

# 先端マイクロ波分光による有機エレクトロニクス材料の基礎物性研究

大阪大学大学院工学研究科<sup>a</sup>、京都大学化学研究所<sup>b</sup>、JST さきがけ<sup>c</sup>

石田直輝<sup>a</sup>、若宮淳志<sup>b,c</sup>、佐伯昭紀<sup>a,c,\*</sup>

Fundamental Property of Organic Electronic Materials Studied by Advanced Microwave Spectroscopy

Graduate School of Engineering, Osaka University<sup>a</sup>  
Institute of Chemical Research, Kyoto University<sup>b</sup>, JST-PRESTO<sup>c</sup>

Naoki Ishida<sup>a</sup>, Atsushi Wakamiya<sup>b,c</sup>, Akinori Saeki<sup>a,c,\*</sup>

Organic-inorganic hybrid perovskites provide not only an exceptionally rich area of research, but also remarkable power conversion efficiency relevant to commercial use. However, developing efficient organic hole transport layers remains challenging, due partly to the subtle electronic behavior of perovskite and complications introduced by the use of reactive dopants. Here we show, through time-resolved microwave conductivity, the quantification of hole transfer process from methylammonium lead triiodide perovskite to eight kinds of conjugated polymers with and without a Li dopant. The time evolution of hole transfer yield is characterized by kinetic parameters, which are further examined in conjunction with solar cell performance, energetics, and temporal profiles triggered by exposure to air at the minute scale. Using statistics and LASSO (least absolute shrinkage and selection operator) analysis, we identify an accurate descriptor that correlates with device output. This work explores the design of organic hole transport materials, and the presented evaluation technique may be employed as a facile screening method.

ABX<sub>3</sub>構造から成るペロブスカイト材料は1980年代には高温超伝導体材料として、1990年代以降にはLEDデバイスとして、さらに2012年以降には塗布型ペロブスカイト太陽電池材料として顕著な注目を集めている(図1)。特に有機無機ハイブリッド・ペロブスカイト太陽電池研究の発展は著しく、2016年には最高セル変換効率は無機化合物太陽電池と同程度の22%まで上昇した。この有機無機ペロブスカイト太陽電池はAサイトとしてメチルアンモニウムカチオン(CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub><sup>+</sup>: MA)、Bサイトとして鉛イオン(Pb<sup>2+</sup>)、Xサイトとしてヨウ素イオン(I<sup>-</sup>)で構成され、色素増感太陽電池の優れた光電変換能を有しながら有機薄膜太陽電池のように全固体型であり、色素増感太陽電池の時にボトルネックであった開放電圧のロスが非常に小さい特徴を持つ。しかし、その光電気物性は未だ不明な点が多く、多種多様な評価法や計算科学による研究が活発に進められている<sup>1)</sup>。すでに実用化されているシリコンや化合物半導体(Cu-In-Ga-Se: CIGS等)太陽電池は、変換効率(20~25%)と耐久性(>10年)の点で非常に優れているが、高品質結晶を作成するための高温プロセスや真空プロセスを多用するため、価格とペイバックタイム(初期投資を回収するための時間)の点では化石燃料と比べて純粋な採算ベースに乗るとは言えない状況である。また、

衝撃に脆いため強固な枠材に固定しなければならず、重量・設置コストがかさんでしまう。また、それに付随して、重量に耐える屋上・屋根や地面といった場所に設置が制限される。一方、ペロブスカイト太陽電池や有機薄膜太陽電池は低コスト・軽量化が可能であり、既存太陽電池とのタンデム化による高効率化や、従来にない用途への展開が期待できる。しかし、高効率化の課題と共に、Pbの毒性や高安定性を満たす優れた薄膜形成プロセスの開発と非鉛材料の探索が急務である。

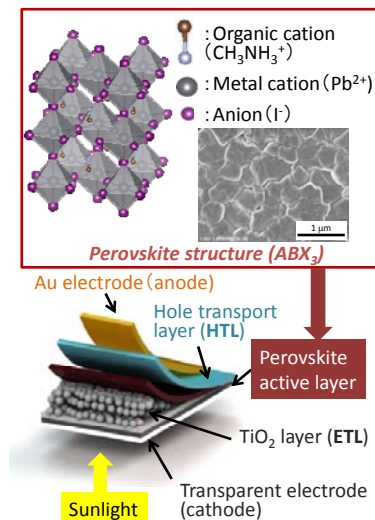


図 1. 有機無機ペロブスカイト太陽電池

\* A. Saeki, 06-6879-4587, saeki@chem.eng.osaka-u.ac.jp

本研究でHTLとして用いた高分子の化学構造を図2aに示す<sup>2)</sup>。PTAAの他に、フルオレン(F)・トリフェニルアミン(T)共重合体:FT37・FT55・FT73(数字はFとTの割合)、ジオクチルフルオレン・ビチオフェン交互共重合体(F8T2)、キノキサリン・チオフェン交互共重合体(TQ1)、ポリパラフェニレンビニレン(MDMO-PPV)、立体規則性ポリチオフェン(P3HT)の計8種類をHTLとして用いた。これらの高分子の最低非占有軌道(LUMO)準位はMAPbI<sub>3</sub>ペロブスカイトの最低伝導帯準位(CBM: -3.90 eV)よりも0.4 eV以上浅いため、電子ブロッキング層として機能すると考えられる。一方で、最高占有軌道(HOMO)準位は-5.59 eVから-4.92 eVの間にあり、MAPbI<sub>3</sub>の最高価電子帯準位(VBM: -5.50 eV)付近に存在するため、ホール移動効率に違いが出るのが予想される<sup>2,3)</sup>。

