

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 30 年 6 月 14 日現在

機関番号：53203

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26289366

研究課題名(和文)有機シンチレータと一体化した生体等価なピクセル型放射線イメージング検出器の開発

研究課題名(英文)Development of "Tissue-Equivalent" Pixelized Radiation Detector Combined with Organic Scintillator

研究代表者

高田 英治 (Takada, Eiji)

富山高等専門学校・電気制御システム工学科・教授

研究者番号：00270885

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：有機半導体を用いるピクセル型放射線計測素子のインクジェット法による製作について検討し、製作プロセスを最適化した。X線照射実験による性能評価および製作条件検討へのフィードバックを行うことで、性能を向上させた。溶剤の種類や塗布量、塗布間隔等について検討し、概ね安定した性能が得られる状態とした。単一のフィルム上に5個の有感部を持つピクセル型素子を作成し、各有感部からの信号によりX線分布が測定可能であることを実証した。有機半導体による複数の電流読み出し型検出器による放射線エネルギーの推定について検討し、その可能性を示した。医療現場や福島第一原発廃止措置作業など、高線量率場に適用できると考えている。

研究成果の概要(英文)：Fabrication of pixelized radiation detector composed with organic semiconductor material has been studied based on ink-jet printing technology. Fabrication parameters and kind of solvent were optimized to realize stable current output under irradiation of X-rays. Pixelized detectors with five sensing regions were fabricated and their applicability to radiation distribution measurements has been shown. Possibility of radiation energy estimation with the data measured by using current-output organic semiconductor detectors were evaluated. The results showed that, with conventional energy unfolding algorithm, it is possible to estimate radiation energy with this technique.

研究分野：放射線計測

キーワード：放射線計測 有機半導体 インクジェット ピクセル化 X線

1. 研究開始当初の背景

がんが日本人の死亡原因の1位となる中で、放射線によるがん診断・治療が広く普及している。その際、被曝量を合理的な範囲に抑えつつ診断・治療効果を上げることが求められる。また、福島第一原発事故の完全な終息に向け、未だ被曝を伴う作業が残されている。これらの医療行為や作業においては、患者や作業員の被曝量を正確に測定することが求められている。

従来、被曝量測定には無機半導体による放射線検出器が使用されてきた。しかし、生体の構成物質と検出器材料が異なるために、線量計測を考える場合には、測定結果が直接生体組織へのエネルギー付与を表していないという制約があった。また従来の検出器は形状の可変性に乏しく、大面積でフレキシブルな検出器を製作するのが難しい状況にあった。

そこで研究代表者らのグループでは、生体等価な放射線検出器を開発するため、有機半導体光検出器(有機 Photo Diode: PD)の放射線計測への適用を目指し研究を行ってきた。その結果、有機PDとシンチレータの併用によりX線照射時の電流発生量の増加が見込めること、スピンコート法により有機シンチレータ上に直接有機PDを製作することが可能であり、電極部分(数10~数百nm)を除くと全ての材料が有機材料で構成される検出器が構成可能であること等、生体等価な有機放射線検出器の可能性を示してきた。

しかし、これまでは単一素子の放射線検出器開発に留まっていた上に、スピンコート法では製作の自動化が難しいという問題があった。他方、有機エレクトロニクス等の分野ではインクジェット等の印刷技術が高度化され、量産化も可能な段階に到達している。

2. 研究の目的

本研究においては、研究代表者によるこれまでの取り組みと既に他分野で使用されている印刷技術を組み合わせ、シンチレータとピクセル型有機PDが一体化し、シンチレータの表面におけるシンチレーション光分布を一度に測定可能なイメージング素子を開発することを目指した。放射線イメージングのためのこのような素子構造は当時、例のないものであった。使用に当たっての利便性に優れる上に、材料の生体との等価性から線量評価の点でも有利と考えられ、革新的な検出器を構成することを目指した。

