



実効電荷を考慮した局所線量分布の更新

酒井, 盛寿
楠本, 多聞
金崎, 真聡
小田, 啓二
山内, 知也

(Citation)

神戸大学大学院海事科学研究科紀要, 15:31-42

(Issue Date)

2018

(Resource Type)

departmental bulletin paper

(Version)

Version of Record

(JaLCD0I)

<https://doi.org/10.24546/81010495>

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/81010495>



実効電荷を考慮した局所線量分布の更新

An up-to-date local dose distribution theory for ion tracks considering effective charge

酒井 盛寿*, 楠本多聞**, 金崎真聡*, 小田啓二*, 山内知也*

Morikazu SAKAI*, Tamon KUSUMOTO**, Masato KANASAKI*, Keiji ODA*,
Tomoya YAMAUCHI*

(平成 30 年 6 月 14 日受付)

Abstract

The radial dose distribution model explains the track structure as a result of interaction of delta-rays with the sensitive parts of the detector medium. In this model, the effective charge, Z_{eff} , is an important parameter which expresses the mean equilibrium charge states of projectiles in the stopping media. The Effective charge formula by Heckman is widely used in the field of radiation measurement, but this formula has a difficult point that experimental verification has been done only up to Ar ion. In the other field of accelerator physics, the formula by G. Schiwietz and P.L. Grande is used normally. This empirical formula was supported by the experiments up to U ions. In the cases of heavy ions lower than C ions, the both formulas give almost identical results. On the other hand, in the case of U ions, the formula of Schiwietz gives larger values than that of Heckman. At $\beta=0.1$, the Heckman gives about 74% value of the Schiwietz ($H/S = 74\%$). At $\beta=0.2$ and $\beta=0.3$, $H/S= 85\%$ and 92% , respectively.

(Received 14. June 2018)

1. はじめに

固体飛跡検出器は軽量かつコンパクトにすることが可能な電源を必要としない受動型放射線検出器の一種である。高い電荷及びエネルギー分解能を有するポリアリルジグリコールカーボネート (PADC) が飛跡検出器として再発見されてから 40 年が経過した (Cartwright et al., 1978)。主な固体飛跡検出器として他にもポリエチレンテレフタレート (PET) やビスフェノール A ポリカーボネート (PC) が知られている。これらの検出閾値を表すパラメータの 1 つに局所線量が用いられている (Waligorski et al., 1986)。

式 (1) に Katz らの局所線量分布の式を示す。

$$D(t) = \frac{N \cdot e^4 \cdot Z_{eff}^2}{\alpha \cdot m \cdot c^2 \cdot \beta^2 \cdot t} \cdot \left\{ \frac{\left(1 - \frac{t+\theta}{T+\theta}\right)^{1/\alpha}}{t+\theta} \right\} \quad (1)$$

N : ターゲット中単位体積あたりの電子数

e : 電子の電荷

m : 電子の質量

c : 光速

t : イオン軌跡からの半径

T : 二次電子の最大エネルギー飛程

θ : 二次電子が平均電離エネルギー時の飛程

k : δ 線のエネルギーと飛程の比例定数

I : 平均電離ポテンシャル

ρ : ターゲット密度

*神戸大学大学院海事科学研究科

**放射線医学総合研究所

$D(t)$ はイオン軸から t nm 離れた地点での局所線量を表している。現在用いられている Katz らの局所線量分布理論は Ar 以上の重いイオンでの実験データが存在しないため、さらに重いイオンへの適用について検討しなければならない。

1.1 実効電荷

実効電荷は飛翔している荷電粒子が帯びている電荷を表すパラメータで荷電粒子の速度、ターゲットの核電荷などの要因によって常に変化している。式 (1) では Z_{eff} が実効電荷に対応している。光速に近い荷電粒子の場合、その実効電荷は核電荷と等しくなり、ターゲット内に入ると周りの原子から電子を奪い取りながら減速し、同時に荷電粒子が帯びる電荷も下がっていく。放射線計測の分野では実効電荷を Heckman の式を用いて求めてきた(Heckman et al., 1960)。式 (2) に Heckman の式を示す。