実際に、これらの高分子をHTLとして用いたペロブスカイト太陽電池の電流(*J*)—電圧(*V*)曲線を図2bに示す。高性能HTLとして知られるPTAAのPCEは、順・逆掃引の平均値で17.1%を示し、高い*J*<sub>sc</sub>(22.6 mA/cm<sup>2</sup>)、開放電圧*V*<sub>oc</sub>(1.01 V)、曲線因子FF(0.749)が得られた。しかし、HTLによっては1.5%までPCEが減少し、HTLの電子物性がデバイス性能を大きく左右することが分かった。

太陽電池素子性能は、HTLだけに着目すると活性層からHTLへのホール移動効率( $\eta_{HT}$ )、HTL中のホール輸送効率( $\eta_{HTP}$ )、HTLから電極へのホール捕集効率( $\eta_{HC}$ )の積( $\eta_{HT} \times \eta_{HTP} \times \eta_{HC}$ )で決定される。したがって、JV曲線と素子パラメータだけでは、どの因子が変化しているのかを判断することはできない。しかし、TRMC法ではナノ秒の時間分解能で $\eta_{HT}$ のみを直接定量できるため、HTLのHOMO準位との相関や化学構造に関する有益な情報を得ることが可能である。時間分解能内で電子はTiO<sub>2</sub>相に移動しているため、電荷再結合や移動度緩和による減衰は顕著ではない。しかし、この膜にPTAAやFT55といったHTLを塗布した試料では、ピーク値の減少と遅い減衰が観測された。共役高分子のTRMCホール移動度はMAPbI<sub>3</sub>と比べて2桁近く低いため、HTLへホールが移動するとTRMC信号は大きく減少する。この原理に基づき、HTL有無でのTRMC信号の比を取ることで、ホール移動効率の時間挙動 $\eta_{HT}(t)$ を実験的に定量することに成功した。その結果、太陽電池素子で高効率(17.1%)を示すPTAAでは、10 ns程度で $\eta_{HT}$ は0.8程度となり、その後1  $\mu$ s以内で1(=100%)にまで到達した。一方、PCE=7.65%を示したFT55の $\eta_{HT}$ は10 nsで0.6程度であり、その後もわずかしか増加しなかった。TRMC評価を行った結果、ホール移動効率と*J*<sub>sc</sub>に高い相関が得られ、素子性能が異種界面での

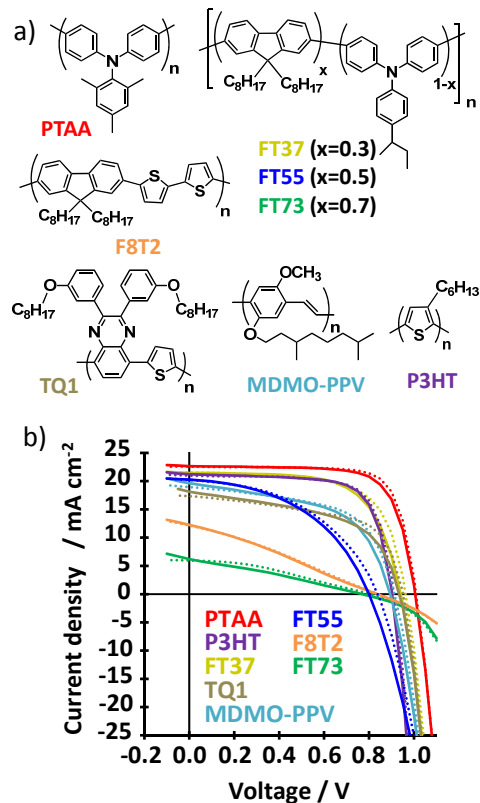


図 2. a) ホール輸送層として用いた高分子構造。b) 各高分子を HTL としたときのペロブスカイト太陽電池電流・電圧特性。

電荷移動によって支配されていることが分かった。

本研究では太陽電池素子を作製することなく、安定・高速に評価が可能なマイクロ波分光法(TRMC)を用いて有機無機ペロブスカイト太陽電池のHTL材料評価を行った<sup>2)</sup>。この知見に基づき、高性能HTL材料開発に向けた化学構造・HOMO準位の設計に関する考察を行った。本手法はHTL材料だけでなく、非鉛ペロブスカイト材料や光触媒材料の探索にも有効であり、また、実験的高速スクリーニングとデータ科学の融合が材料研究に有用であることも示した。

## Reference

- 1) H. Oga, A. Saeki, Y. Ogomi, S. Hayase, S. Seki, *J. Am. Chem. Soc.* **136** (2014) 13818.
- 2) N. Ishida, A. Wakamiya, A. Saeki, *ACS Photonics* **3** (2016) 1678.
- 3) H. Nishimura, N. Ishida, A. Shimazaki, A. Wakamiya, A. Saeki, L. T. Scott, Y. Murata, *J. Am. Chem. Soc.* **137** (2015) 15656.

