



Radial Electron Fluence around Ion Tracks as a New Physical Concept for the Detection Threshold of PADC Detector

Kusumoto, Tamon

(Degree)

博士 (工学)

(Date of Degree)

2018-03-25

(Date of Publication)

2019-03-01

(Resource Type)

doctoral thesis

(Report Number)

甲第7222号

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/D1007222>

※ 当コンテンツは神戸大学の学術成果です。無断複製・不正使用等を禁じます。著作権法で認められている範囲内で、適切にご利用ください。



論文内容の要旨

氏 名 _____ 楠本 多聞 _____

専 攻 _____ 海事科学専攻 _____

論文題目 (外国語の場合は、その和訳を併記すること。)

Radial Electron Fluence around Ion Tracks as a New Physical Concept for the Detection Threshold of PADC Detector

(PADC 検出器の閾値に対する新しい物理指標としてのイオン トラック内径方向電子フルエンス)

指導教員 _____ 山内 知也 _____

最も感度の高いエッチング型飛跡検出器である、ポリアリルジグリコールカーボネート (PADC) 中に形成されるイオントラックの構造とその形成メカニズムを明らかにすることを目標として本研究は取り組まれた。PADC は眼鏡材料として開発されたプラスチックであり、CR-39 という商品名で広く知られている。大半の検出器が窒息するような高強度パルス、電子及びガンマ線などの放射線混成場において、PADC はイオン成分のみを検出することが出来る。そのため、宇宙放射線計測、中性子計測、慣性核融合、レーザー駆動イオン加速実験等の様々な分野で利用されている。応用分野は広がる一方で、PADC 中に形成されるイオントラックの構造やその形成メカニズムには不明な部分が多く残されていた。本研究では、赤外線分光法を用いた実験だけでなく、モンテカルロ法を用いたシミュレーションも行い、イオントラックの構造及び形成メカニズムの解明を試みた。PADC が優れた感度をもつ理由を検出閾値に着目して分子構造上の特徴から明らかにすることを本研究の目的とした。

第 1 章ではエッチング型の飛跡検出器の検出原理や歴史について述べる。蛍光飛跡検出器や原子核乾板等、他の受動型検出器と比較し、エッチング型飛跡検出器を使用する利点についても言及する。また、これまでの PADC を対象とした研究を振り返り、未解明な部分を明確にし、本研究の目的を述べる。具体的な課題として、イオン照射後に生成するヒドロキシ基の定量的な評価が行われていなかったこと、エッチピットを作るイオントラックと作らないイオントラックの構造の違いが明らかになっていなかったこと、検出器の感度や検出閾値を統一的に記述するパラメータが存在しなかったことである。

第 2 章では、PADC の分子構造の特徴について述べる。また、本研究で用いた分析手法及び実験施設、シミュレーションコードについても説明する。

イオントラックの構造分析には赤外線分光法を利用した。照射前後の吸光度の比を利用し、PADC を構成する各官能基の損傷密度を定量的に評価した。

照射後に新たな端点として生成するヒドロキシ基の密度を定量的に評価するために、モル吸光係数を求めた。そのために、PADC 中に吸蔵させた水の乾燥過程を追跡した。PADC 中に含まれる水の質量の測定には、電子天秤を使用した重量法とカールフィッシャー電量滴定法を用いた。

プロトン及び重イオンの照射は、放射線医学総合研究所の医療用加速器 HIMAC 内の中エネルギービーム照射室で行った。照射したイオンのエネルギーは 6 MeV/u 以下であった。また、同研究所内の大型サイクロトロンを用いて、20、30、70 MeV という高エネルギーのプロトンの照射実験も行った。例えば、70 MeV のプロトンの阻止能は 1.2 eV/nm で PADC の検出閾値よりも有意に低い。中エネルギービーム照射室での実験と併せると、1.2 から 12,000 eV/nm という非常に広い阻止能領域を包含している。このような非常に広い阻止能領域でのイオン照射実験によって、検出閾値前後でのイオントラックの構造の変化を捉えることが可能となった。

ガンマ線 (Co-60) と電子線 (28MeV) の照射実験を大阪大学・産業科学研究所で、1.5 keV の超軟 X 線照射をフランチコンテ大学において行った。30 から 200 kGy 程度の低線量領域で照射実験を行うことで、トラックコアの中心付近だけでなく、トラックハロー領域における電子の役割も明らかにした。また、希ガスエキシマランプを用いた、波長 222 nm の紫外線照射実験の結果について検討した。28 MeV 電子線やイオントラックの直線的損傷の重なりを考察する際に用いた、飛跡の重なりモデルを 3 次元の点的損傷へと拡張し、UV 損傷の考察を進めた。

