

放射線化学バイオ応用理工学特論

放射線と物質の相互作用

秋吉 優史

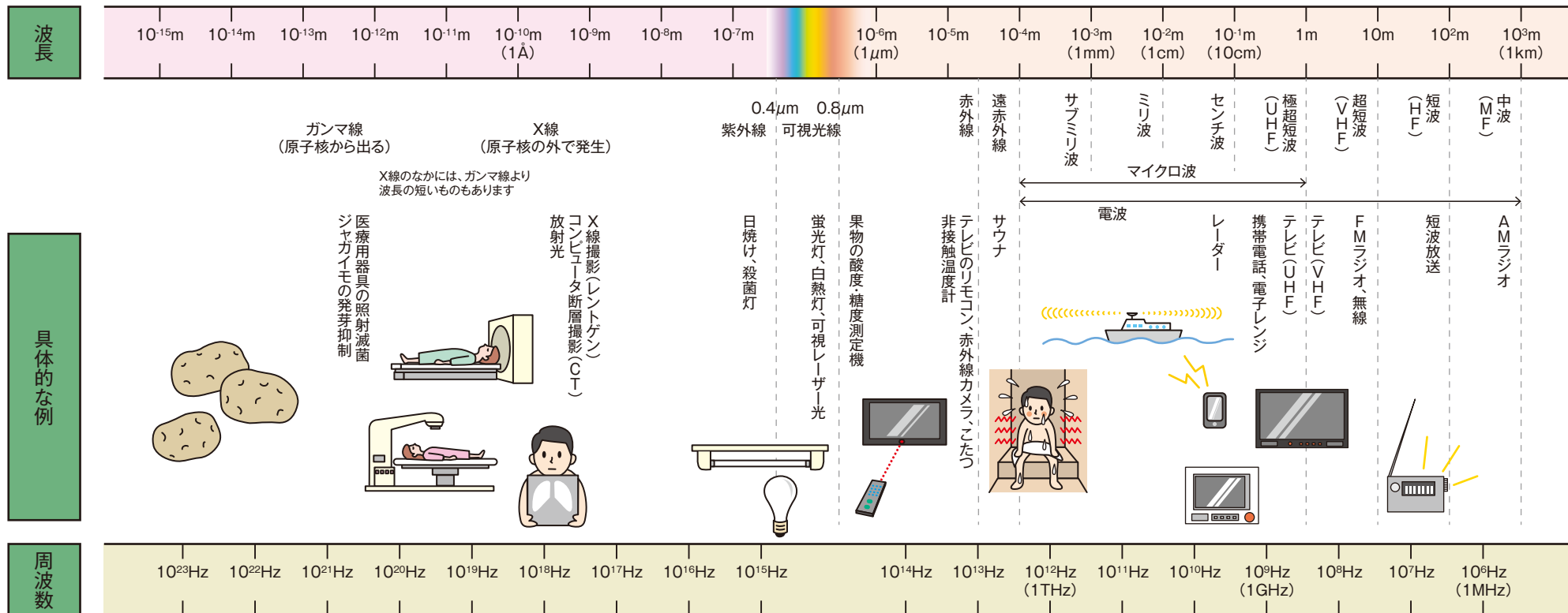
電磁波の仲間

光子のエネルギー $E \div 1240 / \lambda$ [eV], λ : 波長[nm]

1.24MeV

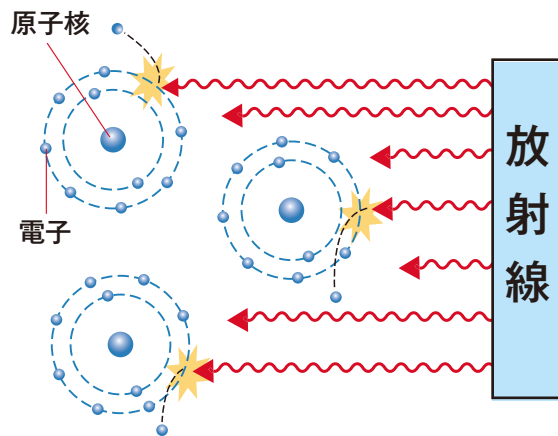
12.4keV

1.24eV

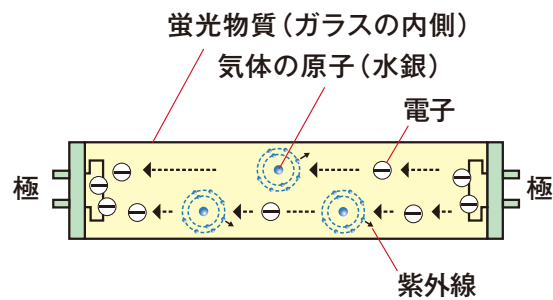


放射線の性質

電離作用



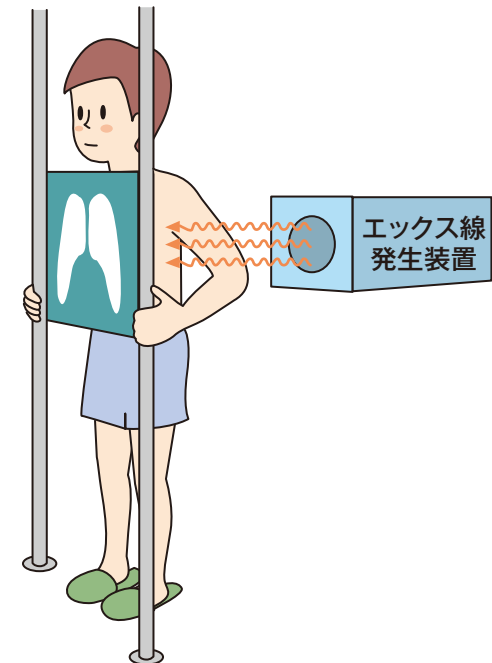
蛍光作用



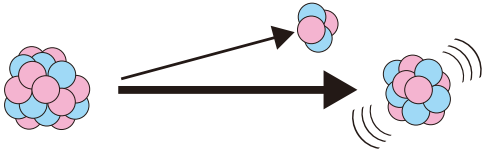
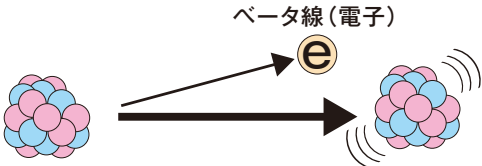
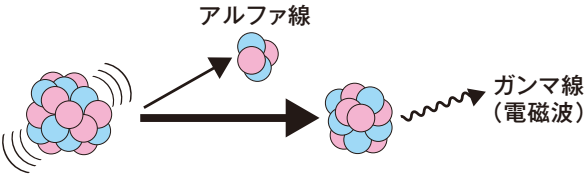
蛍光灯の仕組み

管の両端に電圧が加わると、極から極に電子が流れます。電子が管に封入された水銀に衝突すると、紫外線が発生します。紫外線は蛍光物質を光らせます。

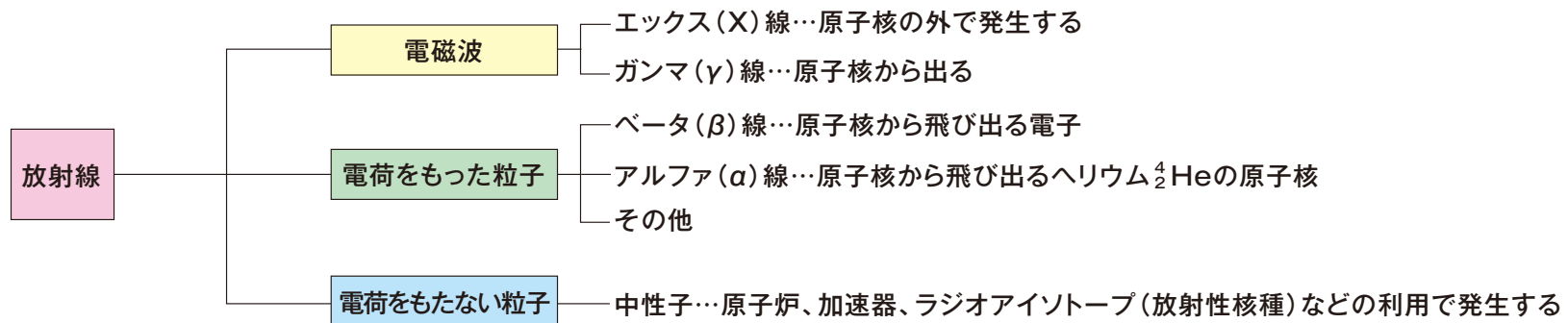
透過作用



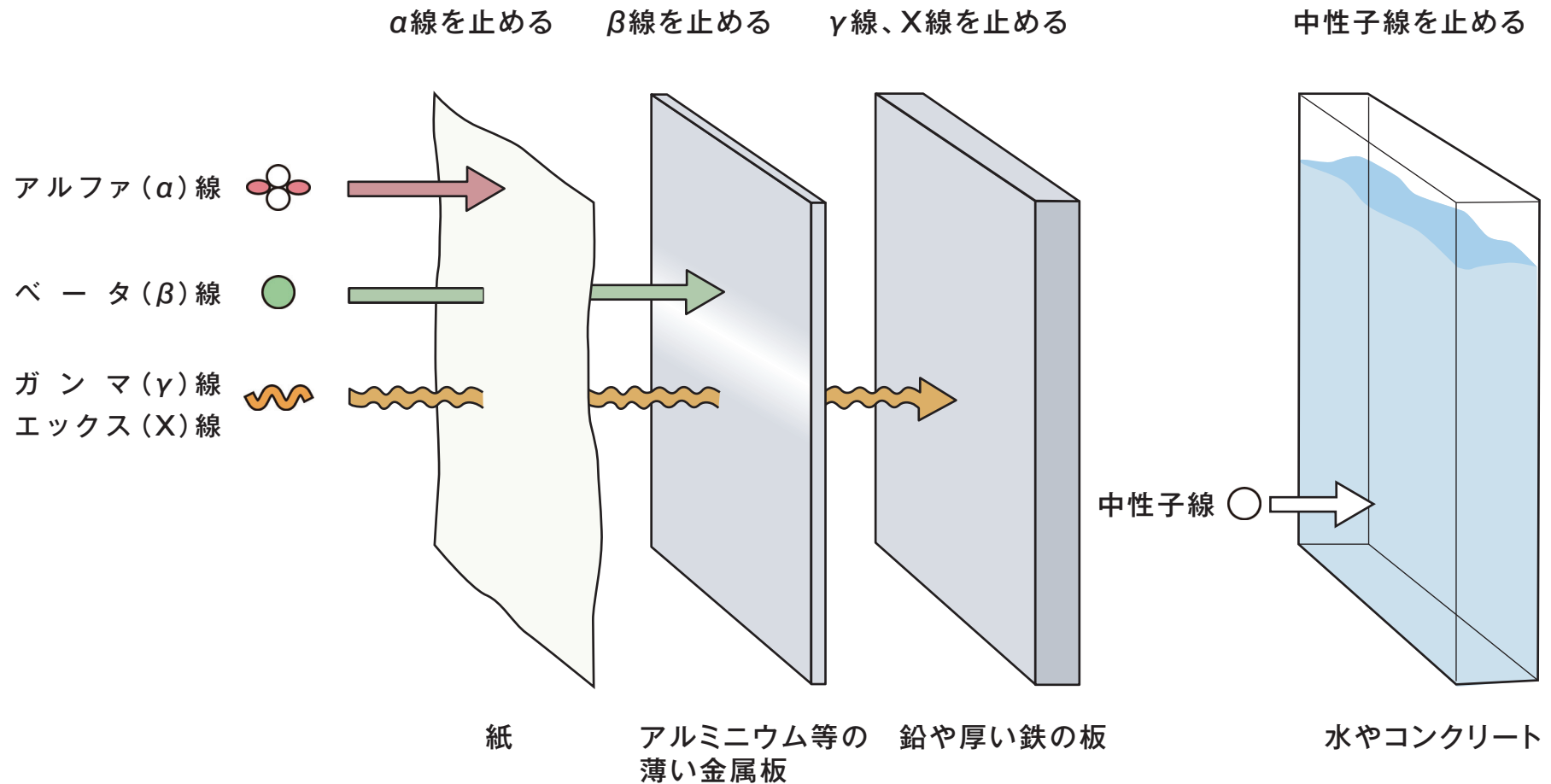
放射線の種類

アルファ(α)壊変(崩壊)	アルファ線(${}^4_2\text{He}$原子核) 	(例) ${}^{226}_{88}\text{Ra} \longrightarrow {}^{222}_{86}\text{Rn} + {}^4_2\text{He}$
ベータ(β)壊変(崩壊)	ベータ線(電子) 	(例) ${}^{24}_{11}\text{Na} \longrightarrow {}^{24}_{12}\text{Mg} + e^-$
ガンマ(γ)線の放出	アルファ線  ガンマ線(電磁波)	

● 陽子 ● 中性子



放射線の種類と透過力



放射線と物質の相互作用

イオンビーム (α 線)

質量が電子に比べてはるかに重いため、電子との衝突によりほとんど曲げられず、少しずつエネルギーを失う。相互作用は電荷の二乗に比例、速度の二乗に反比例(エネルギーに反比例)し、ブラッグピークで急激にエネルギーを放出し、原子核の弾き出しを起こす。

電子線 (β 線)

物質中の電子との衝突によって、簡単に方向やエネルギーが変化するため、まっすぐに進まず、広い範囲に広がる。このため、平均的な飛程という物は求めにくく、最大飛程で評価される。重元素に入射すると、原子核周辺の強い電場で急激に曲げられることにより、制動放射X線の発生割合が大きくなる。