$$Z_{eff} = Z_p \left[1 - \exp(130\beta/Z_p^{2/3}) \right] \quad (2)$$

Z_{eff} : 実効電荷

Z_p : イオンの核電荷

β : 相対速度

Heckman の式の特徴は実効電荷がイオンの核電荷とその相対速度のみによって記述されている点である。また Ar までの実験データにより求められた式である。これとよく似た式に Barkas の式が知られている。これを式 (3) に示す。

$$Z_{eff} = Z_p \left[1 - \exp(125\beta/Z_p^{2/3}) \right] \quad (3)$$

Fig. 1. にそれぞれの式から求めた実効電荷のグラフを示す。どちらの式から求めた実効電荷にも大きな差は見られないため、今回は Heckman の式を扱う。一方、加速器物理の分野では Schiwietz の式が実効電荷を求める式として使われてきた(Schiwietz et al., 2001)。式 (4) に Schiwietz の式を示す。

$$q_{mean} = Z_p \cdot \frac{12x + x^4}{0.07/x + 6 + 0.3x^{0.5} + 10.37x + x^4} \quad (4)$$

$$x = \left(v_p/v_0 Z_p^{-0.52} Z_t^{-0.019 Z_p^{-0.52} v_p/v_0} / 1.68 \right)^{1+1.8/Z_p}$$

v_p : イオンの速度

v_0 : ボーア速度

Z_t : ターゲットの核電荷

x : スケーリングパラメータ

Heckman の式とは違い、ターゲットの核電荷も考慮されているこの式は H イオンから U イオンまでの加速器実験により求められた実験式であるため、実効電荷を求める式としてはこちらを用いるのが妥当だと考えられる。

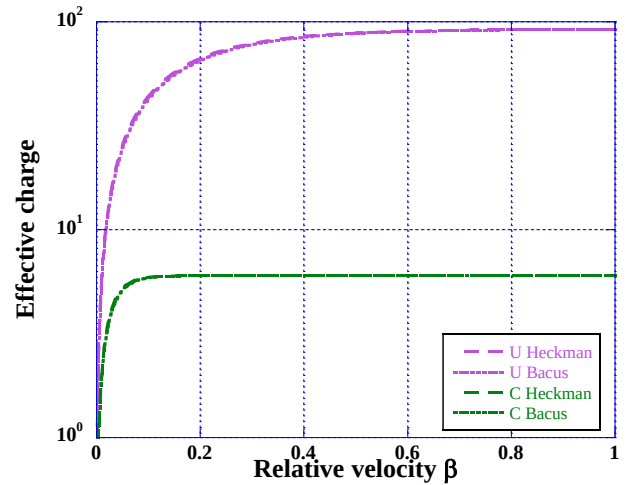


Fig. 1. Relationship between effective charge and relative velocity.

2. 計算

(2)、(4)式からそれぞれ実効電荷を計算し、その実効電荷を Katz らの局所線量分布理論に適用した。その後、イオン軸上のある点で発生した二次電子がイオン軸からの距離 t でもたらず局所線量 $D(t)$ を径方向に電子の最大飛程 T まで積分すると

$$S = \int_0^T 2\pi t \cdot D(t) dt \quad (5)$$

となる。この S はイオンがこの点で落とすエネルギーの総量と等しいはずである。即ち S はこの点での阻止能と言い換えることができる。

しかし、この積分を数学的に解くことは難しくまたこれを解く意義はないので微小量 dt を適当な値で変化させ足し合わせることで近似的に阻止能を求めた。これらを SRIM の阻止能と比較した。

3. 結果

3.1 実効電荷と相対速度の関係

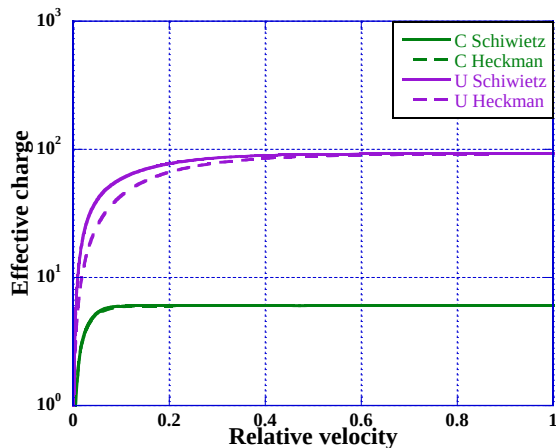


Fig. 2. Relationship between effective charge and relative velocity.

