

令和 4 年 6 月 1 日現在

機関番号：82110

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2021

課題番号：20K22340

研究課題名（和文）電子挙動解析を用いた蛍光体の放射線誘起発光メカニズムの解明とその実験による検証

研究課題名（英文）Elucidation of the mechanism of radiation-induced luminescence using electron behavior analysis and experimental validation

研究代表者

平田 悠歩（Hirata, Yuho）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・博士研究員

研究者番号：30881057

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：放射線誘起発光は放射線の検出に幅広く利用されているが、これを用いた蛍光体検出器には感度が放射線の種類に依存するなどの種々の問題が報告されている。このような問題の原因を解明するため、蛍光体において放射線が光に変換される過程を解明する研究を実施した。まず、放射線が発光に変換される過程で発生する二次電子の挙動をナノスケールで解析できるモデルを開発した。そして、重粒子線を測定する際に問題となる蛍光体の感度変化の実験値を計算により予測することで、開発したモデルを実験的に検証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により得られた蛍光体の発光メカニズムに関する知見は、蛍光体を用いた放射線検出器の測定結果の補正や新たな蛍光体検出器の開発に役立てることができる。それにより、正確に放射線量を評価し、より安全な放射線の利用に貢献できる。また、開発した二次電子の微細な挙動モデルは、蛍光体だけでなく汎用な物質の放射線影響を評価するモデルとして、様々な検出器応答の解析や材料損傷のメカニズム解析などの幅広い応用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：Radiation-induced luminescence is used for radiation detection in various situations. However, the luminescence detectors show some problems. For example, the luminescence sensitivity depends on the radiation species. In order to elucidate the cause of such problems in luminescence detectors, we researched the process of converting the incident radiations into luminescence. First, we developed a model of the nanoscale behavior of secondary electrons emitted by the incident radiations. Then, the developed model was experimentally validated by predicting the experimental value of the sensitivity change of the phosphor to the heavy ions.

研究分野：放射線物理学

キーワード：放射線誘起蛍光体 モンテカルロ計算 シンチレーション検出器 マイクロドジメトリー 重粒子線

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

シンチレーターに代表される放射線誘起蛍光体は形状の自由度や材料選択性の高さから様々な現場で活用され、粒子線治療場においても線量測定を行う検出器として利用されている。しかし、蛍光体に炭素イオンなどの阻止能の大きな重粒子線を照射すると γ 線や電子線に比べて蛍光体の付与エネルギー当たりの発光効率が低下し、線量を過小評価することが問題となっている。このような、重粒子線に対する蛍光体の発光効率の低下は、高密度なエネルギー付与により電子と正孔の密度が高くなり、不純物や格子欠陥などの発光サイトが局所的に飽和したためであると考えられる。この仮説を実証するためには放射線が蛍光体に入射してから発光に至るまでの過程を細かく調査する必要がある。蛍光体に入射した放射線は二次電子を生成する。その二次電子がさらに励起電子を生成し、発光サイトにおいて励起電子と正孔が再結合することで発光に至る。このうち、二次電子が励起電子に変換されるまでのエネルギー遷移過程は非常に複雑であり、挙動の詳細が分かっていないため説明が求められる。

2. 研究の目的

本研究では、蛍光体の重粒子線に対する応答変化などの蛍光体を用いた検出器の問題を解決するため、放射線により発生した二次電子の挙動を数値計算により解析し、蛍光体において放射線が光に変換される過程を説明する研究を実施する。また、蛍光体の重粒子線に対する応答変化を測定し、数値計算を実験的に検証する。

3. 研究の方法

電子・重イオン輸送計算コード (PHITS) は汎用的な放射線輸送計算コードとして様々な用途で用いられている。PHITS には、水中における電子の挙動を精細に計算する電子飛跡構造解析モードが組み込まれている。飛跡構造解析計算とは入射した放射線の相互作用を一つ一つ再現し、入射電子の挙動を逐次的に計算する手法であり、検出器に入射した放射線が発光に変換されるまでの過程を細かく追跡することができる。しかし、飛跡構造解析計算はすべての相互作用を細かく考量する必要があり、その断面積は物質に依存する。そこで、このような飛跡構造解析コードを蛍光体に応用する第一歩として、汎用的な検出器物質である Si 中の電子の飛跡を解析する電子線飛跡構造解析コードを開発した。さらに、蛍光体の粒子線に対する応答の実験値を PHITS により再現することで、PHITS を用いた数値計算により蛍光体の発光メカニズムの説明が可能であることを示した。

