Kobe University Repository : Kernel

PDF issue: 2025-07-09

原子核乾板を用いたMeV級レーザー加速陽子線計測

浅井, 孝文 ; 金崎, 真聡 ; 神野, 智史 ; 北川, 暢子 ; 首藤, 信通 ; 小平, 聡 ; 山内, 知也 ; 小田, 啓二 ; 森島, 邦博 ; 福田, 祐仁

(Citation)
神戸大学大学院海事科学研究科紀要,16:27-33

(Issue Date)
2019

(Resource Type)
departmental bulletin paper

(Version)
Version of Record

(JaLCDOI)
https://doi.org/10.24546/81011870

(URL)
https://hdl.handle.net/20.500.14094/81011870

KOBE UNIVERSITY

原子核乾板を用いた MeV 級レーザー加速陽子線計測

Energy measurement of laser-accelerated multi-MeV protons by using nuclear emulsions

浅井孝文*[1,*2]、金崎真聡*[1]、神野智史*[3]、北川暢子*[4]、首藤信通*[1]、
小平 聡*[5]、山内知也*[1]、小田啓二*[1]、森島邦博*[4]、福田祐仁*[2]

**Takafumi ASAI*[1,*2], Masato KANASAKI*[1], Satoshi JINNO*[3], Nobuko KITAGAWA*[4],
Nobumichi SHUTOH*[1], Satoshi KODAIRA*[5], Tomoya YAMAUCHI*[1],
Keiji ODA*[1], Kunihiro MORISHIMA*[4], Yuji FUKUDA*[2]**

(令和元年 7 月 12 日受付)

Abstract

Nuclear emulsions are applied to identify multi-MeV protons accelerated in a laser-driven ion acceleration experiment using a hydrogen cluster target. Because intense laser-matter interactions generate not only ions but also copious electrons, including secondary electrons induced by X-rays, which are recorded as background noise in a nuclear emulsion, they have never been utilized for the detection of laser-accelerated ions. Here, for the first time, we have succeeded in identifying the signals from laser-accelerated protons in nuclear emulsions by suppressing the background noise signals through the use of desensitized development conditions, i.e., a developer solution with a pH of 7.3 and a development time of 25 min. The energy spectrum obtained from a stack of nuclear emulsion films shows good agreement with that obtained from a stack of films of the conventional solid-state nuclear track detector material CR-39, which is sensitive only to ions.

(Received 12 July 2019)

1. 序論

原子核乾板とは写真フィルムの一種であり、荷電粒子の飛跡を三次元的に記録することができる。最小電離粒子まで検出可能な高い感度とサブミクロンの空間分解能といった優れた特徴を持ち、これらを利用すれば CR-39 のような他の固体飛跡検出器に比べてコンパクトなイオン検出器体系を実現することができる[1]。近年では原子核乾板に記録された飛跡の自動読み取り装置[2]の高精度化・高速化が飛躍的に進んだことにより、素粒子実験のほか、巨大構造物の透視を行うミューオンラジオグラフィーや中性子計測など様々な分野に応用が広がりつつある[3-5]。

レーザー駆動イオン加速は高強度レーザーと物質の相互作用を利用した新たなイオン加速手法として注目されており、現在は世界最高で 94 MeV までの陽子線の発生が確認されている[6]。発生したイオンの空間分布とエネルギースペクトルの高精度計測には固体飛跡検出器 CR-39 がもっとも信頼できる検出器として利用されてきた[7-10]。しかしながら、CR-39 は検出できるイオンのエネルギーに上限があり、例えば最も高感度なタイプの CR-39 でも 27 MeV 以上の陽子線を検出することはできない。これは CR-39 上にエッチピットを形成するのに十分な損傷をイオンが与えられないためである[11]。そのため、100 MeV 級の陽子線を CR-39 で計測するためには、陽子線を適切な減速材を用いて検出閾値以下のエネルギ

*[1] 神戸大学大学院海事科学研究科
*[2] 量子科学技術研究開発機構 関西光科学研究所
*[3] 東京大学大学院工学系研究科
*[4] 名古屋大学大学院理学研究科
*[5] 量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所