また、同様の検出器の適用範囲の拡大を目指し、有機半導体を用いる放射線検出器によるエネルギー推定可能性を検討した。パルス計測法の適用に加え、電流出力型として動作させながらもエネルギー推定を行う手法を検討した。

3. 研究の方法

研究を進めるに当たっては、インクジェッ

ト法によるピクセル型検出器の構築と特性評価を行った。その際、当該科研費によって調達したインクジェット装置: UIJPS-C-100-LC(クレミア社)を用いた。本用途に適した溶剤を用いるとともに、製作パラメータの最適化を行った。

素子活性層の薄さなどが原因で、現在のところパルス計測に適した状態ではない。そこで、有機半導体を用いる素子を従来通り、電流出力型検出器として使用し、エネルギー推定を行う可能性を検討した。複数の素子のそれぞれに異なる遮蔽材を装着することでエネルギー依存性を持たせた。

4. 研究成果

活性層に P3HT: PCBM 混合材料を用い、溶剤にトリクロロエチレンを使用して、インクジェット法によって素子を製作した。インクジェット法による素子と比較を行うため、表-1のようなパラメータとした。これらに対して工業用X線発生装置から白色X線を照射して特性評価を行った結果を図-1に示す。インクジェット法のパラメータを調整することで、スピンコート法と同程度のX線誘起電流が得られることを示した。

表-1 素子製作のパラメータ

素子	A	B	C
製作方法	インクジェット		スピンコート
有感部サイズ	4 mm × 8 mm		
X軸ピッチ [mm]	0.070	0.025	-
X軸ドット数	130	380	-
Y軸ピッチ [mm]	0.050	0.025	-
Y軸ドット数	100	240	-

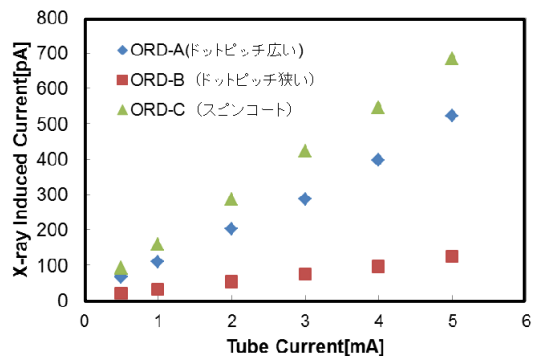


図-1 製作した素子にX線を照射した際のX線誘起電流(X線管電圧: 50V)

一方、ピクセル化の可能性を評価するため、スピンコート法によって図-2に示すような5ch素子を製作し、X線照射実験を行った。素子はポリイミドフィルム上に作成し、白色X線発生装置の管電圧を50kV、管電流を5mAとし、発生したX線を4mmの鉛板(厚さ

10mm) でコリメートして各有感部に照射した。測定された X 誘起電流は図-3 の通りである。この結果より、本研究で対象とした素子により、X 線分布を測定可能であることを実証した。インクジェット法によっても同様の素子は製作したが、読み出し回路の故障によりデータ取得はできなかった。しかし、発生する電流がスパインコート法による素子と同程度であることは確認できたことから、今後、ピクセルサイズを小さくすることでより詳細な X 線分布測定に適用できると考えている。

