

平成 21 年 6 月 1 日現在

研究種目： 若手研究 (B)
 研究期間： 2007～2008
 課題番号： 19760609
 研究課題名 (和文) RI 内包フラーレン製造のためのイオン注入装置の開発
 研究課題名 (英文) Development of ion implantation system for production of RI endohedral fullerenes
 研究代表者
 片渕 竜也 (KATABUCHI TATSUYA)
 東京工業大学・原子炉工学研究所・助教
 研究者番号： 40312798

研究成果の概要：

RI 内包フラーレン製造のためのイオン注入装置の設計・開発を行った。開発したイオン注入装置を用いて、希ガス内包フラーレンの生成実験を行った。実験で得られた試料を PIXE (荷電粒子励起 X 線放出) 法による分析を行い、希ガス内包フラーレンの生成を確認した。生成量は、従来のイオン注入法により得られている値を大幅に上回っており、本研究により開発されたイオン注入装置が高効率で内包フラーレンを生成できることが分かった。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,800,000	0	1,800,000
2008年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,300,000	150,000	2,450,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：内包フラーレン、イオン注入

1. 研究開始当初の背景

C₆₀ をはじめとする炭素フラーレンはその発見以来、基礎・応用の両面からさまざまな研究がなされてきた。特に異種元素をそのかご構造の中に内包した「内包フラーレン」は、多くの研究者の関心を集めてきた。

本研究では内包フラーレンの将来的な応用として、放射性同位元素 (RI) 内包フラーレンの医学応用を念頭においている。現在、RI を用いたがんの診断・治療の研究が強く進められている。そこでは腫瘍に集積する性質を持つモノクローナル抗体などのがん親和基に RI を結合させた RI 標識薬剤を体内に投

与し、RI からの放射線を用いてがんの診断または治療を行う。これら標識薬剤の構造はがん親和基と RI をキレート化合物などで結合させた形をとっている。近年、新しい発想の RI 標識薬剤として RI 内包フラーレンを用いることが提案されている。そのアイデアはがん親和基と RI 内包フラーレンを結合させることにより、RI を腫瘍に集積させるというものである。

内包フラーレンを利用する利点は、多種類の RI に適用できることである。RI をフラーレンに内包することさえできれば RI の元素の種類はそれほど気にする必要がない。上述

した通常の RI 標識薬剤は RI の元素の種類に応じて RI とがん親和基を橋渡しする化合物を工夫する必要がある。また、化学的に不活性な希ガスはがん親和基と結合させることができない。一方、フラーレンを使用する場合には、フラーレンががん親和基と結合し、RI はフラーレンに内包されているだけで、RI とがん親和基は化学的に直接結合してはいない。そのため、フラーレンとがん親和基の結合部分は変えずに多くの種類の RI を使用することが可能である。また、フラーレンは希ガスを含め多種類の元素を安定に内包することが報告されている。

このように内包フラーレンを用いることで非常に興味深い医学応用が展開できると考えられるが、現在、RI 内包フラーレン生成の困難さが、アイデアを現実化する障害となっている。RI は物質量が極端に少ない (10^{-12} ~ 10^{-9} モル程度) ことがその原因である。例えば、非放射性的希ガス内包フラーレンを生成する場合、現在報告されている最も効率の良い方法はフラーレンと希ガスを封入した容器を高圧・高圧で圧縮するというものである。しかし、このような方法ではかなりの量のガスが必要であり、RI を内包させる方法としては適していない。このような物質量の少ない RI をフラーレンに内包させるにはイオン注入法が適していると考えられる。イオン注入法では低い圧力でガスを放電させイオン化してフラーレンに注入するので必要な物質量は格段に少なくすむ。

一方で今まで行われてきたイオン注入法による内包フラーレンの生成は、内包フラーレン生成量はかなり低く、医学応用に必要な生成量を得ることはできていない。生成量が低くなった原因は注入エネルギーが高すぎたためイオンがフラーレンを破壊する過程がフラーレンに内包される過程を極端に上回ったことにある。過去のイオンとフラーレンの衝突実験からイオンが内包されるのに必要なエネルギーは 100eV もあれば十分であることが分かっている。また、エネルギーを下げれば、イオンによるフラーレンの破壊も低減できる。そこで本研究では 1keV 以下という低いエネルギーで希ガスイオンをフラーレンに注入する新しい装置を開発する。

