

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 13 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24340096

研究課題名(和文) 高速イオンによる液体阻止能および生体分子(アミノ酸・核酸塩基)の電離断面積測定

研究課題名(英文) Stopping power of liquids and ionization cross sections of biomolecules (amino acids, nucleobases) by energetic fast heavy ions

研究代表者

伊藤 秋男 (Itoh, Akio)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：90243055

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、気体および水溶液状態の生体分子(アミノ酸・核酸塩基)や炭化水素分子に対する高速度イオンビーム照射効果を原子レベルで系統的に解明することを目的とした世界初の画期的なもので、世界の先導的研究拠点としての地位を確立している。具体的には、電子分光法による精密な電離断面積データの提供、および飛行時間法・電子個数測定法を組み合わせた新しい測定技術の提唱とその測定法を用いて多原子分子の多重電離・多重分解過程の詳細を定量的に解明することに成功している。研究成果は査読論文12編、国際会議発表21件、国内学会発表34件を数える。

研究成果の概要(英文)：This project aims to provide detailed information about ionization and fragmentation of biomolecules (amino acids, nucleobases), prepared in liquid and gas phases, bombarded by MeV energy ion beams. Precise experimental data are presented for ionization cross sections by using traditional electron spectroscopy in which energy and angular distributions of secondary electrons are measured. In addition, we present a novel technique combining the time-of-flight measurements of ions and the number distribution of secondary electrons. By means of this technique multiple ionization and fragmentation of polyatomic molecules have been investigated in detail. The project has been accomplished successfully, resulting in 12 papers in the first-class international journals, 21 papers in international conferences and 34 presentations in various domestic conferences and seminars.

研究分野：原子衝突物理学

キーワード：液体分子線 原子衝突 生体分子 アミノ酸 二次電子 飛行時間法 多原子分子多重分解

### 1. 研究開始当初の背景

陽子や炭素ビームによる「粒子線がん治療」は放射線高度利用の一つであり、重要な学術分野に位置づけられる。人体の大半を占める液体の水標的に対するイオンビーム照射効果の研究は、基礎学問的側面のみならず医療を始め植物細胞の突然変異を利用した品種改良・育種などの分野からも必須の基礎データとして強く求められているが、このような研究は国内外ともに著しく欠如しているのが現状である。これらの分野では、放射線物理学で知られているブラッグピーク (BP) という高速度の粒子線の持つ特異な性質を利用している。従って細胞の照射損傷・死滅過程などのマクロな現象を正確に理解し且つ予知するためにはその基礎となる原子レベルでの照射効果を系統的に解明することが不可欠である。最も重要な BP 領域を形成するイオンのエネルギーは keV ~ 数十 MeV であり、このエネルギー領域でイオンのエネルギー損失量が最大となる。そのため、この領域での様々な衝突反応過程 (散乱, エネルギー損失, 標的の電離・励起, 二次粒子放出等) を実験的に解明することが重要となる。本研究では真空内の液体を対象とするイオン衝突実験であり、世界的に先導的な役割を果たしている。

### 2. 研究の目的

本研究は京都大学の粒子加速器から引き出されたイオンビームと真空中に作成した液体標的およびアミノ酸分子等との衝突現象を原子スケールで探求するもので、研究の要旨は以下の通りである。

- ・世界に先駆けて行ってきた「真空中の液体物質におけるエネルギー損失過程」に対する系統的な実験的研究を更に推進し、高速イオンに対する液体物質のエネルギー阻止能の精密測定、および液体表面から放出する二次イオン生成断面積の測定を行う。
- ・気相の生体分子 (アミノ酸, 核酸塩基) に対する電離断面積の精密測定を二次電子分光法により行う。
- ・本研究の実験方法・技術は液体物質を真空中で直接扱うもので他に例をみないものであり、今後の放射線基礎過程研究を行うための新しい方法として世界に発信する。
- ・液体阻止能データや生体分子からの二次電子放出断面積データは世界初のものであり、放射線照射効果を理解するための重要なデータベースとして世界に発信する。

### 3. 研究の方法

実験は京都大学宇治キャンパスにある加速器施設にて実施する。新設の2MVタンデム加速器 (ペレットロン) を用いることで、イオンエネルギー範囲を拡張する。実験内容は下記3つに大別される。

