

博士学位論文審査要旨

2010年2月17日

論文題目： 焦電性単結晶を用いた小型X線発生装置の開発と評価

学位申請者： 深尾 真司

審査委員：

主査： 同志社大学大学院工学研究科 教授 吉門 進三

副査： 同志社大学大学院工学研究科 教授 和田 元

副査： 京都大学化学研究所 准教授 伊藤 嘉昭

要 旨：

現在、一般的なX線の発生法としてX線管球を用いた方法がある。しかし、高電圧電源、電子銃や冷却装置などが必要となるため、出力を保った上での小型化には制約がある。しかし、1992年に、高電圧電源や電子源用の電源が不必要な焦電性結晶を用いたX線発生法が報告された。この方法では、焦電性結晶を数Pa程度の低圧ガス中において、温度変化させるだけでX線を発生させられるため、X線発生装置の小型化が可能であり、応用分野として、ラジオアイソトープの代替、簡便な元素分析装置やがん治療のためのX線源などが考えられる。

焦電性結晶を用いた小型X線発生装置は、既に市販されているが、同サイズのX線管球方式に比べ、X線強度が3桁程度弱く、断続的であるという欠点をもっている。本論文は、これらの欠点を改善することを目的とし、発生機構を体系的に解明し、得られた知見を基に、連続発生可能な高安定小型X線源の開発・試作を行い、得られた結果を報告している。本論文は11章によって構成されている。

第1章および第2章では、それぞれ序論および評価方法が記されている。

第3章では、 LiNbO_3 単結晶中のNb電荷の電子の価数がLiイオンの移動を引き起こし、表面の荷電平衡がとれなくなる可能性があること等が明らかにされている。

第4章では、結晶外部に形成される電界強度が算出されている。結晶が形成する電界により気体分子が電離され、生成された電子を加速してX線を発生させることが可能であること等が明らかにされている。

第5章では、結晶が形成する電界により気体分子が電離され、生成された電子と正イオンのX線発生への寄与が明らかにされている。

第6章では、低真空領域においてX線が発生する機構が明らかにされ、密封容器中における気

体の漏洩による X 線強度の減少を抑制し、性能を改善する方法が提案されている。

第 7 章では、熱電子や冷電子を供給することで、X 線強度が増加かつ安定化し、長寿命化が達成できることが明らかにされている。

第 8 章では、小型 X 線発生装置を医療用へ応用する際、管体材料としてステンレススチールが適していることが明らかにされている。

第 9 章では、焦電性結晶を用いた X 線源の課題である強度の安定化と非連続性の改善およびリップルの少ない連続的な X 線の発生が可能であることが明らかにされている。

第 10 章では、試作された小型 X 線発生装置が示され、今後小型 X 線源を開発するにあたっての課題について述べられている。第 11 章では、結論が示されている。

以上より、本論文は小型 X 線発生装置の高出力化、安定化、連続発生等の課題に対し、極めて有効な解決法を提案し、実用化へ道を拓き、学術的にも工学的にも高く評価される。

よって、本論文は、博士（工学）（同志社大学）の学位論文として十分な価値を有するものと認められる。

総合試験結果の要旨

2010年2月17日

論文題目： 焦電性単結晶を用いた小型X線発生装置の開発と評価

学位申請者： 深尾 真司

審査委員：

主査： 同志社大学大学院工学研究科 教授 吉門 進三

副査： 同志社大学大学院工学研究科 教授 和田 元

副査： 京都大学化学研究所 准教授 伊藤 嘉昭

要 旨：

本論文の提出者は2007年4月より本学大学院工学研究科博士課程後期課程に在学している。

各年度において優れた研究成果を挙げ、英語の語学試験に合格し、また国際学会で英語により9件の講演も行っており、十分な英語の語学力を有すると認める。またスペイン語についても十分な能力を有すると認定されている。本論文の主たる内容は、IEEE Trans. Ultrasonic, Ferroelectrics, and Frequency Control, Key Engineering Materials, Physica Scripta 等に掲載されすでに十分な評価を得ている。また、Functional Material Letters, PIERS Online, Key Engineering Materials に投稿し、すでに受理されている。

本年1月16日午後1時より約2時間にわたり提出論文に関する博士論文公聴会が開かれ、種々の質疑討論が行われたが、提出者の説明により十分な理解が得られた。さらに公聴会終了後、審査委員により論文に関する諸問題につき口頭試験を実施した結果、本人の十分な学力を確認することができた。以上により、本論文提出者の専門分野に関する学力ならびに語学力は十分であることが確認できた。

