

固体飛跡検出器を利用した レーザー加速イオンの特性評価

高強度レーザーと物質の相互作用で加速されるイオンの計測には固体飛跡検出器が最も信頼性の高い検出器として用いられている。本稿では、固体飛跡検出器の基本的な動作原理を解説するとともに、近年、注目を集めているグラフェンターゲットを用いたレーザープラズマ粒子加速実験で実施した固体飛跡検出器の特性を活かした炭素イオンと酸素イオンの弁別計測を紹介する。

金 崎 真 聡

1 はじめに

1.1 レーザープラズマ粒子加速

高強度レーザーと物質の相互作用によるレーザープラズマ粒子加速は、近年、レーザーの高強度化やターゲットの改良に伴い、100 MeV に迫るプロトンや高エネルギー重イオンの加速に成功している¹⁾²⁾。理論研究においては、様々なイオン加速メカニズムが提唱されている。例えば、Target Normal Sheath Acceleration (TNSA) と呼ばれるイオン加速メカニズムでは、ターゲット裏面に形成される電荷分離電場（シース場）を利用してイオンが加速される。具体的には、固体薄膜をターゲットとして高強度レーザーを集光すると、物質中の電子が電離されるだけでなく、レーザー光の電磁場の影響を受けてターゲット物質中で最も軽い電子が加速される。その後、加速された電子とターゲット裏面との間に形成されるシース場によってイオンが加速される。TNSA では、従来型の加速器では到達不可能な MV/ μm (=TV/m) 程度の大きな加速電場が生成するとされており、非常に小さな空間で高エネルギーイオンの生成が可能である³⁾⁴⁾。実験においても数十 MeV を超える高エネルギーイオンの加速が確認されている。また、TNSA 以外にも、レーザー光の放射圧によるイオン加速や、レーザープラズマ中に生成される衝撃波によるイオン加速メカニズムが提唱されており、これらを利用すれば GeV に迫る高エネルギーイオンの加速が可能とされており、実験においてもこれらのメカニズムを利用したイオン加速が試みられている⁵⁾。このように、レーザープラズマ粒子加速は、従来型加速器装置に比べて大幅にコンパクトな次世代型加速器開発を目的として、世界各国の高強度レーザー施設において積極的に取り組まれている。

1.2 レーザー加速イオン計測

上述のような状況下、レーザー加速イオンの計測手法については、未だ確立されたものが少ない。これは、レーザープラズマ中で、イオンとほぼ同時発生する高エネルギー電子線や、それに起因する X 線が検出器に対して深刻なノイズとなり、通常の加速器ビーム診断等に用いられる検出器の多くが適用困難となるためである。加えて、発生するイオンのエネルギースペクトルは、加速器イオンビームのように単色ではないこと、複数のイオン種が同時加速されることも一因である。しかしながら、レーザープラズマ粒子加速の高度化、即ち、より高エネルギーかつ高品質なレーザー加速イオンビーム発生のためには、実験において、イオンの加速メカニズムを明らかにすることが重要となる。そのためには、エネルギースペクトルや空間分布など、レーザー加速イオンの特性を高精度に評価する必要がある。このような状況下、レーザー加速イオン計測においては、受動型検出器を積層したスタック型検出器や、ピンホール通過後のイオンを電場と磁場で分光するトムソンパラボラスペクトロメータなど、いくつかの計測手法が適用されており、様々な放射線検出器が組み込まれている^{6)~9)}。その中でも、イオンと同時発生する電子線や X 線に感度を示さず、イオンのみをエッチピットとして計測可能な固体飛跡検出器は、レーザー加速イオン計測において最も信頼性の高い検出器として利用されている¹⁰⁾。本稿では、固体飛跡検出器の概要を紹介するとともに、高強度レーザーによるイオンの加速メカニズム解明に貢献することを目的として実施した固体飛跡検出器によるレーザー加速イオン計測の中から、最新の研究成果であるレーザー加速重イオンの弁別計測について紹介する。

