

JAERI-Research
97-013



工業用低エネルギー電子線照射の線量評価

1997年3月

来島利幸*・中瀬吉昭**

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 ㈱原子力資料サービス

工業用低エネルギー電子線照射の線量評価

日本原子力研究所高崎研究所放射線高度利用センター

来島 利幸*・中瀬 吉昭**

(1997年1月31日受理)

工業用低エネルギー電子線照射における吸収線量の評価のために、モンテカルロ法により物質中に入射した電子の挙動について計算を行った。ここでは、電子の単一散乱を仮定し、相対論的取扱いを行って、従来より正確にかつパソコンレベルで計算できるコードを開発した。加速器窓としてのTi層、空気層、線量計としての三酢酸セルローズ(CTA)層及び基板の多層構造に主として300 KeV電子を照射したときの振る舞いについて解析した。CTA表面における電子のエネルギースペクトル、角度分布の計算や、CTAにおける深度吸収線量等の計算を行った。これらの計算結果と実測値との比較を行い両者が良く一致することを確認した。

Dose Estimation in Low-energy Electron Beam Irradiation
for Industrial Purposes

Toshiyuki KIJIMA* and Yoshiaki NAKASE**

Advanced Radiation Technology Center
Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Watanuki-cho, Takasaki-shi, Gunma-ken

(Received January 31, 1997)

A Monte Carlo method for the passage of electrons based on a single scattering model is developed, in which the relativistic correction has been taken into account. A code based on this method is operable on personal computers, and has been applied to analyze electron behavior in a layered system consisting Ti as an accelerator window, air, cellulose triacetate (CTA) and backing material irradiated by mainly 300 keV electrons. The energy spectra and the angular distributions of electrons on CTA surface as well as depth-dose distributions of energy deposition in the CTA for various backing materials have been obtained. Some of these results are compared with experimentals, and showed fairly good agreement.

Keywords: Monte Carlo Calculation, Electron Beam Irradiation, Single Scattering Model, Thin Layered Film, Depth-Dose Distribution, Static and Dynamic Irradiation, Backscattering Coefficient

*North China Electric Power University

**Radiation Application Development Association

目 次

1. 序 論	1
1.1 はじめに	1
1.2 工業用低エネルギー電子線照射利用の現状	1
1.3 工業用電子線照射装置の現状	3
1.4 電子線量評価の重要性	4
1.5 線量計による線量測定	5
1.6 計算評価法	6
1.7 照射パラメータ	8
2. 電子線量の実測評価	15
2.1 まえがき	15
2.2 吸収線量	15
2.3 電子線照射装置	16
2.4 吸収線量の実測	17
2.5 深度線量分布	20
2.6 透過電子数	22
2.7 結 論	22
3. 吸収線量の計算評価法	32
3.1 まえがき	32
3.2 入射電子の振る舞い	33
3.3 計算値の妥当性の評価	40
3.4 CTA フィルムの衝突断面積, 阻止能, 平均自由行程, 飛程	42
3.5 結 論	42
4. 線量評価に影響を与える因子の解析	52
4.1 まえがき	52
4.2 300 keV 電子線の各種物質中での振る舞い	52
4.3 入射電子のエネルギースペクトル	53
4.4 入射電子の入射角度分布	54
4.5 静的および動的照射における深度線量分布	55
4.6 通過電子数の計算	56
4.7 照射窓, 空気および被照射体のエネルギー吸収	56
4.8 結 論	57
5. 薄膜層の吸収線量評価	67
5.1 まえがき	67
5.2 後方散乱の吸収線量に与える影響	67
5.3 基材の原子番号と吸収線量の関係	68

5.4 通過電子のエネルギースペクトル	68
5.5 後方散乱係数の評価	69
5.6 表面線量分布に及ぼす薄膜厚さの影響	70
5.7 結 論	71
6. 極表面層の吸収線量評価	80
6.1 まえがき	80
6.2 極表面層の吸光度変化に及ぼす外的要因	81
6.3 深度線量分布と照射電荷フルエンス率の関係	81
6.4 沈積電子数分布の評価	82
6.5 表面電荷密度の測定	82
6.6 深度沈積電荷量の測定	83
6.7 各種フィルムの沈積電荷量の評価	84
6.8 フィルム表面における正電荷発生を検討	84
6.9 結 論	85
7. 電界を考慮した吸収線量評価法	93
7.1 まえがき	93
7.2 電界を考慮した電子軌道モデル	94
7.3 帯電フィルムの深度線量分布計算	101
7.4 結 論	103
8. 吸収線量の簡易計算法	108
8.1 まえがき	108
8.2 静的照射	108
8.3 動的照射	110
8.4 吸収線量率の簡易計算法	112
8.5 結 論	114
9. 総 括	121
謝 辞	124

Contents

1. General Introduction	1
1.1 Preface	1
1.2 Present Status of Utilization of Low-energy Electron Irradiation	1
1.3 Present Status of Development of Low-energy Electron Beam Apparatus	3
1.4 Importance of Absorbed Dose Evaluation	4
1.5 Electron Beam Dosimetry	5
1.6 Computational Method	6
1.7 Irradiation-related Parameters	8
2. Measurements of Absorbed Dose by Electron Irradiation	15
2.1 Introduction	15
2.2 Absorbed Dose	15
2.3 Electron Beam Irradiation Systems	16
2.4 Measurements of Absorbed Dose	17
2.5 Depth-dose Distribution	20
2.6 Number of Transmitted Electrons	22
2.7 Conclusions	22
3. Computation of Absorbed Dose	32
3.1 Introduction	32
3.2 Behavior of Incident Electrons in Matter	33
3.3 Confirmation of Computational Code	40
3.4 Cross-section, Stopping Power, Mean Free Path and Projection in CTA Film	42
3.5 Conclusions	42
4. Parameter Analysis for Dose Evaluation	52
4.1 Introduction	52
4.2 Behavior of 300 keV-electrons in Matter	52
4.3 Energy Spectra of Incident Electrons	53
4.4 Angular Distribution of Incident Electrons	54
4.5 Depth-dose Distribution in Cases of Static and Dynamic Irradiation	55
4.6 Numbers of Transmitted Electrons	56
4.7 Energy Dissipation in Irradiation Window, Air Layer and Matter	56
4.8 Conclusions	57
5. Absorbed-dose Evaluation in Thin Films	67
5.1 Introduction	67

5.2 Effects of Backscattering on Absorbed Dose	67
5.3 Relationship between Atomic Number of Backing Material and Absorbed Dose	68
5.4 Energy Spectra of Transmitted Electrons	68
5.5 Evaluation of Backscattering Coefficient	69
5.6 Effects of Film Thickness on Surface Dose Distribution	70
5.7 Conclusions	71
6. Absorbed Dose Evaluation at Extreme Surface Layer	80
6.1 Introduction	80
6.2 Effects of External Condition on Adsorption at Extreme Surface Layer	81
6.3 Relationship between Depth-dose Distribution and Charge Fluence Rate	81
6.4 Evaluation of Trapped-electron Distribution	82
6.5 Measurements of Surface Charge Density	82
6.6 Measurements of Deposited Charge	83
6.7 Measurements of Deposited Charge in Various Films	84
6.8 Studies of Positive Charge at Film Surface	84
6.9 Conclusions	85
7. Dose Estimation under Electric Field	93
7.1 Introduction	93
7.2 Electron Trajectory Model under Electric Field	94
7.3 Depth-dose Distribution in Charged Film	101
7.4 Conclusions	103
8. Evaluation of Absorbed Dose and Accelerator Current	108
8.1 Introduction	108
8.2 Static Irradiation	108
8.3 Dynamic Irradiation	110
8.4 Simple Method for Calculation of Absorbed Dose Rate	112
8.5 Conclusions	114
9. General Conclusions	121
Acknowledgement	124

1. 序論

1. 1 はじめに

放射線の工業照射利用は、照射装置の製造技術、利用技術の進歩によって、その実用化が着実に広げられ、放射線加工処理 (Radiation Processing) という名称で定着している。特に近年、技術革新が著しい産業界で、付加価値の高い産業製品を生産するために電子線の工業照射利用が進んでいる。なかでも、製品の表面加工を目的とした電子エネルギー 300 keV 以下の低エネルギー電子線照射の利用が進展している。

電子線の工業照射利用では、被照射体に対する電子線の照射効果を定量的に論じるために電子線量の評価が重要である。特に工業用低エネルギー電子線照射は、主として有機薄膜層の生成や改質・改良に利用されている。そのため、製品の生産計画、品質管理、開発研究等の立場から、実用的な線量評価として被照射体表面の有機薄膜層に対する電子線量の定量的な評価が不可欠である。現在、工業照射利用における線量評価に対する重要性は十分認識され、線量評価法の精度・信頼性を高める研究が進められており国際会議のプロシーディングそれを見ることができる [1]。しかしながら、数 100 keV 以上の中高エネルギー電子線領域における線量評価法の進展に対して、300 keV 以下の低エネルギー電子線領域における線量評価法は、未だ確立されていないのが現状である [2]。

低エネルギー電子線の工業照射利用は、新しい利用分野の拡大に伴い、近年急速な進展を遂げており正確な線量評価法が望まれている。そのためには、低エネルギー電子線に対する正確で簡便な評価法の開発と、工業用低エネルギー電子線照射における電子の振る舞いに対する特徴の把握が必要である。本章では、本研究の背景となる低エネルギー電子線の工業照射利用の現状を概観し電子線量評価の重要性を示す。次に、工業用低エネルギー電子線照射における線量評価のための実測法および計算評価法の現状を述べ、それらに含まれている問題点および限界を明らかにする。有機薄膜層の電子線量に影響を与える各種因子について概観し、その解明と定量的な評価の必要性を示す。そして、それらをもとに本研究の目的と意義を明確にする。

1. 2 工業用低エネルギー電子線照射利用の現状

電子線を工業的に利用するプロセスの開発や生産への適用は、Charlesby によって 1952 年にバンデグラーフ型電子加速器を用いたポリエチレンを主とするプラスチック材料の架橋反応の発見に始まる [3, 4]。現在までに、500 keV~10 MeV 電子加速器を主流 [5] として国内だけでも、自動車部品、セメント屋根瓦、高級塗装鋼板、石膏タイル、パーティクルボード等の表面処理や、電線、ケーブル、発泡ポリエチレン、熱収縮性チューブ等の架橋反応を利用した製造 [6]、WPC (wood plastic combination)、SDP (sawdust plastic) などの複合材料 [7]、粘着テープ、アルミ蒸着紙、剥離紙等のフィルムやシートの製造 [8, 9]、半導体の特性制御 [10] など、電子線照射の工業利用は極

めて広範囲におよんでいる。さらに、最近では排ガス・排水処理 [11, 12]，食品照射 [13]，殺虫・滅菌処理等の環境，生物 [14]，医療 [15] 分野での利用が進められている。また，これらの分野において 1991 年末には世界で約 1,000 台の電子加速器が稼働していると言われており [16]，1996 年現在ではさらに増加している。

一方，近年急速に基材表面の有機薄膜層の加工を目的とした 300 keV 以下の低エネルギー電子線照射の利用が進んでいる。その要因としては，高分子の重合や架橋が電子線で効率よく行えることに加えて，電子線の持つ，高操作性，高制御性，均一照射性等が薄膜表面加工に適していることがあげられる。また，1 MeV 未満の電子加速器は放射線障害防止法による規制 [17] を受けないために，設置・管理面からも低エネルギー電子線利用の普及を容易にしている。低エネルギー電子線の工業利用を振り返る [18] と，1965 年には 300 keV 電子加速器による自動車部品の塗装硬化技術が実用化された。1970 年代に入り，電子線プロセスに適した樹脂材が開発され，電子線硬化法 (Curing) として工業的実用化が進んだ。特に，1974 年のエネルギー危機以降，電子線硬化法に対する関心が高まり，低エネルギー電子線照射の主たる工業利用分野として普及した。その理由としては，薄膜や表面加工に適したコンパクトで，二次 X 線を自己遮蔽できる低エネルギー電子加速器が工業用照射装置として発達したこと，電子線硬化法は従来の熱硬化法に比較して，格段に効率のよい省エネルギープロセスであることが明確になったことにある。

今日，低エネルギー電子線照射による電子線硬化法は 1) 有機溶剤を原則として使用しないために安全，無公害，省資源型。2) 触媒を必要とせず，不純物を含有しない製品が作れる。3) 光硬化法では困難な有色塗料の硬化，金属箔を含む多層のラミネート加工が可能。4) 不均一固体中の反応を容易に起こせる。5) 常温，かつ高速硬化による製品の特性向上が期待できる等，従来法より高性能な新材料開発技術として注目されている。最近では，これらの特長を利用した VTR テープ [19]，フロッピーディスク [20]，プリント回路 [21]，さらに薄膜電池 [22]，感熱記録紙 [23] 等，エレクトロニクス分野への応用が著しい。また，意匠性の優れたアートタイル [24] や印刷トンネル金属内装板の製造 [25]，非経口医用材の表面滅菌処理 [22] が実用化している。偽造防止効果の優れた凹版印刷に低エネルギー電子線照射を利用する試みは世界的傾向にあり，日本でも大蔵省印刷局で検討が進められている [26]。有機材料を分子レベルで組織的に組み上げて，機能性分子素子を作製することを目的とした 300 keV 電子線照射による薄膜製造技術が研究されている [27]。

高出力で安定な低エネルギー電子加速器の開発とその関連技術の進展によって，さらに電子線照射の新しい利用分野が開発されると思われる。このような状況のもとで，低エネルギー電子線の工業利用は一層進展することが予想され，電子線照射の状況を現場で正確に確認するための線量評価法を早急に確立することが期待されている。

1. 3 工業用電子線照射装置の現状

工業用電子線照射装置を含むプロセスの中で、主となる電子加速器は、エネルギー範囲、高圧発生方式、照射方式、遮蔽方式等によって分類される[28-34]。一般に電子エネルギー 300 keV 以下のものを低エネルギー電子線と呼ぶ。照射窓の厚さおよび材質に対する技術的問題や実用的空間の必要性から、現在商用化されているのは 150 keV~300 keV のエネルギー範囲に限定される。高圧発生方式で分類すると、コッククロフト・ウォルトン型、変圧器整流型、共振変圧器型、バンデグラーフ型等があるが、工業用低エネルギー電子加速器では、鉄心接地方式の変圧器整流型が多く使用される。共振変圧器型の使用に対しては、電子ビームの均一性に対する問題点が指摘されている。電子ビームの照射方式には、走査型と無走査型に大別される。走査型ではU字状、W字状、スパイラル状等の形状をしたフィラメントから、高真空中で熱電子を発生させスポット状の電子ビームを得る。これを電磁的に走査して、線状の走査ビームにする。走査端部の補正等を行って線状ビームの均一性を高めている。無走査型には、長い直線状のフィラメントおよび短い線状フィラメントを並列に配置する方式があり、それぞれリニアフィラメント型、ブロードビーム型とも呼ばれる[5]。線状ビームの均一性はフィラメントの構造、形状に依存する。以上の熱電子方式のビーム発生法に対して、金属箔電極に瞬間的に高電圧を印加して、パルス的に大電流の電子ビームを得る冷陰極方式がある。この方式は無走査型で、瞬時照射やバッチ式プロセスに有効である[5]。近年、He イオンで金属イオンをたたく方式の、二次電子放出現象を利用した無走査型無フィラメント型の加速器が実用化されている[5]。照射プロセスにおいては、電子線照射に伴って発生する制動放射X線を遮断する必要がある。この遮蔽方式には、コンクリート等で作られた遮蔽室内に加速器を設置する型式と、照射装置自身が薄い鉛板等でできた遮蔽部をもつ自己遮蔽型があり、低エネルギー電子線照射装置では後者が多く用いられる。自己遮蔽型はコンパクトであるが、照射用空間が小さく電子線量の実測には不利である。工業用低エネルギー電子線照射装置では、これらの電子加速器と被照射体を搬送するためのコンベアから構成され、コンベアの移動精度も電子線量評価に影響を与える。照射場に置かれた被照射体の受ける電子ビームは、走査型の場合、ビーム走査の周期に依存して被照射体表面では不連続照射であり、無走査型では連続照射である。無走査型の場合は、被照射体の受ける電子線量率は一義的に決定されるが、走査型の場合は瞬時の最大電子線量率は平均電子線量率よりもはるかに大きい値となり、照射効果が異なる場合が考えられる。このような工業用電子線照射装置においては、電子線照射時の線量評価として、1) 被照射体の深さ方向の線量分布(深度線量分布)の確認、2) コンベアによる照射場通過後の被照射体横方向(ビーム走査方向)の表面線量分布の均一性、が基本的に重要となる。これらの線量分布は電子エネルギーが低くなるほど種々の照射パラメータに強く依存すること、照射場の冷却機構や後方構造物からの散乱電子の影響する場合があること、等から、照射装置の構造を十分考慮した上で、実際の照射条件にできる限り近い条件で線量評価をする必要がある。

1. 4 電子線量評価の重要性

工業用低エネルギー電子線照射では、製品の生産計画や品質管理の観点から、被照射体が受ける電子線量、即ち照射電子数と吸収エネルギー（吸収線量）を正確に把握することが要求される。吸収線量は被照射体が吸収したエネルギー量であるため、その空間的分布が明らかであれば、製品の生産に必要な電子加速器の出力を推定し、それをもとに生産量の推定が可能となる。従って照射プロセスの経済性を評価するために線量評価は重要である。電子線照射が医療用品の殺菌や農産物の殺虫、滅菌等に利用される方向にある。これらの電子線照射処理では、その有効性が吸収線量の絶対値で規制されるため、その線量値の保証手段として、また照射製品の健全性を保証するために線量評価の正確さが要求される。また、電子線照射プロセスを工業化するためには、反応条件の設定など多くの基礎研究の積み重ねが必要である。これらの基礎研究において電子線照射の照射効果を定量的に論じるための尺度として電子線量が不可欠であり、その客観的評価のために信頼性の高い線量評価が重要である。

電子線量評価は、狭義には電子線の吸収線量評価のことを指すが、広義には電子線の（電子数）フルエンス (cm^{-2}) やエネルギーフルエンス ($\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$) 等の電子線照射場に関する量の評価も包含する [5]。吸収線量は被照射体に関する量であり、フルエンスは被照射体と関係なく、照射される電子線の照射場に関する物理量である。従って、厳密な解釈のもとでは線量評価には照射電子数の評価は含まない。しかし、工業用低エネルギー電子線照射で使用される電子線は、物質中での透過度が小さく、物質との相互作用が直接的にエネルギーの吸収につながるため両者を分離して評価することは難しい。半導体加工や半導体デバイスの耐放射線性試験では照射効果は吸収線量の評価が困難であるため、通常電子数のフルエンスで議論している。

このような電子線の特性や実用性を考慮して、本研究では電子数フルエンスも電子線量評価の対象とする。但し、吸収線量と電子数フルエンスの関係は、電子のエネルギー、方向性が揃っている場合は単一の物質に対して単純な比例関係となるが、これらの条件が成立しない被照射体の深部や空間では複雑な関係となる。特に 300 keV 以下の低エネルギー電子線では散乱断面積と衝突阻止能が大きいので、両者の関係はより複雑である。

照射効果の尺度としての電子線量は、どの機関においても同一の線量評価基準をもつことが望まれる。1985 年、Tanaka らのグループによって国外 1 社を含む計 10 機関を対象として行われた吸収線量に対する相互比較 [36, 37] では、目標値 (50 kGy) に対して 6 機関は $\pm 20\%$ 以内であったが、最大では 1.7 倍の違いを示した。調査の対象枠を拡げればこの差異は大きくなることが予想され、標準となる線量評価法の確立が急務であることを指摘している。電子線量評価には、線量計による実測と計算による評価法があり、その現状を次に示す。

1. 5 線量計による線量測定

線量計による測定を大別すると、熱量的方法 (Calorimetric method), 電離的方法 (Ionization method), 化学的方法 (Chemical method) 等の絶対的測定法 [5], 絶対的測定法に基づく基準線量計で校正した実用線量計による方法がある。絶対測定法は、観測の対象となる放射線効果の物理的、化学的な定量的解明が十分になされており、線量評価に対する基準を与える基準測定法であるが、低エネルギー電子線の場合には、

- 1) 有機物質中における電子飛程が 1 mm 以下と短く、かつ飛程中で深さ方向の線量分布が大きく変化する。
- 2) 電子の飛程に対する電子取り出し用金属薄層および空気 (あるいは置換ガス) 層の厚さの影響が大きく、両層におけるエネルギー損失や透過電子の散乱が大きい。
- 3) 自己遮蔽型電子線装置の発展により照射室が小型化し、測定のための自由空間が得にくい。

等の問題があるため、従来中高エネルギー領域の電子線で開発されてきた部分吸収型熱量計や気体、液体線量計を利用して、必要とする精度で測定することは技術的に困難である。

現在、これらに代わり得る方法として低エネルギー電子線では、電子飛程より大きい厚さの吸収体を使用した全吸収型熱量計が用いられる [5]。この方法では、吸収体の単位面積当りに吸収されるエネルギー量が、被照射体の深度線量分布の積分値に等しいことを利用する。従って、相対的な深度線量分布が何らかの方法で与えられれば、上記のエネルギー量で校正することにより被照射体の吸収線量値を絶対的に与えることができる。しかしながら、こうした電子線量の基準測定は線量算出が面倒であり、かつ方法が未だルーチン的に確立されていないため、センタ的な研究機関以外では普及していない。基準測定は照射場の校正や実用線量計の校正等、その機関において標準を与える評価法である。そのため、現在低エネルギー電子線で使用できる絶対線量測定法の研究も進められており、最近 Miller は 1 MeV 以下の電子線で使用する熱量計の試作を上述の国際会議で報告している [1]。

このような現状において、工業用低エネルギー電子線照射における線量測定は、もっぱらフィルム線量計のような相対的に線量を測る実用線量計が使用される [5]。フィルム線量計による測定では、その測定結果をもとにして照射試料中の知りたい位置の線量を推定する。一般的には照射試料中の希望する被照射部分と等価になるようにフィルム線量計を積層して照射を行い、フィルム線量計の線量と試料の電子質量阻止能比をもとにして試料の線量を得る。しかし、照射試料中のある深さでの阻止能を正確に求めることは、一般に困難であるため線量計自体の線量で代表することも多い。幸い、低エネルギー電子線による照射利用の対象物質は殆ど有機系のものであるため、プラスチックフィルム線量計は組成的には問題はない。プラスチックフィルム線量計 [37-39] には、RCD (Radiachromic dye dosimeter) [40, 41], ブルーセロファン [42], PS (Polystyrene dosimeter) [43], PVC (Polyvinyl chloride dosimeter) [44], PVA (Polyvinyl alcohol dosimeter) [45], CTA (Cellulose triacetate dosimeter) [46, 47] 等があり、現在低エネルギー電子線照射の分野では RCD 線量計, ブルーセロファン, CTA

フィルム線量計が主として用いられる。これらの中では、RCD 線量計は線量計として優れた特性を有しているが感光性、感湿性があるため、遮光、乾燥状態で保存、測定する必要がある。ブルーセロファンは吸湿性が大きく、湿度に応じて重量変化が生じ、特に深度線量分布測定において大きな誤差が生じる可能性がある。また、これらはテープ状でないため連続的な測定ができない、等の実用線量計としての性能における問題点が指摘されている [35]。CTA フィルム線量計は線量計としての優れた特性を有し、現在、中エネルギー電子線照射での線量評価に広く利用されている。但し、フィルム厚さが $125\mu\text{m}$ (約 $15\text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$) であるので、深さ方向に高い空間分解能の測定は困難である。実用線量計の精度は $\pm 10\sim 25\%$ である [5]。実用線量計の精度を向上させるための研究も進められており、最近 Rickay も上述の国際会議 [1] で線量測定とは別の波長で光吸収をもつ染料を含有させた RCD 線量計を開発し、フィルム厚さを光学的に同時測定することで吸収線量の補正をするシステムを考案している。また、Alanine [48]、Gafchromic [49]、Glutamine [50] 等の新しい線量計が開発され、実用化のための研究が進められている。

1. 6 計算評価法

新しい照射方法の検討や新しい電子線照射装置の設計を行う場合には、被照射体が吸収するエネルギー量やその分布の推定が必要となる。これらの場合には、与えられた照射パラメータをもとにして吸収線量およびその分布を計算することは、重要な検討手段となる。また、線量測定の予備段階として簡単な概算計算式による吸収線量の推定は、大きな評価誤りを防止するためにも有効である。

線量計算には、加速電圧、ビーム電流、照射幅、コンベア速度等の単純な基本パラメータをもとにして被照射体の吸収線量を推定する線量概算法と、初期エネルギー、および照射窓、空気層、被照射体の各厚さとその性質を決めるパラメータをもとにコンピュータを用いて深度線量分布等を求めるより正確な計算法がある。

線量概算法として、現在までにいくつかの計算式が提案されている [5]。低エネルギー電子線照射では、照射窓や空気層での電子の散乱やエネルギー損失が大きく、それらに対する評価法が確立していないため、一般に概算計算式による線量計算の正確さを高めるのは困難である。照射窓や空気層での吸収や散乱を考慮した場合についても検討されているが、一般的な場合に適用できる計算式の提案には至っていない。Tanaka ら [36] は、低エネルギー電子線に対する線量概算式を用いて、前述の線量相互比較の際に使用された測定データをもとに吸収線量を計算し、計算値と実測値が不一致を示す支配的な原因は、実効ビーム電流が正しく評価されていないことを指摘している。一方、ビーム電流から吸収線量を求める線量概算式も Tanaka ら [53] によって提案されているが、一般化するには不十分と思われる。

コンピュータを用いる計算評価法としては、Tabata らによって開発された EDMULT (Energy Diposition in MULTilayer absorbers 版 Version 4.00A) [54, 55] がある。

EDMULT は実測データの豊富な中高エネルギー領域を中心にして、半経験的方法により計算式が立てられた平面多層物質中の深度吸収線量分布を求める計算コードである。500 keV 以上の領域では十分な精度で吸収線量評価が可能であること、また実測データの少ない低エネルギー領域において吸収線量を推定するために用いられている [5]。筆者らは、通常の CTA フィルム線量計の約 1/3 の厚さの CTA フィルムを用いて、実用的な 300 keV 電子線の場合についてその吸収線量の実測を行い EDMULT による計算値と比較したところ、比較的大きな違いが認められ、EDMULT の低エネルギー領域への拡張に限界があることを示した [56]。この結果を勘案して EDMULT の見直しが行われ、精度が改善された [57, 58]。EDMULT は簡便であるが、コンベアを用いた移動照射（動的照射）時の平面体中の線量評価に限定される等の実用使用上の問題点がある。