これらの実験に加えて、モンテカルロ法を使用したシミュレーションコードの 1 つである Geant4-DNA を用いてイオントラック周囲に発生する電子の数密度を求めた。Geant4-DNA では電子のカットオフエネルギーが 7.4 eV に設定されている。この特徴を生かし、イオントラック周囲に発生する低エネルギーの二次電子の役割も考慮したシミュレーションをおこなった。

第 3 章では、イオン照射後に生成するヒドロキシル基について述べる。PADC に吸蔵させた水の乾燥過程より、ヒドロキシル基のモル吸光係数を $9.7 \times 10^3 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ と決定した。求めたモル吸光係数を利用して、イオン照射後に生成したヒドロキシル基の生成密度を定量的に評価し、エーテル基の損失密度とほぼ等しい事を明らかにした。

第 4 章では低 LET 放射線 (ガンマ線、28MeV 電子線及び超軟 X 線) と波長 222 nm の紫外線の照射効果について述べる。低 LET 放射線照射時のエーテル基の相対吸光度は吸収線量の増加に伴って、線形的に減少したが、カーボネートエステル基及び CH 基のそれはある線量以上の領域でのみ減少した。この線量を臨界線量と定義した。ガンマ線、28 MeV 電子線、超軟 X 線の臨界線量はそれぞれ 60 kGy、50 kGy、50 kGy であるが、これらは実験誤差の範囲で一致する。飛跡の重なりモデルを用いて考察を与えたところ、このような 2 段階の損傷形成プロセスは電子の飛跡の重なりの影響であることを明らかにした。つまり、1 つの繰り返し構造を 2 つ以上の電子が通過したときのみカーボネートエステル基に損傷が起きるという事である。同様の傾向は波長 222 nm の紫外線照射時にも確認されている。紫外線に関しては飛跡の重なりモデルを 3 次元の点的損傷へと拡大し、その損傷のサイズを求め、28 MeV 電子線の損傷と比較した。

これらの結果は損傷の形成に電子の個数が重要な役割を果たす事を示唆している。イオントラックの中心付近では全ての官能基が失われており、離れた位置ではエーテルのみが損傷を受けているというイオントラック層構造の理解に貢献した。

第 5 章では、検出閾値前後でのイオントラックの構造変化について言及する。イオンの照射効果について考察する上で 3 つの化学的損傷パラメータを定義した。1 つ目は、損傷密度で、トラック単位長さ当りの損失量を表す。2 つ目は実効的トラックコア半径である。実効的トラックコア半径は着目する官能基がその半径内ですべて失われていると見なし、損傷の径方向の広がりを表すパラメータである。そして 3 つ目は単位エネルギー当たりの

損失量によって定義される放射線化学収率 (G 値) である。CH 基の損傷密度及び実効的トラックコア半径はプロトンの検出閾値である 17 eV/nm の前後でプラトー領域が確認された。また、G 値は検出閾値の前後でステップ状に変化した。これは、検出閾値の前後でのイオントラックの構造変化を示しており、少なくとも 2 つ以上の放射線感受性部が系外へ失われることが、エッチピット生成のための条件であることを明らかにした。これは、検出閾値の前後でのイオントラックの構造変化を示す初めての結果であった。

第 6 章では、これまでの実験事実を踏まえて、イオントラック周囲の電子の個数密度を Geant4-DNA を用いて計算した。ある半径を持った円柱側面を通過する電子の個数をイオントラック内径方向電子フルエンス (Radial Electron Fluence around Ion Tracks: REFIT) と定義し、プロトン、He 及び C イオンの検出閾値において REFIT を計算した。それぞれのイオン種の REFIT の値は、オーダーが一致した。しかしながら、現状のままでは検出器の感度や閾値を表すユニバーサルパラメータとは言い難い。REFIT には、二次電子の発生位置を表すインパクトパラメータやカットオフエネルギーである 7.4 eV 以下の電子の付着反応が考慮されていないなどの今後の課題についてまとめた。

