



解説

イオンビーム特性評価を目的とした固体飛跡検出器 CR-39の利用

金崎真聡^{1,2)}, 福田祐仁^{2*)}, 榊 泰直²⁾, 西内満美子²⁾, 近藤公伯²⁾,
倉島 俊³⁾, 神谷富裕³⁾, 服部篤人¹⁾, 小田啓二¹⁾, 山内知也¹⁾

¹⁾神戸大学大学院海事科学研究科, ²⁾日本原子力研究開発機構関西光科学研究所,

³⁾日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所

(原稿受付: 2012年3月23日)

固体飛跡検出器として用いられている CR-39 は, 光学材料として開発されたプラスチック素材で, 大気中のラドン濃度計測や, 宇宙線計測, 生物細胞照射実験など様々な分野に利用されている. レーザープラズマのような電子線や X 線が混在する場においても, イオンのみを選択的に検出し, またその精度が非常に高いことから, 混成場におけるイオン検出器として注目を集めている. CR-39 には, イオンビーム特性 (エネルギー同定, 核種同定など) に関する情報を引き出すために, 様々な検出法や解析手法が存在する. しかし, それら手法のほとんどは, プラズマ研究者に広く知られていないのが現状である. 本解説では, ここ数年間の日本原子力研究開発機構と神戸大学大学院海事科学研究科の共同研究の成果を中心に, CR-39 を用いたレーザー駆動イオンビームの特性評価に関する解説を行う.

Keywords:

Laser-driven particle acceleration, CR-39, Ion beam diagnosis

1. はじめに

1.1 固体飛跡検出器の発見と CR-39の歴史

高分子材料やガラス中をイオンが通過すると, 相互作用により媒質中の化学結合が切断され, イオンの飛跡に沿って潜在飛跡 (トラック) と呼ばれるナノスケールの特異な損傷が生じる. 荷電粒子が入射した際に形成されるトラックコアのサイズは, 数 nm から数十 nm である. この潜在飛跡が記録された検出器を, 強アルカリ溶液でエッチング処理を施すことにより損傷を拡大し, その大きさや形状を光学顕微鏡で直接観測を行うことで入射粒子の核種やエネルギーの判別を可能とする放射線検出器を固体飛跡検出器と呼ぶ.

固体飛跡検出器は, 1958年にイギリスHawell研究所においてD.A. Youngが, フッ化リチウム結晶中の核分裂片の飛跡が氷酢酸フッ酸混合溶液中でエッチングすることにより拡大され, 光学顕微鏡で観察できることを報告したことから始まる[1]. 1962年にはP.B. Price, R.M. Walkerらが, 化学エッチングを行うことで雲母中の飛跡に沿って腐食が進むことを示した[2]. これにより, 飛跡のフェーディングがなくなり電子顕微鏡による観察が容易になった. 化学エッチングによる飛跡拡大手法は, その後, 本解説で紹介するCR-39のようなプラスチックにも拡張された.

現在, 固体飛跡検出器として利用されているCR-39は, 1940年代にColumbia Chemical Division社の科学者によって光学材料として開発された[3]. CR-39という名前

は, 1940年のコロンビア・レジン・プロジェクトで39番目に開発されたことに由来する. CR-39は熱硬化性樹脂で, ジエチレングリコール・ビス・アリルカーボネイト ($C_{12}H_{18}O_7$) の液体モノマーを重合させたもので無色透明, 非結晶性のプラスチックである. CR-39は, 等方性に優れているため, 眼鏡のレンズ等に利用されていた.

1978年, B.G. Cartwrightらにより, CR-39プラスチックが荷電粒子に対して高い感度を示し, 優れた電荷分解能を持ち, さらに従来のプラスチックと比べてエッチピットの観察が容易であることが偶然見出された[4]. CR-39が固体飛跡検出器として用いられるまでに, 身近なプラスチック材料であるポリエチレンテレフタレート: PET[5]やポリカーボネート: PC[6]は, すでに固体飛跡検出器として用いられていた. また硝酸セルロース: CN[7]も高い感度を有する飛跡検出器として知られている. これらの固体飛跡検出器として用いられていた代表的な高分子材料の検出閾値を図1に示す. このグラフはR.L. Fleischerらによってまとめられたもので, 横軸に速度, 縦軸にイオンの初期電離率をとり各破線がそれぞれの高分子材料の検出閾値を示している[8]. 各検出器に対して破線の上部にあたるイオンが入射すればエッチピットが形成され, 下部のイオンについては入射してもエッチピットの生成が認められない. 例えば, PETについては, Cイオンについては検出閾値以上のものを計測できるが, Heイオンはどれだけエネルギーが低くともエッチピットは生成されない. このようにそれ

Applications of CR-39 Solid State Nuclear Track Detector to Ion Beam Diagnosis

KANASAKI Masato, FUKUDA Yuji, SAKAKI Hironao, NISHIUCHI Mamiko, KONDO Kiminori, KURASHIMA Satoshi, KAMIYA Tomihiro,

HATTORI Atsuto, ODA Keiji and YAMAUCHI Tomoya

corresponding author's e-mail: fukuda.yuji@jaea.go.jp

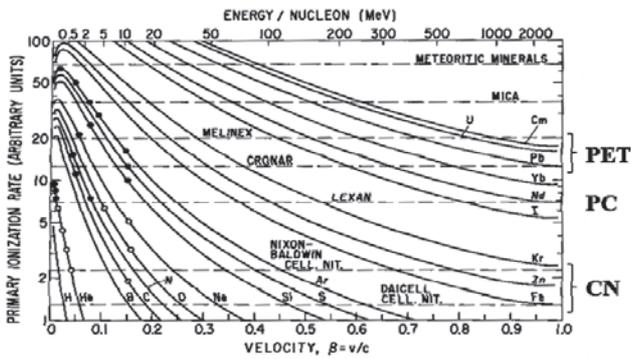


図1 初期電離率で評価した種々の荷電粒子に対する固体飛跡検出器の検出閾値。

それぞれのプラスチックで検出閾値が異なり、現在最も感度が高い固体飛跡検出器であるCR-39は図1にあらわせないほど検出閾値が低く、最大で27 MeV程度のプロトン（阻止能2.6 keV/μm）を計測することが可能である。その前の世代の検出器である硝酸セルロースが数MeV以下のアルファ線（阻止能100 KeV/μm程度）しか記録できなかったことを考えれば、飛跡検出において極めて重要な意味を持つものである。また、プロトンを検出できるということは、中性子線の計測が可能になったともいえる。CR-39中の水素原子を反跳することにより飛跡を残し、エッチピットとして成長する。この原理によって、固体飛跡検出器を用いた中性子計測が可能であり、ラジエータ設計など個人線量計として様々な改良がなされている[9]。

1.2 CR-39の応用と発展

CR-39プラスチックの出現は、この分野の飛躍的な発展を促し、CR-39の利用は、宇宙線の検出、原子力工学分野の核融合時の放出粒子の計測、中性子線量計、環境アルファ線モニタ等に応用分野が広がっている。従来のプラスチック検出器と異なるCR-39の特徴は、三次元網目構造をしており、バルクエッチング速度が小さくイオンに対する感度が高いこと、同位体弁別が可能となる程度の線エネルギー付与（LET）に対し高い分解能を持つことが挙げられる。さらに、表面状態が非常に平坦であるためエッチング後の透明性に優れ、エッチピットは極めて明瞭な開口形状を形成することも特徴として挙げられる。イオンが入射した場合には、局所的に半永久的な損傷が形成され、エッチング処理によってエッチピットとなり感度を示す。その一方で、X線やガンマ線、電子線は広範囲に損傷を及ぼし、その損傷密度が低いため感度を示さない[10]。すなわちX線やガンマ線、電子線、イオンなどが存在する混成場において、イオンや中性子の検出に適している。しかし、高エネルギーのプロトンのようなLETの低い粒子は、CR-39

表1 CR-39の諸特性.

Molecular formula	C ₁₂ H ₁₈ O ₇
Molecular mass	274
Density (g/cm ³)	1.31

に与える損傷密度が低くエッチングしてもエッチピットが生成されないため、様々な材料との共重合体により、感度を良くするための工夫がなされている。各種CR-39の感度や検出閾値については、3.3で詳しく述べる。

表1にCR-39の諸特性を、図2に繰り返し構造単位を示す。中央のエーテル基を介し、その両側に二つのカーボネートエステル結合が存在する。これらの官能基は、放射線の感受性が高いとされており、神戸大学の我々のグループにより、その詳細が明らかにされてきている[11]。また、炭素が3つのモノマーに接している部分があり等方的な3次元構造を持っていることが想像できる。

CR-39を使用しイオン検出を行う上で、最も注意すべき点は真空効果と呼ばれる感度の低下である。CR-39を真空中に保持しイオン照射を行うと、その保持時間に応じてCR-39の感度が低下してしまい、本来エッチピットとして観察されるべきイオンが観察できない場合がある[12]。真空効果の詳細については3.3で述べるが、現在も系統的な研究が行われている。

2. 固体飛跡検出器の基礎

固体飛跡検出器にイオンが入射すると、イオンは、阻止媒質である飛跡検出器中で減速され、その周辺に運動エネルギーを付与する。減速される過程では様々な反応が考えられるが、エッチピットの形成には化学結合の切断が必要であり、寄与するものは主として次の二つの過程が考えられる。一つ目はイオンが結合に関与している電子をはじき出し結合を切断する初期電離過程であり、二つ目はイオンが通過する際に飛跡検出器内部の原子からたたき出される二次電子によって化学結合が切断される過程である。これら一連の放射線化学過程の結果、潜在飛跡すなわちトラックがイオンの飛跡に沿って形成される。イオン照射後、化学エッチング処理を行うと、損傷の少ない部分に比べて熱力学的に不安定なイオントラック領域が早く溶出される。このようにして光学顕微鏡で観察可能となる大きさまで損傷は拡大されエッチピットとして検出できるようになる[13,14]。

荷電粒子に対する飛跡検出器の感度はエッチ率比Sとして表される。このSは、荷電粒子の軌跡に形成される潜在飛跡に沿ったトラックエッチング速度V_tと損傷を受けていない部分のバルクエッチング速度V_bの比として次のよ