一方、吸収線量のより正確な評価を行うためにモンテカルロ計算法が開発されている。現在、エネルギー数 keV 以上の電子の物質通過を取り扱うモンテカルロ計算コードとしては、NBS (National Bureau of Standards 現在 NIST-National Institute of Standards and Technology に名称変更) の Berger and Seltzer による ETRAN (Electron TRANsport 現在 version 21) [59, 60]、ETRAN をモデルに Halbleib らによって拡張された ITS (Integrated Tiger Series 現在 version 3.0) [61-63]、Nelson らによって Stanford 大で開発された EGS (Electron-Gamma Shower 現在 version 4) [64, 65] があり、これらのコードによる計算結果の信頼性 [66-69] も高いことで知られている。ETRAN および ITS は 1 keV~1 GeV まで計算でき、ETRAN は平面単層、ITS は被照射体の形状により TIGER (平面多層)、CYLTRAN (円筒)、ACCEPT (複合体) の各専用コードがある。EGS4 (EGS Version 4) は光子は 1 keV、電子・陽電子は 10 keV から数 TeV まで計算でき形状上の制限はない。最近、Weies ら [70] は 100~300 keV 電子線の多層織物に対する線量評価を ITS/TIGER を用いて行っている。しかしながら、これらのコードを用いて計算するには比較的高速でメモリーの大きい計算機が必要であり、照射現場における低エネルギー電子線の工業照射用の線量評価の目的には適切ではない。最近、Myers [71] はパソコンで計算可能なエネルギー範囲 10 keV~1 MeV の計算コードを開発している。

低エネルギー電子線の新しい利用分野が拡大するに伴い、被照射体を静止させた条件での照射（静的照射）や、平面体以外の表面層や不均質な被照射体の照射が必要となってきた。これらの被照射体に対しても利用できる正確な計算法の要求が高まっている。静的照射では、照射窓からの放出角度分布の評価、平面体以外の場合には、電子線の散乱の評価が困難である等によって、未だ一般的に使用できる簡便で精度の高い評価法は提案されていない。また、電子線照射による複雑な形状物の照射効果をより詳しく検討するためには、被照射体の断面あるいは 3 次元的な情報が得られる計算評価法が必要とされている。

1. 7 照射パラメータ

電子線量は、一義的には照射装置の設定条件により決まるものであるが、低エネルギー電子線照射の場合には、電子線量に多くのパラメータが影響を与える。電子線照射において電子線量に関係する照射パラメータは、装置パラメータ、被照射体パラメータおよび照射条件パラメータの3種類に大別できる[5]。以下、これらのパラメータについて説明し、合わせて線量評価のための問題点を指摘する。

1. 7. 1 装置パラメータ

装置パラメータは、電子線源である電子加速器に関するパラメータであり、基本的なものは加速電圧、電流およびビームパターンである。ビームパターンは通常スポットビームと線状ビームに区別され、線状ビームの場合は照射幅あるいはビーム走査幅が基本的なパラメータとなる。副次的なパラメータには、照射窓の材質とその厚さ、最大ビーム走査角、および照射窓を通過するときのビームサイズ（実効ビーム径）などがある。照射場での線量率を問題にする場合は、被照射体表面における照射電流密度あるいはフルエンス率の時間的性質を決定する走査周波数も装置パラメータとなる。これらの副次的なパラメータは、コンベアを用いた動的照射の場合の積算線量値にはあまり影響しないが、低エネルギー電子線になるほど静的照射の場合の平均線量値は、照射窓の材質とその厚さに大きく依存する。また、動的照射の場合でも、最大ビーム走査角が大きい場合には走査端における被照射体への入射角度が大きくなるため、ビーム中心と走査端では深度線量分布の差異が大きい。被照射体が受ける電子ビームは、無走査型では連続照射であるが、走査型では不連続照射であり最大ビーム走査角が大きいほど瞬時の最大線量率と平均線量率の差は大きい。

1. 7. 2 被照射体パラメータ

被照射体パラメータは、電子線照射における被照射体の性質に関するパラメータである。被照射体パラメータには、物質の組成に起因するものと、被照射体の大きさ、形状、結晶状態などの物理的形態によるものがある。物質の組成は、被照射体中の深度線量分布に影響を与える。これは電子の飛程を決める質量衝突阻止能、および分布の形を決めるのに大きな要因となる弾性散乱断面積が、物質の原子組成に依存することによる。

被照射体の照射中および照射後の導電率も、重要なパラメータである。絶縁性の高い被照射体では、被照射体に注入される電荷がバルク内に過剰電荷の形で蓄積して高電界が形成される。照射によって誘起されるこの電界は、引き続いて入射してくる電子の透過に対する阻止力として作用し、ある条件下では電子飛程が短くなって深度線量分布に影響を与える[72-75]。

物理的形態に関するパラメータの中で、最も基本的なものは、被照射体の厚さである。被照射体が単一物質の場合には、深度線量分布は単にその厚さのみで決まるが、

被照射体が多重層で構成されている場合には、各層の組成と厚さに依存する。特に低エネルギー電子線照射における有機薄膜層中の深度線量分布はその厚さと背面基材の材質に大きく影響をうける[76]。従って、実用的な線量評価のためには、それらの関係の定量的な解明が必要である。

以上は、固体平板状の均質で単純な被照射体を仮定した場合であるが、低エネルギー電子線照射の工業利用では複雑な形状物を照射対象とする場合が多い[7]。凹凸のある不均質な物体の照射では、実効厚さの評価の難しさや入射電子の斜め入射成分が大きいことなどから、多くの場合、線量測定およびその統計学的処理に頼らざるを得ない。

低エネルギー電子線照射では、被照射体が照射初期あるいは照射中に液体や気体を伴う場合も多い。照射中それらがどのように流動するかにより、電子線量の分布状態は異なる。流動系を伴う被照射体の場合には、平均的な吸収線量を評価することは可能でも、気体や液体の流動の変化による電子線量の統計的なばらつきを評価するのは容易ではない。時間的変化を解析的に評価するためには、コンピュータを用いたシミュレーション法が有効である。

1.7.3 照射条件パラメータ

照射条件パラメータは、電子線照射を行う際の照射条件に関するパラメータである。静的照射の場合の基本的な照射条件パラメータは、照射窓から表面までの距離（空気層厚さ）であり、これと電子線照射装置のビーム走査パラメータ、照射窓の材質とその厚さ等によって被照射体表面における照射電流密度分布、さらには吸収線量分布が決まる。動的照射の場合は、コンベア速度、照射場の通過回数、通過時間間隔、均一な線量分布を与えるための反転照射などが照射条件パラメータとなる。照射環境としての照射場の温度や湿度も、雰囲気ガスや被照射体パラメータの固体絶縁物に対する電荷蓄積効果も導電率を通して影響を与える間接的なパラメータとなる。

低エネルギー電子線照射では、照射窓、空気層、装置構造物等による電子散乱が大きい。そのため、個々の照射装置について照射条件パラメータと実際に照射する被照射体の深度線量分布や表面線量分布との相関を明らかにしておく必要がある。低エネルギー電子線照射における線量概算法では、重要なパラメータである実効ビーム電流値の決定法が確立されていない。照射窓と空気層によるビーム電流の実効減衰量が評価できれば実効ビーム電流値はかなり正確に求められると考えられる。そのため、実用的な照射条件における照射窓と空気層によるビーム電流の実効減衰量の定量化を行う必要がある。

以上を総括すると、正確な電子線量評価を行うためには、現状において以下の問題点を解決する必要がある。

- (1) 従来から用いられてきた実用フィルム線量計による実測は、精度が $\pm 10 \sim 25$ % であることから高空間分解能の評価は困難である。
- (2) 低エネルギー電子線照射の特徴が定量的に解明されていない。
- (3) 低エネルギー電子線照射において正確な有機薄膜層中の線量評価を行うためには、実際の照射条件にできる限り近い条件のもとで、電子線量に影響を与える因子を解明する必要がある。
- (4) 低エネルギー電子線照射の新しい利用分野の拡大に伴い、多様な照射条件に対応できる正確で簡便な計算評価法が要求されている。

本研究は、上述のような背景のもとで問題点の解明および解決を行い、工業用低エネルギー電子線照射における有機薄膜層中の正確な線量評価法を確立することを目指して行ったものである。

参 考 文 献

- [1] IMRP-9: "Proceeding of 9th International Meeting on Radiation Processing", RadTech North America, Florida, May 1-5 (1994).
- [2] 須永博美, 八木国光: "線量測定・照射施設の進歩", 放射線と産業, 65, pp. 22-29 (1995).
- [3] Charlesby A.: Proc. R. Soc. (London), 215, pp187-200 (1952).
- [4] Charlesby A.: "Atomic Radiation and Polymers", Pergamon Press, G. B. (1960)
- [5] 放射線照射振興協会編: "工業照射用の電子線量計測", 放射線照射振興協会 (1990).
- [6] 大成社編集部編: "光・放射線硬化技術", 大成社 (1985).
- [7] 坂本良憲: "実務者のための電子線加工", 高分子刊行会 (1989).
- [8] 材料技術研究協会編: "プラスチックのコーティング技術総覧", 産業技術サービス (1989).
- [9] 日本学術振興会編: "電子・イオンビームハンドブック (第2版)", 日刊工業 (1986).
- [10] 望月康弘: "放射線・粒子線照射による半導体素子の特性制御", 放射線と産業, 64, pp. 14-18 (1994).
- [11] 徳永興公: "電子線による排煙・廃水処理", 第4回放射線利用総合シンポジウム, pp. 61-66, 大阪 (1994).
- [12] 馬場重和: "電子ビームによる都市ゴミ焼却排煙処理", 第5回放射線プロセスシンポジウム, pp. 85-88, 大阪 (1993).
- [13] 林徹: "食品照射をめぐる情勢と課題", 放射線と産業, 65, pp. 34-39 (1995).
- [14] 田辺和男: "電子線を用いた輸入切り花の殺虫処理", 第5回放射線プロセスシンポジウム, pp. 33-36, 大阪 (1993).

- [15] 安藤君寿：“10 MeV電子線加速器を用いた手術用不織布の滅菌”，第5回放射線プロセスシンポジウム， pp. 37-40， 大阪（1993）。
- [16] 坂本勇：“放射線化学とEB装置メーカー”，放射線化学， 53， pp. 1（1992）。
- [17] 科学技術庁原子力安全局監修：“原子力規制関係法令集（1995年版）”，大成出版（1994）。
- [18] 勝村庸介：“表面処理加工のための低エネルギー電子加速器の最近の進歩”，放射線と産業， 37， pp. 10-15（1987）。
- [19] 中島薫：“電子線硬化の磁気テープへの応用”，*ibid.*， 35， pp. 8-11（1986）。
- [20] 久保田悠一：“EB硬化によるフロッピーディスクの製造”，*ibid.*， 41， pp. 10-15（1988）。
- [21] 早味宏：“EBキュアリングのプリント配線板への応用”，*ibid.*， 61， pp. 16-20（1994）。
- [22] 佐々木隆：“米国における電子線加工処理の最新情勢”，*ibid.*， 64， pp. 29-32（1994）。
- [23] 珠久茂和，向吉俊一郎：“EB硬化プロセスを利用した高品位感熱記録体”，第5回放射線プロセスシンポジウム， pp. 144-147， 大阪（1993）。
- [24] 円山孜：“ニューEBアートタイルの開発”，第5回放射線プロセスシンポジウム， pp. 140-143， 大阪（1993）。
- [25] 上野長治：“EBC法を用いた印刷トンネル金属内装板の開発・実用化”，放射線と産業， 66， pp. 36-40（1995）。
- [26] 河村英司：“EB硬化用凸版インキのキュアリング”，*ibid.*， 48， pp. 15-23（1990）。
- [27] 美濃規央：“化学吸着法による有機超薄膜の製法と物性評価およびその応用に関する研究”，東京大学学位論文（1993）。
- [28] Schiller S., Heisig U. and Panzer S. : "Electron Beam Technology", Wiley-Interscience, N.Y. (1982)。
- [29] 坂本良憲：“電子線照射システム・その応用と適用(3)”，高分子加工， 35(10)， pp. 43-49（1986）。
- [30] 坂本良憲：“電子線照射システム・その応用と適用(4)”，*ibid.*， 35(11)， pp. 43-49（1986）。
- [31] 日新電機：“荷電粒子加速装置特集”，日新電機技報， 28， pp4（1983）。
- [32] 日新電機：“電子線照射装置特集”，*ibid.*， 31， pp4（1986）。
- [33] 日新電機：“高エネルギー粒子加速器事業20周年記念特集号”，*ibid.*， 35， pp3（1990）。
- [34] 日新電機：“日新ハイボルテージ（株）創立25周年記念特集号”，*ibid.*， 40， pp2（1995）。
- [35] 須永博美，田中隆一：“低エネルギー電子線照射における線量評価の現状と

- 問題点”，放射線と産業， 37, pp. 29-34 (1987).
- [36] Tanaka R., Sunaga H., Kuriyama I. and Moriuchi Y. : "Intercomparative Study on Low Energy electron Beam Dosimetry", Radiat. Phys. Chem., 33 (3), pp. 407-410 (1989).
- [37] 松田光司 : "プラスチック線量計とその応用", ESI-NEWS, 7 (4), pp. 7-11, (1989).
- [38] 大線量測定研究委員会編 : "大放射線量実用測定法", 放射線照射振興協会 (1978).
- [39] 田中隆一 : "加工処理線量計測の最近の動向", 第11回応用放射線化学シンポジウム, pp. 1-10, 大阪 (1992).
- [40] McLaughlin W. L. : "Radiochromic dye-cyanide dosimeters", eds. Holm N. W. and Berry R. J., Manual on radiation dosimetry, pp. 377-385, Marcel dekker Inc., New York (1970).
- [41] McLaughlin W. L., Miller A., Fidan S., Pejtersen K. and Pedersen W. B. : "Radiochromic plastic films for accurate measurement of radiation absorbed dose and dose distributions", Radiat. Phys. Chem., 10, pp. 119-127 (1977).
- [42] Charlesby A. and Woods R. J. : "Radiation dosimetry with dyed cellophane", Int. J. Appl. Radiat. Isot., 14, pp. 413-419 (1963).
- [43] Bishop W. P., Humpherys K. C. and Randtke T. : "Poly(halo)styrene thin-film dosimeters for high doses", Rev. Sci. Instrum., 44 (4), pp. 443-452 (1973).
- [44] Artandi C. "Rigid vinyl film dosimeter", eds. Holm N. W. and Berry R. J., Manual on radiation dosimetry, pp. 353-356, Marcel dekker Inc., New York (1970).
- [45] Chung W. H., 小嶋拓治, 岡本次郎 : "着色PVAフィルム線量計の150~300 keV 電子線線量測定への応用", Radioisotopes, 43, 5, pp. 278-282 (1994).
- [46] Laizier J. and Oproiu C. : "Use of the CTA dosimetric film for minute investigation of absorbed doses in complex materials", Radiat. Phys. Chem., 9, pp. 721-736 (1977).
- [47] Miller A., Bjergbakke E. and McLaughlin W. L. : "Some limitations in the use of plastic and dyed plastic dosimeters", Int. J. Appl. Radiat. Isot., 26, pp. 611-620 (1975).
- [48] Kojima T. and Tanaka R. : "Polymer-alanine dosimeter and compact reader", Int. J. Appl. Radiat. Isot., 40 (10-12), pp. 851-857 (1989).
- [49] Chu R. D. H., Van-Dyk G., Lewis D. F., Ohara K. P. J., Buckland B. W. and Dinelle F. : "Gafchromic dosimetry media: a new high dose, thin film routine dosimeter and dose mapping tool", Int. J. Radiat. Phys. Chem., 35 (4-6), pp. 767-773 (1990).
- [50] Gupta B. L., Nilekani S. R., Gehringer P. and Miller A. : "Dose inter

- comparison for 400-500 keV electrons using FWT-60 film and glutamine (spectrophotometric readout) dosimeters", *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 37 (9), pp. 965-967 (1986).
- [51] 田中隆一, 三友昭市, 須永博美, 松田光司, 田村直幸: "CTA線量計マニュアル", JAERI-M 82-033 (1982).
- [52] 岡部茂, 津守邦彦, 多幡達夫, 吉田俊男, 永井昭男, 広三寿, 石田国彦, 坂本勇, 河合禎, 荒川和男, 井上崇, 村上知之: "電子線吸収線量の算出と測定 -300 keV電子線加速器の場合-", *応用物理*, 43 (9), pp. 909-918 (1974).
- [53] Tanaka R., Sunaga H., Yotsumoto K., Mizuhashi K. and Tamura N.: "Dose Evaluation in Electron Beam Processing", *Radiat. Phys. Chem.*, 18 (5-6), pp. 927-936 (1981).
- [54] Tabata T. and Ito R.: "An algorithm for the energy deposition by fast electrons", *Nucl. Sci. Eng.*, 53, pp. 226-239 (1974).
- [55] Tabata T. and Ito R.: "An algorithm for electron depth-dose distributions in multilayer slab absorbers", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 20, pp. 249-258 (1981).
- [56] Matsuda K. and Kijima T.: "Electron Beam Dosimetry for a mult layer absorber", *Appl. Radiat. Isot.*, 42 (3), pp. 235-239 (1991).
- [57] Tabata T., Shinoda K., Andreo P., Chuan-San W. and Ito R.: "Analysis of Monte-Carlo depth-dose data for electron beams and four-layer extension of the EDMULT code", *RadTech Asia '93, Conf. Proc.*, pp. 574-579, Chiba (1993).
- [58] RSIC: "EDMULT 3.11 MICRO: Electron depth-dose distributions in mult layer slab absorbers", *Computer Code Collection CCC-430*, Radiation Shielding Information Center, Oak Ridge Natl. Lab. (1992).
- [59] RSIC: "ETRAN: Monte Carlo code system for electron and photon transport", *Computer Code Collection CCC-107*, Radiation Shielding Information Center, Oak Ridge Natl. Lab. (1969).
- [60] Seltzer S. M.: "An overview of ETRAN Monte Carlo methods", eds. Jenkins T. M., Nelson W. R. and Rindi A., *Monte Carlo Transport of Electrons and Photons*, pp. 153-181, Plenum, New York (1988).
- [61] Halbleib J. A. and Mehlhorn T. A.: "ITS: The Integrated TIGER Series of coupled electron/photon Monte Carlo transport codes", *Nucl. Sci. Eng.*, 92, pp. 338 (1986).
- [62] Halbleib J. A.: "Structure and operation of the ITS code system", eds. Jenkins T. M., Nelson W. R. and Rindi A., *Monte Carlo Transport of Electrons and Photons*, pp. 249-262, Plenum, New York (1988).
- [63] Halbleib J. A., Kensek R. P., Mehlhorn T. A., Valdez G., Seltzer S. M. and Berger M. J.: "ITS Version 3.0: The integrated TIGER series of coupled

- electron/photon Monte Carlo transport codes", Report SAND 91-1634, Sandia Nat. Labs. (1992)
- [64] Nelson W. R., Hirayama H. and Rogers D. W. O. : "The EGS4 code system", SLAC Report 265, Stanford Linear Accelerator Center (1985)
- [65] Nelson W. R. and Rogers D. W. O. : "Structure and operation of the EGS4 code system", eds. Jenkins T. M., Nelson W. R. and Rindi A., Monte Carlo Transport of Electrons and Photons, pp.287, Plenum, New York (1988).
- [66] 多幡達夫 : "電子の物質通過, 計測と利用のための基礎データ (2)", ESI-NEWS, 6 (164), pp.1-7, (1988).
- [67] Tabata T., Andreo P., Shinoda K. and Ito R. : "Energy deposition through radiative processes in absorbers irradiated by electron beams", Beam Interactions with Materials & Atoms, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B 93, pp. 447-456 (1994).
- [68] Tabata T., Andreo P. and Ito R. : "Depth profile of charge deposition by 0.1 to 100 MeV electrons in elemental absorbers", Beam Interactions with Materials & Atoms, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B 94, pp.103-106 (1994).
- [69] Tabata T., Andreo P., Shinoda K. and Ito R. : "Depth profile of charge deposition by electrons in elemental absorbers: Monte Carlo results, experimental benchmarks and derived parameters", Beam Interactions with Materials & Atoms, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B 95, pp.289-299 (1995).
- [70] Weiss D. E. and Kalweit H. W. : "Calibration of Monte Carlo simulation code to low voltage electron beams through radiachromic dosimetry", RadTech North America '94, Conf. Proc., 2, pp.104-116 (1994).
- [71] Myers B. R. : "An Electron beam dose program for personal computers", RadTech North America '94, Conf. Proceedings, 2, pp.150-155 (1994).
- [72] Harrah L. A. : "Stored charge effects on electron dose-depth profiles in insulators", Appl. Phys. Lett. 17 (10), pp.421-423 (1970).
- [73] Tanaka R., Sunaga H. and Tamura N. : "The Effect of Accumulated charge on Depth Dose Profile in Poly (Methylmethacrylate) Irradiated with Fast Electron Beam", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-26 (4), pp.4670-4675 (1979).
- [74] 田中隆一 : "固体絶縁物の放射線照射効果と線量の物理計測", 大阪大学学位論文 (1980).
- [75] Kotera M. and Suga H. : "Asimulation of keV electron scatterings in a charged-up specimen", J. Appl. Phys., 63 (2), pp.261-268 (1988).
- [76] Matsuda K. and Kijima T. : "Electron beam dosimetry using a multi-layer dosimeter", Proc. Conf. Radiation Curing Asia, pp.379-384, The Organizing Committee of CRCA, Tokyo (1988).

2. 電子線量の実測評価

2. 1 まえがき

電子線量の標準的測定法としては、部分吸収型熱量計、気体線量計、フリッケ線量計等がある[1]。熱量計は物質に吸収された電子エネルギーを物質の温度上昇として測定し、気体線量計は低線量領域では気体の電離量を、高線量領域では単純な原子分子ガスの分解生成物を測定することにより吸収線量を評価する。フリッケ線量計は硫酸鉄水溶液中の鉄イオンの酸化反応を光学密度変化として測定することによって吸収線量を評価する。これらの基準測定法においては、観測の対象となる放射線効果の物理的、化学的な定量的解明が十分になされており、効果量と吸収線量とを関係づける校正定数は高精度の信頼性をもつ。しかしながら、吸収線量を直接的絶対的に測定することを目的としたこれらの基準線量測定法は、その構造や空間分解能の制限から工業用電子線照射への適用が技術的に困難であるため、Nakai ら[2-5]、Tanaka ら[6]によってエネルギーフルエンスの測定を目的とした全吸収型熱量計が開発されてきた。実際の照射条件のもとで実測する熱量計法は、現状では最も信頼性の高い測定手段であるが、線量算出の面倒さとその方法が未だルーチンのように確立されていないために、研究機関以外では行われていないのが現状である。

一方、実用的な有機薄膜層に対する吸収線量の実測には、種々の RCD、ブルーセロファン、PS、PVC、PVA、CTA 等の各種プラスチックフィルム線量計が用いられる[7]。現在、低エネルギー電子線照射の分野では RCD 線量計、ブルーセロファン、CTA フィルム線量計が主として用いられ、これらのなかでは線量計としての性能がよく簡便で連続的に測定できるテープ状の CTA フィルム線量計が多用されている。CTA フィルム線量計については Miller ら[8]、Laizier ら[9]によって吸収線量と吸光度の基本的関係が調べられ、Matsuda ら[10, 11]、Tanaka ら[12, 13]によって線量率や温度依存性、電子線感受機構が明らかにされ、実用線量計としての信頼性も高い。しかし、従来の CTA フィルム線量計の低エネルギー電子線への利用は、フィルムの厚さの点で深さ方向に分解能のよい実測ができない欠点がある。

本章では、走査型工業用低エネルギー電子線照射による有機層中の深度線量分布を、従来より薄い CTA フィルム線量計を用いて高精度に実測した結果を示す。エネルギー入力法[14]および薄層に対する全電子線量の計測法[15]を組み合わせることで CTA フィルムに対する正確な線量測定を行い計算値と比較のできる基礎データを求める。ビーム走査の有無、傾斜照射等に対する深度線量分布を実測する。

2. 2 吸収線量

高速の電子が物質を通過するときに起こる主な素過程は、原子中の電子との衝突によるエネルギー損失（衝突損失）、原子核のクーロン場の制動効果によるエネルギー損失（放射損失）、同クーロン場による弾性散乱の3種類である。物質に入射した電

子は、これらの素過程を多数回繰返し、一部は入射時と異なる方向とエネルギーを持って入射した物質の前方、または後方へ飛び出す。残りの電子は運動のエネルギーを失いその物質内で止まる。

入射電子が失うエネルギーは、X線や2次電子となって物質の外へ運び去る分を除き、物質が吸収する。単位質量の物質が吸収するエネルギーを吸収線量 (absorbed dose) と呼ぶ。吸収線量 D は、ICRU Report No. 33 [16] において、質量 m 中に与えられる平均分与エネルギー ε の微分値 $D=d\varepsilon/dm$ と定義され、単位は $[J \cdot kg^{-1}]$ 、吸収線量の特別名称はグレイ [Gy] で、 $1 [Gy] = 1 [J \cdot kg^{-1}]$ である。単位時間当りの吸収線量を吸収線量率 $\dot{D}$ とし $\dot{D} = dD/dt$ 、単位は $[J \cdot kg^{-1} \cdot s^{-1}]$ すなわち $[Gy \cdot s^{-1}]$ で表す。

工業用低エネルギー電子線照射における被照射体の吸収線量および吸収線量率は前章で示した照射パラメータに大きく影響される。ただし、吸収線量率は被照射体の移動速度には関係しない [17]。各種条件下での吸収線量を比較するための基礎的な量としては、入射方向に垂直な面の単位面積あたりに1個の電子が入射するとき (単位フルエンス当たり) の吸収線量を考える [18, 19]。吸収線量の深さ依存性を深度線量分布と呼ぶ。

2. 3 電子線照射装置

本研究に用いた電子線照射装置の照射部分の概観図を図2.1に示す。また、電子ビームが被照射体に照射されるまでの透過経路にある物質を図2.2に示す。これらの物質の位置関係は一般の産業ラインに用いられている電子線照射装置のモデルとほぼ同一である。スキャンホーン内の真空中で加速された電子は交流磁界で走査され、照射窓 (Ti) を通して空気中に放射される。電子は照射窓と空気層を透過する間に、これらの物質の構成元素との弾性散乱で大部分のエネルギーを失い、非弾性散乱で残りのエネルギーを失う。被照射体は窓下に静止した状態で、又は移動しながら電子線の照射を受ける。被照射体の厚さが電子飛程より小さい場合には、入射電子は被照射体を透過して後方基材にまで到達し、その電子の一部は基材で跳ね返され、被照射体中に再入射する。

照射用加速器には、日新ハイボルテージ社製変圧器整流型の走査型照射用電子加速器を用いた。電子加速器の主な性能を表2.1に示す [20]。吸収線量の実測に用いた照射条件は、加速電圧 300 kV、ビーム電流 0.2 mA、コンベア速度は $8 \text{ mm} \cdot \text{sec}^{-1}$ である。照射窓の材質は Ti、厚さ $30 \mu\text{m}$ 、照射方向は大地に垂直下方、窓下から試料表面までの距離は 10 cm である。また、ビーム走査幅を Ti 窓面で 30 cm になるように設定した。電子ビームの幾何学的な偏向角は 36° 、走査用偏向電流は三角波電流である。コンベア上の試料は、ビーム走査方向と垂直な方向に移動させた。吸収線量測定はコンベア上で試料を移動させた場合 (動的照射) と、移動させない場合 (静的照射) について行った。

