

令和 3 年 5 月 21 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01911

研究課題名(和文)放射線誘起蛍光体の重粒子線に対する応答特性の制御技術開拓

研究課題名(英文)Control on the response of radiation-induced phosphors for heavy charged particles

研究代表者

浅井 圭介 (Asai, Keisuke)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号：60231859

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,000,000円

研究成果の概要(和文)：重粒子線の計測においては、その特有のエネルギー付与形態を勘案する必要がある。重粒子線はその飛跡近傍において高密度なエネルギー付与を生じる。これは、飛跡方向のエネルギー付与密度である線エネルギー付与という量によって特徴づけられる。本研究は、線エネルギー付与に依存した放射線計測用蛍光体の応答について、その依存性に至る基礎過程を解析し、材料ごとの依存性の決定因子を明らかにした。シンチレータにおいては、発光に至る励起状態に応じた線エネルギー付与依存性が明らかとなった。一方で、熱蛍光体においては、電子や正孔の捕獲サイト濃度によるLET依存性の違いが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られた知見は、学術的には、重粒子線計測に用いる放射線誘起蛍光体において、所望のLET依存性を実現するための実験指針となる。このことは、重粒子線計測における技術的基盤となる。本研究を通じた重粒子線計測の高度化により、主に重粒子線治療における線量およびその分布の計測、あるいは正確なエネルギー付与計測は、重粒子線を用いた医療の高度化に資するものである。

研究成果の概要(英文)：Unique energy deposition characteristics of heavy charged particles should be taken into account in the measurements of them. They deposit energy densely along their trajectories, and the energy density per unit length along the trajectory, i.e., linear energy transfer (LET), is used to express the energy deposition characteristics. In this study, we revealed the basic processes responsible for the LET-dependent response of phosphors used for radiation detection. The LET-dependence of scintillators depends on the species of the excited states responsible for scintillation. On the contrary, in the case of thermally stimulated luminescence phosphors, the LET dependence can be controlled via the concentrations of the trap sites of electrons and holes.

研究分野：放射線工学

キーワード：重粒子線 線エネルギー付与 シンチレータ 熱蛍光体 励起状態間相互作用

### 1. 研究開始当初の背景

本研究構想を説明する上で最も重要なパラメータは線エネルギー付与(LET)である。これは、重粒子線により生じる電離・励起を特徴づける上で不可欠の量である。これは、物質中で放射線が飛跡に沿って付与するエネルギーの密度を表すものであり、単位飛跡長さあたりのエネルギー付与量として定義される。 $\gamma$ 線やX線、あるいは電子線の場合にはそのLETは低く、一方で重粒子線の場合には高LETで物質中にエネルギーを付与する。このようなLETの違いは、一般的に、放射線検出器の応答に対して顕著な影響を与える。

本研究では、シンチレータや輝尽・熱蛍光体などの放射線誘起蛍光体におけるLET効果を対象とした研究を行う。これらは、リアルタイムの放射線計測から放射線イメージングに到るまで、幅広い方式で利用されている。その検出対象は、X線や $\gamma$ 線、あるいは電子線という低LETの放射線から、中性子(蛍光体中の ${}^6\text{Li}$ や ${}^{10}\text{B}$ との核反応により $\alpha$ 線を生じうる)、あるいは高エネルギー重粒子線といった高LETの放射線へと広がりを見せており、近年、高LET放射線の計測ニーズが急速に高まっている。しかしながら、放射線誘起蛍光体の蛍光挙動におけるLET特性の既往の研究は、非常に現象論的な議論に終始していた。本研究は、このような状況に対して、学理に基づく材料設計指針を与えることを目的とする。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、放射線誘起蛍光体材料開発において、LET特性の基礎過程の解明を通じ、学理に基づいた材料設計を実現することにある。既往の(あるいは世界中の他グループのほとんどの)研究では、過度に現象論的な扱いのみがなされてきた。一方、高い励起密度での光物性研究については、半導体を対象としたレーザー励起での研究に限られており、高LET放射線による励起密度効果の物性研究例は非常に少ない。図1の右側に、半導体の場合に予想される応答を示す。(これらは、レーザー励起の研究から予想されるものであり、我々のグループで実際に、GaAsやCdSを対象として重粒子線照射下で観測してきた。)実際に用いられる放射線誘起蛍光体は半導体に限らず、非常に多様な物質系が利用されている。現状では、高LETで用いられる材料の特性に関して、材料設計による制御を行われることは無く、偶然に発見された、望ましいLET特性の材料を利用するに留まっていた。それに対して、本研究では、励起状態間相互作用の基礎的な過程の解明を通じた材料設計指針の確立を目的としており、この点に明確な独自性がある。