(A) マイクロイオンビームの液体標的への直接照射法の確立

(B) 二次イオンの質量分布・二次電子のエネルギー分布の測定

(C) 炭素を含む重イオンに対する MeV 領域液体阻止能の測定

対象とする標的は、水、アルコール類、気体アミノ酸分子・核酸塩基分子である。実験装置の殆どは既存のものを使用する。本研究で行う実験装置概略図を図1に示す。

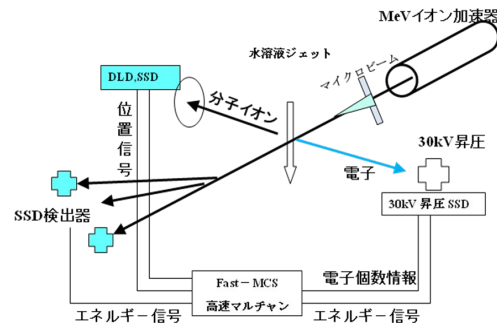


図 1. 液体標的の実験装置

新設のマイクロビーム加速器に「ガラスキャピラリ方式」を採用し数ミクロン程度のイオンビームを作成する。

液柱からの二次イオン測定および気体分子標的からの分解イオン片の精密測定では、同時に放出される二次電子も取り込むことで電離・分解に関するほぼ完全なデータを得ることができる。気体アミノ酸からの低エネルギー二次電子の精密測定に加え、同時に生成される電子の個数を新たに測定する。

### 4. 研究成果

本研究は MeV 領域の重イオンを加速器から引き出し、真空中に作成した水溶液標的や気相の高分子標的に照射し、衝突反応により生成する二次電子、二次イオン等を精密に測定することにより、これまでの既存の方法では得ることのできなかった多原子分子の多重電離過程・多重分解過程に関する多くの新しい知見を得ることに成功している。研究成果は以下4項目に大別される

#### (1) 二次電子分光法によるアミノ酸・核酸塩基の電離断面積測定

前述の様に放射線がん治療の高度化に向けて生体分子の電離度の定量的な把握が極めて重要視されており、理論計算が欧州を中心に積極的になされている。特に DNA や RNA の基本構成分子としてのアミノ酸や核酸塩基の電離断面積計算が論文として報告され始めている。実験的研究は他に例が無く本研究が提供する実験データは極めて注目を集めている。本研究はフランスの理論研究グループとの共同研究として行っており、多角的かつ系統的に断面積の信頼度をチェックしている。例として本研究で得られた実験値と計算との比較を図2に示す。この図は 0.5 ~ 2MeV における陽子照射によるアミノ酸アデ



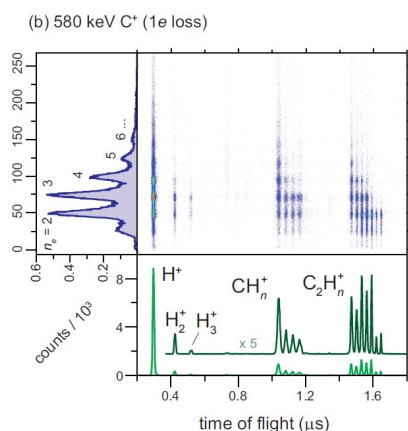


図5. 580keV C<sup>+</sup> 照射による C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> の多重電離スペクトル (論文番号(5))

## 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12件)

- (1) S. Nomura, H. Tsuchida, R. Furuya, K. Miyahara, T. Majima, A. Itoh, Effects of radical scavengers on aqueous solutions exposed to heavy-ion irradiation using the liquid microjet technique, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 365 (2015) 611-615 (査読有)
- (2) T. Majima, K. Kitajima, T. Nishio, H. Tsuchida and A. Itoh, Secondary ion emission from ethanol microdroplets induced by fast heavy ions, Journal of Physics: Conference Series 635(2015) 012021. (査読有)
- (3) T. Mizuno and A. Itoh, Fragmentation of molecules under charge-changing collisions of a few MeV heavy ions, Journal of Physics: Conference Series 488 (2014) 012027(1-9) (査読有)
- (4) C. Champion, M. E. Galassi, P. F. Weck, C. Abdallah, Z. Francis, M. A. Quinto, O. Fojón, R. D. Rivarola, J. Hanssen, Y. Iriki, A. Itoh, Ionization induced by protons on isolated molecules of adenine: theory, modelling and experiment, Journal of Physics: Conference Series 488 (2014) 012038(1-9) (査読有)
- (5) T. Majima, T. Murai, T. Kishimoto, Y. Adachi, S.O. Yoshida, H. Tsuchida and A. Itoh, Correlation between multiple ionization and fragmentation of C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> in charge-changing collisions with 580-keV C<sup>+</sup>, Physical Review A 90 (2014) 062711(1-8) (査読有)
- (6) M. Imai, Y. Iriki, and A. Itoh, Target dependence of single-electron-capture cross sections for slow Be, C, C, Fe, Ni, and W ions colliding with atomic and molecular targets, Fusion Science and Technology, 63 (2013) 392-399 (査読有)
- (7) J. Yokoe, H. Tsuchida, K. Nishimura, R.