2. 4 吸収線量の実測

従来より薄い CTA フィルム線量計を用いて、積層 CTA フィルムに対する深度線量分布を厚さ 38 μ m のテープ状 CTA フィルム線量計を用いて実測した。CTA フィルム線量計の主な物理的性質を表2.2に示す。従来の約 1/3 の厚さの CTA フィルムを用いることで、より正確な深度吸収線量分布を知ることができる。

2. 4. 1 フィルム線量計

フィルム線量計の測定原理は、照射されたプラスチックフィルムの着色の程度が吸収線量に比例することにある。CTA フィルム線量計では、電子線照射による着色が近紫外領域で起こり、波長280nmの吸光度変化を測定する。本フィルム線量計は最大300 kGy までの線量測定に使用できるが、10~160 kGy の領域が直線応答性の優れ高精度の測定ができる。市販されている CTA フィルム線量計は、CTA素材に可塑剤としてトリフェニルフォスフェイト (TPP) を 15 % 混入している。電子線照射による CTA フィルムの着色は、CTA 分子から生成するラジカルと C=O 基を持つ分解生成物によることが分かっている [10-12]。

本実験では、フィルム線量計を長さ 50 mm の積層状態にしてしようした。吸光度測定器は島津製作所製、自己分光光度計 UV-3101PC に、本実験のために開発した薄層テープ連続測定装置を取り付けて使用した。この装置を用いればスリット幅 1 mm で高精度に連続的に測定できる。なお、この CTA フィルム線量計は照射場におけるビームの広がり面積 (800 mm $\times$ 1200 mm) に比べて十分に小さい寸法と見なせる。本フィルム線量計の吸収線量に対する吸光度変化量の校正は、従来の CTA フィルム線量計 (厚さ 125 μ m) を同時に電子線照射することによって行った。未照射および吸収線量 100 kGy の電子線照射を行った時の 250~350 nm における吸光スペクトルを図2.3に示す。線量測定には、280 nm における吸光度変化を用いた。吸収線量 D_{CTA} (kGy) は次式により算出した。

$$D_{CTA} = [(OD - OD_0)/K] \cdot (0.038/t) \cdot f \quad (2. 1)$$

ここで、 OD_0 , OD はそれぞれ照射前、後の吸光度を示し、 K は 1 kGy 当りの吸光度変化量 (K Value) で、0.0019 ($\Delta OD/kGy$) である。本線量計は、従来のもの (125 μ m) に比べて薄いために K は小さい。 t はフィルムの厚さである。CTA フィルム線量計の吸光度は照射直後からある程度の変動があるため、 f はその時間に関する補正係数である。ここでは照射後、1~3 時間以内に吸光度測定を行うので $f = 1$ であり精度は ± 1 % 以内である。参考のために、CTAの照射後の相対的な吸光度変化を照射2時間後の ΔOD を1として図2.4に示した。照射後、10 分以内の変化は急激に起こるが1時間以上経過するとその変化は小さくなり、一般に使用されている CTA フィルム (125 μ m) と同一の傾向を示す。

2. 4. 2 電子平衡

深度線量分布を測定する場合にはフィルム線量計を積層して使用するが、幅の狭いテープ状のフィルムを積層して使用するため、側壁での電子平衡を考慮する必要がある[1]。そこで、この電子平衡を確認するために CTA フィルムの積層方法の深度線量分布に及ぼす影響を3条件で調べた。(1) 3組の 8 mm 幅の積層フィルムをブロック (PMMA: 50 mm×50 mm×15 mm t) 上に並べて照射し、中央に置いた積層フィルムを測定する。(2) テープ状に裁断する前のシート状フィルムを積層し、照射後中央部分をテープ状にカットして測定する。(3) フィルムとよく似た元素組成のガイド溝付き PMMA ブロックにテープ状フィルムを積層して照射し測定する。上述の3方法により1枚目のフィルムの吸収線量が 100 kGy となるように電子線を照射して得られた深度吸収線量分布を図2.5に示す。図中のバーは測定誤差の範囲を表す。実験に用いた3種類の方法においては吸収線量の実測値に差がないことが分かった。すなわち、使用した8 mm 幅の CTA フィルムのうち測定装置の有効測定エリア (4 mm) 内では、側壁による影響が無いことが確認できた。従って、以後の実験には実験上の取り扱いが容易なガイド溝付きPMMA ブロックを使用する[21]。春山ら[22]による従来の CTAフィルムおよび RCD 線量計、また Chung ら[23]による PVA フィルム線量計を用いた無走査型電子加速器の 300 keV 電子線に対する実測でも同様の分布が得られている。

2. 4. 3 吸収線量の校正

単位質量の積層 CTA フィルムに吸収されるエネルギーを、エネルギー入力法[14]によって計測した。面積 S [cm^2], 厚さ d [cm], 密度 ρ [$\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$] の物質中に全体として E [J] の電子線エネルギーが吸収されたとき、その物質の平均吸収線量 D [Gy] は次式で表される。

$$\bar{D} = \frac{E}{Sd\rho} \times 10^3 \quad (2.2)$$

E は、全吸収型熱量計によって求めた値を用いる。しかし、中高エネルギー電子線照射用に開発された従来型の全吸収型熱量計を用いて低エネルギー領域で精度よく測定することは技術的に困難であるため、ここでは理論計算によって求められた物質中の吸収線量値を利用する。すなわち、 E は単位面積当りの入射電子数 N [$\text{elec}\cdot\text{cm}^{-2}$], 面積 S [cm^2], 厚さ d [cm] および1個の電子が物質に垂直入射したときの深さ x [$\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$]

における吸収エネルギー (エネルギー散逸量) $E_a(x)$ ($\text{MeV}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{elec}^{-1}$) から求めた。

$$E = NS \int_0^x E_a(x) dx \quad (2.3)$$

$E_a(x)$ については、L. V. Spencer [24, 25] が各種基本物質に対する理論計算を行って

いる。また、Nakai ら (26-32) が 600 keV~2 MeV のエネルギー範囲において半無限厚さの媒質の場合でも、Spencer の計算値と殆ど一致することを実験的に示している。そこで、 $E_a(x)$ には入射エネルギー 300 keV の場合の Spencer の計算値を用い、照射窓および空気中でのエネルギー損失を考慮してその厚み相当分 ($0.02567 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}$) を表皮側から取り去った値を用いた。この方法は、Okabe ら [33] による実験にも用いられている。但し、低エネルギー電子線では、全入射エネルギーに対する照射窓と空気層で吸収される割合が大きく無視できないため、照射窓 (Ti, 厚さ $30\mu\text{m}$) - 空気 (10 cm) - CTA フィルム (電子の透過厚さ) の各層を混合した均一な単一層と見なし、実効的な原子番号 ($Z_{\text{eff}}: 8.7$) をもつ等価物質として計算した。N は電子線源に依存する数量であり、ファラデーカップ [34] による実測値を用いた。Spencer 理論による計算値、および同様の方法で求めた ITS の計算値 [35] を図 2.6 に示す。また、図中には参考のために EDMULT [36] による 3 層中の CTA フィルム部分の計算値も示す。縦軸は、入射電子一個当たり・単位質量厚み当りに吸収されるエネルギー (単位フルエンス当りの吸収線量)、横軸は単位質量厚さ当りの距離 (深さ) である。従って、図中の分布曲線の積分値 (面積) は物質が吸収したエネルギー (MeV) に等しい。Spencer 理論、ITS および EDMULT による深度線量分布の曲線を数値積分して得られた吸収エネルギーは、それぞれ 169, 174, 175 keV である。従って、本照射条件のもとでフィルムが吸収した吸収エネルギー量は 169 ~175 keV と推定できる。しかし、本方式では照射窓 (Ti) - 空気 - CTA フィルム層を混合した均一物質と見なしている点において、実際の場合とは異なる。すなわち、実際の状態では、最表面に重元素物質の Ti が集中して存在しており、後続の軽元素物質中の深度線量分布の形は変化すると考えられる。

そこで、薄層中の CTA フィルムの単位フルエンス当りの吸収線量を実測した。電子加速器の窓下 10 cm の距離に電子線の広がりとお透過に対して半無限平面及び半無限厚さで見なしてよい大きさの PMMA (Polymethyl methacrylate) 基板 ($1400 \text{ mm} \times 1800 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$) を設置した。PMMA は組成的に CTA とほぼ等しい物質である。この基板の全平面上に CTA フィルムを貼り付け電子線を照射した。CTA フィルムの光学密度変化量から求めた吸収線量の全積分値は、Ti, 空気, CTA, PMMA の 4 層の深度線量分布曲線において CTA 層の吸収線量分に相当する。この全吸収線量 I_s (MGy) とファラデーカップで求めた全電流値から計算した電子数 N_b ($\text{elec}\cdot\text{cm}^{-2}$) より CTA 層の単位フルエンス当りの吸収線量 E_a ($\text{MeV}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{elec}^{-1}$) は次式で求められる [15]。

$$E_a = C_1 I_s / N_b \quad (2.4)$$

ここで、 $C_1 (= 6.242 \times 10^{15} \text{ MeV}\cdot\text{MGy}^{-1}\cdot\text{g}^{-1})$ は変換定数である。実測の結果、 $38\mu\text{m}$ 厚さの CTA 層の E_a は $4.63 \text{ MeV}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{elec}^{-1}$ であった。従って、実測で得られた図 2.5 の吸収線量分布曲線について、表面から厚さ $38\mu\text{m}$ に対する縦軸の値を E_a として校正した。図 2.7 に確定した CTA フィルム中の深度線量分布の実測値を示す。図 2.7 か

ら求めた、全 CTA 層の吸収エネルギーは 164.5 keV である。図中には、同様の方法によって求めた静的照射の場合の深度線量分布も示す。静的照射の場合の吸収エネルギーは、186.3 keV である。縦軸は、単位変換係数 10^2 (無次元) を乗ずれば $\text{kGy} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{C}^{-1}$ 単位となる。

2. 5 深度線量分布

低エネルギー電子線は、物質中における電子飛程が短く侵入方向の深度吸収線量が大きく変化する。また工業照射利用の現状では、平面形状体に対する照射が主であることから、さし当たっては、被照射体の深さ方向の線量評価が要求されている。本節では、各種条件下で照射した CTA フィルム中の深度線量分布の実測を行い、有機物質に対する低エネルギー電子線の深度線量分布の特徴を示すとともに、絶縁体としての有機物質と比較する目的で導電体（金属）における深度線量分布についても検討した。

2. 5. 1 各種物質における深度線量分布

低エネルギー電子線照射に対する金属（導電体）物質と有機物質中の深度線量分布を比較する。CTA フィルム線量計を用いて、CTA 以外の物質中の深度線量分布を実測するには、交互積層法、直線くさび法、シフト挿入法等 [1] がある。ここでは、高分解能測定が可能なシフト挿入法を用いて Al と Ti 中の深度線量分布を実測した。Al および Ti の薄膜 ($25\mu\text{m}$) 積層中に、深度方向に重ならず且つ照射場の乱れを無視できる程度に横方向にシフトさせた位置に、薄い CTA フィルム線量計を挿入する。フィルム線量計の吸収線量 D_f より、金属の吸収線量 D_m は次式で求められる。

$$D_m = \frac{(S/\rho)_m}{(S/\rho)_f} \cdot D_f \quad (2.5)$$

ここで、 $(S/\rho)_m$ および $(S/\rho)_f$ はそれぞれ金属物質とフィルム線量計の質量衝突阻止能である。図2.8に、動的照射の場合の Al および Ti 中の深度線量分布の実測値を CTA フィルムの場合と共に示した。吸収線量値が 0 となる物質層の厚さ（外挿飛程） R_{ex} ($\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$) は、低エネルギー電子線に対して Katz and Penfold [37, 38] が次の実験近似式を与えている。

$$R_{ex} = 412 E^n \quad (2.6)$$

$$n = 1.265 - 0.0954 \ln E \quad (2.7)$$

ここで、 E は電子エネルギー (MeV) である。

上式による計算値から照射窓と空気層を除いた値 ($0.052 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$) は、線量分布曲線の傾斜部から外挿した Al と CTA フィルムについて良く一致している。Ti の外挿飛

の傾斜部から外挿した Al と CTA フィルムについて良く一致している。Ti の外挿飛程は少し小さい値を示した。極表面層の吸収線量は、Al, Ti 等の導電体層に比べて CTA フィルムの場合は少し低下している。CTA フィルムの絶縁性が影響していると思われる。

2.5.2 深度線量分布におよぼすビーム走査の影響

被照射体表面における電子ビームの電流密度分布は、ほぼガウス分布をしている。被照射体が受ける電子数は、静的照射の場合には電子ビームの1次元走査による積算、動的照射の場合には2次元走査による積算と考えることができる。図2.9は、ビーム走査を停止した状態で照射（スポット照射）した場合の、積層 CTA フィルム中の深度線量分布の実測値を示すとともに、比較のために、静的および動的照射の実測値（図2.7より採録）と共に示した。スポット照射したときの深度線量分布はピーク位置が最も深くかつシャープであり、積層 CTA フィルムに対する全入射電子数のうち、垂直に入射する電子の割合が最も多いことを示している。走査ビームによる静的照射では深度線量分布のピークがフィルム表面に少し移動し、動的照射ではさらに移動してピークは極表面にくる。積層 CTA フィルムへの電子の平均入射角度がビーム走査によって大きくなり、コンベアを用いた2次元走査ではその平均入射角度がさらに大きくなるためと考えられる。同様の結果は McLaughlin ら [39] による 200 および 400 keV 電子線における RCD 線量計を用いた実験でも報告されている。1.5 MeV 電子線では、Tanaka ら [1, 5] が従来の CTA フィルムについて報告している。

2.5.3 傾斜試料における深度線量分布

照射窓から 10 cm の距離に積層 CTA フィルムを各種角度に傾斜して置いて照射し、深度線量分布を測定した。図2.10, 図2.11は、積層 CTA フィルムを窓面と平行 (0° , 電子ビームに対しては垂直) の状態から、 15° , 30° , 45° , 60° , 75° の各角度に置いたときの静的照射および動的照射における深度線量分布を示した。いずれの場合でも積層フィルムの傾斜角度が大きくなるに従って、表面での吸収線量は高くなると共に、深度線量分布様式も大きく異なる。傾斜角度が大きくなると線量分布のピーク位置、曲線全体が表面側に移動する。このように静的、動的照射のいずれの場合でも、積層 CTA フィルムに対する電子の入射角度が変化すると深度線量分布に大きく影響することが分かった。また、単位面積当たりの入射電子数は角度の増加と共に減少するために、吸収線量は減少する。

この分布様式の変化は Eisen ら [40] による 2 MeV 電子線に対する Al, Cu, Sn 中の実測値、および Zheng-ming [41] による 400 keV 電子線に対する C, Al, Cu, Pb 中の計算値においても報告されている。有機物質では Rosenstein [42] がポリスチレンを用いて 2 MeV 電子線で実測している。これら真空中照射の場合に比べて低エネルギー空气中照射の場合には、深さ方向の明確な短縮は見られない。

2. 6 透過電子数

被照射体中の吸収線量の実測が困難である場合には、被照射体に入射あるいは透過してきた電子数を評価することが行われる。真空中に置かれた物質に、単一エネルギー電子線が垂直入射する場合の透過電子数の減少については多くの実験[43-48]と計算値[49]があり、それらをもとにしていくつかの透過に対する経験式[1, 50]も提案されている。しかし、工業用電子線照射装置を用いた場合の被照射体中の入射電子数の減少を検討した報告[33]は少なく、照射方法による透過電子数の違いを比較したデータはない。そこで、被照射体中の入射電子数の減少の程度をファラデーカップを用いて実測した。図2.12は、積層CTAフィルムの積層枚数を変化した場合のフィルム層を透過してくる電流値(電流密度)を、フィルム表面における電流値(電流密度)に対する比として表したものである。静的・動的照射いずれの場合も透過電子数は、フィルム層が厚くなるほど減少する。また、動的照射の場合の透過電子数が静的照射の場合に比べて相対的に少ない。これは、動的照射では静的照射の場合に比べて低エネルギー電子成分の入射が多いことによる。

2. 7 結論

薄いCTAフィルム線量計を用いて300 keV電子線に対する吸収線量の高精度測定を行い、深度線量分布を正確に実測した。本章における、それらの結果を要約して以下に示す。

- (1) 従来の線量計から得られる実測値と比較して3倍以上の分解能で深度線量分布を実測し、極表面層における吸収線量の変化を正確に捕えた。
- (2) 実測した深度線量分布を単位フルエンス当りの吸収線量値で校正した(計算評価法から得られる数値と比較の準備のため)。
- (3) 動的照射、静的照射、無走査ビーム(スポット)照射の順に、斜め入射電子成分が増大するために深度線量分布のピーク位置は、表面寄りにシフトすることを実測した。
- (4) 傾斜照射の場合には、傾斜角度が大きいほど深度線量分布における表面層の吸収線量は急速に増大する。但し、真空中照射で報告されているほどには、明確に入射電子の侵入深さの短縮は起こらなかった。

参 考 文 献

- [1] 放射線照射振興協会編”工業照射用の電子線量計測”，放射線照射振興協会 (1990).
- [2] 大森義郎，中井洋太，井面治巳，松田光司：“熱量計による電子線線量測定”，日本放射線高分子研究協会年報，1，pp. 25-26 (1959).
- [3] 中井洋太，井面治巳，松田光司，大管敏宏，木村毅一：“熱量計による電子線線量測定”，日本放射線高分子研究協会年報，2，pp. 17-20 (1960).
- [4] 中井洋太，井面治巳，松田光司，大管敏宏，木村毅一：“補償型熱量計による電子線線量測定”，日本放射線高分子研究協会年報，3，pp. 19-22 (1961).
- [5] 大線量測定研究委員会編：“大放射線量実用測定法”，放射線照射振興協会 (1978).
- [6] 田中隆一：“固体絶縁物の放射線照射効果と線量の物理計測”，大阪大学学位論文 (1980)
- [7] 松田光司：“プラスチック線量計とその応用”，ESI-NEWS, 7 (4), pp. 7-11, (1989).
- [8] Miller A., Bjergbakke E. and McLaughlin W. L. : "Some limitations in the use of plastic and dyed plastic dosimeters", Int. J. Appl. Radiat. Isot., 26, pp. 611-620 (1975).
- [9] Laizier J. and Oproiu C. : "Use of the CTA dosimetric film for minute investigation of absorbed doses in complex materials", Radiat. Phys. Chem., 9, pp. 721-736 (1977).
- [10] 松田光司，永井士郎：“CTAフィルム線量計の着色機構”，JAERI-M 8471, 日本原子力研究所 (1979).
- [11] Matsuda K. and Nagai S. : "Studies on the radiation-induced coloration mechanism of the cellulose triacetate film dosimeter", Appl. Radiat. Isot., 42 (12), pp. 1215-1221 (1991).
- [12] Tamura N., Tanaka R., Mitomo S., Matsuda K. and Nagai S. : "Properties of cellulose triacetate dose meter", Radiat. Phys. Chem., 18 (5-6), pp. 947-956 (1981).
- [13] 田中隆一，三友昭市，須永博美，松田光司，田村直幸：“CTA線量計マニュアル”，JAERI-M 82-033, 日本原子力研究所 (1982).
- [14] 中井洋太：“線量測定”，放射線化学専門課程テキスト，1-6，ラジオアイソトープ研修所 (1973).
- [15] Matuda K. and Kijima T. : "Electron beam dosimetry for a multi layer absorber", Appl. Radiat. Isot., 42 (3), pp. 235-239 (1991).
- [16] ICRU: "International commission on radiation units and measurements", Radiation quantities and units, ICRU Report 33, International commission

- on radiation units and measurements, Bethesda, Md., U. S. A. (1980).
- [17] 坂本良憲: "電子線照射システム・その応用と適用(3)", 高分子加工, 35(10), pp. 43-49 (1986).
 - [18] 多幡達夫: "電子の物質通過, 計測と利用のための基礎データ(1)", ESI-NEWS, 6(123), pp. 1-7, (1988).
 - [19] 多幡達夫: "0.1~10 MeV電子の物質中での深度線量分布", 放射線化学, 53, pp. 2-10, (1992).
 - [20] 日新ハイボルテージ(株): "電子線照射装置EPS-800取扱説明書", 75NHV-41 26, 日新ハイボルテージ(株) (1975).
 - [21] Kijima T. and Nakase Y: "Electron beam dosimetry for a thin-layer absorber irradiated by 300-keV electrons", Appl. Radiat. Isot., 44(4), pp. 693-699 (1993).
 - [22] 春山保幸, 四本圭一, 岡本次郎: "高崎研低エネルギー電子加速器(300 kV, 100 mA)の仕様と運転特性", JAERI-M 93-114, 日本原子力研究所 (1993).
 - [23] Chung W. H., 小嶋拓治, 岡本次郎: "着色PVAフィルム線量計の150~300 keV電子線線量測定への応用", Radioisotopes, 43(5), pp. 278-282 (1994).
 - [24] Spencer L. V.: "Theory of electron penetration", Phys. Rev., 98(6), pp. 1597-1615 (1955).
 - [25] Spencer L. V.: "Energy dissipation by fast electrons", NBS monograph 1, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., U. S. A. (1959).
 - [26] 中井洋太, 井面治巳, 松田光司, 木村毅一: "電子線の物質中でのエネルギー散逸量分布の研究, I. イオンチェンバーによるアルミニウム中でのエネルギー散逸量の測定", 日本放射線高分子研究協会年報, 2, pp. 25-28 (1960).
 - [27] 中井洋太, 井面治巳, 松田光司, 木村毅一: "電子線の物質中でのエネルギー散逸量分布の研究, II. イオンチェンバーによるベリリウム中でのエネルギー散逸量の測定", 日本放射線高分子研究協会年報, 2, pp. 29-32 (1960).
 - [28] 中井洋太, 井面治巳, 松田光司, 木村毅一: "電子線の物質中でのエネルギー散逸量分布の研究, III. イオンチェンバーによる重元素物質中でのエネルギー散逸量の測定", 日本放射線高分子研究協会年報, 3, pp. 7-10 (1961).
 - [29] 中井洋太, 松田光司, 高垣虎雄, 木村毅一: "電子線の物質中でのエネルギー散逸量分布の研究, IV. イオンチェンバーによるポリスチレン中でのエネルギー散逸量の測定", 日本放射線高分子研究協会年報, 6, pp. 7-12 (1961).
 - [30] Nakai Y.: "Energy dissipation of electron beams in matter", Jpn. J. Appl. Phys., 2, 12, pp. 743-756 (1963).
 - [31] 高垣虎雄, 中井洋太, 松田光司: "電子線のチタニウム中でのエネルギー散逸量分布", JAERI- 5028, pp. 71-73, 日本原子力研究所 (1973).

- [32] 高垣虎雄, 松田光司, 原見太幹, 中井洋太: "0.6および0.8 MeV電子線の物質中でのエネルギー散逸量分布", JAERI-5030, pp. 7-10, 日本原子力研究所 (1975).
- [33] 岡部茂, 津守邦彦, 多幡達夫, 吉田俊男, 永井昭男, 広三寿, 石田国彦, 坂本勇, 河合禎, 荒川和男, 井上崇, 村上知之: "電子線吸収線量の算出と測定 -300 keV電子線加速器の場合-", 応用物理, 43, 9, pp. 909-918 (1974).
- [34] 中井洋太, 井面治巳, 松田光司, 大管敏宏, 木村毅一: "ファラデーチェンバーによる電子線の電流密度分布の測定", 日本放射線高分子研究協会年報, 3, pp. 23-31 (1961).
- [35] Andeo P., Ito R. and Tabata T.: "Tables of charge- and energy-deposition distributions in Elemental materials irradiated by plane-plallal electron beams with energies between 0.1 and 100 MeV", Report RIAST-UOP-TR 1, Res. Inst. Adv. Sci. Tech., Univ. Osaka Prefect. (1992).
- [36] RSIC: "EDMULT 3.11 MICRO: Electron depth-dose distributions in multi layer slab absorbers", Computer Code Collection CCC-430, Radiation Shielding Information Center, Oak Ridge Natl. Lab. (1992).
- [37] Katz L. and Penfold A. S.: "Range-energy relations for electrons and the determination of beta-ray end-point energies by absorption", Rev. Mode. Phys., 24, 1, pp. 28-44 (1952).
- [38] 日本学術振興会第132委員会編: "電子・イオンビームハンドブック第2版", 日刊工業新聞社, (1986).
- [39] McLaughlin W. L., Kahn H. M., Farahani M., Walker M. L., Puhl J. M., Seltzer M., Soares C. G. and Dick C. E.: "Low-energy electron dose-distribution measurements with thin-film dosimeters", Beta-Gamma, 4 (2+3), pp. 20 (1991).
- [40] Eisen H., Rosenstein M. and Silverman J.: "2.00-MeV Electron depth - dose measurements in aluminum, copper and tin absorbers using a radio chromic dye film", Int. J. Appl. Radiat. Isot., 23, pp. 97-108 (1972).
- [41] Zheg-ming L.: "Improved bipartition model of electron transport. II. Applications to inhomogeneous media", Phys. Rev. B, 32 (2), pp. 824-836 (1985).
- [42] Rosenstein M. "Electron depth-dose distribution measurements in polystyrene", Philosophy Doctor Dissertation, University of Maryland (1971).
- [43] 堀切尚三, 中井洋太, 井面治巳, 松田光司: "アルミニウム中の電子線の透過", 日本放射線高分子研究協会年報, 1, pp. 21-24 (1959).
- [44] 中井洋太, 井面治巳, 松田光司, 大管敏宏, 木村毅一: "電子線の2, 3の物質に対する透過曲線の測定", 日本放射線高分子研究協会年報, 3, pp. 12-18 (1961).

- [45] 中井洋太, 松田光司, 高垣虎雄, 木村毅一: "電子線の物質に対する透過曲線の測定", 日本放射線高分子研究協会年報, 5, pp. 7-10 (1964).
- [46] 中井洋太, 松田光司, 高垣虎雄, 木村毅一: "電子線の有限厚さの炭素およびポリスチレン中での透過", 日本放射線高分子研究協会年報, 7, pp. 5-8 (1966).
- [47] 高垣虎雄, 松田光司, 中井洋太: "電子線のチタニウム中での Number Transmission", JAERI 5029, pp. 1-3, 日本原子力研究所 (1974).
- [48] 原見太幹, 高垣虎雄, 松田光司: "0.6および0.8 MeV電子線の物質中での Number Transmission", JAERI 5030, pp. 1-6, 日本原子力研究所 (1975).
- [49] Seltzer S. M. and Berger M. J. : "Transmission and reflection of electrons by foils", Nucl. Instr. and Meth. 119, pp. 157-179 (1974).
- [50] Rao B. N. S. : "A simple formula for the transmission and absorption of monoenergetic electrons", Nucl. Instr. and Meth. 44, pp. 155-156 (1966).

表2.1 電子線照射装置の主性能.

Voltage source type	Rectified transformer
Acceleration voltage	300~800 kV
Beam cuurent	0~25 mA
Output power	0~20 kW
Beam scanning width	0~45 cm
Scan frequency	200 Hz
Air(gas) gap	0~150 cm
Conveyer speed	0~50 m·min ⁻¹

表2.2 CTAフィルム線量計の主な物理的性質.