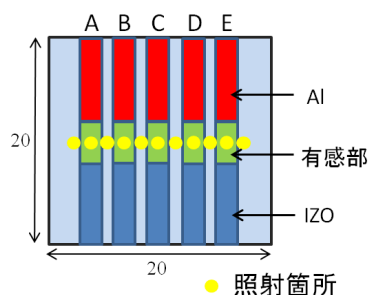


図-2 作成した 5ch 素子の構造

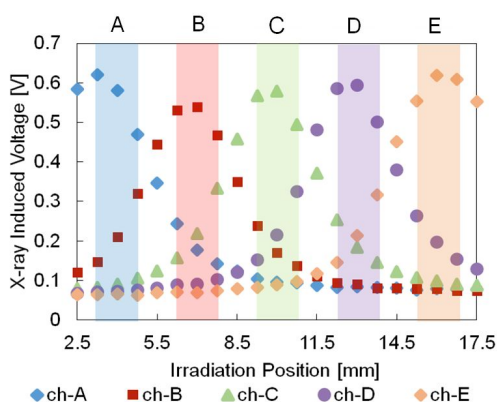


図-3 作成した 5ch 素子に対し X 線入射位置を変化させて照射した場合の各素子からの発生電流

電流出力型の有機半導体放射線検出器によって X 線エネルギーを推定するため、複数の検出器の前にそれぞれ異なる遮蔽材を設置し、エネルギー依存性を持たせる方法を試みた。あらかじめ各エネルギーの X 線が入射した際のエネルギー付与量をシミュレーションコード (EGS5) により評価しておき、エネルギー付与量が発光量と比例することを仮定して応答関数を作成した。測定結果と応答関数から、入射した X 線のエネルギー推定を試みた。高エネルギー加速器研究機構 (KEK) フォトンファクトリー (PF) のビームライン BL-14A において、遮蔽材として Al (1.5 mm, 3 mm)、PMMA (3 mm)、Sn (0.1 mm)、Ti (0.1 mm, 0.5 mm)、Cu (0.2 mm)、Pb (0.2 mm)、Zr (0.2 mm) を用いて実験を行った。25、40、60 keV の単色 X 線を入射した場合について、各遮蔽材を設置して測定された電流から入射 X 線エネルギーを推定した。今回の実験ではエネルギーを変化させた際に一

部実験条件が変動したため、絶対値としての評価が難しかった。そこで、各エネルギーにおける遮蔽材なしの測定結果で規格化した結果を用いて推定した。その結果を図-4 に示す。入射エネルギーは概ね推定できていることが分かる。しかし、特に高エネルギー側において推定結果にやや広がりが見られた。これは今回使用した遮蔽材セットにおいては、高エネルギー側ほどエネルギー依存性が小さくなっていったためである。今後は遮蔽材の種類や厚さを最適化し、より精度のよい推定を目指す。

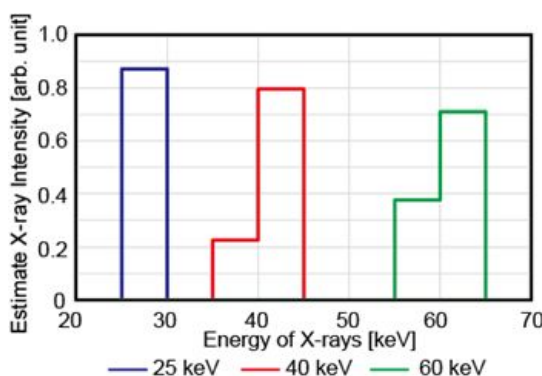


図-4 25、40、60 keV の単色 X 線を入射した際の電流を用いたエネルギー推定結果

これらの結果より、本課題で研究対象とした、有機半導体放射線検出器のピクセル化およびエネルギー推定については、概ね実現できたものと考えている。今後は素子の単結晶化等を通じてパルス計測化を実現し、さらに性能のよい素子を製作する予定である。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 1 件)

Eiji Takada, Kazuo Fujii, Hideyuki Imai, Hiroyuki Okada, Yoshihito Namito and Takashi Nakamura, "Response of organic photodiode fabricated directly on plastic scintillator to X-rays", Journal of Nuclear Science and Technology, 52, 2016, 104-108. (査読あり)

[学会発表](計 12 件)

鋪田 巖、竹澤大智、網谷達輝、高田英治、錦戸文彦、神野郁夫、「有機半導体放射線検出器によるエネルギー推定の試み」次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス (NDEC3) 2018.