Murakoshi, S. Mori, M. Naitoh, T. Majima and A. Itoh, Charge-state distributions of fast diatomic carbon ions and dissociated fragments passing through microcapillaries, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 46 (2013) 115201 (1-5) (査読有)

(8) H. Tsuchida, T. Majima, S. Tomita, K. Sasa, K. Narumi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Yamada, K. Hirata, H. Shibata, Akio Itoh, Transmission properties of C<sub>60</sub> ions through micro- and nano-capillaries, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 315 (2013) 336-340 (査読有)

(9) C. Champion, M.E. Galassi, P.F. Weck, S. Incerti, R.D. Rivarola, O. Fojon, J. Hanssen, Y. Iriki, A. Itoh, Proton-induced ionization of isolated uracil molecules: A theory/experiment confrontation, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 314 (2013) 66-70 (査読有)

(10) A. Itoh, Y. Iriki, M. Imai, C. Champion, and R. D. Rivarola, Cross sections for ionization of uracil by MeV-energy-proton impact, Physical Review A 88 (2013) 052711 (1-6) (査読有)

(11) I.Yu. Tolstikhina, M-Y Song, M. Imai, Y. Iriki, A. Itoh, D. Kato, H. Tawara, J-S Yoon and V.P. Shevelko, Charge-changing collisions of tungsten and its ions with neutral atoms, Journal of Physics B: At. Mol. pt. Phys. 45 (2012)145201(1-9)

(12) Sasaki Kohei, Wakui Kosuke, Tsutsumi Kaori, Itoh Akio, Date Hiroyuki, A Simulation Study of the Radiation-Induced Bystander Effect: Modeling with Stochastically Defined Signal Reemission, Computational and mathematical methods in medicine, 2012 (2012) 389095 (1-5) (査読有)

[国際会議発表](計21件)

(1) Fragmentation of multiply ionized biomolecules induced by MeV heavy ions; 29th International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC), Toledo, Spain, July 22-28, (2015), S. Yoshida, T. Majima, T. Asai, M. Matsubara, H. Tsuchida, A. Itoh

(2) Positive and negative ion emission from microdroplets by MeV energy ions; 29th ICPEAC, Toledo, Spain, July 22-28, (2015), T. Majima, K. Kitajima, Y. Oonishi, H. Ueda, H. Tsuchida, A. Itoh

(3) Correlation between multiple ionization and fragmentation of small hydrocarbon molecules induced by fast heavy ions; 29th ICPEAC, Toledo, Spain, July 22-28, (2015), T. Majima, S. Yoshida, T. Asai, M. Matsubara, H. Tsuchida, A. Itoh

(4) Coincidence measurements between multiple ionization and fragmentation of acetylene molecules induced by fast heavy ions; 9th International Symposium on Swift Heavy Ions in Matter (SHIM), Darmstadt, Germany, May 18-21,

(2015), S. Yoshida, T. Majima, T. Asai, M. Matsubara, H. Tsuchida, [A. Itoh](#)

(5) Reversibility of heavy-ion-induced deformation of metallic foils; 9th SHIM, Darmstadt, Germany, May 18-21, (2015), H. Minagawa, H. Tsuchida, [A. Itoh](#), R. Murase

(6) Heavy ion irradiation effects in aqueous solutions of radical scavengers; 9th SHIM, Darmstadt, Germany, May 18-21, (2015), S. Nomura, R. Furuya, K. Miyahara, T. Majima, H. Tsuchida, [A. Itoh](#)

(7) Driving force for reversible deformation of metallic foils induced by fast heavy ion irradiation; 26th International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS), Debrecen, Hungary, July 13-18, (2014), H. Minagawa, Y. Wakabayashi, H. Tsuchida, [A. Itoh](#)

(8) Development of an experimental system for MeV ion collisions with microdroplets in vacuum; 26th ICACS, Debrecen, Hungary, July 13-18, (2014), T. Majima, T. Nishio, K. Kitajima, H. Tsuchida, [A. Itoh](#)

(9) Wake effects on fast molecular transmission through nanocapillaries; 26th ICACS, Debrecen, Hungary, July 13-18, (2014), H. Tsuchida, K. Nakajima, J. Yokoe, M. Sugiyama, T. Majima, S. Tomita, K. Sasa, Y. Saitoh, K. Narumi, A. Chiba, K. Yamada, S. Matoba, K. Hirata, H. Shibata, K. Kimura, [A. Itoh](#)