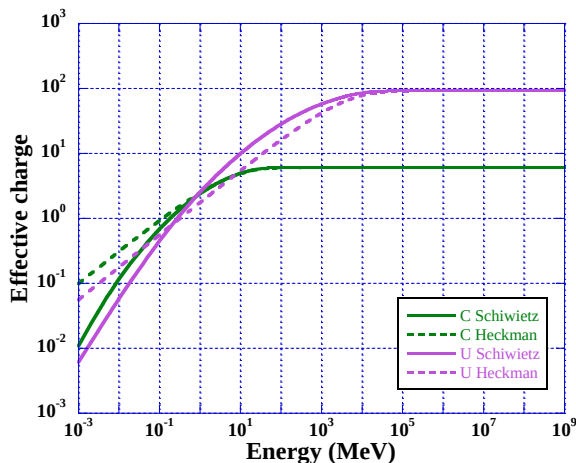


Fig.3. Relationship between effective charge and projectile energy.

Fig. 2.に C イオンと U イオンを炭素標的に入射させたときの実効電荷と相対速度の関係を示す。Fig. 2.では C イオンなどの軽いイオンにおいては相対速度が数%の以上の領域では Z_{eff} と q_{mean} はほぼ等しいことを示している。しかし、

U イオンなどの重いイオンにおいては相対速度が 1-10%の領域で実効電荷に Schiwietz らの式から求めた実効電荷が Heckman の式から求めたものを凌駕し、相対速度が 10%のときに Z_{eff}/q_{mean} が 74%になった。また相対速度が 20%、30%のときはそれぞれ Z_{eff}/q_{mean} が 85%、92%となった。Fig. 3.に C イオンと U イオンを炭素標的に入射させたときの実効電荷とイオンのエネルギーの関係を示す。上図によるとイオンのエネルギーが 100 keV 未満の領域では Heckman の実効電荷の方が大きく評価されていることがわかる。

3.2 局所線量での比較

Fig. 4.に式 (2)、(3) から求めた実効電荷を (1) 式に代入して求めた局所線量の比較を示す。グラフは両者の実効電荷の差が大きい U イオンの 600 MeV/u 時の局所線量を示している。イオン軸からの距離に関わらず、Schiwietz の式を用いた局所線量の方が大きい値を示した。

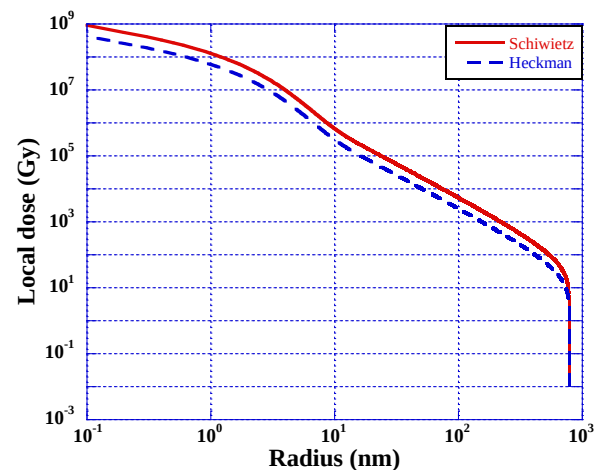


Fig. 4. Comparison of local doses.

3.3 阻止能での比較

それぞれの実効電荷から求めた局所線量を (5)式を用い、Fig. 5.のようにイオン軸から径方向へ積分近似し、阻止能とする。U イオンの計算結果を Fig. 6.に示す。相対速度が 30%以下の領域では Schiwietz らの式から求めた電子的阻

止能が SRIM コードから求めた阻止能を最大で 43% 上回った。また Heckman の式から求めた阻止能はすべての速度域で SRIM コードから求めた阻止能を下回った。相対速度が 30% を超える領域では阻止能が大きいものから SRIM コード、Schiwietz、Heckman となっていることから Heckman の式よりも Schiwietz らの式を用いた方が SRIM コードから求める阻止能の値に近くなるといえる。

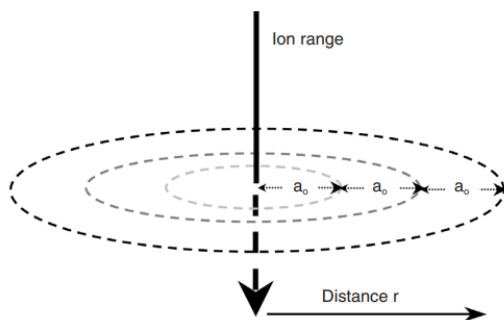


Fig. 5. Image of integral approximation.