高LET放射線の検出技術の需要は、近年、確実に広がっている。その中で、近年の応用研究において特に問題となっているのは、  
 ・バックグラウンドとして並存する低LET放射線との弁別(主に(n, $\alpha$ )反応による中性子検出をシンチレータで行う場合)  
 ・線量計における顕著なLET効果  
 の2点であろう。このような状況に対応し、所望のLET特性を有する材料を設計・開発するという本研究アプローチは、中性子検出や高エネルギー重粒子線の照射線量評価において、重要な技術的貢献をする。

### 3. 研究の方法

本研究では、シンチレーションと蓄積型蛍光体の応答特性について、それぞれ、異なる実験手法を用いた。シンチレーションにおけるLET効果の解析においては、シンチレーション時間プロファイルの計測を主な手法とした。このことについては、量子科学技術研究開発機構の高崎研究所TIARAにおいて、AVFサイクロトロンからのパルスイオンビームを励起源とした計測を用いた。20 MeV H, 50 MeV He, および 130, 190, あるいは 220 MeV C のパルスビームを照射時のシンチレーションを、光電子増倍管により検出し、照射室外にまで輸送後に、デジタルオシロスコープにより信号波形を記録した。1000パルス

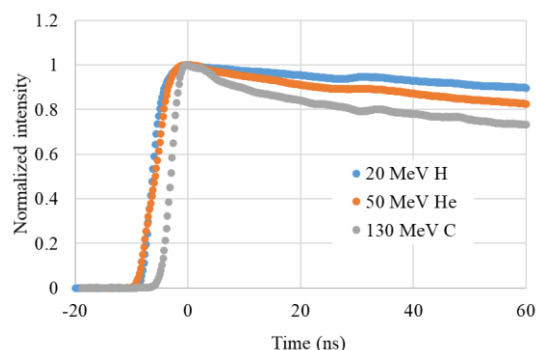


図1 異なるパルスイオンビームを照射下際のCdWO<sub>4</sub>のシンチレーション時間プロファイルの立ち上がり部分

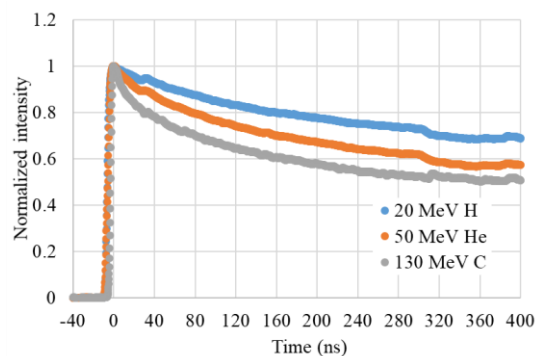


図2 異なるパルスイオンビームを照射下際のCdWO<sub>4</sub>のシンチレーション時間プロファイルの初期減衰部分

の平均波形をシンチレーション時間プロファイルとして用いた。なお、本研究での実験条件では、重イオンほど高い LET を有していることとなる。

一方で、蓄積型蛍光体では、放射線医学総合研究所 HIMAC でのイオンビーム照射後に熱蛍光グローカーブの測定を通じて LET 依存性を解析した。

#### 4. 研究成果

本研究での成果事例として、まずはシンチレーションにおける LET 効果について述べる。ここでは二つの種類のシンチレータについて成果を得た。一つは自己賦活型シンチレータと呼ばれるものであり、発光中心となる異種元素の添加なしに高効率のシンチレーションの得られる系である。一例として、 $\text{CdWO}_4$  についての成果を掲載する。図 1 および図 2 に、 $\text{CdWO}_4$  の異なるパルスイオンビーム照射でのシンチレーション時間プロファイルの立ち上がりおよび初期減衰挙動をそれぞれ示す。立ち上がりと初期減衰の双方が、高い LET で顕著に速くなった。立ち上がりについては、シンチレーションに対応する励起状態である自己束縛励起状態の形成と、励起状態間相互作用による消光との競合によるものである。一方で、減衰についても、自己束縛励起状態からの発光と、励起状態間相互作用による消光との競合によるものと推察される。これらの観点を総合すると、自己賦活型シンチレータにおいては、シンチレーション時間プロファイルにおける LET 効果は、立ち上がりと減衰の双方において生じるものと明らかになった。

シンチレーションにおける LET 効果について、もう一つは、発光中心となる異種元素の添加された無機シンチレータにおけるものである。Ce 添加  $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$  (GAGG) を例にとり成果を掲載する。図 3 および図 4 に、Ce 添加 GAGG の時間プロファイルの立ち上がりおよび初期減衰挙動をそれぞれ示す。立ち上がりが、高い LET で顕著に速くなった。これは、シンチレーションに対応する  $\text{Ce}^{3+}$  発光中心への励起エネルギー移動と、励起状態間相互作用による消光との競合によるものである。一方で、減衰については、LET への依存性は観測されなかった。これは、自己賦活型シンチレータの場合と対照的な結果であり、発光中心である  $\text{Ce}^{3+}$  の励起状態間の相互作用が非常に小さいことに起因していると推察される。これらの観点を総合すると、発光中心型シンチレータにおいては、シンチレーション時間プロファイルにおける LET 効果は、立ち上がりにおいてのみ生じるものと明らかになった。