ーにまで減速する必要がある。そのような CR-39 と減速材を用いたスタックの大きさは数十 cm 程度になる。一方で、原子核乾板は 100 MeV 級の陽子線に対しても感度を有するため、数 cm 程度の検出器体系を実現できる可能性がある。しかしながら、原子核乾板はこれまでレーザー加速イオン検出器として利用されてこなかった。これは素粒子実験などで用いられるような通常の現像条件下では、レーザーと物質の相互作用によってイオンと同時に発生する電子線や X 線の影響により、イオンの飛跡が埋もれてしまい、検出することができないためである。これまで 20 MeV までの陽子線に対して感度をもつ低感度な原子核乾板は X 線が同時発生する放射線混成場である慣性核融合実験において適用例がある[12]。しかし、このような低感度の原子核乾板では直接 100 MeV 級の陽子線を計測することはできない。このような状況下、現像液の pH を変化させることにより、最小電離粒子まで検出可能な高感度の原子核乾板の感度を下げて、X 線環境下における中性子による反跳陽子を計測した例が報告された[13]。本実験ではこの低感度現像の手法を応用し、レーザー駆動イオン加速実験における電子線・X 線の影響を取り除くことを試みた。

本研究では原子核乾板が MeV 級のレーザー加速陽子線のエネルギースペクトルを計測可能かについて原理検証を行った。レーザー駆動陽子線加速実験において同時発生する電子線や X 線の原子核乾板への影響を抑えるために、現像液の pH を低下させ、さらに統計学的手法を用いて最適な現像時間を決定し、レーザー加速陽子線計測に最適な現像条件を求めた。原子核乾板によって得られた陽子線のエネルギースペクトルは CR-39 によって得られたものとよく一致したため、原子核乾板は MeV 級のレーザー加速陽子線検出器として適用可能であることが確かめられた。さらに、既存の加速器を用いて 100 MeV の陽子線を原子核乾板に照射し、その最適化された現像条件下でも 100 MeV 級の陽子線の飛跡が記録されることを確認した。

2. 手法

2.1. 原子核乾板の飛跡検出原理

図 1 に原子核乾板の断面図と検出原理の概要を示す。原子核乳剤は支持体である無色透明なベース板の両面に塗布される。乳剤にはサブミクロンサイズの臭化銀結晶が含まれており、目的や用途に応じて臭化銀結晶の大きさや体積分率は変わる(図 1(a))。荷電粒子が乳剤の臭化銀結晶中を通過すると、電離作用によって生じた電子が銀イオンを還元し、式(1)の反応が起こる。

$$\mathrm{nAgBr} \rightarrow \mathrm{nAg} + (\mathrm{n}/2)\mathrm{Br}_2 \qquad (1)$$

生成された銀原子は銀原子数個程度の集合体である潜像核を形成する(図 1(b))。荷電粒子の通り道に沿って潜像核が並び、これらが潜像となる。それぞれの潜像核の大きさは荷電粒子の臭化銀結晶中でのエネルギー付与に依存するため、高 LET の陽子線は大きな潜像核、逆に低 LET の電子線は小さい潜像核を生成する。ここで、MeV 級の陽子線の臭化銀中での単位長さあたりのエネルギー付与 dE/dx は電子線の dE/dx の 10～100 倍である。

照射後、飛跡の可視化のために原子核乾板は式(2)の反応に従って現像処理される。

$$\mathrm{nAgBr} + \mathrm{Red} \rightarrow \mathrm{nAg} + (\mathrm{n}/2)\mathrm{Br}_2 + \mathrm{Ox} \qquad (2)$$

ここで Red は現像液(還元剤)、Ox は酸化生成物を示す。この酸化還元反応により、銀イオンは銀原子に還元され、潜像核はサブミクロンサイズにまで成長し、「Grain」となる[14]。適当な時間現像したのち、その反応を止めるために原子核乾板は酢酸水溶液に浸される。その後、定着という工程で未反応の臭化銀結晶を除去し、最後に流水で原子核乾板に残った化学薬品を十分に洗い流す。このような工程を経て、潜像はサブミクロンの銀粒子(Grain)の連なりに変化し、結果として光学顕微鏡で観察できる三次元の飛跡となる。

2.2. レーザー駆動陽子線加速実験

ペタワット級の高強度レーザーである J-KAREN-P[15]のレーザー光をマイクロメートルオーダーの水素クラスターターゲット[16]に集光し、MeV 級の陽子線を発生させて原子核乾板を積層した検出器に照射した。本実験ではパルス幅 40