また、局所線量分布理論に基づいて、イオントラックのサイズを評価した。検出閾値以上の領域では実験結果と比較的良好な整合性が確認できた。ところが、検出閾値以下の領域では実験結果と大きく異なっている。検出閾値以下では、損傷が 1 つの繰り返し構造内で収まっていると考えられるため再結合の影響が考えられる。ラジカル同士の再結合と照射誘起酸化反応を含めたヒドロキシル基生成の競合プロセスを考えなければならないことを指摘した。

第 7 章では全体の結論を述べる。本博士論文ではエッチピットを作るイオントラックと作らないイオントラックの構造の違いを実験的に明らかにし、層構造についての解釈も与えた。加えて、検出閾値を決定するユニバーサルなパラメータとして REFIT を提案し、将来的な課題を指摘した。

氏名	楠本 多聞		
論文題目	Radial Electron Fluence around Ion Tracks as a New Physical Concept for the Detection Threshold of PADC Detector (PADC 検出器の閾値に対する新しい物理指標としてのイオントラック内径方向電子フルエンス)		
審査委員	区分	職名	氏名
	主査	教授	山内 知也
	副査	教授	小田 啓二
	副査	教授	蔵岡 孝治
	副査	教授	蔵重 久弥

印

要 旨

本論文の対象となっているポリアリルジグリコールカーボネート (PADC) は、およそ四〇年前に高い感度を有するエッチング型飛跡検出器であることが見出された、眼鏡用レンズとして開発された熱硬化性プラスチックである。国際宇宙ステーションにおける宇宙放射線線量計測や医療用あるいは高エネルギー加速器、原子炉周辺の中性子線線量計測、ラドン計測、慣性核融合やレーザー駆動イオン加速実験等の分野で活用されている受動型線量計として知られている。四〇年にわたって最高感度を有する飛跡検出器であり続けているが、PADC がどうしてそのような高い感度を有しているのかについては明確な解答は得られないままである。本研究は PADC 中に形成されるプロトンや重イオンのイオントラックの構造と形成機構に関して、赤外線分光法による分析的研究とイオンの軌跡に沿って発生する二次電子の挙動についてのシミュレーションに取り組んでいるが、それらの横断的な成果の創出に成功している。特に、PADC 中に形成されるイオントラックの特異な層構造が生まれる原因を、ガンマ線や電子線等の低 LET 放射線を用いた実験によって明らかにしており、感受性の高い領域にヒットする電子数の効果を見出している (LET: 線エネルギー付与)。論文題目にもある、シミュレーションによって計算が可能となっている「イオントラック内径方向電子フルエンス」が、その検出閾値を記述する新しい物理指標として利用できるという見通しを世界に先駆けて与えている。

第1章では、エッチング型飛跡検出器の原理や歴史的背景を含む従来の基礎及び応用研究についての概観を与えるとともに、PADC 中イオントラックについての研究の現状をまとめている。その下で、高分子鎖の新しい端点としてイオン照射後に生まれているヒドロキシル基についての定量的な分析が行われていないこと、エッチング可能なイオントラックとそうでないイオントラックとの間にある構造的な相違点が十分に理解されないままであり、検出閾値とイオントラック構造との関係が明らかになっていないこと、後に述べる PADC 中イオントラックの特異な層構造がどうして生まれるのか理解できていないことが指摘されている。このように実験的な課題設定は明確に行われており、その内容も妥当である。また、PADC を始めとする飛跡検出器の感度を普遍的に記述する物理量として1960年代に提案された諸量が、現代的な視点からはその精度が十分でなく検出器開発に利用することが困難であることを理論的な課題として提出している。

第2章では、実験とシミュレーションについて記述されている。量子科学技術研究開発機構 QST 放射線医学総合研究所の重粒子がん治療装置 HIMAC や AVF930 サイクロトロン、大阪大学産業科学研究所の電子線ライナックやコバルト照射施設、フランシュコンテ大学の極低エネルギー X 線照射装置等とそれらを用いるに際して重要となるフルエンスや吸収線量、カーマの評価方法を詳しく説明している。低エネルギー (7.4 eV まで) の二次電子生成過程が記述できるモンテカルロコードである Geant4-DNA についての記述も的確に与えている。

第3章では、ヒドロキシル基の定量的な評価が行われている。ヒドロキシル基は未照射の PADC 中には含まれていないので、別途、モル吸光係数を決定する必要があるが、吸蔵された水を用いてこの問題を解決している。エーテルの損失密度とヒドロキシル基の生成密度がほぼ一致していることを明らかにしているが、これにより立ち入ったイオントラック形成機構の議論が可能になった。