Chemical formura	(C ₁₂ H ₁₆ O ₈) _n
Thickness	0.038 mm
Specific gravity	1.29 g·cm ⁻³
Area factor	20.2 m ² ·kg ⁻¹
Moisture vapor absorption	1.5~1.9 %
Tear strength	8 g
Bursting strength	7.7 kg·cm
Melting temperature	290 °C
Refractive index	1.487 nd ²⁵

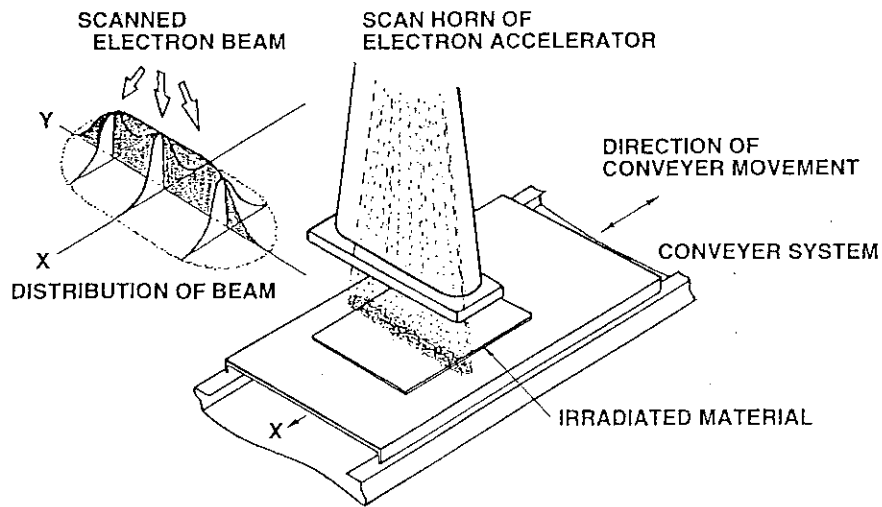


図 2.1 走査型電子線照射装置の照射部分概観図.

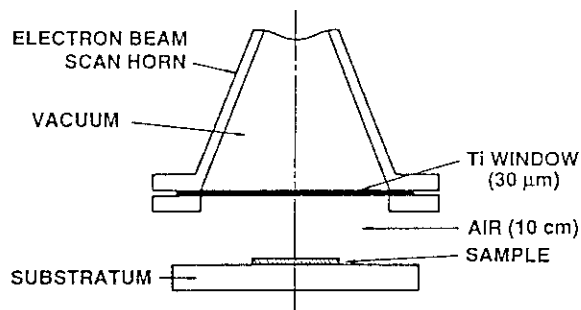


図 2.2 電子線の透過経路の配置.

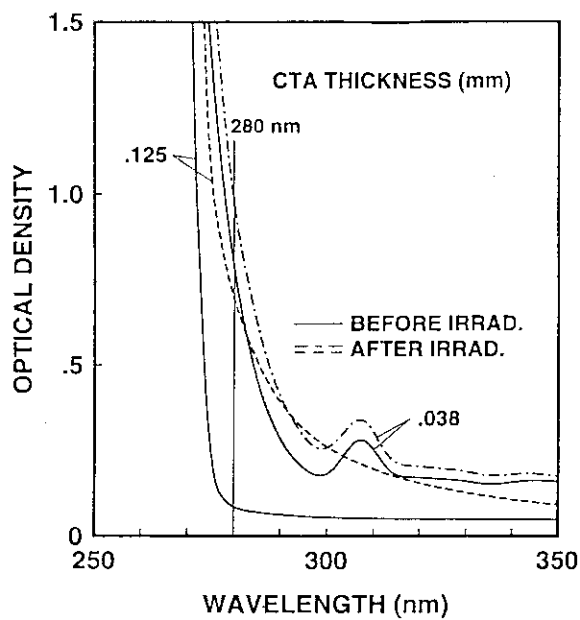


図 2.3 CTAフィルム線量計の吸収スペクトル.

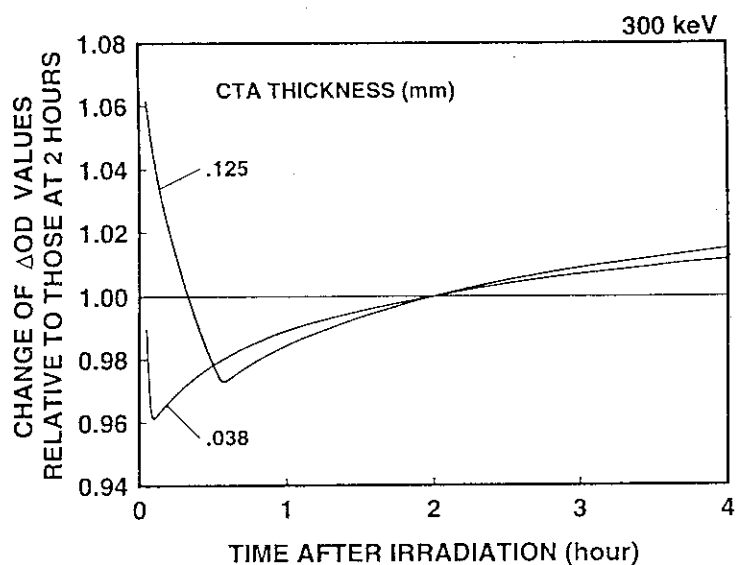


図2.4 CTAフィルム線量計の電子線照射後の ΔOD の変化.

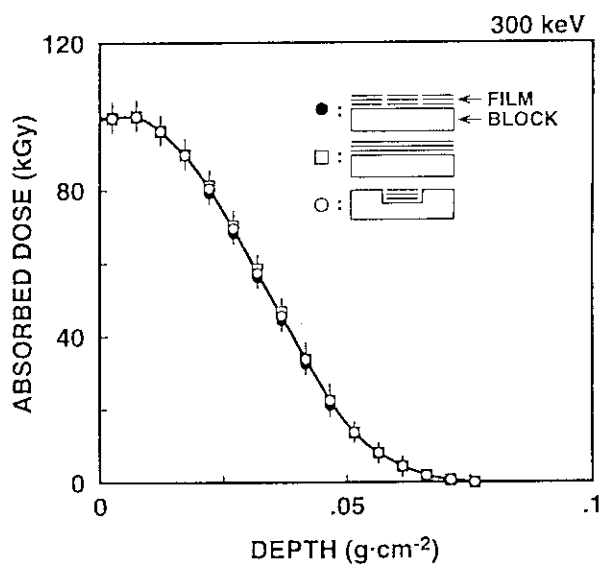


図2.5 CTAフィルム線量計の積層方式による深度線量分布の比較.

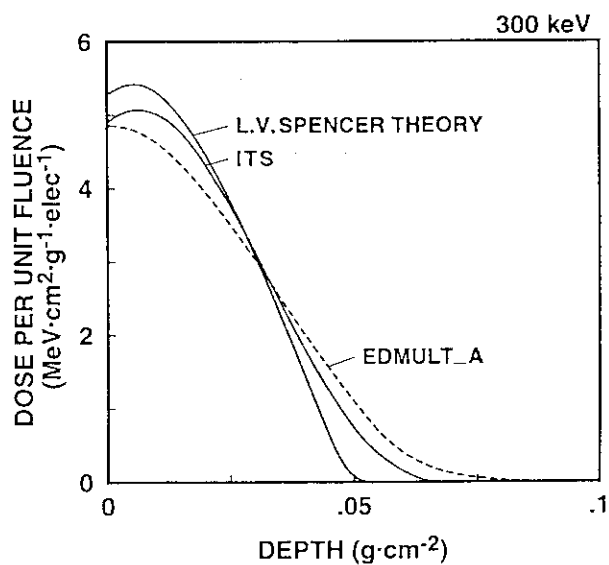


図2.6 L.V. Spencer理論, ITS, および EDMULTによるCTAフィルム中の単位フルエンス当りの吸収線量 $Ea(x)$ の計算値.

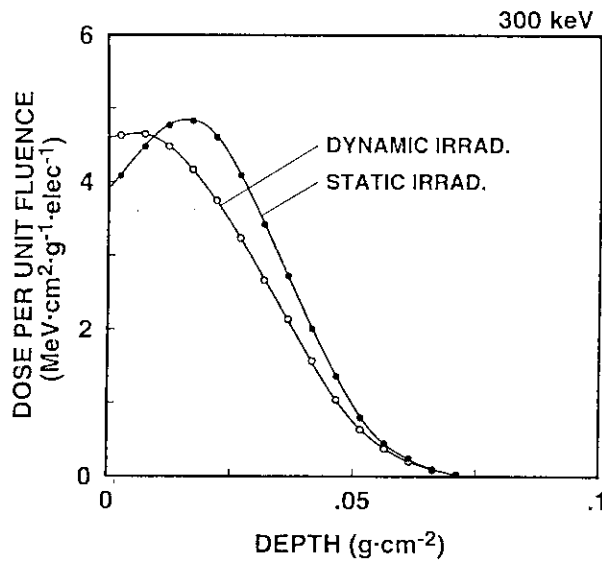


図2.7 単位フルエンス当りの吸収線量で表したCTAフィルム中の深度線量分布の実測値.

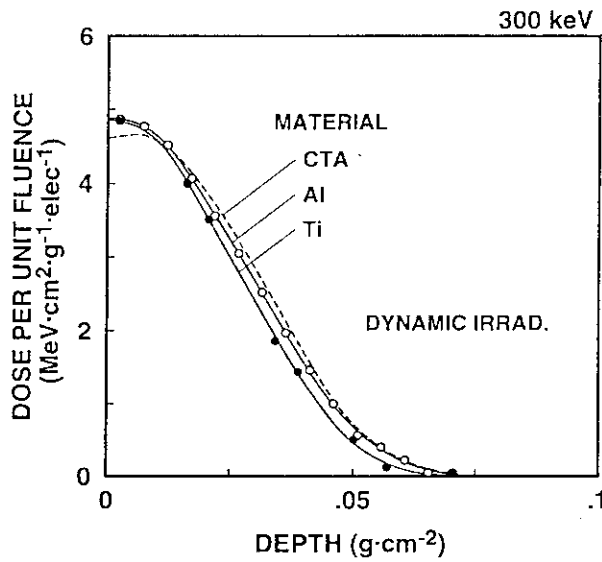


図2.8 Al, TiおよびCTAフィルム中の深度線量分布の実測値.

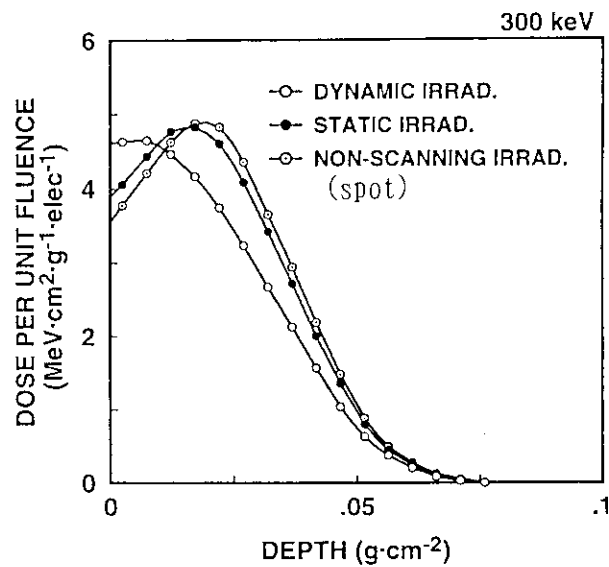


図2.9 静止(スポット), 静的および動的照射によるCTAフィルム中の深度線量分布の実測値.

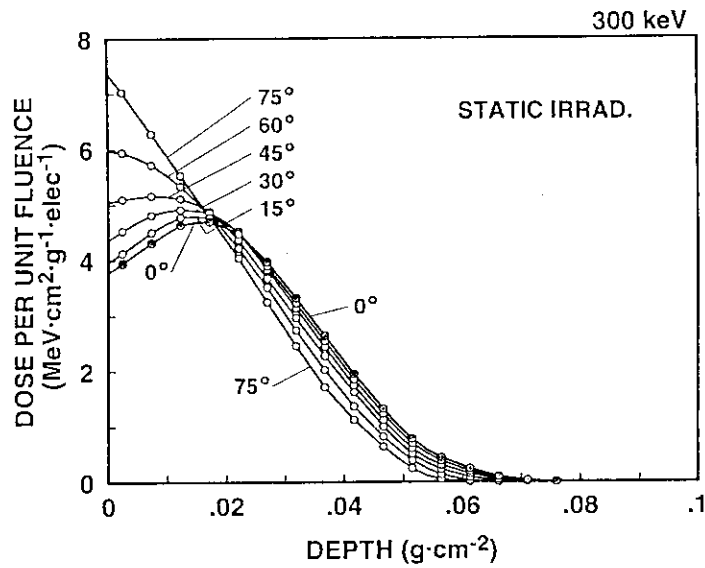


図 2.10 積層CTAフィルムを傾斜させて照射した場合の深度線量分布(静的照射).

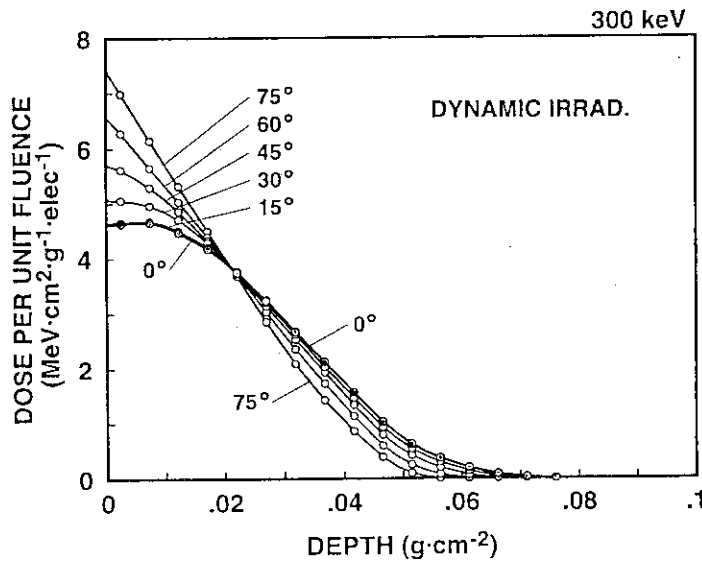


図 2.11 積層CTAフィルムを傾斜させて照射した場合の深度線量分布(動的照射).

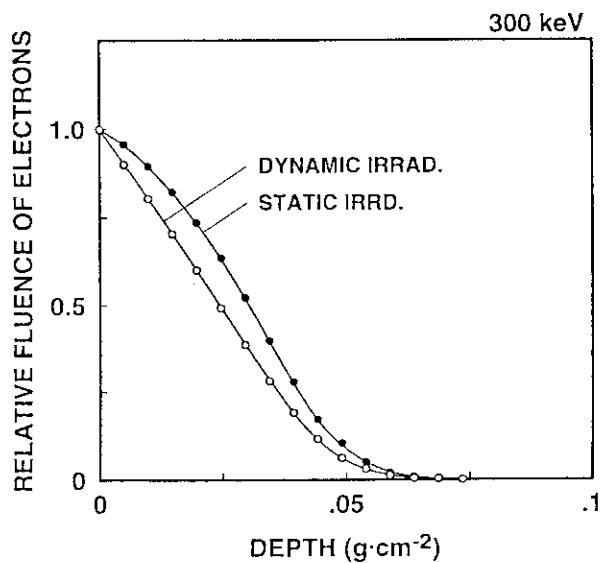


図2.12 静的および動的照射におけるCTA フィルムの深度透過電子数分布(相対値)

3. 吸収線量の計算評価法

3. 1 まえがき

電子線の物質中での散乱過程については、古くから多くの研究がなされており、その解析手法もかなり確立されている。その応用例として、電子線マイクロアナライザ (EPMA)、走査型電子顕微鏡 (SEM)、オージェ電子分光 (AES)、低速電子線回折 (LEED) など電子プローブを利用する場合から、高エネルギー電子加速器を用いた物質との相互作用に関する理論的研究まで広範囲にわたっている。これらの解析手法は、工業用電子線照射において正確な線量評価をする場合の照射窓や空気層での電子の吸収や散乱の影響を考慮のために有用な手段となる。

高速の電子が物質層を通過するときの主な素過程は、原子中の電子との衝突によるエネルギー損失、原子核の電場の制動作用によるエネルギー損失、同電場による弾性散乱である。物質層が比較的薄いときには、それぞれの素過程の積み重なった多重過程とみなし、他の素過程の影響を無視して解析的な式で表すことができる。しかし、物質層が厚くなると、各素過程相互の影響が無視できなくなるために、解析的に取り扱うことが困難になる。そこで、電子の厚い物質層中の通過を理論的に扱うには、輸送方程式の数値的解法、簡易解析模型による解法やモンテカルロ法が用いられる。

理論的には、本来、入射電子の物質中での振舞いは輸送方程式を解くことによって明らかにされるが、一般的な境界条件の下で、方程式を解析的に解くことは困難である。また、輸送方程式の数値的解法ではエネルギー損失のゆらぎを考慮に入れることが困難であり、離散化の誤差、繰り返し計算の収束性の問題などもあって、信頼できるアルゴリズムの作成は容易ではない。Zhou らのグループ [1, 2] は、電子線を直進成分と拡散成分に分ける 2 配分模型のもとで輸送方程式を解く方法を用いて、多層物質中の深度線量分布を計算した。

簡易解析模型による解法には、調節パラメータを使わない方法と、使う方法があり後者は特に半経験式と呼ばれる。前者は、多くの場合、その数値的結果が実験値を精度よく再現するところまでは行かない。後者は、経験式や半経験式、さらに、それらの組み合わせによって、電子の物質通過に関する種々の量を表すことができる。この方法は、実験あるいはモンテカルロ計算の結果をもとにして成り立っているため、第一原理から出発して電子の物質通過の振舞いを説明するための解析手段にはなり得ない。また、幾何学的条件が複雑な場合への適用が困難であるという欠点がある。しかし、結果を利用する実用的な問題を扱う段階では役に立つものであり、Tabata ら [3-5] は、この方法を用いて多層状物質中の深度線量分布を求める計算コード EDMULT を作成した。

一方、モンテカルロ法による電子の振る舞いの解析は、前述の方法と比較して境界条件等の取り方に大きな自由度があり、試料の形状、組成、さらには被照射体中の電磁界の存在等に対して簡単に拡張できる便利さを持っている。また、シミュレーショ

ン手法であることから、計算過程も直感的に理解でき、追跡している電子のエネルギー、エネルギー損失、空間的位置、進行方向等の多くの境界条件を設けることによって、一回の計算で種々の物理量の相互間の依存性を効率よく計算することができる。しかし反面、統計誤差の十分小さい結果を得るには、多数の電子を追跡する必要がある。計算時間がかかなり長くなる欠点がある。現在、エネルギー数 keV 以上の電子の物質通過を取り扱うモンテカルロ計算コードとしては、ETRAN [6, 7], ITS [8-10], EGS [11, 12] が知られており、今のところ精度のよい実験結果と同様に信頼できると考えられている。しかしながら、これらのコードは比較的規模の大きい計算機が必要である。

今日、工業用低エネルギー電子線照射が進展し、製品に対する照射計画、品質管理、開発研究等の観点から、各種形状の被照射体に対する正確な吸収線量分布を現場において評価することが要求されている。そのため、パソコンレベルでの計算評価法が検討され報告されるようになった [13]。一方、我々は低エネルギー電子線で有機薄膜を照射することから、村田ら [14-17] により数十 keV 以下の電子の軌道追跡の目的で開発された単一散乱モデルに基づいた軌道追跡法を参考として、モンテカルロ計算コードの作成を試みた。本アルゴリズムは、電子の平均自由行程ごとに散乱過程を取り入れた軌道追跡法であるため、薄層中の電子の振る舞いの解析に対して高精度の計算が可能であり、また、単純なアルゴリズムであるため物理的、電磁気学的境界条件の設定が容易で、かつプログラムも小型にできるために小規模な計算機での計算に適している。我々は、300 keV 前後の高速電子に適用するために弾性散乱および衝突阻止能の式に相対論的考慮を加え、工業用低エネルギー電子線照射における電子線量評価のための、簡易なモンテカルロ計算コードとした。本章では、その詳細について述べ、かつ、いくつかの実験結果との比較から本シミュレーション法の妥当性を示す [18, 19]。

3. 2 入射電子の振る舞い

高速の入射電子が原子と衝突すると、電子は原子内に侵入し、核の作るクーロンポテンシャルの影響を受ける。一般にこのポテンシャルは、周囲の殻電子による遮蔽効果により変形しているために、それらの衝突の過程は複雑である。しかし、電子の質量は核の質量に比べて非常に小さいために、原子内の電子の散乱過程では電子と核との間にエネルギーのやりとりはほとんどなく、この過程は弾性過程と見なせる。一方、入射電子と殻電子との衝突では両者が同一質量を持つ粒子であるため、衝突の際に入射エネルギーの一部が殻電子に移動したり、励起あるいは電離を引き起こす。そこで電子-原子衝突の第一近似としては、入射電子と原子核との衝突による弾性散乱過程と、殻電子との衝突でエネルギーを失う非弾性過程とに分離する必要がある (20-23)。

3. 2. 1 モデル化

物質に入射した電子は、構成元素と衝突を繰り返しながら、その方向を変えエネルギーを失っていく。このような電子の散乱過程を折線近似し、モデル化して図 3. 1に

示す。電子の軌跡を幾つかのステップに分割し、各ステップ毎に弾性散乱に基づく方向変化および非弾性散乱に基づくエネルギー損失を考える。ステップ長の取り方によって、電子の散乱の全行程を等分割するモデル [25]、数十回以上の衝突を受ける距離にする多重散乱モデル [6-12, 25, 26] 等があるが、ここでは電子の平均自由行程を用いた単一散乱モデルを使用する [14, 15]。電子の弾性散乱による散乱強度の角度依存性は、一般に Shrodinger の波動方程式を解くことによって求められるが、ここでは第一次 Born 近似を用いて解析的に簡単化された、Screened Rutheford の式を用いる [14]。また、エネルギー損失量には非弾性衝突毎に損失の過程を考慮する煩雑さをさけるために、連続的な減速近似 (CSDA: continuous slowing down approximation) モデルを使用する。本計算に必要な電子の軌跡の追跡、散乱後の位置、およびエネルギー損失量の計算について以下に述べる。

3. 2. 2 衝突断面積

原子との衝突によって θ 方向の単位立体角に散乱される電子の散乱強度 (衝突微分断面積) $d\sigma/d\Omega$ ($\text{cm}^2 \cdot \text{Sr}^{-1}$) には、量子力学的な近似計算式として、電子雲の影響を遮蔽パラメータ β_s によって考慮した Screened Rutheford の式を用いた (3. 1)。ただし、原子の質量が比較的大きい場合には非弾性衝突による方向変化は小さいが、質量が小さい場合には無視できないことを考慮し、殻電子による散乱も $Z = 1$ の散乱核が Z 個あると考えると、通常の計算 [15] では分子を Z^2 とするところを $Z(Z+1)$ とした。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{e^4 Z(Z+1)}{p^2 v^2 (1 - \cos \theta + 2\beta_s)^2} \quad (3. 1)$$

ここで、 Z は物質の原子番号、 e は電子の素電荷、 p は相対論を考慮した電子の運動量、 v は速度である。 p は (3. 2) 式で示される。

$$p = \frac{m_0 C}{(1/\beta^2 - 1)^{1/2}} \quad (3. 2)$$

$$\beta^2 = 1 - (1 + E_k/(m_0 C^2))^{-2} \quad (3. 3)$$

ここで、 m_0 は電子の静止質量、 C は光速、 E_k は電子の運動エネルギーである。遮蔽パラメータ β_s (Screening parameter) にはいくつかのモデルが提案されているが、Thomas-Fermi型のポテンシャルに基づいて Nigam らによって導かれた式 [27] を用いる。

$$\beta_s = \frac{1}{4} (1.12 \frac{h\lambda}{2\pi p})^2 \quad (3. 4)$$

$$\lambda = Z^{1/3} / 0.885 a_0 \quad (3. 5)$$

ここで、 h は Planck 定数、 a_0 は水素原子の Bohr 半径である。 $\beta_s = 0$ とすれば普通の Rutheford 散乱となる。

原子との衝突による電子の散乱角度は式 (3.1) を用いて、確率的に決定される。式 (3.1) を全立体角 ($0 \leq \theta \leq \pi$, $0 \leq \phi \leq 2\pi$) について積分すると、衝突全断面積 σ (cm^2) が得られる。直進する電子が σ の中に入ってくれば、いずれかの方向へ散乱する。

$$\sigma = \frac{\pi e^4 Z(Z+1)}{p^2 v^2 \beta_s (1 + \beta_s)} \quad (3.6)$$

式 (3.1) は第一次 Born 近似に基づいているため、数 keV 以下の電子エネルギーに対して、また質量の大きい原子に対する衝突では精度が悪くなる。Legendre 関数を用いて、電子の波動関数を角運動量ごとに部分波に展開する部分波展開法による、より厳密な取り扱いで数値計算を行って微分断面積を求める方法 (28, 29) や、Dirac の式から求めた mott の微分断面積を用いる方法 [30] もある。しかし、線量評価の対象は 300 keV 前後の高速電子であること、また解析する物質が主として有機物であり、構成要素が C, H, O, N 等の軽元素であるため、上述の厳密な取扱いを行う必要はなく、Screened Rutherford の微分断面積の式で十分よい近似が得られる。

複数の元素からなる化合物・混合物における弾性衝突については、どの原子と衝突したかによって衝突全断面積が異なり散乱角も変化する。しかし、物質層が厚く電子の透過過程が多重散乱と見なせる場合には、構成元素を重量濃度配分して得られる、実効原子番号 Z_{eff} 、実効原子量 A_{eff} の元素よりなる一様な物質として取り扱うことができる [31, 32]。

$$Z_{\text{eff}} = \sum n_i A_i Z_i / \sum n_i A_i, \quad (3.7)$$

$$A_{\text{eff}} = \sum n_i A_i Z_i / \sum n_i Z_i. \quad (3.8)$$

ここで、 n_i は成分元素の原子数比である。

本研究では、空気および CTA フィルムについて Z_{eff} 、 A_{eff} を用いた。式 (3.7)、(3.8) より求めた空気の Z_{eff} と A_{eff} は、それぞれ 7.37, 14.8, CTA フィルムではそれぞれ 6.67, 12.7 である。 Z_{eff} 、 A_{eff} については他の方法 [33, 34] も提案されているが、Tabata ら [32, 33] は深度線量分布曲線の計算結果から 10 MeV 以下の電子線に対しては上述の式の使用を推奨している。

化合物・混合物中の電子散乱に対する他の方法としては、まず、各元素の原子の衝突全断面積の比から乱数を用いて衝突する原子を決定した後、その原子の散乱角を求める方法もある [14]。しかし、通常の線量計算では電子の透過に対して物質層が厚いため、前述の方法で十分よい精度が得られる。物質層における電子の散乱が数回程度 (オリゴ散乱) の現象 (35) を取り扱う場合には原子毎の衝突を考慮する必要がある。

3.2.3 散乱角度

電子の散乱角度は、散乱微分断面積を用いて確率的に決定される。 σ の中に入った

電子が θ 方向への立体角 $d\Omega (= \sin\theta d\theta d\phi)$ に散乱される確率 $p(\theta) d\Omega$ は、次式で与えられる。

$$p(\theta) d\Omega = \left(\frac{d\sigma/d\Omega}{\sigma} \right) d\Omega \quad (3.9)$$

$p(\theta) \sin\theta d\theta$ の確率分布から散乱角 θ を決定するために、式(3.7)を角度 $0 \sim \theta$ まで積分して累積密度関数 $F(\theta)$ を求める。

$$F(\theta) = \frac{(1 + \beta_s)(1 - \cos\theta)}{1 - \cos\theta + 2\beta_s} \quad (0 \leq F(\theta) \leq 1) \quad (3.10)$$

式(3.8)を θ について解くと、散乱角 θ は $F(\theta)$ の関数として次式で表される。

$$\theta = \cos^{-1} \left(1 - \frac{2\beta_s F(\theta)}{1 - \beta_s - F(\theta)} \right) \quad (3.11)$$

式(3.9)の $F(\theta)$ の値として $[0, 1]$ の一樣乱数を代入すれば、式(3.6)に従った確率密度の散乱角 θ が得られる。 $d\Omega$ 中の $d\phi$ は電子の進行方向に対する周りの角度であるため、全方位一樣な確率で起こる。従って、 $R(\phi)$ の値に $[0, 1]$ の一樣乱数を用いて、散乱の方位角 ϕ は、

$$\phi = 2\pi R(\phi) \quad (3.12)$$

として決定できる。

3.2.4 ステップ長

電子が物質中を原子と衝突しながら進む1回当りの距離は一定ではなく、確率的に分布する。その平均距離を平均自由行程(mean free path) Λ と呼ぶが、均一物質中を進行する電子の Λ は、衝突全断面積 σ を用いて次式で与えられる[14]。

$$\Lambda = \frac{A}{N_a \rho \sigma} \quad (3.13)$$

ここで、 N_a はAvogadro数、 A は物質の原子量、 ρ は物質の密度である。

Λ をそのままステップ長 S とすることもできるが、ステップのゆらぎを考慮して可変ステップ長とする。2体衝突現象はポアソン過程であると仮定して、 S のとりうる確率 $p(S)$ は Λ を用いて次式で与えられる。

$$p(S) = \frac{1}{\Lambda} \exp \left(-\frac{S}{\Lambda} \right) \quad (3.14)$$

散乱角度決定の場合と同様に累積密度関数 $G(S)$ を求め、整理すると次式が得られる。

$$S = -\Lambda \ln(1 - G(S)) = -\Lambda \ln G'(S) \quad (3.15)$$

$G(S)$ あるいは $G'(S)$ に $[0, 1]$ の一様乱数を代入すればステップ長 S (cm) は決定できる [22].