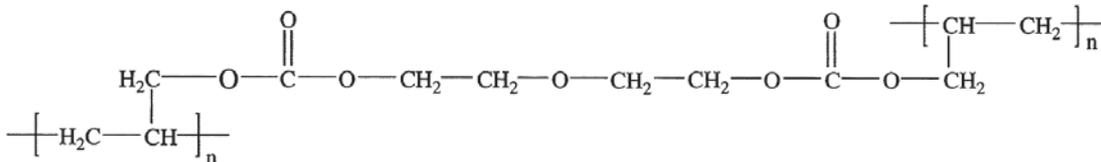


図2 CR-39の繰り返し構造。

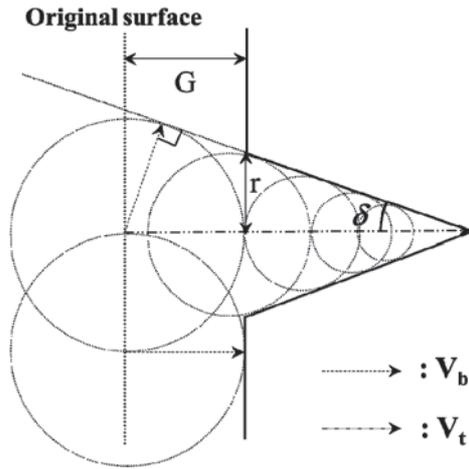


図3 トラックエッチング速度が一定である場合のエッチピットプロファイル。

うに定義されている。

$$S \equiv \frac{V_t}{V_b} \tag{1}$$

S はエッチピットの形状を表すものであり、飛跡検出器の感度を表す最も優れた指標である。さらに図3に示すように、エッチピット先端角 δ とエッチ率比 S には次のような関係が成立する。

$$\sin \delta = \frac{V_b}{V_t} = \frac{1}{S} \tag{2}$$

この(2)式より、 δ はその先端位置におけるエッチ率比の値を直接的に反映していることがわかるが、このエッチピット先端角を測定することは難しい。

そこで、 V_t が深さ方向に依存せず、一定であると仮定した場合について考える。通常のエッチング条件下において V_b は一定であるとみなすことができるので、S は一定となる。そのような仮定を考えた場合、エッチピットは理想的な円錐形であり、S はエッチピット径 r と溶出厚 G を用いて(3)式で表現することができる。これらのパラメータは光学顕微鏡により計測が容易であることから、この指標が頻繁に用いられており、実質的に固体飛跡検出器の感度と

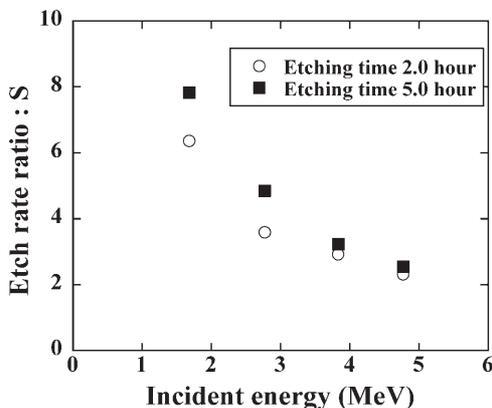


図4 エッチ率比の深さ依存性。

いった場合には(3)式より得られた値を用いる。

$$S = \frac{1 + \left(\frac{r}{G}\right)^2}{1 - \left(\frac{r}{G}\right)^2} \tag{3}$$

しかし、エッチング時間が異なる時同一のエッチピットのエッチ率比を比較してみると、エッチ率比は異なる値をとることがわかっている。実際に比較した結果を図4に示す。この図から判断できるように、エッチ率比にはエッチング時間依存性、つまり深さ依存性があることがわかる。すなわち潜在飛跡に沿ったエッチング速度である V_t は V_b と同様に一定ではなく、深さに依存しているために生じるということである。またこのときエッチピットの形状は少し崩れた円錐形となっている。

そこで、 V_t の深さ依存性を考慮したときのエッチピットの幾何形状について考え、エッチ率比を深さの関数として表した飛跡検出器の応答特性を求める[15-17]。応答特性を求めるために、深さ方向に変化するエッチ率比とエッチピット形状との関係を明らかにし、さらにエッチピット計測により得られる値から感度を求める手法について考える。

飛跡検出器に荷電粒子が垂直入射すると潜在飛跡ができ、さらにエッチング処理を施すとエッチピットが形成される。飛跡検出器にプロトンが入射し、エッチングが進むにつれ、エッチピットが成長していく様子を図5に示す。 V_t は深さ依存性が考慮されており、下段に示している曲線は同様に深さ依存性を考慮に入れた応答特性である。またエッチピットの開口部上の点を結んでできる破線の曲線が成長曲線である。一番左側が検出器表面を示しており、エッチングが進むにつれ右向きに溶出が進行している。

エッチピットは初め平らな円錐形であるが、エッチングが進み深くなるにつれ V_t が速くなり、とがった円錐形となっていく様子が確認できる。エッチピット先端が飛跡終点に到達した後は、潜在飛跡に沿ったトラックエッチングがなくなりバルクエッチングのみとなる。飛跡終点から広がるバルクエッチングは球面波状に進行し、エッチピットの前縁は丸くなる。さらにエッチングが進行するとエッチピットを形成するエッチング波面は、検出器表面からのバ

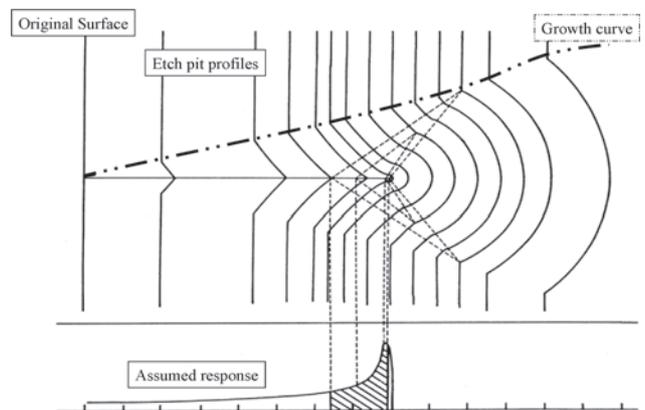


図5 エッチピットプロファイルのシミュレーション結果と成長曲線。

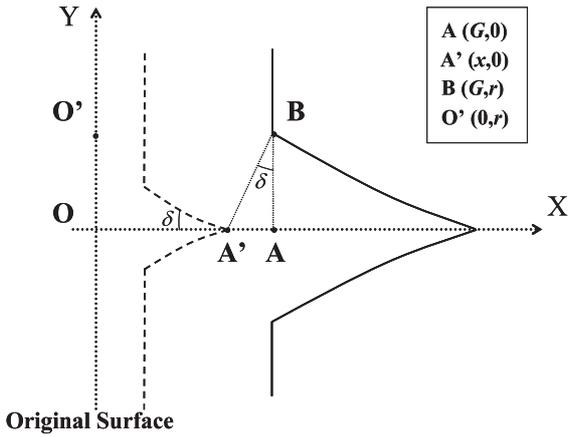


図6 トラックエッチング速度が変化する場合のエッチピットプロファイル。

ルクエッチングによる平面波と飛跡終点から広がった球面波のみとなり、ピットの壁面は完全に球の表面となる。このエッチピットの状態をラウンドアウトと呼ぶ。

次にエッチピットの幾何形状から得られる式について考える。検出器表面の点Oに荷電粒子が垂直に入射し、その後ある時間エッチングを行ったときに現れるエッチピットの断面図を図6に示す。なお、このときのエッチピットは少し崩れた円錐形となっている。検出器の深さ方向にX軸、検出器の表面方向にY軸を定め、エッチピットの開口部の中心を点A、開口部上の点を点Bと置く。さらに点Bが形成される際のバルクエッチングの始点となるエッチピットの先端を点A'とし、そのときのエッチピットを破線で表した。またエッチピット径をr、溶出厚をG、検出器からのある深さxを用いてそれぞれの点を座標で示す。エッチピット先端角はδとする。

点Bが形成されるエッチング経路について考える。エッチピット開口部上の点は2種類のエッチングによる溶出の交点に形成され、1つのエッチングによる溶出だけでは形成されない。1つは検出器表面からまっすぐに進行するバルクエッチングによる溶出(O'B)と、もう1つは潜在飛跡に沿ったトラックエッチングによる溶出(OA')を経た後に、ある点から球面波として広がるバルクエッチングによる溶出(A'B)である。これらのエッチングが進行し、2つの溶出経路が交わった点に点Bが形成される。またこの際、エッチングに要する時間は一致するはずであるので、エッチング時間に注目すると次の等式が成り立つ。

$$\frac{O'B}{V_b} = \int_0^x \frac{dx}{V_t(x)} + \frac{A'B}{V_b} \quad (4)$$

左辺はO'Bをバルクエッチングにより溶出するために要する時間を表す項である。右辺の第一項はOA'へのトラックエッチングによる溶出に要する時間を表している。V_tは点A'までのエッチングであるのでxの関数となっており、深さ依存性を考慮しているために積分の形になっている。右辺の第二項は左辺と同様にA'Bへのバルクエッチングに要する時間を表している。またAA', A'Bの長さについて(2)式を用いると、次のように記述できる。

$$\overline{AA'} = r \frac{1}{\sqrt{S(x)^2 - 1}} = G - x \quad (5)$$

$$\overline{A'B} = \frac{G - x}{\sin \delta} = r \frac{S(x)}{\sqrt{S(x)^2 - 1}} \quad (6)$$

(4)式に(6)式を代入し、両辺にV_bを掛けると次のようになる。

$$G = h(x) + r \frac{S(x)}{\sqrt{S(x)^2 - 1}} \quad (7)$$

$$h(x) = \int_0^x \frac{1}{S(x)} dx \quad (8)$$

また(8)式はエッチ率比S(x)の逆数の積分をh(x)という関数で表したものである。さらにここで、先に得られた(5)式と(7)式を連立し、それぞれrとGについて式変形を行う。

$$r = \{x - h(x)\} \sqrt{\frac{S(x)+1}{S(x)-1}} \quad (9)$$

$$G = \frac{xS(x) - h(x)}{S(x) - 1} \quad (10)$$

以上のようにして、点Bの座標をそれぞれ記述することができた。これらの式を用いれば、ある想定された、あるいは実験的に求められた深さ方向に変化するS(x)から、垂直入射の場合のエッチピット形状を計算することが可能となる。

次にエッチングを断続的に繰り返すことにより得られる成長曲線の傾きβに注目する。成長曲線は縦軸にエッチピット径r、横軸に溶出厚Gをとったものであるので、次の(11)式で表現することができる。

$$\beta = \frac{dr}{dG} = \frac{\left(\frac{dr}{dx}\right)}{\left(\frac{dG}{dx}\right)} = \sqrt{\frac{S(x)-1}{S(x)+1}} \quad (11)$$