2 固体飛跡検出器

2.1 固体飛跡検出器の動作原理

本稿で説明する固体飛跡検出器はエッチング型のものに限り、飛跡を現像によって可視化する原子核乾板

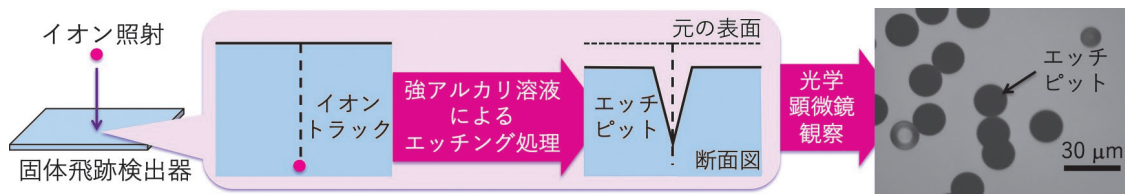


図1 固体飛跡検出器の動作原理

を利用したレーザー加速イオン計測については浅井らによる論文を参照されたい¹¹⁾。

図1に固体飛跡検出器の動作原理を示す。高速のイオンが物質中の原子の近くを通ると、原子の軌道電子はイオンからクーロン力を受け、その力が十分に大きい場合には電離が生じる。このとき、イオンは運動エネルギーを失って減速される。一方で、電離された電子は物質中の原子を電離しながら進み、やがて停止する。固体飛跡検出器として一般的に用いられる高分子材料にイオンを照射すると、先述の相互作用により、物質中の化学結合が切断され、イオンの飛跡に沿って潜在飛跡もしくはイオントラックと呼ばれるナノメートルスケールの特異な損傷が生じる。潜在飛跡が記録された高分子材料に対して、強アルカリ溶液によるエッチング処理を施すと、イオンによる損傷部がそれ以外の部分に比べて優先的に溶出される。これら一連の原理でイオンの通り道である潜在飛跡は光学顕微鏡下で観察可能な程度にまで拡大され、エッチピットとしてイオンのシグナルを検出することが可能となる¹²⁾¹³⁾。エッチピットは、その開口部形状を光学顕微鏡下で直接観測することで、入射粒子の核種判別や入射エネルギーの推定が可能となる。ここで、固体飛跡検出器にエッチピットを形成するためには、潜在飛跡のように局所的な損傷が必要となる。即ち、電子線やX線のように局所的な損傷を生じない線種ではエッチピットを形成することはないため、高エネルギーイオン、電子線、X線が混在するレーザープラズマのような混成場においてもイオンのみを計測することが可能である。また、一つのイオンに対して一つのエッチピットが形成されるため、原理的にイオン一つから計測が可能である。これが、固体飛跡検出器がレーザー加速イオンの最も信頼性の高い検出器として幅広く用いられている理由である。

2.2 固体飛跡検出器の感度特性

固体飛跡検出器のイオンに対する感度 S は、潜在飛跡に沿った溶出速度であるトラックエッチング速度 V_t とそれ以外の部分に対する溶出速度であるバルクエッチング速度 V_b の比で式(1)のように定義される。

$$S = \frac{V_t}{V_b} \dots \dots \dots (1)$$

一般に、感度 S は、イオンが物質との相互作用によっ

て単位長さあたりに失うエネルギー、即ち、阻止能に正の相関がある。物質中でブラッグピークを迎えていないおよそ MeV もしくはそれ以上のエネルギー領域のイオンでは、高エネルギーイオンほど阻止能が小さいため、形成されるエッチピットは小さくなる。即ち、感度の値が小さくなる。また、原子番号が小さいイオンほど阻止能が小さいため、感度 S は小さくなる。言い換えれば、感度を求めることで、入射核種等の推定が可能になるが、エッチピット形状からトラックエッチング速度とバルクエッチング速度を直接求めることはできない。そこで、式(2)のようにエッチピット幾何形状から求められる値を用いて感度を評価する。

$$S = \frac{1 + \left(\frac{r}{G}\right)^2}{1 - \left(\frac{r}{G}\right)^2} \dots \dots \dots (2)$$

