

放射線の挙動を原子サイズで計算できる PHITS の新機能



小川 達彦
Ogawa Tatsuhiko



平田 悠歩
Hirata Yuhu



松谷 悠佑
Matsuya Yusuke



甲斐 健師
Kai Takeshi

1 原子サイズ放射線挙動の意義

放射線による金属材料の損傷や、生体の DNA 損傷は、放射線のナノスケールにおける影響である。では、同じことを有機物や酸化物材料、半導体等に適用したら、放射線照射効果を実験によらず予測できないだろうか。

放射線の物質中での挙動を Monte Carlo 法で計算する手法は、電荷の有無によって3つに大別されてきた。中性子や光子等の中性粒子は、原子や電子と反応するまで直進し、反応により散乱される。一方、ミュー粒子や陽子、イオン等の荷電粒子は、飛行距離に比例してエネルギーが低下し（CSDA：Continuous Slowing Down Approximation）、同じく飛行距離に比例してエネルギーや横方向の分散も増大する。電子や陽電子は前記の荷電粒子より軽く、散乱が大きいため、一定割合のエネルギー低下や分散ではなく、確率的に散乱を計算することが一般的である（CHM：Condensed History Method）。ただ中性粒子と異なり、進路中の無数の原子と反応するので、数千個分の原子から受ける散乱を合算して計算する。

しかし、荷電粒子も中性粒子と同じく、個々の標的と撃力的に反応していることは変わらない。単にその反応が多くて計算が大変なので、多数の反応をまとめているに過ぎない。

したがって原理的には、標的の原子や原子核と衝突するまで直進し、反応によって散乱を受ける、という中性粒子と同じ輸送計算は、荷電粒子に対して

も可能である。このように、標的との衝突を個々に計算して荷電粒子の軌跡を推定する方法を飛跡構造解析と呼び、そのための計算コードが多数提案されている。

飛跡構造解析を用いれば、荷電粒子によるエネルギー付与を原子スケールで表現でき、それにより放射線による分子構造の変化や、半導体・放射線検出器等の電気信号の発生を再現できる。従来のCSDAやCHMによる計算で説明できなかった照射効果を解明する役割に期待が持てる。こうした事情を踏まえて登場したのが、本稿の主題である飛跡構造解析計算コードITSART¹⁾である（図1）。