# ガンマ線およびイオンビーム照射による出芽酵母の突然変異誘発に関する研究

ラジオアイソトープ総合センター<sup>a</sup>、産研量子ビーム科学研究施設<sup>b</sup>、福井大学大学院工学研究科<sup>c</sup>

清水喜久雄<sup>a\*</sup>、藤乗幸子<sup>b</sup>、松尾陽一郎<sup>c</sup>

## Molecular analysis of ionizing radiation induced mutations in the budding yeast

Kikuo Shimizu<sup>a</sup>, Sachiko Tojo<sup>b</sup>, Youichirou Matuo<sup>c</sup>

Radioisotope Research Center<sup>a</sup>, Research Laboratory for Quantum Beam Science<sup>b</sup>,  
and Graduate School of Engineering, University of Fukui<sup>c</sup>

Our research group has been studying ionizing radiation induced mutation of the budding yeast, S288c (*RAD<sup>+</sup>*) as model of eukaryote cell. The yeast cells were irradiated with gamma and ions beams with various LET. Ion beam was generated from synchrotron in HIMAC and TIARA. When we analyzed the survival rate with different radiations, the survival rate was reduced along with the LET. While the mutation frequencies were enhanced along with the LET. The mutation frequency increased consistently with LET. This result indicates the high LET ion beam is more mutagenic than low LET ion beam.

### 【研究の目的とバックグラウンド】

近年、高 LET のイオンビームが、植物等の品種改良のための変異原として用いられ、成果を挙げている[1]。我々はこれまでに、高 LET のイオンビームによる突然変異誘発の分子機構を明らかにするために、真核生物の出芽酵母(*Saccharomyces cerevisiae*)をモデルとして研究を行ってきた。LETが13~107keV/ $\mu$ mの炭素イオンビームを照射した場合、LETの増加に伴って致死率および *URA3* 遺伝子の突然変異誘発率が上昇する傾向があること、ならびに突然変異の分布として、ヌクレオソーム構造のリンカーDNAにおいて局所的に突然変異が誘発されたことを明らかにしてきた[2]。これらの高 LET のイオンビームの特徴の要因として、イオンビームの LET が高い場合、電離領域は飛跡(トラック)周辺に限定されるため、狭い領域での DNA 二本鎖切断などの特徴的な“クラスター損傷”が誘発されるためであると考えられる[3]。本年度は、107keV/ $\mu$ m以上の LET イオンビームとして、ネオンイオンビームを照射した場合の *URA3* 遺伝子の突然変異誘発率について調べた。

### 【実験方法】

出芽酵母細胞(S288c 株)をセルロースフィルター上に配置し、高崎量子応用研究所 イオン照射研究施設(TIARA)においてネオンイオンビーム(Total energy: 260 MeV, LET: 428 keV/ $\mu$ m および Total energy: 350 MeV, LET: 317 keV/ $\mu$ m)を照射した。照射した出芽酵母細胞について、5-FOA を含む選択培地を用いて、*URA3* 遺伝子の変異体(*ura3*)を選択し、突然変異誘発率を得た。また、これまでの実験結果として、炭素イオンビーム(Total energy: 220 MeV, LET: 107 keV/ $\mu$ m)を照射した結果と比較した。さらに放射線医学総合研究所 重粒子線がん治療装置(HIMAC)において炭素イオンビーム(Total energy: 290 MeV, LET: 13, 50, 75 keV/ $\mu$ m※バイナリーフィルターを用いて LET を変化させた)を照射した場合の結果と比較した。

### 【研究結果】

図 1 に炭素およびネオンイオンを照射した場合の *URA3* 突然変異誘発率を示す。炭素イオンビームについては LET の上昇に伴って *URA3* 突然変異誘発率が

\* K. Shimizu, [shimizu@irc.osaka-u.ac.jp](mailto:shimizu@irc.osaka-u.ac.jp), 06-6850-6103

上昇し、かつ 100Gy で突然変異率が最大となる傾向となっている。一方、ネオンイオンビームについては、LET が  $428\text{keV}/\mu\text{m}$  と比較して低い  $317\text{keV}/\mu\text{m}$  の条件の方が突然変異誘発率は高く、LET 依存性は示さないことがわかった。さらに炭素イオンビームと比較してもネオンビームの突然変異誘発率は低いことが示された。これは、ある LET 以上では局所的な DNA 損傷量が飽和する現象"オーバーキル"の状態にあるためであると考えられる。今後、生存率や DNA 切断頻度の結果とも比較して、この仮説を明らかにしていく計画である。

#### 参考文献

- [1] T. Nebiki *et al.*, J. Vac. Sci. Tech., A **21**, 167 (2003).
- [2] N. Stolterfoht *et al.*, Phys. Rev. Lett., **88**, 133201 (2002).
- [3] K. Motohashi, Y. Saitoh, N. Miyawaki, Y. Matsuo, Jpn. J. Appl. Phys., **52**, 0763 (2013).

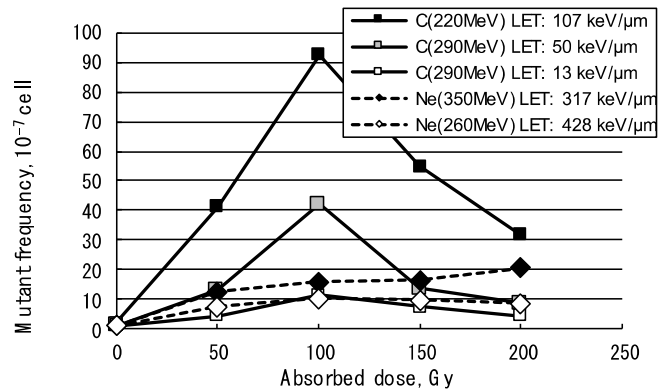


図 1. 炭素およびネオンイオンビームを照射した場合の URA3 突然変異誘発率

# 核融合炉用超電導磁石絶縁材料の照射効果に関する研究

工学研究科 環境エネルギー工学専攻<sup>a</sup> / 工学部 環境エネルギー工学科<sup>b</sup>

西嶋 茂宏<sup>a\*</sup>, 秋山 庸子<sup>a</sup>, 小林 浩二<sup>a</sup>, 鬼頭 駿介<sup>b</sup>

Study of Irradiation Effect on Insulating Materials for Superconducting Magnet in Nuclear Fusion Reactor

Graduate School of Engineering<sup>a</sup> / Engineering Department<sup>b</sup>

Shigehiro Nishijima<sup>a\*</sup>, Yoko Akiyama<sup>a</sup>, Koji Kobayashi<sup>a</sup>, Shunsuke Kito<sup>a</sup>

Since the increase of energy demands and the exhaustion of energy resources are expected, nuclear fusion energy is being studied as one of new resources. In ITER, the plasma of deuterium and tritium are controlled by superconducting magnets to cause a nuclear fusion reaction. However, superconducting magnets in ITER are exposed to neutron rays generated by nuclear fusion reaction and secondary radiation such as gamma rays. In the insulation materials of superconducting magnet, polymer material having high radiation sensitivity is used, so it may be deteriorated by irradiation.

In this study, glass fiber reinforced plastic (GFRP) made of epoxy resin and glass fiber and Hybrid composite made of GFRP and polyimide film were prepared. They are irradiated with gamma ray, and breakdown voltages of them were measured. After irradiation, the breakdown voltage per 1 mm of GFRP increased and the voltage of Hybrid composite decreased.

## 1. 研究背景と研究目的

現在建設中の国際熱核融合実験炉 ITER では超電導磁石によって燃料プラズマを制御し、核融合反応を起こしている。超電導磁石のうち TF(トロイダルフィールド)コイルは他の超電導磁石に比較してプラズマからの距離が近く、核融合反応によって生じた放射線の影響を強く受ける。超電導磁石の構成要素の中でも絶縁材料に使用される高分子材料は、放射線感受性が高い上に電磁力による機械的劣化が起こると絶縁性能が低下することが知られている。しかし、超電導磁石の遮断時には高電圧が負荷されるので、ITERの絶縁材料では絶縁性能を向上させるため、強化材のガラスクロスと絶縁性能の高いポリイミドフィルムを積層し、樹脂を含浸、硬化させたハイブリッド複合材料を使用している。

図 1 に絶縁材料の構造を示す。絶縁フィルムによって貫層方向については絶縁性能の向上が期待できるが、沿層方向の絶縁はポリイミドフィルムによる絶縁を望めないため、貫層方向に比べ

て絶縁性能が低くなると考えられる。そのため、本研究では絶縁材料に放射線を照射したときの沿層方向の絶縁性能の変化を調べることを目的として、絶縁材料に対し $\gamma$ 線の照射と絶縁破壊試験を行った。

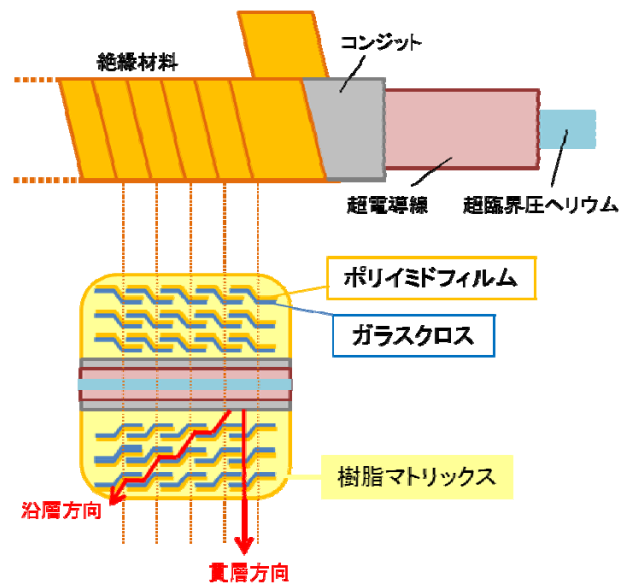


図 1 絶縁材料の構造

\* S. Nishijima, 06-6879-7896, nishijima@see.eng.osaka-u.ac.jp

## 2. 絶縁破壊試験とその結果

本研究では、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂 (Diglycidyl ether Bisphenol A, DGEBA) をマトリックスとしたガラス繊維強化プラスチック (Glass Fiber Reinforced Plastic, GFRP) と、GFRP にポリイミドフィルム挟むことで絶縁性能を向上させたハイブリッド複合材料 (Hybrid) を作製し、図 1 に示したような形状に加工した。加工した試験片は大気雰囲気環境下で  $\gamma$  線を照射した後、絶縁破壊試験を行った。

放射線照射は  $^{60}\text{Co}$  線源により  $\gamma$  線を最大 10 MGy まで照射した。照射は室温、大気雰囲気、常圧で行い、線量率は 42 kGy/h で行った。

絶縁破壊試験は絶縁破壊試験器 (超高電圧耐圧試験機 7474, 計測技術研究所) を用い、昇圧速度 0.5 kV/s, 電極として SUS304 の針-円板電極を用いて沿層方向に対して行った。破壊電圧を試験片厚さで除することで試験片の単位厚さ当たりの耐電圧 (絶縁耐力) を算出した。

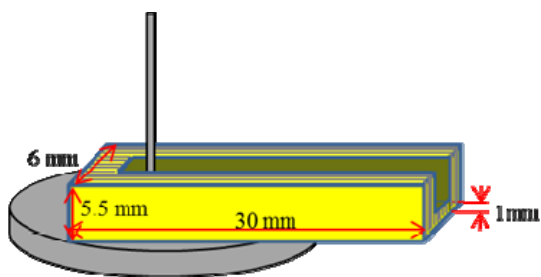
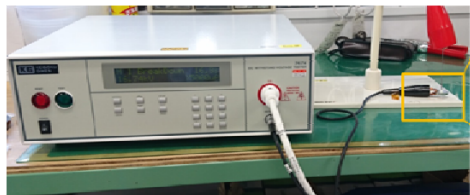


