

---

特 別 講 演

J.A. Jungerman

中 井 洋 太

---





# 特別講演 1

Radioisotope Production with the Crocker Nuclear Laboratory

Medium Energy Cyclotron

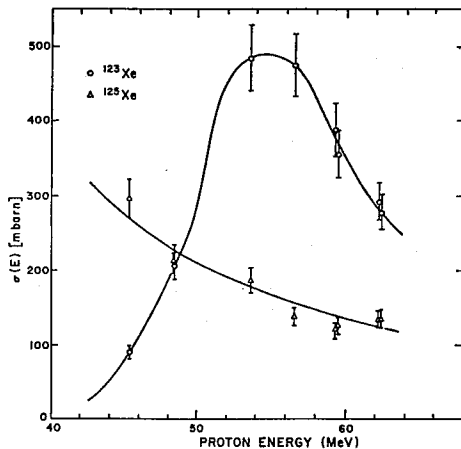
J.A. Jungerman, Crocker Nuclear Laboratory

University of California, Davis, California, U.S.A.

Medium-energy cyclotrons with variable-beam types and energies such as the Davis accelerator and the one in Japan at Chiba are powerful agents for producing radioisotopes. External beam current of up to 40μ amperes are available at Crocker Nuclear Laboratory with protons, deuterons, and alpha particle energies up to 65, 45 and 90 MeV respectively.

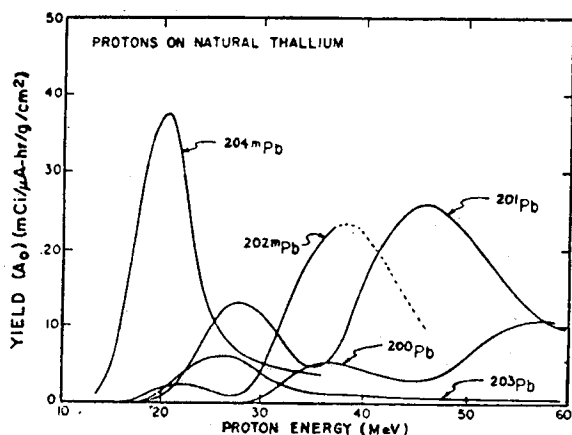
I shall discuss the production of I-123 in some detail because of the interest in it from the point of view of nuclear medicine and also to give you an idea of the process needed to produce about 10 curies annually with irradiations twice a week.

Figure I shows the excitation functions for the pertinent nuclear reactions producing  $^{123}\text{Xe}$ . Fortunately both  $^{124}\text{Xe}$  and  $^{126}\text{Xe}$  are stable so that  $^{125}\text{Xe}$  is the only contaminant. The relative level of this contaminant versus proton energy will be discussed.  $^{123}\text{Xe}$  is



produced by the  $^{127}\text{I}(p,5n)$  reaction and decays with a 2.1-hour half-life to I-123. The production process including targetry, collection of the Xe-123, and labelling of I-123 on several molecules will be presented.

Another radioisotope of considerable current interest is Tl-201. At Crocker Nuclear Laboratory we are presently producing it weekly for myocardial investigation. Again before proceeding with the production, accurate excitation functions were measured for the Pb-201 parent and the concomitant nuclear reactions that produce  $^{200}\text{Pb}$ ,  $^{202\text{m}}\text{Pb}$ ,  $^{203}\text{Pb}$  and  $^{204\text{m}}\text{Pb}$  in the natural thallium target.  $^{201}\text{Pb}(9.4\text{h, EC}) \rightarrow ^{201}\text{Tl}$ . The thin target yields are shown in figure 2.



Because of production of  $^{200}\text{Pb}$  it is necessary to keep the cyclotron energy on target below 29 MeV if one uses the  $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Pb}$  reaction. Recent measurements at Crocker Nuclear Laboratory show that the  $^{205}\text{Tl}(p,5n)^{201}\text{Pb}$  reaction may also be a practical one with greater yield than the (p,3n) reaction if a 99.5% pure  $^{205}\text{Tl}$  target is used. Slides will be presented showing the results of this investigation.

Positron emitters are becoming increasingly useful for biological and medical purposes. In the latter case tomographic scanning is an attractive technique.  $^{55}\text{Co}$  is being produced by our laboratory particularly as a label for bleomycin.  $^{55}\text{Co}$  is a promising replacement for  $^{57}\text{Co}$  bleomycin (a known tumor-seeking agent) because its radiations have superior imaging qualities and the half life is much shorter, 17.9h, instead of 271d.  $^{13}\text{N}$  as  $^{13}\text{N}$ ,  $^{14}\text{N}$  gas,  $^{13}\text{NH}_4$ , or  $^{13}\text{NO}_2$  is also being increasingly utilized at Crocker Nuclear Laboratory. Application to denitrification processes in lake beds and inhalation of  $\text{NO}_2$  will be discussed.