よって総合試験の結果は合格であると判定した。

博士学位論文要旨

論文題目：焦電性単結晶を用いた小型 X 線発生装置の開発と評価

氏名：深尾 真司

要旨：

現在、一般的な X 線の発生法として X 線管球を用いた方法がある。しかし、高電圧電源、電子銃や冷却装置が必要となるため、出力を保った上での小型化には制約がある。しかし、1992 年に J. D. Brownridge により、高電圧電源や電子源用の電源が不必要な焦電性結晶を用いた X 線発生法が報告された。LiNbO₃ や LiTaO₃ 等の焦電性結晶は、電気・光学素子や圧電材料等として広く応用されており、比較的容易に入手可能である。この焦電性結晶を数 Pa 程度の低圧ガス中において、温度変化させるだけで X 線を発生させられるため、X 線発生源を軽量でかつコンパクトにできる。

このような小型 X 線源の応用分野として、ラジオアイソトープの代替、簡便な元素分析装置やがん治療のための X 線源などが考えられる。例えば、小型 X 線源をファイバースコープの先端に取り付けることも可能であると考えられる。がんの放射線治療において、現在は人体外部から X 線を照射する場合、X 線が正常細胞を透過できるように、高エネルギーの X 線を照射せざるを得ない。そのため、正常細胞が被爆し、障害が生じることもある。したがって、理想的にはがん細胞にのみ X 線を照射することが望まれる。軟 X 線はエネルギーが低く、空気の層によっても簡単に散乱されるため、飛程が短い。もし、軟 X 線を至近距離からがん細胞に照射できれば、がん細胞に吸収される軟 X 線のフラックス量が多くなり、がん細胞周辺の正常細胞に照射されることが少なく、がん細胞を壊死させられると考えられる。このような用途に、焦電性結晶を用いた小型 X 線源を適用できると考えられる。

分極を一方向に揃えた焦電性結晶を用いた小型 X 線発生装置は、既にアメリカの AMPTEK 社より、COOL-X という商品名で市販されている。しかし、技術改良が行われないうままであり、同サイズの X 線管球方式に比べ、X 線強度が 3 桁程度弱く、断続的であるという欠点をもつ。本研究では、これらの欠点を改善することを目的とし、先ず X 線発生装置における X 線の発生機構の不明な点を単結晶構造解析や超高電界発生時の表面構造などを明らかにして体系的にその機構を解明し、得られた知見を基に、X 線を連続発生でき、かつ高安定な小型 X 線源を開発・作製を行った。本論文はこれらの詳細を記述した 11 章によって構成されている。

第 1 章の序論では新たな X 線発生法である焦電性結晶を用いた X 線発生法の特長を述べ、がん治療等における放射線の利用実績と評価、焦電性結晶の歴史ならびに現在までに報告された焦電性結晶を用いた X 線の研究および課題について述べた。

第 2 章では、焦電性結晶およびそれを用いた X 線の発生法と評価法の原理について記した。

第 3 章では、焦電性結晶である LiNbO₃ 単結晶の温度を変化させた時の結晶構造の変化を明らかにした。更に、結晶温度を変化させた時の結晶の洗浄法による結晶構造変化の違いと X 線強度の違いについて述べた。その結果、室温から 200°C までの温度領域において、結晶中の Nb 電荷の電子の価数が Li イオンの移動を引き起こし、表面の荷電平衡がとれなくなる可

能性があることが分かった。 LiNbO_3 単結晶を適切な方法で洗浄すれば、X線強度を強くすることが可能であることを明らかにした。また、ターゲットに対向させる面を負の電気面(-z面)とした場合の方が、正の電気面(+z面)とした場合よりX線強度が強くなることが分かった。

第4章では、低真空中と高真空中において、分極処理を施した焦電性結晶の温度を変化させた時に、結晶外部に形成される電界強度を個々の電気双極子が形成する電界強度を重ね合わせの理を用いて算出した。その結果、低真空領域において、結晶表面電荷と吸着電荷が釣り合っている状態から結晶温度を1K変化させると、 LiTaO_3 単結晶が形成する最大電界強度は、-z面の中心で約56kV/cm/Kと極めて強いことが分かった。また、高真空領域において、電気面に吸着電荷が存在していないと仮定すると、 LiTaO_3 単結晶の分極が形成する電界強度は、-z面の中心で約190MV/cmに達することを示した。これより、気体分子を電離して電子を生成し、電子を加速してX線を発生させるのに十分な電界を結晶が形成していることを明らかにした。また、電気面の辺の長さとの厚みの比を小さくすれば、局所的に強電界を形成可能であることを明らかにした。