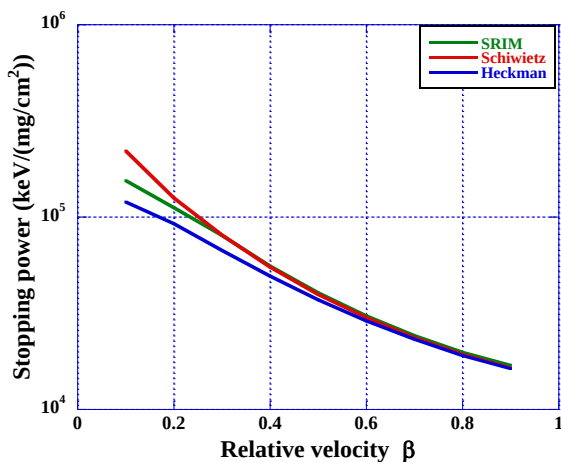


Fig. 6. Relationship between stopping power and relative velocity.

4. PET 検出器閾値への活用

本項目では PET 検出器閾値の評価を新たな局所線量を用いて行う。先行する研究においてはその評価は局所線量、阻止能、感度、官能基が失われている径方向の広がりを表す実効的トラックコア半径の関係で扱われてきた。Table 1 に使用したデータを示す(上野, 2017)。

Table 1 Data at detection threshold in PET.

Ion	阻止能 (eV/vm)	コア半径 (nm)	局所線量 (Gy)	感度
B	737.8	1.0	3.9×10^6	0.60
C	855.8	1.1	3.7×10^6	0.48
N	943.7	1.1	3.4×10^6	0.46
O	967.7	1.1	3.3×10^6	0.40
Ar	1088	1.2	2.2×10^6	0.35
Kr	1356	1.4	2.1×10^6	0.32

4.1 検出閾値での局所線量と実効的トラックコア半径の関係

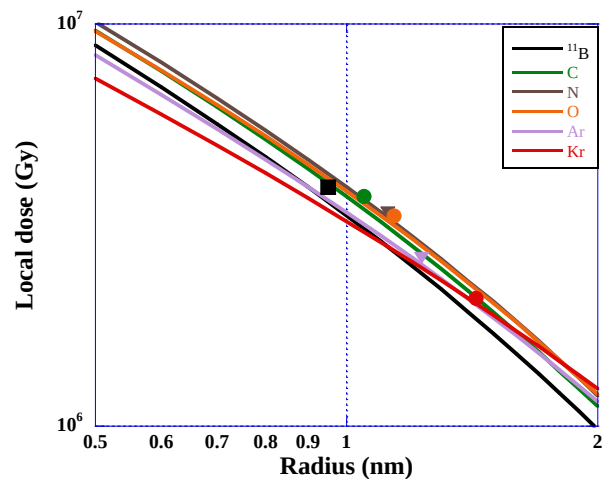


Fig. 7. Relationship between local dose and effective track core radius in PET.

PET 検出閾値での局所線量にカルボニル基の実効的トラックコア半径をプロットしたものを Fig. 7. に示す。カットに倣えばイオン軸からの距離が 1 nm の地点における局所線量がおおよそ 3×10^6 Gy になるとエッチピットが生成すると解釈することもできるが、閾値での局所線量が最も高い B イオンと最も低い Kr イオンを比べると B イオンが 3.9×10^6 Gy、Kr イオンが 2.1×10^6 Gy と 2 倍近くの差がある。このことから局所線量を PET の検出閾値とすることは不適と考えられる。

4.2 検出閾値での局所線量と阻止能の関係

Fig. 8.に PET 検出閾値での局所線量と阻止能の関係を示す。グラフは全体的に右下がりとなっている。局所線量と阻止能の間にはトレードオフの関係が成り立っているといえる。