Also to be mentioned briefly is the production of isotopes of possible future interest such as  $^{52}\text{Mn}$ ,  $^{101}\text{mRh}$ ,  $^{77}\text{Br}$  and  $^{18}\text{F}$ .

## 特別講演 2 核融合と原子分子過程と放射化学

京 研 中井洋太

1. はじめに 最近核融合研究開発で、原子分子過程およびそれらのテータの重要性が改めて認識されてきている。とくにトカマク型のプラズマ実験装置で、プラズマ温度の上昇、持続時間の増大および密度の増加にともなう、プラズマとその容器の壁などとの相互作用の機会がより多くなり、また作用するプラズマ粒子などがより energetic になるため、壁の構成物質や、それに吸着した物質が、たとえばスパッタリングや脱着などによって無視できない効果を与える不純物としてプラズマ内に入り込む。これらの不純物はプラズマを構成している水素原子イオンと比べ、重い元素であるのみならず、いまま地球上で実現されなかつたような高温プラズマに入り込むと、高密度の高温電子によって高い荷電数に電離され、さらにその効果が増大してくる。そうすると、プラズマをとりまく種々の現象も、もはや水素プラズマだけのものとして取り扱えなくなり、プラズマ-不純物の系の相互作用すなわちこれらの原子分子過程およびそれらの基礎テータが非常に重要になってくる。さらに将来の核融合炉を目指すプラズマ実験装置がさらに大型化し、高温、高密度、高持続時間化してゆくにしたがって、さらに新しい問題を提起してくることも予想される。このような意味から、核融合プラズマとくに不純物をとりまく種々の原子分子過程の問題は、原子分子の世界に新しい素材を提供するとともに、一方では核融合研究の進展のためには、それらを一つ一つ明らかにしてゆく必要がある。そしてこれらのすべては従来の核融合や、原子分子の分野ではカバーしきぬるものではなく、他の分野たとえば放射化学の立場から見て興味があり、これならこういう手法で解決できるというような問題も数多くあると思われるので、本講演がそのような橋渡しの一つのきっかけになれば幸いである。

こゝでは不純物発生の原因となるプラズマ-表面相互作用の素過程からはじめて、どのような過程とテータが重要なかについてふれてみる。

### 2. プラズマ-表面相互作用

2.1 プラズマ-表面相互作用の基礎テータの必要性 プラズマ実験装置や、将来の核融合炉ではプラズマから離脱した数 eV から  $10^7$  eV の種々の粒子が、プラズマをとりまく壁にあたって、たとえばスパッタリング、フリスタリング、吸着、脱着、二次粒子放射散乱などの過程を引き起こす。これらのプラズマ-壁相互作用は、核融合では、次の3つの点で重要な役割を演ずる。

(1) プラズマ放電に対する影響：真空壁あるいは、何らかの目的でプラズマと接している表面は、その条件にもよるが、粒子源または吸込み、もしくはその両方の役割をする。そしてエネルギー的には常に吸込みである。したがってプラズマ-壁相互作用は、壁のところで起る種々の過程によるプラズマの境界条件で規定される境界層のプラズマの組成や密度、温度分布に影響を与える。また現在のトカマク型のプラズマでは少くとも放電時間がプラズマ閉込めの10倍近くであるため、壁からの種々の形の粒子放出が問題になる。

(2) 不純物のプラズマへの混入：核融合プラズマでは、水素以外は不純物である。もし

なかい そうた

て不純物の存在は、一般にそれが多価に電離されるゆえに放射損失を増し、水素ガスを冷却し、さらに粒子同士の衝突回数も増加する。一方では逆にこのプラズマ内の不純物の挙動をプラズマ診断に利用することもある。

(3) 壁の損傷：プラズマ-壁相互作用にもとづく壁からの粒子離脱、壁内への粒子の侵入は壁の損傷をもたらす。

上の3つのプラズマ-壁相互作用の結果ひきおこされる問題を理解し、解決するためには個々の過程の断面積や生成の割合を知ることが当面重要な課題になってくる。一般に粒子-表面相互作用については、古くから核融合を対象とした以外の分野で多くの研究が見られるが、それらのデータについては、あるものは核融合で当面している問題にそのまま、適当な外挿や内挿を行って適用することができる。しかしたとえばスパッタリングを例にとっても過去数十年にわたって重イオン-金属表面については、多くのデータの蓄積がある。これらはいずれも核融合以外の応用を目指したり、学問的興味からスパッタリングの生成率の多いところを問題にしている。そしてプラズマ-壁相互作用で重要な水素-固体表面の場合、1keV以下の生成率は低いけどどうしてもデータが必要なものについては一つには実験的なむつかしさから、定量的なデータが必ずしも得られていないのが現状である。したがってこれらの粒子-表面相互作用の個々のデータについても核融合の立場から必要なデータを洗い出してみることが必要である。