γ 線、X線

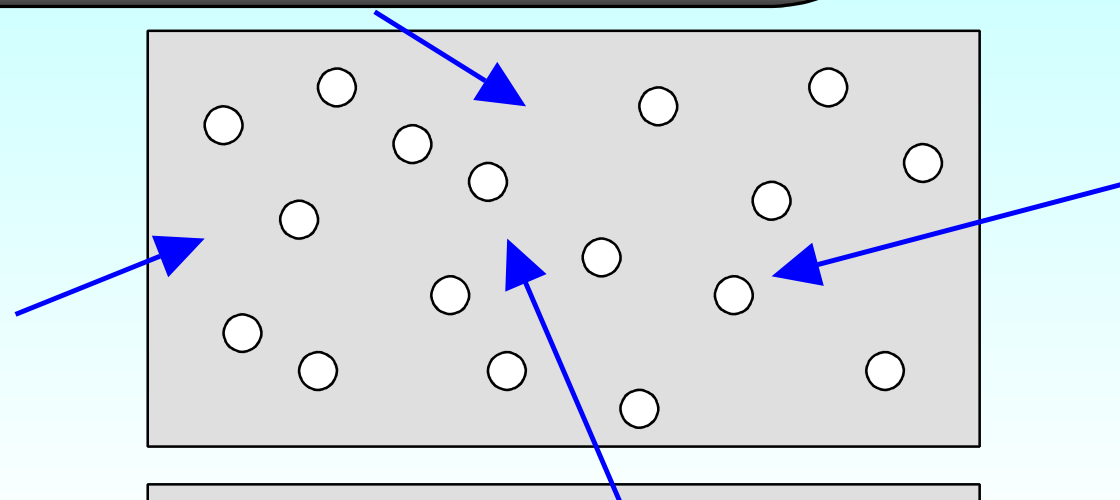
物質を進むにつれて指数関数的に強度が弱くなっていくが、その際の線減弱係数は光子のエネルギーによって関与する素過程の違いが変化するため大きく異なる。数MeVの領域では高エネルギーの方が透過力は高い。光電効果、コンプトン効果により物質中で電子線を生成するため、高エネルギーの光子はごく僅かではあるが原子核の弾き出しも起こす。

入射粒子による欠陥導入形態の違い

中性子照射

透過力の高い $E > 0.1 \text{ MeV}$ の高速中性子により試料全体に均質に欠陥が導入される。

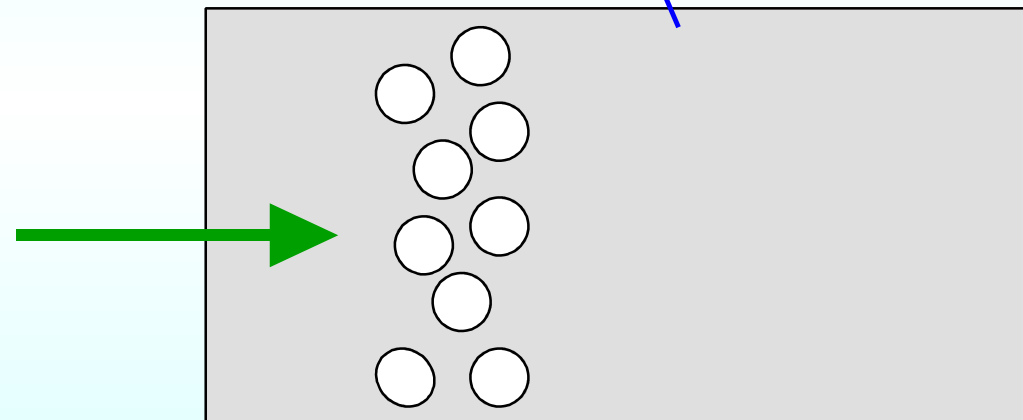
Primary Knock-on Atom (PKA) をはじき出した後は狭い領域に欠陥が集中し、カスケードを形成する。



イオンビーム照射

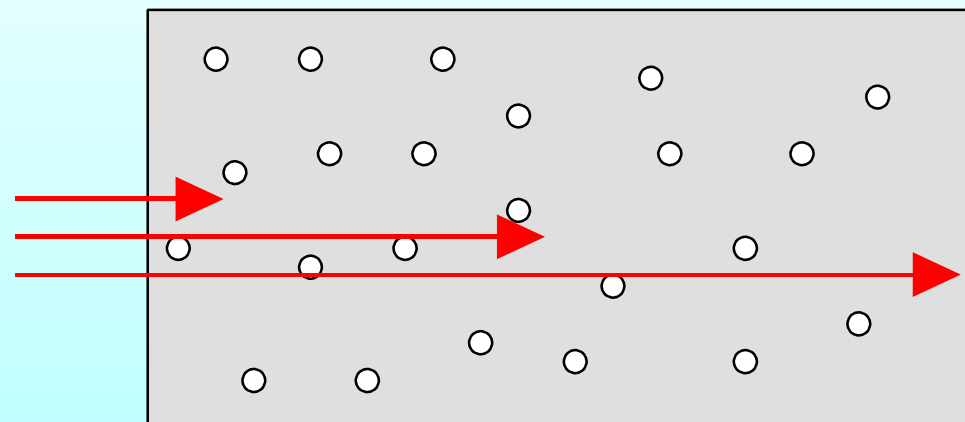
電子励起によりエネルギーを失っていき、ブラッグピーク付近に集中的に欠陥が導入される。

PKAをはじき出した後の挙動は中性子照射と似ていて、カスケードを形成する。



電子線照射

30 MeV の電子線は、セラミックス中でおおよそ 10 cm 程度の飛程を持つが、平均 PKA エネルギーは 225 eV にとどまるため損傷関数は 3.75 個となり、フレンケル対などの点欠陥のみが導入されると考えられる。

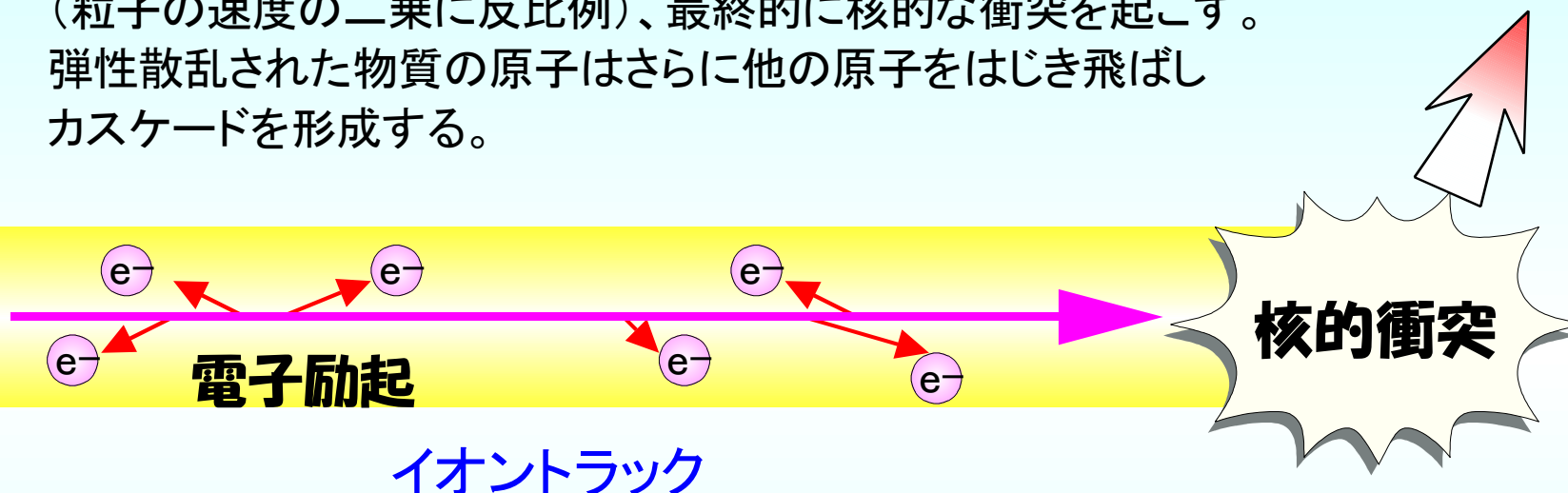


イオンビーム(α 線)の場合

物質に入射したイオンビームはそのほとんどのエネルギーを電子励起により徐々に失い、それに伴い阻止能が増加し(粒子の速度の二乗に反比例)、最終的に核的な衝突を起こす。弾性散乱された物質の原子はさらに他の原子をはじき飛ばしカスケードを形成する。

Primary Knock-on Atom (PKA)

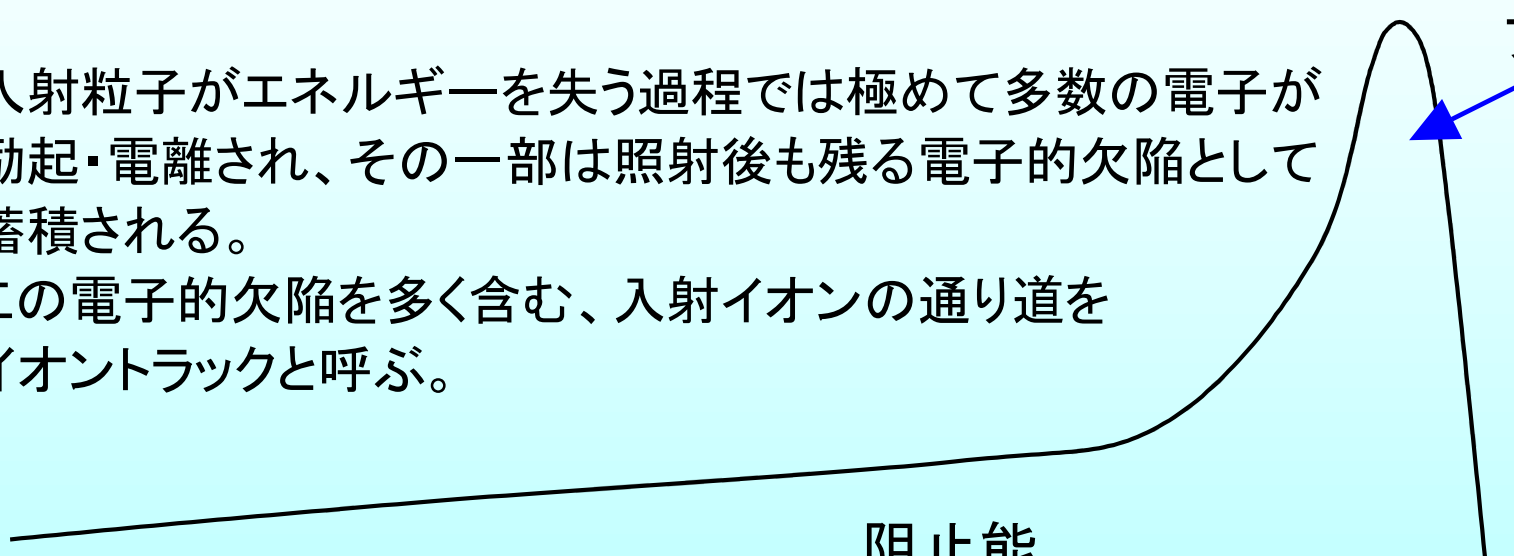
弾性散乱
(弾き出し)



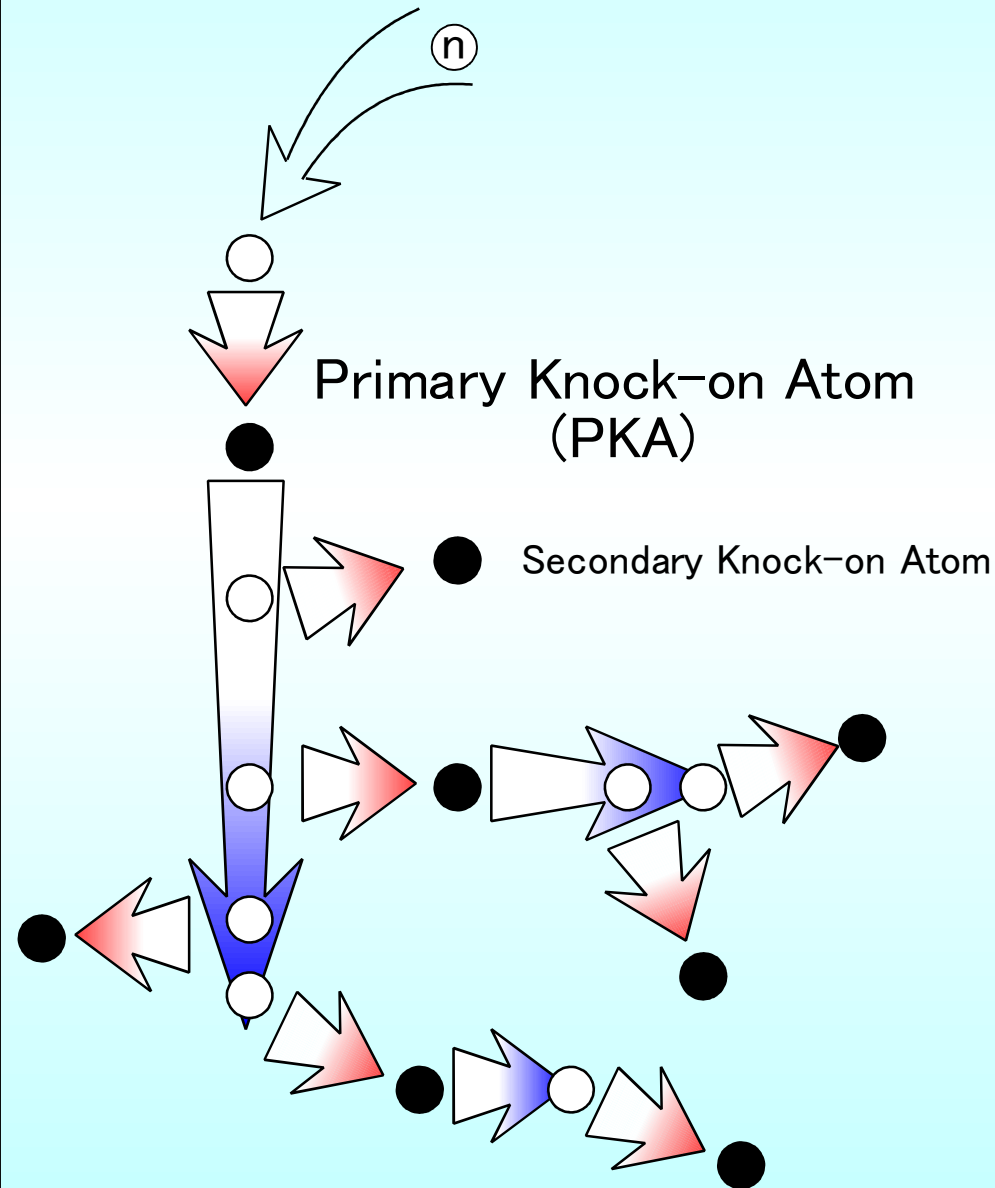
入射粒子がエネルギーを失う過程では極めて多数の電子が励起・電離され、その一部は照射後も残る電子的欠陥として蓄積される。
この電子的欠陥を多く含む、入射イオンの通り道をイオントラックと呼ぶ。

