

委託研究「粒子励起X線分析技術の応用」
(研究開発テーマ：先進放射線計測技術の開発)
研究成果報告概要

研究開発の概要

(研究実施期間) 平成30年度～令和3年度

(目的)

放射線計測技術を応用した放射線高度利用の産業化を促進するため、高エネルギー陽子ビームを用いた粒子線励起X線分析法の応用に係る研究開発を行う。

(必要性)

農作物、魚介類などの食品は、主に含まれている元素の他に、微量に含まれている必須元素が健康に欠かせない。このような試料中の微量元素をppb(10億分の1)程度の感度で簡単にしかも多量の試料を分析できる技術の開発が望まれる。本研究では、世界的に数少ない20MeV陽子ビームを用いたPIXE分析法を開発する。

(新規性)

本研究では、PET用サイクロトロンから数10ナノアンペヤーの電流を取出し、20MeVの陽子ビームでも元素分析できるPIXE元素分析方法を開発する。

(独創性)

PIXE分析法は通常数10ナノアンペヤーの3MeV陽子ビームを用いて行われる。PET用のサイクロトロンからの陽子ビームは、20MeVとエネルギーが高いことに加えて、数10マイクロアンペヤーの電流値を持ち、試料が破壊されるため、ほとんど行われていなかった。

(有用性)

本研究で開発されるPIXE分析法は、1気圧のヘリウム雰囲気中で行われるので、試料のビーム照射による損傷が少なく、様々な試料の元素分析が可能であり、その応用は非常に幅広い。

平成30年度の研究成果

青森県量子科学センターのサイクロトン室にPIXE分析用のビームラインを製作した(図1)。

PIXEは通常3MeVの陽子ビームで行われているが、PET用サイクロトンの20MeV陽子ビームでPIXE分析が可能かどうか、理論的にその検出限界を調べ、図2に示すように数PPmの感度で行えることを示した。次に、PET用サイクロトンでも、重水素ガス中の微量な水素を用いることで、通常数10 μ Aのビームを1nAの強度で安定に利用にできることを、東北大学サイクロトンRIセンターの協力を得て実証した。お茶の葉の分析を行った結果が図3である。3.3ppmのTi元素が検出されており、図2の予測が確認された。