2. 研究の目的

内包フラーレンを生成するためのイオン注入装置を開発する。内包フラーレン生成量を向上させるために 1keV 以下の低エネルギーのイオン注入が可能となるよう設計する。内包フラーレン生成実験および分析を行い、イオン注入装置の性能評価を行う。

3. 研究の方法

東京工業大学・原子炉工学研究所において

イオン注入装置を設計・開発する。イオン注入装置としては、PIG (Penning Ionization Gage) 放電を利用した冷陰極型のイオン源を選択した。PIG 放電とは円筒状の陽極の両端に陰極を配置し、数百 V の電圧を印加して、軸方向に磁場をかけたときに起こる放電である。陰極から放出された電子は磁力線に巻きつきながら、陰極間で反射されプラズマ室内に閉じ込められる。このプラズマ室内を往復する電子との衝突によってガスはイオン化される。この冷陰極型の PIG イオン源は装置をコンパクトに設計することが可能であり、少物質量のガスをイオン化するという目的に向いている。

本研究では、この開発したイオン注入装置により、非放射性的希ガスを用いて、内包フラーレン生成実験を行う。内包フラーレンの生成量は、PIXE (荷電粒子励起 X 線放出) 法による元素分析により導出する。ここで、PIXE 分析は元素分析であるため、内包フラーレンの構造を知ることはできない。したがって、次の 2 つの仮定をおくことで、希ガス原子の PIXE 法による検出が、すなわち内包フラーレンの生成の証拠とした。すなわち(1)希ガスは不活性であるため、フラーレンに内包される以外には化合物を作らない、(2)希ガスは不純物として、固体内には混入しない、という仮定である。これらの仮定は希ガス原子の性質から考えて、妥当なものである。

4. 研究成果

希ガスイオンを 1keV 以下でイオン注入することができるイオン注入装置を設計・開発した。図 1 に開発したイオン注入装置の写真を示す。また、図 2 にイオン生成部の断面図を示す。イオン生成部は冷陰極型の PIG 放電によるものとした。イオン生成部に与える磁場は、電磁石ではなく、リング型の永久磁石を選択することでコンパクトな構造が達成できた。イオン注入装置はターボ分子ポンプ