氏名	楠本 多聞
論文内容	<p>第4章では、低 LET 放射線が PADC に及ぼす効果について実験的な検討が行われている。PADC は大きく二つの部分からなり、ひとつは重合反応の結果として生まれるポリエチレン状の3次元骨格であり、ここは比較的耐放射線性である。もう一つは中央のエーテルとエチレン基を介して対象位置に配置されている二つのカーボネートエステルからなる領域である。先に述べたイオントラックの層構造とは、エーテル損失のコア半径が最も大きく、次いでカーボネートエステルのコア半径、エチレン基等の CH 損失のそれが最も小さいという従来の実験結果を示している。低 LET 放射線として、コバルト 60 線源からのガンマ線、極低エネルギー X 線 (1.5 keV)、28 MeV 電子線の照射効果を調べて、エーテルは線量に比例して損失量が増えているものの、カーボネートエステルは一定の吸収線量 (臨界線量という名称を与えている) の後に損失が開始することを突き止めている。これは新しい知見である。28 MeV 電子線照射について電子トラックの重なりがカーボネートエステルの損傷を生み出していること、すなわち、二本以上の電子トラックによってそれが失われることを、トラック重なりモデルによって説得的に説明している。これはイオントラックに見られる層構造を説明し得る見方である。単一の電子が届いた場所ではエーテルしか切れないが複数の電子が到達する領域ではカーボネートエステルも失われるというものである。紫外線照射効果の実験がこのような見方を支持する結果を与えている。</p> <p>第5章でエッチピットの生まれない高いエネルギーのプロトンのイオントラック構造の分析が行われ、従来の知見との比較が行われている。先に述べた感受性の高い領域が径方向に二つ以上失われた場合に、エッチピットが生まれることを突き止めている。CH に着目するとそれは耐放射線性の部分にも高感受性の部分にも存在する。本研究では CH 損失の放射線化学収率がエッチピットが生じない場合に飛躍的に高くなっていることを見出している。これは感受性の高いエーテルとカーボネートエステル間の CH が高い放射線化学収率を持っているためであるとの解釈を与え、損傷がイオントラックの径方向に一つの繰り返し構造に収まっているのか否かによってエッチピットの生成が決まるとの考察を行っている。PADC の閾値に関係する分子レベルでの構造変化を説明する結果であり、独創性がある。</p> <p>第6章では、「イオントラック内径方向電子フルエンス」の定義が示され、Geant4-DNA コードを用いた最初の計算が試みられている。先に見た実験結果からは、繰り返し構造に二本以上の電子が入射する場合に損傷が生まれ、それが径方向に二つ連なるとエッチング可能なイオントラックになると期待されるが、オーダーとしては整合する結果が得られている。計算の高精度化のためには、二次電子が数学的な意味での直線的なイオンの軌跡に沿って発生すると想定している箇所に対して、衝突パラメータを考慮する必要性を指摘している。従来の局所線量分布理論に従った議論も行っている。</p> <p>第7章には、結論を与えるとともに、PADC 中イオントラック研究の展望にも言及している。</p> <p>現在の代表的なエッチング型飛跡検出器である PADC 中のイオントラックの構造と形成機構に関して、分析化学的な実験を系統的に進めて、エッチング速度を支配するヒドロキシル基濃度を求め、カーボネートエステルが二個以上の電子のヒットによって損傷を受け、径方向に二つ以上の繰り返し構造が損傷を受けているとそのイオントラックはエッチピットになり得ることを明確にした。また、Geant4-DNA コードを用いて新たに提案した「イオントラック内径方向電子フルエンス」の具体的な計算結果を求め、それがその検出閾値を記述する新しい物理指標として利用できるという見通しを与えた。二つの異なる研究分野での結果を結びつけて新たな物理概念を提案するところに大きな価値があると認める。</p> <p>以上より、この研究は博士 (工学) の学位を得る資格があると認める。</p> <p>この研究は神戸大学とストラスブール大学とのコチュテル (博士論文共同指導) として進められたものであるが、2017年12月15日に神戸大学で開催された公聴会とその後の審査会では、ストラスブール大学からは博士 (物理化学) の学位が授与されるに相応しいことが認められた。</p>