

放射線研究に関する雑談, あるいは略して放談

— 第 19 回 : 私が知りたいこと —

アルゴンヌ国立研究所 井 口 道 生

After five decades of study in basic radiation science my understanding remains limited. As illustration I discuss five problems unsolved in my mind: 1. How independent are individual collisions of charged particles penetrating through condensed matter with constituent atoms? 2. Does high-LET radiation produce in matter primary chemical species different from those low-LET radiation produces? 3. How does the quantum yield of ionization of a gas depend temperature and pressure? 4. What kind of measurements will determine the spatial extent of a plasmon in solid? 5 How to design a device that analyzes orbital angular momenta of a beam of particles?

Key words: inelastic collisions as a stationary Markov process, LET, primary chemical species, local energy deposit, quantum yield of ionization, superexcited states, plasmons, excitons

今回は「放談」という駄洒落に則した話題を取り上げる。私が理解できないで困っている、五つの問題を述べることにする。約 50 年に亘って放射線の作用の微視的な過程を専門にしてきた者が、これしきのことが解らないのは恥ずかしいことであるが、それをあえて白状すれば、読者には少しは面白いだろう。しかし本当に期待するのは、読者のどなたかから何か教えて頂ける可能性である。以下に述べる問題の解答があればこの上ないけれども、何らかのヒントでも電子メールでお知らせ

Miscellanea in Radiation Chemistry
Mitio INOKUTI: (Physics Division, Argonne National Laboratory,
9700 South Cass Avenue, Argonne, Illinois 60439-4843, USA)
TEL: 1-630-252-4186
FAX: 1-630-252-3903
E-mail: inokuti@anl.gov

下されば幸いである。

1 物質を通過する荷電粒子の、個々の衝突は互いに独立か

物質を通過する荷電粒子一個が次々に、物質のなかの原子（あるいは分子、一般的には構造単位という）と衝突して、そのうち圧倒的に多くの衝突では粒子から原子へのエネルギー移行が起こる。個々の衝突過程は関与する粒子と原子の種類と運動エネルギーなどの変数に依存する断面積によって決まるとして、多重衝突の結果を論じるのが普通である。その例はいくらでもあって、阻止能、エネルギー損失の揺らぎ(energy straggling)、電離の収率(すなわち W 値)、放射線化学の収率(すなわち G 値)、細い粒子線ビームの物質透過による広がりなどを理論的に扱うとき、もっと一般的にはモンテカルロ法などによって粒子の飛跡を研究するときなどである。言い換えると、個々の衝突は互いに独立であって、時刻に依存しない確率で起こると考える。専門的にはこれを「定常な Markov 過程と仮定する」という¹⁾。この過程がどれほど現実的だろうか。

上に挙げたような多重衝突に関する結果が実験の結果と明らかに大きく食い違っている例は知れていないと思う。したがって定常な Markov 過程の仮定は許されるというのが多数意見であろう。私がこの多数意見に全面的には同意できない理由は次のようなものである。第一に、阻止能、電離の収率、放射線化学の収率などは、断面積のある種の平均で決まる量で、定常な Markov 過程からの外れにあまり敏感ではない。エネルギー損失の揺らぎや収率の揺らぎのほうが敏感であろうと思われるが、揺らぎと平均値の比（一般的な意味での Fano 因子）は Poisson 分布という、一種の限界で 1 になるという事情のためやはり敏感でない²⁾。いずれにしても、この種の測定から定常な Markov 過程からの外れを明確に

結論づけるためには、測定の高い精度が必要であって、今のところ実現されているとは思われない。第二に、定常なMarkov過程からの外れは薄い気体では考えにくいけれども、固体や液体では外れの機構を簡単に想像できる。固体または液体のなかで、透過粒子によってある分子1の電離が起こったとしよう。その次の衝突が起こる相手の分子2が分子1の位置からあまり遠くでないとするれば、今や電離してイオンになっているためのクーロン場が分子2の断面積に影響を与えてよいはずである。専門的にいえば、荷電粒子の平均自由行程が分子間距離に比べて遥かに大きくはない場合は、荷電粒子の減速のうちどこかで実現するであろう。さらに放射線が強くて物質のなかにイオンと電子が高い密度で生成している場合、あるいは物質になかに強い電磁場がある場合には、個々の衝突は互いに独立であるとはいえないだろう。互いに独立でない衝突過程を選択的に観測する実験をすることが望ましい。しかし具体的にどんな実験をしたらよいかわからないので、正式な提案はできない。