ここで、 r はエッチピット開口部の半径（単にエッチピット半径と呼ぶ）、 G は溶出厚である。溶出厚の測定については、原子間力顕微鏡や核分裂辺のエッチピット半径を用いるなど様々な手法が開発されている¹⁰⁾¹⁴⁾¹⁵⁾。

固体飛跡検出器の検出閾値は材料により異なることが知られている。本稿では高分子材料に絞って説明する。現在、固体飛跡検出器として最も感度が高いものは CR-39 の商品名で知られるポリアリルジグリコールカーボネート (poly(allyl diglycol carbonate), PADC) であり、中性子個人線量計など幅広い分野で用いられている。CR-39 は、それ自身で数 MeV 程度のプロトンを計測可能であるが、酸化防止剤の添加や共重合体の開発により、最大で 27 MeV のプロトンが計測可能である^{16)~18)}。その次に感度の高いものとして、硝酸セルロース (cellulose nitrate, CN) は数 MeV 以下のアルファ線の計測が可能である。また、その他の高分子材料のおおよその閾値として、ポリカーボネート (polycarbonate, PC) は炭素イオン、ポリエチレンテレフタレート (polyethylene terephthalate, PET) は酸素イオン、ポリイミド (polyimide, PI) はアルミニウムイオンよりそれぞれ重いイオンに対して感度を有する¹⁹⁾²⁰⁾。即ち、異なる材料の検出器を組み合わせることでイオン種の弁別計測が可能となる。

3 レーザー加速イオンの核種弁別計測

3.1 グラフェンターゲットによる炭素イオン加速

炭素イオン加速を主目的としたレーザープラズマ粒子加速では、近年、大阪大学の蔵満らのグループを中心としたグラフェンターゲットによるイオン加速が注目を集めている²⁾。薄膜を用いたレーザーイオン加速は、ターゲットが薄いほどイオンが高エネルギーになることが知られている。しかし、薄いターゲットほど脆くなるため、高強度レーザーを集光する際に、プレパルスと呼ばれるピーク強度の前にターゲットに到達するノイズ成分によってターゲットが破壊されてしまうという問題点を含んでいた。このため、極薄膜を用いる場合には、プラズマミラーを用いるなどプレパルスを除去する必要がある。しかし、グラフェンはほぼ透明な光学特性を持っており、レーザーのプレパルスの熱によるターゲットの溶解を防ぐことが可能とされている。また、最も薄く、最も丈夫な物質であり、これまでのどのターゲットよりもプレパルスに対する耐性があると考えられている。一方で、薄膜によるイオン加速は、薄膜を構成する元素のイオン種だけでなく、表面に不純物として付着している水や油分に起因するプロトンや酸素イオンも同時に加速される。グラフェンを用いた場合にも、同様の現象が起こることが想定されるため、加速されるイオンのうち、炭素イオンの割合を求める必要があった。そこで、本研究ではグラフェンから加速される重イオンの弁別を目的として、固体飛跡検出器であるPCとPETを組み合わせた炭素イオンと酸素イオンの弁別計測を実施した。

ここで、固体飛跡検出器以外の計測手法について言及する。先述の磁場と電場によりイオンを分光するトムソンパラボラでは、フルストリップされた炭素イオンと酸素イオンの電荷質量比はいずれも1/2で同じ軌道を描くため分離することができない。即ち固体飛跡検出器を組み合わせた弁別手法は、唯一無二の方法であるといえる。

3.2 PCとPETの校正実験

本研究ではGoodfellow社で購入したPC(CT303050)とPET(ES303010)を検出器として使用した。これらの感度特性を明らかにするため、量子科学技術研究開発機構量子医科学研究所の重粒子線がん治療装置(HI-MAC)の中エネルギービーム照射室にて、数MeV/nの炭素イオンと酸素イオンをPCとPETに照射した。照射後のPCとPETは、それぞれ、60℃と50℃に保持した6mol/Lの水酸化カリウム水溶液にてエッチング処理を施した。エッチピットの解析には、エッチングと光学顕微鏡観察を繰り返して行う多段階エッチング法を適用した¹⁰⁾。本校正実験では、PCに対して1, 2, 3, 4, 6時間、PETに対しては11.75, 14, 16, 18, 20, 22, 24時