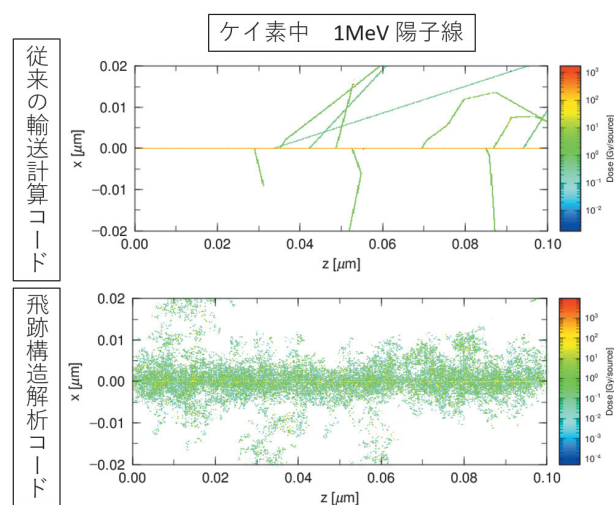


図1 従来のCSDAと飛跡構造解析で計算したエネルギー付与分布

飛跡構造解析では、標的原子の電離反応による詳細なエネルギー付与が計算できる

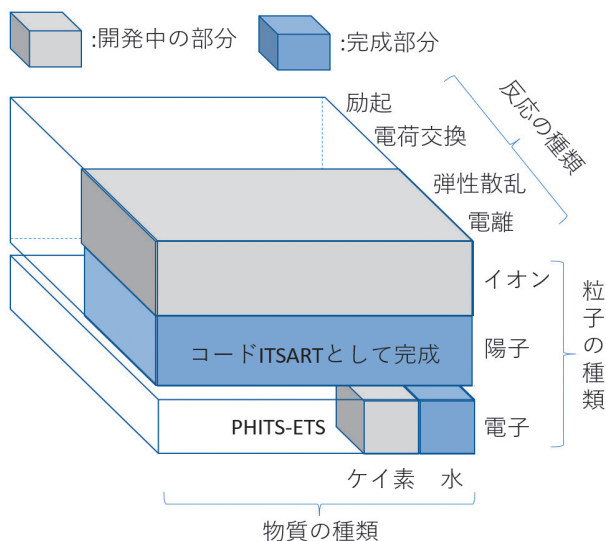


図2 PHITSにおける飛跡構造解析コード開発の現状

なお本稿で述べるバージョンのITSARTについて注意すべきは、陽子入射の計算以外は精度が低いことである。イオンへ適用してもエラーこそ起こさないが、電荷状態等多くの近似があるので、結果の信頼性は次以降のリリースで向上する予定である。また、電子入射の場合や、陽子に弾き出された電子の輸送計算はPHITS-ETS²⁾とその拡張でカバーされる予定であるから、ITSARTで扱う予定はない(図2)。

2 これまでの飛跡構造解析

ITSARTの特徴を説明するために、それ以前の飛跡構造解析計算コード開発について述べる。

そもそも飛跡構造解析は、放射線生物影響の解析を目的として開発されてきた。放射線が生物中でエネルギーを均一に付与するなら、細胞核もミトコンドリアも細胞膜も均一に被ばくするので、放射線影響は吸収線量で表せるはずである。しかし生物の放射線影響は、細胞核のDNAが放射線のエネルギー付与に起因して受ける損傷に起因することは論を待たない。一方、放射線は「線」という言葉のとおり、局在性を持って移動する量子である。したがって放射線のエネルギー付与は、空間的に不均一な分布を持つだけでなく、量子力学的な不確定性により確率的にも分布を持つ。こうした確率的・空間的な放射線のエネルギー付与分布を計算するためには、放射線と標的物質の個々の反応を微視的かつ確率的に計

算することが必要である。これによって初めて、CSDAやCHMのような平均量の計算を脱し、原子規模の放射線挙動を計算する飛跡構造解析計算コードMOCA³⁾、OREC⁴⁾、DELTA⁵⁾等が開発されていった。

こうした経緯のため、飛跡構造解析計算コードの開発は生体物質を表す水標的に焦点を絞り、入射粒子も医療で重要な電子・陽電子・陽子、炭素イオンが中心だった。更に、飛跡構造解析計算コードは非公開のことが多い。

3 任意物質・イオン飛跡構造解析モデルITSART

半導体や放射線検出器等に飛跡構造解析計算を適用するには、コードの粒子・標的に関する制限が足枷になっている現状を鑑み、任意の粒子種と標的の組み合わせに対して計算できることをコンセプトとする飛跡構造解析計算モデルITSARTが誕生した。更に同モデルを汎用放射線輸送計算コードPHITS Ver.3.27以降に搭載することで、誰もが入手できるだけでなく、ジオメトリ設定や計算結果の記録にPHITSのユーザーインターフェースを使えるようにした。プログラミングの知識は要らず、PHITSのユーザーサポートすら受けられることから、現在最も容易に使える飛跡構造解析計算コードの1つである。

ITSARTは飛跡構造解析の原則に基づき、原子との散乱反応を個別に計算し、反応内の運動学に基づいて粒子の終状態を決める。PHITS Ver.3.27のITSARTは、反応のうち電離と弾性散乱反応を明示的に考慮できる。ITSARTの特長は、考慮できない反応モードがあっても、エネルギー付与の計算は正しく行えることにある。つまり、陽子は電離と弾性散乱反応以外に、励起や電荷交換反応等も起こすので、現バージョンではその分エネルギー損失を過小評価しそうに見える。しかしITSARTはCSDAに基づくモデルATIMAを使って、飛程中のエネルギー低下を計算する。そして、電離や弾性散乱で失うエネルギー期待値分だけエネルギーを上げてから、反応でエネルギーを失う。すると、反応によるエネルギー低下は、平均としてキャンセルされ、十分に長い区間ではエネルギー低下はATIMAによる計算に従う。制限付き阻止能と呼ばれるこの計算方法のおかげで、ITSARTは反応モードを順々に実装していくことで段階的に精度を向上させ、完成を目指すこ