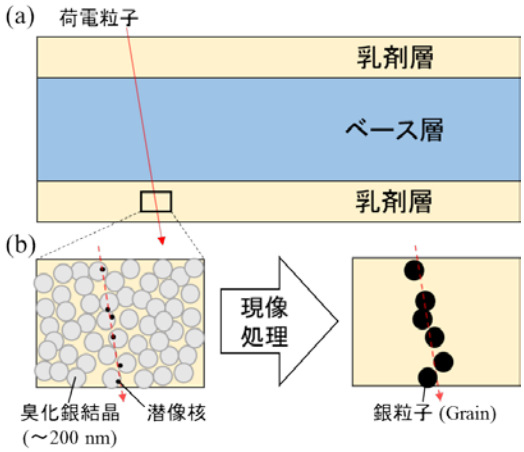

図 1. 原子核乾板の断面図と飛跡検出原理。 (a)フィルム断面図。プラスチックなどのベースの両面に塗布された乳剤中にはサブミクロンサイズの臭化銀結晶が含まれる。(b)荷電粒子が入射すると、軌跡に沿って潜像核が形成される。現像処理を施すとこれら潜像核はサブミクロンサイズにまで成長し、それらの連なりが光学顕微鏡で飛跡として観察される。

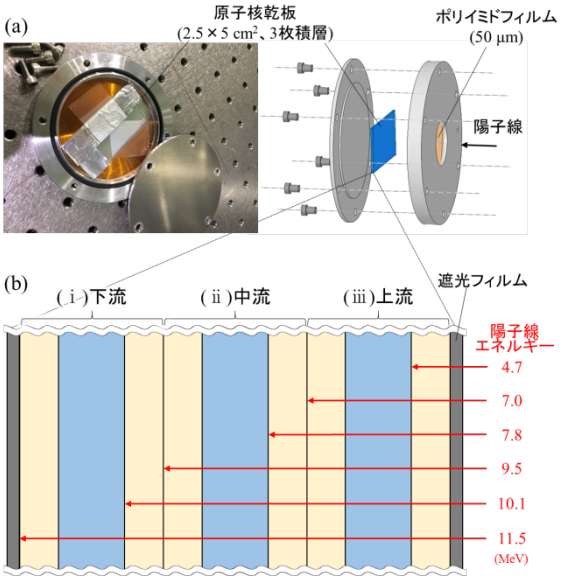

図 2. (a)レーザー駆動イオン加速実験における原子核乾板を用いた検出器のセットアップ。2.5×5 cm^2 の原子核乾板を 3 枚積層し、遮光フィルムでパッキングした。それをポリイミドの窓を設けた専用の密閉容器の中に固定した。 (b)陽子線のエネルギーと到達深さの関係。計算はモンテカルロ粒子輸送計算コード PHITS を用いて行った。

fs、エネルギー10 J のレーザー光を F/10 の軸外し放物面鏡を用いて集光スポット径 20 μm(1/e^2)に集光した。最大集光強度は~1×10^{20} W/cm^2 であった。

原子核乾板を用いた検出器体系は図 2(a)に示す。本実験では、ゼラチン中に直径約 200 nm の臭化銀結晶が体積比 55%含まれた乳剤が 175 μm のポリスチレンベースの両面に 70 μmずつ塗布された原子核乾板を用いた。これは主にミューオンラジオグラフィーに利用されるタイプのものである[17]。この原子核乾板を 3 枚積層し、厚さ 83 μm の遮光フィルムでパッキングした。しかし、この状態ではレーザー駆動イオン加速実験用のチェンバー内の真空には耐えられないため、専用のアルミニウム製の密閉容器を作成し、その中に固定した(図 2(a))。その密閉ホルダーを実験チェンバー内のレーザー進行方向、集光点から 1.8 m の位置に設置した。4 MeV 以上の陽子線が密閉ホルダーに設けた厚さ 50 μm のカプトン窓と遮光フィルムを貫通して有感層にまで到達し、飛跡が記録される。陽子線はレーザー78 ショット分積算して記録した。

図 2(b) は陽子線の到達位置とエネルギーの関係を示す。これはモンテカルロ粒子輸送計算コード PHITS [18]を用いて求めた。電子線や X 線によるノイズの影響が適切に除去されれば、各乳剤層における陽子線の飛跡本数からエネルギースペクトルが求められる。

