
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

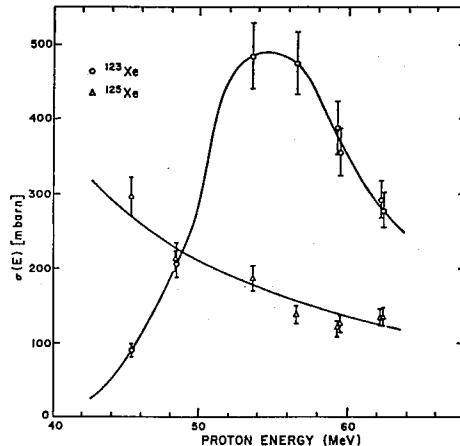
University of California, Davis, California, U.S.A.

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.

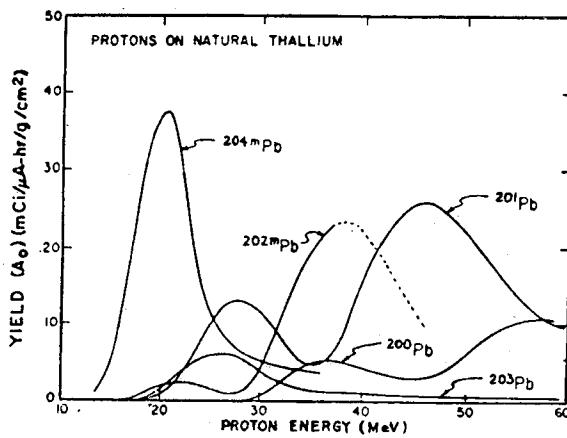
Figure 1 shows the excitation functions for the pertinent nuclear reactions producing ^{123}Xe . Fortunately both ^{124}Xe and ^{126}Xe are stable so that ^{125}Xe is the only contaminant.

The relative level of this contaminant versus proton energy will be discussed. ^{123}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}Pb , ^{202m}Pb , ^{203}Pb and ^{204m}Pb in the natural thallium target. $^{201}\text{Pb}(9.4\text{h}, \text{EC}) \rightarrow ^{201}\text{Tl}$. The thin target yields are shown in figure 2.



Because of production of ^{200}Pb it is necessary to keep the cyclotron energy on target below 29 MeV if one uses the $^{203}\text{Tl}(\text{p},3\text{n})^{201}\text{Pb}$ reaction. Recent measurements at Crocker Nuclear Laboratory show that the $^{205}\text{Tl}(\text{p},5\text{n})^{201}\text{Pb}$ reaction may also be a practical one with greater yield than the $(\text{p},3\text{n})$ reaction if a 99.5% pure ^{205}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}Co is being produced by our laboratory particularly as a label for bleomycin. ^{55}Co is a promising replacement for $^{57}\text{Cobleomycin}$ (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}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 NO_2 will be discussed.

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

特別講演 2 核融合と原子分子過程と放射化学

原研 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デ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フラズマ実験装置で、フラズマ温度の上昇、持続時間の増大および密度の増加とともに、フラズマとその容器の壁などの相互作用の機会が多くなり、また作用するフ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つて黒視できない効果を与える不純物としてフラズマ内に入り込む。これらの不純物はフ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、いままで地球上で実現されなかつたような高温フラズマに入り込むと、高密度の高温電子によつ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、フラズマたちとりまく種々の現象も、もはや水素フラズマだけのものとして取り扱えなくなり、フラズマ-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データが非常に重要なところへくる。さらに将来の核融合炉を目指すフラズマ試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つて、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、核融合フラズマととも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。そしてこれらのおべては従来の核融合や、原子分子の分野ではカバーしきれるものではなく、他の分野たとえば放射化学の立場から見て興味があり、これまらこういう手法で解決できるといふような問題も数多くあると思われるが、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フラズマ-表面相互作用の素過程からはじまって、どのような過程とデータが重要なかについてふれてみる。

2. フラズマ-表面相互作用

2.1 フラズマ-表面相互作用の基礎データの必要性 フラズマ実験装置や、将来の核融合炉ではフラズマから離脱した数 eV から 10^7 eV の種々の粒子が、フラズマをとりまく壁にあたつて、たとえばスパッタリング、ブリスターリング、吸着、脱着、二次粒子放射散乱などの過程を引きおこす。これらのフラズマ-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) フラズマ放電に対する影響：真空壁あるいは、何らかの目的でフラズマと接している表面は、その条件にもよるが、粒子源または吸引、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引である。したがつてフラズマ-壁相互作用は、壁のところで起る種々の過程によるフラズマの境界条件で規定される境界層のフ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フラズマでは少くとも放電時間がフラズマ閉込めの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) 不純物のフラズマへの混入：核融合フラズマでは、水素以外は不純物である。もし