阻止能

ブラッグピーク



照射カスケード



入射粒子がある格子原子をはじき飛ばすと、その原子は Primary Knock-on Atom (PKA) となり、この原子がまた別の格子原子をはじき飛ばす。

エネルギーが高いうちは弾き出しの確率は低い、電子励起により徐々にエネルギーを失い、速度が落ちてくると弾き出しの断面積が増加するため、次々と弾き出しを起こして止まる。

この終端付近の連続して弾き出しが起こる領域を照射カスケードと呼び、瞬間的にその領域にエネルギーが解放されるため超高温状態となり、局所的な溶解状態となる。

α 線の飛程

Q: ウラン系列の核種を含むラジウムボールから放出される α 線の最大飛程を求めよ。

- ・ウラン系列の核種のうち、最大のエネルギーの α 線を放出するのは Po-210 でそのエネルギーは 7.69MeV である。
- ・ α 線の空気中での飛程は $R = 0.318E^{3/2}$ で表わされる (R: 飛程(cm), E: エネルギー(MeV))。

α 線の飛程

Q: ウラン系列の核種を含むラジウムボールから放出される α 線の空気中での最大飛程を求めよ。

- ・ウラン系列の核種のうち、最大のエネルギーの α 線を放出するのは Po-210 でそのエネルギーは 7.69MeV である。
- ・ α 線の空気中での飛程は $R = 0.318E^{3/2}$ で表わされる (R: 飛程(cm), E: エネルギー(MeV))。

A: 6.78cm

電子線(β 線)と α 線の比較

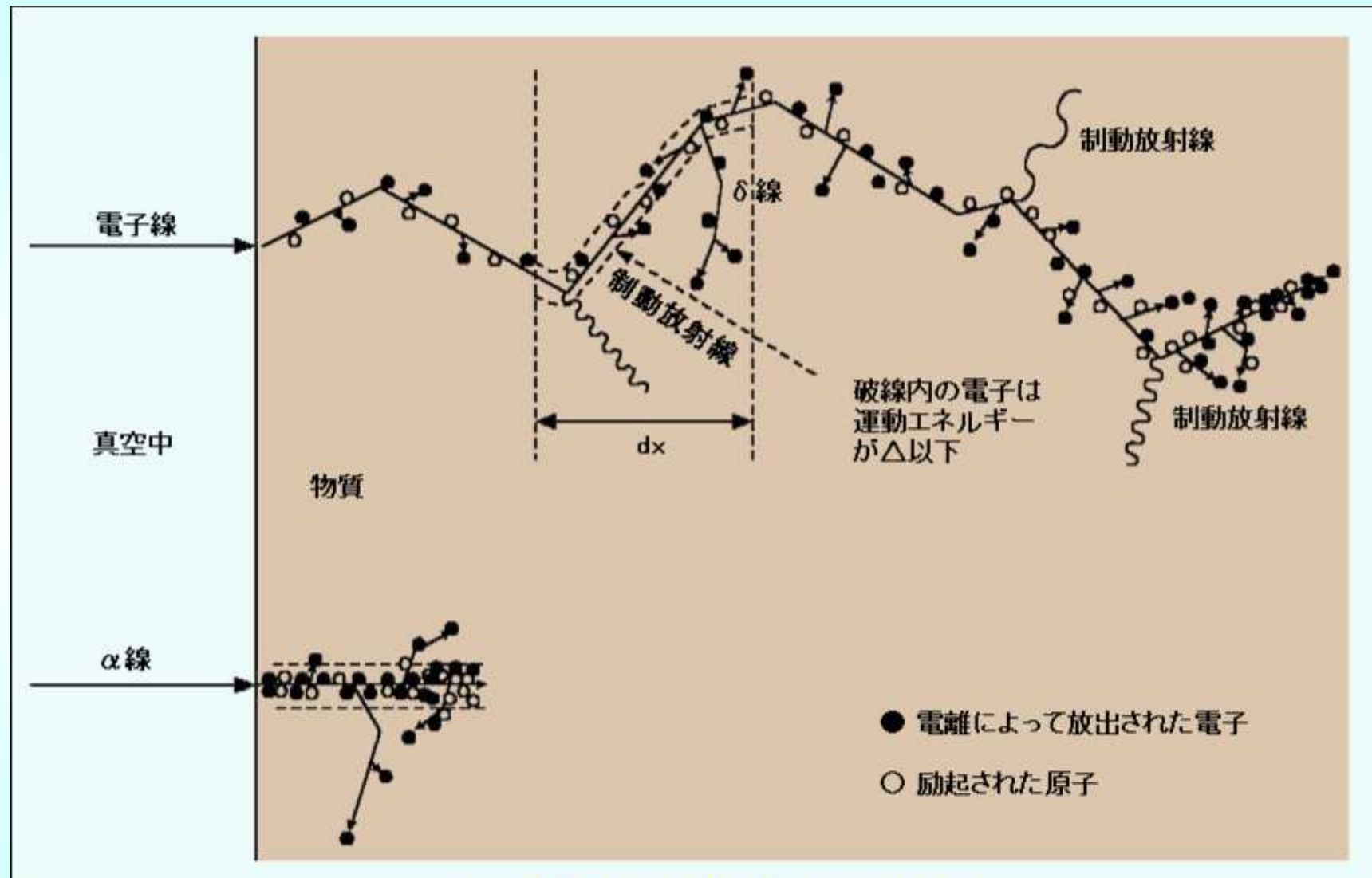
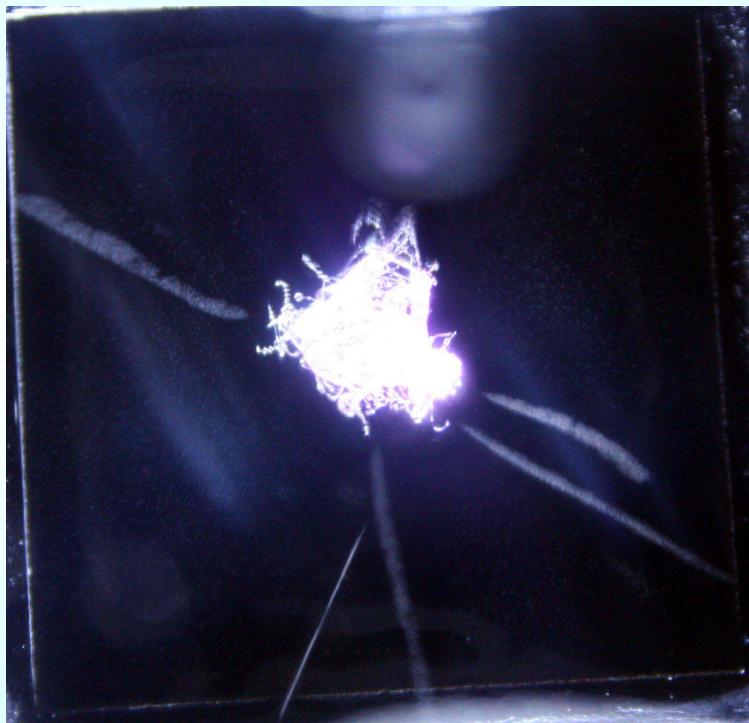