3. 2. 5 散乱位置

散乱角, 方位角, ステップ長を用いて電子の散乱後の位置を求める. 深さ方向に z 軸, 試料表面上に X - Y 座標をとる. n 番目の散乱位置 (X_n, Y_n, Z_n) において, 衝突前方向 (θ_n, ϕ_n) に対し, (ω, ψ) の方向に散乱された場合, 散乱後の X, Y, Z 座標軸に対する方向 $(\theta_{n+1}, \phi_{n+1})$ はオイラーの関係によって次式で与えられる [22].

$$\cos \theta_{n+1} = \cos \theta_n \cos \omega - \sin \theta_n \sin \omega \cos \psi, \quad (3.16)$$

$$\sin \phi_{n+1} = A \sin \phi_n + B \cos \phi_n, \quad (3.17)$$

$$\cos \phi_{n+1} = A \cos \phi_n - B \sin \phi_n. \quad (3.18)$$

但し,

$$A = \frac{\cos \omega - \cos \theta_n \cos \theta_{n+1}}{\sin \theta_n \sin \theta_{n+1}}, \quad (3.19)$$

$$B = \frac{\sin \phi \sin \omega}{\sin \theta_{n+1}}. \quad (3.20)$$

式 (3.16) ~ 式 (3.20) およびステップ長 S_{n+1} を用いて, 次の電子の散乱位置 $(X_{n+1}, Y_{n+1}, Z_{n+1})$ は次式で求められる.

$$x_{n+1} = x_n + S_{n+1} \sin \theta_{n+1} \cos \phi_{n+1}, \quad (3.21)$$

$$y_{n+1} = y_n + S_{n+1} \sin \theta_{n+1} \sin \phi_{n+1}, \quad (3.22)$$

$$z_{n+1} = z_n + S_{n+1} \cos \theta_{n+1}. \quad (3.23)$$

3. 2. 6 初期入射位置

初期エネルギーを持った電子の最初の入射位置を指定する. 電子加速器の照射窓の真空側を, Z 軸の原点 ($Z = 0$) として電子の入射面とすると, 入射面上の電子の初期入射位置 (X_0, Y_0, Z_0) は次式で求められる.

$$x_0 = a(2R(\alpha)-1), \quad (3.24)$$

$$y_0 = b(2R(\beta)-1), \quad (3.25)$$

$$z_0 = 0. \quad (3.26)$$

ここで, a, b はビーム幅の $1/2$ である. 走査型の場合には $a = b$ として, $x^2 + y^2 \leq a^2$ を満足する x, y を用いる. $R(\alpha), R(\beta)$ の値として $[0, 1]$ の一様乱数を用いる.

円形断面の電子ビームの場合には, 初期入射電子の密度分布に 2 次元ガウス分布を

用いる方法もある。しかし、工業用電子線照射装置ではスパイラル型フィラメント等が使用されており、実際の照射窓面における電子密度は複雑な分布をしている。また、低エネルギー電子線は物質中における散乱が大きいいため、特にこの方法による利点はなく前述の均一な電子密度の式で十分な精度が得られる。

3.2.7 エネルギー損失

入射電子は、物質層を走行する間に物質構成原子の電子との非弾性散乱によって自身のエネルギーを失い、徐々に減速する。この非弾性散乱の素過程には、電離及び励起、体積プラズモン、表面プラズモン、フォノンの励起等多くの種類がある [36, 37]。基本的にはこれら全てのエネルギー損失機構の確率とそれぞれの損失エネルギーを知る事によって電子の受けるエネルギー損失と分布が得られるが、それらは非常に複雑であり、個々の過程を厳密に考慮するのは困難である。従って本来離散的に生起する多様な素過程を連続的かつ平均的なものとして近似する。エネルギーの損失には単位距離当りの平均エネルギー損失量 dE/dx ($\text{keV}\cdot\text{cm}^{-1}$) を与える Bethe の相対論を考慮した式 [38] を用いた。

$$\frac{dE}{dx} = \frac{2\pi e^4 N_a \rho Z}{m_0 v^2 A} \left(\ln \frac{m_0 v^2 E}{2I^2(1+\beta)} - (2\sqrt{1-\beta^2} - 1 + \beta^2) \ln 2 + 1 - \beta^2 + \frac{1}{8}(1 - \sqrt{1-\beta^2}) + \delta \right) . \quad (3.27)$$

ここで、 I は平均電離エネルギー (keV)、 δ は密度効果の補正項 [39] である。但し、 δ については、中エネルギー領域になって顕著になるために低エネルギーを対象とする本計算では省略する。式 (3.27) は量子力学的な考察から導出されたものであるが、最終的な結果においては調節パラメータ I が導入されている。 I には、いくつかの経験式 (25) が提案されているが、Berger-Seltzer がプロトンを用いた実験から求めた次式がよく使用される [40]。

$$I = (9.76Z + 58.8Z - 0.19) \times 10^{-3} \quad (Z \geq 13) . \quad (3.28)$$

精度の高い I の値としては、ICRU report 37 の数値表等 [41, 42] がある。本計算では、解析する対象が主として軽元素から構成される混合物や化合物であることを考慮して、同数値表の計算に使用された EPSTAR [43] による I 値を用いる。同コードにより求めた空気および CTA の計算値 I は、それぞれ 0.0857, 0.0784 keV である。

物質中で散逸したエネルギーのうち、一部は制動放射によって X 線に変換されるが、その割合 (放射効率) は、300 keV 電子線を物質 Fe へ入射した場合には 0.95 % 以下である。実用的な照射条件での放射効率は Fe 基板の場合は 0.7 %, 有機材料の場合は 0.2 % 以下である [32]。低エネルギー領域の電子線による制動放射 X 線および 2 次電子の吸収線量に与える影響は小さいために、ここではそれらを省略する。

物質中の任意点での電子エネルギーを E_n とすると、ステップ長 S_n 進んだ時のエ

エネルギー E_{n+1} は次式で求められる [22].

$$E_{n+1} = E_n - \int_0^{S_n} \left[\frac{dE}{dx} \right]_{E(x)} \cdot dx \quad (3.29)$$

電子が S_n 進む間はエネルギー損失が一定と考えると、式 (3.29) は次式で近似できる。

$$E_{n+1} = E_n - \left[\frac{dE}{dx} \right]_{E=E_n} \cdot S_n \quad (3.30)$$

ステップ長決定の場合と同様にエネルギー損失のゆらぎを考慮するため、累積密度関数 $H(E)$ を求め、整理すると次式が得られる。

$$E = -E_{n+1} \ln(1 - H(E)) = -E_{n+1} \ln H'(E) \quad (3.31)$$

$H(E)$ あるいは $H'(E)$ に $[0, 1]$ の一様乱数を代入すればエネルギー損失 E (keV) が決定できる。

本研究の一部として、エネルギー損失のゆらぎを、Landau 分布 [44, 45] を用いた計算を試みた [46] が十分ではなく、本研究領域に限定した計算条件のもとでは、上述の方法で十分よい結果が得られた。

3.2.8 シミュレーションプログラム

前項までに記述した式をもとにして、実際のプログラムによる計算順序を次に示す。

- ① シミュレーションする幾何学的な配置と物質の性質を定義する。
- ② 入射電子の初期エネルギー、位置、角度を設定する。
- ③ ステップ長を計算する。式 (3.4) ~ (3.6), (3.13), (3.15)
- ④ 散乱角度を計算する。式 (3.11), (3.12)
- ⑤ 1 ステップ進んだ点での位置を求める。式 (3.16) ~ (3.23)
- ⑥ 阻止能を求める。式 (3.27)
- ⑦ 1 ステップ間のエネルギー損失を計算する。式 (3.31)
- ⑧ 電子の状態をチェックして、散乱を続けるときは③へ、計算終了条件を満たしているときは⑨へ。
- ⑨ 統計的に必要な電子数だけ、②~⑧を繰り返す。

以上の主プログラムに、位置の関数としてエネルギー損失量の蓄積を行う等の情報を計算するプログラムを追加して実際のシミュレーションプログラムを構成する。

なお、本計算法では乱数の性質が計算結果に影響を与え、乱数発生方式が計算時間を左右するため、統計学的一様性が保証され、かつ使用するコンピュータに適応した疑似乱数を用いた [47-49]。

3. 3 計算値の妥当性の評価

本モデルによって作成したプログラム(以下本コードという)による計算値の妥当性を検討した結果を示す。計算には、本コードの大型コンピュータ(FACOM VP-50E, 富士通)による計算値と、パソコン(PC-H98 U90, NEC)による計算値の間に実用上の精度に差異がないことを確認した後、パソコンで行った[50-52]。乱数には、高品位な疑似乱数発生法として提案されている計算サブコード(49)を用いた。計算打ち切りエネルギーは1 keVとした。この値はAndreoらがITSによって求めた、0.1~100 MeV電子線の基本物質に対する数値表(53)で用いた計算打ち切りエネルギー(初期エネルギーの5%)よりも十分に小さい。計算値は30000個の電子の軌道追跡を行った後、スムージングを行って求めた。

3. 3. 1 深度線量分布

平行平面状の電子ビームが一様半無限物質に入射したとき、深さ z における単位フルエンス当りの吸収線量 $D(z)$ は、点状線源から一方向に放出されたビーム(ペンシルビーム)が半無限物質に垂直に入射したとき、深さ z のところの全面積にわたって、入射電子1個当り単位質量厚み当りに吸収されるエネルギーに等しい。この相反関係から、カーテン状の電子ビームを発生する無走査型電子加速器あるいは掃引角度のあまり大きくない走査型電子加速器とコンベアを使用して電子を平行平面ビームに近い状態で照射する場合の深度線量分布は、ペンシルビームとして数値計算を行うことから得ることができる[54, 55]。

単一物質における深度線量分布の計算結果を、代表的な金属(Al)と有機物(ポリスチレン)について図3.2に示す。ここでAlの314 keVと521 keVにおける○印およびポリスチレンの400 keVの●印は、それぞれLockwoodら[56]およびMcLaughlinら[57]による実測値である。また、200 keVの○印はAndreoらによって報告されたITSによる計算値[53]をプロットしたものである。実線は、本コードによる計算値で、200~521 keVの範囲で単一物質に対する実測値とよく一致している。

工業用低エネルギー電子線照射では、一般的に被照射体は空気中に置かれている。従って、電子の透過と吸収に対する物質層は照射窓-空気層-被照射体から構成される多層となり、単一物質層の場合と深度線量分布の様相が異なる。そこで本計算法の妥当性を確認するために、実際に電子線照射を行って得られた実測値と、同じ条件を設定して求めた計算値を比較した。実測に用いた照射装置、条件等は前章と同じであり、照射窓の材質はTi(厚さ30 μ m)、室温(20°C)、常圧、空気中における照射である。図3.3は、初期エネルギー300 keV、ビーム電流0.4 mAで、照射窓から10 cmの距離に置いた積層CTAフィルム中の深度線量分布の実測値(丸印)と計算値(実線)を比較したものである。積層フィルムをコンベアを用いて移動させた場合(動的照射)と移動させない場合(静的照射)の深度線量分布について実測と計算値は、極表面層を除いてよく一致している。動的と静的照射における深度線量分布の形の相異については第4

章で、極表面における相異については、被照射体の帯電に関係しているために第5章で、それぞれ議論する。

図3.4は、初期エネルギー 300 keV, ビーム電流 0.025 mAで、照射窓とフィルム間の距離を 5, 10, 15, 20 cm と変化させたときの、動的照射の場合の積層 CTA フィルム中の深度線量分布について実測値(丸印)と計算値(実線)を比較したものである。計算値と実測値はよく一致している。空気層が増大するに従って、深度線量分布曲線は表面側に平行移動すること、したがって深度線量分布のピーク値はフィルム表面から消えてしまうことが分かる。

3.3.2 空気層による電子エネルギーの低下

図3.5は、動的照射において照射窓からの距離を 0, 5, 10, 15, 20 cm と変化させたときの CTAフィルム表面に入射する電子のエネルギースペクトル(計算値)である。また、図3.5から得られたそれぞれの最多エネルギーと平均エネルギーの値を、照射窓からの距離の関数として図3.6に示した(動的照射—●—実線, 静的照射—点線)。一方、Okabe らが同様な系で 300 keV 電子線を半導体検出器と 400 チャンネル波高分析器により実測した、空気層の厚さを変えたときの最多および平均エネルギーの値を文献[58]より採録して○印で示した。いずれの場合でも、空気層の増加と共にエネルギー損失が増大するために、被照射体表面における最多および平均エネルギーは低下することが、計算値と実測値はわかり両者はよく一致している。

3.3.3 平面における吸収線量分布

図3.7は、窓下 10cm の距離に半無限厚さの CTA および Fe 基材を設置し、その上に置いた、CTA フィルム(厚さ 38 μ m)中のビーム走査と垂直な方向の平面における動的照射の場合の吸収線量分布の計算値(実線)と実測値(丸印)を示した。ここでは、基材として、厚板が得られる PMMA 平板(厚さ 2 cm)を CTA 基材の代わりに使用した。PMMA 基材上の CTA の最大吸収線量を 1 とした相対値で吸収線量分布を示した。電子密度の大きい Fe 基材の上に置いたフィルムの方が、後方散乱電子の影響を大きく受けて吸収線量が増大していること、平面における吸収線量の分布について、計算値と実測値はよく一致していることがわかる。

3.3.4 吸収線量分布における中心部の平滑化

ビーム中心から左右 5 cm の位置に CTA フィルム面に対して Pb 板(高さ 5 cm)を垂直に置き、照射装置の構造物(Fe)に接続して CTA フィルムを囲んだ状態で電子線を照射した。線量分布の中心部の平坦化を図るために図3.8で示すように薄いステンレス(SUS)板(高さ 1.5 cm)を1枚または2枚フィルム面から 3.5 cm の高さに置いて照射した場合の、吸収線量分布の計算値(実線)と実測値を示す。ここで、SUS 板を用いない場合(○), ビーム中心の位置にSUS 板(厚さ 1 mm)を置いた場合(◎), 左右 0.75

cm の位置に SUS 板 (厚さ 0.5 mm) を 2 枚置いた場合 (●) を示した. SUS 板を使用した場合, 吸収線量分布の中心部が低下し, 両端部がやや増加して均一化する, また SUS 板 2 枚の方がより平滑化していることが分かる. このような場合でも, 計算値と実測値はよく一致している. 薄い SUS 板をビーム進行方向に置くことによって吸収線量が減少するのは, 電子ビームの進行方向に対して電子ビーム中に斜め入射成分が多く, これらが SUS 板で遮蔽されたことを示している.

3. 4 CTA フィルムの衝突断面積, 阻止能, 平均自由行程, 飛程

前節の結果は, 300 keV 前後の低エネルギー領域では本コードを用いて十分精度よく計算できることを示した. ここでは, CTA フィルムの低エネルギー電子線に対する上記因子を計算した, 比較のために, 一般的な各種物質に関して得られた計算値も示した. 電子ビームは, 無限大厚さの単一物質に入射するとして計算した. 図 3.9 中の PS はポリスチレンを示し他は各種の金属である. 一般的に σ の値は 電子エネルギーが低下すると 200 keV 以下で増加を始め, 50 keV 以下で急激に増大することがわかる.

質量衝突阻止能 S/ρ とエネルギーの関係を図 3.10 に示す. 電子エネルギー 100 keV 以下で S/ρ は急速に増大する. S/ρ は CTA フィルム線量計を用いて得られた値を用いて, 他の物質中の吸収線量を評価するために必要である. 各種物質中の確率的ゆらぎを考慮しない場合, すなわち式 (3.13) で与えられる平均自由行程 Λ とエネルギーの関係を図 3.11 に示す. ここで, 空気の場合のみ単位は mm である. エネルギーが小さくなるに従って Λ は小さくなるが, 低原子番号の物質ほど減少の割合は大きい. 300 keV 程度の低エネルギー電子線の有機物質中における Λ は, 0.5~0.7 μm 程度であることが分かる.

入射電子がエネルギーを失い停止するまでに物質中を進む距離 (連続減速近似 (CSDA) 飛程) を図 3.12 に示す. ここで, 空気の場合のみ単位は m である. 入射電子が平均自由行程ごとに散乱を繰り返しながら, エネルギーを失っていくと仮定した場合の, 300 keV 電子の各種物質中における残余エネルギーと累積散乱回数の関係を図 3.13 に示す. 物質中で初期エネルギー 300 keV の電子が, そのエネルギー低下と共に累積散乱回数は急速に増加する.

以上いずれの場合でも, CTA の低エネルギー電子線に対する各種の計算結果はポリスチレンとよく似ており, CTA フィルムは他の有機物の線量評価のための代表として用いることができる.

3. 5 結論

低エネルギー電子線の単一散乱モデルに相対論を考慮した電子線量評価用計算コードを開発し, コードの有効性, 妥当性を検討した. 本章におけるそれらの結果を要約して以下に示す.

(1) 電子の散乱過程を Screened Rutherford の式による弾性散乱と, Bethe の阻止

能によるエネルギー損失の組み合わせで記述し、電子線量評価用の簡単なモンテカルロ計算コードを開発した。

- (2) 照射装置から放射された 300 keV 電子線に対して、CTA フィルム中に入射した電子による深度線量分布の計算値は、CTA フィルム線量計による実測値とよい一致を示した。但し、深度線量分布の極表面層においてのみ、計算値と実測値に差が認められた。
- (3) 空気層が増減した場合の CTA フィルムに入射する電子のエネルギー、およびフィルムの平面方向の吸収線量分布についても、計算値は実測値とよい一致を示した。
- (4) 各種の代表的な物質層に対する低エネルギー電子線の透過、散乱の程度を計算し、線量評価のための基礎データを蓄積した。
- (5) CTA フィルムの電子に対する性質はポリスチレンと同様であり、線量評価のための代表として使用できることを示した。

参 考 文 献

- [1] Zhou Yong, Zhou Youyi and Luo Zhengming: "Measurements and calculations of absorbed dose in electron beam radiation processing", Radiat. Phys. Chem. 42 (4-6), pp. 817-820 (1993).
- [2] An Zhu, Hou Qing, Zhou Yong and Luo Zhengming: "Calculation of the dose distribution of 0.3 MeV electron in multilayer media", RadTech Asia '93 Conf. Proc., pp. 580-583, RadTech Jpn. Organizing Committee, Tokyo (1993).
- [3] Tabata T. and Ito R. : "An algorithm for the energy deposition by fast electrons", Nucl. Sci. Eng., 53, pp. 226-239 (1974).
- [4] Tabata T. and Ito R.: "An algorithm for electron depth-dose distributions in multilayer slab absorbers", Jpn. J. Appl. Phys., 20, pp. 249-258 (1981).
- [5] RSIC: "EDMULT 3.11 MICRO : Electron depth-dose distributions in multilayer slab absorbers", Computer Code Collection CCC-430, Radiation Shielding Information Center, Oak Ridge Natl. Lab. (1992).
- [6] RSIC: "ETRAN: Monte Carlo code system for electron and photon transport", Computer Code Collection CCC-107, Radiation Shielding Information Center, Oak Ridge Natl. Lab. (1969).
- [7] Seltzer S. M. : "An overview of ETRAN Monte Carlo methods", eds. Jenkins T. M., Nelson W. R. and Rindi A., Monte Carlo Transport of Electrons and Photons, pp. 153-181, Plenum, New York (1988).

- [8] Halbleib J. A. and Mehlhorn T. A. : "ITS: The Integrated TIGER Series of coupled electron/photon Monte Carlo transport codes", Nucl. Sci. Eng., 92, pp. 338 (1986).
- [9] Halbleib J. A. : "Structure and operation of the ITS code system", eds. Jenkins T. M., Nelson W. R. and Rindi A., Monte Carlo Transport of Electrons and Photons, pp. 249-262, Plenum, New York (1988).
- [10] Halbleib J. A., Kensek R. P., Mehlhorn T. A., Valdez G., Seltzer S. M. and Berger M. J. : "ITS Version 3.0: The Integrated TIGER series of coupled electron/photon Monte Carlo transport codes", Report SAND 91-1634, Sandia Natl. Lab. (1992).
- [11] Nelson W. R., Hirayama H. and Rogers D. W. O. : "The EGS4 code system", SLAC Rep. 265, Stanford Linear Accelerator (1985).
- [12] Nelson W. R. and Rogers D. W. O. : "Structure and operation of the EGS4 code system", eds. Jenkins T. M., Nelson W. R. and Rindi A., Monte Carlo Transport of Electrons and Photons, pp. 287, Plenum, New York (1988).
- [13] Myers B. R. : "An Electron beam dose program for personal computers", RadTech North America '94, Conf. Proceedings, 2, pp. 150-155 (1994).
- [14] Murata K., Matsukawa T. and Shimizu R. : "Monte Carlo calculation on electron scattering in a solid target", Jan. J. Appl. Phys., 10 (6), pp. 678-686 (1971).
- [15] Murata K. : "Spatial distribution of backscattered electrons in the scanning electron microscope and electron microprobe", J. Appl. Phys., 45, pp. 4410-4417 (1974).
- [16] 村田顕二: "EPMAによる薄膜の定量分析", 表面, 12 (6), pp. 329-336 (1981).
- [17] 篠田軍治: "ビームアナリシスによる薄膜, 表面の組成", 応用物理, 43 (4), pp. 310-323 (1974).
- [18] Kijima T., Kotera M., Suga H. and Nakase Y. : "Monte Carlo calculations on the passage of electrons through thin films irradiated by 300 keV electrons", IEICE Trans. Elect., E78-C (5), pp. 557-563 (1995).
- [19] Kijima T. and Nakase Y. : "Monte Carlo calculations of the behavior of 300 keV electrons from accelerators", Radiat. Measurem., 26 (2), pp. 159-168 (1996).
- [20] 野村英一: "電子ビームリソグラフィに関する基礎的研究", 大阪府立大学博士論文 (1981).
- [21] 小寺正敏: "1~数10 keVの入射電子線の固体中での振る舞いに関する研究", 大阪府立大学博士論文 (1982).
- [22] 村田顕二: "モンテカルロ法の分析化学への応用", ぶんせき, 2, pp. 87-94 (1981).

- [23] 村田顕二: "モンテカルロ法の表面分析への応用", 化学の領域, 36, 8, pp. 549 (1982).
- [24] Curgenven L. and Duncumb P. : "Simulation of electron trajectories in a solid target by a simple Monte Carlo technique", T. I. Report No. 303, Tube Investments Res. Lab., Hinxton, Essex, England (1971).
- [25] Shimizu R., Honji M. and Murata K. : "Investigation of energy dissipation of electrons in Al- and Cu-targets by Monte Carlo method", Jpn. J. Appl. Phys., 9 (11), pp. 1291-1296 (1970).
- [26] Shimizu R. and Murata K. : "Monte Carlo calculations of the electron-sample interactions in the scanning electron microscope", J. Appl. Phys., 42 (1), pp. 387-394 (1971).
- [27] Nigam B. P., Sundaresan M. K. and Wu Ta-You: "Theory of multiple scattering: second born approximation and corrections to Moliere's work", Phys. Rev., 115 (3), pp. 491-502 (1959).
- [28] Ichimura S., Aratama M. and Shimizu R. : "Monte Carlo calculation approach to quantitative auger electron spectroscopy", J. Appl. Phys., 51 (5), pp. 2853-2860 (1980).
- [29] Kotera M., Murata K. and Nagami K. : "Monte Carlo simulation of 1-10-keV electron scattering in a gold target", J. Appl. Phys., 52 (2), pp. 997-1003 (1981).
- [30] 小寺正敏: "電子-固体相互作用 (2) 走査電子顕微鏡像の理論解析", 表面科学, 11 (9), pp. 11-17 (1990).
- [31] Rao B. N. S. : "A simple formula for the transmission and absorption of monoenergetic Electrons", Nucl. Instrum. Methods, 44 (1), pp. 155-156 (1966).
- [32] 放射線照射振興協会編: "工業照射用の電子線量計測", 丸善 (1990).
- [33] Tabata T., Ito R., Kuriyama I. and Moriuchi Y. : "Simple method of evaluating absorbed dose in electron-beam processing", Radiat. Phys. Chem., 33 (5), pp. 411-416 (1989).
- [34] Tabata T., Andreo P., Shinoda k. and Ito R. : "Energy deposition through radiative processes in absorbers irradiated by electron beams", Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., B 93, pp. 447-456 (1994).
- [35] Danilatos G. D. : "Foundations of environmental scanning electron microscopy", Advances in electronics and electron physics, 71, pp. 109-248.
- [36] 中井洋太: "低エネルギー電子による固体の励起-主としてプラズマ励起について-", 物理学会誌, 26 (7), pp. 486-502 (1971).
- [37] 岡部茂, 多幡達夫, 中井洋太: "10 eV~数十MeVのエネルギー領域における電子と物質との相互作用", 応用物理, 45 (1), pp. 2-17 (1976).