(10) Single electron capture cross section scaling for low q heavy ions at low energy; 28th International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC), Lanzhou, China, July 24-30, (2013), M. Imai, Y. Iriki, Y. Ohta, T. Majima, H. Tsuchida, H. Shibata, [A. Itoh](#)

(11) Collision experiments for biomolecules and liquid targets; 21st International conference of Ion-Surface Interactions (ISI-2013), Yaroslavl, Russia, August 22-26 (2013), [A. Itoh](#), H. Tsuchida, M. Imai, T. Majima, and C. Champion

(12) Charge state distributions of fast diatomic carbon ions passing through a single microcapillary; Joint International conferences of "25th ICACS and 8th SHIM", Kyoto, Oct.21-27, (2012), J. Yokoe, S. Mori, R. Murakoshi, H. Tsuchida, T. Majima, M. Imai, H. Shibata and [A. Itoh](#)

(13) Measurement of the number spectrum of secondary electron by using an avalanche photodiode detector; Joint International conferences of "25th ICACS and 8th SHIM", Kyoto, Oct.21-27, (2012), T. Nishio, T. Kishimoto, T. Majima, M. Imai, H. Shibata H. Tsuchida, and [A. Itoh](#)

(14) Alanine dosimeter response characteristics for charged particles in BNCT; Joint International conferences of "25th ICACS and 8th SHIM", Kyoto, Oct.21-27, (2012), T. Kawamura, R. Uchida, H. Tsuchida, H. Tanaka, Y. Sakurai and [A. Itoh](#)

(15) Production of C60 microbeams by single microcapillary methods; Joint International conferences of "25th ICACS and 8th SHIM", Kyoto, Oct.21-27, (2012), H. Tsuchida, T. Majima, S. Tomita, K. Sasa, K. Narumi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Yamada, K. Hirata, H. Shibata and [A. Itoh](#)

(16) Proton impact electron emission from biological molecules; Joint International conferences of "25th ICACS and 8th SHIM", Kyoto, Oct.21-27, (2012), Y. Iriki, M. Imai and [A. Itoh](#)

(17) Simultaneous measurements of lattice constant change and length expansion of Al induced by swift heavy ion irradiation; Joint International conferences of "25th ICACS and 8th SHIM", Kyoto, Oct.21-27, (2012), Y. Wakabayashi, H. Minagawa, S. Kasai, H. Tsuchida and [A. Itoh](#)

(18) Direct measurements of multiple ionization of isolated polyatomic molecules induced by fast ion collisions; Joint International conferences of "25th ICACS and 8th SHIM", Kyoto, Oct.21-27, (2012), T. Majima, Y. Adachi, S. O. Yoshida, T. Murai, T. Kishioto, M. Imai, H. Shibata, H. Tsuchida and [A. Itoh](#)

(19) Direct ion- irradiation of liquid targets in vacuum using capillary microprobe; Joint International conferences of "25th ICACS and 8th SHIM", Kyoto, Oct.21-27, (2012), T. Kishimoto, S. mori, K. Miyahara, T. Majima, H. Tsuchida, A. Itoh

(20) Charge state distribution of 1MeV/u Tungsten ions after penetration of carbon foils; Joint International conferences of "25th ICACS and 8th SHIM", Kyoto, Oct.21-27, (2012), Y. Ohta, T. Majima, M. Imai, H. Tsuchida, H. Shibata, [A. Itoh](#), M. Sataka

(21) Proton impact ionization of DNA/RNA nucleobases molecules; International Conference on Many particle spectroscopy of atoms, clusters and surfaces (MPS 2012), Berlin, Germany, Aug 27-Sept. 1, (2012), [Akio Itoh](#) and Yoshitaka Iriki

〔国内学会発表〕(計 34 件, 以下 20 件記載)

(1) 高速重イオン衝突により多重電離・高励起した核酸塩基分子の解離ダイナミクス; 吉田慎太郎, 浅井達也, 松原正弥, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 斉藤学, 伊藤秋男, 日本物理学会(2016年年度大会)東北学院大学: 2016年3/19-22

(2) 高速イオン衝突による窒素分子解離時の運動エネルギー放出分布: 放出電子個数を用いた解析; 間嶋拓也, 吉田慎太郎, 浅井達也, 松原正弥, 今井誠, 土田秀次, 斉藤学, 伊藤秋男, 日本物理学会(2016年年度大会)東北学院大学: 2016年3/19-22

(3) アミノ酸含有水溶液の重イオン照射効果; 野村真史, 古谷亮介, 間嶋拓也, 今井誠,

齊藤学, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2016 年年次大会) 東北学院大学: 2016 年 3/19-22