間エッチング後に光学顕微鏡によるエッチピット半径の計測を行い、エッチピットの成長挙動を明らかにした。PCの結果を図2に、PETの結果を図3に示す。図2及び図3の横軸に示す溶出厚は、PCとPETが水の吸収による膨潤を無視できることからマイクロメータを用いて測定した。

まず、PCの結果に着目すると、36 MeVの炭素イオンを照射した場合を除いて、原点からエッチピットが成長していることがわかる。これは検出器表面からエッチピットが成長したことをあらわしている。一方で、36 MeVの炭素イオンは、およそ1.9 μm 溶出された面からエッチピットが発生したことがわかる。即ち、36 MeVの炭素イオンはエッチピットを形成するのに十分な損傷を作ることができず、検出器中で減速され阻止能が大きくなった後にエッチピットを形成している。そこで、本研究では、PC中における減速後の炭素イオン

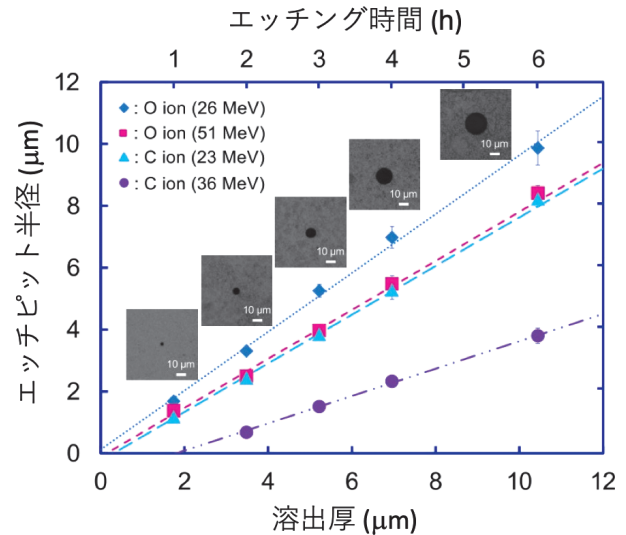


図2 ポリカーボネート上のエッチピット成長挙動

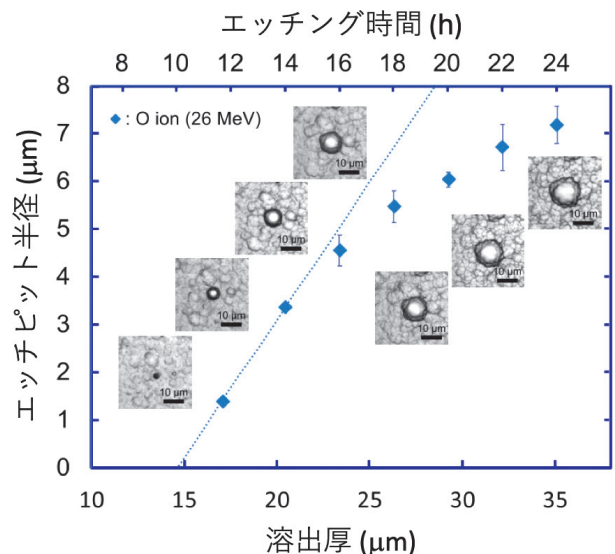


図3 ポリエチレンテレフタレート上のエッチピット成長挙動

のエネルギーを求めるために、SRIM (The Stopping and Range of Ions in Matter) コードを用いた²¹⁾。SRIM コードは、Ziegler らによって開発された任意の物質中に入射されるイオンについて、エネルギーや阻止能、飛程等を計算可能なプログラムであり、イオン注入の分野などで幅広く用いられている。SRIM コードを用いてエッチピット発生深さでの炭素イオンのエネルギーを求めたところ 35 MeV であった。これにより、35 MeV 以上の炭素イオンは PC で検出できないことがわかった。また、23 MeV の炭素イオンと 51 MeV の酸素イオンの成長挙動がほぼ同じであることがわかる。これは、エッチピット径からイオン種の弁別が困難であることを示している。