図1 荷電粒子と物質の相互作用

[出典]江藤秀雄ほか:放射線防護、丸善(1982年12月)、p.54

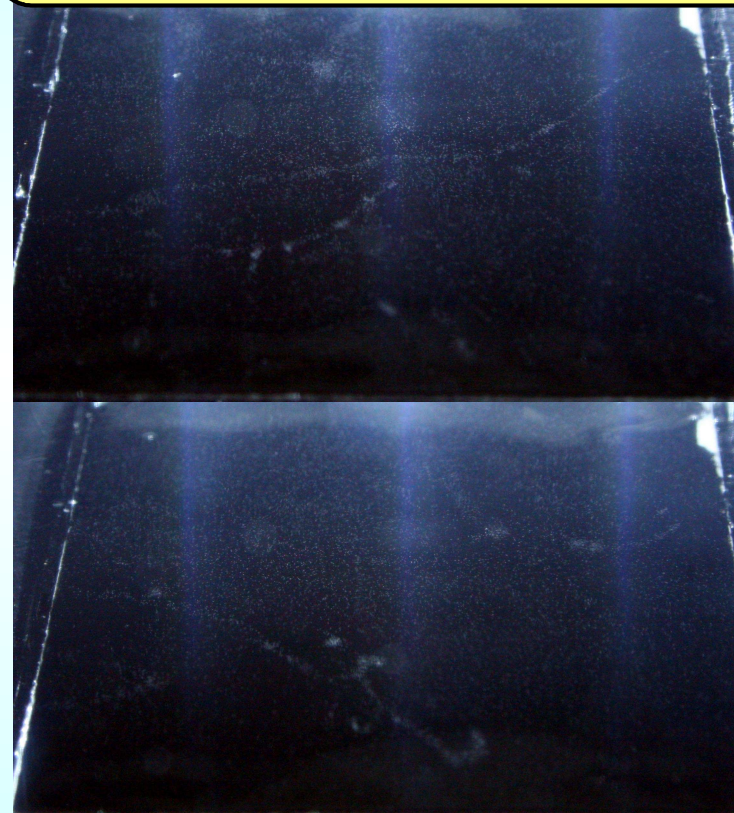
霧箱での飛跡の観察

トリウム含有マントルからの
 α 線の飛跡



直線的ではっきりとした飛跡を示す。
気流の関係で生成した霧がたなびく
事で曲がって見えることがあるが、
散乱や磁石による偏向ではない。

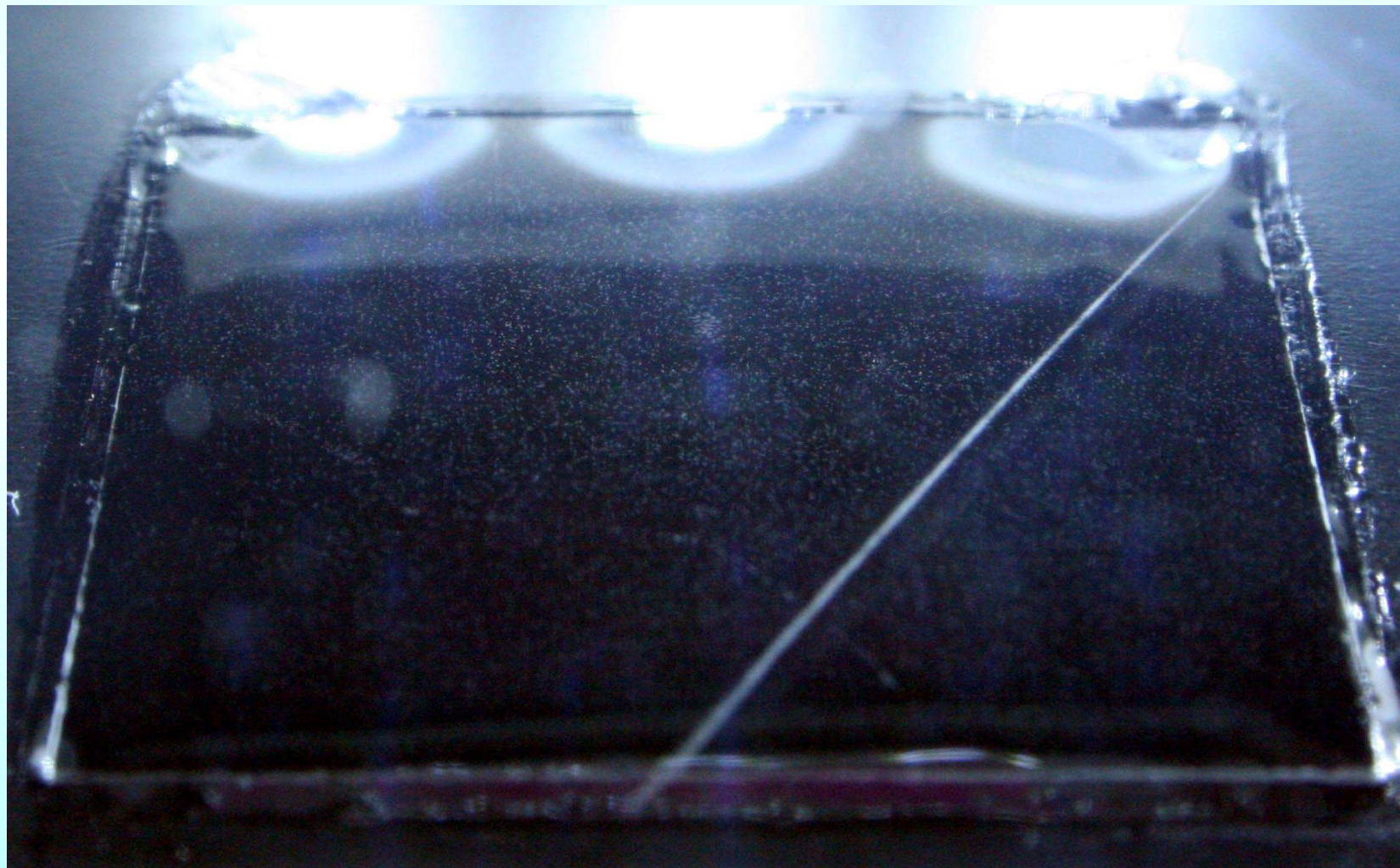
トリウム含有マントルからの
 β 線の飛跡



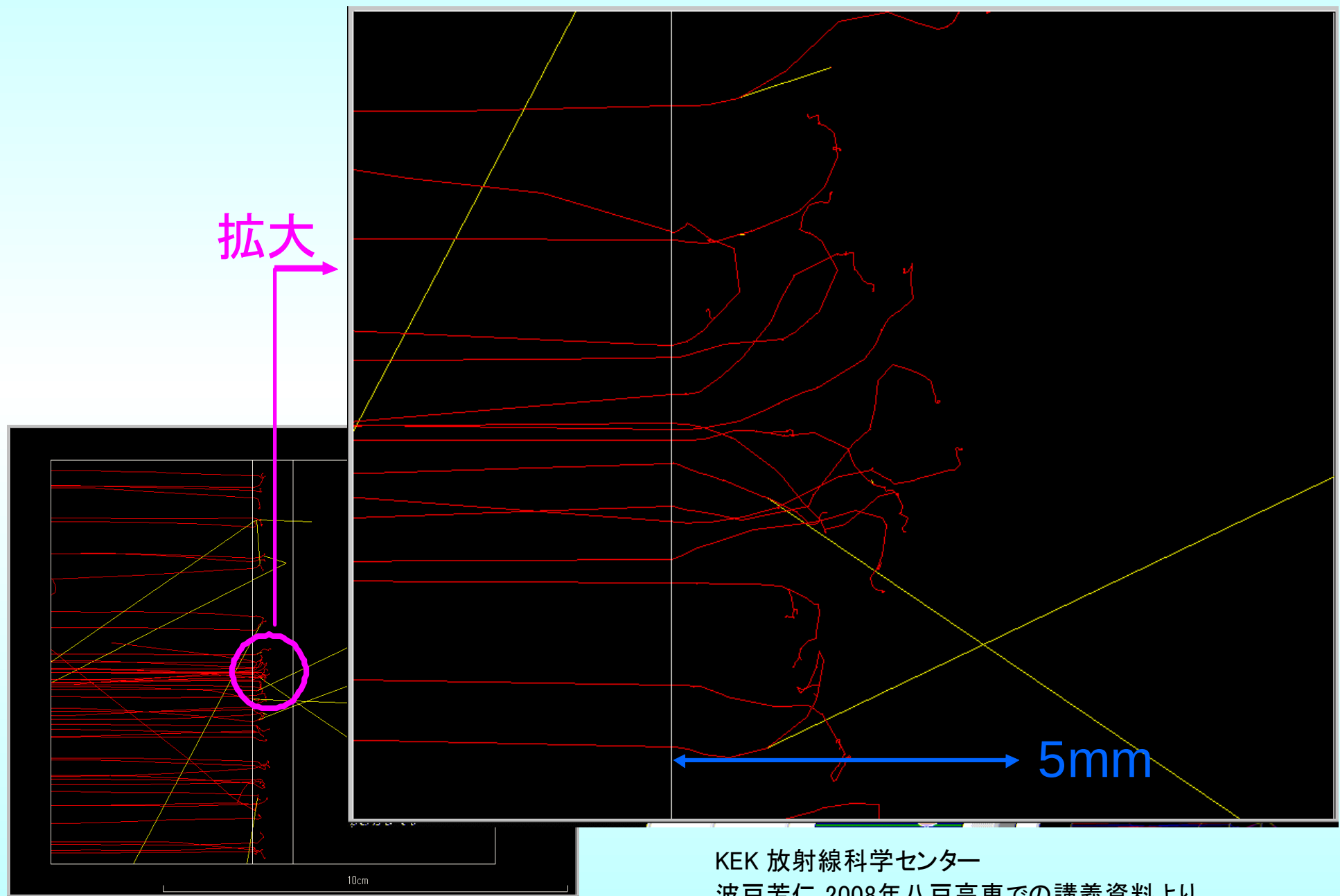
霧の液滴の密度が低く、うっすらとした
飛跡しか示さない。電子線の入射方向と
関係なく様々な方向に飛び、空気中でも
散乱されている様子を確認できる。

霧箱での飛跡の観察

トリウム含有マントルからの β 線の飛跡と
空気中ラドン由来核種からの α 線の飛跡の比較

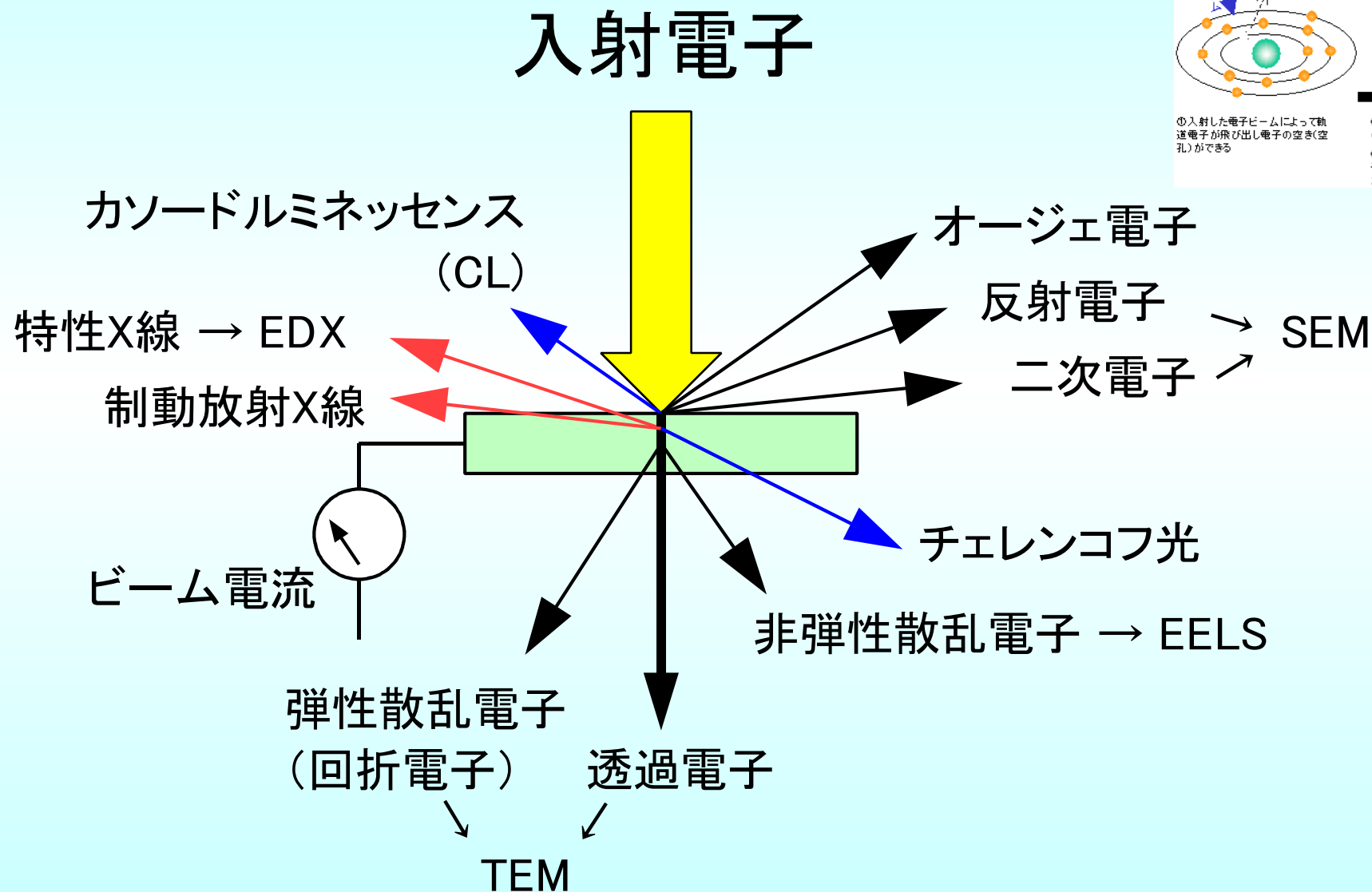
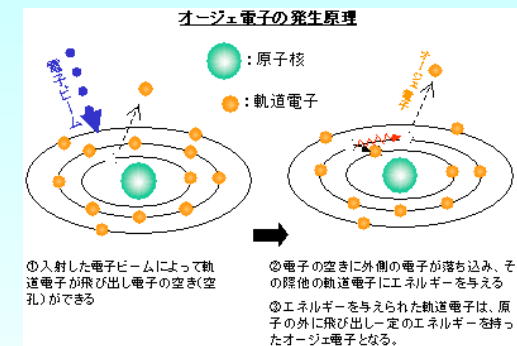


ベータ線と物質の相互作用



KEK 放射線科学センター
波戸芳仁 2008年八戸高専での講義資料より

電子線の入射で出てくるもの



電子線(β線)の飛程

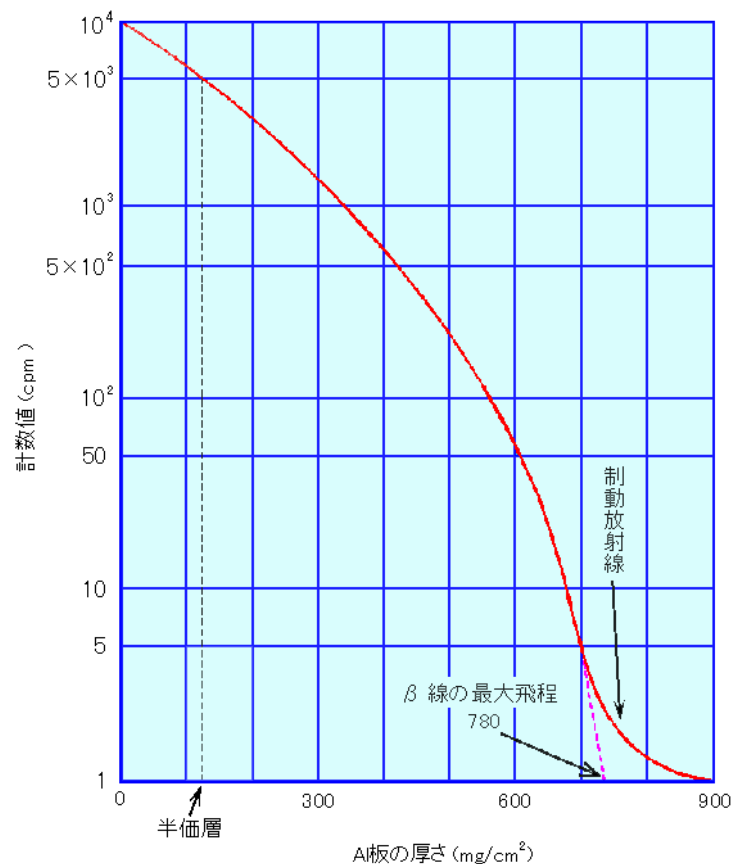


図3 ^{32}P のβ線のアルミニウムによる吸収曲線

[出典] 江藤秀雄(ほか): 放射線の防護, 丸善(1982年12月), p.56

β線は、そもそも放出される時点でエネルギーが一様ではない。これはベータ崩壊の際に反電子ニュートリノが絡む三体崩壊であり電子のエネルギーが決まらないためである。

さらに物質に入射後は非常に複雑な散乱過程を示すのであるが、概ね物質の厚さの増加に伴い指数関数的に強度が減少する。

なお、入射する物質が変わっても質量衝突阻止能はほとんど変わらない。数MeV程度のβ線では制動放射に伴う放射阻止能は衝突阻止能よりずっと小さいが、ターゲットの原子番号 Z に比例して大きくなるため、遮蔽の際には低 Z の材料を使用する。

入射電子線のエネルギー E (MeV),
最大飛程 R (g/cm^2) とすると、
アルミ中での最大飛程は以下の様に与えられる

$$R = 0.542 E - 0.133 \quad (0.8 < E)$$

$$R = 0.407 E^{1.38} \quad (0.15 < E < 0.8)$$

電子線 (β 線) の飛程

Q: ウラン系列の核種を含むラジウムボールから放出される β 線を遮蔽するのに必要なアルミ板の厚さを求めよ

- ・ウラン系列で最も大きいエネルギーの β 線は Bi-214 からの 3.27MeV である。
(Tl-210 4.21MeVもあるが分岐比率0.021%でほとんど出ていない)
- ・アルミの密度は 2.70g/cm^3 である。

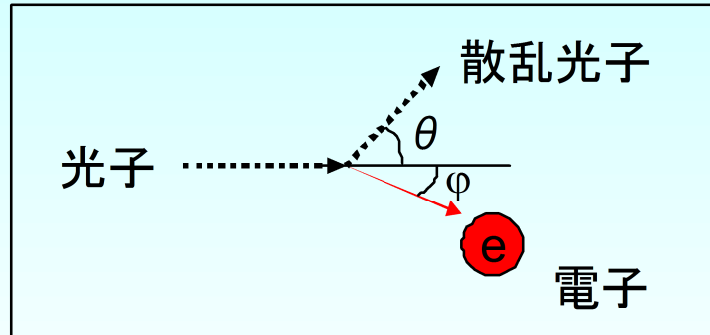
電子線 (β 線) の飛程

Q: ウラン系列の核種を含むラジウムボールから放出される β 線を遮蔽するのに必要なアルミ板の厚さを求めよ

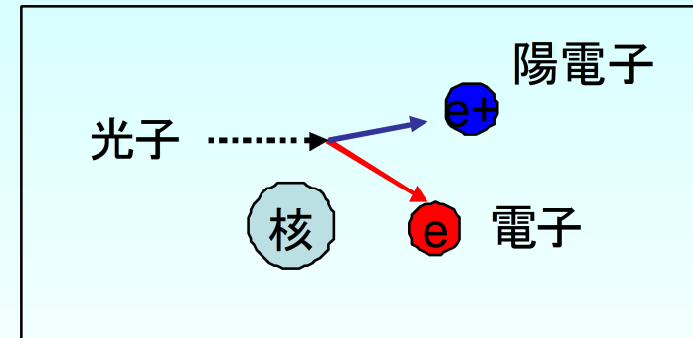
- ・ウラン系列で最も大きいエネルギーの β 線は Bi-214 からの 3.27MeV である。
(Tl-210 4.21MeVもあるが分岐比率0.021%でほとんど出ていない)
- ・アルミの密度は 2.70g/cm^3 である。