(11)式を式変形することにより、エッチ率比S(x)を傾きβから求めることができる。また検出器の深さ方向について考えてみると、飛跡終点からエッチング処理を施す前の表面までの距離すなわち飛程R₀と、エッチピット先端から飛程終端までの距離すなわち残余飛程Rと、その差xの間には(12)の関係式が成り立つ。この関係式を用い、Sを検出器表面からの距離でなく飛跡終点からの距離、つまりxでなくRの関数として表すと(13)式が得られる。さらに(5)式に(11)、(12)式を代入すると、(14)式が得られる。下に(12)～(14)式を示す。

$$R = R_0 - x \quad (12)$$

$$S(R) = S(x) = \frac{1 + \beta^2}{1 - \beta^2} \quad (13)$$

$$R = R_0 - \left(G - r \frac{1 - \beta^2}{2\beta}\right) \quad (14)$$

以上の関係式より、エッチピット計測により得られる値から応答特性を求めることが可能となる。(13)式について考

えてみると、 S は R の関数として表現しているが、もとは x の関数であることから点 A' におけるエッチ率比 S であることがわかる。また傾き β は r を G で微分したものであることから点 B での傾き β である。つまり点 A' でのエッチ率比 $S(R)$ と点 B での傾き β には対応関係があり、この対応関係が成立することにより深さ依存性を考慮したエッチ率比に対して評価を行うことが可能となる。

3. 固体飛跡検出器 CR-39 を用いた様々な解析手法

目的に応じた固体飛跡検出器の解析手法を紹介する。具体的には固体飛跡検出器を利用して入射した粒子の飛程すなわちエネルギーを決定する際に用いられる解析手法および飛跡検出器への粒子の入射方向を特定する方法を紹介する。また CR-39 を使用する上で注意すべき点について述べる。

3.1 固体飛跡検出器を用いた飛程の算出方法

第2章ではエッチピットの成長挙動から感度を算出した。本章では光学顕微鏡によって計測可能なエッチピットのパラメータから飛程を算出するために、ラウンドアウト後のエッチピット形状より得られる関係式について考え、多段階エッチング法を用いた光学顕微鏡によるエッチピット径の計測から飛程 R_0 を求める方法を紹介する。

ラウンドアウト後のエッチピットは実線で表しており、飛跡終点にエッチピットの先端が達したときのエッチピットを破線で表している。それぞれの長さは図7に示した通りである。ピットの最大深さ l はラウンドアウト後ではトラックエッチングが存在しないことからどれだけエッチングが進行しても保持されている。

点 A は飛跡終点、点 B はラウンドアウト後のエッチピットの中心、点 C はエッチピットの開口部上の点を示しており、鎖線で表した三角形 ABC のそれぞれの辺の長さは次式のように表現できる。

$$\overline{AB} = G - R_0 \tag{15}$$

$$\overline{BC} = r_s \tag{16}$$

$$\overline{CA} = G - (R_0 - l) \tag{17}$$

さらに三角形 ABC について三平方の定理を利用し、 r_s^2 と

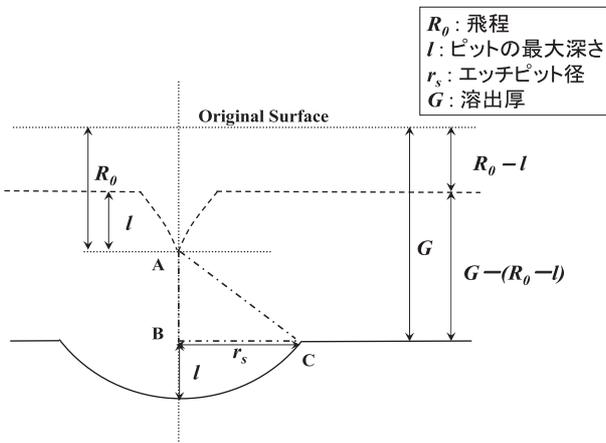


図7 ラウンドアウト後のエッチピットプロフィール。

R_0 についての式に変形すると次式が得られる。

$$r_s^2 = 2lG - 2R_0l + l^2 \tag{18}$$

$$R_0 = G + \frac{1}{4} \left(\frac{dR_s^2}{dG} \right) - \frac{r_s^2}{\left(\frac{dr_s^2}{dG} \right)} \tag{19}$$

(18)式は、 r_s^2 は G の一次関数となっていることがわかる。これからラウンドアウト後のエッチピット径を二乗した成長曲線は直線となり、その直線の傾きである $dr_s^2/dG = 2l$ を求めて(19)式に代入すると、飛程 R_0 を求めることができる。このことから実際のエッチピットに対して光学顕微鏡によるピット径の計測を行うだけで飛程を算出することができ、荷電粒子のエネルギーを特定することが可能となる。

実際に²⁴¹Am 標準線源を用い CR-39 に様々なエネルギーでアルファ線を照射し、多段階エッチング法により飛程の算出を行った実験結果を示す[17]。多段階エッチング法とは、エッチングと顕微鏡によるエッチピット径の計測をある一定時間ごとに繰り返す手法である[18]。この手法で注意すべきことは、必ず一つのエッチピットについて成長を追い続ける必要がある。すなわち顕微鏡観察において、前の段階で計測したエッチピットを探し出さなければならない。

実験に用いた CR-39 はフクビ化学工業社製の BARY-OTRAK、公証厚さは 0.9 mm である。この試料に²⁴¹Am 標準線源を用いアルファ粒子の照射を行い、自発核分裂核種である²⁵²Cf を用いて核分裂片の照射を行った。アルファ粒子の入射エネルギーはコリメーターを用いて試料との空間距離を調節することにより 1.68 MeV, 2.77 MeV, 3.83 MeV, 4.77 MeV と設定した。照射した試料を 70℃, 6mol/L-KOH で30分間エッチングした後に光学顕微鏡でエッチピット径を計測する作業を全ての入射エネルギーについてエッチピットがラウンドアウトするまで繰り返し、成長曲線を得た。その曲線のエッチピット成長率に注目し、エッチピットの幾何的形狀を考えたときに得られる関係式を用いて、飛程の算出と任意の残余飛程に対する応答特性を求めた。

多段階エッチング法により得た成長曲線を図8に示す。図8から判断できるように、成長曲線は入射エネルギーに

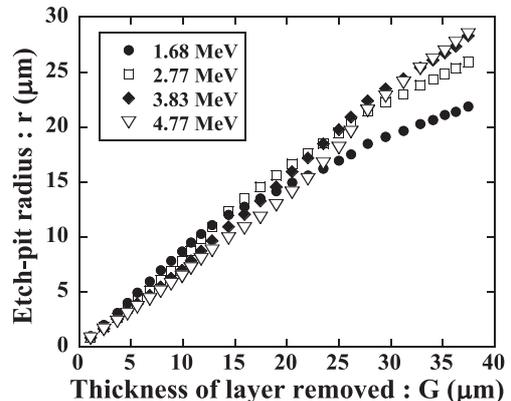


図8 アルファ線のエッチピット成長曲線 (半径: r)。

依存している。まず、エッチング初期段階では、入射エネルギーが低い場合、阻止能の大きな領域をエッチングしているためトラックエッチング速度が速く、エッチピットの成長は速くなり、ピット径も大きくなる。一方で入射エネルギーが高い場合、阻止能の小さな領域をエッチングしているため、ピット径は小さい。次に、エッチング時間が長くなり、入射エネルギーの低いエッチピットがラウンドアウトした状態を考える。入射エネルギーが低いものは、エネルギーが高い粒子のエッチピットに比べて早期にラウンドアウトの状態に達する。ラウンドアウト後は、成長曲線の傾きが緩やかになりエッチピット径の成長も緩やかになる。一方で入射エネルギーが高い粒子のエッチピットはトラックエッチングが継続し阻止能の大きな領域のエッチングが進行しており、ラウンドアウトしたエッチピットに比べて、ピット径の成長速度が速い。これらのことを考慮すると、さらにエッチング時間が長くなり、両方のエッチピットがラウンドアウトした場合、この時点で、入射エネルギーが高い粒子のエッチピットのほうが、大きなピット径になることがわかり、入射エネルギーが低い粒子のエッチピットのほうが、小さなピット径になることがわかる。

成長曲線の縦軸であるエッチピット径を二乗し、プロットした図を図9に示す。(18)式より、ラウンドアウト後 r^2 は G の一次関数となるのでそれぞれの直線部分に近似

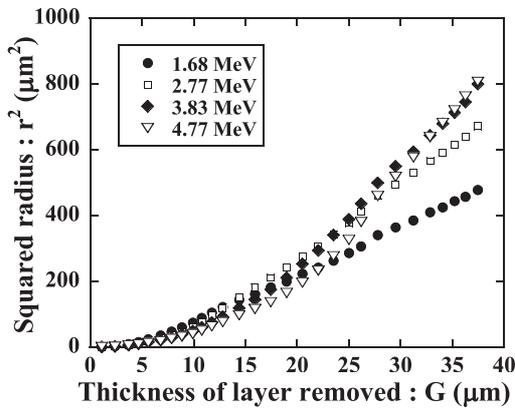


図9 アルファ線のエッチピット成長曲線 (半径の二乗: r^2)。

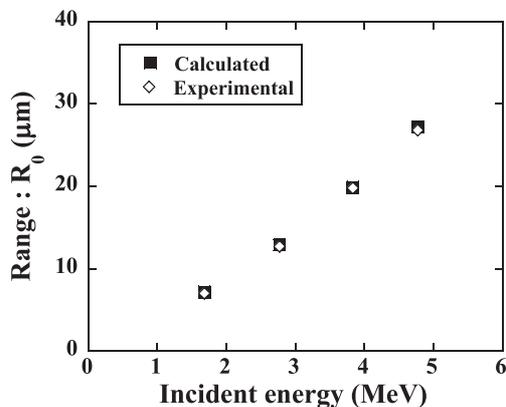


図10 エッチピットの成長挙動から求めた飛程とSRIMコードによる計算値との比較。

を行い、(19)式を用いて計算した結果を図10に示す。また実験で求めた値と比較を行うためにSRIMコード[19]により計算した飛程の結果も示している。エッチピットの幾何形状から得られた飛程はSRIMコードによる計算結果と非常によく一致しており、その精度のよさが確認できる。この手法を用いることにより、エッチピットを計測するだけで荷電粒子の入射エネルギーの決定が可能となる。実際の応用例については、4.1を参照。