2.2 必要な基礎データ

上述の基礎データの必要性については、今まで多くの総説などで論じられており(たとえば文献1)、また個々のデータについても核融合の研究開発の進展とどうしても必要なものについては、当面している入達によって測定が行われている。

1976年11月英国Culham研究所で開かれたIAEA主催の第1回 Advisory Group Meeting on Atomic and Molecular Data for Fusionの表面作用ワーキング・グループの報告書<sup>2)</sup>では、Vernickelの総説<sup>3)</sup>をもとにして当面測定の必要な基礎データのリスト・アップを行った。これを表1に示す。こゝで対象となる物質は核融合で用いるすべての壁その他プラズマと接する材料である。

表1 当面測定の必要なプラズマ-表面相互作用の基礎データ

Processes	Energy	Data to be measured	Important parameters
(1) Reflection of hydrogen and helium	10eV - 100keV	reflection coefficient energy and angular distributions charge state excitation state	angle of incidence surface structure
(2) accommodation of hydrogen atoms	1eV - 100keV	accommodation coefficient	
(3) Trapping of hydrogen and helium	10eV - 100keV	trapping coefficient	angle of incidence temperature, dose influence of radiation damage
(4) Detrapping processes for hydrogen and helium	10eV - 100keV	detrapping cross-sections, energy distribution	angle of incidence, target temperature, influence of radiation damage
(5) Sputtering by hydrogen, helium, (and "impurities")	threshold - 100keV	yields, angular and energy distribution of sputtered material, chemical composition of sputtered material	angle of incidence temperature for multi-component surfaces
(6) Blistering by hydrogen and helium	1keV - 100keV (hydrogen) or 3.5MeV (helium)	critical dose	energy and angular distributions of incident particles (simultaneous He and H bombardment)
(7) Desorption by ions (hydrogen, helium, impurities)	threshold - ~ 30keV	cross-sections, charge state, excitation state, energy distribution	angle of incidence, surface damage, surface composition
(8) Desorption by electrons	threshold - 100keV	cross-section, charge state, excitation state	surface damage, surface composition
(9) Desorption by photons	5eV - 100keV	cross-sections, charge state	surface damage
(10) Chemical reactions of hydrogen atoms and ions		reaction probability	energy of hydrogen atom, surface temperature, effect of surface contamination, flux density of incident particle
(11) Secondary electron emission due to ions and electrons	10eV - 20 keV	coefficient	angle of incidence, surface composition

そのほかプラズマ-壁相互作用の基礎データで常に問題になるのは、表面現象は表面の状態に依存することが多いから、その性格づけについてである。たとえば表面の“きざねさ”をどのように定義し、それをデータの一つのパラメーターとしてどのように位置づけるのが問題であろう。見方をかえて、一例としてオークリッジの Barnett が出しているデータ集“Atomic Data for Controlled Fusion Research”<sup>(3)</sup>に出してくる2次粒子放射についても実験データとして1940年後半から50年代のものが割合多く、測定条件をみても真空が $10^{-5} \sim 10^{-6}$  Torrの程度で、しかも試料の表面についての詳しい記載のないものが多い。これらについても現在の超高真空や試料作成の技術のもとに再検討してゆく必要がある。

もう一つ、プラズマ-表面相互作用で、効果の非直線性(Nonlinear Superposition)が問題になっている。これは核融合

プラズマのよ様な不純物をも含めた複雑な粒子の場で、全体としての壁のうける効果が果して個々の表面現象の一次的な和であらうかどうかがどうかということである。

さらに最近話題になっている化学スパッタリングで、熱分解形黒鉛の表面に水素イオンビームをあてたときのメタンの生成量を温度の函数として測定した結果<sup>(4)</sup>を