A: 0.607cm

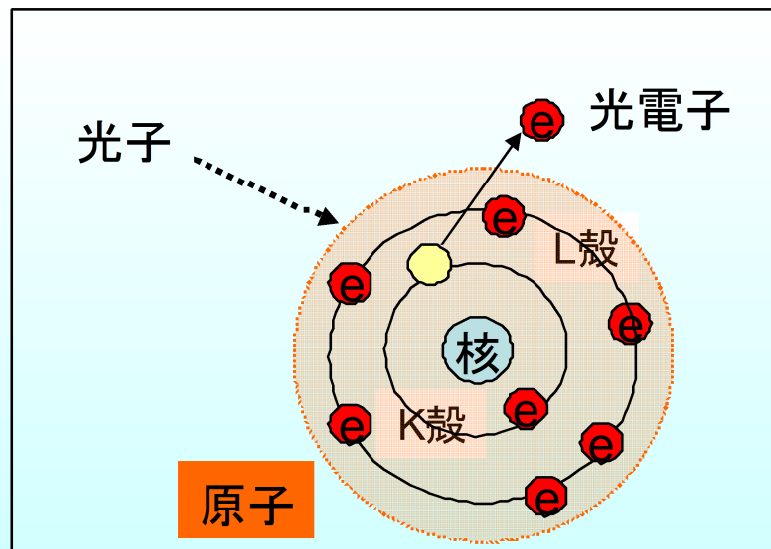
ガンマ線と電子・原子核・原子との反応



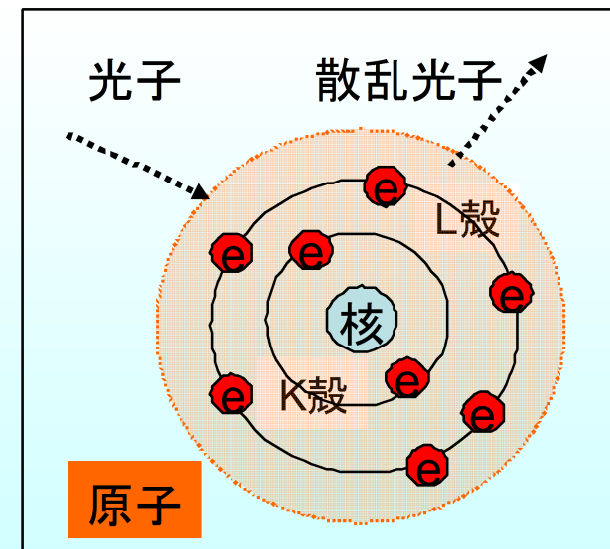
コンプトン散乱



電子対生成



光電効果



レイリー散乱

γ 線・X線と物質の相互作用

レイリー散乱

弾性散乱。入射光のエネルギーが変化しない散乱過程。

光電効果

軌道電子に入射光子のエネルギーを全て与えて、軌道エネルギーを差し引いたエネルギーを持つ高速電子(光電子)を生成する。断面積は入射光子のエネルギーの -3.2 乗に比例する。

コンプトン散乱

軌道電子に入射光子のエネルギーの一部を与えて、高速電子(コンプトン電子)を生成する。散乱後のエネルギーは散乱角に依存し、連続スペクトルとなる。

電子対生成

入射光子のエネルギーが 1.022MeV 以上の場合、原子核近傍のクーロン場中で電子と陽電子の対を生成する。入射光子は全エネルギーを失い消滅し、電子・陽電子の静止質量エネルギーの残りは運動エネルギーとして分配される。

光核反応

高エネルギーの光子が原子核と直接反応し、様々な素粒子が放出される。 $Z=50$ 程度の核種では中性子の結合エネルギーが 10MeV 程度であり、これ以上のエネルギーの光子の入射により(γ, n)反応を起こして中性子が放出される。

γ 線・X線の減衰

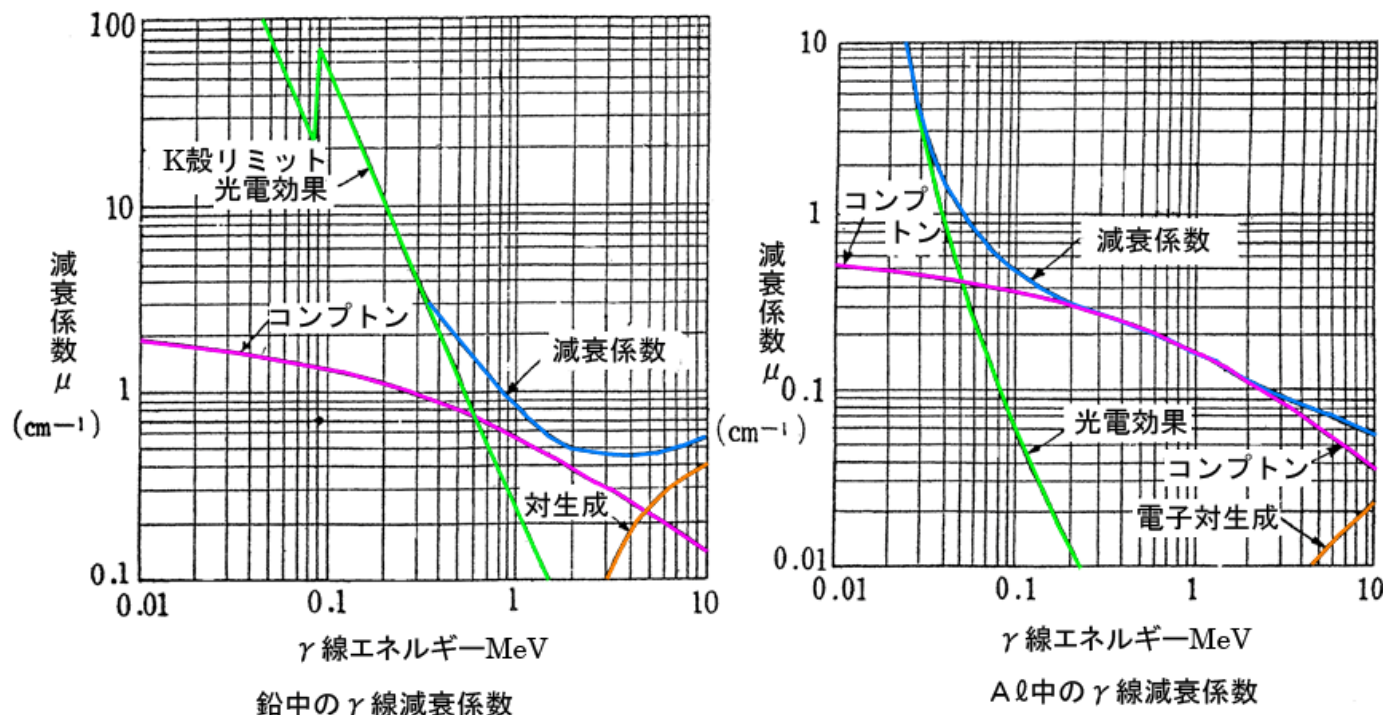


図3 γ 線のコンプトン効果

【出典】三浦 功、菅 浩一、俣野恒夫:「放射線計測学」、裳華房、p.21

ターゲットとなる物質の原子番号 Z の増加と共に、線源弱係数は

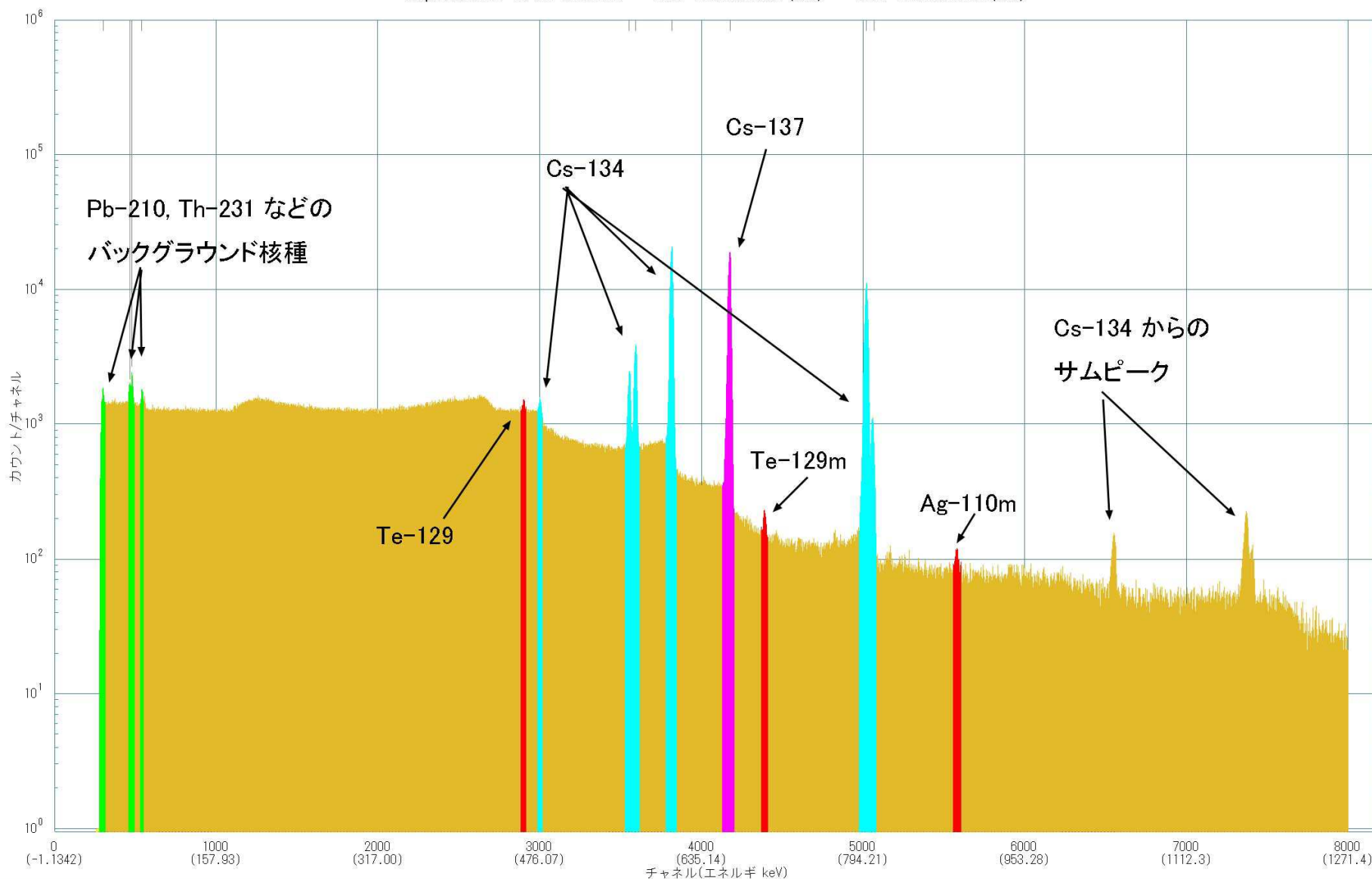
光電効果 $Z^4 \sim Z^5$ に比例
コンプトン効果 Z に比例
電子対生成 $Z(Z+1)$ に比例
となって Z が大きくなると急激に遮蔽能力が高くなる。

入射光子のエネルギー増加と共に、物質との相互作用を起こす効果が変わっていく。
比較的低エネルギーではレイリー散乱、光電効果が主であり、次第にコンプトン散乱が支配的となる。
高エネルギーでは電子対生成が主となる。
光核反応は12-24MeV 付近で最大断面積となるが μ への寄与は5%程度である。
また、低エネルギーではK殻電子やL殻電子の電離エネルギー以上になると光電効果を起こせるがそれ以下では起こせないため、光電効果の効率が不連続に変化する。これをK吸収端、L吸収端と呼ぶ。

γ 線スペクトル測定の一例

20110608_南相馬市馬事公苑-土_110620. CHN

Acquired:2011-06-20 12:30:07 Real Time:30068.1(sec) Live Time:30000.0(sec)