図 1 絶縁破壊試験片と電極

図 2 に GFRP と Hybrid の絶縁破壊試験の結果を示す。横軸は試験片の吸収線量、縦軸は単位厚さ当たりの絶縁破壊電圧である絶縁耐力の平均を示している。GFRP は  $\gamma$  線照射後、絶縁耐力が増加した。一方 Hybrid は  $\gamma$  線照射後、絶縁耐力が減少した。GFRP における絶縁耐力の減少の理由の 1 つと

して、図 3 に示す GFRP への  $\gamma$  線照射による試験片の収縮が考えられる。

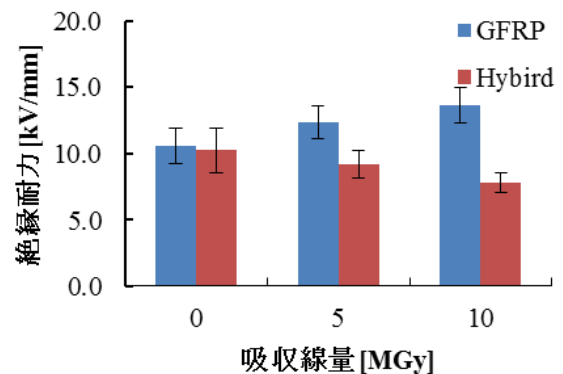


図 2 GFRP と Hybrid の絶縁耐力

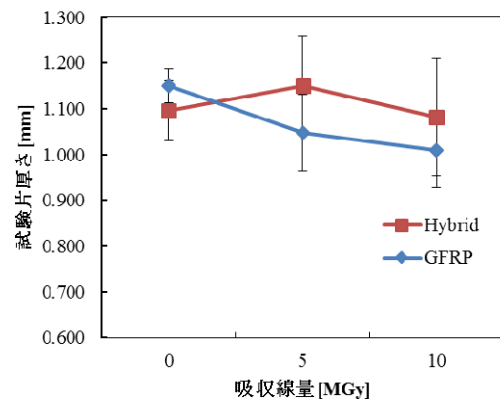


図 3 GFRP と Hybrid の試験片厚さ変化

## 3. 今後の方針

上記の結果から、 $\gamma$  線照射を行った場合、沿層方向の絶縁耐力は、フィルムを挟むことで低下することが分かった。

実際の ITER での使用環境を考慮すると、電磁力による機械的劣化と組み合わせることで絶縁耐力の更なる低下が予想される。ITER で使用される絶縁材料の様な積層型の複合材料は、ガラス繊維で支持できないせん断方向の強度が低い。そのため、今後はせん断応力下での絶縁破壊試験を行い、応力下での絶縁耐力の変化を調べる予定である。また、絶縁材料は液体ヘリウム温度で使用されるため、極低温下での絶縁破壊試験も併せて行う予定である。

# LHC ATLAS 実験での半導体放射線検出器読み出し用 ASIC のガンマ線照射による動作研究

理学部物理学専攻<sup>a</sup>

今坂俊博<sup>a\*</sup>、花垣和則<sup>a</sup>、南條創<sup>a\*\*</sup>

Study of ASIC operation under gamma irradiation for the readout of semiconductor particle detector used in the ATLAS experiment at LHC

Dept. of Physics<sup>a</sup>,

Toshihiro Imasaka<sup>a</sup>, Kazunori Hanagaki<sup>a</sup>, Hajime Nanjo<sup>a</sup>

The ATLAS experiment is studying the Higgs boson and is searching for new physics in the particle physics by using proton-proton collision at LHC in CERN. A new semiconductor particle detector was installed in the area closest to the proton interaction point, where radiation environment is severe. For the detector, an ASIC was developed for the signal readout, and is used in the ATLAS experiment. The operation in 2015 and 2016 was unstable in the current consumption and the threshold corresponding to the input charge. We studied the operation of ASIC under the gamma irradiation at Sanken. The similar tendency was observed in the current consumption and the threshold. We monitored the pulse height corresponding to the amount of input charge used in the calibration, and concluded that it doesn't contribute to the instability in the operation at ATLAS.

欧州原子核研究機構(CERN)の大型陽子陽子衝突型加速器(LHC)において、Higgs粒子の研究や新しい素粒子物理現象の探索を目的に、ATLAS実験が稼働している<sup>1)</sup>。2014年末には、この陽子衝突近傍に新たに半導体放射線検出器をインストールし、その性能の向上を測っている。この放射線検出器の信号読み出しには、専用IC(ASIC)が開発され、これを用いたデータ取得を行っている。

2015年、2016年のATLAS実験のデータ取得の際は、この新規導入した読み出しASICを含む半導体検出器の動作が安定せず、ガンマ線による放射線ダメージが検討された。この原因を追求すべく、読み出しASICのガンマ線照射試験を産研<sup>60</sup>Coソースを用いて行った。

読み出しASICは、20mm x 18.6mmのサイズで、250umx50umの単位で、26,880チャンネルの読み出し数を賄う。半導体センサーからの電荷入力に対して、2段階の増幅、整形を行う。ま

た、電圧波高に対しthresholdを設け、ヒット判定を行うことができる。このthresholdは、ASICのレジスタにより設定し、可変である。この値を入力電荷に換算するため、アンプ回路への電荷入力較正システムを備えている。入力電荷を変化させ、ヒット効率を計算することで、thresholdに対応する入力電荷を求める。

