

# ANALYSIS OF IONIZATION EFFICIENCY AND RESIDUAL GAS SPECTRUM FOR ECRIS

Satoru Hojo<sup>A)</sup>, Toshihiro Honma<sup>A)</sup>, Yukio Sakamoto<sup>A)</sup>, Masayuki Muramatsu<sup>A)</sup>,  
Toshiyuki Hattori<sup>B)</sup>, Satoru Yamada<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup>National Institute of Radiological Sciences, 4-9-1, Anagawa, Inage-ku, Chiba 263-8555, JAPAN

<sup>B)</sup>Tokyo Institute of Technology, 2-12-1 Ohokayama, Meguro, Tokyo 152-8550, JAPAN

## Abstract

A technical realization for a positron emitter  $^{11}\text{C}$ -beam (R.I.) as an accelerating-beam has been studied at NIRS-HIMAC in order to apply for a heavy-ion therapy. In connection with this study, ionization efficiency of  $\text{CO}_2$ -gas, and  $\text{CH}_4$ -gas in the ECR type of ion source is a serious question. In the process of ionization,  $\text{C}^{2+}$  ion beam is focused on producing in the ECR, that is expected to be a highly intensity compared with other charge states of the ions. In our test result, at this point, the ionization efficiency was about 1% or more for  $^{12}\text{C}^{2+}$  beam extracted from the ECR. In order to obtain more high efficiency residual gas spectrum has been measured and analyzed. The results show that more increase the microwave power and more decrease the gas flow-rate. Details of the study are presented.

## ECR イオン源におけるビーム生成率及び真空排気ガスの分析

### 1. はじめに

放射線医学総合研究所では、重粒子線（主に炭素線： $^{12}\text{C}$ ビーム）によるがん治療を行っている。一方、治療の高精度化に関する研究も同時に行われて来ている。その中の一つが放射線同位元素（RI）を直接照射ビームとして用いる新しい照射法の開発研究である。この照射法の特徴はPETイメージングを併用できることである。

一般にRIビームを発生させるためには「標的核破砕法」及び「入射核破砕法」の2つの方法がある。現在放医研では後者の方法、即ちHIMACで加速された高エネルギーの $^{12}\text{C}^{6+}$ ビームを標的板に照射することによって生成される高エネルギーの $^{11}\text{C}^{6+}$ ビームを用いて治療を行うという研究が進められている。しかしこの方法では、入射ビームに対する2次ビームとしての $^{12}\text{C}^{6+}$ の生成効率が低いこと、及び、ビームの空間的な広がりやエネルギーの広がりが大きくなり、結果的には治療ビームとして利用できる線量が得られないと言う難点がある。

そこで、現在用いられている $^{11}\text{C}$ 製造・回収技術を応用し、HIMAC(Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba)からの $^{11}\text{C}$ -beamを重粒子線治療に用いる「標的核破砕法」の検討を行っている[1],[2]。

$^{11}\text{C}$ のように生成量の限られたガスをイオン化し加速する場合、イオン源でのビーム生成率が最も重要な課題となる。我々は、このビーム生成率を既存のECRイオン源を用いて10%以上を目標にしている。この場合、 $\text{C}^{2+}$ の方が $\text{C}^{4+}$ よりもビーム生成率が高いことが予想されるため、前者について注目しテストを行っている。

$^{11}\text{C}$ 製造過程において、 $^{14}\text{N}$  ( $p,\alpha$ )反応により生成される $^{11}\text{C}$ は、一般的に $^{11}\text{CO}_2$ ガスや $^{11}\text{CH}_4$ ガスとなり、ターゲットより取り出される。そのため、 $\text{CO}_2$ ガス

と $\text{CH}_4$ ガスを用いてビーム生成率の測定を行なった。

### 2. 測定方法

今回測定に用いたECRイオン源:Kei-source<sup>[3]</sup>は、AVF930 サイクロトロン of 垂直入射系に設置されている。イオン源の真空排気は、1000 L/secのターボ分子ポンプで行なっており、さらにその背圧を50 L/secのターボ分子ポンプで排気している。その間にQ-Mass測定器(ANELVA製 M-200QA-F)が設置されている。

ビーム生成率は、ガス流量とイオン源から引出・分析されたビーム電流値より求める。ガス流量の制御は、最大設定値 1 atm・cc/minのマスフローコントローラにより行なっている。しかし、 $\text{CO}_2$ ガスでの調整において、ガス流量設定を制御可能範囲以下まで低下させており、精度不足となってしまう。そのため、 $\text{CO}_2$ ガス流量を求める為に、真空排気されるガス成分の分析を行い、 $\text{CO}_2$ ガス流量を以下のように真空度の変化と真空ポンプの排気速度より算出した。

$$Q = \Delta P_{\text{CO}_2} \times S \times 60.78 \dots \textcircled{1}$$

$Q$ :  $\text{CO}_2$ ガス流量[atm・cc/min]

$\Delta P_{\text{CO}_2}$  [Pa] =  $\Delta P \times \text{CO}_2$ 分圧比

$\Delta P$ : ガス供給バルブ開閉による全圧真空度変化量

$S$ : 真空排気速度[L/sec]

これにより得られた $\text{CO}_2$ ガス流量と、イオン源から引出・分析された後のビーム電流値の比較により、ビーム生成率を算出した。

また、Hi-ECR<sup>[4]</sup>においても同様に、 $\text{CH}_4$ ガスを用いてビーム生成率の測定を行った。

さらに、Kei-source において供給したガスがどのような真空排気されているのか、マイクロ波を

ON/OFF したときの被排気ガス成分の変化を測定した。

### 3. ビーム生成率の測定

#### 3.1 CH<sub>4</sub>ガス供給時のKei-sourceでの測定

まず、Kei-source においてCH<sub>4</sub>ガスでの測定を行った。ガス供給量は、マスフローコントローラの設定値で 0.07 atm・cc/min であった。この時の各価数におけるビームカレントと、そこから算出したビーム生成率を表 1 に示す。C<sup>2+</sup>では、1%程度で、C<sup>4+</sup>では1%弱と低い値であった。

表 1. CH<sub>4</sub>ガス供給時のビーム電流値・生成率  
(Gas 供給量 0.07atm・cc/min)

Beam	Current [eμA]	Particle [pps]	ビーム生成率 [%]
C <sup>5+</sup>	27	3.38E+13	0.1%
C <sup>4+</sup>	170	2.66E+14	0.8%
C <sup>3+</sup> &O <sup>4+</sup>	253	5.27E+14	(1.7%)
C <sup>2+</sup>	107	3.34E+14	1.1%
C <sup>+</sup>	55	3.44E+14	1.1%
計	612	1.50E+15	4.8%

CO<sub>2</sub>ガスを供給しての調整では、前述のように、マスフローコントローラの設定範囲外となってしまうため、①式を用いてガス供給量を算出した。

真空度の変化 ΔP が 1.56 × 10<sup>-3</sup> Pa、CO<sub>2</sub>分圧比は 0.794 であった。これより、供給されているCO<sub>2</sub>ガス流量は 0.037 atm・cc/min となった。

また、その時の各価数のビーム電流値と、算出したビーム生成率をそれぞれ表 2 に示す。C<sup>3+</sup>では、O<sup>4+</sup>とビームスペクトルのピークが重なってしまうため、合わせたビーム電流値である。C<sup>2+</sup>のビーム生成率は 1.1% であった。また、C<sup>4+</sup>では 0.2% 程度と非常に低い効率であった。

表 2. CO<sub>2</sub>ガス供給時のビーム電流値・生成率  
(Gas 供給量 0.037atm・cc/min)

Beam	Current [eμA]	Particle [pps]	ビーム生成率 [%]
C <sup>5+</sup>	1	1.25E+12	0.01%
C <sup>4+</sup>	19	2.97E+13	0.17%
C <sup>3+</sup> &O <sup>4+</sup>	84	1.75E+14	1.01%
C <sup>2+</sup>	61	1.91E+14	1.10%
C <sup>+</sup>	62	3.88E+14	2.24%
計	227	7.85E+14	4.54%

また、Hi-ECR において、CH<sub>4</sub>ガスでの測定を

行った。ガス供給には、マスフローコントローラの設定値で 0.007 atm・cc/min であった。その結果を表 3 に示す。ビーム生成率としては、3% にちかい値を得ることができた。

表 3. Hi-ECR におけるビーム電流値・生成率  
(CH<sub>4</sub> Gas 供給量 0.007atm・cc/min)

BEAM	Current [eμA]	Particle [pps]	ビーム生成率 [%]
C <sup>5+</sup>	3.2	4.00E+12	0.12
C <sup>4+</sup>	25.6	4.00E+13	1.22
C <sup>3+</sup> &O <sup>4+</sup>	(89.5)	(1.865E+14)	(5.68%)
C <sup>2+</sup>	29.8	9.31E+13	2.84
C <sup>+</sup>	23.4	1.46E+14	4.46
計	171.5	4.70E+14	14.32

各条件における、ビーム生成率を比較する(表 4)。CO<sub>2</sub>に比べ、CH<sub>4</sub>の方が多価の生成率が高い事が分かる。また、Hi-ECR では、Kei-source と比べてガス流量が少なく、C<sup>2+</sup>の効率として 3 倍程度の高い値を得ている。

表 4. 炭素ビーム生成率の比較

Beam	NIRS Kei-source		Hi-ECR
	CH <sub>4</sub> 0.70cc/min	CO <sub>2</sub> 0.36cc/min	CH <sub>4</sub> 0.007cc/min
C <sup>5+</sup>	0.11%	0.01%	0.12%
C <sup>4+</sup>	0.85%	0.17%	1.22%
C <sup>3+</sup> &O <sup>4+</sup>	(1.68%)	(1.01%)	(5.68%)
C <sup>2+</sup>	1.07%	1.10%	2.84%
C <sup>+</sup>	1.10%	2.24%	4.46%
計	4.81%	4.54%	4.54%

#### 3.2 真空排気ガスの分析

供給した炭素がどのように真空排気されているのかを調査し、ビーム生成率を向上させるため、Kei-source においてマイクロ波の ON/OFF での真空排気されるガス成分の測定をおこなった。

まず、CH<sub>4</sub>ガスを供給して測定を行った(図 1)。マイクロ波を ON して、プラズマが安定に発生している状態から、測定を開始した。この状態では、供給しているCH<sub>4</sub>は殆ど真空排気されておらず、H<sub>2</sub>とCOガスが多く排気されていた。

マイクロ波を OFF にし、プラズマが途絶えると供給しているCH<sub>4</sub>ガスが排気され、H<sub>2</sub>とCO及びCO<sub>2</sub>ガスの排気が無くなっていった。

更に、CH<sub>4</sub>ガスの供給を止めると、CH<sub>4</sub>の排気は

無くなり、H<sub>2</sub>Oのみが排気されていた。

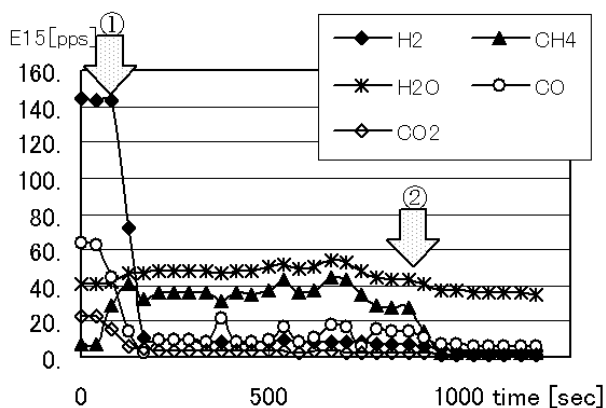


図 1. CH<sub>4</sub>プラズマにおける真空排気ガスの変化

- ① Microwave off
- ② CH<sub>4</sub> gas flow stop

ここで、各分子の結合解離エネルギーを表5に示す。Cと他の原子の結合解離エネルギーを比較すると、CH系からHが解離するのに必要なエネルギーよりも、CとOの解離エネルギーが非常に高い事が分かる。この事から、イオン源へ供給されたCH<sub>4</sub>ガスはプラズマにより分解され、H原子はH<sub>2</sub>ガスとして排気される。一方、C原子はH<sub>2</sub>Oが分解されて生じたOと再結合し、イオン化される事なくCOガスとして真空排気されていると考えられる。

表 5.	結合解離エネルギー <sup>[5]</sup>			[kJ/mol]
CO	→	C + O		1071.8
CO <sub>2</sub>	→	CO + O		526.1
CH <sub>4</sub>	→	CH <sub>3</sub> + H		431.8
CH <sub>3</sub>	→	CH <sub>2</sub> + H		457.0
CH <sub>2</sub>	→	CH + H		419.0
CH	→	C + H		334.7
H <sub>2</sub> O	→	OH + H		493.4
OH	→	O + H		424.4

次に、Kei-sourceにCO<sub>2</sub>ガスを供給し、プラズマを発生させた場合に真空排気されるガス成分の変化を測定した(図2)。

マイクロ波をONした時は、CH<sub>4</sub>ガスの場合と同様に、COガスとして多く真空排気されていた。また、CH<sub>4</sub>ガスの場合と違って、イオン化されずにCO<sub>2</sub>ガスのまま、真空排気されているものも多くみられた。これは、マイクロ波のパワーに対して、ガス供給量が多すぎである為と考えられる。

CH<sub>4</sub>・CO<sub>2</sub>ガス共に、供給した炭素において、その多くがCOガスとして排気されていた。その結果から、供給している炭素を効率よくイオン化するためには、真空中の残留ガスから、炭素との結合エネ

ルギーの高い酸素を除去する事が非常に重要であると言える。また、更に供給量を減少させ、効率を上げることも重要である。

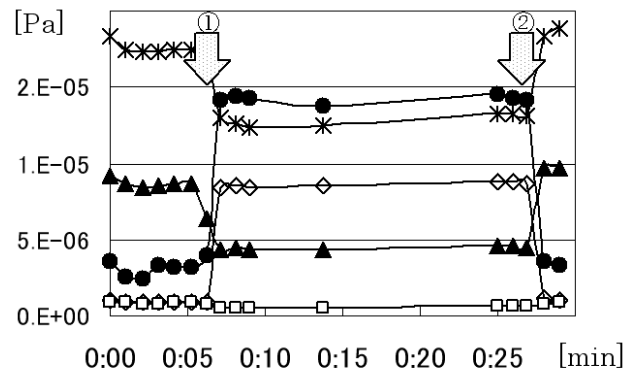


図 2. CO<sub>2</sub>プラズマにおける真空排気ガスの変化

- ① Microwave ON
  - ② Microwave OFF
- (CO<sub>2</sub> Gas 供給量 0.037atm・cc/min)

#### 4. まとめ

今回のKei-sourceにおけるCH<sub>4</sub>・CO<sub>2</sub>ガスからの炭素のイオン化効率は、C<sup>2+</sup>では、約1%であった。

Hi-ECR では 2.8%であり、この差はガスの供給量の違いによるものと考えられる。

また、Kei-source における排気されたガスの成分測定の結果、各ガスにより供給された炭素の多くは、CO となり真空排気されていた。この酸素は、水が解離されて出来たものであると考えられる。

このことから、Kei-source において更にビーム生成率を向上させるためには、ガス流量のさらなる微少設定を行い、真空中に残留する水への対策が必要である事がわかった。

#### 参考文献：

- [1] T.Honma et al., Proceedings of ARTA 2004
- [2] S.Hojo et al., ECAART-8, Paris, 2004. NIM B 240 (2005) 75-78
- [3] M.Muramatsu et al., Proceedings of the 10<sup>th</sup> International Workshop on ECRIS,2002, p59
- [4] T.Hattori et al., Proceedings of the 11<sup>th</sup> International Workshop on ECRIS,1993, p182
- [5] 日本化学会編 化学便覧