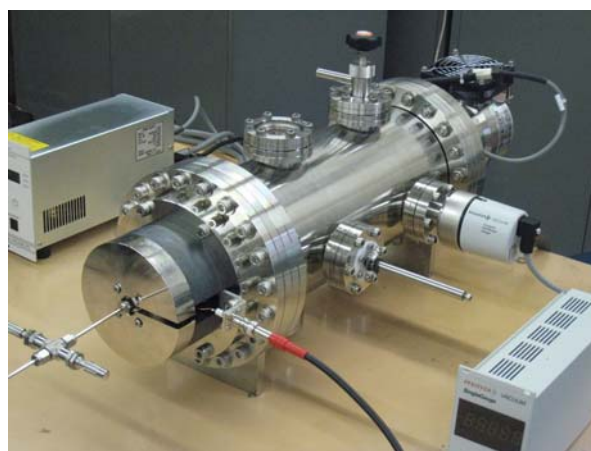


図 1 開発したイオン注入装置

により真空排気を行った。イオン生成部への微量なガスの供給はマスフローコントローラを用いることで達成することができた。

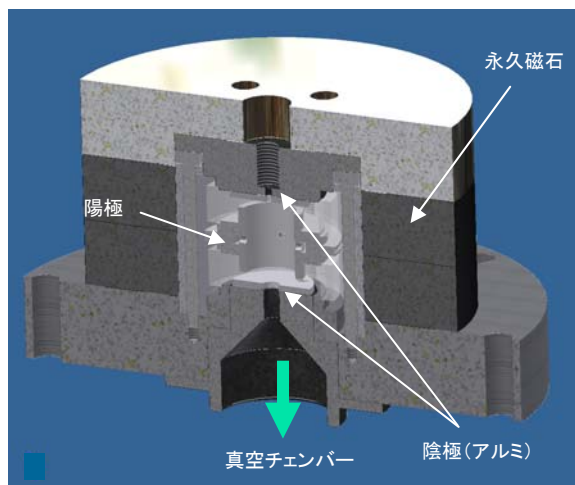


図2 開発したイオン注入装置のイオン生成部の断面図

開発したイオン注入装置を用いて内包フラーレン生成実験を行った。実験では、Kr イオンを C₆₀ 薄膜にイオン注入した。C₆₀ 薄膜はアルミ基板上に真空蒸着により形成し、このアルミ基板をイオン注入装置の陰極部に直接取り付け付けた。イオン生成部で発生したイオンは陰極面をたたくので、イオン生成部内で Kr イオンが C₆₀ 薄膜にイオン注入される。イオンをイオン生成部から外に引き出してイオン注入するのではなく、イオン生成部内でイオン注入を行うことで、高いイオン電流(数 mA)でイオン注入が可能となり、生成効率が向上する。このとき、イオンの注入エネルギーは陽極-陰極の印加電圧と等しくなる。実験では印加電圧を 800V とし、数時間程度のイオン注入を行った。

照射後の試料はフラーレンの溶媒であるトルエンにより洗浄し、C₆₀ を溶解した。溶液はフィルターを通して、不溶物を取り除いた。その後、カプトンフィルムを成型して作った皿の上に溶液を滴下・乾固し、PIXE 分析用の試料とした。カプトンは PIXE 分析で検出されない炭素、窒素といった軽元素で構成されているため、試料基板材料として選択した。

PIXE 分析は東京工業大学・原子炉工学研究所の原子科学実験室のタンデム型ペレットロン加速器からの 2MeV の陽子ビームを用いて行った。2MeV の陽子の照射による Kr からの励起 K-X 線 (12.631keV) はシリコン半導体検出器を用いて検出した。図3に実験で得られた PIXE スペクトルを示す。Kr 励起 X 線付近のエネルギー領域では X 線スペクトルに不純物によるバックグラウンドがほ

とんどないため、S/N 比が非常に高い測定ができた。検出された X 線の計数、検出器の検出効率、K-X 線生成断面積から導出された Kr 内包フラーレンの生成量は約 10¹⁴ 個/cm² となった。これは、過去に報告されているイオン注入法による希ガス内包フラーレンの生成量を大幅に上回っている。このことから、本研究で開発されたイオン注入装置の生成効率が高いことが証明された。

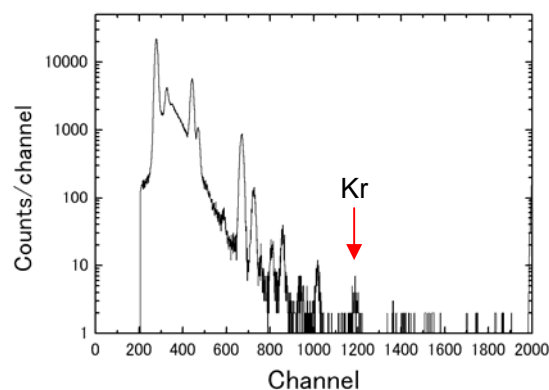


図3 実験で得られた PIXE スペクトル

今後、RI を用いた診断・治療といった医学応用に内包フラーレンを使用するには、さらに内包フラーレン生成効率を向上させる必要がある。そのためにイオン注入装置の放電条件等の最適パラメータの探索、また、他の希ガスでのイオン注入実験を行う。分析法に関しても PIXE 法以外の方法も組み合わせ、内包フラーレン生成メカニズムに関する情報を得る。また、希ガス以外の元素についてもイオン注入法が使えるよう装置改良を試みる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計2件)

① 片瀧 竜也、渡辺 智、長谷川 純、小栗 慶之、「内包フラーレン生成のためのイオン注入装置の開発」、日本物理学会、2009年3月27日、立教大学

② 片瀧 竜也、福田 一志、長谷川 純、小栗 慶之、渡辺 智、「Ion Implantation System for Production of Endohedral Fullerenes」、フラーレン・ナノチューブ学会、2008年8月29日、東京工業大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

片渕 竜也 (KATABUCHI TATSUYA)
東京工業大学・原子炉工学研究所・助教
研究者番号：40312798

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし