

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：53203

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2021

課題番号：18H01920

研究課題名（和文）形状がフレキシブルな有機半導体放射線検出器の高度化と新しい放射線量計測手法の開発

研究課題名（英文）Advanced organic semiconductor radiation detectors with flexible geometry and new radiation dosimetry methods

研究代表者

高田 英治（Takada, Eiji）

富山高等専門学校・その他部局等・教授

研究者番号：00270885

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,300,000円

研究成果の概要（和文）：有機半導体放射線検出器により立体形状内外の線量率を測定する手法を検討した。層状に切断された頭部ファントムの各層に検出器を設置し、X線照射実験を行ったところ、検出器からの発生電流と電離箱型線量率計による測定結果分布がよく一致した。提案する素子により人体内外の線量率分布を測定する可能性が示された。

また、重粒子線計測への適用性評価のため、有機半導体素子での直接計測の可能性を調査した。各種有機材料を用いて検出器を作成し、重粒子線照射を行い、出力電荷を計測したところ、特に4HCBが最も優れた特性を示した。ブラッグピークも観測され、本検出器の重粒子線を計測への応用可能性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

生体の構成材料に近い組成からなる有機半導体放射線検出器をフレキシブル基板に実装し、X線透過像撮影において低い負荷効果のままで、立体的な形状を持つ物体の内外における線量率分布を測定することが可能となった。Interventional Radiography（IVR）等の際に患者、医療従事者の被ばく量を抑制しつつ、高度な医療を実現することが本検出器の開発により実現された。高齢化社会を迎えて医療の高度化が求められる中で非常に重要な成果といえることができる。

研究成果の概要（英文）：A method for measuring dose rates in and around a three-dimensional shape using an organic semiconductor radiation detector was investigated. The detectors were placed in each layer of a layered head phantom, and X-ray irradiation experiments were conducted. The current generated by the detectors agreed well with the distribution measured by an ionization chamber type dose rate meter. The proposed device has the potential to measure dose rate distributions inside and outside the human body.

In addition, the possibility of direct measurement with organic semiconductor devices was investigated to evaluate their applicability to heavy particle radiation measurement. Detectors were fabricated using various organic materials, irradiated with heavy particle beams, and the output charge was measured. 4HCB in particular showed the best characteristics. Bragg peaks were also observed, indicating the possibility of applying this detector to the measurement of heavy particle beams.

研究分野：放射線計測

キーワード：有機半導体 線量率分布測定 X線 荷電粒子線 低負荷効果

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

X線CT、重粒子線治療等の際の患者の被ばく量低減や、IVR（interventional radiology）のような「画像支援治療」における患者、医療従事者の被ばく低減が求められている。一方で、被ばく量を測定するために感度のよい無機シンチレータを設置すると、検査対象の臓器よりも検出器によるX線吸収が大きく、透視画像において検出器ばかりが目立って測定され、検査対象臓器や治療用機器の位置測定に悪影響を及ぼすことがある。そのため、生体組織に近い組成を持つ有機放射線検出器に対するニーズがあり、申請者らは有機半導体を用いる放射線検出器について検討を進めてきた。

一方で、測定にあたっては単一の有機光検出器とシンチレータの組合せではなく、複数の検出器セットをX線透過率の大きい信号伝送基板に設置したものを人体上に分散配置し、線量分布を求めることも求められている。本研究においてはこのような構造の可能性を評価し、新しい医療用検出器として実現することを目指した。

### 2. 研究の目的

本研究においては、有機半導体を用いる放射線検出器により、立体形状等における線量率計測の高度化することを目的とした。有機半導体は人体と同様の組成で構成されていることから、医療行為を行いながら放射線量率を測定しても、X線等による写りこみが少なく、被ばく量を制御しながら高度な医療を行うことが可能となる。具体的には薄型の①フレキシブル基板に有機半導体素子を設置して複数の位置での測定を実現することや、②立体形状のシンチレータに沿った線量率分布測定可能性を実証すること、③新しいタイプの低ノイズ前置増幅器の適用性を検討すること、および④X線だけでなく重粒子線計測への適用性を評価することを目的とした。

### 3. 研究の方法

以下のような方法で研究を進めた。

- (1) フレキシブルな基板上に設置した複数のシンチレータ板によるファントムに沿った線量分布計測の可能性検討

3つの素子を設置可能なフレキシブル基板を製作し、作成した有機半導体放射線検出器を基板上に実装した。そのうえで、①3枚の1cm厚プラスチックシンチレータ、②生体ファントムのそれぞれに素子を挟み込む形でX線を照射し、発生する電流を測定した。特に②の場合には、電離箱による線量率測定も合わせて行い、本方式によってファントム中の各位置での線量率測定精度について評価を行った。

- (2) 電流計測の高度化のために近年開発されている低ノイズの新型電流計測用前置増幅器の適用

X線透過量を複数のX線検出器を用いて電流として測定し、X線エネルギーから線量率を評価するとともに、媒体中に含まれるヨウ素造影剤の等価厚さを評価する試みが京都大学のグループにより行われている。その中で、検出器からの電流を低ノイズで測定する前置増幅器：VIEC（Voltage Inclination as Electric Current）が開発されている。有機半導体放射線検出器からの信号をVIECにより測定することで、ノイズ耐性を高めるとともに、スタックした有機半導体検出器による線量率計測にもつなげることも検討した。

- (3) 有機半導体結晶を用いる重粒子線計測の高度化

フレキシブルな有機半導体放射線検出器の応用の一つとして、重粒子線の計測に関する基礎研究を行った。重粒子線計測ではシンチレーション検出器は適さないため、有機半導体素子での直接計測の可能性を調査した。具体的にはP3HT、ルブレネン、4HCBを用いた検出器を作成、重粒子線照射を行い出力電荷を計測した。出力信号の強度をもとに、LET依存性等について評価をおこなった。

### 4. 研究成果

- (1) シンチレータ板やファントムによる線量分布計測可能性検討

#### ① シンチレータ板による実験

60mm×60mm×10mmのプラスチックシンチレータを3枚使用し、図-1に示すような体系で測定を行った。フレキシブル基板には3つの素子の実装が可能だが、ここでは各素子の特性の影響を排除するために、1つの素子の位置を順次移動させて測定した。素子にはP3HT:PCBMのバルクヘテロ型素子を用い、X線発生装置の加速電圧を5kV、電流を5mAとした。また同様の体系を計算

コード:Geant4 で模擬し、シンチレータへのエネルギー付与に加え、シンチレータ中での光子の伝搬も計算して素子へのシンチレーション光入射数の評価を行った。X線は前面、側面、背面の3つの方向から照射し、それぞれの入射方向における、各検出器での発生電流を比較した。これらの実験、計算結果をそれぞれ図-2、図-3に示す。これを見ると、概ね同様の分布となっていることが分かる。後面入射の場合のみ傾向がやや異なっているが、これは Geant4 の光子伝搬特性の設定において、表面粗さの設定が十分に最適化されていないためと考えられる。

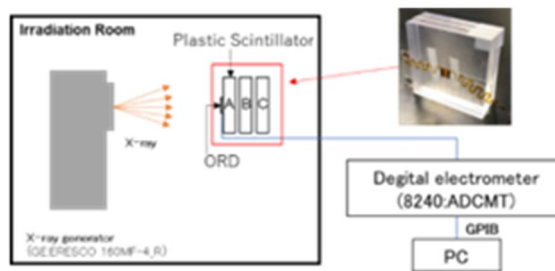


図-1 プラスチックシンチレータによる実験体系

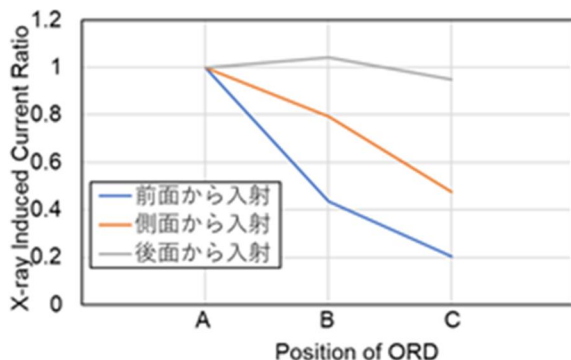


図-2 実験結果における前面・側面・背面入射の比較

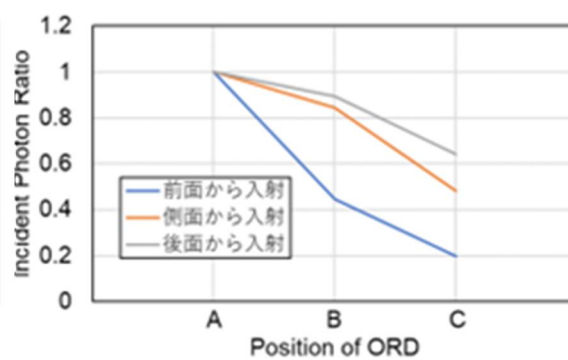


図-3 計算結果における前面・側面・背面入射の比較

## ② 医療用ファントムによる測定

①で述べたと同様のフレキシブル基板に P3HT:PCBM 型有機放射線検出器を設置し、それを頭部ファントムの下に置いて上部から X 線を照射した。図-4 に、頭部ファントム (3 枚) と検出器を置いた体系の写真を示す。実験では頭部ファントムの数を 1 枚、2 枚、3 枚と変化させて X 線を照射し、有機半導体素子で発生する電流を測定するとともに、線量率計によりファントム下部の線量率を測定した。発生電流および線量率測定結果 (ファントム 1 枚の場合を 1 とした時の相対値) を図-5 に示す。有機半導体素子からの発生電流と同位置に設置した線量率系の数値の傾向が概ね一致していることが示された。この結果から、有機半導体検出器が線量率評価に適用可能であることが示された。また、フレキシブル基板に設置した素子を胸部・腹部ファントム上に置いて X 線透過像を撮影した結果を図-6 に示す。素子の有無による差がほとんど見られない。これらの結果より、本研究で対象としている有機半導体検出器は、医療行為に影響を与えずに立体的なファントム内での線量率評価が可能であることが示され、医療行為における患者、医療従事者の被ばく低減に非常に有用であるということが出来る。

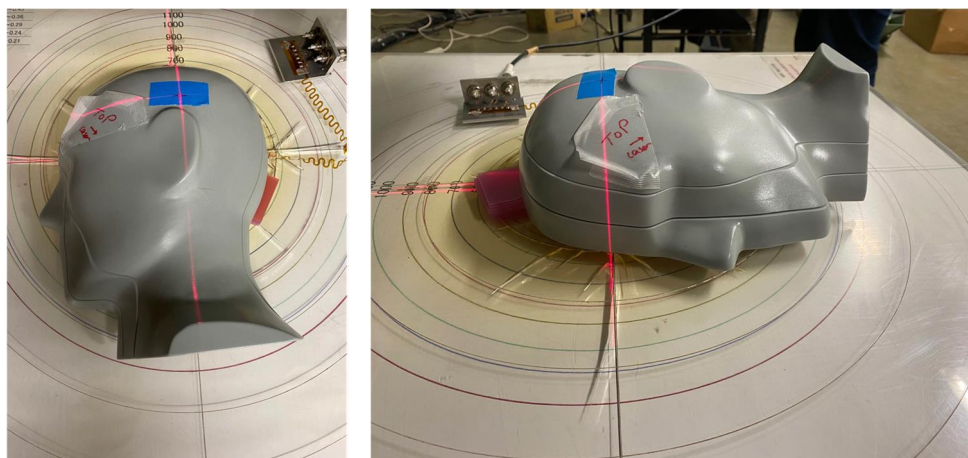


図-4 頭部ファントム 3 枚の下に有機検出器を設置した様子

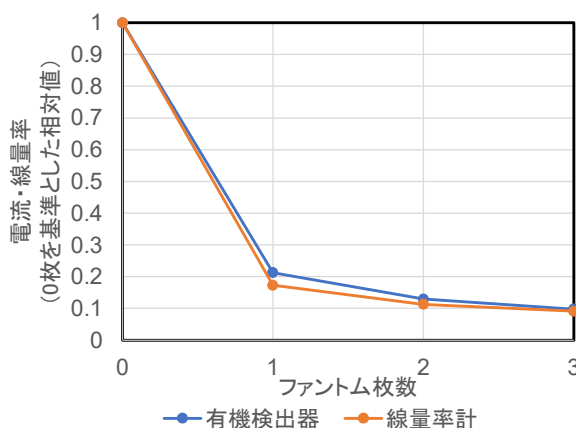


図-5 ファントム枚数と相対的な電流・線量率の関係 (ファントム0枚の時を基準とした相対値)



図-6 腹部ファントム上に素子を置いた場合の透過像 (赤枠内に素子がある)

### (2) 新型電流計測用前置増幅器による低ノイズ読み出し可能性検討

従来の電流計測においては、抵抗およびコンデンサをフィードバックに用いる形の前置増幅器が一般的に用いられてきた。一方で、より低ノイズの電流読み出しを目指し、フィードバック抵抗を除いてコンデンサだけを設置し、入力された電流による出力電圧の傾きから電流値を計算する新型前置増幅器 (VIEC: Voltage Inclination as Electric Current) について検討が行われてきた (I. Kanno and H. Onabe, J. Nucl. Sci. and Tech., Vol.58, No.1, PP. 100-106, 2021 など)。本研究では、有機半導体放射線検出器からの信号読み出しに適用し、より高度な測定を可能とすることを目指した。

フィードバックコンデンサを 1000 pF とし、X線発生装置の加速電圧を 50 kV とし、電流を 0.5 mA から 5 mA まで変化させて VIEC による測定を行った結果を図-7 に示す。ここで VIEC を用いた計測では、フィードバックコンデンサの大きさおよびその両端の電圧値 (14 V) を考えると、測定を行う充電時間を  $t$  [s] とすれば、電流値は以下の式で求められる。また、同様の実験条件で、電流計を用いて発生電流を計測した結果を図-8 に示す。

$$I = \frac{V \cdot C}{t} = \frac{14000}{t} \text{ [pA]}$$

これらを見ると、VIEC、電流計による測定は同様の傾向を示しているが、電流の絶対値が 1000 倍程度異なっている。前置増幅器のフィードバック抵抗だけでなく、有機半導体素子やフレキシブル基板など容量も考慮しなくてはいけないことを示している。しかしながら、あらかじめ容量測定または電流測定によって素子容量を評価しておき、それを上式の C に反映すれば VIEC による電流測定が可能であり、高精度の電流評価が可能となることが分かった。

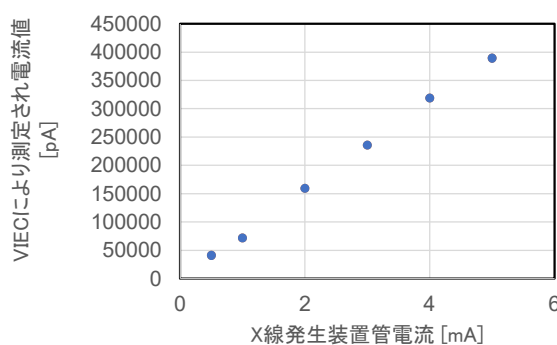


図-7 VIEC による電流測定結果 (フィードバック容量を用いて計算)

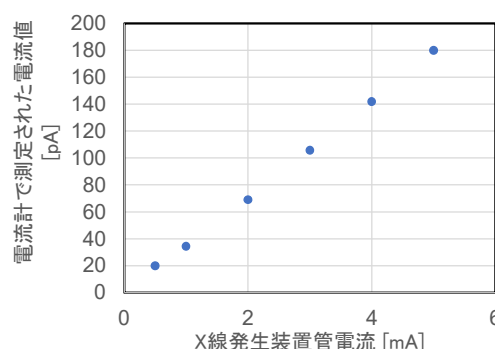


図-8 微小電流計による測定結果

### (3) 重粒子線計測への適用性検討

有機半導体の特徴の一つである、素子が生体等価物質で構成されている点に着目し、炭素線治療用線量計への応用について研究を進めた。P3HT:PCBM やルブレンは膜厚が非常に薄く (1 μm 以下)、高圧をかけることが困難であるため、容易に 1 mm 以上の素子の作製が可能な 4-ヒドロキ

シシアノベンゼン(4HCB)を用いて研究を進めた。

作製した4HCB結晶(図-9)のサイズは4 mm × 4 mm × 2 mmである。信号の読み出し用のワイヤーはカーボンペーストを用いて素子の両端に取り付けた。測定では炭素線照射によって4HCB検出器内に生成される電荷量を0.1秒おきに記録した。実験は量子科学技術研究開発機構の重粒子線加速器Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba (HIMAC)の物理コース(PH2)で行った(図-10)。炭素線のエネルギーは290 MeV/n、ビーム強度は $1.9 \times 10^9$  particle per second(pps)に設定した。ビーム径は素子の位置で1 cm、4HCB結晶全体に炭素線が照射されるよう調整した。図-11に4HCB検出器と電離箱で得られた290 MeV/nの炭素線に対する出力電荷を示す。図-11上の電離箱のデータは照射した炭素線の強度の時間変化を表している。図-11下から4HCBの出力電荷の時間構造が電離箱の構造と同じであり炭素線を正しく測定できているといえる。炭素線が照射されていない間の4HCBからの出力は暗電流成分である。図-12に4HCBの出力の時間安定性を示す。図11の出力から暗電流成分を差し引いた後、1スピル(図-11の山の一つ)分の電荷を積分し、電離箱の出力で校正することで図12を作成した。図-12に示す通り、30分間の照射中に出力が低下することなく、放射線耐性も十分であることが示された。

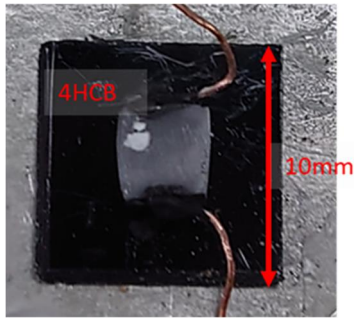


図-9 重粒子線計測に用いた結晶素子

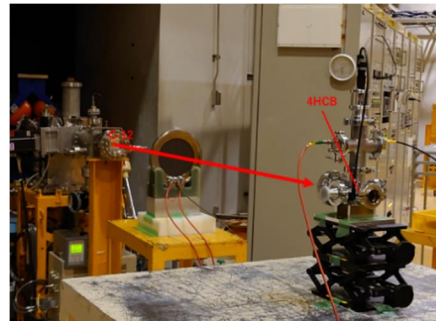


図-10 重粒子線計測実験の様子

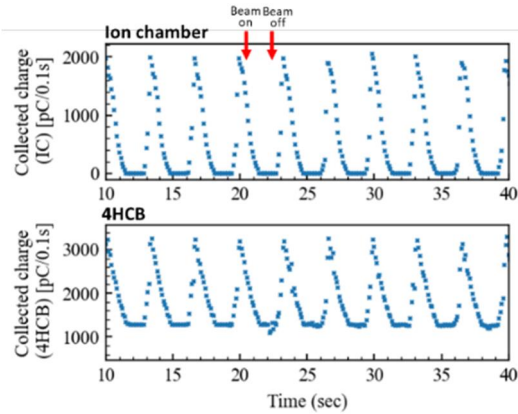


図-11 290 MeV/nの炭素線に対する出力電荷

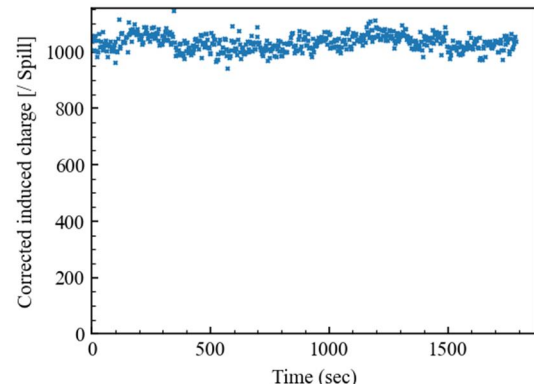


図-12 4HCBの出力の時間推移

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Fumihiko Nishikido, Eiji Takada, Masakazu Yamagishi, Rodrigo yuji Okada, Sodai Takyu, Hangyu Kang, Taiga Yamaya
2. 発表標題 Organic radiation detectors of 4HCB crystal for carbon beam irradiation
3. 学会等名 IEEE Nuclear Science Symposium/Medical Imaging Conference (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Fumihiko Nishikido, Eiji Takada, Rodrigo yuji Okada, Gen Shikida, Sodai Takyu, Hangyu Kang, Taiga Yamaya
2. 発表標題 Response of organic photodiode detectors for carbon beam irradiation in vacuum
3. 学会等名 IEEE Nuclear Science Symposium (NSS) and Medical Imaging Conference (MIC), IEEE NPSS (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡田ロドリゴユウジ, 高田英治, 山岸正和, 錦戸文彦, 岸本俊二
2. 発表標題 有機半導体単結晶を用いる新しい放射線検出器の開発
3. 学会等名 日本原子力学会2020秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐竹大樹, 高田英治, 山岸正和, 岡田裕之
2. 発表標題 放射線検出器用ペロブスカイト構造結晶の簡易作製と性能評価
3. 学会等名 日本原子力学会2020秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Fumihiko Nishikido, Eiji Takada, Rodrigo Yuji Okada, Gen Shikida, Sodai Takyu, Hangyu Kang, Taiga Yamaya
2. 発表標題 Response of organic photodiode detectors for carbon beam irradiation in vacuum
3. 学会等名 IEEE Nuclear Science Symposium/Medical Imaging Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	錦戸 文彦 (Nishikido Fumihiko) (60367117)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・量子医科学研究所 先進核医学基盤研究部・主任研究員  (82502)	
研究分担者	人見 啓太郎 (Hitomi Keitaro) (60382660)	東北大学・工学研究科・准教授  (11301)	
研究分担者	高橋 浩之 (Takahashi Hiroyuki) (70216753)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授  (12601)	
研究分担者	岡田 裕之 (Okada Hiroyuki) (80233344)	富山大学・学術研究部工学系・教授  (13201)	
研究分担者	飯本 武志 (Iimoto Takeshi) (80302678)	東京大学・環境安全本部・教授  (12601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------