とができる。

電離反応は Rudd らが考案した二次電子生成微分断面積の式⁶⁾に基づいて計算する。同式は、電子の束縛エネルギーと、9つの断面積フィッティングパラメータに依存する式であるが、電子の束縛エネルギーはよく知られた原子の基礎データである。また、9つのフィッティングパラメータは電子軌道の特性に由来する違いを考慮するものであり、内殻電子については常に同じパラメータを使用すればよい。最外殻の電子に対するパラメータだけ物質ごとの調整が必要であるが、パラメータは最外殻の電子が埋まっている希ガス (He, Ne, Ar, Xe) といくつかの分子に対して与えられている。そのため、希ガス以外の元素に適用するには、まず内殻電子の寄与を内殻電子に対するパラメータで計算し、外殻電子の寄与は、外殻を同じくする希ガスのパラメータを使って計算する。この時、外殻電子の束縛エネルギーと外殻の電子数にその原子固有の値を使うため、希ガスと異なる原子の特性が反映される。もちろん、分子の場合は、最外殻電子にはその分子のパラメータを用いる。この際、各電子殻の寄与を分けて記録するため、反応時に断面積をサンプリングした際、どの電子殻が電離したか識別することができる。内殻が電離した場合は、評価済み原子データライブラリ (EADL)⁷⁾に基づいて外殻電子の脱励起と、それに伴う特性 X 線や Auger 電子の生成を計算する。

弾性散乱反応の運動学は Rutherford 散乱の式に従

うため簡単であるが、断面積は Rutherford の式では無限に関する問題が発生するため、Molière の式により計算する。Rutherford 散乱は核の間の電磁気相互作用によって起こり、電磁気相互作用は到達距離が無限である。そのため、原子1個の微視的なモデルで計算すると、インパクトパラメータが大きいときも、散乱角度こそ小さくなるが散乱は発生し、断面積は無限大になってしまう。そこで、実際には物質内の静電遮蔽により断面積が有限になることを、Molière の式に基づいて計算する。

4 ITSART による計算結果

こうして開発した ITSART の正確さを判断するため、様々な量の計算を通して検証した。最も基礎的な量である二次電子スペクトル、そして物質への照射で重要となるエネルギー付与量の動径方向 (照射粒子の運動に対し垂直方向) 分布の計算を行った。

図3は、水に対する陽子の照射で生じる二次電子のエネルギースペクトルである。10 eV 以下で実験値の収量が低下するのは実験装置の検出効率に起因するものであるから、ITSART の計算結果は実験値をよく再現している。更に EADL に基づく計算により、Auger 電子に相当する 500 eV 付近の鋭いピーク構造も再現できている。

