

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 16 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23760837

研究課題名(和文)輝尽発光を利用したシングルイオンヒットのリアルタイム照射位置検出システムの開発

研究課題名(英文)Development real-time position detection system of single-ion hit utilizing photostimulated luminescence

研究代表者

横山 彰人(Yokoyama, Akihito)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 高崎量子応用研究所 放射線高度利用施設部・技術員

研究者番号：10532088

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：数 μm の空間精度を有するシングルイオンヒットをリアルタイム検出する技術は、生物細胞の照射実験では必須である。本研究では、調製したAl203:Eu試料と発光検出装置を組み合わせることにより、シングルイオンヒットのリアルタイム検出システムを構築した。Al203:Euは単結晶Al203に賦活剤として注入するEuの調製により強いイオンルミネッセンスを有し、発光検出装置は共焦点顕微鏡と電子増倍型CCDカメラにより $1\mu\text{m}$ の空間分解能を有する。調製したAl203:Euに260 MeV-Neを1秒間に200個以上のフルエンス率でスポット照射した際に、イオンルミネッセンスを捕えることができた。

研究成果の概要(英文)：A real-time position detection of single-ion hit with spatial accuracy of a few micrometers is essential in irradiation experiments of biological cells.

In this study, the real-time detection system for single-ion hit was constructed by combining a prepared Al203:Eu sample and a luminescence detection device. The Al203:Eu have strong ion luminescence(IL) by adjusting implantation fluence of Eu as activator. The luminescence detection device, which is composed of confocal microscope and an electron-multiplier charge-coupled device camera, has a spatial resolution of $1\mu\text{m}$. The device detects IL from the prepared Al203:Eu by spot irradiation of 260 MeV-Ne at a fluence rate of more than two hundreds ions per second.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合光学・原子力

キーワード：放射線工学 ビーム科学 シングルイオンヒット

1. 研究開始当初の背景

独立行政法人日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所のAVFサイクロトロンでは、数百 MeV の重イオンマイクビームを利用して、数 μm の精度で狙った箇所到一个一個照射するシングルイオンヒット技術が開発され、生物細胞のバイスタンダー効果などを調べる微視的照射実験が行われている。シングルイオンヒットを利用した照射実験では、リアルタイムでの高精度位置検出が必要不可欠である。現状では、標的となる細胞の下に置いた固体飛跡検出器 CR-39 が検出器として使用されている。照射位置は、CR-39 をアルカリ溶液でエッチングした後に、形成されたトラックを顕微鏡で観察する。この方法では照射位置の確認に一時間以上を要するため、実験効率を上げることが困難である。従って、シングルイオンヒットのリアルタイム位置検出が必要とされており、これまでにビームモニタに利用されるシンチレータが試されてきたが、発光強度が十分ではなかった。

2. 研究の目的

単結晶 Al_2O_3 に炭素を添加した $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ の $0.1 \mu\text{Gy} \sim 10 \text{Gy}$ 領域での極めて高感度な輝尽発光 (Photostimulated luminescence: PSL) に着目し、シングルイオンに対して十分な PSL を発する $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ と、これを用いたリアルタイム照射位置検出システムの開発を行う。

3. 研究の方法

イオン注入装置により賦活剤である C を単結晶 Al_2O_3 に注入し、その量や熱処理条件を変えることで、強い PSL を有する $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ を開発することが最終目的である。しかし、PSL の測定は、イオンビームなどの放射線照射後に励起用レーザーと発光検出装置を用いて実施する必要があることから、開発を効率的に進めるため、先ず、PSL と同様に電子励起過程を経て発光するフォトルミネッセンス (Photoluminescence: PL) とイオンルミネッセンス (Ionluminescence: IL) を測定することにより、試料の調製方法を確立する。また、その試料素材には、単結晶であり、薄く加工できるといいう長所を持つとともに、強い IL を有する $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ を選び、これを単結晶 Al_2O_3 にユウロピウム (Eu) を注入することで調製する。注入量と注入後の熱処理温度と時間を広く変えて、強い PSL をもたらす条件を探索する。このために、調整した試料の PL の強度とスペクトルを測定してその発光特性を調べ、より強い発光を得るための条件探索に役立てる。強い発光が得られた試料にイオンビームを照射して IL を測定し、シングルイオンヒットによる発光強度と IL 測定装置の感度を評価する。このために PL、IL 及び PSL の測定装置を構築する。

これらにより得られた知見、注入及び熱処理の方法を基に、目的の $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ を調製する。