2015,2016年のATLAS実験で顕著であったのが、ASICの入力電荷換算のthresholdの変動、および消費電流の変動である。時間とともに放射線量が増加するにつれて、入力電荷換算threshold及び消費電流が増加したのち減少に転じた。ガンマ線による入力電荷換算thresholdの変動についてはいくつかの原因が考えられ、今回の産研での<sup>60</sup>Coガンマ線照射で調査できるもの、できないものがある。1)ガンマ線によるダメージで電荷入力較正システムの入力電荷が意図しないものになっている。これについては、ASIC内部で生成する、入力電荷量に応じた波高をもつ矩形波を、外部出力することができる。これをモニターすることで調査できる。2)アンプ回路での増幅率の変動。thresholdレベルは変化がなくても、入力

\* T. Imasaka, 06-6850-5122, nanjo@champ.hep.sci.osaka-u.ac.jp

osaka-u.ac.jp; \*\*H. Nanjo, 06-6850-5357,

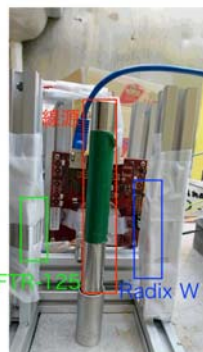
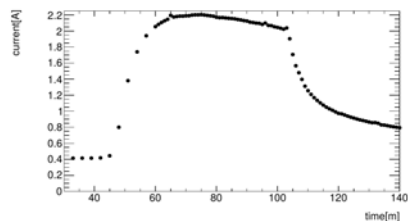


図1: ガンマ線照射セットアップ。<sup>60</sup>Co線

換算電荷あたりの波高が変化すると、入力換算電荷 thresholdが変化する。これを直接モニターすることはできなかった。3)thresholdレベルの変化。thresholdレベルの決め方は以下のようにになっている。DAC(digital to analog converter)を介して、トランジスタのバイアス電圧を設定する。これが回路内部で threshold levelに反映される。この2段階を経て thresholdレベルが決まる。DACの出力値はモニターできるが、これが直接のthresholdレベルではないので、原因の断定は難しい。

産研でのガンマ線照射試験について述べる。セットアップは図1のようになっている。168TBqの<sup>60</sup>Co線源から5cmの位置にASICを設

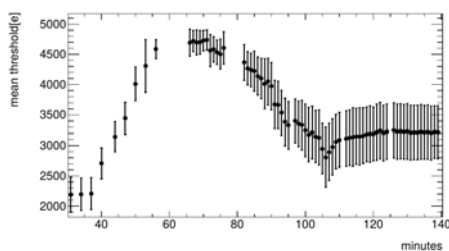
図3. 消費電流のレベル



置した。また、線量モニター用にPMMA板(Radix W)及び三酢酸セルロースフィルム線量計(FTR-125)を同じ距離に設置した。1時間の照射で、この線量モニターの測定より 1.3Mradの照射量となり、2015年にATLAS実験でASICが受けた放射線量と同等である。この照射の最中に、thresholdの変化や、DACの出力をモニターした。

図2に消費電流の変化、図3に入力電荷換算 thresholdの変化を示した。ガンマ線照射量の増加とともに、それぞれ上昇し、下降する様子が観測され、ATLAS実験での様子と同様の変化とみなせる。

図4にその際の電荷入力較正用の入力電荷量を決定する矩形波



の波高の変動を示す。入力電荷換算 thresholdの変動に対し、十分小さな変化であり、ガンマ線による動

作の不安定性には寄与しない。

DACの値については、ガンマ線照射による変動が見られたものの、thresholdレベルとコンシステントな変動をするDAC値はなく、これにより動作不安定性を説明するには至らなかった。

以上により、ガンマ線によるASIC動作不安定性を再現し、その原因についての研究を行った。結果、電荷入力較正システムはガンマ線照射において十分安定であり、不安定性の原因からは除外することができた。ASICの不安定性について方向性を与えることが出来、今後はその他の要因についての研究に集中することができる。

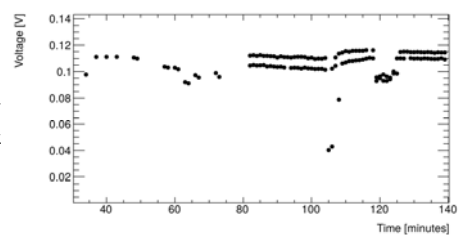


図4: 入力電荷量を定める矩形波の波

#### Reference

- 1) **The ATLAS Collaboration: JINST 3 S08003(2008)**



# THz-FEL 照射による磁気ドメインの変化

阪大レーザー研<sup>a</sup>、阪大産研量子ビーム発生科学研究分野<sup>b</sup>

中嶋誠<sup>a\*</sup>、栗原貴之<sup>a</sup>、加藤康作<sup>a</sup>、弘田和将<sup>a</sup>、邱紅松<sup>a</sup>、高野恵介<sup>a</sup>、菅田 義英<sup>b</sup>、磯山悟朗<sup>b</sup>

Change of the magnetic domain by the THz-FEL irradiation

Institute for Laser Engineering<sup>a</sup>, the Institute of Scientific and Industrial Research<sup>b</sup>

M. Nakajima<sup>a</sup>, T. Kurihara<sup>a</sup>, K. Kato<sup>a</sup>, K. Hirota<sup>a</sup>, H. Qiu<sup>a</sup>, K. Takano<sup>a</sup>, Y. Honda<sup>b</sup>, G. Isoyama<sup>b</sup>

The change of the magnetic domain in ErFeO<sub>3</sub> by the THz-FEL irradiation was investigated at room temperature and around spin reorientation phase transition temperature. The magnetic domain structure was probed by the optical Faraday effect. The irradiation of THz-FEL pulse of 5~10mJ/pulse induced the change of magnetic domain pattern.

