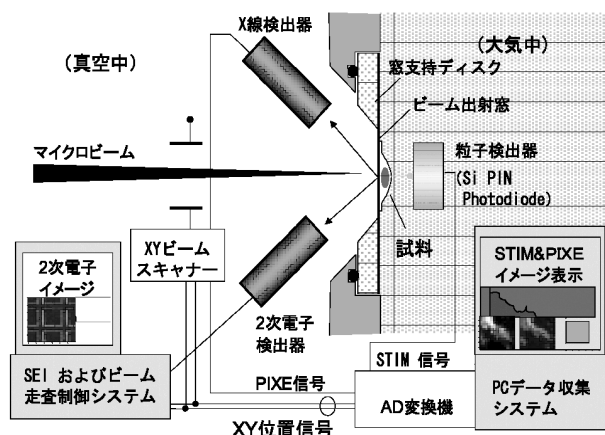


図10 大気マイクロPIXE分析システムの概略図

であったため、細胞やエアロゾルなど微小な試料については、試料全体の平均でしか得られなかった。そこで、イオンマイクロビームを用い、生きた状態に近い細胞の元素分布画像を測定するために、試料を大気中に置いて分析できる大気マイクロPIXEシステムを開発した²⁰⁾ (図10)。PIXE測定チェンバーは、X線検出器、ビームスキャナー、ビーム取り出し窓、粒子検出器、光学顕微鏡などから構成されている。1 $\mu\text{m}\phi$ に集束されたビームは、平行平板電極 (スキャナー) で走査され、ビーム取り出し窓を経て大気中に取り出される。窓材には厚み4 μm のマイラー (Polyethylene Terephthalate: PET) 膜を採用している。この膜は、100 pA/cm² 程度のビームで10 \times 10 μm^2 の領域を走査照射したときに10時間以上の耐久性がある。X線検出器は、Si(Li) 半導体検出器を用いており、真空チェンバー内でビーム入射に対して140°方向で、ターゲットから27 mm上流に設置している。

このシステムを用い、大気中において1 μm の空間分解能で牛の大動脈内皮細胞の2次元元素分布測定と細胞核にプロモデオキシウリジン (BrdU : Br 元素含有) が取り込まれる様子の測定に成功した²¹⁾。本手法は抗がん剤のような医薬品の効果を細胞レベルで検証するなど、医学、生物学研究で利用されている。他に、大気エアロゾル微粒子や霧・雨滴試料の個別粒子の元素マッピング²²⁾ や ¹⁹F(p, $\alpha\gamma$)¹⁶O の核反応を用いた γ 線検出によるフッ素分布測定とマイクロPIXEによるCa元素分布の同時測定により、歯の構造と歯質中のフッ素分布測定などに成功している²³⁾。

4.4 数百 MeV 重イオンマイクロビーム形成

4.4.1 マイクロビーム形成

数百 keV/ μm 以上の高 LET を有する重イオンを用いて個別の細胞の照射部位を精確に狙い撃ちして、放

射線応答機構を解明するために、数百 MeV の重イオンマイクロビーム形成装置を開発した。本装置は、レンズ集束方式を用いてサイクロトロンで加速した重イオンビームをオブジェクトサイズ5 μm 、発散角0.2 mrad に制限することにより、ビーム径1 $\mu\text{m}\phi$ に集束させている。ビーム集束にはボア径20 mm の4連Qレンズを採用しており、オブジェクトとなるマイクロスリットから発散制限スリットまでの距離は2790 mm、ターゲットまでの距離は4930 mmである。縮小率は5の設計となっており、最大スキャン領域は850 \times 850 μm^2 である。本装置において、サイクロトロンによりFT加速した260 MeV ²⁰Ne⁷⁺ を用いて、ビーム径1 $\mu\text{m}\phi$ 以下を達成した⁵⁾。

4.4.2 シングルイオンヒット技術

シングルイオンヒット技術とは、加速したイオン粒子の個数を制御しながらターゲットに打ち込む技術である。このシステムは、サイクロトロンのイオン入射系に設置されているビームアテネータとP型チョッパー、及び粒子検出器から構成されている²⁴⁾。シングルイオンヒットは、イオン源から引き出されたビーム電流をイオン入射系のビームアテネータによりシングルイオンヒットが可能で調整し、次に、ターゲット後の粒子検出器でイオンが検出されたときの信号を用い、P型チョッパーにより後続のビームを高速遮断することで実現している。飛跡検出器CR-39に260 MeV ²⁰Ne⁷⁺ を10 μm 間隔で上下左右にそれぞれ5点 (合計25点) ヒットさせて、その痕跡のばらつきから照準精度が1 μm 以内であることを確認した。シングルイオンヒット技術と数百 MeV 重イオンマイクロビーム形成技術及びミクロな標的に \pm 1 μm の精度で狙うビーム照準技術を組み合わせ、細胞の特定部位に高エネルギーイオンの個数を制御して照射することができる。この技術を用いて、遺伝情報の一部だけを不活性化させる細胞加工や、有用植物品種の創出や生物の発生・分化過程の解析など先端バイオ技術の研究が開始された。

おわりに

イオン加速器施設が完成し、実際にユーザーへのビーム提供が始まると、バイオ・材料科学分野におけるイオンビーム利用研究では、当初予想していたよりもはるかに短い時間の照射とイオン種・エネルギーの頻繁な変更が要請された。この要請に応えるための技術として、サイクロトロンの磁場の高安定化技術とカクテルビーム加速技術の開発は必須であった。一方、イオンビームの特長を活かす利用法としてマイクロ

ビームに着目し, 加速器側が開発に取り組んだ. その結果, シングルイオンヒットや大気マイクロ PIXE 分析などの新たな技術を生み出した.