2 高いLETの放射線では、低いLETのときとどれだけ違う初期分子種ができるのか

放射線粒子の種類や運動エネルギーによって、放射線作用が異なることは多くの例で観測されている。もっと詳しくいえば、同じ物質に同じ吸収線量を与える、別の放射線によって生じる特定の生成物の量が異なることは多い。これは物理的あるいは化学的な作用でもみられるが、生物学的な作用ではしばしば顕著である。例えば、X線と重い荷電粒子の生物学的作用の違いは、重い荷電粒子をガンの治療に用いる根拠になっている。放射線の種類によって、作用の様子が違うことを、線質効果(radiation-quality effect)と呼ぶことが多い。「線質」というのは、意味が曖昧で、一般物理の術語ではなくて、放射線科学だけで通じる専門用語である。もう少し具体的な表現はLET効果である。LET(linear energy transfer)もまた放射線科学の専門用語であるが、「粒子の飛跡の単位長さ当たりに物質に付与されるエネルギー(を繰り返し計ったときの平均値)」と一応は説明できる³⁾。しかし「物質に付与されるエネルギー」は曖昧な概念で、実際に測定できそうもない。これに対比して、阻止能は「粒子の飛跡の単位長さ当たり粒子が失う運動エネルギー(を繰り返し計ったときの平均値)」として明確に定義される。LETの値は「物質に付与され

るエネルギー」をどのように定義するかによるが、同じ粒子に対する同じ物質の阻止能よりも少し小さい。

LET効果というときには、暗黙の仮定がある。放射線の作用は物質による吸収エネルギーによって決まるという仮定である。これは巨視的な(すなわち極めて多くの分子を含む)物体による、比較的簡単な物理的性質の変化(例えば、発生する電離や格子欠陥の総数)についてある精度の範囲で認められる経験的な事実である。これを理論的に明確に導くのは実は易しくない⁴⁾。放射線の通過によって起こる作用を微視的に論じるにあたって、物質の微小な領域に付与されるエネルギーに対応して物質の微小な変化が起こり、その集積が観測されると考えるのが、microdosimetry⁵⁾の立場である。しかし、もっと徹底的に分子レベルに立ち入って論じることにすれば、放射線の通過によって直ちに生じる生成する分子種、例えばイオン、ラジカル、励起分子に注目しなければならない。このような分子種の種類とそれぞれの生成の頻度は、LETが異なっても変わらないという仮定である。言い換えれば、種類や運動エネルギーの異なる放射線は、同じ種類の分子種を同じ割合で発生させる。違いは分子種の空間的な分布だけであると仮定している。

私が知っている、衝突断面積などの基礎的な知識から考えてみると、この仮定は一つの近似である。そして荷電粒子の衝突によってある分子種が生成される断面積が、同じ分子の、例えばイオン化の断面積と類似のエネルギー依存性をもつときならば、かなり良い近似になるはずである。専門的にいうと、その分子種が双極子遷移の結果生成される場合は、断面積のエネルギー依存性はイオン化の断面積とよく似ている。言い換えれば、この二つの断面積の比がエネルギーに強くは依らないで、ほぼ定数になっている。(この場合に生成の頻度が吸収されるエネルギーとほぼ比例することをみるには、混合物の各成分から生じる分子種の生成の頻度⁶⁾を論じるときと同じような論法を使えばよい。)逆に、ある分子種の生成の断面積がイオン化の断面積とは大いに違うエネルギー依存性をもつ場合は、その生成の頻度も空間分布もLETの違う放射線に対して多に異なるはずである。そのような例としては、その分子種の生成が光学的に禁止された遷移で起こる場合、あるいは元の分子のなかの原子の深い内殻の励起による場合などが考えられる。

現在実行できそうな実験としては、LETが阻止能と同じように荷電粒子の運動エネルギーの関数として、顕著な最大をもっているという周知の事実を利用するとよ

い。すなわち同じ LET を与えるエネルギーの値は最大を挿んで二つある。この二つの場合の初期生成物の化学種を詳細に測って比べれば何かが解りそうである。ただし、この二つの場合に初期生成物の空間的な分布も違うので、結果の解釈にはこれも考慮しなければならない。

3 気体の分子の電離の量子収率は温度と圧力にどのように依存するのか

分子の高い励起状態のうちには、かなり長い時間にわたって準安定であって、自動電離(autoionization)、中性化学種への分解、内部変換、あるいは蛍光などの過程で緩和するものがある。Platzman^{7,8)}が超励起状態(superexcited states)と呼んで、研究の対象としての意義を説いて以来 40 年以上たった今、篠野と Berkowitz を代表とする多くの研究者がこれに応えた結果、これに関するデータが集積した⁹⁻¹¹⁾。