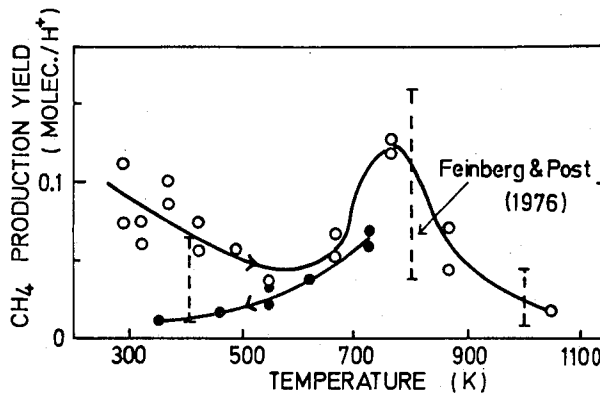


図4. 熱分解黒鉛における水素イオン照射によるメタン生成率

1図に示す。この結果によると、500°C近くでメタンの生成はピークに達し、もし入射水素ビームがそのままメタンの生成に関与しているとする、約40%の効率であることがわかる。一方見方をかえれば水素がこのように高い割合で炭素と反応して有機物質の出発点であるメタンが生成することは興味があり、この生成機構についてもまだ確定したものでなく、今後の研究にまたねばならない。

### 3. プラズマ中での不純物に関する原子分子過程

以上のようにプラズマの不純物の原因になっているプラズマ-表面相互作用についても解決されねばならぬ問題が沢山あるが、さらにこの不純物がプラズマに入ったときの挙動についても、たとえばプラズマ診断、中性粒子入射加熱の際の不純物との衝突、プラズマ冷却などについて数多くの問題がある。紙面の都合で、詳述のかわりに最近米国 ERDA (現エネルギー省) から出された<sup>(5)</sup> これらの直ちに解決しねばならない課題を列挙しておく。

#### 3.1 プラズマ診断

プラズマ診断は、プラズマ内の種々の原子分子過程を通して、種々のプラズマ・パラメーターを定量的に知ることを目的としている。壁などからの不純物が高温プラズマ中に入ると、電子との衝突により多価にイオン化されるが、プラズマ診断ではこれらの不純物多価イオンからの発光スペクトルを計測し、そのスペクトル波長、発光強度からプラズマ温度、密度、不純物濃度などを知る。

(1) 強い共鳴線をもつすべての重イオン不純物のすべてのイオン化状態に対するエネルギー



### γ-準位と波長の計算と測定

- (2) 重イオン不純物の励起断面積, 反応速度係数および遷移確率を求める研究の継続.
- (3) 多価の C, O, Fe. および希ガスイオンに対する電子励起およびイオン化断面積の研究の継続

### 3.2 中性粒子入射加熱

従来のトカマク型装置のプラズマ加熱は、ジュール加熱で行われていたが、これのみではプラズマの温度は  $2 \sim 3 \times 10^7 \text{C}$  以上に高めることは一般にできない。したがって、臨界プラズマ試験装置や、その先の核融合炉で自己点火を行うには別の機構によるプラズマの予め加熱を行う必要がある。その一つが中性粒子入射加熱で、これは energetic な水素原子をプラズマ中に大量にうち込んで加熱する方式で、まず水素をイオン化し、適当なエネルギーに加速し、その後中性化してプラズマ中に導入し、そこで捕捉されてプラズマにエネルギーを与える。こゝで重要なものは多価不純物イオンによって中性粒子がイオン化されてプラズマ中に捕捉される過程である。

- (1) 中性粒子-不純物衝突における荷電移動, 電離断面積を求めること

### 3.3 プラズマ冷却

純粋水素プラズマでは、プラズマ中の主なエネルギー損失は水素イオンの制動放射によるが、不純物イオンが混入するとそれを含む多種類の原子分子過程すなわち、電子による励起, イオン化, 荷電移動, 放射再結合, 二電子再結合などによるエネルギー損失がさうにつけ加わる。そしてこれらのエネルギー損失はプラズマの冷却をもたらす。

- (1) しきい値付近での電子励起およびイオン化断面積を求めること
- (2) He, D - 不純物イオンの荷電移動断面積を求めること
- (3) 二電子再結合についての早急な計算と測定
- (4) 壁材料表面からの  $D^0$  の反射についての計算と測定の継続

### 3.4 テータの収集とレガシー

未知の過程およびそのデータを求めることと併行して、核融合に関連した上の種類の過程の今までの種々のデータを整理する必要がある。必要なものとしては、

- (1) 原子のエネルギー準位表と文献集
- (2) 原子分子衝突断面積
- (3) 原子遷移確率

### 文献

- 1) H. Vernickel "Data Needs for Plasma Surface Interaction" in "Atomic and Molecular Data for Fusion" IAEA-199 (1977)
- 2) "Report of Working Group on Surface Interaction Data for Fusion Devices" IAEA-199 (1977)
- 3) C. F. Barnett et al; Atomic Data for Controlled Fusion Research ORNL-5026 5027 (1977)
- 4) Sone et al; Proc. of Internat. Symp. on Plasma Wall Interaction, Pergamon Press, P.323 (1977)
- 5) "Atomic Data Needs for Magnetic Fusion Energy" ERDA 77-73 (1977)