3. 結果と考察

3.1. 現像条件の最適化

3.1.1. ノイズレベルと現像液の pH の関係

表 1 に示すように最適な現像条件を探るためにいくつかの現像条件に振り分けて照射試料の現像を行った。図 3 には現像後のすべての試料の写真を示す。ただし、条件(D)については次節の 3.1.2 で議論する。まず、3 枚積層したうちの最下流の試料(図 2(b)の(ⅰ))を三分割し、それぞれ、(A)現像液 pH=9.8・現像時間 25 分、(B)現像液 pH=7.3・現像時間 40 分、(C)現像液 pH=7.3・現像時間 25 分の 3 つの条件で現像した。(A)の pH=9.8 は素粒子実験で用いられるような通常の現像条件である。(B)と(C)では還元力を抑えるためにその現像液に酢酸を加え、pH=7.3 にまで下げた。ここで、還元反応を進めるためには pH=7.0 以上に保つ必要がある[14]。現像処理後、試料は光学顕微鏡

(OLYMPUS, BX53M)で観察された。

図 3 の(ⅰ)に示すように、条件(A)の試料はノイズ成分により飽和し、光を透過しないほど黒くなったため陽子線の飛跡は観察されなかった。一方で、条件(B)と(C)の試料では共にノイズ成分の影響が十分に抑えられ、陽子線の飛跡を観察することができた。つまり、素粒子実験で用いられるような通常の現像条件ではレーザー加速陽子線計測には適さないことが分かった。ノイズレベルの現像液の pH に対する依存性については次のように説明できる[19]。

式(2)の反応が進行するためには臭化銀のフェルミ準位が現像液のそれに比べて低いことが条件となる。本研究では陽子線の飛跡を特定するために、現像液のフェルミ準位を酢酸を加えることによって下げた。つまり、pH=7.3 の低感度現像液のフェルミ準位は通常の pH=9.8 のものよりも低くなる。一方で、臭化銀結晶内の潜像核が大きいほど臭化銀のフェルミ準位が低いということも重要なポイントである。通常の現像条件 pH=9.8 では潜像核が小さくても銀イオンを還元することができるため、電子線によって生成された潜像核も成長してグレインとなりうる。さらに、潜像核を形成している銀原子の数が 4 つ以上の場合にはこれらが触媒として働き、式(2)の還元反応をより促進する。したがって、大きな潜像核を持った臭化銀結晶を優先的に還元することが可能である。よって、低感度現像では大きな潜像核を形成できる陽子線の飛跡は現れ、小さな潜像核しか形成できない電子線の飛跡は原子核乾板上に飛跡を残すことができないのである。

pH=7.3 の低感度現像液を用いることで上記のように電子線の飛跡を現れないようにすることはできるが、図 3 の試料からわかるように、カプトン窓と同じ大きさで色の濃い部分が現れているため、ある程度は電子線由来のノイズ成分は記録されてしまう。これは主に止まる直前の電子線によるものと思われる。しかし、そのような低エネルギー電子線は 70 μm の乳剤層を貫通するほどの飛程を持たないため、陽子線の飛跡とは区別することができる。

3.1.2. ノイズレベルと現像時間の関係

現像時間もノイズレベルに影響を与える重要な要素である。条件(B)と(C)の試料では現像時間の違いによって陽子線の平均飛跡本数に違いがあるかどうかを調べるために下記のような統計学的解析を行った。これは、現像時間が短いほどノイズ成分は少なくなるが、あまりに短すぎると陽子線の飛跡さえも十分濃く現れず数え落としてしまう可能性があるためである。

光学顕微鏡による観察でそれぞれの試料について 160 視野(1 視野あたり 140×226 μm^2)分の飛跡をカウントした。1000 個のブートストラップ標本に基づいたノンパラメトリックブートストラップ法[20]を適用して条件(B)現像時間 40 分と(C)現像時間 25 分の平均飛跡本数に有意差があるのかどうかを調べた。有意水準は 0.05 とした。解析は統計解析ソフト R の version 3.4.3[21]を用いて行った。統計解析の結果は表 2 に示す。p 値が有意

表 1. 現像条件

原子核乾板		pH	現像時間 (分)
(ⅰ) 下流	(A)	9.8	25
	(B)	7.3	40
	(C)	7.3	25
(ⅱ) 中流	(C)	7.3	25
	(D)	7.3	15
(ⅲ) 上流	(C)	7.3	25
	(D)	7.3	15