4. 研究成果

電子飛跡構造解析計算コードの開発には物質に依存した相互作用ごとの断面積が必要である。光学的エネルギー損失関数は光の吸収から得られる物質へのエネルギー遷移確率分布であり実験値として求められるため、ターゲット物質の特性を直接反映している。この光学的エネルギー損失関数を用いることで電子線の相互作用ごとの断面積が導出できる。

そこで、Si のエネルギー損失関数をそれぞれの相互作用別に分解した相互作用ごとの断面積を計算した。図 1 に Si における電子の断面積を示す。Si において発生する弾性散乱、フォノン振動、励起、そして各電子殻からの電離それぞれの断面積を導出することができた。さらに、各相互作用において電子から Si に遷移するエネルギーの確率分布を導出し、Si における電子線飛跡構造解析モデルを開発した。開発したモデルを PHITS に組み込むことで Si における電子線飛跡構造解析計算コードを開発した。

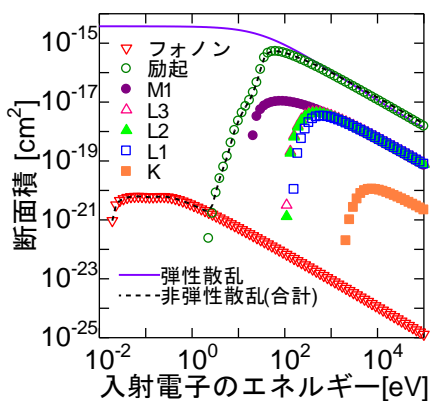


図 1 相互作用ごとに分解した Si のエネルギー損失関数

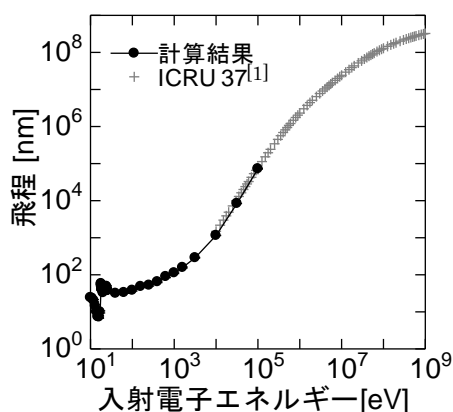


図 2 Si 中の電子の飛程

開発したコードの検証として図2に示すようなSi中の電子の飛程と電子線のエネルギーの関係を計算した。計算した電子の飛程はICRU 37^[1]で報告されているSi中の電子線の飛程と一致した。また、図3に示すようなSiにおける付与エネルギーと励起電子の生成数の関係も計算した。発生した励起電子数は付与エネルギーに比例した。この傾きは ϵ 値と呼ばれており、 ϵ 値とはSiへの付与エネルギー当たりの励起電子の発生数である。今回計算した結果は報告されている3.62 eVを再現した。以上の結果より開発した電子線飛跡構造解析計算コードは検出器の応答を再現できることが分かった。

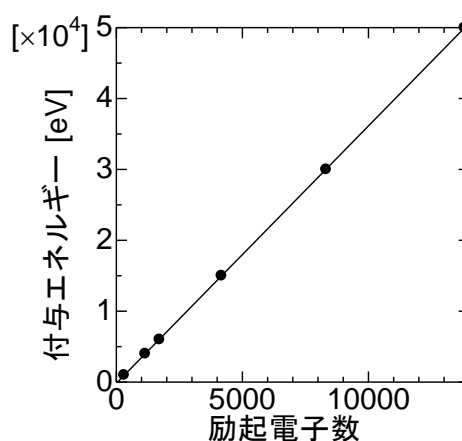


図3 Siにおける付与エネルギーと電子生成数の関係

次に、蛍光体の一種である光刺激蛍光体の重粒子線に対する発光効率の低下を、物質中のエネルギー付与密度が計算できるPHITSのマイクロ線量関数を用いて再現した。

重粒子線照射時の発光効率低下の原因が局所的な飽和であると仮定し、付与エネルギー密度と蛍光体の飽和の関係を応答関数として用いた。 γ 線は粒子線と比べてエネルギー付与密度が小さく蛍光体に均一にエネルギーを付与しているため、局所的なエネルギー付与密度と蛍光体全体のエネルギー付与密度が等しい。局所的なエネルギー付与密度は実験による測定が困難であるが、蛍光体全体のエネルギー付与密度は線量として測定が可能である。そこで、 γ 線照射実験により蛍光体の線量と発光効率の関係を測定し応答関数とした。計算した付与エネルギー密度にこの応答関数を用いることで蛍光体の発光効率を決定した。