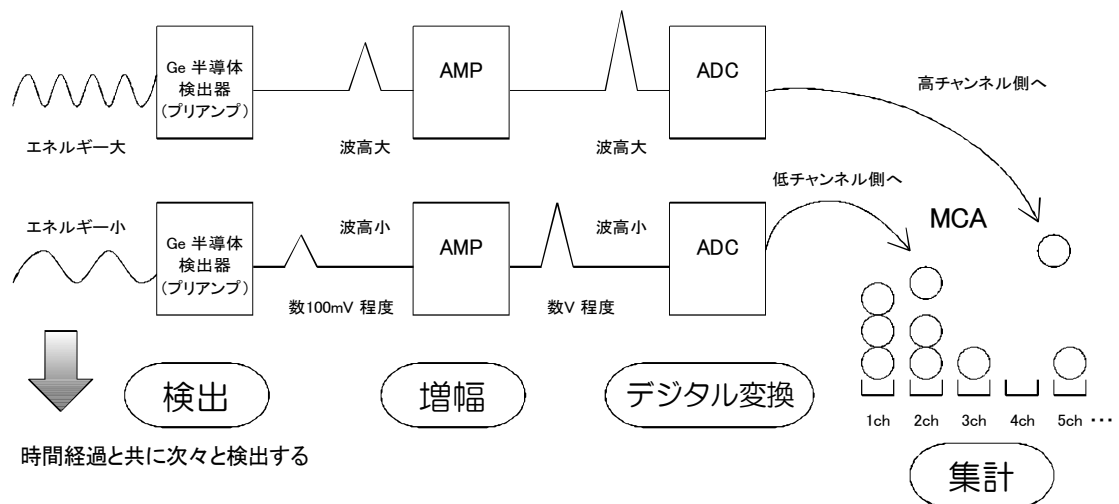


Fig. 1 γ 線スペクトル測定概念図

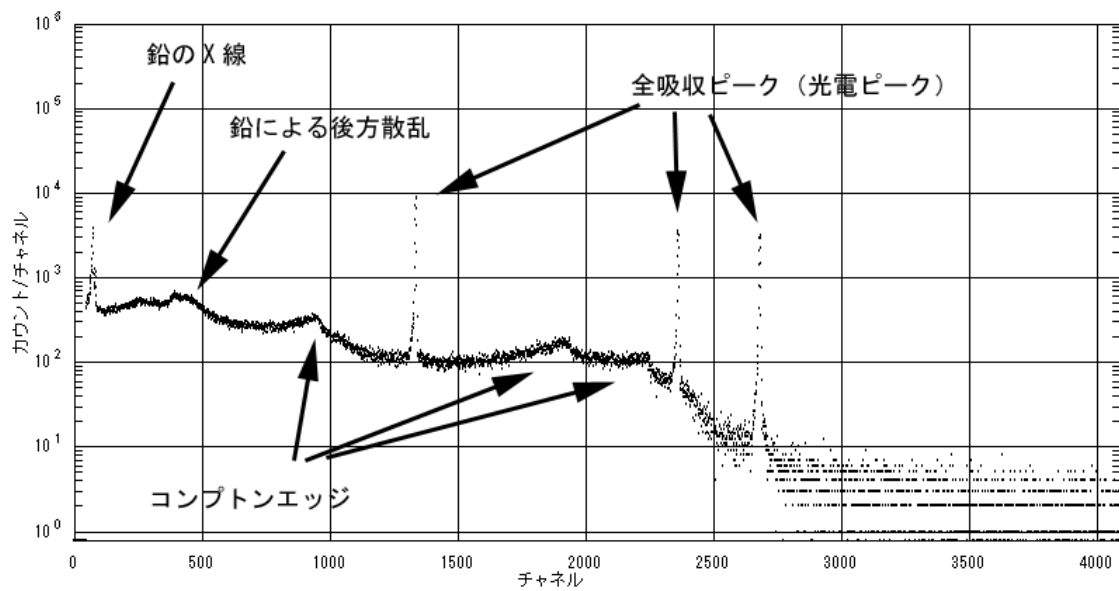


Fig. 2 Ge 半導体検出器で測定した γ 線スペクトルの一例

Features

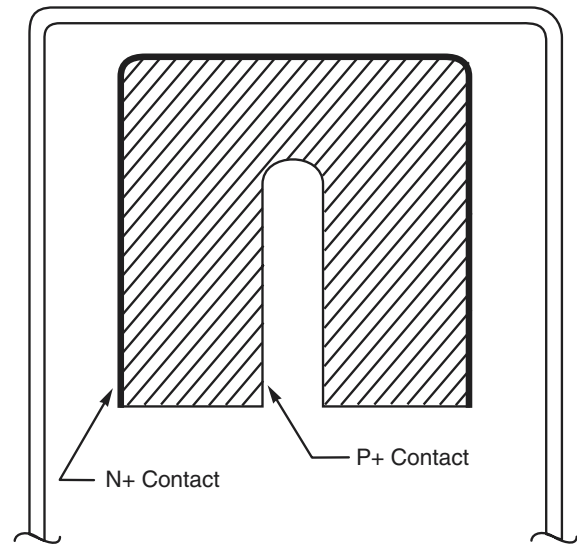
- Wide range of efficiencies
- High resolution – good peak shape
- Excellent timing resolution
- High energy rate capability
- Diode FET protection
- Warm-up/HV shutdown
- High rate indicator

Description

The conventional coaxial germanium detector is often referred to as Pure Ge, HPGe, Intrinsic Ge, or Hyperpure Ge. Regardless of the superlative used, the detector is basically a cylinder of germanium with an n-type contact on the outer surface, and a p-type contact on the surface of an axial well. The germanium has a net impurity level of around 10^{10} atoms/cc so that with moderate reverse bias, the entire volume between the electrodes is depleted, and an electric field extends across this active region. Photon interaction within this region produces charge carriers which are swept by the electric field to their collecting electrodes, where a charge sensitive preamplifier converts this charge into a voltage pulse proportional to the energy deposited in the detector.

The n and p contacts, or electrodes, are typically diffused lithium and implanted boron respectively. The outer n-type diffused lithium contact is about 0.5 mm thick. The inner contact is about 0.3 μm thick. A surface barrier may be substituted for the implanted boron with equal results.

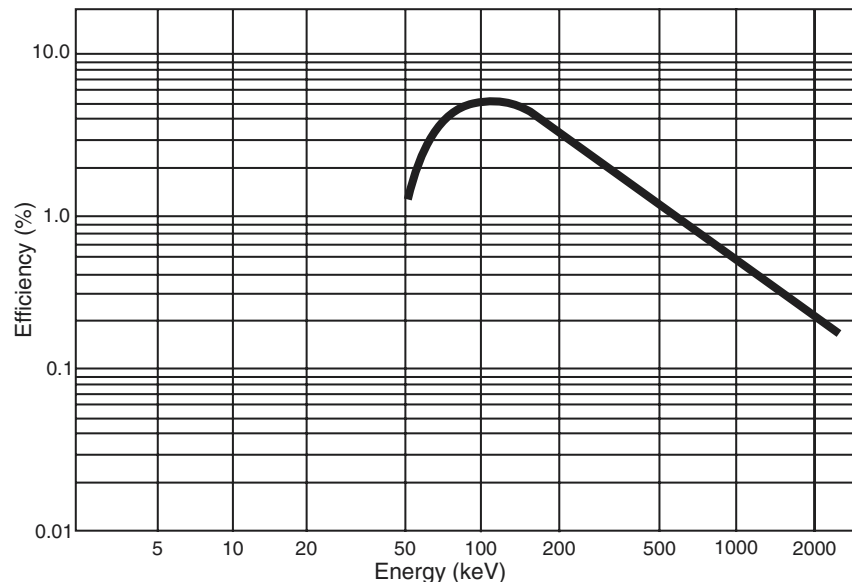
The Canberra Coaxial Ge detector can be shipped and stored without cooling. However, long term stability is best preserved by keeping the detector cold. Like all germanium detectors, it must be cooled when it is used to avoid excessive thermally-generated



Coaxial Ge Detector Configuration

leakage current. The non-perishable nature of this detector widens the application of Ge spectrometers to include field use of portable spectrometers.

The useful energy range of the Coaxial Ge detector is 50 keV to more than 10 MeV. The resolution and peak shapes are excellent and are available over a wide range of efficiencies. A list of available models is given in the accompanying table.



Typical Absolute Efficiency Curve for 15% Detector
(25 cm detector to source spacing)

Phone contact information

Benelux/Denmark (32) 2 481 85 30 • Canada 905-660-5373 • Central Europe +43 (0)2230 37000 • France (33) 1 39 48 57 70 • Germany (49) 6142 73820
Japan 81-3-5844-2681 • Russia (7-095) 429-6577 • United Kingdom (44) 1235 838333 • United States (1) 203-238-2351

For other international representative offices visit our Web Site: <http://www.canberra.com> or contact the Canberra U.S.A. office.

M3839 4/02 Printed in U.S.A.

Features

- Spectroscopy from 3 keV to >10 MeV
- Wide range of efficiencies
- High resolution – good peak shape
- Excellent timing resolution
- High energy rate capability
- Diode FET protection
- Warm-up/HV shutdown
- High rate indicator

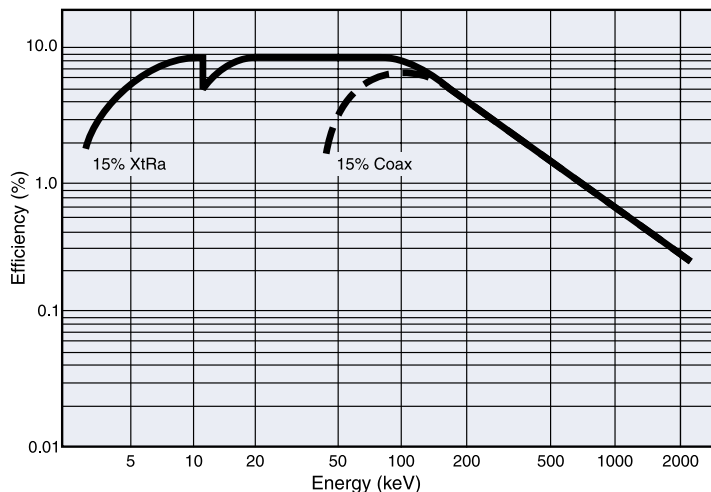
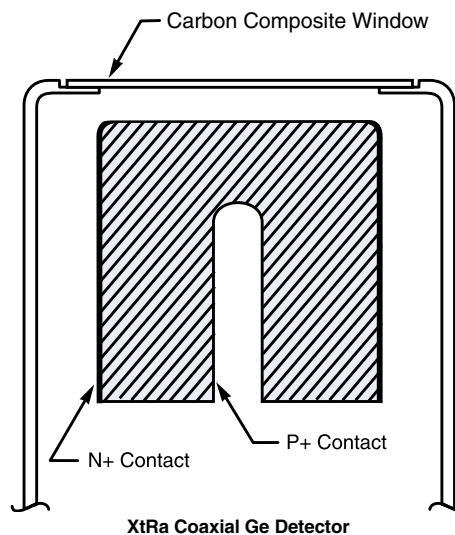
Extended Range Coaxial Ge Detectors (XtRa)

Description

The CANBERRA XtRa is a coaxial germanium detector having a unique thin-window contact on the front surface which extends the useful energy range down to 3 keV. Conventional coaxial detectors have a lithium-diffused contact typically between 0.5 and 1.5 mm thick. This dead layer stops most photons below 40 keV or so rendering the detector virtually worthless at low energies. The XtRa detector, with its exclusive thin entrance window and with a Carbon Composite cryostat window, offers

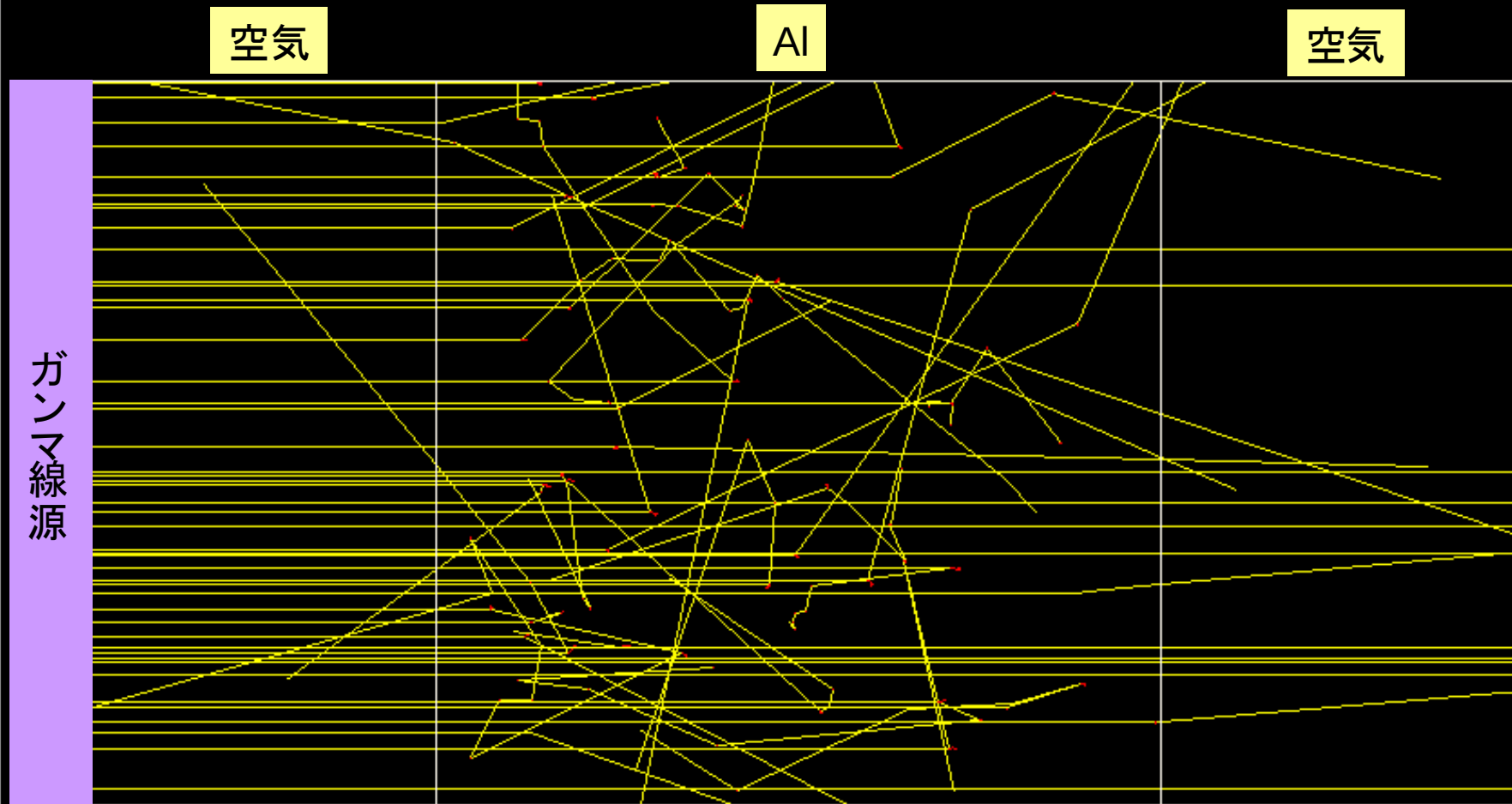
all the advantages of conventional standard coaxial detectors such as high efficiency, good resolution, and moderate cost along with the energy response of the more expensive Reverse Electrode Ge (REGe) detector.

The response curves (below) illustrate the efficiency of the XtRa detector compared to a conventional Ge detector. The effective window thickness can be determined experimentally by comparing the intensities of the 22 keV and 88 keV peaks from ^{109}Cd . With the standard 0.6 mm Carbon Composite window, the XtRa detector is guaranteed to give a 22 to 88 keV intensity ratio of greater than 20:1. Beryllium and aluminum windows are also available.