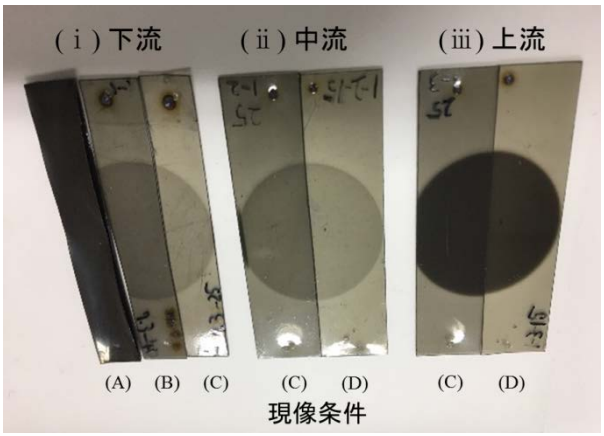

図 3. 現像後のすべての試料。現像条件は表 1 を参照。

表 2. 統計解析の結果

		現像時間				
		15 分	25 分	40 分		
乳剤層		平均 ± 標準偏差	平均 ± 標準偏差	平均 ± 標準偏差	P値	有意差
(ⅰ)下流	表	-	12.9 ± 5.5	13.0 ± 5.1	0.391	無
	裏	-	3.5 ± 2.2	3.1 ± 2.5	0.915	無
(ⅱ)中流	表	34.0 ± 11.8	36.1 ± 12.9	-	0.053	無
	裏	15.5 ± 6.8	16.4 ± 5.9	-	0.087	無
(ⅲ)上流	表	40.2 ± 10.9	50.9 ±22.4	-	0.000	有
	裏	12.0 ±5.1	10.8 ±5.2	-	0.978	無

※平均は顕微鏡1視野あたりの飛跡本数を表す。

水準 0.05 よりも大きいため、平均飛跡本数に有意な差があるとは言えない結果が得られた。このことから現像時間が 25 分あれば十分陽子線の飛跡は成長し、顕微鏡観察によってすべての陽子線飛跡をカウントすることができると判断した。

次に、さらに短い現像時間では平均飛跡本数に有意差が出るかどうかを調べるため、(ⅱ)中流と(ⅲ)上流の試料は 2 分割し、25 分(条件(C))とさらに短い 15 分(条件(D))で現像を行った。現像液はともに pH=7.3 に調整した。現像後、飛跡のカウントを行い、同様の統計解析を行ったところ、(ⅲ)上流の表の乳剤層では p 値が 0.000 となり、平均飛跡本数に有意差があるという結果が得られた。したがって、低感度現像(pH=7.3)で現像時間が 15 分だけの場合は一部の陽子線飛跡を数え落としている可能性があると考えられる。

以上より、本実験では現像液の pH が 7.3 で、現像時間が 25 分という条件が最適であることを見出した。

3.1.3. HIMAC における 100 MeV 陽子線照射

上記の最適条件(現像液 pH=7.3・現像時間 25 分)の有効性を確かめるため、放射線医学総合研究所内の粒子線加速器 HIMAC・物理汎用照射室 PH1 コースを利用して原子核乾板に 100 MeV の陽子線(10^4 protons/mm^2)を照射した。照射後は通常の現像条件とレーザー駆動イオン加速実験に最適化された現像条件で現像した。図 4 に顕微鏡画像の比較を示す。どちらの現像条件でも 100 MeV の陽子線の飛跡が記録されている一方で、二次電子の飛跡は通常現像を施した原子核乾板のみではっきり確認できることがわかる。以上より、最適化された現像条件下では電子線の飛跡が現れず、かつ 100 MeV の陽子線の飛跡は記録できることが

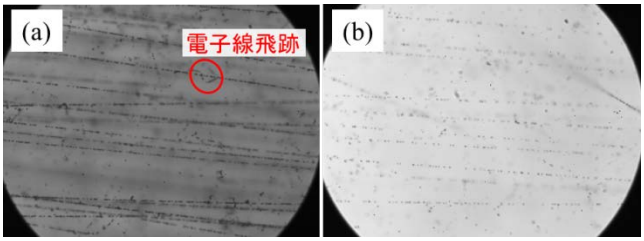

図 4. 通常の現像条件(a)と最適化現像条件(b)における 100 MeV 陽子線飛跡の違い。陽子線は左から右方向へと入射している。どちらの条件においても 100 MeV の陽子線の飛跡は確認できるが、(b)の条件下では二次電子の飛跡がほとんど表れていないことが確認できる。