図4に光刺激蛍光体であるBaFBr:Euの ^4He 、 ^{12}C 、 ^{20}Ne に対する発光効率を示す。BaFBr:Euの発光効率は重粒子治療装置(HIMAC)において測定した。マイクロ線量関数を用いた計算値はマイクロ線量関数に用いる微小球の直径を30~50 nmと設定したとき実験値と一致した。この結果からPHITSのマイクロ線量関数を用いることで、発光プロセスに関連した重粒子線に対する発光効率低下を再現できた。

本研究では、蛍光体検出器の発光メカニズムを理論的に解明するため、放射線がエネルギーを付与する過程を精密に追跡する電子飛跡構造解析コードを開発し、さらに蛍光体の応答を計算によりマイクロ線量から予測した。以上より、PHITSを用いた数値計算により蛍光体の発光メカニズムに基づく粒子線に対する応答変化が解明であることを示した。今後、さまざまな蛍光体に対して飛跡構造解析計算による応答解析を行うことで、発光メカニズムに関する理解がさらに深まることが期待される。

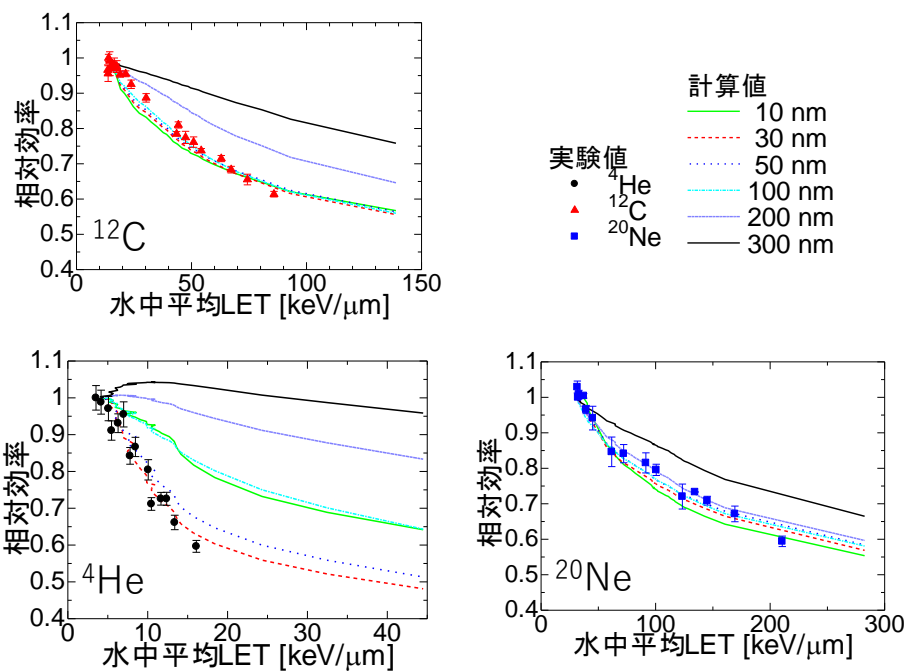


図4 BaFBr:Euの重粒子線に対する発光効率のLET依存性

[1] ICRU Report 37. On Radiation Units and Measurements ICRU Report 37; 1984.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Hirata Yuho, Sato Tatsuhiko, Watanabe Kenichi, Ogawa Tatsuhiko, Parisi Alessio, Uritani Akira	4. 巻 published online
2. 論文標題 Theoretical and experimental estimation of the relative optically stimulated luminescence efficiency of an optical-fiber-based BaFBr:Eu detector for swift ions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 1~10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/00223131.2021.2017372	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 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 平田悠歩、甲斐健師、小川達彦、松谷悠佑、佐藤達彦
2. 発表標題 Siの放射線影響評価に向けた電子線飛跡構造解析計算コードの開発
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022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
---------------------------	-----------------------	----

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