- [38] Bethe H. A. : "Quantenmechanik der ein- und zwei- elektroneprobleme", Handbuch der Physik, 24, Part 1, pp. 273-560 (Bethe stopping-power formula: pp. 491), Verlag Julius Spriger, Berlin (1933).
- [39] Sternheimer R. M. and Peierls R. F. : "General expression for the density effect for the ionization loss of charged particles", Phys. Rev. B, 3(11), pp. 3681-3692 (1971).
- [40] Berger M. J. and Seltzer S. M. : "Tables of energy losses and ranges of electrons and positrons, in studies in penetration of charged particles in matter", Nuclear Science Series Report No. 39, NAS-NRC Publication. No. 1133, pp. 205, National Academy of Science-National Research Council, Washington D. C. (1964).
- [41] Berger M. J. and Seltzer S. M. : "Stopping powers and ranges of electrons and positrons (2nd Ed.)", NBSIR 82-2550-A, National Bureau of Standards, Washington D. C. (1983).
- [42] ICRU: "stopping powers for electrons and positrons", ICRU Report 37, Bethesda, Md., U. S. A. (1984).
- [43] Seltzer S. M. : "EPSTAR: NIST Electron and positron stopping powers and ranges data-base Version 2.0", NIST Standard Reference Database 7, Md., U. S. A. (1989).
- [44] Henoc J. and Maurice F. : "Characteristics of a monte carlo program for microanalysis study of energy loss", National Bureau of Standards Special Publication 460, pp. 61-95 (1976). Proceedings of a workshop on the use of monte carlo calculations in electron probe microanalysis and scanning electron microscopy held at NBS., Gaithersburg, Maryland, Oct. 1-3, 1975
- [45] 伊藤憲昭: "最新応用物理学シリーズ 4 放射線物性 1", 森北出版 (1981).
- [46] 来島利幸, 戸田俊之, 小寺正敏, 菅博: "高速電子のモンテカルロシミュレーション", 平3電気関係学会関西連合大会講論, G10-3, pp. G290, 京都 (1991).
- [47] James F. : "A review of pseudorandom number generators", Comput. Phys. Commun., 60, pp. 329-344 (1990).
- [48] 宮村修, 牧村純: "ベクトル化乱数発生プログラム", 阪大大型計算機センターニュース, 19, 3, pp. 39-46 (1989).
- [49] 日本コンピュータ協会編: "計算機のための数値計算法", pp. 265-275, 科学技術出版社 (1978).
- [50] Kijima T., Suga H. and Nakase Y. : "Depth-dose distributions in a thin-layer absorber irradiated by 300-keV electrons", Appl. Radiat. Isot., 45(7), pp. 759-765 (1994).

- [51] Kijima T., Nakato K. and Nakase Y.: "Electron beam dosimetry for a thin layer absorber irradiated by 300-keV electrons", JAERI-Review 95-002, pp. 44-47, Japan Atom. Ener. Res. Inst. (1995).
- [52] Kijima T., Nakase Y. and Nakato K.: "Simulation of the absorbed dose in thin films irradiated by 300-keV electrons", JAERI-Review 95-015, pp. 54-58, Japan Atom. Ener. Res. Inst. (1995).
- [53] Andeo P., Ito R. and Tabata T.: "Tables of charge- and energy-deposition distributions in Elemental materials irradiated by plane-plallal electron beams with energies between 0.1 and 100 MeV", Report RIAST-UOP-TR 1, Res. Inst. Adv. Sci. Tech., Univ. Osaka Prefect. (1992).
- [54] 多幡達夫: "電子の物質通過, 計測と利用のための基礎データ (1)", ESI-NEWS, 6 (123), pp. 1-7, (1988).
- [55] 多幡達夫: "電子の物質通過, 計測と利用のための基礎データ (2)", *ibid.*, 6 (164), pp. 1-7, (1988).
- [56] Lookwood G. J., Roggles G. H., Miller G. H. and Halbleib J. A.: "Calorimetric measurement of electron energy deposition in extended media: Theory vs experiment", Sandia Labs. Rep., SAND 79-0414, Albuquerque, NM (1980).
- [57] McLaughlin W. L. and Hussmann E. K.: "The measurement of electron and gamma-ray dose distributions in various media. utilization of large radiation sources and accelerators in Industrial processing", Proc. of Symp., Munich, 1969, IAEA STI/PUB/236, International Atomic Energy Agency, Vienna (1969).
- [58] 岡部茂, 津守邦彦, 多幡達夫, 吉田俊男, 永井昭男, 広三寿, 石田国彦, 坂本勇, 河合禎, 荒川和男, 井上崇, 村上知之: "電子線吸収線量の算出と測定-300 keV電子線加速器の場合-", 応用物理, 43, 9, pp. 909-918 (1974)

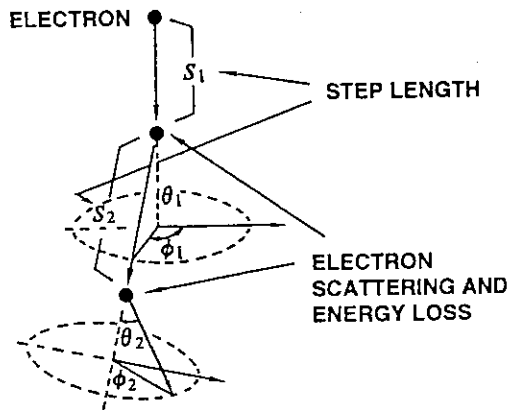


図 3.1 単一散乱モデル.

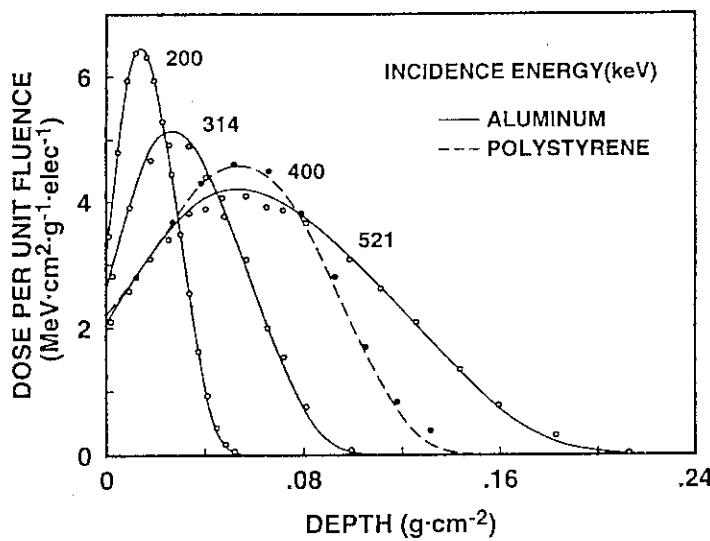
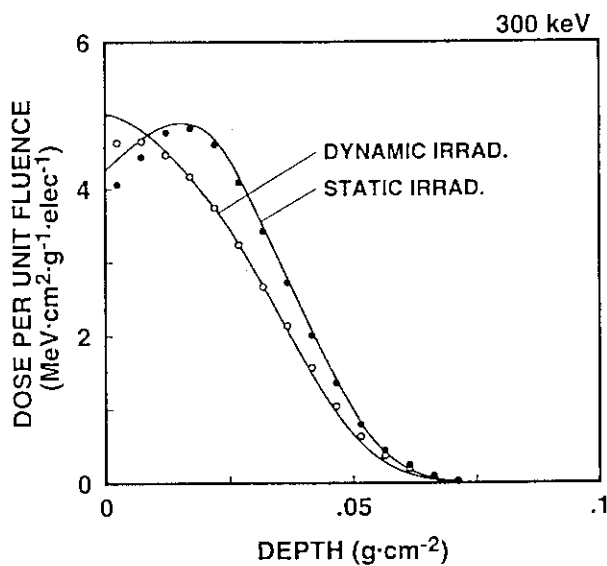
図 3.2 各種の初期エネルギー電子線に対する, 単層半無限長アルミニウム(○)と同ポリスチレン(●)中の深度線量分布の文献値^(55,58,59)と計算値(実線および点線).

図 3.3 照射窓から10 cmの距離に置いた積層CTAフィルム中の, 静的および動的照射の場合の深度線量分布の実測値(丸印)と計算値(実線).

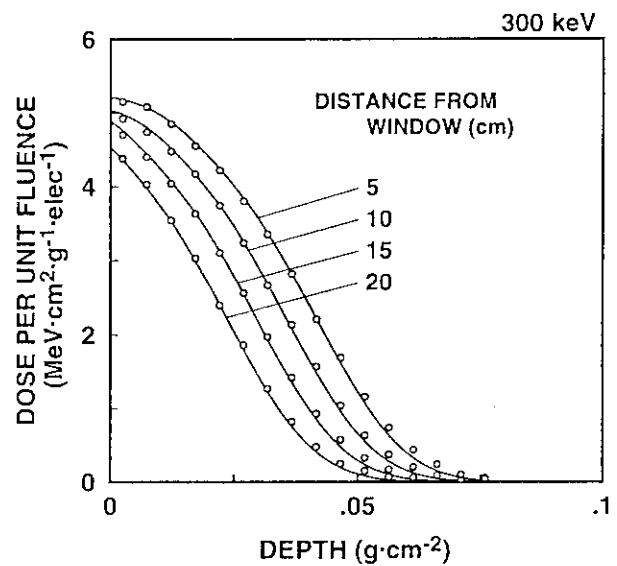


図 3.4 照射窓から5, 10, 15, 20 cmの距離に置いた積層CTAフィルム中の, 動的照射の場合の深度線量分布の実測値(丸印)と計算値(実線).

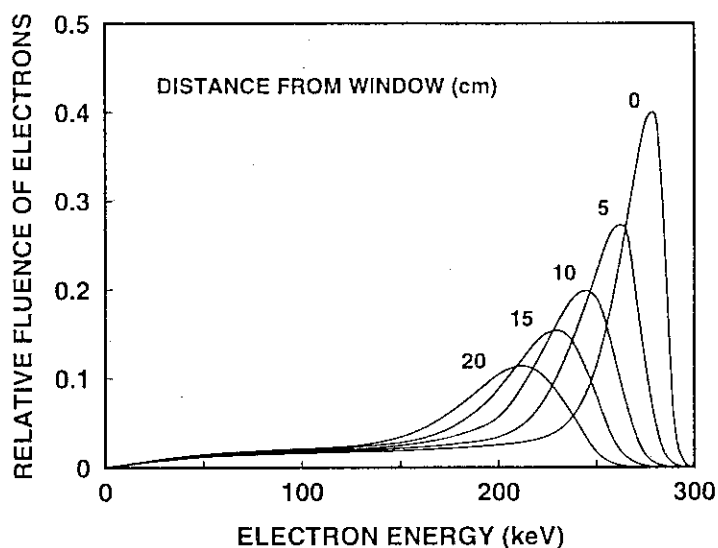


図 3.5 照射窓から 0, 5, 10, 15, 20 cm の距離に置いた積層 CTA フィルム表面に入射する電子のエネルギースペクトル。

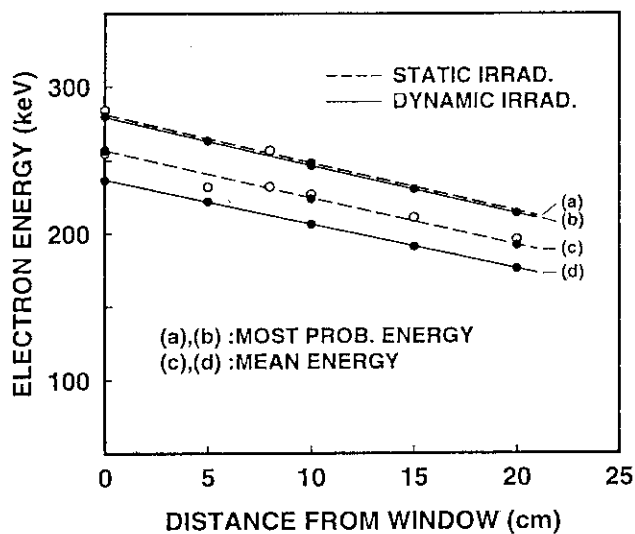


図 3.6 照射窓から 0, 5, 10, 15, 20 cm の距離に置いた積層 CTA フィルム表面に入射する電子の最多エネルギーおよび平均エネルギー。

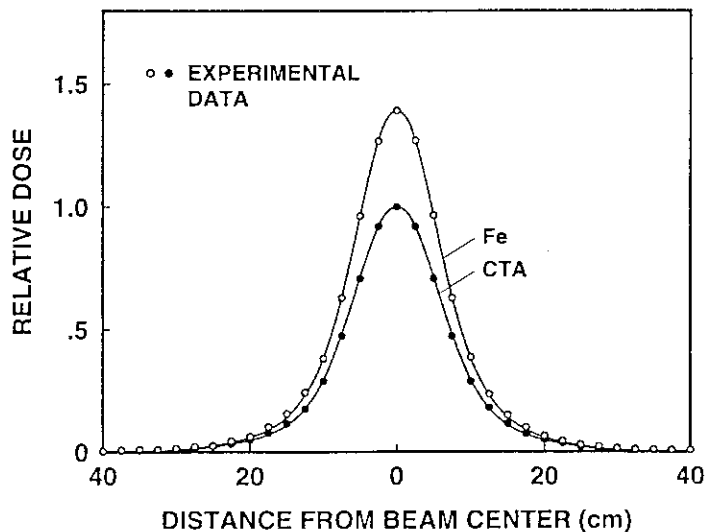


図 3.7 照射窓から 10 cm の距離に置いた、半無限厚さの CTA および Fe 基材上の CTA フィルムのビーム走査と垂直な方向の吸収線量分布。

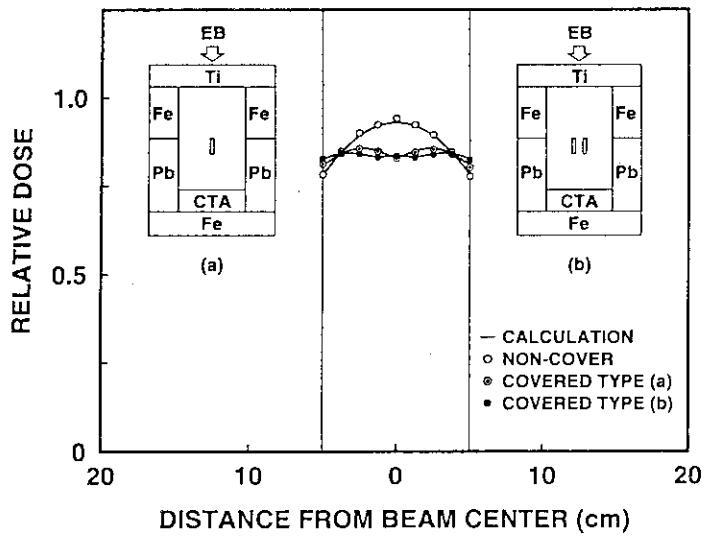


図 3.8 照射窓から10 cmの距離に置いた、半無限厚さのFe基材上のCTAフィルムのビーム走査と垂直な方向の吸収線量分布。(散乱および遮蔽体を用いて照射した場合)

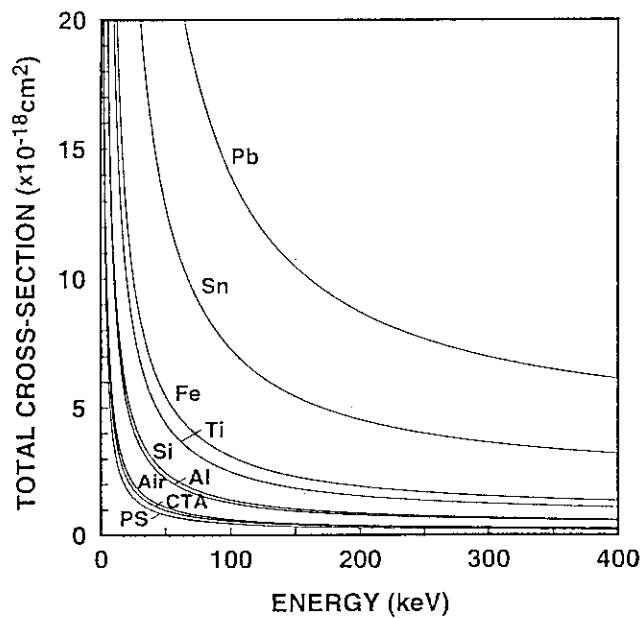


図 3.9 各種物質に対する全衝突断面積とエネルギーの関係。

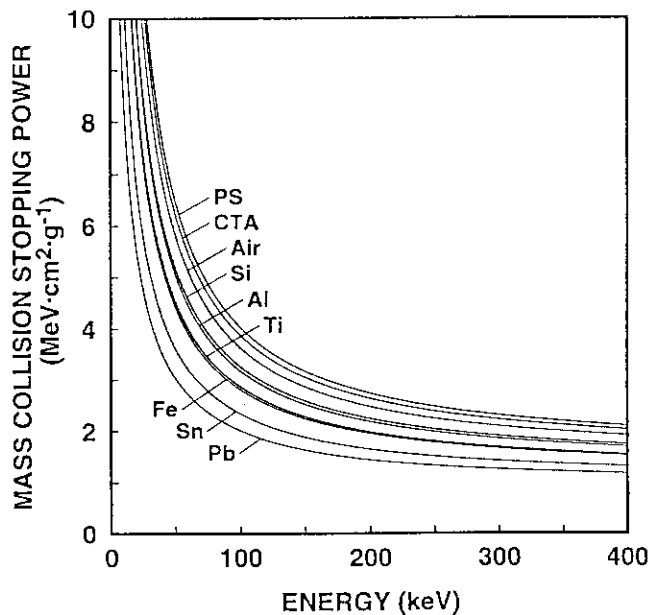


図 3.10 各種物質に対する質量衝突阻止能とエネルギーの関係。

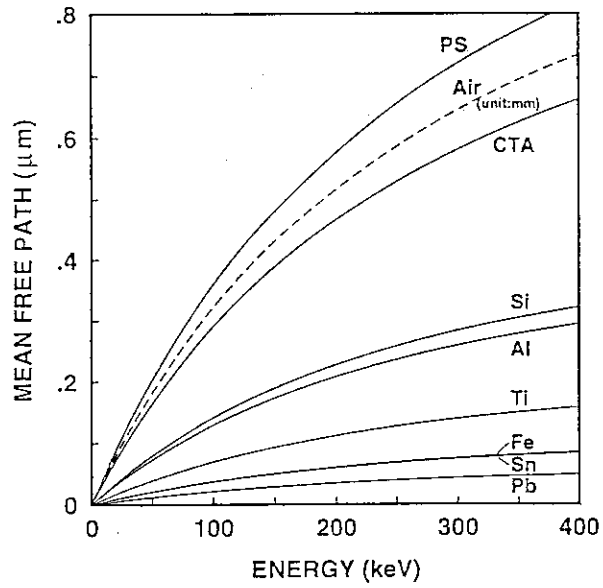


図 3.11 各種物質に対する平均自由行程とエネルギーの関係.

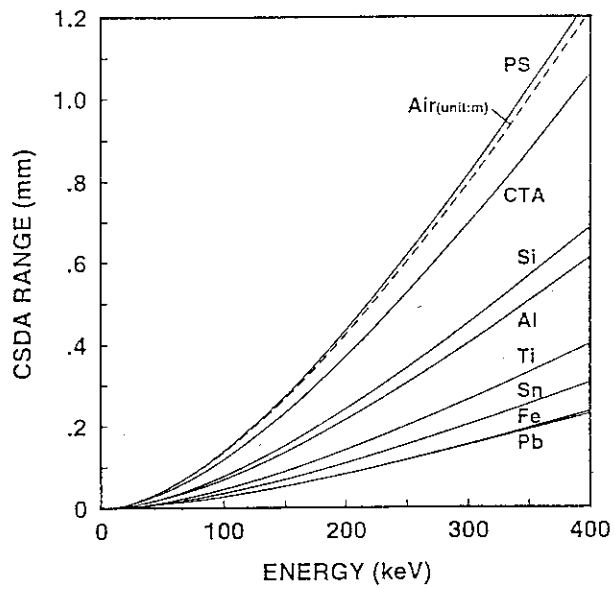


図 3.12 各種物質に対する連続減速近似(CSDA)飛程とエネルギーの関係.

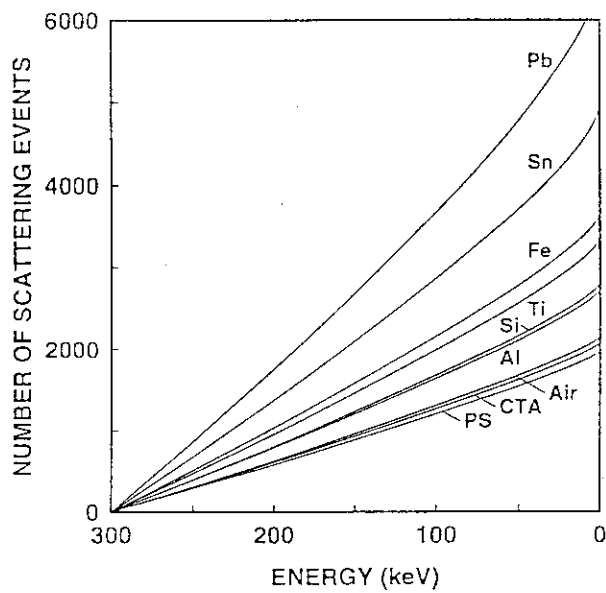


図 3.13 各種物質中に 300 keV 電子が入射した場合の累積散乱回数と残余エネルギーの関係.

4. 線量分布に影響を与える因子の解析

4. 1 まえがき

高エネルギー電子線照射における各種単一物質中の電子の振る舞いについては多くの報告があり、計算値はデータ集 [1-3] としてまとめられている。工業用電子線照射の場合においては、一般に物質層は照射窓-空気層-被照射体からなる多層状物質となるが、多層物質中の電子線量に関する基礎データは少なく [4-9]、中でも有機物質に対するデータは少ないことが指摘されている [10, 11]。それを補うために、いくつかの計算法が提案 [12-16] され、平面多層物質中の深度線量分布が求められているが、原理的に平行平面ビーム照射に対する評価に限定される。Tanaka [17, 18] は電子線照射場の電流密度分布を簡単な多重散乱理論をもとにガウス分布を仮定した近似式を求め、照射場の特徴や電子線量を検討した。しかし、中高エネルギー領域の電子線照射を解析の対象としているため、照射窓での電子の多重散乱やビーム走査などの照射用加速器特有の物理的条件は簡略化して取り扱っている。一方、低エネルギー電子線照射の場合には、照射雰囲気によって電子の振る舞いは大きく影響をうけるために、加速器の物理的条件を無視することはできない。ここでは、低エネルギー電子線照射場における電子の振る舞いをモンテカルロ法を用いてシミュレーションし、電子のエネルギースペクトル、透過・散乱係数など深度線量分布に影響する因子を解析した。

本章では、第3章で示した計算コードを用いて、工業用低エネルギー電子線照射における物質中の電子の振る舞いを解明する。例えば、走査型電子線照射装置を用いた動的小よび静的照射の場合について、フィルム表面を通過する電子のエネルギースペクトルおよび入射角度分布を計算し、それぞれを比較検討する。また、照射方法による深度線量分布の違いについて電子の入射エネルギーと入射角度の両面から検討するとともに、照射装置で加速された電子の、照射窓、空気およびフィルム層における吸収エネルギーを計算し、電子エネルギーの利用効率を見積った [19-24]。

4. 2 300 keV 電子線の各種物質中での振る舞い

図4.1 は真空中で 300 keV に加速された電子が、照射窓 (Ti, 厚さ 30 μm) および空気 10 cm を通過して、電子飛程に対して半無限厚さの CTA フィルムに侵入する場合のそれぞれの物質中の飛跡を示したものである。追跡電子数は 1500 個であるが、照射窓中については電子数 200 個の飛跡について示した。CTA フィルム中は中心部のみ示した。ペンスルビームで垂直に入射した 300 keV 電子線は、照射窓の通過中に散乱して 0.2 mm 幅にまで広がる。また、空気中では左右 40 cm 以上にも広がる。CTA フィルム中では中心部で約 0.4 mm の深さまで電子は侵入する。照射窓、空気および CTA フィルム中における電子の散乱回数の分布を図4.2 に、電子飛程の分布を図4.3 に、さらに、図4.4 に CTA フィルム中の入射電子の侵入深さ分布を電子飛程と共に示す。これら図4.1-4から得られた結果をまとめて表4.1 に示す。電子は、照射窓 (Ti) 中

で約 250 回散乱して約 $34 \mu\text{m}$ 移動し、空気中では約 220 回散乱して約 160 mm 移動する。すなわち、300 keV 電子線は、照射窓および空気中で約 470 回散乱した後 CTA フィルムに入射する。CTA フィルム中では、電子のエネルギーが 1 keV に減少するまでに散乱回数は約 1700 回にも達する。CTA フィルム中における外挿電子飛程 (0.65 mm) に対して、外挿射影侵入深さ (実効侵入深さ) (0.46 mm) の計算値は約 30 % 小さく電子飛程の平均値 (0.47 mm) とほぼ一致する。

4. 3 入射電子のエネルギースペクトル

電子加速管内で加速された電子は、エネルギー 300 keV 持っているが、照射窓および空気層を通過するときの散乱によってエネルギーを失い被照射体に入射する時点ではエネルギーは減少しているとともにかなり広い分布をもち、被照射体中の吸収線量に影響を与える。本節では、被照射体に入射する電子のエネルギーを静的および動的照射の場合について計算した結果を示す。

4. 3. 1 静的照射

走査型電子線照射装置の照射窓下 10 cm の距離の水平面上に置いた静止被照射体について、電子ビームの走査方向と垂直に照射窓直下 (ビーム中心) およびビーム中心から 5, 10, 20 cm 離れた位置の CTA フィルム表面における入射電子のエネルギースペクトルを計算した結果を図 4.5 に示す。縦軸は上述の各位置における単位面積 1 cm^2 に入射した電子数を示す。なお、図中の実線は後方散乱による再入射電子成分を含めたエネルギースペクトルであり、点線は後方散乱を除いた直接入射電子成分のエネルギースペクトルを示す。初期エネルギー 300 keV の電子は照射窓および空気層を通過することによりビーム中心においても、既に最多電子エネルギーは 248 keV に低下している。ビーム中心から 5, 10, 20 cm と離れるに従って、空気層が厚くなるために到達電子のエネルギーはさらに減少し、最多電子エネルギーはそれぞれ 240, 231 および 202 keV に低下し、そのフルエンスも急速に低下する。また、後方散乱にもとづく成分は直接入射成分に比べて量は少ないが、210 keV 以下の広い領域に一様に分布していて、エネルギースペクトルを非対称形にしている。これらのスペクトルの変化は、McLaughlinら [25] による空気層の厚さを変化させたときの 200, 300, 400 keV 電子線の場合の計算値とよく一致している。