次に PET の場合には、図 2 に示す PC の場合と同様のイオンを照射したにもかかわらず、それぞれのイオンの PET 中での飛程を超える深さまでエッチングを進めても、26 MeV の酸素イオンしかエッチピットを形成しなかった。さらに、26 MeV の酸素イオンにおいても 14.6 μm エッチング後の表面からエッチピットが発生しており、SRIM コードを用いてエネルギーに換算すると 6 MeV 以下の酸素イオンしかエッチピットを形成しないことがわかった。

本校正実験の結果をまとめると、PC は炭素イオンより原子番号が大きいイオンに対して感度があり、PET は酸素イオンより原子番号が大きいイオンに対して感度があることがわかった。また、PC のみでは炭素イオンと酸素イオンの弁別をすることはできず、PC に計数されるエッチピット数から PET で計数されたエッチピット数を引くことで、両イオンが存在する場において炭素イオンのみを計数することが可能であることがわかった。

3.3 レーザー加速イオンの弁別計測

グラフェンターゲットを用いたイオン加速実験に校正した PC と PET を適用した。レーザープラズマ粒子加速実験は量子科学技術研究開発機構関西光科学研究所の J-KAREN レーザーにて実施した。実験の概観を図 4 に示す。本実験ではパルス幅 40 fs のレーザー光を軸外し放物面鏡で集光し (集光強度 $1 \times 10^{21} \text{ W/cm}^2$)、レーザー進行方向に対して 45 度傾けたグラフェンターゲットに集光した。加速された炭素イオンと酸素イオンを計測するために、レーザー光が直接入射しないように 12 μm のアルミニウム箔で覆った 3 枚重ねの PC と PET をレーザー進行方向の集光点からおよそ 1.6 m の位置に設置した。12 μm のアルミニウム箔を貫通して PC 及び PET に到達するためには炭素イオンで 14 MeV、酸素イオンで 19 MeV 必要である。