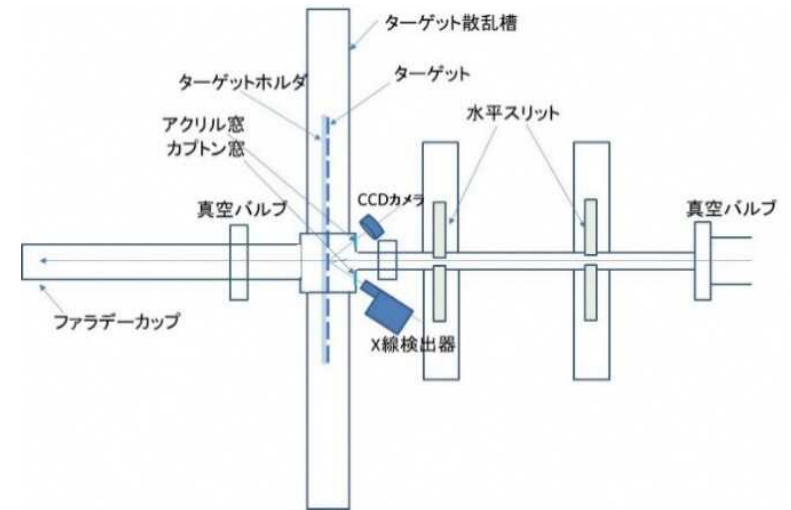


図1 ターゲット散乱槽

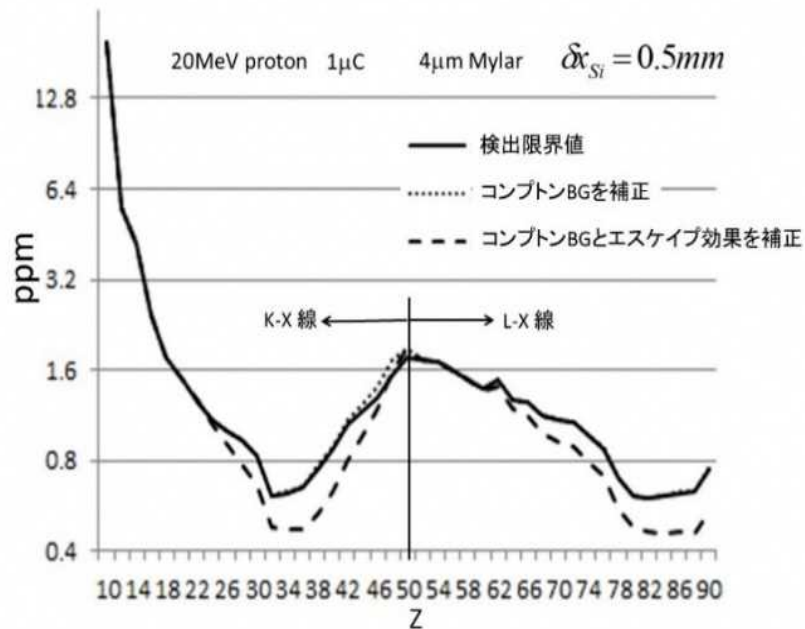


図2 20MeV陽子PIXE分析の検出限界値

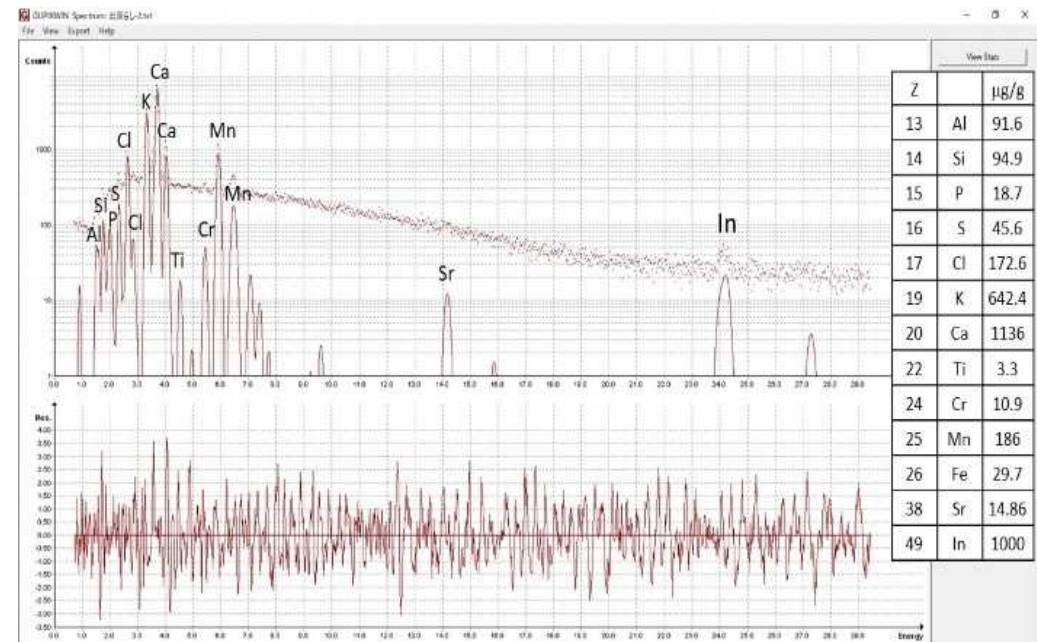


図3 茶葉のPIXEスペクトルと解析結果

令和元年度の研究成果

一般に20MeVの陽子を空気中に照射すると、原子核反応によって2次放射線であるガンマ線、中性子線が多量に発生し、放射線の測定が困難になる。真空系の容器の材質として、アルミニウムが良く使われている。その理由は、長半減期の放射性物質が生成されないことによる。

しかし、短半減期のものが多く造られるので、ビーム照射しながらの実験においては、ビームコリメーターなどの材質にはアルミニウムは適当でなかった。実際、大量のガンマ線が発生され、それらのコンプトンテールがX線計測のエネルギー領域に巨大なバックグラウンドを形成し、PIXE分析の感度が著しく低くなった。そこで、ガンマ線が発生しにくい炭素を主体とした材質を使用することとし、放射線耐性が高く耐熱性もあるピーク材で作られたビームコリメーターを作成した。このコリメーターによって、ガンマ線の発生は著しく抑えられ、X線測定が可能となった。