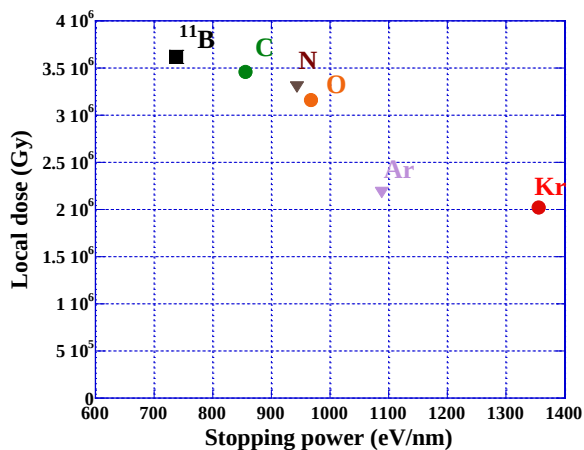


Fig. 8. Relationship between local dose and stopping power in PET.

4.3 検出閾値での感度と局所線量の関係

Fig. 9.に PET 検出閾値での感度と局所線量の関係を示す。プロットされた点は右上がりとなっており、イオンが軽くなるほど、その変化が急峻になっている。このことから局所線量が大きくなると、イオントラックにより深い損傷を与え、トラックエッチング速度の増加、ひいては感度の増加につながったと考えられる。

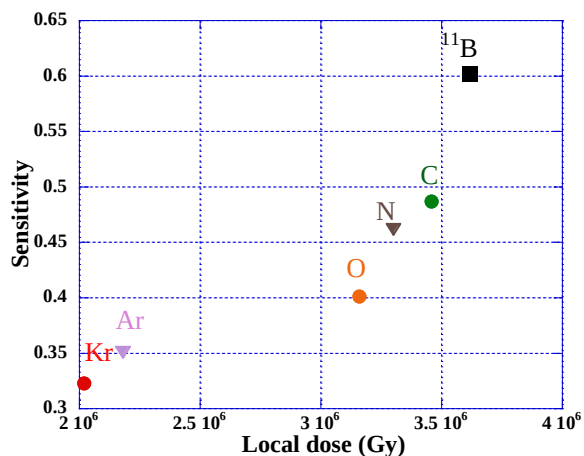


Fig. 9. Relationship between sensitivity.

5. PI 検出器閾値への活用

本項目では PI 検出器閾値の評価を新たな局所線量を用いて行う。先行する研究においては、その評価は局所線量、阻止能、感度、実効的トラックコア半径の関係で扱われてきた。Table 2 に使用したデータを示す (楠本, 2015)。

Table 2 Data at detection threshold in PI.

Ion	阻止能 (eV/vm)	コア半径 (nm)	局所線量 (Gy)	感度
Al	2420	1.6	4.5×10^6	0.11
Si	2510	1.6	4.2×10^6	0.10
Kr	2860	1.7	3.0×10^6	0.08
Xe	2990	1.8	2.7×10^6	0.07
U	3439	2.0	2.4×10^6	0.05

5.1 検出閾値での局所線量と実効的トラックコア半径の関係

Fig. 10.は PI 検出器の局所線量のグラフに各イオンのジフェニルエーテルの実効的トラックコア半径をプロットしたものである。PET 検出器と同様に、一番軽い Al イオンでは 4.5×10^6 Gy、最も重い U イオンでは 2.4×10^6 Gy となり 2 倍近くの差が見られるため、PI の検出閾値としても局所線量を用いることは不適と考えられる。

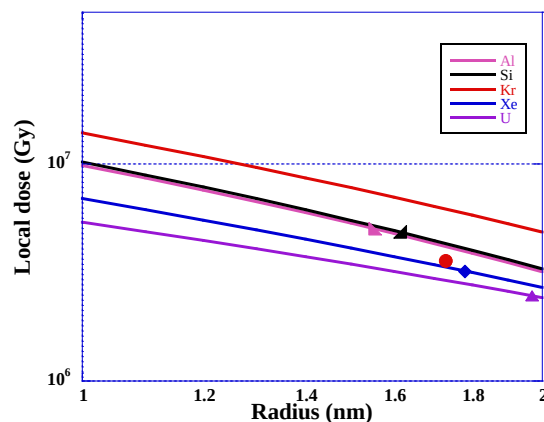


Fig. 10. Relationship between local dose and effective track core radius in PI.