(4)MeV イオンと微小液滴の衝突: 液滴生成手法に依存した液滴サイズと二次イオン分布の変化; 大西佳樹, 北島謙生, 間嶋拓也, 今井誠, 齊藤学, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会(2016 年年次大会)東北学院大学: 2016 年 3/19-22

(5)高速重イオン衝突におけるエチレン分子の多重電離および解離過程 III; 浅井達也, 吉田慎太郎, 松原正弥, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 齊藤学, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2015 年秋季大会) 関西大学: 2015 年 9/16-19

(6)MeV イオンと微小液滴の衝突: 液滴細部分布制御; 大西佳樹, 北島謙生, 上田紘己, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 齊藤学, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2015 年年次大会) 早稲田大学: 2015 年 3/21-24

(7)MeV イオンと微小液滴の衝突: 正負二次イオン分布の比較; 北島謙生, 大西佳樹, 上田紘己, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 齊藤学, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2015 年年次大会) 早稲田大学: 2015 年 3/21-24

(8)高速重イオン衝突におけるエチレン分子の多重電離および解離過程 II; 浅井達也, 吉田慎太郎, 松原正弥, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 齊藤学, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2015 年年次大会) 早稲田大学: 2015 年 3/21-24

(9)高速重イオン衝突における C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> 分子の多重電離状態と解離ダイナミクス; 吉田慎太郎, 浅井達也, 松原正弥, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 齊藤学, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2015 年年次大会) 早稲田大学: 2015 年 3/21-24

(10)スカベンジャー含有水溶液の重イオン照射効果; 野村真史, 宮原建人, 古谷亮介, 王佳男, 間嶋拓也, 今井誠, 齊藤学, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2015 年年次大会) 早稲田大学: 2015 年 3/21-24

(11)キャピラリーマイクロビーム法によるエタノール水溶液の表面構造解析; 古谷亮介, 野村真史, 宮原建人, 王佳男, 間嶋拓也, 今井誠, 齊藤学, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2015 年年次大会) 早稲田大学: 2015 年 3/21-24

(12)高速イオン衝突による水およびエタノール液滴からの二次イオン放出過程; 北島謙生, 間嶋拓也, 大西佳樹, 上田紘己, 今井誠, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2014 年秋季大会) 中部大学: 2014 年 9/7-10

(13)高速重イオン衝突におけるエチレン分子の多重電離および解離過程; 浅井達也, 吉田慎太郎, 松原正弥, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2014 年秋季大会) 中部大学: 2014 年 9/7-10

(14)高速イオンによる混合液体の照射効果: 二次粒子放出の溶質濃度依存性; 古谷亮介, 野村真史, 宮原建人, 王佳男, 間嶋拓也, 今

井誠, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2014 年秋季大会) 中部大学: 2014 年 9/7-10

(15)MeV イオンと微小液滴の衝突: 液滴サイズ分布測定; 間嶋拓也, 西尾達哉, 北島謙生, 今井誠, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2014 年年次大会) 東海大学: 2014 年 3/27-30

(16)MeV イオンと微小液滴の衝突: 二次イオン質量分析; 北島謙生, 西尾達哉, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2014 年年次大会) 東海大学: 2014 年 3/27-30

(17)MeV 重イオン衝突における C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> 分子の多重電離状態と解離ダイナミクスの相関; 吉田慎太郎, 浅井達也, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2014 年年次大会) 東海大学: 2014 年 3/27-30

(18)UV レーザー照射による液体分子線から放出される二次粒子の溶質濃度依存性; 野村真史, 森翔, 宮原建人, 古谷亮介, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2014 年年次大会) 東海大学: 2014 年 3/27-30

(19)キャピラリーマイクロビーム照射法による真空内液体分子線の特異性評価; 宮原建人, 森翔, 野村真史, 古谷亮介, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2013 年秋季大会) 徳島大学: 2013 年 9/25-28

(20)エタン分子と高速重イオンの荷電変換衝突における解離イオンの運動エネルギー分布測定; 吉田慎太郎, 浅井達也, 安達泰之, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 伊藤秋男, 日本物理学会 (2013 年秋季大会) 徳島大学: 2013 年 9/25-28

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕  
出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 件)

〔その他〕  
<http://www.t.kyoto-u.ac.jp/ja/divisions/departments/ne>

## 6. 研究組織

(1)研究代表者  
伊藤秋男 (ITOHI Akio)  
京都大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 9 0 2 4 3 0 5 5

(2)研究分担者  
該当無し

(3)連携研究者  
該当無し