Typical Efficiency curves comparing XtRa with Be window and Coax Detectors with detector-source spacing of 2.5 cm

1.25 MeV ガンマ線→Al 10cm

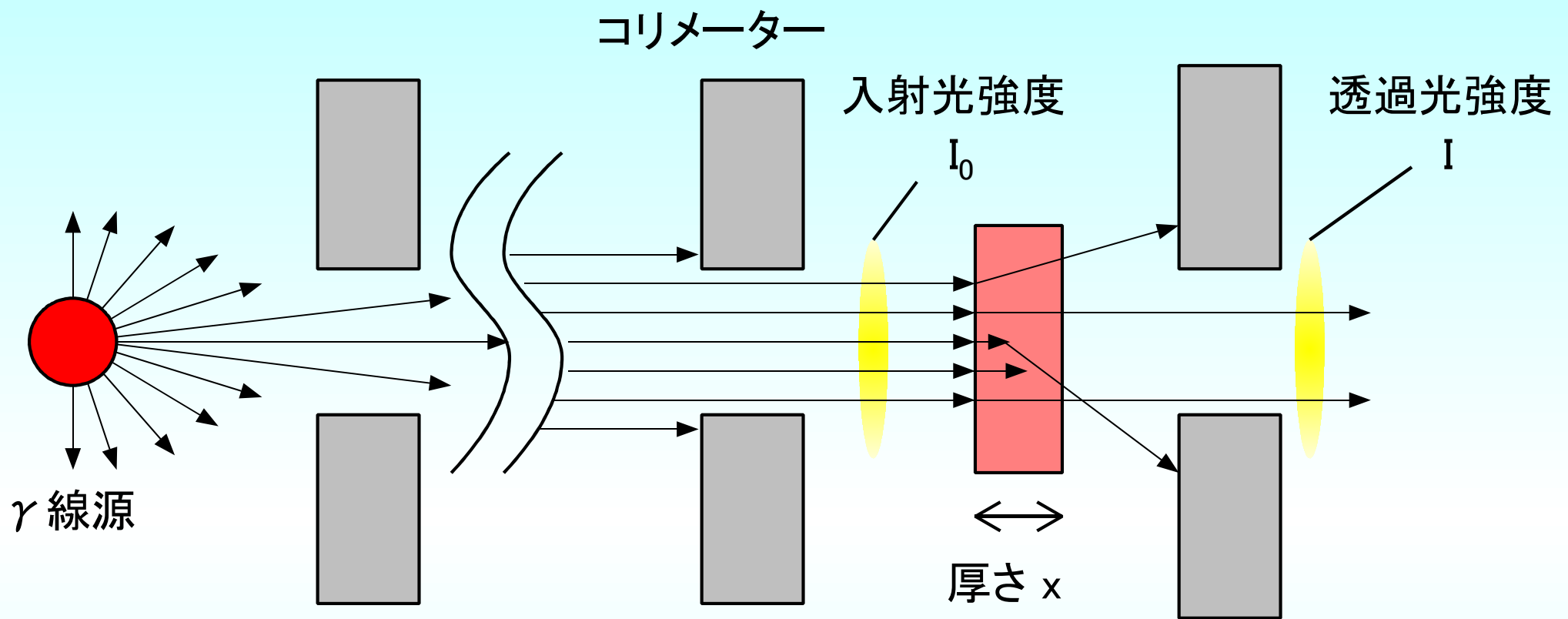


透過：直接線11、散乱線8; 反射4

KEK 放射線科学センター

波戸芳仁 2008年八戸高専での講義資料より

10cm



単一エネルギーで狭い平行線束 γ 線・X線の減衰は、

$$I = I_0 \exp(-\mu x)$$

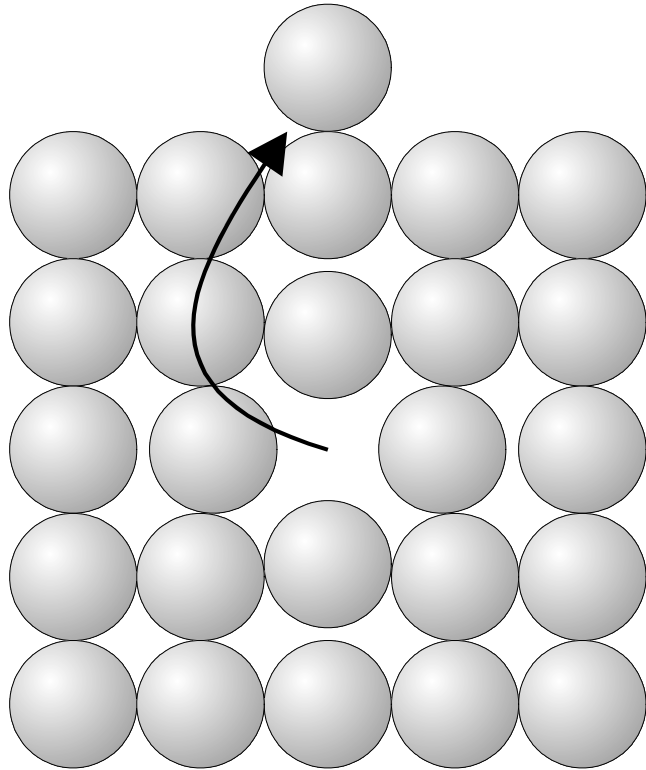
で表わされる。ここで I , I_0 は光子のフラックスであり、

散乱、吸収により試料の厚さ x に伴って指数関数的に減衰していく。

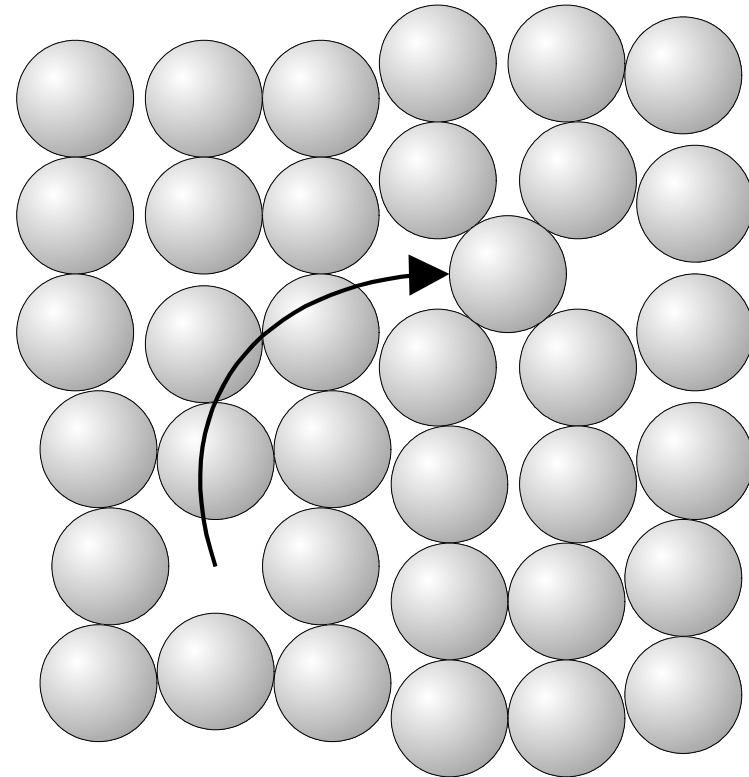
線減弱係数 μ の単位は m^{-1} などで、密度で除した μ_m が様々な物質、

エネルギーに対して与えられている。

弾き出し欠陥



フレンケル欠陥



ショットキー欠陥

結晶の欠陥導入状態評価

XRD

点欠陥, 転位ループ
などによる格子歪み
(異方性の検出可)

スエリング

点欠陥, ボイド, バブル,
転位ループ, 粒界クラック
などの複合的発現

熱拡散率

フォノン伝導が主の
セラミックスでは
点欠陥, 特に空孔濃度
を選択的に反映

相補的な測定による
欠陥導入状態評価

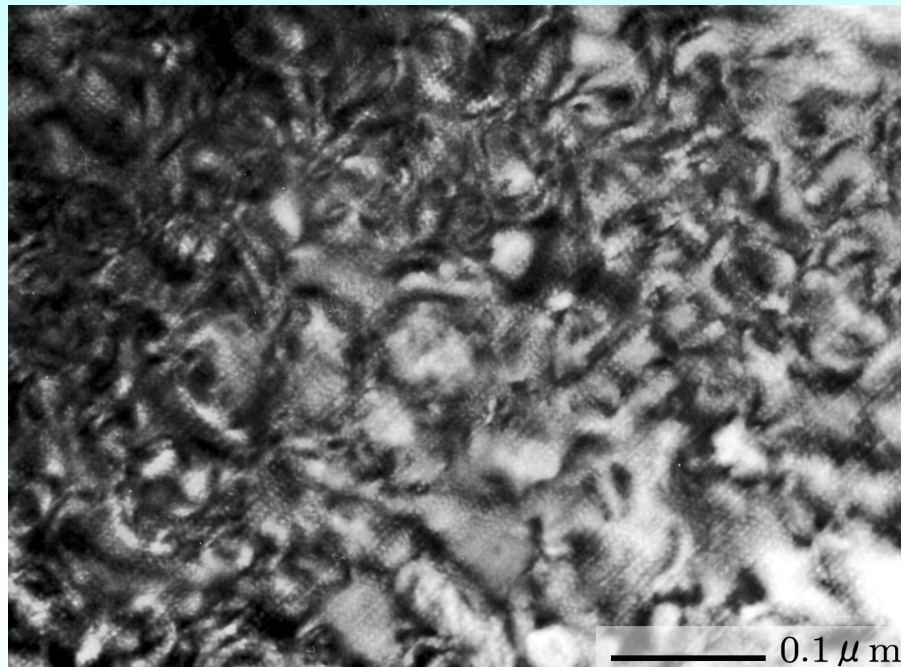
透過電顕観察

ある程度の空間的広がりを持つ
構造か, 規則的な周期構造と
して配列した格子を観察可能
(点欠陥は見る事が出来ない)

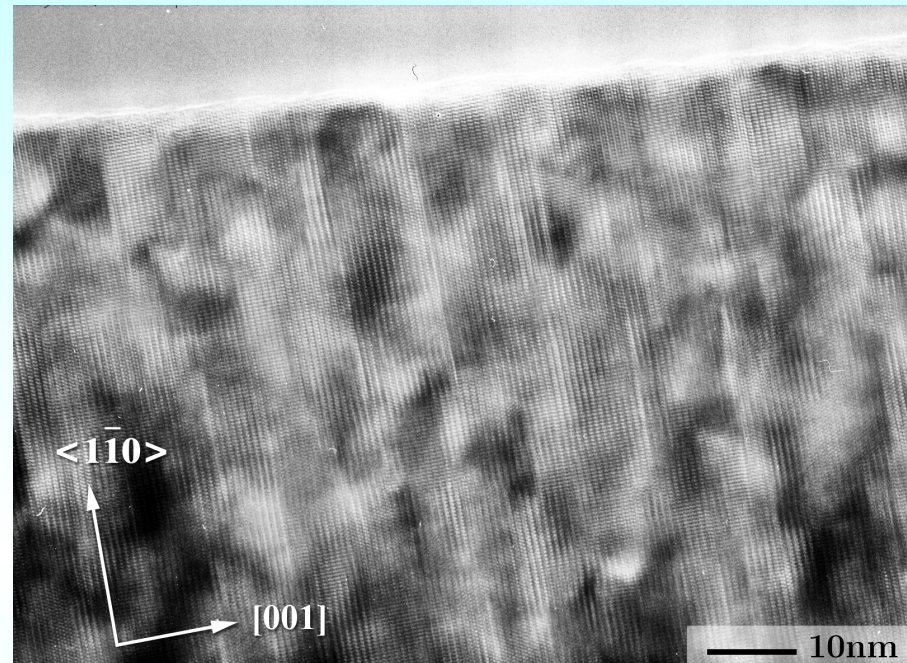
陽電子消滅寿命

主に空孔やその集合体
の導入状態を評価可能。

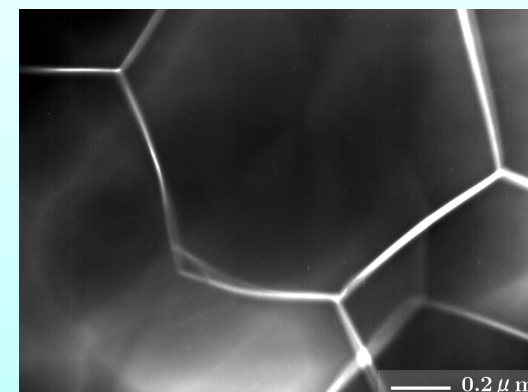
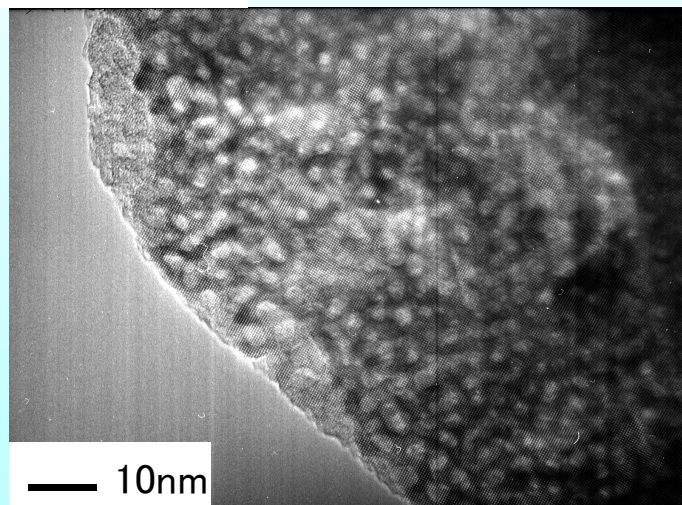
TEM 観察例