エッチング後の PC と PET の 1 層目表面の光学顕微鏡写真を図 5 に示す。典型的なエッチピットに矢印を

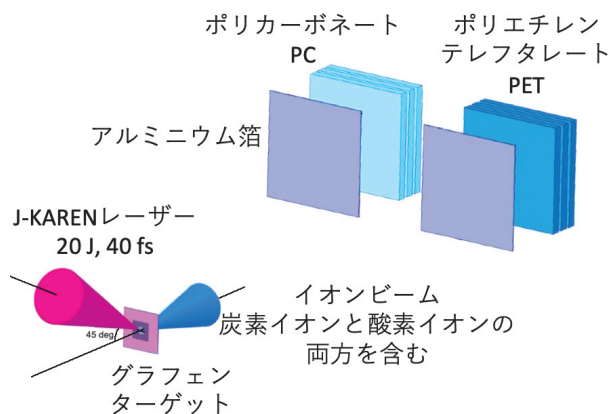


図 4 グラフェンターゲットを用いたレーザープラズマ粒子加速実験の概観

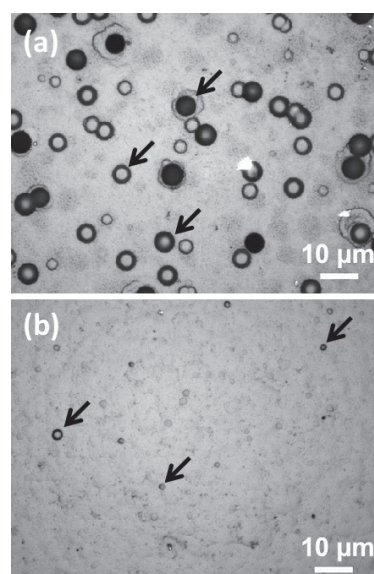


図 5 エッチング後の PC (a) と PET (b) 表面の光学顕微鏡写真

付した。円錐状で黒く観察される通常のエッチピットに加えて、中心部の白いエッチピットが存在する。飛程が短い場合にはエッチピット先端部が丸くなるため、顕微鏡観察時に中心部が白く観察される。図 5 から分かるように、PC と PET のいずれにもエッチピットが形成されており、グラフェンを構成する炭素イオンのみならず、表面に付着している水などに由来する酸素イオンも加速されていることがわかる。これは、イオン加速実験は高真空下で実施しているが、表面の不純物を除去しきれないためである。一方で、2 層目以降の PC と PET にはエッチピットが確認されなかった。即ち、1 枚の PC 及び PET を貫通するエネルギーを持つ炭素及び酸素イオンは存在しなかったことが分かる。1 層目表面に形成されたエッチピット数を計数し、PC と PET の差を求めたところ、グラフェンから加速された 14 MeV を超える重イオンのうち、 $93 \pm 1\%$ が炭素イオンで、7

±1% が酸素イオンであることが判明した。本計測により、レーザー加速イオンに対して初めて炭素イオンの純度を求めることができた。本研究で開発した検出手法を用いることで、より高純度な炭素イオンビーム発生に向けた研究が加速され、その応用に一步近づくものと期待される。

4 ま と め

レーザープラズマ粒子加速と固体飛跡検出器を利用したイオン計測を紹介した。

固体飛跡検出器は古くから用いられている検出器であるが、その特性を活かし、近年盛んに行われているレーザープラズマ粒子加速実験に適用されている。固体飛跡検出器による計測技術を向上させることで、グラフェンを用いたレーザープラズマ粒子加速実験において炭素イオンが優位に加速されていることを明らかにし、高純度の炭素イオンビームを生成できる可能性を見いだした。