磁気ドメインの制御は、メモリ・記録方法として、スピントロニクスにおける重要な課題であり、多くの研究が行われている。近年我々のグループでは、フェムト秒パルス励起によって生じるテラヘルツ波パルスの磁場成分を用いることによって、スピン歳差運動のコヒーレント制御や、テラヘルツ波パルスと光パルス励起を組み合わせ、テラヘルツ波パルスを照射するタイミングによって、スピン再配列前後における磁気ドメインの配向方向を制御できることを報告している[1,2]。本研究では、さらに高強度な励起を行うことが可能なTHz-FELを用いて、磁性体中に照射することによって、その磁気ドメインの構造がどのように変化するかを観測したので、現状での成果を報告する。

実験にもちいた光源は、大阪大学産業科学研究所THz-FELであり、波長は ~70 $\mu\text{m}$  (~4.3THz)、最大照射パワー ~10mW、マクロパルスの繰り返し周波数は 5 Hz である。測定試料である磁性体ErFeO<sub>3</sub> (厚さ100 $\mu\text{m}$ ) を、クライオスタット内に設置し、その試料にHeNeレーザー光を照射し、その透過光をクロスニコル配置にして、CCDカメラでその透過光像を取得することで、ファラデー効果により磁気ドメインの観察を行った。この状態でTHz-FELパルスを照射することによって、磁気ドメインがどのように変わるかを観測した。THz-FELの試料上でのスポットサイズは数100 $\mu\text{m}$ である。

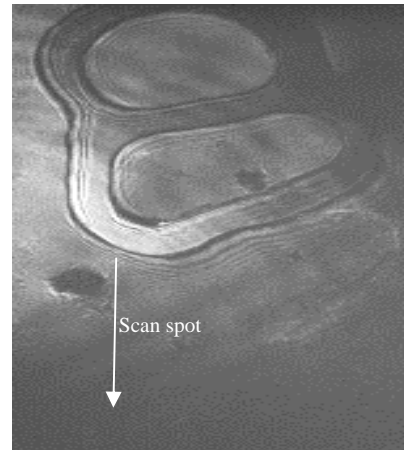


図1 THz-FEL 照射による磁気ドメイン変化(上下:照射前後)

\* M. Nakajima, 06-6879-4225, nakajima-m@ile.osaka-u.ac.jp

図1にTHz-FEL照射前後におけるドメイン構造のCCD像を示す。図1は横軸がおよそ1mmに相当する。照射前には、数字の8の字状の形状をしたドメインがみえており、その左下部分にTHz-FELを照射し、それを徐々に下方方向に移動させることで、ドメイン構造が反転し、そのパターンが変化していく様子を観測することができた。このときの励起強度は、8mJ/pulseである。またスピン再配列相転移温度(85-86K)以下においても同様の照射を行い、室温の状態に比べて顕著な変化が観測できている。今後は、非熱・熱効果の区別をはじめそのドメイン変化の機構について明らかにしていきたい。

### Reference

- 1) K. Yamaguchi, M. Nakajima, and T. Suemoto, "Coherent control of spin precession motion with impulsive magnetic fields of half-cycle terahertz radiation", *Physical Review Letters* **105**, 237201 (2010).
- 2) T. Kurihara, H. Watanabe, M. Nakajima, and T. Suemoto, "Coherent Manipulation of Laser-induced Spin Reorientation Dynamics in ErFeO<sub>3</sub> with Intense THz Magnetic Nearfields", 41th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (2016).

# 電子線軌道制御による X 線治療装置の改良に向けた基礎検討

放射線治療学講座<sup>a</sup>、重粒子線治療学寄附講座<sup>b</sup>

坪内俊郎<sup>a\*</sup>、八木雅史<sup>b</sup>、隅田伊織<sup>a</sup>、小川和彦<sup>a</sup>

## Development of a new technique for creating a flat dose distribution without a filter in X-ray radiation therapy: a feasibility study

Dept. of Radiation Oncology<sup>a</sup>, Dept. of Carbon Ion Radiotherapy<sup>b</sup>

Toshiro Tsubouchi<sup>a\*</sup>, Masashi Yagi<sup>b</sup>, Iori Sumida<sup>a</sup>, Kazuhiko Ogawa<sup>a</sup>

To generate a flat dose distribution with flattening-filter-free mode of linac used in radiotherapy, we developed a new concept in which the way of collision of electrons on a target for X-ray generation was changed. The aim of this study is to validate the new concept by Monte Carlo simulations based on experimental data.

X線放射線治療の概要は図1が示すように、線形加速器で加速された電子(数MeV ~ 十数MeV)を金属ターゲットに衝突させ、発生した制動X線を人体の患部に照射するといったものである。従来の放射線治療装置はX線の吸収線量分布を平坦にするために平坦化フィルタ(Flattening Filter: FF)が用いられてきた。FFとはビームライン上に設置された三角錐状の分厚い金属の塊であり、ターゲットで発生したX線はFFを通過した際、体内での吸収線量分布が平坦となる。しかし照射表面が平坦ではない場合や、近年の高精度放射線治療で利用される強度変調放射線治療(IMRT: Intensity-Modulated Radiation Therapy)といった照射技術を使用した場合、吸収線量分布は必ずしも平坦である必要はない。また、上述のとおり金属製のFFは治療に不要な散乱X線源にもなる。さらにFFでX線が吸収されるために、吸収線量率が低下する。