なかい ようだ

て不純物の存在は一般にそれが多面に電離されるゆえに 放射損失を増し、水素ガラスを冷却し、さらに粒子同士の衝突回数も増加する。一方では 逆にこのガラス内の不純物の運動をガラス診断に利用することもある。

(3) 壁の損傷：ガラスマ一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つのガラスマ一壁相互作用の結果ひきあわせる問題を理解し、解説するために各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。一般に粒子一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つか、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 たとえばスペッタリングを例にとっても過去数10年にわたって重イオン一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、学問的興味からスペッタリングの生成率の多いところを問題にしている。そしてガラスマ一壁相互作用で重要な水素一固体表面の場合、keV以下の生成率は低いが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かしあり得られないのが現状である。したがってこれらの粒子一表面相互作用の各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

表1表 当面測定の必要なガラスマー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

2.2 必要な基礎データ

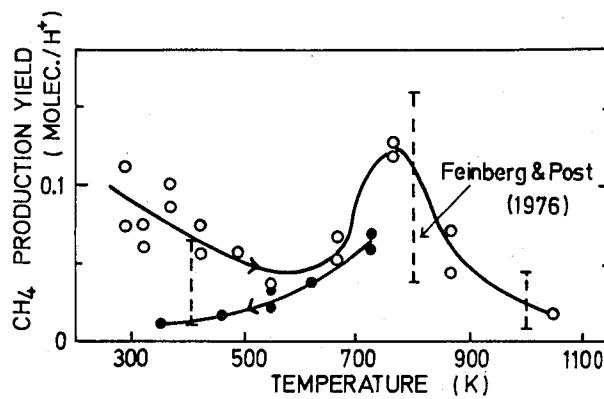
上述の基礎データの必要性については、今まで多くの総説などで論じられており(たとえば文献1), また各々のデータについても核融合の研究開発の進展上どうしても必要なものについて、当面している入達によつて測定が行かれている。

1976年11月英國Culham研究所で開かれたIAEA主催の表1 Advisory Group Meeting on Atomic and Molecular Data for Fusionの表面作用ワーキング・グループの報告書では、Vernickelの総説²⁾をもとにして当面測定の必要な基礎データのリスト。アツカを行つた。これを表1表に示す。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のガラスと接する材料である。

それはか フラズマ - 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“きたりさ”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かが問題であろう。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"³⁾ に出てくる 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、フラズマ - 表面相互作用で、効果の非直線性 (Nonlinear Superposition) が問題にならう。これは核融合フラズマのようす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かる効果が累積して個々の表面現象の一次的を和であらわされるかどうかといふことである。

さらに最近話題にならうとし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⁴⁾を第 1 図に示す。この結果によると、



第 1 図、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
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先のまゝメタンの生成に関与しているとすると、約 50% 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す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はなく、今後の研究にまたねばならない。

3. フラズマ中の不純物に関する原子分子過程

以上のようすにフラズマの不純物の原因にならうとしているフラズマ - 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フラズマに入ったときの挙動についても、たとえばフラズマ診断、中性粒子入射加熱の際の不純物との衝突、フラズマ冷却などについて数多くの問題がある。総論の都合で、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⁵⁾ これらの直ちに解決しなければならぬ課題を列挙しておこう。

3.1 フラズマ診断

フラズマ診断は、フラズマ内の種々の原子分子過程を通して、種々のフラズマ・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フラズマ中に入ると、電子との衝突により多価にイオン化されるが、フ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、発光強度からフラズマ温度、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ノ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 $2 \sim 3 \times 10^7^\circ\text{C}$ 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おうには別の機構によるプラズマの第2段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 の水素原子をプラズマ中に大量にうち込んで加熱する方法で、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。ここで重要な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少しでも含む多種類の原子分子過程すらまち、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らにつけ加わる。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) しきい値附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を計算と測定
- (4) 壁材料表面からの 10° の反射についての計算と測定の継続

3.4 データの収集とレビュー

未知の過程およびそのデータを求めるごとに併行して、核融合に関連した上の種々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)