図4は1 MeV の陽子入射に対する水中のエネルギー付与動径方向分布である。中心から離れるほど

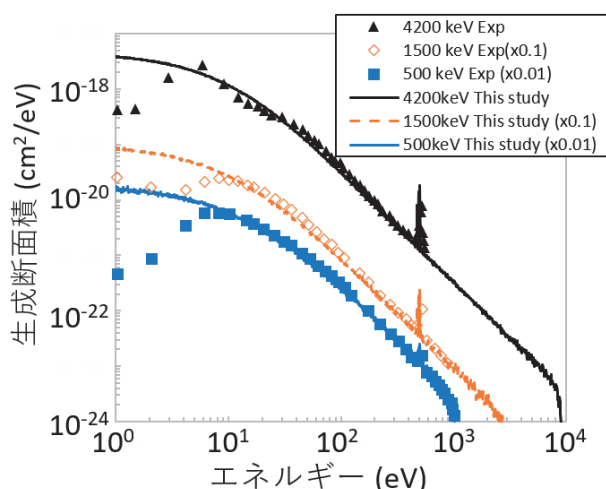


図3 水に 500, 1500, 4200 keV 陽子の入射に対する二次電子エネルギー分布

実験値は Bolorizadeh ら⁸⁾ と Wilson ら⁹⁾ の文献より

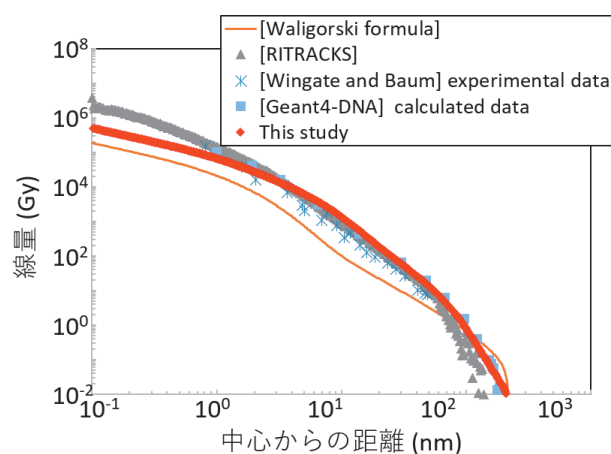


図4 1 MeV 陽子の入射に対する水中のエネルギー付与動径方向分布

到達できる二次電子は少なくなり、エネルギー付与量は減っていく。ITSARTにより計算された二次電子をPHITS-ETSで輸送計算した本結果は、他のコードやWingate and Baumら¹⁰⁾の実験値ともよく合致している。数nm付近と、数10nm付近でそれぞれ山になっているが、それぞれ最外殻とそれ以外の内殻の電離による寄与であることが分かっている。内殻の電子は束縛が強い分、電離すると高いエネルギーを持ち遠くまで到達する。多くの化学結合は外殻の電子が担うため、分子の最外殻電子の断面積は原子の計算を適用できず計算が難しいが、線量の動径分布等飛程の長い二次電子によって特徴付けられる量は、外殻の電子に依存しないため、化合物等分子での計算精度を損ねないと期待される。

5 今後の展望

ITSARTは「あらゆる粒子を扱える」と「あらゆる標的物質を扱える」という2つの野心的な試みを両立させる飛跡構造解析計算コードである。

これを実現するためには、まずイオンを扱う上で高精度化が必要である。断面積は入射粒子の電荷に依存するが、陽子に比べ特に原子番号の大きいイオンは軌道電子を残しやすく、電荷が原子番号と一致しない。そもそも加速器等線源の仕様によって決まる入射時の電荷と、物質内の平衡電荷が一致するとは限らず、イオンは電荷が輸送中常に変化するものとして計算する必要がある。

電荷状態を輸送中逐次計算できるようになれば、電離・電子の励起・弾性散乱・集団励起断面積の計算に進むことが可能である。一次Born近似が成り立つほどエネルギーが高ければ、断面積は電荷の2乗に比例するため、陽子の断面積に前記で求めた電荷の2乗をかけることで断面積は得られる。あとは低エネルギーでの補正方法が肝要になるであろう。

一方、物質の一般化は断面積の基本的なフィッティング式を、物質特有のパラメータによって変調する方法を検討している。電離断面積は前述の通り、フィッティングパラメータを物質に応じて増やせばよい。また励起断面積は、様々な物質で測られた断面積データに基づく系統式を、励起準位のエネルギー等のパラメータで変調することを計画している。

謝辞

本研究で行われた計算は、放射線挙動解析研究グループ佐藤大樹氏が構築・維持するクラスターコンピュータ上で行った。この場を借りて感謝申し上げる。

参考文献

- 1) T. Ogawa, *et al.*, *Scientific Reports*, **11** (1), 1-10 (2021)
- 2) W. E. Wilson, and H. G. Paretzke, *Radiation Research*, **87** (3), 521-537 (1981)
- 3) J. E. Turner, *et al.*, *Radiation Research*, **96** (3), 437-449 (1983)
- 4) M. Zaider, *et al.*, *Radiation research*, **95** (2), 231-247 (1983)
- 5) Takeshi Kai, *et al.*, *Radiation Physics and Chemistry*, **115**, 1-5 (2015)
- 6) Yusuke Matsuya, *et al.*, *Journal of Applied Physics*, **126** (12), 124701 (2019)
- 7) S. T. Perkins, *et al.*, *UCRL--50400*, **30** (1991)
- 8) W. E. Wilson, *et al.*, *Chem. Phys.*, **80**, 5631-5638 (1984)
- 9) M. A. Bolorizadeh, and M. E. Rudd, *Phys. Rev. A*, **33**, 888-892 (1986)
- 10) Catharine L. Wingate, John W. Baum, *Radiat Res*, **65**, 1-19 (1976)

((国研)日本原子力研究開発機構 原子力科学部門
原子力基礎工学研究センター 化学・環境・放射線
ディビジョン 放射線挙動解析研究グループ)