第5章では、昇温時と降温時に結晶が形成する電界によって、結晶に対向させたターゲットに衝突する電荷量を測定した。その結果、昇温時と降温時にターゲットに衝突する電荷の符号は逆であり、したがって昇温時と降温時に結晶が形成する電界の向きは逆であることを明らかにした。+z面をターゲットに対向させた場合、昇温時は連続的に電子が衝突すると同時にクラスター電子が断続的に衝突していることが明らかになった。また、一時的に逆向きの電界が形成されることで、X線の発生が停止するが、その後も温度変化させることで、電気面が正味帯電すれば、再度電界を形成できることが明らかになった。

第6章では、低真空領域においてX線発生が雰囲気気体の圧力および種類に依存する原因とX線の発生機構について述べた。分極を一方向に揃えた焦電性結晶を低真空領域で温度変化させると、温度の変化と共に表面電荷量も変化する。しかし、電気面に吸着しているイオンの吸着や脱離に要する時間は、自発分極の変化に要する時間より長いいため、結晶の電気面は正味帯電し、高電界が形成される。この高電界によって気体分子が電離され、電子が生成される。この電子が結晶の形成する高電界によって加速され、金属ターゲットに衝突することによりX線が発生することを明らかにした。低真空領域におけるX線強度は、圧力に対して上に凸な関数で近似され、気体分子が結晶の形成する電界により電離されて生成される正イオンの数によって、おおむね決定されることが明らかになった。ところで、密閉された減圧容器内においてX線を発生させる場合、外部からの気体のリークによる容器内の圧力の変化により、X線強度が変化する。そこで、密封容器中におけるX線強度の変化を抑制する方法を提案した。結晶を含むX線源の容器には、X線強度が最大になる圧力にほぼ等しくなるようにした第一イオン化エネルギーの小さい気体を封入し、X線源を囲う容器には第一イオン化エネルギーが大きい気体を適当な圧力で封入することで、X線源の容器内の正イオン数の増加を抑制できるため、X線源の寿命を延ばすことが可能であることを明らかにし、性能改善に大きな寄与を行った。

第7章では、高真空中においてX線強度を増加・安定化させる方法として、熱電子を供給する方法と冷電子を用いる方法を提案した。高真空領域では、結晶の電気面に吸着している

電荷が、低真空領域に比べて少ないため、高電界を形成できる。反面、結晶自身が自己分極反転を起こしやすく、劣化し易くなる。そこで、外部から熱電子、または冷電子を供給することで電子数を増加させると共に、それらの電子が形成する反電界により結晶に印加される過剰な電界強度を低減することで、X線強度の増加と安定化を図った。その結果、降温時に熱電子を供給することで、供給が無い場合と比較して、X線強度を約100倍以上増加させられ、かつX線強度も極めて安定化できることを明らかにした。更に、最適量の熱電子を供給すれば、中～高真空領域において、圧力によらずほぼ一定強度のX線を発生させられることが可能であることを明らかにした。

冷電子源として、形状のアスペクト比が大きいカーボンナノチューブ(CNT)を結晶近傍に設置することにより、CNTからの電界放出による電子供給が行われ、X線強度が増加することを明らかにした。CNTの量を最適化すると、自己分極反転により劣化した結晶についても劣化のない結晶と同程度のX線強度が得られることを明らかにし、X線発生装置の寿命をより長くできることを明らかにした。

第8章では、小型X線源を開発するにあたり、結晶を取り囲む筐体の材料がX線発生に与える影響について述べた。医療用の小型X線発生装置へ応用する場合、化学的に安定で、X線の漏洩が無い金属筐体、特にステンレススチールを用い、低真空中にてX線強度が極大になる圧力に調整しながらX線を発生させる方法が最適であることを明らかにした。筐体の内径を小さくするに従って、X線強度が極大値をとる圧力が増加するため、圧力変動による影響を受けにくくなることを明らかにした。

第9章では、焦電性結晶を用いたX線源の課題である強度の安定化と非連続性の改善について述べた。電子源やCNTを用いずに1個のターゲットを挟んで2個の結晶を対向配置し、各々の結晶によって発生したX線が多重反射することによって、筐体やターゲットから光電効果により放出された電子を利用できるタンデム型のX線発生装置を提案した。その結果、2個の結晶の温度勾配を同じにし、温度変化の位相を逆にした場合、X線発生期間が約2倍となり、1個の結晶を用いた場合のX線強度の2倍と比較して、最大約20倍となった。更に、温度変化を繰り返したときの安定性も向上することを明らかにした。使用する結晶の個数を更に増やし、6個程度用いることにより、リップルの少ない連続的なX線発生が可能であることを明らかにした。

第10章では、小型X線発生装置の試作品を示し、第9章までに得られた知見を基に今後小型X線源を開発するにあたっての課題について述べた。

第11章では、本論文の10章までの要点をまとめた。