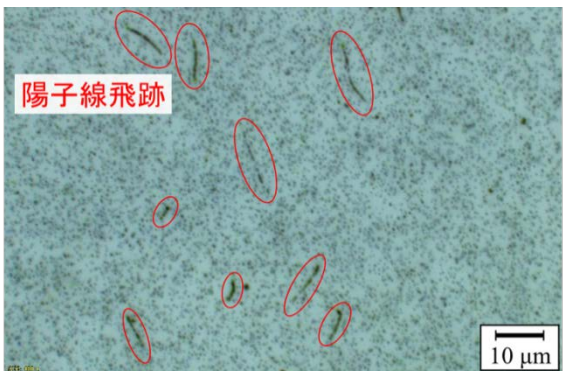

図 5. MeV 級のレーザー加速陽子線の飛跡。陽子線は原子核乾板に対して垂直に入射しているため、光学顕微鏡で深さ方向に断層画像を 50 枚取得し、それらを合成した。ただし、断層画像合成の際に同じピクセル位置(座標)に対して 50 枚の断層画像のうち最も小さい値(黒いもの)を採用するようにした。

確かめられた。

3.2. MeV級のレーザー加速陽子線エネルギースペクトル

陽子線のエネルギースペクトルは厚さ70 μmの各乳剤層を表から裏まで貫通している飛跡を数え上げることで求めた。陽子線は原子核乾板(x-y平面)に対して垂直方向(z 軸)に入射しており、顕微鏡観察ではzステージを動かすことでz軸方向に沿って 50 枚の断層画像を取得した。図 5 にそれら断層画像を合成したものを示す。ただし、断層画像合成の際に同じピクセル位置(座標)に対して50枚の断層画像のうち最も小さい値(黒いもの)を採用するようにした。赤い円で囲まれたグレインがつながって見える飛跡を陽子線のものとして数え上げた。顕微鏡視野面積は上流の原子核乾板では 70×113 μm^2、中流・下流の原子核乾板では 140×226 μm^2 であり、すべての試料について観察視野数は 160 であった。高エネルギー陽子線は複数の層に飛跡が記録され、重複してカウントされるため、隣り合う乳剤層に記録された飛跡本数の差を取ることで正しいエネルギースペクトルを算出した。

図 6 に最適条件下(現像液 pH=7.3・現像時間 25 分)の原子核乾板(試料(ⅰ)-(C)、(ⅱ)-(C)、(ⅲ)-(C))から得られたエネルギースペクトルと、CR-39 とエネルギーフィルターを重ねたスタックから得られたエネルギースペクトルの比較を示す。なお、CR-39 から得られたエネルギースペクトルは原子核乾板と比較可能な 4~12 MeV の領域を示す。原子核乾板から得られた結果はCR-39の結果とほぼ1 桁以内で一致した。また、原子核乾板の厚みの誤差から推定されるエネルギーの誤差は 1%以内であった[22]。