3.2 エッチピット成長挙動による粒子入射方向の判定法

まずCR-39飛跡検出器への粒子の入射方向を特定する方法をいくつか紹介する。まず、エッチピットのプロファイルに着目すると、走査型電子顕微鏡SEMによるエッチピット断面の観察、蛍光顕微鏡によるプロファイルの観察[20]といった方法や、トラッキングメソッドと呼ばれる2枚の検出器を重ね、検出器を貫通したイオンのエッチピットのコインシデンスを利用する方法が挙げられる[21]。その他に、本解説で取り扱ってきた多段階エッチング法によるエッチピットの成長パターンを計測することで入射方向を特定することも可能であり、その手法について具体的に述べる[18, 22]。

エッチピットの成長パターンを例を、その断面図と成長曲線とともに図11に示す。それぞれの矢印はイオンの飛跡をあらわしており上側のものが高エネルギーイオン、下側のものが低エネルギーイオンである。高エネルギーイオンについてはCR-39検出器を貫通した場合を想定している。

それぞれのエッチピットの成長曲線は、溶出厚に対してエッチピットの短半径をとったものと短半径の2乗をとったものを示している。図11より合計3パターンのエッチ

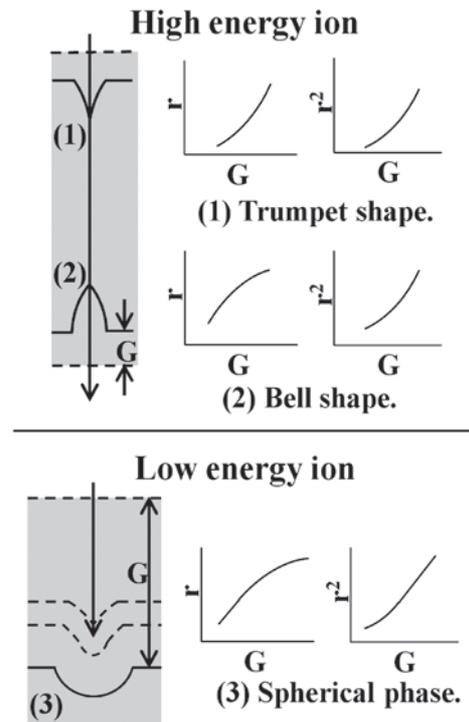


図11 入射の向きとエネルギーの違いによる3つの異なるエッチピット形状とそれぞれに対する成長挙動。

ピットが存在することがわかる。それぞれについて詳しく観察すると、(1)はエッチングの進行方向と阻止能の増加する方向が同じであるため、エッチピット径の成長はエッチング時間とともに早くなっていく。すなわちこのエッチピットが示す成長曲線は溶出厚に対して短半径をプロットしたものは下に凸になる。その一方、(2)はエッチングの進行方向が、阻止能が減少する方向であるためエッチピット径の成長は遅くなる。すなわち溶出厚に対して短半径をプロットすると上に凸の成長曲線を描く。しかし(1)、(2)どちらの場合も潜在飛跡に沿ったエッチングが続くため、溶出厚に対して短半径の2乗をプロットした成長曲線は下に凸の曲線となる。

また検出器中の飛程が短く、検出器内部で止まった低エネルギーイオンのエッチピットは、エッチングを進めるとラウンドアウトする。すなわち(3)のようなエッチピットになる。このエッチピットはエッチングの初期段階では(1)と同様の成長挙動を示す。エッチングを進めるにつれ、(3)のような成長曲線を描き、溶出厚に対して短半径をプロットしたものは上に凸の曲線となり、短半径の2乗をプロットしたものは直線になる。

このようにエッチピットの成長挙動を詳細に解析することで、入射方向を特定することが可能である。この手法を用いて、レーザー駆動イオン加速実験でエネルギーおよびフルエンスがCR-39の検出閾値を超えるような粒子が発生した場合を想定した新たなイオンビーム診断法を開発した。

図12はイオンビームの照射を行ったサンプルセットのビーム進行方向に対して横から見た概観図を示している。厚さ2mmのテフロンの上に厚さ3mmのアクリル板を重ねその上にCR-39を設置した。またエネルギーの微弱なビームラインからの散乱線の影響を少なくするために、CR-39の前方に厚さ6μmのアルミニウムフィルターをかぶせた。CR-39飛跡検出器にはフクビ化学工業社製の公称厚さ100μmのBARYOTRAKを用いた。

イオン照射は高崎量子応用研究所 TIARA 施設内の第3

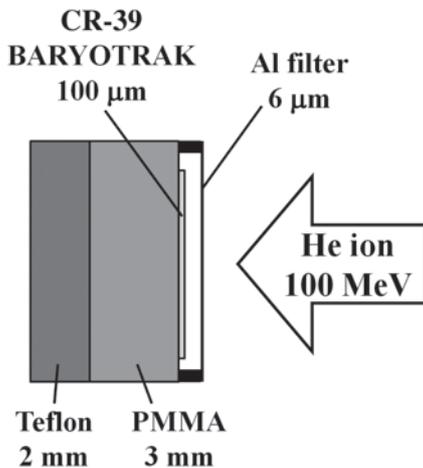


図12 後方散乱粒子によるビーム診断法のためのサンプルセット。公証厚さ100μmのCR-39を後方散乱体であるアクリル板とテフロン板の上に重ねてある。

重イオン室にて行った[23]。AVFサイクロトロンからの25 MeV/nの⁴He²⁺イオンをHE1ポートに導入し真空中にてサンプルの照射を行った。

照射サンプルはCR-39飛跡検出器のほかにイオンビーム形状の参照用としてイメージングプレート(IP)の照射も行った。それぞれのサンプルの照射条件は電流値5nAのイオンビームをパルスチョッパーによってパルス幅を調整し、CR-39は 2×10^8 ions/cm²、IPは 2×10^9 ions/cm²の照射を行った。CR-39のエッチングは70℃の6mol/L-KOHにて処理を行った。顕微鏡はオリンパス社製BX-60を用い、使用レンズは全体像の観察に20倍、詳細観察に100倍のレンズを用いた。

ここで、本研究で用いたCR-39飛跡検出器BARYOTRAKは25 MeV/nのHeイオンに感度を持たず表面、裏面ともにエッチピットを形成しない。これは上で述べたようにBARYOTRAKの検出閾値は、大気中で用いる場合、CR-39中の阻止能で約20 keV/μmであるとされる。これより低い阻止能では、荷電粒子によって損傷は与えられるが、エッチピットが生成されない。この値をHeイオンのエネルギーに換算すれば約12 MeV/nである。仮に25 MeV/nのHeイオンがエッチピットを形成したとしても照射したフルエンスは 2×10^8 ions/cm²であり、エッチピット同士が重なってしまい、正確な計測を行うことができない。上で述べたようにCR-39検出器の入射粒子数に対する検出閾値は光学顕微鏡下において 10^5 ions/cm²程度であり、原子間顕微鏡を用いた場合でも 10^9 ions/cm²程度である。このように、エネルギーおよびフルエンスがCR-39の検出閾値を超える可能性があるレーザー駆動イオン加速実験に対応する検出法を開発するため、CR-39の検出感度を超えるパラメータでイオン照射を行った。

加速器からの粒子、後方散乱による粒子それぞれのエネルギーが異なるため入射したすべての粒子についてエッチピットが形成されるわけではないが、検出器に入射する粒子の向きには図13に示すものが考えられる。CR-39の加速器からのイオンビームが入射する面を表面、散乱体と接している面を裏面とする。CR-39へのイオンの入射の向きは後方散乱によるもの(Reverse)と、加速器からの入射粒子(Normal)の2通りが考えられる。CR-39の裏面には後方散乱によって発生した粒子が入射したもの(1,2)とビーム

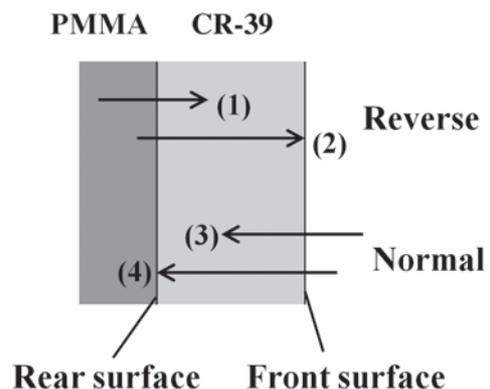


図13 CR-39に対する入射方向のパターン。

軸方向から入射してきたもの(4)がある。同様に表面にもビーム軸方向から入射してきたもの(3,4)と後方散乱によって発生した粒子が入射したもの(2)がある。

ビーム診断に用いるエッチピットは、後方散乱によって検出器の裏面に入射した粒子のものである。そこで、裏面に生成されたエッチピットが後方散乱によるものである(すなわち図13中の(1,2)に相当する)ということを証明するために、第一段階として90分間のエッチング処理を行い、顕微鏡観察の後、30分間隔でエッチングと顕微鏡観察を繰り返し、エッチピット成長曲線を作成するという方法を試みた。

合計6時間のエッチングを施した時点での裏面のビーム中心付近のエッチピットの写真を図14に示す。図14からわかるようにエッチピットの大きさはすべて異なっており、また、その形状も円に近いものから楕円、楕円と円を半分ずつ組み合わせたものまで様々である。これは裏面に入射した粒子のエネルギーが単色でないことを示しており、入射方向もランダムであることを示している。例として図の四角で囲った部分を拡大し成長の様子を図15に示す。それ

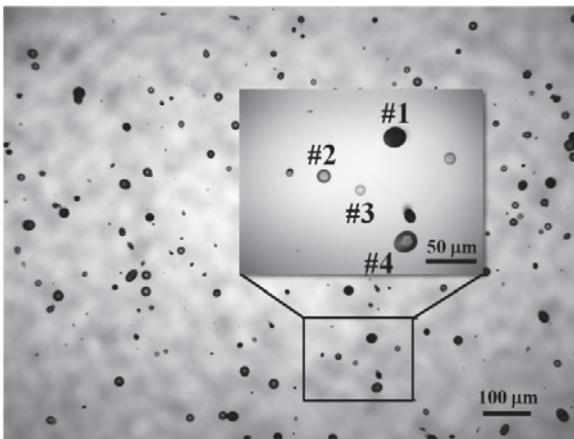


図14 CR-39 裏面のエッチピット (70°C, 6 M-KOH で6時間エッチング)。

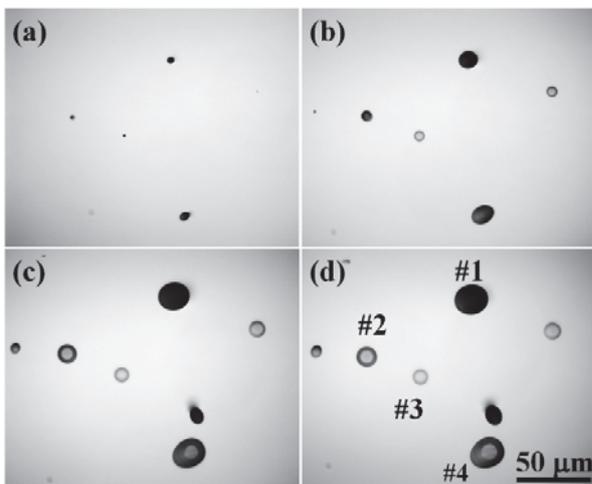


図15 エッチング時間ごとのエッチピット成長の様子 (エッチング時間は(a)1.5時間, (b)3時間, (c)4.5時間, (d)6時間)。

ぞれのエッチピットがエッチングを進めるに連れて成長している様子わかる。ここで、図14に示す#1~4までのエッチピットの成長曲線を作成し図16に示す。図16(a)は横軸に溶出厚、縦軸にエッチピットの短半径をとったものであり、図16(b)は横軸に溶出厚、縦軸に短半径を2乗したものをとった成長曲線である。