このデータのうちに、最も広範でしかも比較的理解しやすいのは、光の吸収における電離の量子効率である。すなわち一定のエネルギーの光子を吸収した分子がイオン化する(分子から少なくとも一個の電子が放出される)確率である。電離の量子効率の知識から、中性化学種への分解や蛍光などの競合する緩和過程のことや、超励起状態の電子構造などについて貴重な知見と洞察がえられている。

ではこれ以上何を望むのかという方もあろう。電離の量子効率が気体の温度と圧力にどう依存するかを研究することが今や望ましいと、私は考える。まず温度の影響は、気体分子が電子的な基底状態にあるとして、回転か、振動か、あるいはその両方の励起状態が混じっているとして、光吸収による遷移確率が回転と振動の量子数に依存するとして解釈できるはずである。レーザー分光の技術を駆使して、気体分子の始状態を詳しく指定して遷移確率を測れば申し分ない。ずっと間接的ではあるけれども、気体の W 値への温度の影響¹²⁾を観測するだけでも面白い。電離の量子効率への温度の影響を詳しく観測すれば貴重な知見が得られるはずなのに、これに関する報告をみたことがない。

圧力の影響は、微視的にいえば気体分子同士の熱衝突の結果であると解釈できる。従来の電離の量子効率の測定の大多数は、おそらく密度がゼロの極限に相当しているであろう。密度を少しずつ上げて、量子効率がどのように変わるかをみると、大いに面白いであろう。密度を

高くしておけば、最終的には凝縮相に近づくであろう。その経緯がどのようなになるか、想像力の貧困な私には見当がつかない。

4 固体のプラズモンの空間的な広がりを決めるには、どのような測定をすればよいか

例えば、金属アルミニウムの電子エネルギー損失スペクトルには、15 eV に顕著な最大がみられ、これはプラズマ振動の量子、すなわちプラズモン(plasmon)の励起によると理解されている。この考えの創始者である Bohm と Pines 以来の理論¹³⁻¹⁵⁾をみると、プラズマ振動は「結晶全体にわたる伝導電子が同じ位相でほぼ調和的に振動する」ことであると説明されている。そこで使われている数式を素朴にみれば、プラズマ振動は「巨視的な結晶全体の大きさに広がっている」と解釈できる。これは文字通り本当であろうか。

物理としてもっと納得しやすい表現は「結晶の原子間距離に比べてはるかに大きな距離まで広がっている」ということであろう。しかし、その広がり、nm の程度であろうか、 μm の程度であろうか、あるいは cm の程度にも達するであろうか。私が調べた限りでは、この疑問にはっきり答えている文献はおろか、この疑問を取りあげている文献さえみつからない。プラズマ振動の空間的な広がりを理論的に論じることはできると思うけれども、今のところはどのような前提をとるかについて任意性があまりにも大きいので、私には面白くない。どのような実験あるいは測定をすれば、良い手がかりが得られるかを知りたいと思う。

別の種類の集団励起の様式(mode)、あるいはその量子である準粒子(quasiparticle)についても、私は同じような関心をもっている。まずは、励起子(exciton)である。イオン結晶や分子結晶のなかに生じる励起子は長年にわたって研究されているけれども、その空間的な大きさはどの程度であろうか。これについてはわずかな手がかりがある。もし励起子による、エネルギー E の光の吸収断面積 $\sigma(E)$ が、他の機構による光吸収の断面積とほとんど重なってなくて、ほぼ全域について測定できたとする。その結果を用いて二つの積分の比、すなわち $\int E^1(E) \sigma(E) dE / \int \sigma(E) dE$ を計算すれば、Vinti の総和則によって、励起子の空間的な広がり半径の二乗の平均を求めることができる^{16,17)}。この方法は、色中心¹⁸⁾、溶媒和電子¹⁹⁾などに適用されている。(残念ながら、プラ

ズモンは光の吸収で励起されないので、この手は使えない。))

放射線科学からはやや遠い話題であるが、超伝導状態は一般にクーパー対(Cooper pair)によって出現すると理解されている。クーパー対とは、フェルミ面の上の2個の電子(一般にはフェルミ粒子)で適当な運動量をもつものがつくる束縛状態であり、これによって全エネルギーが低くなって超伝導状態ができるという。理論は運動量の固有状態を用いてクーパー対を表しているので、クーパー対の空間的な広がり(原子間距離よりはるかに大きい)と解釈できる。この広がりを決めるにはどんな実験をしたらよいのだろうか。