5.2 検出閾値での局所線量と阻止能の関係

Fig. 11.に PI 検出閾値の局所線量と阻止能の関係を示す。グラフの概形は右下がりとなっており、重いイオンほど低い感度でエッチピットが生成しだすと読み取ることができる。

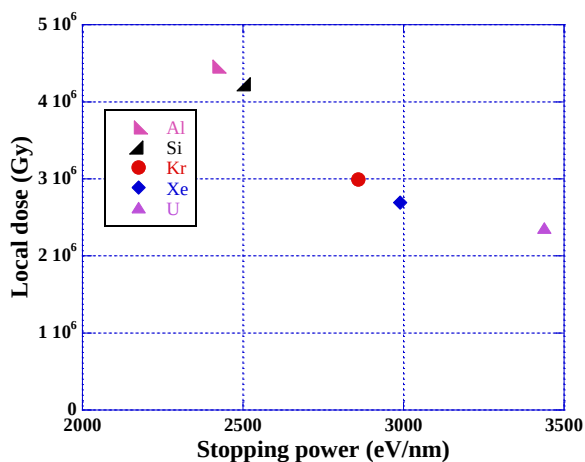


Fig. 11. Relationship between local dose and stopping power in PI.

5.3 検出閾値での感度と局所線量の関係

Fig. 12.に PI 検出器閾値における感度と局所線量の関係を示す。PET 検出器と同様に右上がりのグラフとなっているので、局所線量が増加するに従い、イオントラックへ深い損傷を与え、感度の増加に繋がっていると考えられる。しかし、軽いイオンになるにつれ、変化が緩慢になっている点は PET 検出器と異なっている。

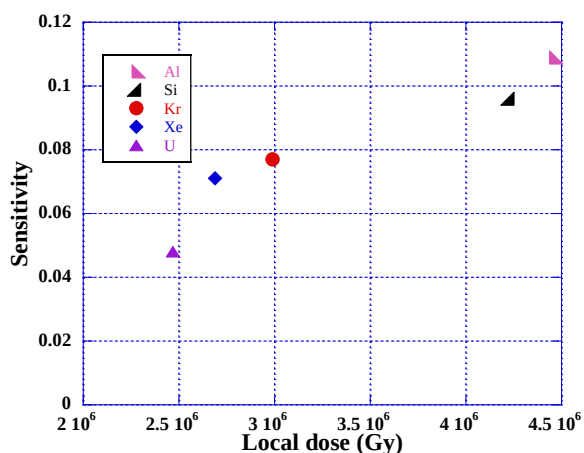


Fig. 12. Relationship between sensitivity and local dose in PI.

6. 結論

これまで放射線計測の分野では Heckman の式を使った検証が数多く行われてきた。しかし、今回の計算により加速器物理の分野で新たに発見された実効電荷の式を用いたシミュレーションを行った結果、重いイオンの相対速度が 10% 以下の領域のとき実効電荷の違いが顕著に現れることが確認され、U イオンにおいて $Z_{\text{eff}}/q_{\text{mean}}$ は 74% となった。さらに電子的阻止能を積分近似によって求め、SRIM コードの電子的阻止能と比較すると相対速度が 30% 以上の領域では大きいほうから SRIM > Schiwietz > Heckman となった。また、Schiwietz らの式は H イオンから U イオンまでの加速器実験から得られた実験式であることから信頼性が高く、今後は実効電荷を求める式としては Schiwietz らの式を用いるべきだといえる。

参考文献

- B.G.Cartwright et al., "A nuclear-track-recording polymer of unique sensitivity and resolution", *Nucl. Instrum. Meth.*, **153**, 457-460, (1978)
- G.Schiwietz et.al., "Improved charge-state formulas" , *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B*, **175-177**, pp.125-131, (2001)
- H.H.Heckman et al., "Ranges and Energy-Loss Processes of Heavy Ions in Emulsion", *Physical Review*, **Vol.117**, pp.554-556, (1960)
- M.P.R.Waligorski, R.N.Hamm and R.Katz, "The radial distribution of dose around the path of a heavy ion in liquid water", *Nucl. Tracks. Radiat. Meas.* **Vol.11**, No6, pp.309-319, (1986)
- S.A.Durrani et al., (1987)"Solid State Nuclear Track Detection", Great Britain : A. Wheaton & Co. Ltd.