4. 3. 2 動的照射

動的照射の場合、試料表面を通過する電子のエネルギースペクトルは、コンベアの移動によってビーム走査方向と垂直な方向の各位置におけるスペクトルの総和となる。図 4.6 は動的照射の場合の、照射窓下 10 cm の距離に置いた CTA フィルム表面を通過する電子のエネルギースペクトルの計算値を示す。図中には比較のために、図 4.5 で示した静的照射 (ビーム中心) の場合のスペクトルをそれぞれのピーク値の電子数を

一致させて示した。実線は後方散乱による再入射電子成分を含めたものであり、点線は直接入射電子成分のみを示す。実線と点線の差が CTA フィルム表面から空气中へ脱出する後方散乱電子のエネルギースペクトルに相当する。全通過電子の最多電子エネルギーは 246 keV であり、静的照射の場合の 248 keV に比べて少し低下する。平均電子エネルギーは 207 keV で、静的照射の場合の 222 keV よりもかなり低下し、低エネルギー電子成分が多いことを示す。また、200 keV 以下の成分には、後方散乱電子成分が多く含まれ、静的照射の場合に比べてこの領域のフルエンスは高い。後方散乱電子の平均電子エネルギーは約 120 keV で、最多エネルギーを示す顕著なピークは見られない。

被照射体中の深さ方向に対する電子のエネルギースペクトルの変化について検討した結果を図4.7に示す。ビーム中心において、表面(0)および深さ 57, 114 (薄層 CTA フィルム 3 枚に相当), 228 μm (同 6 枚), 342 μm (同 9 枚) の各深さにおける通過電子のエネルギースペクトルの後方散乱による再通過電子成分を含めた計算値を示す。最多電子エネルギーは、表面より深くなるにつれて各々 246, 222, 196, 142, 99 keV となり、低エネルギー側に移動すると共に低エネルギー電子成分が多くブロードになる。表面より深さ 228 μm までは直接入射電子成分によるピークの存在が明確であるが、それ以上深くなるとピークは不明瞭になり 342 μm では、ピークは 80-120 keV の間にあり最大電子エネルギーも 180 keV 以下となる。

4. 4 入射電子の入射角度分布

初期エネルギー 300 keV の電子が照射窓および空気層を通過した後、被照射体に入射するときの入射角度を静的および動的照射の場合について計算した。

4. 4. 1 静的照射

図4.8は、電子ビームの走査方向と垂直に照射窓直下(ビーム中心)および 10, 20 cm 離れた位置の CTA フィルム表面に入射する電子の入射方位を半球表面上にプロットしたものである。ビーム中心ではビーム走査方向に沿って入射する電子数は多く、ビーム中心から離れるに従って入射電子数は減少し、入射角度は次第に大きくなる。図4.9は図4.8の静止照射においてビーム中心における直接入射電子の入射方向(上半球)と共に、CTA フィルム内部からの後方散乱電子の再入射方向を下半球表面上にプロットしたものである。後方散乱電子の入射角度分布はほぼ一様で特にピークらしきものはない。図4.9に示したビーム中心における、CTA フィルム表面を通過する電子の入射角度分布を図4.10に示す。単位立体角当たりの電子密度を細線で、またそれを入射角度毎に積分した全電子数を太線で示したものである。細線、太線について、点線は直接入射電子成分のみ、実線は両電子成分を合計したものであり、これらの差は後方散乱電子成分であり一点破線で示した。単位立体角当たりの電子密度(細線)は、入射角 0° で最大であり入射角が大きくなるに従って急速に減少する。一方、全電子

数(太線)では 13° 前後の入射角度で極大を示す。後方散乱成分は、 0° 、 90° 近くを除いてほぼ全入射角度一様に存在する。

図4.11 にビーム中心および 5, 10, 20 cm 離れた位置における, CTA フィルム表面を通過する電子の入射角度分布を示す。図中で実線は後方散乱による再通過電子成分を含めたものであり, 点線は直接入射電子成分のみを示す。電子は照射窓および空気層において多重散乱しているため, CTA フィルム表面における入射角度は $0\sim 90^\circ$ 迄広く分布しているが, ビーム中心では低入射角成分が多く, 中心から離れるに従って低角度成分が減少することが分かる。全通過電子数のピークを示す入射角度(最多入射角度)は距離 5, 10 および 20 cm において, それぞれ 34° , 49° , 58° であり大体幾何学的な入射角度 30° , 45° , 60° と一致する。ビーム中心では最多入射角度は 13° , 平均入射角度は 25° と両者はかなり離れて高角度側に偏った分布をしている。これは窓直下であり, 加速された電子の進行方向成分が多いことによる。5 cm 離れた位置では平均入射角度は 37° となり, 最多入射角度に近い。距離 10 および 20 cm 以遠の位置では最多入射角度と平均入射角度は一致する。

4.4.2 動的照射

CTA フィルム表面に入射する電子は, コンベアによる動的移動によって図4.8 で示した入射電子の総和となり, 結果として電子の入射方向はほぼ一様となる。図4.12 に図4.9 と同様の方法で計算した入射方位の分布を半球上に示す。上半球は直接入射電子, 下半球は後方散乱電子の再入射方向をプロットしたものであり, 両者の分布は共に対称性がよい。図 4.13 は CTA フィルム表面を通過する電子の入射角度分布を示す。図4.10 の場合と同様に, 細線は単位立体角当たりの電子密度を, 太線はそれを入射角度毎に積分した全電子数を入射角度の関数として示したものである。さらに各々の場合について点線は直接入射電子成分, 一点破線は後方散乱電子成分, 実線は両電子成分の和を示す。単位立体角当たりの電子密度は, 入射角 0° で最大であり入射角が大きくなるに従ってしだいに減少する。一方, それを入射角度毎に積分した全電子数では $30\sim 40^\circ$ 前後の入射角度で極大を示す。

被照射体中の深さ方向の各層を通過する電子の入射角度について深さ表面 (0), 57, 114, 228, 342 μm の移動中の試料各層を通過する電子の入射角度分布を図4.14 に示す。計算値は, 後方散乱による再入射電子成分を含めたものである。表面より深くなるに従って, 各層を通過する電子の方向性は急速に失われることが分かる。

4.5 静的および動的照射における深度線量分布

静的および動的 照射における深度線量分布に及ぼす影響因子について, 電子の入射角度と入射エネルギーに注目して検討した。ビーム中心 (0) およびビーム走査方向と垂直な方向へ 5, 10, 20 cm 離れた位置における, CTA フィルム表面に入射時の電子の入射角を, 通常の電子飛跡によって入射する場合(実線)と垂直入射 (0°) と仮定した場合

(点線)の深度線量分布を図4.15に示す。CTA フィルム表面に入射するまでの電子の振る舞いは同じであるから、CTA フィルム表面入射時のエネルギースペクトルおよび電子数は同一である。両照射において、吸収線量が最大値となる深さ(ピーク深さ)は、両者共にビーム中心から離れるに従って表面に移動するが、垂直入射と仮定した場合に比べて通常入射の場合には表面への移動量が大きく、ビーム中心から10 cm離れた位置においてピークを示す深さは表面に達する。このことから、静的照射に比べて動的照射における深度線量分布が表面寄りになる原因として、ビーム中心から離れた位置の被照射体面に入射する電子の入射角度の増大が大きく寄与していることが分かる。

4. 6 通過電子数の計算

被照射体中の吸収線量は、被照射体中を通過する全電子によるエネルギー付与量に対応する。一般に、被照射体に入射あるいは透過する電子数の測定は可能であるが後方散乱を含めた場合の実測は困難である。従って、被照射体中の通過電子数の分布は計算によってのみ求められる。静的および動的照射の場合のCTA フィルムについて、深さ方向の通過電子数の分布の計算結果を図4.16に示す。フィルム層表面における電子数を1とした相対電子数で示した。図中には、参考のために透過電子数の計算値(点線)も示した。通過電子数と透過電子数の差が、より深部からの後方散乱電子数となる。通過電子に対する電子数の半減深さは、静的および動的照射それぞれについて0.031 (CTA 厚さでは24 μm)、0.025 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ (同20 μm)である。静的照射の方が動的照射の場合に比べて表面層での通過電子の減少率は少ないことから、吸収線量のピーク位置がより深部に存在する実測結果が説明できる。

4. 7 照射窓、空気および被照射体におけるエネルギー吸収

照射窓、空気および被照射体であるCTA フィルム中を電子が通過する過程での、エネルギー散逸量は物質側から見ればエネルギーの付与量(吸収エネルギー)である。照射窓(Ti, 30 μm)、空気(10 cm)および半無限厚さのCTA フィルム中における単位質量厚み当りに吸収されるエネルギー分布(単位フルエンス当りの吸収線量で表した深度線量分布)を計算した結果を静的および動的照射の場合について図4.17に示す。静的および動的照射の両者においてビーム中心上にある各層について示したものである。動的照射の場合は照射窓や空気中での散乱電子を含めた場合を示した。電子加速管内で300 keVに加速された電子が、照射窓、空気およびCTA フィルムの各層でそのエネルギーを散逸し、そこで吸収されるエネルギーをkeV単位で計算した結果を表4.2に示す。表中のB.S.は照射窓およびその他の層から後方散乱によって電子加速器の真空中および系外に脱出するエネルギーを示す。また、各層における吸収エネルギーの比率をカッコ内に示す。これらの比率より、静的照射の場合には電子エネルギー300 keVのうち、後方散乱により9.7%(29.1 keV)が失われ、照射窓および空気中で26.8%(80.4 keV)失うことにより、CTA フィルム中では残りの63.5%(190.6 keV)

のエネルギーが吸収される。動的照射の場合には、照射窓および空気中で 35.5 % (106.5 keV) が失われ、CTA フィルム中では 54.8 % (164.4 keV) のエネルギーが吸収される。300 keV 低エネルギー電子線の場合には、本照射条件では電子エネルギーの 64~55 % が利用され、静的照射の方が効率よくより多くのエネルギーが吸収されることが分かる。Danno [26] や Okabe ら [27] よって動的照射の条件で試算された空気 8cm の場合の 300 keV 電子線の利用率 66.3 %, 61.7 % と、空気層の違いを考慮すればよく一致する。

4. 8 結論

第3章で示した計算コードを用いて、300 keV 電子線の照射窓 (Ti, 30 μ m), 空気 (10 cm) および半無限厚さの CTA フィルム中における振る舞いを解析した。それらの結果を要約して以下に示す。

- (1) 照射窓、空気およびフィルム中における電子の散乱挙動をモンテカルロ法で解析し、工業用低エネルギー電子線照射の特徴を明らかにした。300 keV 電子線は主として空気層によって広がり、フィルムには平均約 480 回の散乱後に入射、その実効侵入深さは 0.46 mm である。
- (2) 照射窓、空気を通過してフィルムに入射した電子のフィルム表面およびフィルム中のエネルギースペクトル、入射角度分布を求めた。フィルムに入射する電子の最多エネルギーは 250 keV 程度であり、その入射角度には多くの高角度成分が含まれている。全入射電子に対する最多入射角度は、静的照射の場合には 13° 前後、動的照射の場合には $30\sim 40^\circ$ である。
- (3) 動的および静的照射における深度線量分布のピーク位置の違いをエネルギースペクトルと入射角度分布によって検討し、入射角度が大きな影響因子であることを明らかにした。
- (4) 照射装置から照射された電子エネルギーの、照射窓、空気および半無限厚さの CTA フィルム中で吸収される割合を計算した。静的および動的照射共に、フィルム中では電子エネルギーの約 60 % が利用されるが、静的照射の場合の方がやや効率は良い。

参 考 文 献

- [1] Spencer L. V. : "Energy dissipation by fast electrons", NBS monograph 1, national Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., U. S. A. (1959).
- [2] ICRU: "Radiation dosimetry: electron beams with energies between 1 and 50 MeV", ICRU Report 35, International commission on radiation units and measurements, Bethesda, Md., U. S. A. (1984).

- [3] Andeo P., Ito R. and Tabata T. : "Tables of charge- and energy-deposition distributions in Elemental materials irradiated by plane-plallal electron beams with energies between 0.1 and 100 MeV", Report RIAST-UOP-TR 1, Res. Inst. Adv. Sci. Tech., Univ. Osaka Prefect. (1992).
- [4] Eisen H. : "Electron depth-dose distribution measurements in metals and two-layer slab absorbers", Philosophy Doctor Dissertation, University of Maryland (1971).
- [5] Eisen H., Rosenstein M. and Silverman J. : "Electron depth-dose distribution measurements in two-layer slab absorbers", Radiat. Resea., 52, pp. 429-447 (1972).
- [6] Lockwood G. J., Ruggles L. E., Miller G. H. and Halbleib J. A. : "Calorimetric measurement of electron energy deposition in extended media-theory vs experiment", Sandia Laboratories Report SAND 79-0414 (1980).
- [7] Tabata T. and Ito R. : "An algorithm for electron depth-dose distributions in multilayer slab absorbers", Jpn. J. Appl. Phys., 20(1), pp. 249-258 (1981).
- [8] Seltzer, S. M. and Berger M. J. : "Energy deposition by electron, bremsstrahlung, and 60 Co gamma-ray beams in multi-layer media", Appl. Radiat. Isot. 38(5), pp. 349-364 (1987).
- [9] Matsuda K. and Kijima T. : "Electron beam dosimetry using a multi-layer dosimeter", Proc. Conf. Radiation Curing Asia, pp. 379-384, The Organizing Committee of CRCA, Tokyo (1988).
- [10] 大線量測定研究委員会編: "大放射線量実用測定法", 放射線照射振興協会 (1978).
- [11] 放射線照射振興協会編: "工業照射用の電子線量計測", 放射線照射振興協会 (1990).
- [12] Entinon I. R. : "Operating fast electron spectrum in layered samples", Radiat. Phys. Chem. 27(6), pp. 469-474 (1986).
- [13] Tabata T., Ito R. Kuriyama I. and Moriuchi Y. : "Simple method of evaluating absorbed dose in electron-beam processing", Radiat. Phys. Chem., 33(5), p. 41-416 (1989).
- [14] Tabata T., Shinoda K., Andreo P., Chuan-San W. and Ito R. : "Analysis of Monte-Carlo depth-dose data for electron beams and four-layer extension of the EDMULT code", RadTech Asia'93, Conf. Proc., pp. 574-579, Chiba (1993).
- [15] Zhou Yong, Zhou Youyi and Luo Zhengming: "Measurements and calculations of absorbed dose in electron beam radiation processing", Radiat. Phys. Chem. 42(4-6), pp. 817-820 (1993).
- [16] An Zhu, Hou Qing, Zhou Yong and Luo Zhengming: "Calculation of the dose distribution of 0.3 MeV electron in multilayer media", RadTech Asia '93

- Conf. Proc., pp.580-583, RadTech Jpn. Organizing Committee, Tokyo (1993).
- [17] Tanaka R. : "Calculation of longitudinal dose non-uniformity with simultaneous product movement and beam scanning in industrial electron irradiation", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 35(12), pp.1089-1094 (1984).
- [18] 田中隆一: "固体絶縁物の放射線照射効果と線量の物理計測", 大阪大学学位論文 (1980)
- [19] Kijima T., Kotera M., Suga H. and Nakase Y. : "Monte Carlo calculations on the passage of electrons through thin films irradiated by 300 keV electrons", IEICE Trans. Elect., E78-C(5), pp.557-563 (1995).
- [20] Kijima T., Nakase Y. and Nakato K. : "Simulation of the absorbed dose in thin films irradiated by 300-keV electrons", JAERI-Review 95-015, pp.54-58, Japan Atom. Ener. Res. Inst. (1995).
- [21] Kijima T. and Nakase Y. : "Monte Carlo calculations of the behavior of 300 keV electrons from accelerators", Radiat. Measurem., 26(2), pp.159-168, (1996).
- [22] Kijima T., Suga H. and Nakase Y. : "Depth-dose distributions in a thin-layer absorber irradiated by 300-keV electrons", Appl. Radiat. Isot., 45(7), pp.759-765 (1994).
- [23] Kijima T., Nakato K. and Nakase Y. : "Electron beam dosimetry for a thin-layer absorber irradiated by 300-keV electrons", JAERI-Review 95-002, p p.44-47, Japan Atom. Ener. Res. Inst. (1995).
- [24] 来島利幸, 菅博, 中戸喜寄, 中瀬吉昭: "低エネルギー電子線の有機薄膜における吸収線量分布", 第5回放射線プロセスシンポジウム, 210, pp. 112-115, 大阪 (1993).
- [25] McLaughlin W. L., Kahn H. M., Farahani M., Walker M. L., Puhl J. M., Seltzer M., Soares C. G. and Dick C. E. : "Low-energy electron dose-distribution measurements with thin-film dosimeters", Beta-Gamma, 4(2+3), pp.20 (1991).
- [26] 団野皓文: "放射線化学工業化の諸問題 (II)", 放射線化学専門課程, 1-26, ラジオアイソトープ研修所 (1976).
- [27] 岡部茂, 津守邦彦, 多幡達夫, 吉田俊男, 永井昭男, 広三寿, 石田国彦, 坂本勇, 河合禎, 荒川和男, 井上崇, 村上知之: "電子線吸収線量の算出と測定-300 keV電子線加速器の場合-", 応用物理, 43(9), pp.909-918 (1974).

表4.1 照射窓(Ti, 30 μ m), 空気(10cm)およびCTA フィルム中における電子の散乱回数, 電子飛程, および射影侵入深さ.

LAYER MATERIAL		Ti	AIR	CTA
NUMBER OF SCATTERING	MOST PROB.	241	191	1688
	AVERAGE	254	220	1658
TRAJECTORY LENGTH	MOST PROB.	0.0316	132.5	0.493
	AVERAGE	0.0343	161.0	0.472
	EXTRAPOL.	0.0354	169.0	0.650
PROJECTED PENETRATION DEPTH	MOST PROB.	-	-	0.200
	AVERAGE	-	-	0.200
	EXTRAPOL.	-	-	0.460

(UNIT OF LENGTH AND DEPTH: mm)

表4.2 静的および動的照射の場合の, 照射窓(Ti, 30 μ m), 空気(10cm)およびCTA フィルム中で吸収されるエネルギー(keV) とその比率.

	DYNAMIC IRRAD.	STATIC IRRAD.
B. S.	29.1 (0.097)	29.0 (0.097)
Ti	47.4 (0.158)	35.1 (0.117)
AIR	59.1 (0.197)	45.3 (0.151)
CTA	164.4 (0.548)	190.6 (0.635)
TOTAL	300.0 (1.000)	300.0 (1.000)

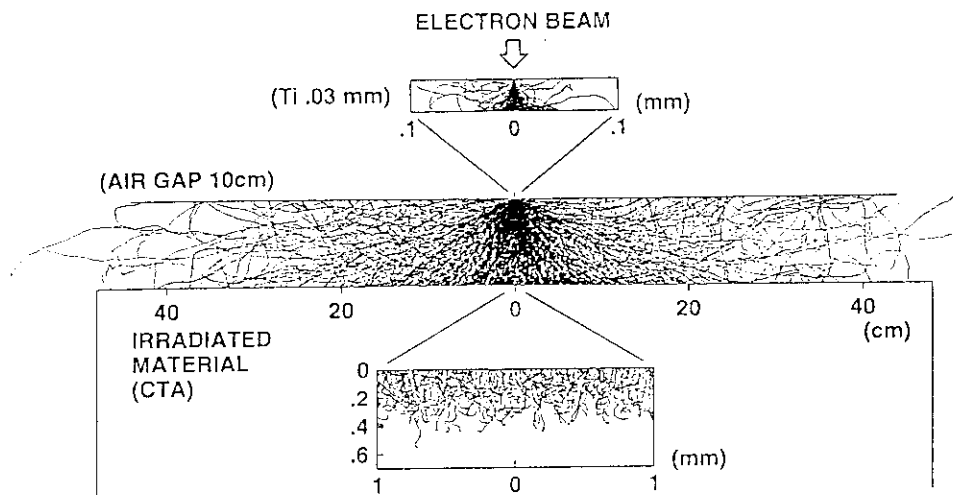


図4.1 照射窓 (Ti, 30 μ m), 空気 (10cm)および半無限厚さのCTA層中の電子の飛跡.

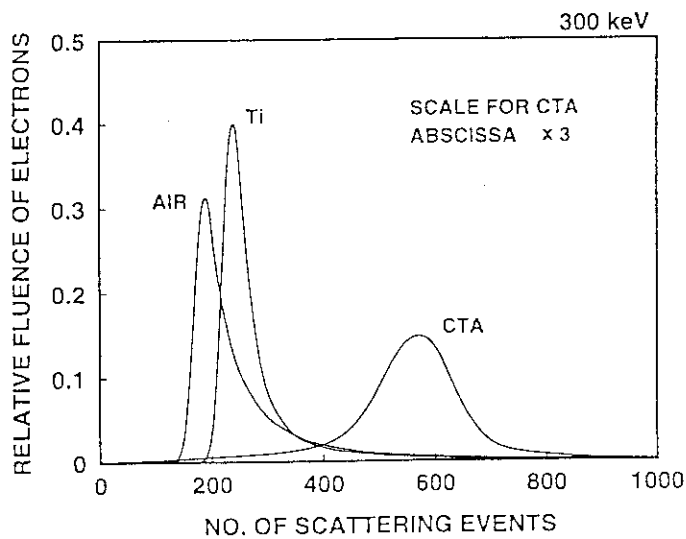


図4.2 照射窓(Ti, 30 μ m), 空気(10 cm)およびCTAフィルム中における電子の散乱回数の分布.

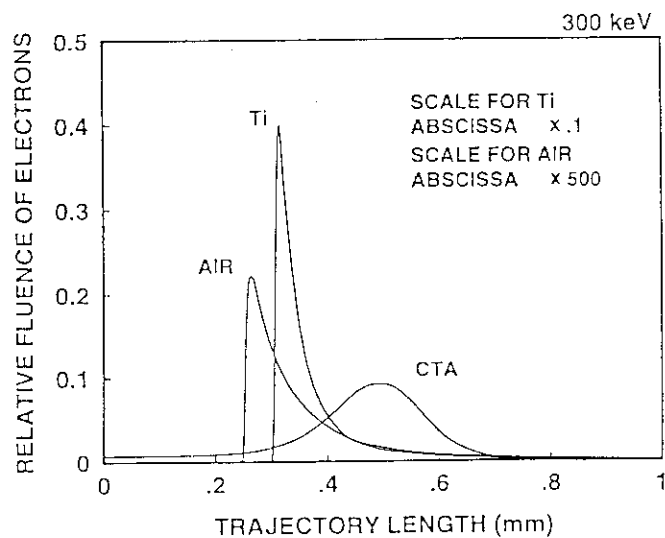


図4.3 照射窓(Ti, 30 μ m), 空気(10 cm)およびCTAフィルム層中における電子飛程の分布.