E. Takada, G. Shikida, M. Nogami, H. Imai, T. Chaki, F. Nishikido, S. Naka, H. Okada, "Optimization of Fabrication Process for Organic Radiation Detector with

Ink-Jet Printing Technology”, IEEE Nuclear Science Symposium/Medical Imaging Conference, 2017.

F. Nishikido, E. Takada, M. Nogami, G. Shikida, M. Nitta, G. Hirumi, T. Yamaya, “Organic photodiode detectors for heavy ion beam measurement”, IEEE Nuclear Science Symposium/Medical Imaging Conference, 2017.

錦戸文彦、高田英治、鋪田巖、野上光博、新田宗孝、蛭海元貴、田久創大、山谷泰賀、「素線に対する形状の異なる有機フォトダイオードの特性の違いの評価」、応用物理学会 2017 年第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、2017.

鋪田巖、高田英治、今井英之、茶木智勝、錦戸文彦、岩瀬広、中茂樹、岡田裕之、「有機半導体放射線検出器の特性評価と応用検討」、日本原子力学会 2017 年秋の大会、2017.

高田英治、有機半導体を用いる医療用放射線検出器の開発、平成 29 年電気学会全国大会（招待講演）、2017.

錦戸文彦、高田英治、野上光博、新田宗孝、山谷泰賀、「炭素線測定への応用に向けた有機フォトダイオードの特性評価」、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017.

Fumihiko Nishikido, Eiji Takada, Mitsuhiro Nogami, Munetaka Nitta, Taiga Yamaya, “X-Ray Transparent Multi-Channel Dosimeter Based on Organic Photodiodes and Plastic Scintillators for Real-Time IVR Monitoring”, IEEE Nuclear Science Symposium/Medical Imaging Conference, 2016.

Eiji Takada, Mitsuhiro Nogami, Hideyuki Imai, Tomokatsu Chaki, Fumihiko Nishikido, Shigeki Naka, Hiroyuki Okada, “Fabrication of Organic Radiation Detector with Ink-Jet Printing Technology”, IEEE Nuclear Science Symposium/Medical Imaging Conference, 2016.

Eiji Takada, Mitsuhiro Nogami, Hideyuki Imai, Fumihiko Nishikido, Yoshihito Namito, Takashi Nakamura, Hiroyuki Okada and Shigeki Naka, “X-ray distribution Measurement with Organic Photodiodes Fabricated on Plastic Scintillator Plate”, IEEE Nuclear Science Symposium/Medical Imaging Conference, 2015.

Fumihiko Nishikido, Eiji Takada, Takashi Moritake, Taiga Yamaya, “Real-Time Monitoring System of Skin Dose Distribution in Interventional Radiology Using Organic Photo Diodes Combined to Plastic Scintillator” IEEE Nuclear Science Symposium/Medical

Imaging Conference, 2014.

Eiji Takada, Kazuo Fujii, Hideyuki Imai, Yoshihito Namito, Takashi Nakamura and Hiroyuki Okada, “Fundamental Study on Applying Organic Photodiodes Fabricated on Plastic Scintillator to X-Ray Distribution Measurement”, IEEE Nuclear Science Symposium/Medical Imaging Conference, 2014.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

高田英治 (TAKADA, Eiji)

富山高等専門学校・電気制御システム工学科・教授

研究者番号：00270885

### (2) 研究分担者

高橋浩之 (TAKAHASHI, Hiroyuki)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授

研究者番号：70216753

岡田裕之 (OKADA, Hiroyuki)

富山大学・大学院理工学研究部(工学)・教授

研究者番号：80233344

河原林 順 (KAWARABAYASHI, Jun)

東京都市大学・工学部・教授

研究者番号：80283414

飯本武志 (IIMOTO, Takeshi)

東京大学・環境安全本部・教授

研究者番号：80302678

### (3) 連携研究者

なし

### (4) 研究協力者

錦戸文彦 (NISHIKIDO Fumihiko)