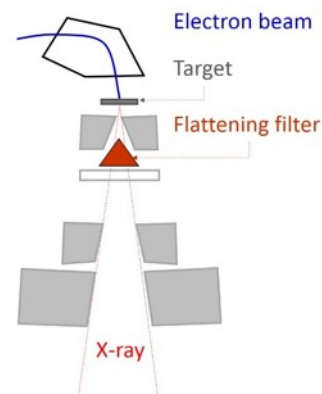


図1 放射線治療装置の概要

最新の放射線治療装置はFFを除去したFFF(Flattening Filter Free)モードが選択できるようになった。FFFモードでは吸収線量率の増加や散乱X線の減少、さらに高エネルギーX線による光核反応で生じる中性子線を減少させることが期待できる。しかしFFFモードのX線の吸収線量分布は平坦ではないので、臨床で頻繁に使用する通常照射野サイズでは非常に使用しにくく、放射線治療適用疾患が従来と比べて限られる。

本研究では、電子の金属ターゲットへの衝突角度を変えることで発生する制動X線の吸収線量分布を平坦化する照射法を提案した(図2)。この照射法ではFFFモードの利点(高吸収線量率)を生かしたまま平坦な線量分布を作りだせる事が可能となるため、臨床において非常に有益である。電子軌道に着目し

\* T. Tsubouchi, 06-6879-3482, tsubouchi@radonc.med.osaka-u.ac.jp;

た研究はいくつかなされおり、<sup>1,2</sup>、本研究では実測データに基づいてシミュレーションを行い、本手法の有効性を示すことを目的としている。

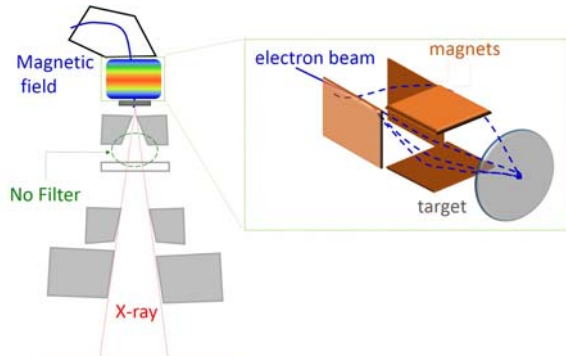


図2 新しい放射線治療装置の提案

今回の実験では、①電子ビームデータ(空間分布・エネルギースペクトル)の測定、②厚さ4 mmのタングステンターゲットを設置し、発生する制動X線の測定。の2点を実施した。空間分布の測定にはラジオクロミックフィルム(EBT3)を使用した。①はPHITSシミュレーションコードで使用する電子線のデータを取得すること、②は電子線データをシミュレーション上で再現できていることを確認するために、シミュレーションで導出したX線分布と比較することを目的としている。

電子線の測定結果を図3に示す。空間分布の半値幅はそれぞれ14 mm(横方向)、6 mm(縦方向)であった。

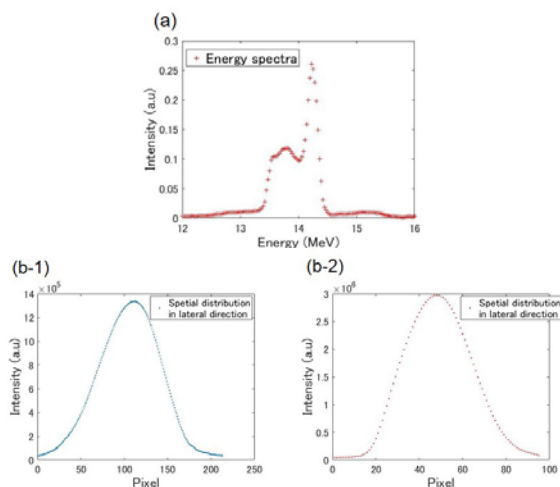


図3 電子線の測定結果 (a)エネルギースペクトルと(b-1)横方向及び(b-2)縦方向の電子線の空間分布

X線の測定結果と、シミュレーション結果の比較を図4に示す。ターゲットの位置を変えた場合でも、実測値と計算値は良い一致を示していることが分かった。これにより測定した電子線はシミュレーション上で精度良く再現されていることを確認した。

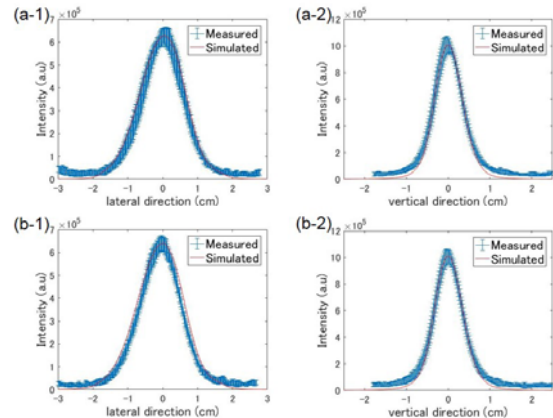


図4 X線分布の測定結果とシミュレーション結果の比較 (a-1) (a-2):ターゲットを電子線の進行方向に垂直に設置した場合で、それぞれ横方向、縦方向の分布 (b-1) (b-2):80度傾けて設置した場合の横方向、縦方向のX線分布

今後、実測に基づくシミュレーションによって水中での線量分布を計算し、ターゲットに対して衝突角度を変えた電子線から発生するX線を組み合わせることで、平坦な吸収線量分布が作りだせる事を示していく予定である。

## Reference

- 1) Zavgorodni, S: Phys Med Biol **58** (2013).
- 2) Tsiamas, P: Med Phys **38** (2011)