文 献

- 1) A. Higginson, R. J. Gray, M. King, R. J. Dance, S. D. R. Williamson, N. M. H. Butler, R. Wilson, R. Capdessus, C. Armstrong, J. S. Green, S. J. Hawkes, P. Martin, W. Q. Wei, S. R. Mirfayzi, X. H. Yuan, S. Kar, M. Borghesi, R. J. Clarke, D. Neely, P. McKenna : *Nat. Commun.*, **9**, 724 (2018).
- 2) Y. Kuramitsu, T. Minami, T. Hihara, K. Sakai, T. Nishimoto, S. Isayama, Y. T. Liao, K. T. Wu, W. Y. Woon, S. H. Chen, Y. L. Liu, S. M. He, C. Y. Su, M. Ota, S. Egashira, A. Morace, Y. Sakawa, Y. Abe, H. Habara, R. Kodama, L. N. K. Döhl, N. Woolsey, M. Koenig, H. S. Kumar, N. Ohnishi, M. Kanasaki, T. Asai, T. Yamauchi, K. Oda, Ko. Kondo, H. Kiriya, Y. Fukuda : *Sci. Rep.*, **12**, 2346 (2022).
- 3) A. Macchi, M. Borghesi, M. Passoni : *Rev. Mod. Phys.*, **85**, 751 (2013).
- 4) H. Daido, M. Nishiuchi, A. S. Pirozhkov : *Rep. Prog. Phys.*, **75**, 056401 (2013).
- 5) R. Matsui, Y. Fukuda, Y. Kishimoto : *Phys. Rev. Lett.*, **122**, 014804 (2019).
- 6) M. Kanasaki, A. Hattori, H. Sakaki, Y. Fukuda, A. Yogo, S. Jinno, M. Nishiuchi, K. Ogura, K. Kondo, K. Oda, T. Yamauchi : *Radiat. Meas.*, **50**, 46 (2013).
- 7) K. Ogura, M. Nishiuchi, A. S. Pirozhkov, T. Tanimoto, A. Sagisaka, T. Zh. Esirkepov, M. Kando, T. Shizuma, T. Hayakawa, H. Kiriya, T. Shimomura, S. Kondo, S. Kanazawa, Y. Nakai, H. Sasao, F. Sasao, Y. Fukuda, H. Sakaki, M. Kanasaki, A. Yogo, S. V. Bulanov, P. R. Bolton, K. Kondo : *Opt. Lett.*, **37**, 2868 (2012).
- 8) H. Sakaki, M. Kanasaki, Y. Fukuda, M. Nishiuchi, T. Hori, A. Yogo, S. Jinno, K. Niita : *Rev. Sci. Instrum.*, **84**, 013301 (2013).
- 9) S. Jinno, M. Kanasaki, M. Uno, R. Matsui, M. Uesaka, Y. Kishimoto, Y. Fukuda : *Plasma Phys. Control. Fusion*, **60**, 044021 (2018).
- 10) M. Kanasaki, T. Yamauchi, K. Oda, Y. Fukuda : *Progress in Ultrafast Intense Laser Science XV. Topics in Applied Physics*, **136**, 133 (2020).
- 11) T. Asai, M. Kanasaki, S. Jinno, N. Kitagawa, N. Shutoh, S. Kodaira, T. Yamauchi, K. Oda, K. Morishima, Y. Fukuda : *High Energy Density Phys.*, **32**, 44 (2019).
- 12) M. A. Rana, I. E. Qureshi : *Nucl. Instrum. Methods. B*, **198**, 129 (2002).
- 13) F. Leonardi, M. Caresana, M. D'Alessandro, R. Mishra, S. Tonnarini, R. Trevisi, M. Veschetti : *Radiat. Meas.*, **44**, 787 (2009).
- 14) N. Yasuda, M. Yamamoto, N. Miyahara, N. Ishigure, T. Kanai, K. Ogura : *Nucl. Instrum. Methods. B*, **142**, 111 (1998).
- 15) S. Kodaira, N. Yasuda, N. Hasebe, T. Doke, S. Ota, K. Ogura : *Nucl. Instrum. Meth. A*, **574**, 163 (2007).
- 16) K. Ogura, T. Hattori, M. Asano, M. Yoshida, H. Omichi, N. Nagaoka, H. Kubota, R. Katakai, H. Hasegawa : *Radiat. Meas.*, **28**, 197 (1997).
- 17) K. Ogura, M. Asano, N. Yasuda, M. Yoshida : *Nucl. Instrum. Methods. B*, **185**, 222 (2001).
- 18) S. Kodaira, K. Morishige, H. Kawashima, H. Kitamura, M. Kurano, N. Hasebe, Y. Koguchi, W. Shinozaki, K. Ogura : *Nucl. Instrum. Methods. B*, **383**, 129 (2016).
- 19) T. Yamauchi, K. Matsukawa, Y. Mori, M. Kanasaki, A. Hattori, Y. Matai, T. Kusumoto, A. Tao, K. Oda, S. Kodaira, T. Konishi, H. Kitamura, N. Yasuda, R. Barillon : *Appl. Phys. Express*, **6**, 046401 (2013).
- 20) T. Hihara, M. Kanasaki, T. Asai, T. Kusumoto, S. Kodaira, H. Kiriya, K. Oda, T. Yamauchi, W. Y. Woon, Y. Kuramitsu, Y. Fukuda : *Sci. Rep.*, **11**, 16283 (2021).
- 21) J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, J. P. Biersack : *Nucl. Instrum. Methods. B*, **268**, 1818 (2010).



金崎真聡 (Masato KANASAKI)

神戸大学大学院海事科学研究科 (〒658-0022 兵庫県神戸市東灘区深江南町 5-1-1)。神戸大学大学院海事科学研究科博士課程後期課程修了。博士 (工学)。《現在の研究テーマ》レーザー加速イオン計測の高精度化。《趣味》釣り, お酒。
E-mail : kanasaki@maritime.kobe-u.ac.jp