一方、ヘリウムガス雰囲気中では20MeV陽子線では2次放射線が発生しない。その理由は、ヘリウム原子核の第一励起状態のエネルギーが20.21MeV、ヘリウム原子核が破砕されるQ値が19.8MeVであるため、20MeV陽子と静止ヘリウム原子核との相対運動エネルギーが約16MeVであるため、励起、反応が起こらないためである。そこで、ヘリウム雰囲気中で実際に、PIXE分析が可能であることを示した。これによって、試料交換時に真空を破り、再び真空を引く手間が省け、試料の交換を短時間で行えるようになった。図1はヘリウムガス、ヘリウムガス+バックリング膜(10.25 μm 厚のカプトン膜)、バックリング膜に載せた茶葉試料からのX線スペクトルを示す。ヘリウム雰囲気中でも茶葉が良く分析されていることが分かる。ヘリウム雰囲気中でPIXE分析が容易にできるようになったので、県内の民間からの試料を受け入れ、1)農水産物試料、2)金属試料、3)樹脂試料、4)ガラス、5)医学試料、6)環境試料の分析を行った。図2にステンレス鋼、図3に土壌試料のPIXE分析例を示す。

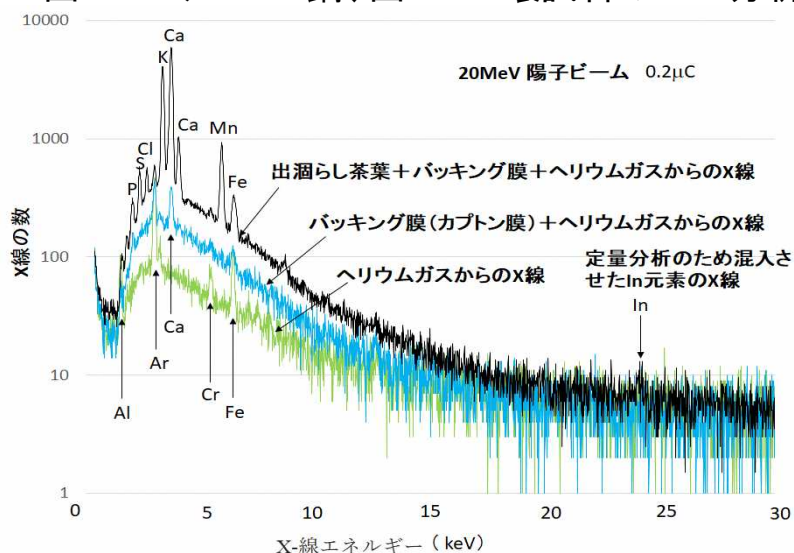


図1 茶葉のPIXE分析スペクトル

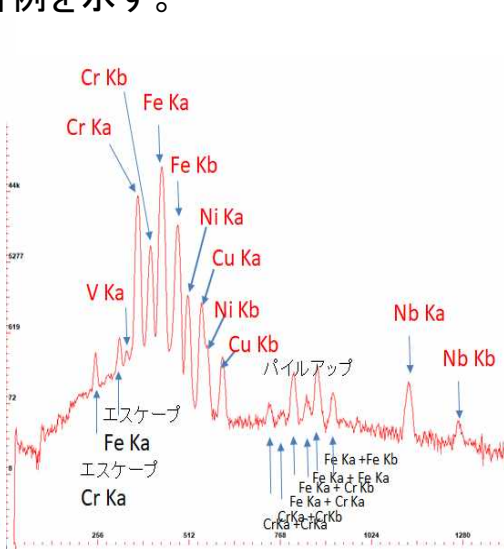


図2 ステンレス鋼

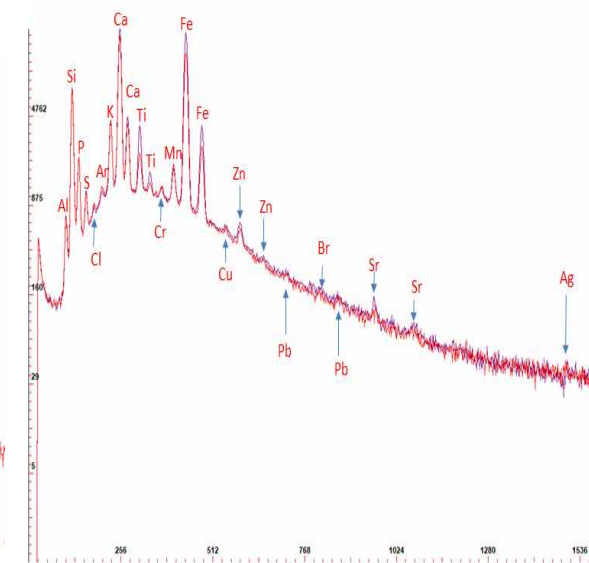


図3 土壌試料

令和2年度の研究成果