具体的には次のように研究を進めた。

(1) PL、IL 及び PSL 測定装置の構築

PL 測定では、高感度冷却 CCD を搭載した分光器、試料表面を光励起するための He-Cd レーザー、光学フィルターやミラーを用いた。IL 及び PSL 測定装置は、電子増倍型 CCD カメラ (Electron-Multiplier charged-coupled device: EMCCD) と共焦点顕微鏡により構築し、PSL 装置には輝尽発光のための光励起用のレーザーを加えた。

(2) $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 試料の調製方法の確立

Eu 注入量については、ダイヤモンド中に窒素イオンを注入して、発光に寄与する色中心を形成するためのフルエンスを参考にして、 $10^{14} \sim 10^{16} \text{ion/cm}^2$ の間で 10 倍ごとに変えた。Eu ビームは、電場によるスキャン照射により $10 \times 10 \text{mm}$ の試料に均一に注入した。この際、過熱による試料表面のアモルファス化を防ぐために、フルエンスは $1.0 \mu\text{A/cm}^2$ 以下に抑えた。熱処理の初期条件は、注入の際にできた欠陥が回復を始める 800°C において 1 時間とした。

試料の評価には、PL 測定を常温において実施した。その結果を基にして、熱処理温度や熱処理時間を変えた試料を順次調製し、その都度 PL 測定により評価して、発光強度が最大となる調製条件を探索した。

(3) 発光検出実験

最も強い PL が得られた $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ の発光強度を評価するための IL 測定を、サイクロトロンからの 260MeV-Ne (ネオン) の照射により実施した。ビームサイズの評価には、1 インチ当たり 1000 本の銅メッシュに、静電場により Ne ビームをスキャン走査して発生した二次電子の相対的な収量を三次化する方法を採用した。これにより、 $\phi 4 \mu\text{m}$ と評価されたビームを試料にスポット照射した。PL 測定では、高感度冷却 CCD を搭載した分光器、試料表面を光励起するための He-Cd レーザー、光学フィルターやミラーを用いた。IL 及び PSL 測定装置は、電子増倍型 CCD カメラ (Electron-Multiplier charged-coupled device: EMCCD) と共焦点顕微鏡により構築し、PSL 検出装置には、これらの装置に放射線による損傷箇所を光励起して、輝尽発光を検出するために緑色のレーザーを加えた。

4. 研究成果

(1) PL、IL 及び PSL 測定装置の構築

PL 測定装置では、励起源に出力 20mW で波長 325nm の He-Cd レーザーを使用し、集束レンズにより試料上で直径 0.5mm 以下に集光させて照射した。試料表面から発生した PL の検出には、素子数が 1340×100 で、1 ピクセルあたり $20 \times 20 \mu\text{m}$ の高感度冷却 CCD を有する分光器を用いた。分光器の入射口には、 325nm の励起光を遮断し、PL のみを検出するための光学フィルターを設置した。

IL 測定装置については、10 倍の対物レンズを備えた共焦点顕微鏡と EMCCD カメラを組み合わせた。EMCCD カメラは 512×512 の有感素子を有し、ピクセルサイズは 16×16 μm^2 であり、最大 8×10^5 倍の線形増倍度がある。本検出システムは 1 μm の分解能、すなわちシングルイオンヒットの分解能を有する。

PSL 測定装置は、IL 測定装置と同じ EMCCD カメラと共焦点顕微鏡に加えて、放射線照射箇所を 532 nm の緑色レーザーを当て、420 nm の PSL を測定するために、PSL のみを検出するための光学フィルターを顕微鏡内に設置した。

(2) $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 試料の調製方法の確立

① 注入フルエンスに関する結果

単結晶 Al_2O_3 への Eu の注入においては、発光層を厚くするために、一つの試料について三つのエネルギー 350keV、250keV、150keV (飛程はそれぞれ 70 μm 、50 μm 、35 μm) を用いた。合計のフルエンスを 3×10^{14} 、 3×10^{15} 及び $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ とした 3 種類の試料を調製した。それぞれの試料を 800°C で 1 時間熱処理し、PL を測定した。

最も強い PL は、合計 $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ のフルエンスで注入した試料から得られた (図 1)。PL スペクトルは 570 nm から 730 nm の範囲に現れ、ピークは 598 nm、620 nm と 690 nm に見られた。以下の実験では、最も強いピークの 620 nm に注目し、試料調製におけるフルエンスについては、合計 $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ とした。