5 二体の原子衝突の実験で、個々の衝突について軌道角運動量を決める装置はどのように設計すれば良いか

最後は、衝突の物理の基礎に関する疑問である。2個の希ガスの原子の低エネルギーでの衝突など、球対称のポテンシャルの場によるスピンゼロの粒子の弾性散乱を考える。この問題では、全エネルギーおよび軌道角運動量(以下「角運動量」と略記する)が運動の定数であることは周知である。古典力学の範囲では、全エネルギーとともに衝突の係数を選んで散乱角を測ることを繰り返せば、ポテンシャルを決めることができ、体系に関するすべての情報が得られる。量子論では、衝突の係数を確定することはできない。運動量が確定したビームを散乱させて、散乱の微分断面積を測ることは少なくとも原理的に可能である。しかしこの実験では、角運動量が運動の定数であるという、せっかく我々がもっている知識を利用していない。散乱の微分断面積は、周知の部分波展開、つまり決まった角運動量の波の重ね合わせで表した振幅の絶対値の二乗で表される。決まった角運動量の波の散乱の様子は実は位相差という実数のスカラー量という、極めて簡単なもので示すことができるけれども、微分断面積のデータから位相差を求める数値解析は簡単でない。

もし角運動量分析計と呼べるものがあって、角運動量の決まった波を準備し、これを散乱させて、散乱のあとでの位相差を測ってしまえば、すべては簡単明瞭である。あるいは決まった運動量の、弱いビームを散乱させたのち、角運動量分析計をつかって、どのような角運動量の波の重ね合わせであったかをみても良い。どのようにし

て角運動量分析計を設計できるのか、私には見当がつかない。同時に、角運動量分析計は原理的に不可能であるという理由も思いつかない。もしかすると、宇宙のどこか我々とは違う惑星に住む、もっと進んだ科学者は、角運動量分析計を使いこなしているのではないかと思う。

文 献

- 1) M. Inokuti, *Int. J. Quantum Chem.* **56**, 173 (1996).
- 2) M. Kimura, M. Inokuti, and M. A. Dillon, in *Advances in Chemical Physics*, Vol. 84, edited by I. Prigogine and S. A. Rice, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1993, p. 193.
- 3) International Commission on Radiation Units and Measurements, *Linear Energy Transfer*, ICRU Report 16, International Commission on Radiation Units and Measurement, Bethesda, MD, 1970.
- 4) M. Inokuti and S. M. Seltzer, *Radiat. Res.* **158**, 3 (2002).
- 5) International Commission on Radiation Units and Measurements, *Microdosimetry*, ICRU Report 36, International Commission on Radiation Units and Measurement, Bethesda, MD, 1983.
- 6) M. Inokuti and E. Eggarter, *J. Chem. Phys.* **86**, 3870 (1987).
- 7) R. L. Platzman, *Radiat. Res.* **17**, 419 (1962).
- 8) R. L. Platzman, in *Radiation Research. Proceedings of the Third International Congress of Radiation Research, Cortina d'Ampezzo, Italy, June-July 1966*, edited by G. Silini, North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1967, p. 20.
- 9) Y. Hatano, *Phys. Rep.* **313**, 110 (1999).
- 10) J. Berkowitz, *Atomic and Molecular Photoionization. Absolute Total Cross Sections*, Academic Press, San Diego, 2002.
- 11) K. Kameta, N. Kouchi, and Y. Hatano, in *Landolt-Börnstein. New Series Volume I/17C, Photon and Electron Interactions with Atoms, Molecules and Ions -Photon- and electron interactions with molecules-Ionization and dissociation*, edited by Y. Itikawa, Springer-Verlag, Berlin, 2003, 4-1, Chapter 4.
- 12) P. Bristeau, *Compt. Rend.* **258**, 1760 (1963).

- 13) D. Bohm and D. Pines, Phys. Rev. **82**, 625 (1951).
14) D. Bohm and D. Pines, Phys. Rev. **85**, 338 (1952).
15) D. Bohm and D. Pines, Phys. Rev. **92**, 609 (1953).
16) D. Y. Smith and D. L. Dexter, in *Progress in Optics, Vol 10*, edited by E. Wolf, North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1972, p. 35.
17) D. Y. Smith and M. S. Malghani, Nucl. Inst. Meth. B **141**, 42 (1998).
18) D. Y. Smith and M. Inokuti, Radiat. Effects Defects Solids **155**, 43 (2001).
19) V. Herrmann and P. Krebs, J. Phys. Chem. A **99**, 6794 (1995).

<著者の略歴>1962年, 東京大学大学院で工学博士(応用物理)。1962~3年, Northwestern Universityで短期研究員。1963年以来, Argonne National Laboratoryで研究員。1985年以来, International Commission on Radiation Units and Measurements (ICRU)の委員。1996年以来, Journal of Applied Physicsの副編集長, 専門は原子, 分子物理と放射線物理。