県内の大学および研究所からの多くの試料の分析を行った。①血清、②白樺樹液、③縄文土器、④牧草、⑤タングステン摂取微生物、⑥ホヤ、⑦耳石、⑧ゴボウ、⑨ホタテ、⑩牛乳、⑪ソフトクリーム、⑫ニンニク、⑬長芋。有機物試料は、インジウムを添加して定量解析を行った。②、④、⑥、⑧～⑬の試料には、ミネラル元素が多く含まれていることが分かった。

③の縄文土器の分析においては、土器の表面をビーム位置を固定して土器を移動させて元素の空間分布の測定を行った(図1参照)。Ti、Zn、Zr元素の分布が単調な変化なのに対して、漆に含まれて居そうなS、P、Ca、Cr、Mn、Fe、Rb、Srの元素は5番目の位置において大きな変化を見せている。一方、Si、Kの元素はこれらの元素の変化と逆な傾向を示している。漆塗り縄文土器の分析においては、ヘリウム雰囲気中冷却効果による試料表面損傷効果を調べた結果、20MeV陽子線照射による損傷は確認されなかった。

20MeV陽子線のエネルギーは、物質透過によるエネルギー損失によって変えることができる。20MeVの陽子は厚さ2.98mmのpeek材を透ることにより3MeVにそのエネルギーを減少することができる。

図2は、血清ターゲットを3MeVと20MeVで行ったPIXESスペクトルである。3MeV PIXEでは、準自由電子制動輻射の連続バックグラウンドが無くなり、Fe元素が良く見えるようになったが、Br、In元素が見えなくなった。従って、コンプトンバックグラウンドを減少させる必要がある。