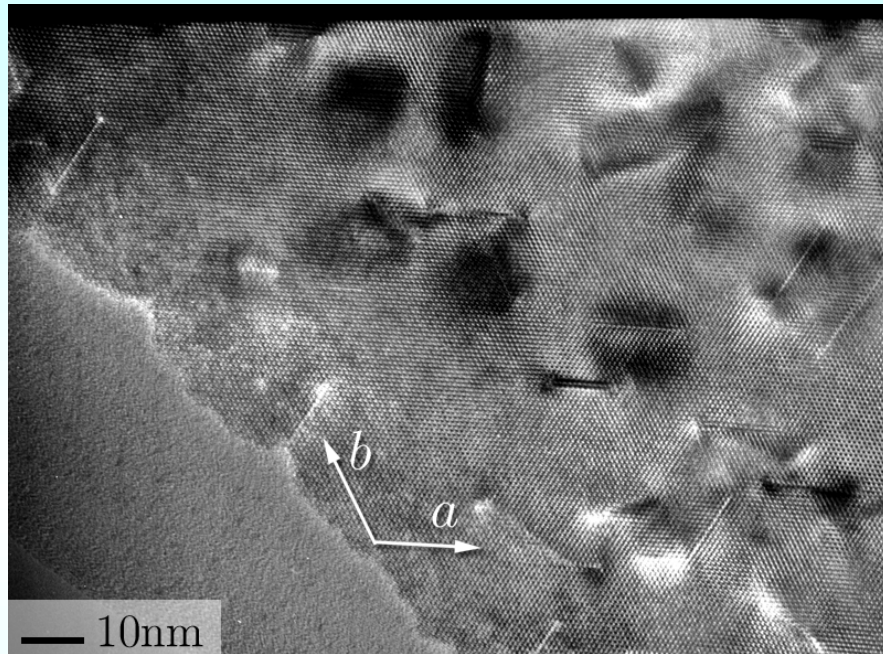
α - Al_2O_3 に導入された転位ループ
とボイド



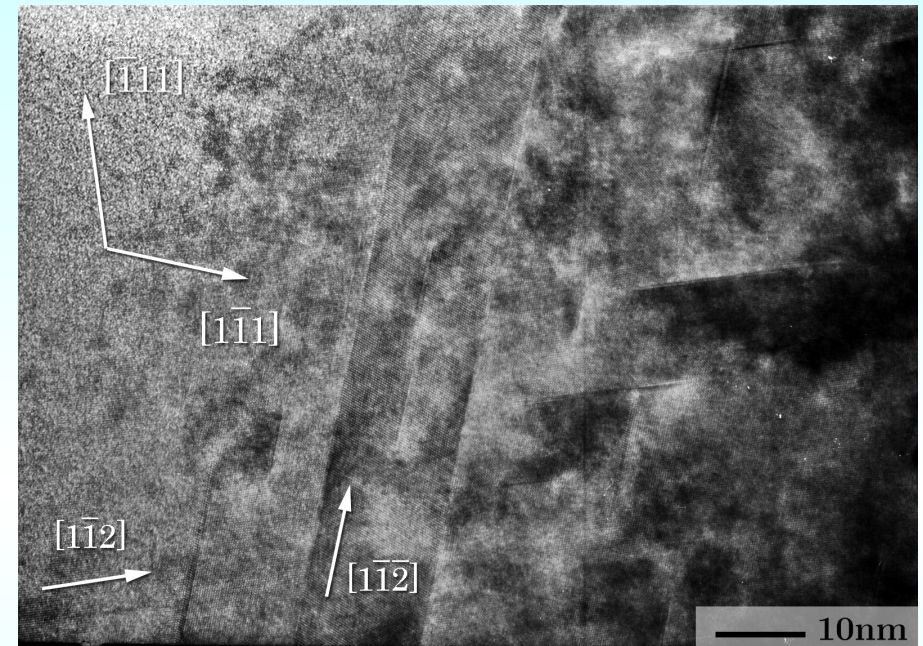
AlN に導入された転位ループ
(観察面は $\{100\}$ 面)と粒界クラック



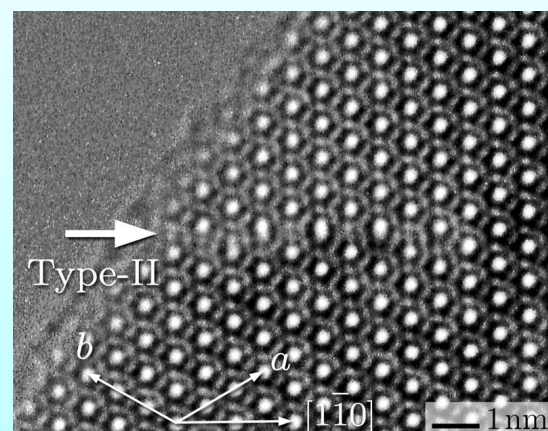
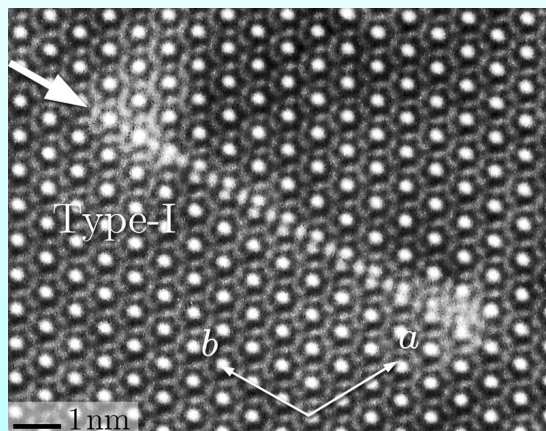
TEM 観察例



β - Si_3N_4 に導入された転位ループ
(観察面は(001)面)

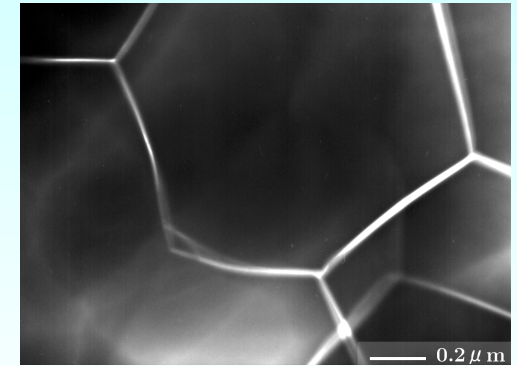


β - SiC に導入された転位ループ
(観察面は(001)面)



密度

完全結晶である場合の真密度と、
実際の材料の見かけの密度の差から、
結晶粒の充填状態を知ることができる。



照射により粒界クラックの発生した
AlN の TEM 写真

焼結体などでは焼結条件により完全に結晶粒が密に充填していない場合がある。
また、材料に照射を行って欠陥を導入する場合は、結晶粒内に歪みが入ることで結
晶粒自体の密度が変化する(スエリング)し、異方性スエリングなどが生じる場合は
、異なる方向を向いた結晶粒の集合体である試料内部に歪みが生じて粒界クラック
が発生し、大きな密度変化を生じる場合がある。

マクロな密度変化と、後述する X 線回折測定によるミクロな格子変化と合わせて、
結晶状態がどのように変化したかを相補的に知ることが出来るため、非常に重要な
評価である。

光学的性質

透光性のある結晶の場合、波長による光の透過率の違いによって結晶状態を評価できる。

また、波長の短い光や放射線を当てることで励起された結晶構造が脱励起することにより特定の波長の光が放出される場合があり、その波長や強度から結晶構造を知ることができる。



天然の黄色(右)と他は照射トパーズの色
(Museum of Gems より)

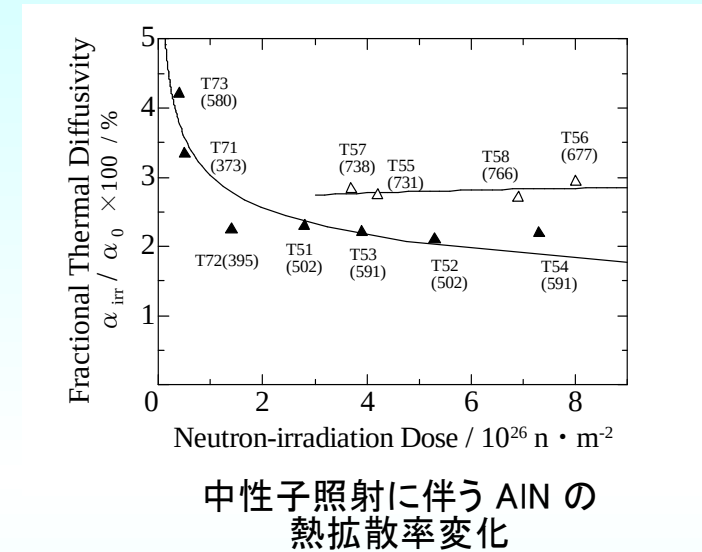
特定の波長の光を色中心(color center)の生成などによって吸収するようになると、着色して見えるようになる。

ダイヤモンドやサファイア、トパーズなど一部の宝石では照射により着色処理を行っている物がある。

さらに、反射光の波長が入射光の波長からシフトする、ラマン散乱を測定することで、結晶の振動準位や回転準位、電子準位を知ることができる(ラマン分光法)。

熱、電気物性

セラミックスの場合、結晶粒内の欠陥の導入状態によって熱伝導率が異なる。
金属試料では照射により電気伝導度が大きく変化することが古くから知られている。

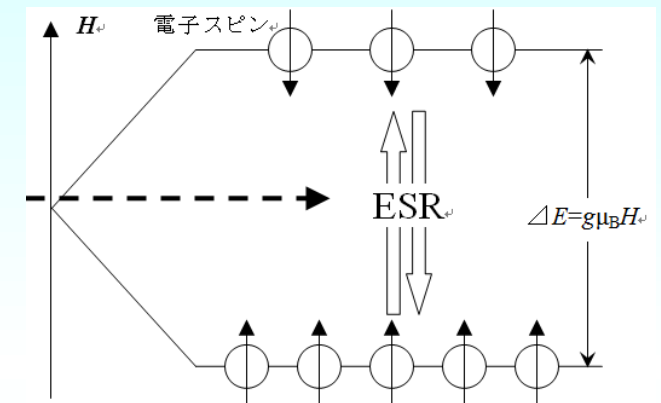


金属などでは自由電子が熱の輸送を行うため、結晶構造変化に余り影響を受けないが、絶縁体であるセラミックスの熱伝導率にもっとも重要な寄与をなす要因は、格子振動すなわちフォノンの寄与である。

広い温度領域にわたって重要なフォノン-フォノン相互作用に加えて、さらに種々の格子欠陥のために非調和性を生じてフォノン-格子散乱が起き、それがさらに平均自由行程を減少させ、熱伝導率に影響する

電子状態

ESR (electron spin resonance) 測定や、誘電率、電気伝導度などの測定により、結晶中の電子の分布状態を知ることが出来る。



ゼーマン分裂および電子スピン共鳴(ESR)の概念図

ESR 測定は物質中にある不対電子の量と、その置かれている環境を知る測定方法であり、その対象は磁性体、金属や半導体、有機物中のラジカル、固体中の点欠陥など様々な分野にわたる。

試料中には不対電子が存在する必要がある、電子が対になっている場合は、電子が二つあることにより効果を打ち消しあってしまい信号は得られないため、測定可能な試料は限られる。

X 線回折

Laue や Bragg らによって確立された X線回折によって、結晶構造状態評価を行う上で無くてはならない非常に重要な格子面間隔の情報を得ることが出来る。

格子定数 × 空間群 → ある面指数の面

どのような対称性を持てばどのような面間隔を持つ格子面が存在しうるか
→ 230の空間群（結晶構造の対称性をまとめた集合）

様々な組成の結晶に対してこの格子定数と空間群をデータベース化
→ 測定されたスペクトルからどのような結晶であるかを知ることが出来る。

それぞれの回折ピークの詳細な解析（半値幅の変化やピークシフト、相対強度変化など）によって、結晶粒の分布状態や、特定の方向に歪みがかかるなどの応力状態を知ることなども可能となる。

透過電子顕微鏡観察(TEM)

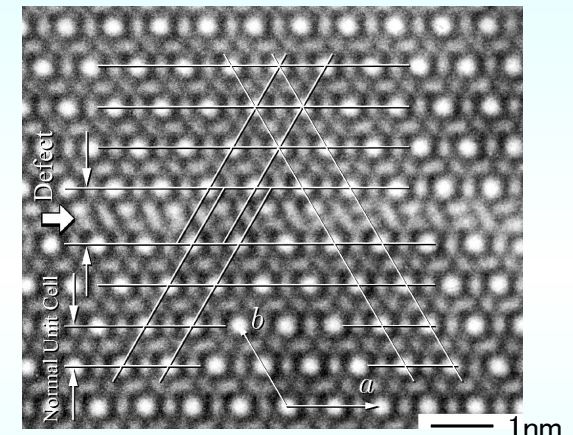
高倍率で結晶状態を観察可能であり、高分解能観察(HREM)では原子の配列状態を直接的に視覚的に知ることが出来る。



日立 H-9000 型 300kV TEM



0.5 μm
中性子照射した $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ の
明視野(Bright Field)像



1nm
中性子照射した $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 中の
格子欠陥構造高分解能像 (HREM)

ただし、本質的に原子の「規則的な配列状態」を視覚化する装置であり、個別の格子間原子や空孔を検知することは困難であり、アモルファス構造などは捉えることが出来ない。
また、試料調整が決定的に重要な役割を果たしており、いかに試料を電子線が透過しうる nm オーダーまで薄膜化するかが目的の観察を行えるかどうかの鍵を担っている。

陽電子消滅法

陽電子と電子とが対消滅を起こすと、2本の 511keV γ 線が反対方向に放出されるが、そのエネルギーは消滅時の陽電子と電子の運動量の分だけ 511keV からずれている。

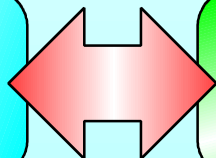
これをドップラーシフトと言い、物質中での電子状態を知る有効な手段として広く利用されている。

物質中に入射された陽電子が電子と対消滅するまでの寿命は、物質に依存するが 100ps~1ns のオーダーであり、消滅相手の電子の密度に大きく影響する。

材料が均一ではなく、陽電子が空孔やその集合体に捕獲されたとき、陽電子の寿命はこれらの欠陥のない試料に比べて長くなる。

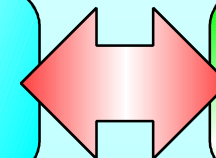
これは、局所的に欠陥のところで電子密度が低くなるためである。

空孔サイズ



陽電子寿命

欠陥の数



長寿命成分
の強度