上野琢也 "重イオン弁別型飛跡検出器開発のための PET の特性評価" 修士論文 神戸大

学 (2017)

楠本多聞 “高分子系飛跡検出器中に形成
されるプロトン及び重イオントラックの化学
構造と応答特性” 修士論文 神戸大学(2015)

付録

Katz らの局所線量分布理論を用いて局所線量を算出する場合、煩雑な計算が必要で 1 つの局所線量を算出するのに多大な時間を要する。時間がかかってしまうと線量をエネルギー別、もしくはターゲットやイオン種別に線量を比較するだけでも手間がかかり、有効的にこの理論を使用することが難しく、その活用のためには局所線量の計算を行うプログラムの作成は必須である。そこでイオンの軌跡からある距離での局所線量の算出、さらにその線量データを積分近似し阻止能を求め、テキストファイルに落とし込むプログラムを作成した。いかにプログラムコードを載せる。

イオン軌跡からの距離での局所線量の算出プログラム

```
#include <sstream>
#include <iostream>
#include <fstream>
#include <string>
using namespace std;
int main ()
{
    int in, tnc;
    double mass, density, ed, ip;
    cout << "イオンの原子番号(1-92) = ";
    cin  >> in;
    cout << "イオンの質量 (g/mol) = ";
    cin  >> mass;
    cout << "ターゲットの原子番号(4-83) = ";
    cin  >> tnc;
    cout << "ターゲットの密度 (g/cm^3) = ";
    cin  >> density;
    cout << "ターゲットの電子数密度 (electrons/cm^3) = ";
    cin  >> ed;
    cout << "電離ポテンシャル (eV) = ";
    cin  >> ip;
    double energy, t, tmx, steps;
    cout << "エネルギー (MeV) = ";
    cin  >> energy;
    cout << "最小半径 (nm) = ";
    cin  >> t;
    cout << "最大半径 (nm) = ";
    cin  >> tmx;
    cout << "刻み幅 (nm) = ";
    cin  >> steps;
```

```

double se, rv, vp, x, qmean, bv;
int c;
c = 299792458;
bv = 2.19 * pow(10,6);
se = ( mass / 6.02 / pow(10,23) / 1000 * c * c / 1.6022 / pow(10,-19) / 1000000 );
rv = ( sqrt ( 1 - ( 1 / ( 1 + energy / se ) ) * ( 1 / ( 1 + energy / se ) ) ) );
vp = rv * c;
x = pow(vp / bv * pow(in,-0.52) * pow(tnc,-0.019 * vp / bv * pow(in,-0.52)) / 1.68, 1 + 1.8 / in);
qmean = in * ( 12 * x + pow(x,4) ) / ( 0.07 / x + 6 + 0.3 * sqrt(x) + 10.37 * x + pow(x,4) );
double e, m, alpha, theta, l, w, d1;
e = 4.8 * pow(10,-10);
m = 9.12 * pow(10,-28);
if(rv >= 0.03)
{alpha = 1.667;}
else
{alpha = 1.079;}
w = 2 * 511 * rv * rv / ( 1 - rv * rv );
l = 6 * pow(10,-6) * pow(w,alpha) / density;
theta = 6 * pow(10,-6) * pow(ip * pow(10,-3),alpha) / density;
int i, max;
max = (tmx - t) / steps + 1;
ostringstream sout;
ofstream fout;
string s1;
fout.open("dose.txt");
if(!fout)
{cout << "ファイルを開けません！¥n";
return -1;}
for(i = 1; i <= max && t * pow(10,-7) <= 1 ; i++)
{d1 = ed * pow(e,4) * pow(qmean,2) / (m * pow(c,2) * 10000 * pow(rv,2) * t * pow(10,-7) *
density * 10000 * alpha) * pow(1 - ((t * pow(10,-7) + theta)/(1 + theta)), 1 / alpha) / (t * pow(10,-7) +
theta);

double da, db, dc, d2, k;
if(t<0.1)
{k = 0;}
else if(t >= 0.1 && rv >= 0.03)
{da = 19 * cbrt(rv);
db = 0.1;