⑦の耳石の分析においては、QST高崎研のマイクロPIXE分析装置を使用し、サクラマスの耳石のSrの分布を確認した。

元素を限定した場合は、超高感度で分析できるICP-MSの利用が考えられる。青森大学、民間企業からの湧水を東北大学工学部との協力の下、分析を行った。

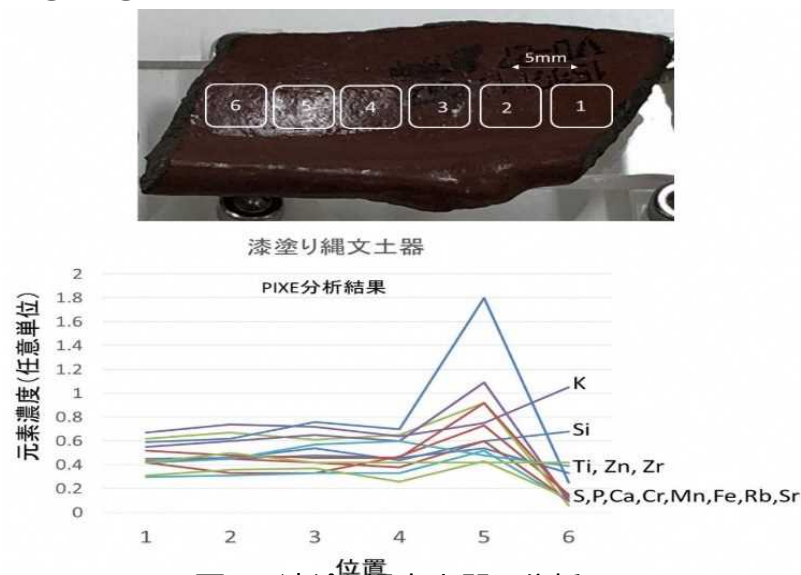


図1 漆塗り縄文土器の分析

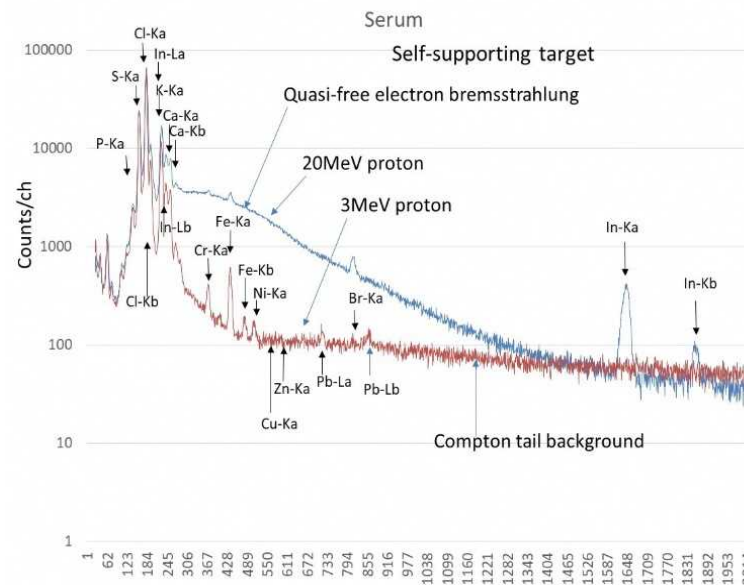


図2 3 MeV PIXEと20 MeV PIXEの比較

令和3年度の研究成果

大きな研究成果としては、Q電磁石の導入によってビームの強度が約100倍に増えた。このため、ビームカレントも精度良く測定できるようになった。図1にPIXEビームラインに設置された2連のQ電磁石を示す。サイクロトンから出たビームは、先ずスリットでビーム径を定め、そこから発散したビームを3連Q電磁石で収束させ、偏極電磁石に入射し、PIXEビームラインにビームを通す。偏極電磁石から出射されたビームは再び発散する。これを2連Q電磁石で受けて収束させる。その調整は、ビームビューアーでビームスポットを観察しながら収束させる。図2は、ビーム調整の様子を示す。ビームビューアーで収束させたビームをターゲットまで通し、上流のステアリング電磁石で位置調整し、次に既設のビームコリメーターで図2の右図のようにターゲット上で任意のビームスポットに整形する。右図では4mm×4mmの大きさ。この2連Q電磁石を設置したお陰で、ビームが発散して失っていたビームを回収でき、更にビームがダクトに当たって中性子、ガンマ線を出しX線検出に対する連続のバックグラウンドも非常に少なくなった。

陽子エネルギーを20MeVから3MeVにエネルギー変換するシステムも、2連Q電磁石が導入されたことにより、これまでのシステムではビーム受け面積が小さすぎるため、新しくビーム受け面積が広いシステムを制作し、エネルギー損失用ピーク材薄板によるビーム分散効果を減らすため、図1に示すようにビームビューアーの直前に設置した。本システムを用いて、椿油、血清、リーフレタス、なまこ、ホタテ、とば、あたりめ、しじみ、アラル海の海底土の分析を行った。

また、東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻量子フォーラム室の藤原助教の指導の下、六ヶ所村第一中学校、第二中学校の中学生を対象にした理科教育において、各中学校の土のPIXE分析が行われた。各校の土の成分の違いに中学生たちは興味を示していた。PIXE分析は中学校の理科教育の向上に十分貢献できることが分かった。