また、蓄積型蛍光体での事例として、160 MeV/n の He ビームを、Binary Filter (アクリル減速材) の厚さを変化させて減速し、LET を変化させながら照射した結果を掲載する。10 Gy での照射後の、2% Dy 添加  $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$  セラミックスの熱蛍光グローカーブを図 5 に示す。360 K 付近にグローピークが観測され、

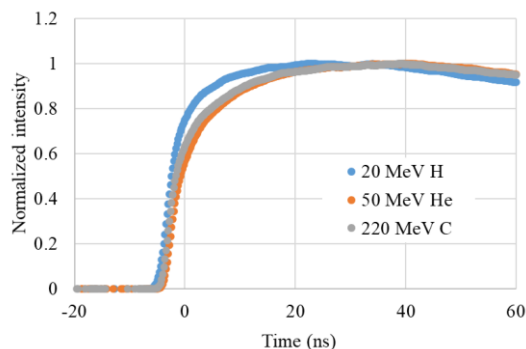


図 3 異なるパルスイオンビームを照射下際の Ce 添加 GAGG のシンチレーション時間プロファイルの立ち上がり部分

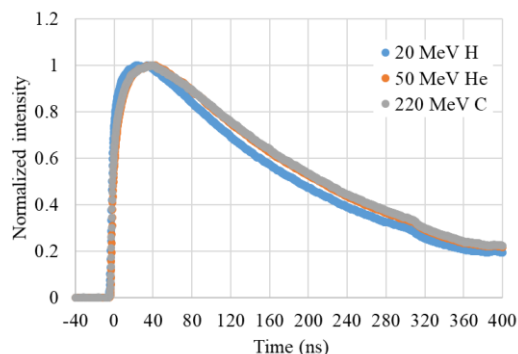


図 4 異なるパルスイオンビームを照射下際の Ce 添加 GAGG のシンチレーション時間プロファイルの初期減衰部分

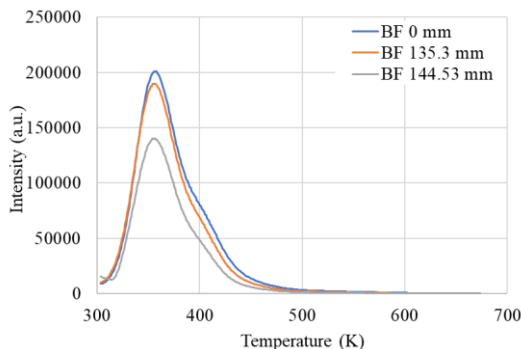


図 5 160 MeV/n の He ビームを異なる BF 厚さで 10 Gy 照射後の、2% Dy 添加  $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$  セラミックスの熱蛍光グローカーブ

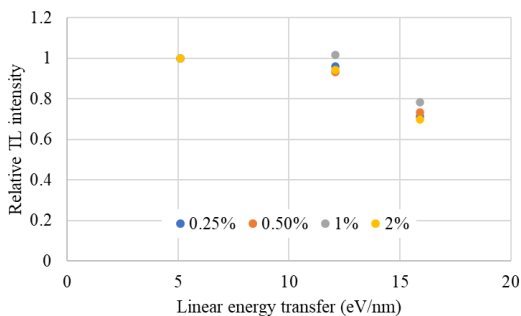


図 6 異なる Dy 添加濃度の  $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$  セラミックスの 360 K 付近のグローピーク強度の LET 依存性

また、410 K 付近においてもショルダーが観測された。このグローピーク形状については、Dy 添加濃度が 0.25、0.5、および 1 % のものでも同様であった。

図 6 に、異なる Dy 添加濃度の  $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$  セラミックスについて、360 K 付近のグローピーク強度の LET 依存性を示す。LET については、無添加の  $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$  を対象とし、空気中でのエネルギー損失を無視した体系にて SRIM コードにより推算した。なお、グローピークでの TL 強度について、最低の LET (BF 厚さ 0 に対応) での値で規格化したものを示す。この材料系における Dy 濃度依存性はそれほど顕著ではなく、LET 依存性はほぼ同様の傾向であった。15 eV/nm を超えたあたりで急速に TL 強度の低下する結果が得られた。