```

```

        dc = 1.5 + 5 * rv;
        k = da * (t - db)/dc * exp((db - t) / dc);}
else
{da = 8 * cbrt(rv);
    db = 0.1;
    dc = 1.5 + 5 * rv;
    k = da * (t - db) / dc * exp((db - t) / dc);}
d2 = d1 * (1 + k);
sout.str("");
sout << t << "¥t" << d2 << "¥n";
s1 = sout.str();
fout << s1;
t += steps;}

fout.close();
cout << "ファイルに書き込みました！¥n";
return 0;}

```

次に、イオン軌跡からある距離での阻止能算出プログラムを載せる。

```

#include <sstream>
#include <iostream>
#include <fstream>
#include <string>
using namespace std;
int main ()
{
    int in, tnc;
    double mass, density, ed, ip;
    cout << "イオンの原子番号(1-92) = ";
    cin  >> in;
    cout << "イオンの質量 (g/mol) = ";
    cin  >> mass;
    cout << "ターゲットの原子番号(4-83) = ";
    cin  >> tnc;
    cout << "ターゲットの密度 (g/cm^3) = ";
    cin  >> density;
    cout << "ターゲットの電子数密度 (electrons/cm^3) = ";
    cin  >> ed;
    cout << "電離ポテンシャル (eV) = ";
    cin  >> ip;
    double energy, t, tmx, steps;

```

```

cout << "エネルギー (MeV) = ";
cin >> energy;
cout << "最小半径 (nm) = ";
cin >> t;
cout << "最大半径 (nm) = ";
cin >> tmx;
cout << "刻み幅 (nm) = ";
cin >> steps;
double se, rv, vp, x, qmean, bv;
int c;
c = 299792458;
bv = 2.19 * pow(10,6);
se = ( mass / 6.02 / pow(10,23) / 1000 * c * c / 1.6022 / pow(10,-19) / 1000000 );
rv = ( sqrt ( 1 - ( 1 / ( 1 + energy / se ) ) * ( 1 / ( 1 + energy / se ) ) ) );
vp = rv * c;
x = pow(vp / bv * pow(in,-0.52) * pow(tnc,-0.019 * vp / bv * pow(in,-0.52)) / 1.68, 1 + 1.8 / in);
qmean = in * ( 12 * x + pow(x,4) ) / ( 0.07 / x + 6 + 0.3 * sqrt(x) + 10.37 * x + pow(x,4) );
double e, m, alpha, theta, l, w, d1, d3;
e = 4.8 * pow(10,-10);
m = 9.12 * pow(10,-28);
d3 = 0;
if(rv >= 0.03)
{alpha = 1.667;}
else
{alpha = 1.079;}
w = 2 * 511 * rv * rv / ( 1 - rv * rv );
l = 6 * pow(10,-6) * pow(w,alpha) / density;
theta = 6 * pow(10,-6) * pow(ip * pow(10,-3),alpha) / density;
int i, max;
max = (tmx - t) / steps + 1;
ostream sout;
ofstream fout;
string s1;
fout.open("sp.txt");
if(!fout)
{cout << "ファイルを開けません！¥n";
return -1;}
for(i = 1; i <= max && t * pow(10,-7) <= 1; i++)

```

```

        {d1 = ed * pow(e,4) * pow(qmean,2) / (m * pow(c,2) * 10000 * pow(rv,2) * t * pow(10,-7) *
density * 10000 * alpha) * pow(1 - ((t * pow(10,-7) + theta)/(1 + theta)),1 / alpha) / (t * pow(10,-7) +
theta);

```

```

        double da, db, dc, d2, k;
        if(t<0.1)
        {k = 0;}
        else if(t >= 0.1 && rv >= 0.03)
        {
            da = 19 * cbrt(rv);
            db = 0.1;
            dc = 1.5 + 5 * rv;
            k = da * (t - db)/dc * exp((db - t) / dc);}
        else
        {
            da = 8 * cbrt(rv);
            db = 0.1;
            dc = 1.5 + 5 * rv;
            k = da * (t - db) / dc * exp((db - t) / dc);}
        d2 = 2 * 3.14159 * t * steps * pow(10,-14) * d1 * (1 + k);
        d3 += d2;
        t += steps;}
        double d4 ;
        d4 = d3 * 0.000001 / 0.0000000000000001602;
        sout.str("");
        sout << d4 << "¥n";
        s1 = sout.str();
        fout << s1;

fout.close();
cout << "ファイルに書き込みました！¥n";
return 0;}

```