このシングルイオンヒット技術と大気マイクロ PIXE 分析技術は, 群馬大学大学院医学系研究科の「連携講座」において, 教育・研究に活用されている. さらに, 本技術を用いて新たな医学研究拠点を形成するための, 群馬大学 21 世紀 COE プログラム「加速器テクノロジーによる医学・生物学研究」が「革新的な学術分野」において 16 年度に採択され, 現在, 群馬大学と原子力機構が共同で研究を進めている.

参考文献

- 1) 田中隆一, 日本原子力学会誌, Vol. 33, 1018 (1991).
- 2) S. Sato, Proc. of Int. Conf. on Evolution in Beam Appl., Takasaki, Japan, 239 (1991).
- 3) TIARA ANNUAL REPORT, Vol. 1, JAERI-M93-047 (1992).
- 4) 宇野, 高田, 田島, 高山, 江夏, 第 16 回タンデム加速器及び周辺技術の研究会報告書, 75 (2003).
- 5) M. Oikawa, T. Satoh, T. Sakai, N. Miyawaki, H. Kashiwagi, S. Kurashima, S. Okumura, M. Fukuda, W. Yokota and T. Kamiya, Nucl. Instrum. Methods, B260, 85 (2007).
- 6) M. Fukuda, S. Kurashima, S. Okumura, N. Miyawaki, T. Agematsu, Y. Nakamura, T. Nara, I. Ishibori, K. Yoshida, W. Yokota, K. Arakawa, Y. Kumata, Y. Fukumoto and K. Saito, Rev. Sci. Instrum., **74**, 2293 (2002).
- 7) S. Okumura, K. Arakawa, M. Fukuda, Y. Nakamura, W. Yokota, T. Ishimoto, S. Kurashima, I. Ishibori, T. Nara, T. Agematsu, M. Sano and T. Tachikawa, Rev. Sci. Instrum., **76**, 033301 (2005).
- 8) J. L. Conradie, A. H. Botha, J. J. Kritzing, R. E. F. Fenemore and M. J. Van Niekerk, Proc. 14th Int. Conf. on Cyclotrons and their Applications, Cape Town, South Africa, 249 (1995).
- 9) S. Kurashima, M. Fukuda, N. Miyawaki, S. Okumura, K. Yoshida, T. Nara, T. Agematsu, I. Ishibori, K. Arakawa and Y. Nakamura, Proc. 17th Int. Conf. on Cyclotrons and their Applications, Tokyo, Japan, 362 (2004).
- 10) M. Fukuda, K. Arakawa, T. Nara, W. Yokota, S. Okumura, Y. Nakamura, T. Agematsu and I. Ishibori, JAERI-Review 96-017, TIARA ANNUAL REPORT Vol 5, 229 (1995).
- 11) M. Fukuda, K. Arakawa, S. Okumura, T. Nara, I. Ishibori, Y. Nakamura, W. Yokota, T. Agematsu and H. Tamura, Proc. of the 1999 Particle Accelerator Conference, 2259 (1999), New York (USA).
- 12) I. Yamada and N. Toyoda, Nucl. Instrum. Methods, B232, 195 (2005).
- 13) K. Hirata, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi, Y. Kobayashi and Y. Ohara, Appl. Phys. Lett., **86**, 044105-1 (2005).
- 14) Y. Saitoh, K. Mizuhashi and S. Tajima, Nucl. Instrum. Methods, A452, 61 (2000).
- 15) 例えば, H. H. Andersen, A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet and Y. Le Beyec, Phys. Rev. Lett., **80** (24), 5433 (1998).
- 16) K. Hirata, Y. Saitoh, K. Narumi, Y. Nakajima and Y. Kobayashi, Nucl. Instrum. Methods, B193, 816 (2002).
- 17) H. S. Chen, A. R. Kortan, R. C. Haddon and D. A. Fleming, J. Phys. Chem., **96**, 1016 (1992).
- 18) T. Kamiya, N. Utsunomiya, E. Minehara, R. Tanaka and I. Ohdomari, Nucl. Instrum. Methods, B64, 362 (1992).
- 19) T. Kamiya, T. Suda and R. Tanaka, Nucl. Instrum. Methods, B118, 447 (1996).
- 20) T. Sakai, T. Kamiya, M. Oikawa, T. Satoh, A. Tanaka and K. Ishii, Int. J. PIXE, **10**, 91 (1999).
- 21) A. Sugimoto, K. Ishii, S. Matsuyama, T. Satoh, K. Gotoh, H. Yamazaki, C. Akama, M. Satoh, T. Sakai, T. Kamiya, M. Oikawa, M. Saidoh and R. Tanaka, Int. J. PIXE, **9**, 151 (1999).
- 22) C. J. Ma, M. Kasahara, S. Tohno, Y. Onishi and K. C. Whoang, Int. J. PIXE, **9**, 31 (1999).
- 23) H. Yamamoto, M. Nomachi, K. Yasuda, Y. Iwami, S. Ebisu, N. Yamamoto, T. Sakai and T. Kamiya, Nucl. Instrum. Methods, B210, 388 (2003).
- 24) T. Kamiya, T. Sakai, Y. Naitoh, T. Hamano and T. Hirao, Nucl. Instrum. Methods, B158, 255 (1999).