より定量的に解析するため、熱蛍光強度の LET 依存性について、シンチレータの場合によく用いられる Birks の式

$$\frac{dL}{dx} = L_0 \frac{\frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}}$$

を用いて解析した。ここで  $dE/dx$  が LET であり、 $kB$  が LET 依存性を表す物性定数である。図 2 の LET 依存性についてのこの式でのフィッティング結果は良好とはいえないが、敢えてフィッティングしたところ、Dy 添加濃度として 0.25%、0.5%、1%、2% の試料についてそれぞれ、0.032、0.031、0.020、0.016 nm/eV となり、添加 Dy 濃度が高濃度なほど LET 依存性が緩やかであることが示された。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Ichiro Kawamura, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Masanori Koshimizu, Go Okada, Yusuke Koba, Ryo Ogawara, Takayuki Yanagida, Keisuke Asai,	4. 巻 127
2. 論文標題 "Neutron-induced thermoluminescence properties of Tb <sup>3+</sup> -doped CaO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> glasses"	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Ceram. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 663
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2109/jcersj2.19071	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Ichiro Kawamura, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Masanori Koshimizu, Go Okada, Yusuke Koba, Ryo Ogawara, Mitsuru Suda, Takayuki Yanagida, Keisuke Asai,	4. 巻 468
2. 論文標題 "Thermoluminescence properties of Dy <sup>3+</sup> -doped CaO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> glasses for neutron detection"	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B	6. 最初と最後の頁 18
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nimb.2020.02.015	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Masanori Koshimizu, Atsushi Kimura, Satoshi Kurashima, Mitsumasa Taguchi, Takayuki Yanagida, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai,	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 "Effect of Linear Energy Transfer on the Scintillation Properties of Ce-doped Ca <sub>3</sub> B <sub>2</sub> O <sub>6</sub> crystals"	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 M. Koshimizu, S. Kurashima, A. Kimura, M. Taguchi, T. Yanagida, H. Yagi, T. Yanagitani, Y. Fujimoto, K. Asai	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 Effect of linear energy transfer on the scintillation properties of Ce:Gd <sub>3</sub> Al <sub>2</sub> Ga <sub>3</sub> O <sub>12</sub>	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Masanori Koshimizu, Takayuki Yanagida, Ryoji Kamishima, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 Scintillation properties and alpha-ray detection capabilities of thin-film plastic scintillators	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Sensors and Mater.	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計7件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Masanori Koshimizu,
2. 発表標題 "Development of Novel Inorganic Scintillators and Analysis of the Excited States Dynamics Responsible for Scintillation"
3. 学会等名 The International Conference on Information Optics and Photonics 2019 (CIOP 2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masanori Koshimizu, A. Kimura, S. Kurashima, M. Taguchi, T. Yanagida, Y. Fujimoto, K. Asai,
2. 発表標題 "Effects of linear energy transfer on scintillation properties of Ce-doped Ca <sub>3</sub> B <sub>2</sub> O <sub>6</sub> scintillator"
3. 学会等名 20th International conference on Radiation Effects in Insulators (REI-20) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masanori Koshimizu, N. Kawano, A. Kimura, S. Kurashima, M. Taguchi, Y. Fujimoto, K. Asai,
2. 発表標題 "Excitation density effects on scintillator properties of organic-inorganic layered perovskite-type compounds"
3. 学会等名 20th International conference on Radiation Effects in Insulators (REI-20) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masanori Koshimizu, Go Okada, Yuho Hirata, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi, Kenichi Watanabe, Yusuke Koba, Yutaka Fujimoto, Takayuki Yanagida, Keisuke Asai,
2. 発表標題 " LET-dependent thermoluminescence of Y3Al5O12:Ce "
3. 学会等名 The 19th International Conference on Solid State Dosimetry (SSD19) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masanori Koshimizu, Satoshi Kurashima, Atsushi Kimura, Mitsumasa Taguchi, Takayuki Yanagida, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai,
2. 発表標題 " Excitation density effects on the scintillation properties of CdWO4 "
3. 学会等名 The 19th International Conference on Solid State Dosimetry (SSD19) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 越水 正典、河野 直樹、木村 敦、倉島 俊、田口 光正、藤本 裕、浅井 圭介
2. 発表標題 「有機無機ペロブスカイト型化合物のシンチレーションにおけるLET依存性」
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Koshimizu, A. Kimura, S. Kurashima, M. Taguchi, T. Yanagida, Y. Fujimoto, K. Asai,
2. 発表標題 "Excitation density effects on scintillation properties of Li-based scintillators for neutron detection"
3. 学会等名 44rd International Conference & Exposition on Advanced Ceramics & Composites (国際学会)
4. 発表年 2020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	越水 正典  (Koshimizu Masanori)  (40374962)	東北大学・工学研究科・准教授   (11301)	

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
---------	---------