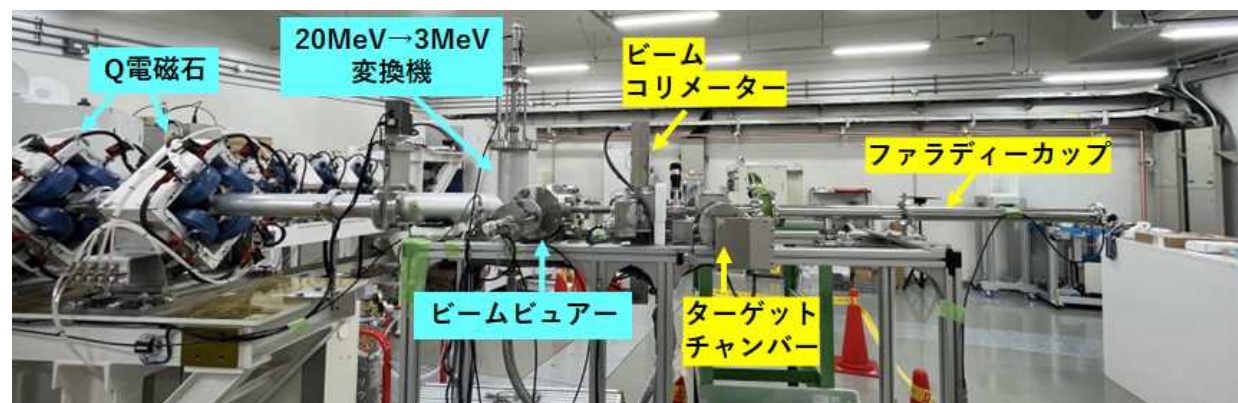


図1 PIXEビームラインに設置されたQ電磁石、20MeV→3MeV変換機、ビームビューアー

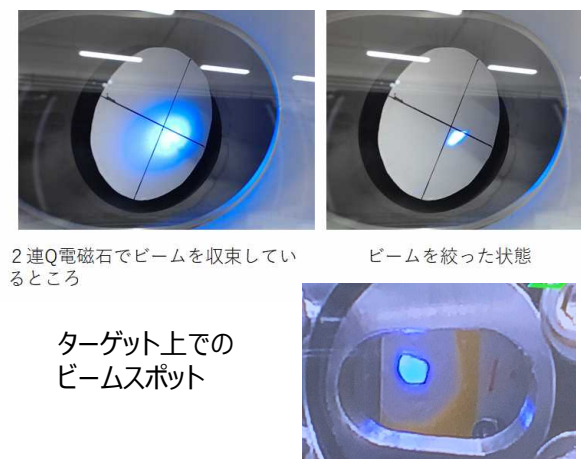


図2 ビームビューアーの位置での2連Q電磁石によるビーム収束

研究発表

1. 平成30年11月8日、青森県観光レクリエーション振興施設 ゆーさ浅虫、第34回PIXEシンポジウム、新たに設置された青森県量子科学センターPIXE分析システム
2. 令和元年10月13日から18日、フランス・アンチーブ、ION BEAM ANALYSISに関する第24回国際会議、Theoretical detection limit of PIXE analysis using 20 MeV proton beams
3. 令和元年7月19日、名古屋大学、第13回大学原子力施設連絡会シンポジウム、青森県量子科学センターでの原子力研究活動
4. 2019年11月13日(水)～15日(金)、東京都市大学 二子玉川夢キャンパス、第35回 PIXEシンポジウム、20MeV PIXE 分析法

研究会等の開催

1. 平成30年7月25日、青森県量子科学センター、第12回大学原子力施設連絡会シンポジウム
2. 平成30年11月7日～9日、青森県観光レクリエーション振興施設 ゆーさ浅虫、第34回PIXEシンポジウム

発表論文

1. Theoretical detection limit of PIXE analysis using 20 MeV proton beams, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, B417,(2018),37-40, Keizo ISHII and Keitaro HITOMI
2. Use of a medical positron emission tomography cyclotron to perform proton-induced X-ray emission analysis, International Journal of PIXE, Vol. 28, Nos. 3 & 4, p93-p100, 2018, Keizo Ishii, Atsuki Terakawa, Hiroki Ushijima, Keitaro Hitomi, Nobumichi Nagano and Mitsuhiro Nogami.
3. Development of a 20-MeV proton particle-induced X-ray emission analysis method in a helium atmosphere, International Journal of PIXE, Vol. 29, Nos. 1 & 2, p113-p117, 2019, Keizo Ishii, Atsuki Terakawa, Keitaro Hitomi, and Mitsuhiro Nogami.

青森県内への波及効果

高エネルギーPIXE分析法の開発により、県の研究所、県内の大学、県内の企業から多くの分析依頼が来るようになり、県の研究・教育・産業に貢献するようになった。