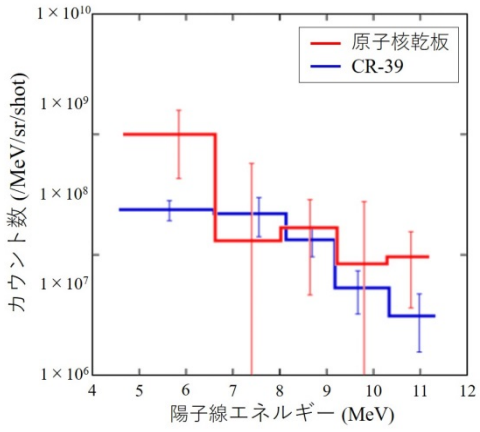

図 6. MeV 級レーザー加速陽子線のエネルギースペクトル。エラーバーは顕微鏡視野間の飛跡本数の標準偏差を表す。

4. 結論

原子核乾板を用いて、水素クラスターターゲットと高強度レーザーの相互作用によって発生する MeV 級の陽子線計測に成功した。現像液の感度を調整し、さらに統計学的解析を行うことで電子線ノイズを抑えつつ、かつ陽子線の飛跡は特定可能な最適化現像条件を見出した。具体的には現像液の pH は 7.3、現像時間は 25 分である。そうして原子核乾板から得られた MeV 級のレーザー加速陽子線のエネルギースペクトルはCR-39で得られた結果とほぼ 1 桁以内で一致し、原子核乾板の厚さの誤差から推定されるエネルギーの誤差は 1%以内であった。さらに、既存の加速器を用いて 100 MeV の陽子線を原子核乾板に照射し、上記の最適化条件で現像したところ、その飛跡を観察できたため、原子核乾板は将来の 100 MeV 級のレーザー加速陽子線計測にも適用できる可能性があることが確かめられた。

謝辞

本研究は名古屋大学未来材料・システム研究所における共同研究として実施された。

参考文献

[1] J. Shin et al., Proton linear energy transfer measurement using emulsion cloud chamber, Nucle. Instrum. Meth. B. 349 (2015) 201.

[2] M. Yoshimoto et al., Hyper-track selector nuclear emulsion readout system aimed at scanning an area of one thousand square meters, Prog. Theor. Exp. Phys. 2017 (2017) 103H01.

[3] N. Agafonova et al., Observation of tau neutrino appearance in the CNGS beam with the OPERA experiment, Prog. Theor. Exp. Phys. 2014 (2014) 101C01.

[4] K. Morishima et al., Discovery of a big void in

Khufu's Pyramid by observation of cosmic-ray muons, Nature. 1711 (7685) (2018) 01576v2.
[5] K. Morishima et al., Development of 14-MeV neutron measurement with nuclear emulsion for DT burning plasma diagnostics, Plasma Fusion Res. 8 (0) (2013) 2402164.
[6] A. Higginson et al., Near-100 MeV protons via a laser-driven transparency-enhanced hybrid acceleration scheme, Nat. Commun. 9 (2018) 724.
[7] S. Gaillard et al., Study of saturation of CR39 nuclear track detectors at high ion fluence and of associated artifact patterns, Rev. Sci. Instrum. 78 (1) (2007) 013304.
[8] Y. Fukuda et al., Energy increase in multi-MeV ion acceleration in the interaction of a short pulse laser with a clustergas target, Phys. Rev. Lett. 103 (16) (2009) 165002.
[9] M. Nishiuchi et al., Acceleration of highly charged GeV Fe ions from a low-Z substrate by intense femtosecond laser, Phys. Plasmas 22 (3) (2015) 033107.
[10] M. Kanasaki et al., The precise energy spectra measurement of laser-accelerated MeV/n-class high-Z ions and protons using CR-39 detectors, Plasma Phys. Control. Fusion. 58 (3) (2016) 034013.
[11] K. Ogura et al., Properties of TNF-1 track etch detector, Nucle. Instrum. Meth. B. 185 (1–4) (2001) 227.
[12] H. Nakaishi et al., Fuel areal density measurement of laser-imploded targets by use of elastically scattered protons, Appl. Phys. Lett. 54 (14) (1989) 1308.
[13] Y. Nakayama et al., Phys. Procedia 80 (2015) 81.
[14] S. Kikuchi et al., Technical Photograph Handbook (New Edition), Corona Publishing Co., Ltd., Japan, 1987.
[15] H. Kiriyama et al., High-contrast high-intensity repetitive petawatt laser, Opt. Lett. 43 (11) (2018) 2595.
[16] S. Jinno et al., Characterization of micron-size hydrogen clusters using Mie scattering, Opt. Express. 25 (16) (2017) 18774.
[17] K. Morishima et al., Development of nuclear emulsion for muography, Annals Geophys. 60 (1) (2017) S0112.
[18] T. Sato et al., Features of particle and heavy ion transport code system (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol. 55 (6) (2018) 684.
[19] F. Trautweiler, Implications of a quantum model of latent image, Phot. Sci. Eng. 12 (1968) 138.
[20] J. Wang et al., An Introduction to Bootstrap Methods Using R, First ed., Kyoirtsu Shuppan Co., Ltd., Japan, 2011.
[21] R Core Team., 2017. R: a language and environment for statistical computing. URL https://www.R-project.org/.
[22] K. Morishima, Latest developments in nuclear emulsion technology, Phys. Proc. 80 (2015) 19.