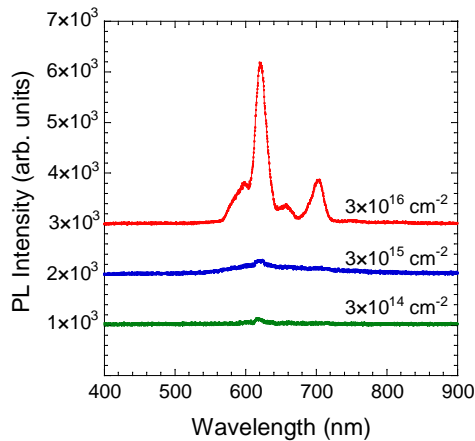


図 1 合計のフルエンスが 3×10^{14} 、 3×10^{15} 及び $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ で、800°C、1 時間で熱処理した $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ の PL スペクトル。 $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ で注入した試料が最も強い PL を示した。

② 熱処理温度に関する結果

①で得られた結果を基に、試料の熱処理温度を 1 時間に固定して、熱処理温度を 500°C ~ 1000°C の範囲において 100°C 間隔で変えた $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ を調製した。これらの試料の PL スペクトルは熱処理温度により異なり、600°C において最も大きいピークが得られた (図 2)。熱処理温度が 700°C 未満の試料と 800°C 以上

のものを比較すると、前者は最大強度の発光ピークが約 580 nm であるのに対して、後者では約 620 nm であった。以下の試料調製ではフルエンスについては、合計 $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ として、600°C で熱処理した。

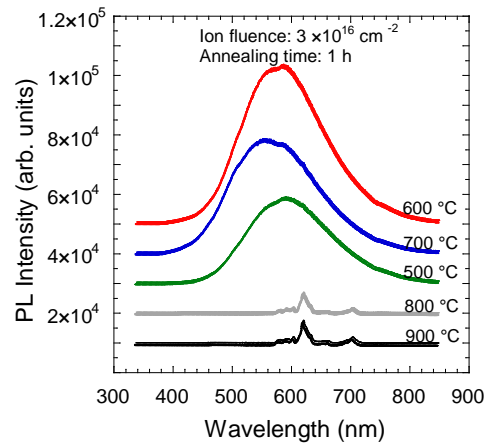


図 2 熱処理温度を 500°C ~ 1000°C の範囲で 100°C 間隔変えて、1 時間熱処理した $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ の PL スペクトル。600°C が最も強い PL が得られた。

③ 熱処理時間に関する結果

②で得られた結果を基に、熱処理時間を 0 時間 ~ 2 時間まで 0.5 時間間隔で変えた試料を調製した。試料の PL 強度は 0.5 時間で最大になり、熱処理時間が長いほどピーク波長は約 600 nm から約 550 nm へシフトするとともに、発光強度が小さくなった (図 3)。(3) の発光検出実験では、合計 $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ のフルエンスで注入して、600°C で 0.5 時間熱処理した $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ (以下、最大発光試料と呼ぶ) を用いた。

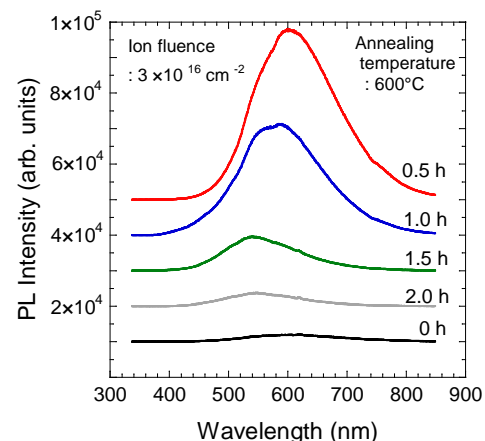


図 3 $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ の熱処理時間を 0 ~ 2.0 時間の範囲において、0.5 時間間隔で変えた $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ の PL スペクトル。0.5 時間において最も強い PL を示した。

④ $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ と $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ar}$ の PL 比較

図 2 において、ピークシフトが見られた最大の発光ピークが Eu と欠陥のどちらに依る

ものかを調べるために、他の原子と反応しにくい不活性イオンであり欠陥のみ生成する Ar イオンを Al_2O_3 に照射して、試料 $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ar}$ を調製し、 $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ar}$ と最大発光試料 $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ の PL スペクトルを比較した。それぞれの試料は 600°C 、0.5 時間で熱処理した。PL 測定の結果、 $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ar}$ からは PL を検出できなかった。このことから、スペクトルに現れたすべてのピークは、注入した Eu によるものであることが分かった。