図16(a)のそれぞれの成長曲線を詳しく観察すると、No.1はわずかではあるが下に凸の成長曲線を示しており、No.2は明らかに下に凸の成長曲線を示している。すなわち図13の(1)および(2)に相当する後方散乱によって発生した粒子によるものであるということがわかる。一方で、No.3のエッチピットは成長曲線が上に凸の形を示しており、どちらの面から入射したものかを特定するのが難しい。しかし、図16(b)では短半径の2乗が溶出厚に対して一次関数的なふるまいを示していることから、このエッチピットはラウンドアウトした状態すなわち図11の(3)の状態にあるといえる。すなわちNo.3のエッチピットも後方散乱によって発生した粒子によるものであるということがわかる。また、No.4のエッチピットについては、短半径が溶出厚に対して比例しているため、入射方向を成長曲線から判断するのは難しい。しかしながら、エッチピットの画像から長軸の進行方向側がラウンドアウトしており長軸方向

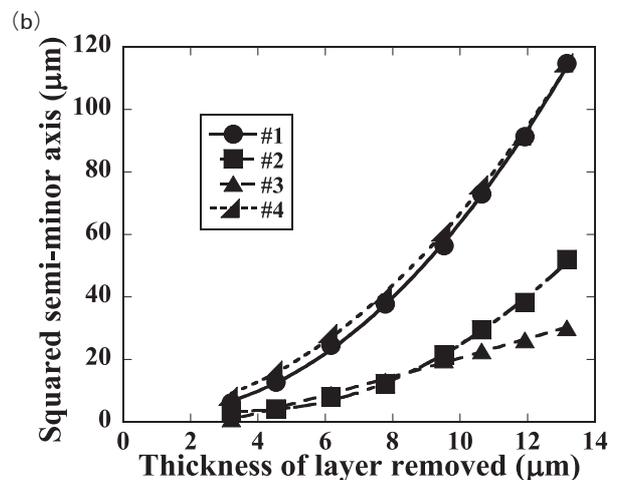
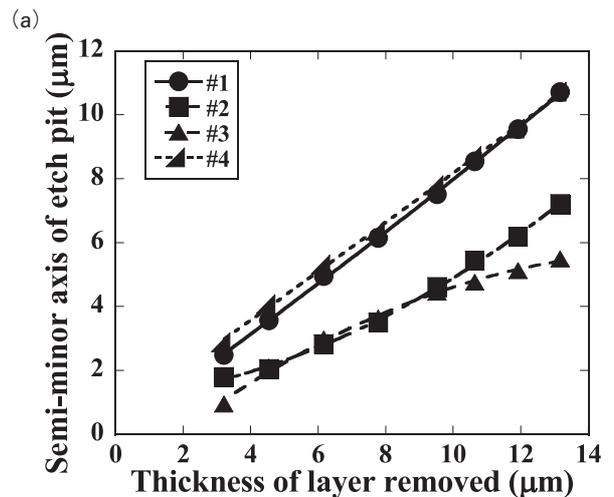


図16 図14の拡大部分にあるエッチピット#1~4に対するエッチピット成長曲線 ((a)半径: r , (b)半径の二乗: r^2)。

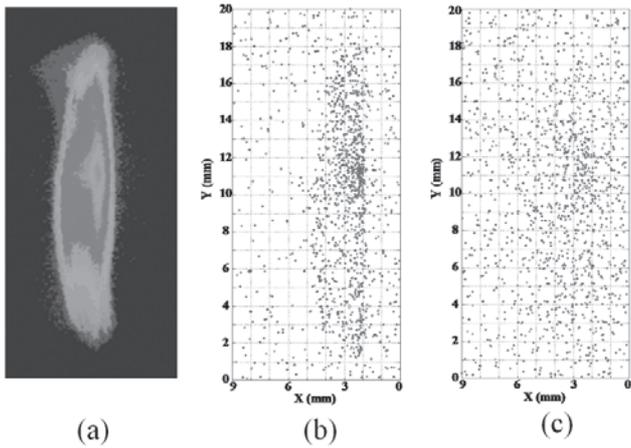


図17 イメージングプレートにあらわれたHeイオンビームに対する径方向の強度分布(a)とCR-39に形成されたエッチピットの空間分布 ((b)裏面, (c)表面)。

の対称性が崩れている。これは表面から入射した粒子にはありえないふるまいであり、このエッチピットも後方散乱によって裏面に入射した粒子が作り出したエッチピットであるといえる。

ビーム中心付近のその他のエッチピットについても同様の解析を行ったところ、検出器裏面のビーム中心付近では、そのほとんどが後方散乱によって入射してきた粒子によるものであるということがわかった。

図17は、Heイオンビームを照射したイメージングプレート(a)とCR-39上に形成されたエッチピットの分布を示している(b,c)。(b)はCR-39の裏面を示しており、(c)は表面を示している。この図からわかるように、飛跡検出器の裏面におけるエッチピットの空間分布がイメージングプレート上に形成されたイオンビームの形状および強度分布とよく一致していることがわかる。この手法を用いれば、CR-39の検出閾値を超えるような高エネルギー粒子であっても、後方散乱粒子を通じて診断することが可能であることがわかる[22]。また、CR-39は電子線やX線に対して感度を持たないので、レーザー駆動イオン線加速実験のような混成場におけるイオンビームの診断に有効である。

3.3 CR-39の検出閾値および使用する上での注意点

ここではCR-39の検出閾値、およびCR-39を用いた荷電粒子の計測を行う際、照射時およびエッチング時に注意すべき点を取り上げる。

まず、固体飛跡検出器の検出閾値について述べる。固体飛跡検出器の検出閾値にはエネルギーに対する閾値と、フルエンスに対する閾値の二種類が存在する。まず、前者については検出閾値を超えるような高エネルギーイオンは、付与するエネルギーすなわち阻止能が小さく、飛跡近傍に残す損傷領域が小さいため、エッチング処理を行ってもエッチピットを形成しない。すなわち検出閾値以下のエネルギーを持つイオンのみが検出可能である。この検出閾値は入射粒子のエネルギーに対してのみあてはまるものではなく、CR-39内部を通過し、裏面から射出するイオンのエネルギーについてもあてはまる。すなわち、ここで定着される検出閾値は、検出器の厚みに依存するものではなく、

CR-39の種類に対して一意に決定される。具体的に、日本国内で発売されているCR-39の検出閾値を表2に示す。現在、日本では長瀬ランダウア社からフクビ化学工業社製の3種類のCR-39が発売されている。BARYOTRAKは99%以上CR-39のモノマーから成り立っており、ほぼ純粋なCR-39であるといえる。HARZLAS(TD-1)およびHARZLAS(TNF-1)は高エネルギー粒子に対する感度を上昇させるためNIPPAmとの共重合体として開発された[24,25]。それぞれの検出閾値をプロトンのエネルギーで表現すると表2のようになり、HARZLAS(TNF-1)では27 MeVのプロトンのエッチピットを観察することができる。エッチング後の表面荒れについてはBARYOTRAKが最も少なく、ついでHARZLAS(TD-1)、HARZLAS(TNF-1)の順となる。

もうひとつの検出閾値であるフルエンスに対する検出閾値であるが、これはエッチピットの重なりが問題となり、それぞれのエッチピットを独立して観察できなくなる上限を示すものであり、その値を表3に示す。通常、エッチピットの観察には光学顕微鏡を用いる。標準的なCR-39のエッチングは70℃の6 M-KOHなど強アルカリ溶液を用いて1時間以上行う。その結果エッチピットは数μm以上の大きさとなり、光学顕微鏡下で十分観察可能となる。しかし入射粒子数が多い場合には、短時間のエッチングを行い、数十nm程度の大きさのエッチピットに対し原子間力顕微鏡を用いた観察を行うことがある[26,27]。

次にイオン照射を行うときの注意点について述べる。1.2で紹介したように、イオン照射を真空中で行う場合には、真空効果と呼ばれる感度の低下に注意しなくてはならない。イオンを照射し、そのエッチピットが観察されるためには、切断された端点に生成されたラジカルが、それ同

表2 各種CR-39のプロトンに対する検出閾値。

BARYOTRAK	~3 MeV
HARZLAS(TD-1)	~20 MeV
HARZLAS(TNF-1)	~27 MeV

表3 固体飛跡検出器で観察可能な最大フルエンス。

Optical Microscope	~10 ⁵ ions/cm ²
Atomic Force Microscope	~10 ⁹ ions/cm ²

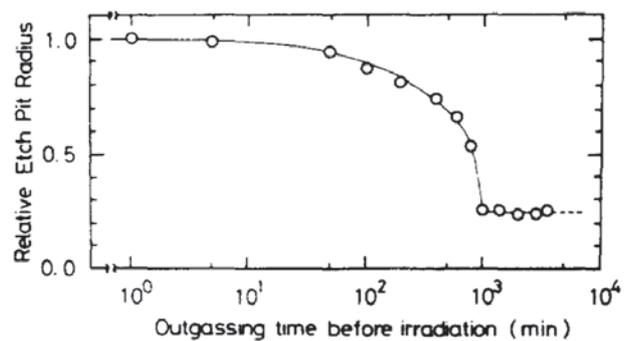


図18 アルファ線照射前の真空中保持時間に依存したエッチピット径の変化。

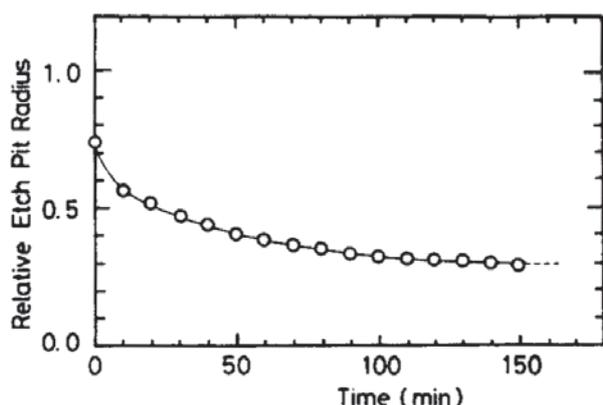


図19 アルファ線照射後の真空中保持時間に依存したエッチピット径の変化 (照射前真空中保持時間は2000分)。

士再結合することなく、何らかの形で結合が切断された状態で固定されることが必要である。そのためには酸化反応のように端点にヒドロキシル基などの官能基が生成されることが必要となる。CR-39内部には酸素が溶け込んでおり、溶存している酸素が酸化反応に寄与しているとされている。CR-39を真空中で使用した場合、CR-39内部に溶存している酸素が真空中へと散逸していくため、酸化反応が起こりにくくなり切断された分子鎖の端点が固定化されず、結果としてエッチピットとして成長しにくくなると考えられている。この現象については包括的な研究が行われている[12]。図18は真空中に保持しない場合のエッチピット径と各真空中保持時間でのエッチピット径の比を照射前真空中保持時間の関数であらわしたものである。同様に図19は横軸に照射後真空中保持時間をとったものである。これは ^{241}Am 標準線源のアルファ線照射による実験結果であるが、照射前と照射後どちらの場合においても真空保持時間に応じてエッチピット径が小さくなっていくことがわかる。例えばプロトンのように阻止能の低い粒子のエッチピットは、もともとのエッチピット径も数 μm と小さいため、真空効果が起こるとより小さくなってしまい、観察が非常に困難となり、ともすればエッチピットが生成しないという事態になる。すなわち真空中でCR-39を用いる場合には、真空効果を十分に考慮する必要があり、現在も系統的な研究が行われている。

続いてエッチングを行う際の注意点について述べる。CR-39のエッチングは強アルカリ溶液を用いて行われるが、代表的な溶液として水酸化ナトリウム水溶液 (NaOH aq) と水酸化カリウム水溶液 (KOH aq) がある。例えば神戸大学海事科学研究科では、ウォーターバス内のピーカーで6 mol/L-KOHを70°Cに加熱しマグネットスターラーなどでかき混ぜながらエッチングを行っている。かき混ぜるのはCR-39から溶出したエチレングリコールやジエチレングリコールなどの低分子物質を流速によって洗い流し、常にKOHをCR-39の表面に触れさせるためである。また長期間使用するとエッチング溶液内にCR-39から溶出した残渣が蓄積されバルクエッチング速度が非常に速くなり検出感度が落ちるため、基本的には大量のサンプルを一度に溶かすことはせず、常に溶液のバルクエッチング速度を確認し

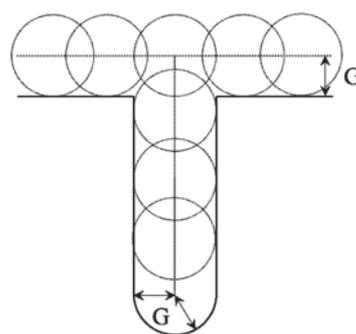


図20 バルクエッチング速度測定のための ^{252}Cf の自発核分裂による核分裂片を照射した場合のエッチピット形状。

ながら使用し、通常値から変化した場合 (通常は大きくなる) には交換する。また大気中の二酸化炭素を吸収する性質もあるため、一度作成した溶液は、使用しなくとも2週間以内に交換するというルールを定めている。

ここでバルクエッチング速度の測定方法について述べる。バルクエッチング速度は単位時間あたりに表面が溶出する速度のことであるが、基本的には1時間あたりに溶出する厚さを指す。CR-39の場合、バルクエッチング速度はおおよそ $2\mu\text{m}/\text{h}$ である。この測定方法には、核分裂片照射による測定法やAFMによる測定法[28]などいくつかの方法が存在するが、本解説では核分裂片照射による測定法を説明する。核分裂片を照射しエッチングを行うと、その断面図は図20のようになる。核分裂片は自発核分裂を起こす ^{252}Cf 線源により照射することができ、おおよそ核子あたり1~2 MeV程度のXeのような非常に重いものである。このような粒子が入射すると阻止能が大きいためCR-39には大きな損傷が形成され、トラックエッチング速度が非常に大きな値となり、エッチングを開始するとすぐにトラックエッチングは終了する。トラックエッチング終了後はバルクエッチングのみに支配されエッチングが進行するので、ピット半径の成長と溶出厚 G が等しくなり、図20に示すように円錐状ではなく円柱状のエッチピットが形成される。すなわち核分裂片のエッチピット半径を計測すれば溶出厚を計測することが可能である。

4. レーザー駆動イオン加速実験におけるCR-39の適用例

本章ではレーザー駆動イオンビーム計測に特化したCR-39の実際の適用例について述べる。これまで様々なグループがCR-39を利用したイオンビーム計測を行ってきたが、これらは、CR-39の性能を十分に利用したとは言い難いものであった[29-31]。ここでは、CR-39の性能を十分に活用した利用法の例として、イオンのエネルギーがCR-39の表裏両面の検出閾値を超える場合に用いられる後方散乱粒子によるイオンビーム診断法や、CR-39のスタックによる高精度エネルギー評価法の解説を行う。

4.1 後方散乱粒子によるレーザー駆動イオンビーム診断

3.2において、後方散乱粒子を用いることで、CR-39の検出閾値を超えるような高エネルギーイオンの検出が可能であることを解説した。ここでは、この手法を、クラスター

ターゲットを用いたレーザー駆動イオン加速実験に適用した例について説明する[32].

実験は、日本原子力研究開発機構関西光科学研究所の高強度チタンサファイアレーザーシステムJ-KAREN [33]を用いた。実験装置の体系図を図21に示した。エネルギー1 J、パルス幅40 fsのレーザー光を軸外し放物面鏡を用いて集光し(集光強度 8×10^{18} W/cm²)、クラスターターゲットに集光させた。クラスターターゲットの生成には、特殊構造の円錐形ノズルを用い[34]、圧力60気圧のヘリウムガス(90%)と二酸化炭素ガス(10%)との混合ガスを真空容器中でノズルから噴出させ、平均直径400 nmの二酸化炭素クラスターを生成させた。前方(レーザー進行方向)に加速された高エネルギーイオンを検出するために、集光点下流に16 mmのスリットを有する永久磁石(0.78 T, 100×100 mm²)を設置してイオンをエネルギー分解した後、図12に示したサンプルセットと同一構造の70×140 mm²サイズのイオン検出器(厚さ2 mmのテフロンの上に厚さ3 mmのアクリル板を重ねその上にCR-39を設置、また、レーザー光のCR-39への直接照射を避けるためCR-39の直前に厚さ6 μmのアルミニウムフィルタをかぶせてある。)によって高エネルギーイオンの検出を行った。CR-39飛跡検出器にはフクビ化学工業社製の公称厚さ100 μmのBARYOTRAKを用いた。300レーザーショット分を積算した後、CR-39を取り出し、70℃の6 mol/L-KOH溶液にて4.5時間のエッチング処理を行い、高速画像取得顕微鏡を用いてエッチピットの観測を行った。

図22(a)に、70×140 mm²サイズのCR-39の表面に現れたエッチピット(ノイズ成分を含む)の全空間分布を示した。

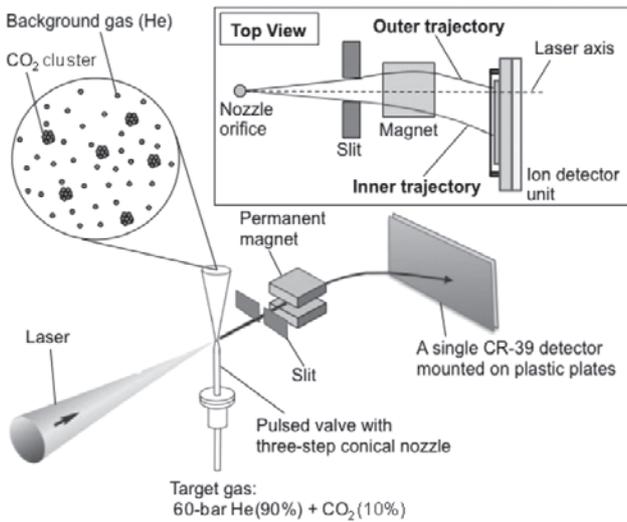


図21 レーザー駆動イオン加速実験の実験装置の概略図。挿入図は、16 mm幅スリット、100×100 mm²サイズの永久磁石(0.78 T)、および、プラスチック板上に取り付けた70×140 mm²サイズのCR-39から構成されるイオンエネルギー分析装置の上面図を示している。CR-39上で同位置に検出されるイオンのエネルギーに関して、レーザービーム軸に沿った軌道に比べ、外部軌道をたどったイオンは低いエネルギー値を、内部軌道をたどったイオンは高いエネルギー値を与える。

観測されたイオンのエネルギーについては、ヘリウム2価イオンを仮定し、三次元イオントラジェクトリー計算プログラムを用いて計算した。図22に示したイオンのエネルギーは、図21の挿入図にあるように、イオンはスリットの”外側軌道”をたどったと仮定しているの、加速されたイオンのエネルギーの”下限値”を表している。

図22(a)に示すように、CR-39の表面には、核子あたり0.5–3 MeV/nのエネルギーのイオンが多数観測されている。図22(b)に示すように、顕微鏡によるエッチピット観測により、大小2種類のエッチピットが存在することがわかる。CR-39中のトラック形成の感度は、イオンの質量に大きく依存することから、小さいピットはヘリウム由来、大きなピットは炭素/酸素由来であると考えられる。また、ヘリウム、炭素、および、酸素イオンに対し、それぞれ、0.5, 0.8, および、0.9 MeV/n以上のエネルギーを有するイオンが6 μm厚アルミフォイルを通過して、CR-39に到達可能である。したがって、低エネルギー側0.5 MeV/n付近に見られるカットオフは、ヘリウムイオンのカットオフエネルギーに対応していると考えられる。

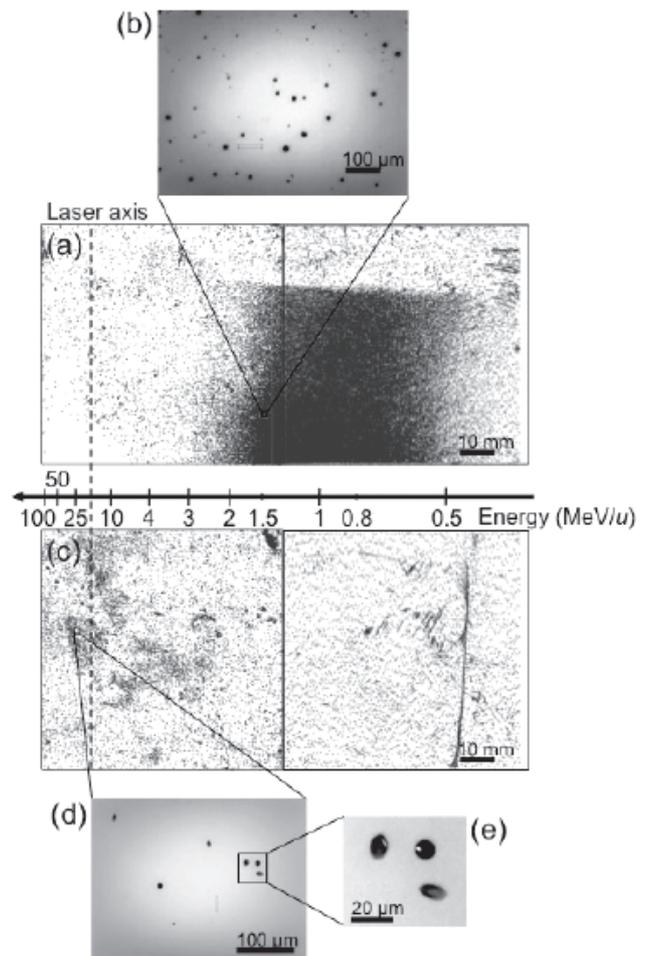


図22 (a)70×140 mm²サイズのCR-39の表面に観測されたエッチピットの分布図(ノイズ成分を含む)。(b)表面に観測されたエッチピットの顕微鏡イメージ。(c)70×140 mm²サイズのCR-39の裏面に観測されたエッチピットの分布図(ノイズ成分を含む)。(d),(e)裏面に観測されたエッチピットの顕微鏡イメージ。

ところで、図22(a)によると、核子あたり 3 MeV/n 以上のイオンは発生していないかに見える。しかし、CR-39 の表裏両面の検出閾値（ヘリウム原子の場合、核子あたり 10 MeV/n）以上のエネルギーを有するイオンについては、もし、それが発生していたとしても、エッチピットとして観測されない。しかし、3.2で示したように、核子あたり 10 MeV/n 以上のイオンであっても、CR-39 裏面に密着させてあるプラスチック板（厚さ 2 mm のテフロン+厚さ 3 mm のアクリル板）で反跳され後方散乱されることにより、CR-39 の裏面にエッチピットを形成することが可能である [22]。

図22(c)は、CR-39 の裏面に現れたエッチピット（ノイズ成分を含む）の全空間分布である。裏面には、島状に分布するエッチピット群が存在し、図22(d)-(e)に見られるように、ピット開口部の形状が楕円形であることがわかった。楕円形のピット開口部は、イオンがCR-39 に対し斜めに入射していることを示しており、3.2で説明したとおり、これらが後方散乱イオンによって生成されたことがわかる。

以上の結果からいえることは、レーザー駆動イオン加速によって、核子あたり 10 MeV 以上のイオンが生成しているが、これらは、CR-39 の表裏両面の検出閾値以上のエネルギーであるため、CR-39 の表面裏面にはエッチピットは作らない。しかし、一旦、CR-39 を貫通しプラスチック板で後方散乱されエネルギーを失ったイオンが、裏面に楕円形開口部を有するエッチピットを形成したと言える。図17に示すように、CR-39裏面のエッチピットの位置は、イオンビームがCR-39表面に入射した時の位置と同一であると考えることができる。図22(c)に示すように、このようなエッチピットは、核子あたり 50 MeV/n まで観測されている。さらに注目すべきは、これらエッチピットは、表面に見られるように一様ではなく島状に分布していることから、イオンビームは準単色のエネルギー分布を有していることが予測される。これら準単色の高エネルギーイオンの発生機構については、今後の研究によって明らかにされることであろう。また、3.2で解説した実験により、入射粒子の約 0.01 %が後方散乱されることが明らかにされている。したがって、裏面に観測された核子あたり 50 MeV/n のイオンに関しては、レーザー 1 ショットあたり、 $10^4 \sim 10^5$ ions/cm² のイオ

ンが発生していると思われる。

以上のように、我々は、クラスターターゲットを用いたレーザー駆動イオン加速実験において、後方散乱粒子によるイオンビーム診断手法を用いることにより、CR-39 の検出閾値を超える核子あたり 50 MeV/n のイオンの検出に成功した。

4.2 CR-39を用いたレーザー駆動陽子線の高精度計測

レーザー駆動粒子加速実験において、イオン計測には主としてCR-39 飛跡検出器が用いられている。上に述べたように、CR-39 はレーザー駆動粒子加速実験のような混成場において電子線や X 線には感度を示さず、イオンのみを選択的に検出することが可能である。また、化学エッチング処理によって現れたエッチピットの空間分布からビームプロファイルを求めることができるだけでなく、個々のエッチピットの成長挙動を詳細に解析することで、その核種やエネルギーを精度良く求めることも可能である。ここでは、多段階エッチング法によって求められたエッチピットの成長曲線を解析することで、レーザー駆動陽子線の最大エネルギーを従来よりも高い精度で決定した。

実験は日本原子力研究開発機構関西光科学研究所の高強度レーザー J-KAREN を用いて行った。図23に実験の概観図を示す。レーザー光 (8 J, 40 fs) を厚さ 7.5 μm のポリイミドターゲットに集光し、陽子線を発生させた。イオン検出部には、1 層目に 105 μm 厚のラジオクロミックフィルムと 2 層目以降に 8 枚の公証厚さ 0.9 mm の CR-39 (HARZLAS TD-1) をスタックにした検出器を用いた。このスタック検出器はレーザー光が直接照射されないように 13

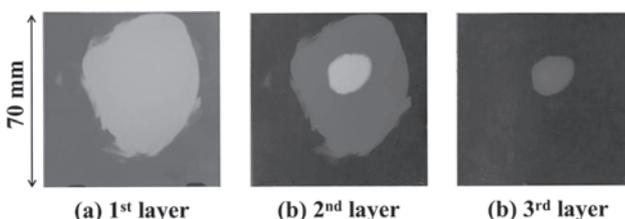


図24 CR-39上にあらわれたレーザー駆動陽子線の空間分布。

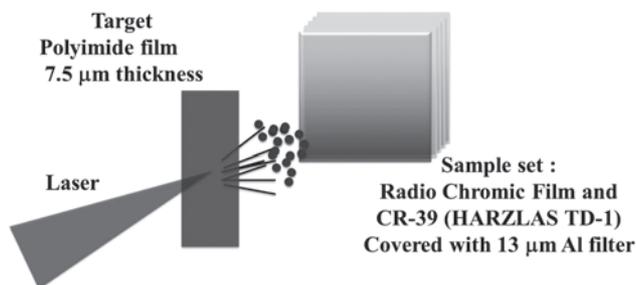


図23 固体ターゲット（ポリイミドフィルム）によるレーザー駆動粒子加速実験の概観図。検出部には 105 μm のラジオクロミックフィルムと 8 枚の公証厚さ 0.9 mm の CR-39 をスタックにし 13 μm のアルミニウムフィルタでカバーしたものをを用いた。

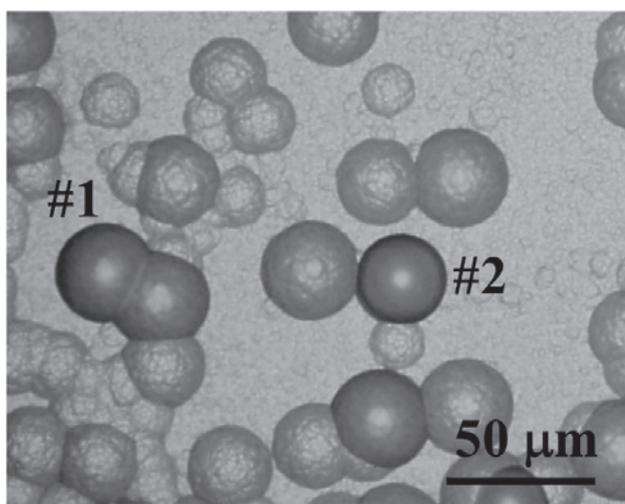


図25 19時間エッチング後の 3 枚目表面のエッチピット。

μm 厚の Al フィルタでカバーを施した。

イオン照射後、70℃ に保持した 6mol/L-KOH を用いて 1 時間の化学エッチング処理を行ったところ、3 枚目の CR-39 の表面にまでエッチピットを観察することができた。エッチング処理後に CR-39 上に現れたエッチピットの空間分布を図 24 に示す。図 24 において最も白い部分は両面にエッチピットがあり、次いで白い部分には表面にのみエッチピットが存在する。それ以外の部分にはエッチピットがなく 3 枚目の表面まで粒子が到達したことがうかがえる。またこのプロファイルから、低エネルギー粒子は発散角が大きく、エネルギーが高くなるにつれ指向性のあるビームが発生していることがわかる。

次に、このショットにおける最大エネルギーを求める方法を考える。最大エネルギーを持つプロトンは 13 μm 厚の Al フィルタおよび 105 μm 厚のラジオクロミックフィルムを通過し、その後公証厚さ 0.9 mm の CR-39 を 2 枚通過し 3 枚目の表面に到達している。すなわち、通過した部分の組成および厚みがわかり、3 枚目の CR-39 中の飛程がわかれば SRIM コードを用いてエネルギーを決定することができる。

まず、実際に通過した部分の厚みについて計測をおこなった。マイクロメータによる計測の結果、Al フィルタおよびラジオクロミックフィルムは公証厚さどおりであったが、CR-39 は厚みが公証厚さより薄い上にばらつきが大きく、1 枚目は 819 μm、2 枚目は 822 μm であった。次に 3 枚目の CR-39 中の飛程であるがこれは 3.1 で述べた多段階エッチング法によるラウンドアウト後のエッチピットの幾何形状による飛程の算出法を用いた。多段階エッチングは、すべてのエッチピットがラウンドアウトするまで合計 19 時間のエッチングを行った。19 時間エッチング後の最大エネルギーを持つプロトンのエッチピットすなわち最後にラウンドアウトしたエッチピットの写真を図 25 に示す。図 25 中の # 1 と # 2 がそれぞれにあたる。# 1 と # 2 のそれぞれのエッチピットに対して、エッチピット半径の 2 乗を溶出厚の関数としてあらわしたものを図 26 に示す。それぞれの

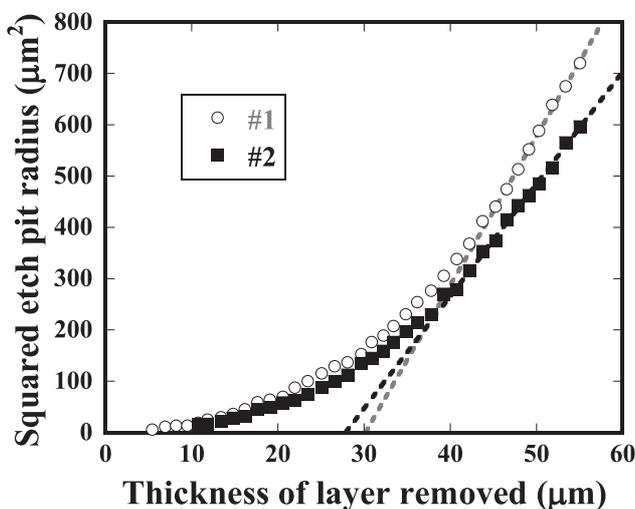


図 26 プロトンのエッチピット成長曲線 (半径の二乗: r^2).

直線部分の傾きから飛程を算出し、さらに通過した部分の厚みおよび組成を考慮することで、このショットにおける最大エネルギーを 14.39 ± 0.05 MeV と求めることができた [35].

多段階エッチング法によるエネルギーの決定法は従来のスタックの各層の厚みからエネルギーを計算する方法よりも非常に精度が高い。例えば本実験においてスタックの厚みのみからエネルギーを決定すると 15 ± 1.5 MeV と非常に幅の広いエラーバーを有する。CR-39 の厚みを薄くすればより精度を高めることは可能であるが、薄い CR-39 ほど真空効果が顕著に表れやすいため、真空中で実験が行われているレーザー駆動粒子加速実験には不向きである。多段階エッチング法は、非常に精度は高いが多くの時間と手間を要するため、飛行時間測定法などで大まかな最大エネルギーの決定を行っておき、その後最適なパラメータで CR-39 スタックの照射を行うというように、リアルタイム性を有する検出器との組み合わせで、レーザー駆動粒子加速実験の精度と効率の両方の上昇が期待できる。

5. まとめ

固体飛跡検出器 CR-39 の歴史からその応用まで紹介を行った。エッチピットの基礎的な幾何学や、使用上の注意点については、CR-39 で粒子線計測を行う際には必ず必要な事柄である。解析手法に多段階エッチング法を用いることで、粒子のエネルギーを高精度に決定することや、その入射方向の特定が可能であることを中心に、レーザープラズマ業界の応用例を示した。

本解説で紹介した多段階エッチング法の他にも解析手法があり、エネルギーの決定だけでなく、かなり精密にイオン種の弁別を行うことが可能である [36]. CR-39 はレーザープラズマのような混成場におけるイオンビーム診断において強力なツールである。しかし、真空効果の影響を考慮するなどその使用方法には注意が必要であり、正しく使用しない場合には正確な計測をすることができない。

CR-39 の応用分野がレーザープラズマ業界に広がることは、固体飛跡検出器の研究者にとって非常に喜ばしいことであり、CR-39 を用いた高精度な粒子線計測が行われることを願う。

参考文献

- [1] D.A. Young, Nature 182, 375 (1958).
- [2] P.B. Price and R.M. Walker, J. Appl. Phys. 33, 3409 (1962).
- [3] <http://www.ppg.com/optical/opticalproducts/optical-materials/Pages/CR-39>
- [4] B.G. Cartwright *et al.*, Nucl. Instrum. Methods. 153, 457 (1987).
- [5] J. Drach *et al.*, Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. Sec. B 28, 49 (1987).
- [6] R.L. Fleischer *et al.*, Phys. Rev. 156, 353 (1967).
- [7] R. Barillon *et al.*, Radiat. Meas. 28, 619 (1997).
- [8] R.L. Fleischer *et al.*, Nuclear Tracks in Solids, Principles & Application (University of California Press, 1975).
- [9] K. Oda *et al.*, Radiat. Meas. 46, 1786 (2011).

- [10] T. Yamauchi *et al.*, Radiat. Meas. **34**, 37 (2001).
 [11] Y. Mori *et al.*, Radiat. Meas. **46**, 1147 (2011).
 [12] T. Yamauchi *et al.*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. **20**, 615 (1992).
 [13] Mukhtar A. Rana and I.E.Qureshi, Nucl. Instrum. Methods. B **198**, 129 (2002).
 [14] F. Leonardi *et al.*, Radiat. Meas. **44**, 787 (2009).
 [15] H.G.Paretzke *et al.*, Nucl. Instrum. Methods. **108**, 73 (1973).
 [16] G. Somogyi, Nucl. Instrum. Methods. **173**, 21 (1980).
 [17] 服部篤人他：放射線 **37**, 143 (2011).
 [18] K. Oda *et al.*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. **20**, 505 (1992).
 [19] J.F. Ziegler, Nucl. Instrum. Methods. B **219**, 1027 (2004).
 [20] D.Hermsdorf and M. Hunger, Radiat. Meas., **44**, 766 (2009).
 [21] S. Ota *et al.*, Radiat. Meas. **43**, S195 (2008).
 [22] M. Kanasaki *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 056401 (2012).
 [23] K. Arakawa *et al.*, Proc. of the 13th Int. Conf. on Cyclotrons and Their Applications, 119 (1992).
 [24] K. Ogura *et al.*, Radiat. Meas. **28**, 197 (1997).
 [25] K. Ogura *et al.*, Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. Sec. B **185**, 222 (2001).
 [26] N. Yasuda *et al.*, Radiat. Meas. **31**, 203 (1999).
 [27] C.E. Jhonson *et al.*, Radiat. Meas. **44**, 742 (2009).
 [28] N. Yasuda *et al.*, Nucl. Instrum. Methods. B **142**, 111 (1998).
 [29] S. Gaillard *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **78**, 013304 (2007).
 [30] Y. Fukuda *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 165002 (2009).
 [31] M. Tampo *et al.*, Phys. Plasmas **17**, 073110 (2010).
 [32] Y. Fukuda *et al.*, submitted to Radiat. Meas. (2011).
 [33] H. Kiriyama *et al.*, Opt. Lett. **35**, 1497 (2010).
 [34] A.S. Boldarev *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **77**, 083112 (2006).
 [35] M. Kanasaki *et al.*, submitted to Radiat. Meas. (2011).
 [36] S. Kodaira *et al.*, Nucl. Instrum. Methods. B **269**, 1382 (2011).



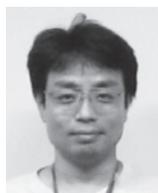
かなさき まさと
金崎 真聡

神戸大学海事科学研究科，博士課程後期課程 2年。日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門，特別研究生。主な研究分野：固体飛跡検出器の基礎と応用，レーザー駆動イオン計測。趣味は，食べ歩きとお酒。そのせいか 25歳にして体重と体脂肪の増加が気になる毎日。



ふくだ ゆうじ
福田 祐仁

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門，研究副主幹。1998年東京大学大学院理学系研究科化学専攻博士課程修了，博士（理学）。主な研究分野は，高強度レーザーを用いた粒子加速。



さかき ひろなお
榊 泰直

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門，研究副主幹。九州大学総合理工学研究科修士課程修了。博士（情報学）
 主な研究分野：大型加速器制御システムで，SPRING-8やJ-PARCの立ち上げを行ってきた。現在は，レーザー駆動型粒子線加速器の開発に挑戦中。趣味は，カールおじさんの様な風貌で行う農作業。また，実父が穂竜という金魚の作者であるため，地元に戻って金魚養殖を引き受けることを模索中である。



にしうち まみこ
西内 満美子

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門研究副主幹。2001年京都大学大学院理学研究科物理学・宇宙物理学専攻博士課程修了。研究分野は，レーザープラズマ，レーザー粒子線加速器開発。趣味は，おぼろげな記憶によると「料理」のはずだったが，近年，子ども達と旦那に食わせる「えさ」しか作った覚えがない。



こん どう きみのり
近藤 公伯

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門レーザー駆動粒子線研究グループグループリーダー。主な研究分野 高強度レーザー工学。極短パルス高出力レーザーが生み出す超高速の世界とすさまじい強さの電磁場に魅せられ研究を行っています。いつまでも気は若いつもりなのですが，ついにこの1月には大台に。息子の若さがまぶしく感じる今日このごろです。



くらしま さとし
倉島 俊

日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所，研究副主幹。研究分野はAVFサイクロトロン的高度化（主に高周波系），研究のみならずメンテナンス作業やビーム調整など，現場で忙しく手を動かす。21歳を迎えたサイクロトロンをさらに20年動かすため，改良を加えながらこれからもがんばっていきます。



かみ や とみ ひろ
神谷 富裕

日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所放射線高度利用施設部ビーム技術開発課長。静岡県浜松市出身。研究分野はイオンビーム、特にイオンマイクロビーム技術とその応用。今はこの技術が新しいモノづくりに役立てられないかと模索中。学生時代はボートに熱中。体力には自信、しかしそれが災いしてか病気怪我歴多数。それでも懲りずに今はサッカーに熱中。



はつ とり あつ と
服部 篤人

神戸大学大学院海事科学研究科修士2回生、固体飛跡検出器であるCR-39を研究の題材としており、検出特性やその利用法について研究をおこなっています。まだまだ未熟ですが、周りには優秀な先輩、先生方がいらっしゃるので、少しずつでも真似していけたらと思います。



おだ けい じ
小田 啓二

神戸大学大学院海事科学研究科、教授。1983年大阪大学工学研究科博士後期課程修了(工学博士)。大阪大学助手、神戸商船大学助教授、同教授、2003年より現職。専門は放射線安全学、放射線計測学。飛跡検出器を用いた中性子線量計測、イメージングプレートを用いた線種識別など。趣味はサッカー観戦と上手くならないゴルフ。



やま うち とも や
山内 知也

神戸大学大学院海事科学研究科、教授。主な研究分野：高分子材料中に形成される重イオントラックの基礎と応用。経済学部におられた山口先生との卓球の対戦に向けてトレーニング中。通勤時間も自転車で、腕力と腹筋、踏み込む力を鍛えている。