⑤ 反跳粒子検出測定

最大発光試料の Eu 層の厚さを測定するために、3 MV シングルエンド加速器からの 2.0 MeV-He (ヘリウム) を分析ビームに用いて反跳粒子検出測定を行った。この結果、Eu 層は試料の表面から予測どおりの 30~70 nm の範囲に形成されていることが確認できた。

(3) 発光検出実験

$\phi 4 \mu\text{m}$ の 260 MeV-Ne を 1 秒間に 200 個のフルエンス率で最大発光試料にスポット照射した。その結果、図 4 のイオンルミネッセンスを捕えることができた。フルエンス率は、試料への照射後に半導体検出器により測定した。

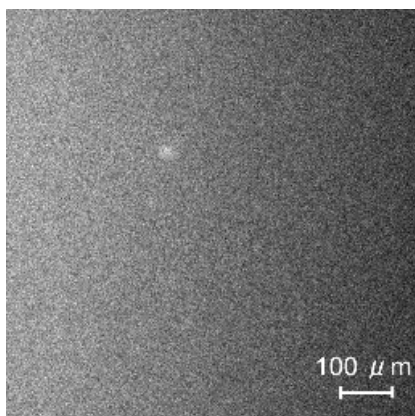


図 4 最大発光試料に 260 MeV-Ne を 1 秒間に 200 個のフルエンス率でスポット照射した時の $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ からの IL。

〈まとめ〉

注入時のフルエンスについては、 $10^{14}\sim 10^{16} \text{cm}^{-2}$ の範囲では、フルエンスが大きいほど PL 強度は増大した。

図 2 において、熱処理温度が 700°C より高い試料とそれ以下のものでは、PL スペクトルが大きく異なっていた。 700°C 未満で 1 時間熱処理した際には、試料中の Eu は拡散するが、それ以上の温度になると Eu の拡散だけでなく凝集が起り始め、この影響により試料中の Eu の発光への寄与が小さくなったと考えられる。また、最大発光試料に見られた発光ピークは Eu に依るものであることが $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ar}$ との PL 比較から確認できた。

反跳粒子検出測定法により、最大発光試料の Eu 層は表面から 30~70 nm の範囲に形成されており、SRIM コードによる Eu の飛程計

算の結果が正しいことが分かった。

最大発光試料に、260 MeV-Ne を 1 秒間に 200 個以上のフルエンス率でスポット照射した際に、発光検出システムによって IL を捕えることができた。

本研究では、イオン注入によって調製した $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ からの PSL は観測できていないが、最大発光試料 $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ の発光層を 200 倍以上厚くすることや、開口数の大きい対物レンズを採用して発光測定システムの感度をさらに高めることで、IL によってシングルイオンヒットをリアルタイム検出するシステムの実現に目途が付いた。

PSL が観測できなかった理由は不明であるが、今後、イオン注入によらずに Al_2O_3 中に C を分散させることが可能な熔融ガラス作製法を用いた輝尽発光素子の調製を試みたい。

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)

[雑誌論文] (計 1 件)

A. Yokoyama, W. Kada, T. Satoh, M. Koka, S. Yamamoto, T. Kamiya, W. Yokota, “Development of real-time position detection system for single-ion hit”, Nucl. Instrum. Methods B (2014), 査読有 (掲載決定).

[学会発表] (計 2 件)

① A. Yokoyama, W. Kada, T. Satoh, M. Koka, S. Yamamoto, T. Kamiya, W. Yokota”, “Development of Real-time Single-ion Hit System”, International Union of Materials Research Societies -International-Conference-on Electronic Materials 2012 (IUMRS-ICEM 2012), 2012 年 9 月 26 日, パシフィコ横浜 (横浜市).

② A. Yokoyama, W. Kada, T. Satoh, M. Koka, S. Yamamoto, T. Kamiya, W. Yokota”, “Development of real-time position detection system for single-ion hit”, The 21st International Conference on Ion Beam Analysis (IBA-2013), 2013 年 7 月 25 日, Marriott Waterfront (米国、シアトル).

[図書] (計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

横山 彰人 (YOKOYAMA, Akihito)

独立行政法人日本原子力研究開発機構
原子力科学研究部門 高崎量子応用研究所
放射線高度利用施設部 技術員

研究者番号: 10532088