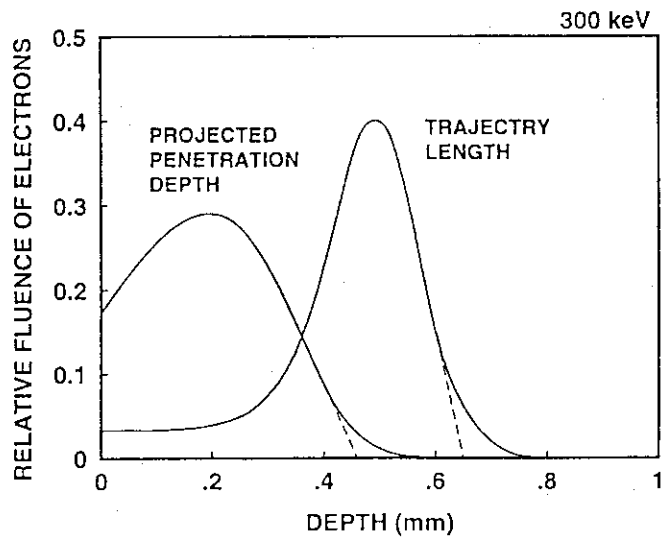


図4.4 CTAフィルム中における電子の電子飛程および射影侵入深さの分布。

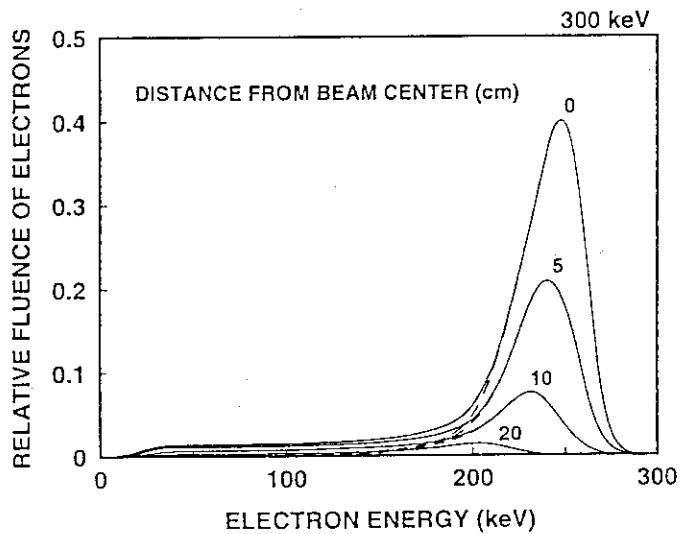


図4.5 ビーム中心およびビーム走査方向と垂直な方向に5, 10, 20 cm離れた位置における, CTAフィルム表面に入射する電子のエネルギースペクトル。

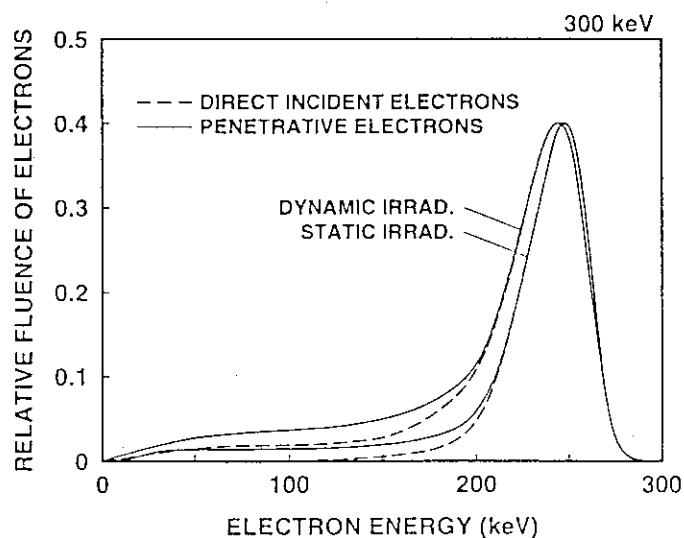


図4.6 動的および静的照射の場合の, CTAフィルム表面を通過する電子のエネルギースペクトル。

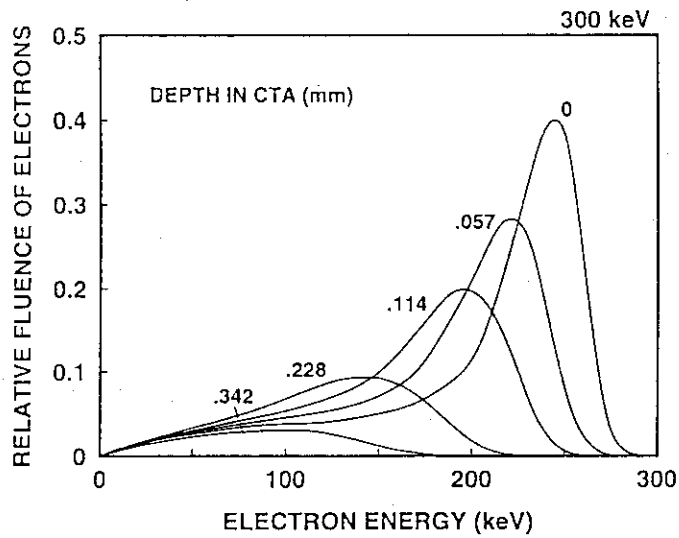


図4.7 動的照射における、CTAフィルム中を通過する電子のエネルギースペクトル。

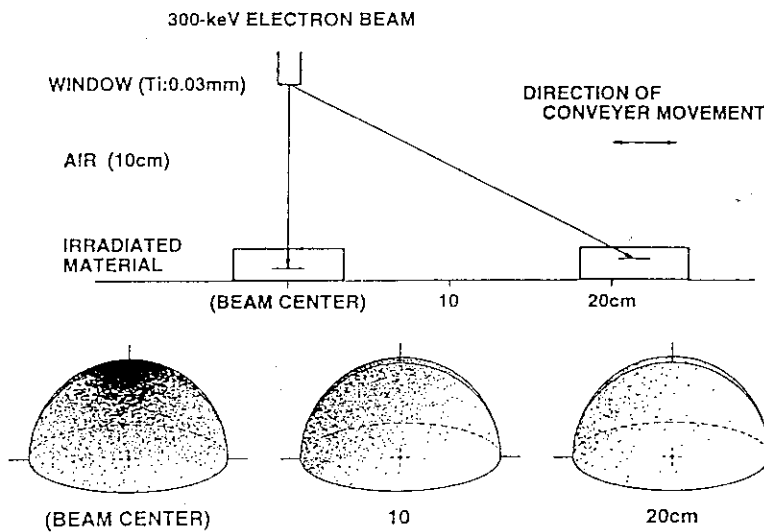


図4.8 ビーム中心およびビーム走査方向と垂直な方向に 10, 20 cm 離れた位置における、CTAフィルム表面に入射する電子の入射方向の分布。

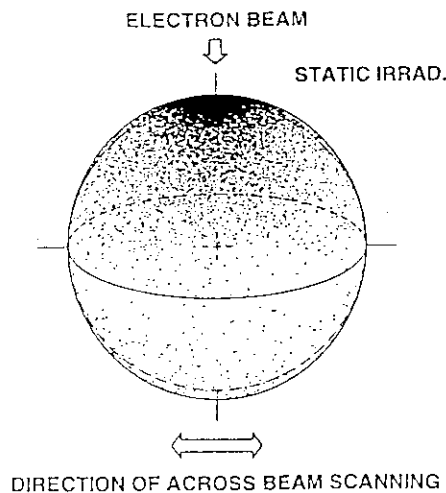


図4.9 ビーム中心における、CTAフィルム表面を通過する電子の入射方位の分布(静的照射)。

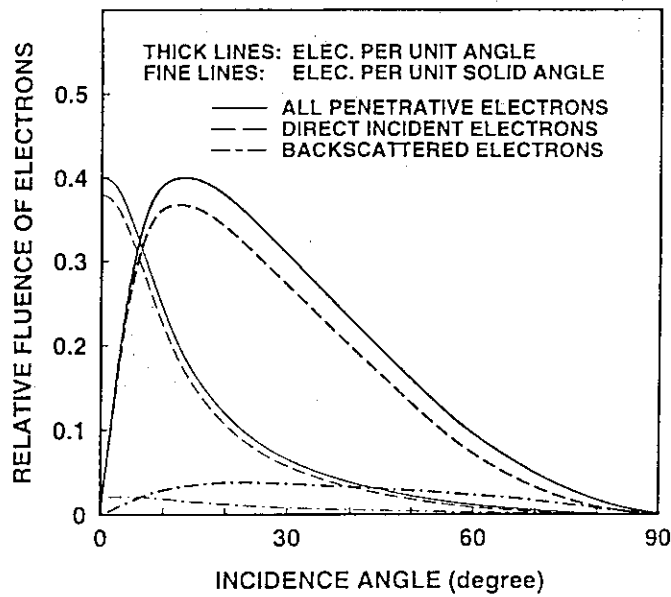


図4.10 ビーム中心に静止して置いた, CTAフィルム表面に入射する電子の入射角度分布.

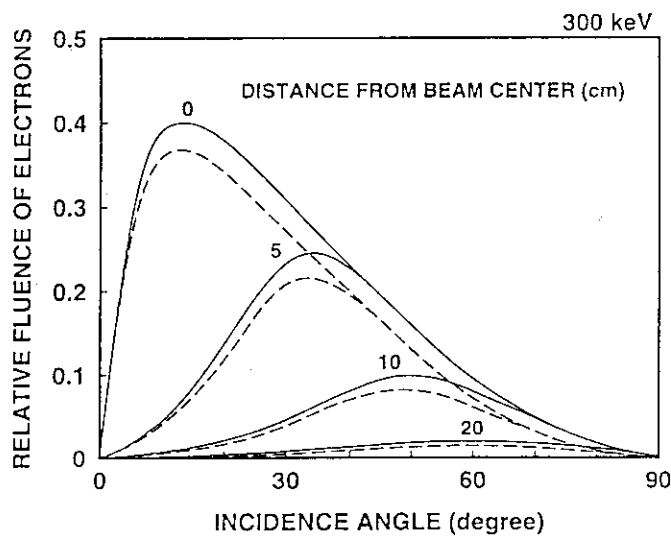


図4.11 ビーム中心およびビーム走査方向と垂直な方向に 5, 10, 20 cm 離れた位置における, CTAフィルム表面を通過する電子の入射角度分布.

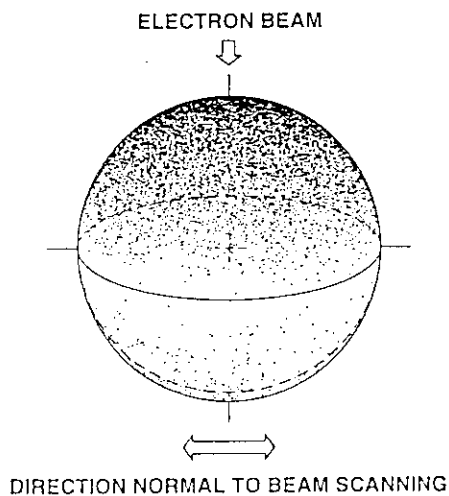


図4.12 動的照射の場合のCTAフィルム表面を通過する電子の入射方位の分布.

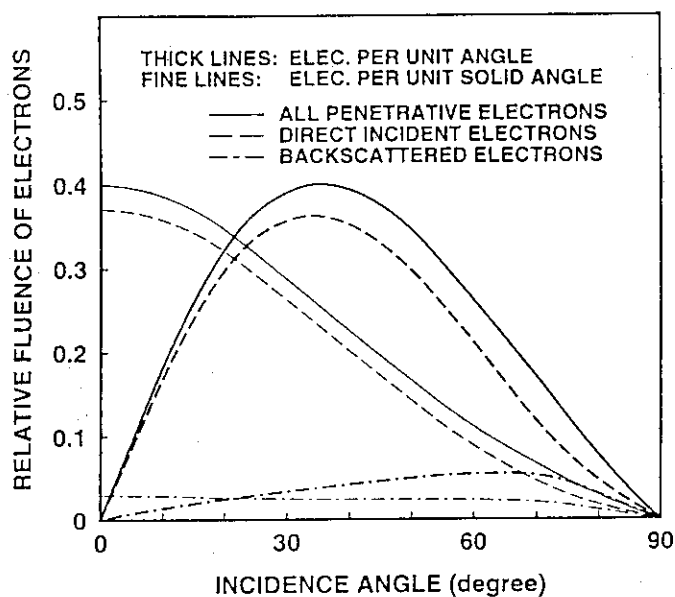


図4.13 動的照射の場合の、CTAフィルム表面を通過する電子の入射角度分布。

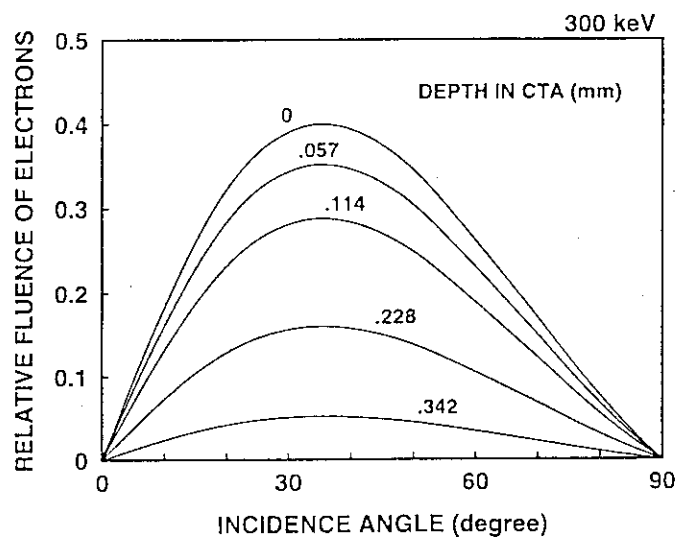


図4.14 動的照射における、CTAフィルム中を通過する電子の入射角度分布。

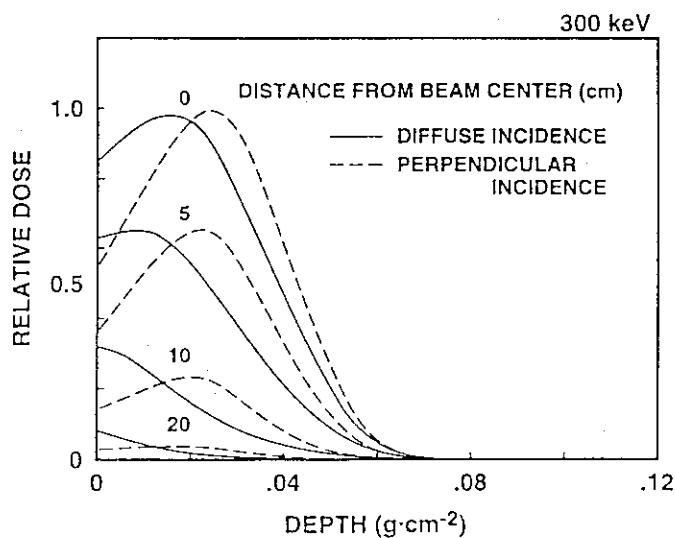


図4.15 CTAフィルムに対して電子が垂直入射すると仮定した場合(点線)と、通常の入射角度を持つ場合(実線)の深度線量分布の比較。

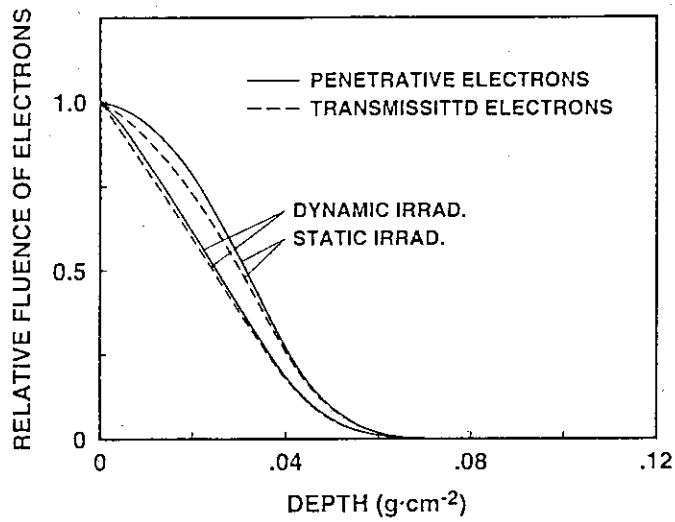


図4.16 静的および動的照射における、CTAフィルム中を通過する電子数の分布。

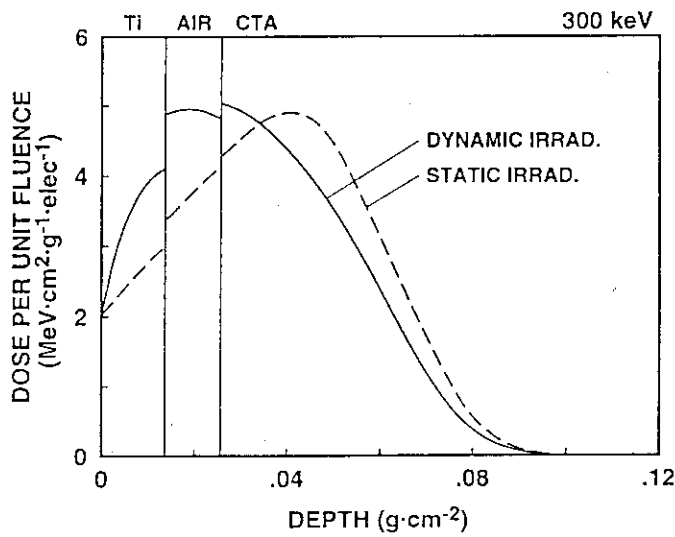


図4.17 静的および動的照射の場合の、照射窓(Ti, 30 μ m), 空気(10 cm)およびCTAフィルム中の深度線量分布の計算値。

5. 薄膜層の吸収線量評価

5. 1 まえがき

低エネルギー電子線照射の工業利用の主な対象は、各種産業の基盤となっている電子デバイス等の基材上の薄い有機薄膜層 (5~150 μm) の合成であり、電子飛程より薄い絶縁膜、リソグラフィ用レジスト等で、今後さらに薄層化が進むものと思われる [1-4]。その他、機能性薄膜製造技術も発展すると思われる。このような、極表面層における電子線の正確な吸収線量評価は重要であり、特に、有機薄膜層の厚さが電子飛程より薄い場合には、入射電子は薄膜層を透過して背面基材に入り、その一部は後方散乱されて薄膜層に再入射するため、線量評価は困難となっている。ここで、後方散乱電子数およびエネルギーは薄膜層の厚さや基材の種類によって異なるため、薄膜層中の吸収線量はそれらの影響を受けて変化する [5-9] ことを十分考慮する必要がある。従って、実用的にも薄膜層の深度線量分布の評価は、基材を含めた解析が必要である。工業用低エネルギー電子線照射において被照射体に照射される電子のエネルギーや入射角度は広い分布を持っており、これらの入射電子による薄膜層の透過や基材による後方散乱の様子は、単一エネルギーの電子線の場合と比べて大きく異なると考えられる。単一エネルギー電子線が物質表面に垂直入射した場合の後方散乱電子数や後方散乱エネルギーについては多くの実験データ [10, 11] とそれをまとめた報告 [12-15] があり、Tabata ら [16, 17] はそれらをもとに信頼度の高い経験式を提案している。筆者らは中低エネルギー領域の電子線照射に対して各種基材上の薄膜層中の吸収線量を実測し、400 keV 以下の電子線では、薄膜の吸収線量に与える背面基材の影響が大きいことを報告 [7, 8] した。

基材上の薄膜層中の正確な吸収線量の評価や、吸収線量に対する背面基材の影響の定量的な解明は、従来のフィルム線量計による実測や上述の計算概算法では困難である。コンピュータを用いた線量計算法による、薄膜層中の吸収線量を精度よく求めた報告 [18, 19] は少なく、工業用電子線照射装置を用いた場合の薄膜層中を通過する電子の振る舞いは知られていない。

薄い CTA フィルム中の吸収線量を計算し、極薄 CTA フィルム (38 μm) 線量計での実測値と比較検討を行い吸収線量に影響する因子の定量化を行った。電子飛程より薄いフィルム中の深度線量分布に対するフィルム厚さと基材の原子番号依存性や、フィルムを通過する電子のエネルギースペクトルの基材に対する依存性、さらにフィルムを透過した後、基材から後方散乱する電子のエネルギースペクトル、角度分布および後方散乱係数を求めた。表面吸収線量分布に対するフィルムの厚さと基材の種類による影響、ビーム走査に伴うフィルム中の吸収線量率の変化についても検討した [20-27]。

5. 2 後方散乱の吸収線量に与える影響

初期エネルギー 300 keV, 照射窓 (Ti, 厚さ 30 μm), 空気層 10 cm, 照射線量率

(照射フルエンス率) $0.047 \text{ C} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ の照射条件で、半無限厚さの各種基材の上に置いた電子飛程より薄い CTA フィルムを動的照射する場合について、CTA フィルム層数と吸収線量を計算すると同時に実測も行った。

図5.1 (a) は Al 基材、同図 (b) は Fe 基材の上に CTA フィルム (厚さ $38 \mu\text{m}$) を 1~7 枚積層して置いた場合の、各層の吸収線量の計算値 (実線) と実測値 (○印) であり、計算値と実測値は、よく一致していることがわかる。フィルム厚さが薄くなるほど、基材からの後方散乱電子の寄与が大きいため吸収線量は大きくなること、すなわち層数が少ないところでは顕著に吸収線量が大きくなることが分かる。Al と Fe 基材の比較では、Fe 基材のほうがより CTA フィルム中の吸収線量の変化が大きい。図5.1における各積層厚さの CTA フィルム中の吸収線量を、後方基材を CTA とした場合の吸収線量を基準とした相対値として表5.1 に示す。300 keV 電子線では Al 基材で約 20 % 増、Fe 基材で約 35 % 増の吸収線量となる。400 keV 電子線における同様の効果は、McLaughlin ら [19] が報告している。筆者らは、500 keV~1.5 MeV 電子線の場合についても実測を行い、同様の効果が見られることを確認したが、その程度は 300 keV 電子線の場合よりも小さい [7, 8]。

5. 3 基材の原子番号と吸収線量の関係

工業的な薄膜層の電子線照射では、背面基材として各種原子番号の有機材料、金属材料等の産業材料が用いられる場合が多い。図5.2 は、半無限厚さの各種基材 (CTA, Al, Fe, Sn, Pb) 上の CTA フィルム (厚さ $114 \mu\text{m}$) の深度線量分布の計算値 (実線) と実測値 (22, 23) (○印) を示したものである。照射窓 (Ti, $30 \mu\text{m}$)、空気層 (10 cm) および各種基材中の深度吸収線量分布の計算値も図中に示した。計算値と実測値はよく一致している。照射窓および空気層でも基材からの後方散乱電子の影響が明確に現れている。基材の原子番号が大きくなるほど、照射窓、空気、CTA フィルム中の吸収線量は増大し、基材中の吸収線量は減少する。しかし、照射窓 - 空気 - CTA フィルム - 基材の全層に対する電子の射影飛程はいずれの場合もほぼ $0.1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$ である。図5.2の各層で吸収されるエネルギーを keV 単位で表5.2 に示した。参考のために、表中には基材からの後方散乱電子がない場合については真空として示した。

フィルム厚さを 38, 114, 125 μm とした場合の CTA フィルム中の吸収線量の原子番号依存性を、CTA 基材を基準とした相対吸収線量で図5.3 に示す。フィルムが薄いほど基材による吸収線量に対する影響が大きい。図中には EDMULT [25] による計算値を示すが、両者はよく一致している。また、薄膜層中の吸収線量の増加の挙動は、Seltzer ら [6] や 多幡 [18] による 400 keV 電子線に対する報告とも一致している。

5. 4 通過電子のエネルギースペクトル

図5.4 は動的照射において、CTA フィルム (114 μm 厚さ、フィルム線量計 3 枚相当) を各種基材 (CTA, Al, Fe, Sn, Pb) の上に置いた場合のフィルム表面とフィルム裏面

(基材との接触面)を通過する全電子のエネルギースペクトルの計算値を示す。フィルム裏面(114 μm)でのエネルギースペクトルは基材からの後方散乱電子, すなわち 250 keV 以下の成分によって大きく影響を受け, 基材の原子番号が大きいほどその影響は大きい。また, 約 200 keV エネルギー電子の反射成分も増加している。図5.4で基材を真空とした場合は, CTA フィルムの透過電子すなわち基材に入射する電子のエネルギースペクトルを意味する。透過電子の最多電子エネルギーは 198 keV, 平均エネルギー E_0 は 172 keV である。CTA フィルムを透過した電子は, 基材により散乱され再び同フィルムに入射する。この散乱電子はフィルム表面にまで達していることが 200 keV 以下のエネルギー分布の増加によって分かる。

5. 5 後方散乱係数の評価

114 μm 厚さの CTA フィルムを透過してきた電子が, 半無限厚さの各種基材に入射した場合の後方散乱電子のエネルギースペクトルを図5.5(a)に示す。スペクトルは 250 keV 以下で非常にブロードになるが, その平均エネルギーは基材の原子番号が高いほど大きい。次に, 入射電子が基材侵入時に垂直および拡散入射すると仮定した場合の後方散乱電子のエネルギースペクトルの計算値を, それぞれ図5.5(b), (c)に示す。基材に入射する電子数, エネルギースペクトルは(a)と同一である。比較を容易にするために, 図5.5(a)の Pb のピークにおける垂線を図中に示した。これらの各種スペクトルを比較すると, 照射窓, 空気およびフィルム層を通過して基材に入射する電子は, 拡散入射と仮定した場合と相似のスペクトルであることが分かる。図5.5(a), (b), (c)と同じ条件で, 基材から後方散乱される電子の角度分布について同様に検討した結果を図5.6(a), (b), (c)に示す。通常の透過電子による散乱電子の角度分布(a)を, 垂直および拡散入射すると仮定した場合(b), (c)に示した。横軸は入射角度である。図5.6(a)と図5.6(c)の相似性から基材からの散乱電子の角度分布は, 拡散入射の場合とほぼ同一であることが分る。次に各種基材の電子の後方散乱係数について検討した結果を示す。後方散乱係数には, 電子数に関する後方散乱係数 η_{BN} とエネルギーに関するエネルギー後方散乱係数 η_{BE} があり, 次式の関係がある [9, 28]。

$$\eta_{\text{BN}} = \frac{1}{N_0} \int_0^{E_0} \int_{\pi/2}^{\pi} n(E_B, \theta) 2\pi \sin\theta d\theta dE_B, \quad (5.1)$$

$$\eta_{\text{BE}} = \frac{1}{N_0} \int_0^{E_0} \int_{\pi/2}^{\pi} E_B n(E_B, \theta) 2\pi \sin\theta d\theta dE_B, \quad (5.2)$$

$$E_B = \frac{\eta_{\text{BE}}}{\eta_{\text{BN}}} \cdot E_0. \quad (5.3)$$

ここで, $n(E_B, \theta)$ はエネルギー E_B を持って角度 θ に散乱される電子数, N_0 及び E_0 はそれぞれ基材に入射する電子数とエネルギー, なお E_B は基材からの後方散乱された電子の平均エネルギーである。

図5.5 (a) のエネルギースペクトルの解析から、各種基材に入射する全電子数に対する後方散乱電子数の比 (数後方散乱係数 η_{BN})、平均エネルギー E_B 、および基材に入射する電子の全エネルギーに対する後方散乱電子のエネルギー比 (エネルギー後方散乱係数 η_{BE}) の計算値を表5.3 に示す。但し、 E_0 は 172 keV とした。また、入射電子が垂直入射と仮定した場合の η_{BNN} 、 E_{BP} 、 η_{BEN} についても、図5.5 (b) から求めて表5.4 に示す。いずれの場合も、基材の原子番号が増大すると η_{BN} 、 η_{BNN} あるいは η_{BE} 、 η_{BEN} は共に大きくなる。また、 η_{BN} 、 η_{BE} は η_{BNN} 、 η_{BEN} に比べて大きいことが分かる。

ここで、後方散乱挙動を知るために η_{BN} と η_{BNN} および η_{BE} と η_{BEN} の比を基材の原子番号の関数として図5.7 に示す。原子番号が 20 以上の場合には、 η_{BN}/η_{BNN} および η_{BE}/η_{BEN} は共に 1.1 に近いが、20 以下になると 1.5 よりも大きくなる。これは低原子番号の基材では垂直入射のみと仮定した場合よりも後方散乱電子数が多いことを示し、斜め入射成分がより多いことを意味する。

エネルギー分布を持った入射電子による後方散乱電子のエネルギースペクトルの場合と、単一エネルギーの入射電子による後方散乱電子のエネルギースペクトルの違いを検討した。図5.8 は $E_0 (= 172 \text{ keV})$ の電子が無限厚さの各種基材に入射した場合の散乱電子 (飽和后方散乱電子) のエネルギースペクトルの計算値を示す。図5.8 (a) は垂直入射、図5.8 (b) は拡散入射すると仮定した場合のスペクトルである。Paul ら [12] による 370 keV 電子線の場合の分布の様式と一致していることがわかる。エネルギー分布を持った入射電子による後方散乱は、単一エネルギー電子線の場合と比べて、低エネルギー成分が極端に少なくなり、後方散乱挙動はかなり異なることが分かる。

図5.9 に、図5.5 (a) および図5.8 (a) から求めた電子数およびエネルギー後方散乱係数の原子番号依存性を示す。図中には、ITS による垂直入射の場合の計算値 [26] を●で示した。低エネルギー電子線照射の場合、基材の種類に係わらず数後方散乱係数およびエネルギー後方散乱係数は、単一エネルギー電子線の垂直入射の場合 (●) に比べて、10 % 以上大きいことを示している。

5. 6 表面線量分布に及ぼす薄膜厚さの影響

図5.10 は、照射窓から 10 cm の距離に置いた半無限厚さの CTA フィルム中の 38, 114 μm および半無限厚さの CTA フィルムの表面線量分布のビーム走査方向と垂直な方向に対する吸収線量の計算結果を示す。各厚さのフィルムについて線量分布はその最大値を一致させるように規格化した。フィルム層が厚いほど分布はシャープになっている。これは、ビーム中心から離れるほどフィルムの深さ方向の透過電子数の減少率が大きいことを意味する。図5.11 は、同じ照射条件で基材の種類を変化させた場合の CTA フィルム (厚さ 114 μm) の表面吸収線量分布の計算結果である。図5.10 と同様な規格化を行った。原子番号が大きい基材ほど、ビーム中心部における後方散乱電子数が顕著に増大するために分布はシャープになる。

次に、ビーム走査方向の表面線量分布について検討した結果を図5.12に示す。照射窓下10 cmの距離でビーム中心および左右15 cm（走査端）の位置に置いたFe基材上のCTAフィルム（厚さ114 μm ）の表面吸収線量分布を示す。図中で実線は電子ビームが走査端にある場合、点線は走査端で照射窓面に垂直に入射したと仮定した場合（無走査型照射方式）である。走査端における線量分布は、無走査型照射方式ではビーム中心の分布と同一であるが、走査型照射方式ではフィルム中の吸収線量の最大値はやや小さくなり、分布の対象性はくずれる。また、最大値を示す位置は走査端より2.4 cm外側になる。そこで、ビーム走査方向の線量分布は上述のような線量分布の積算となり、一点波線で示すようなプロファイルになる。

被照射体（ここではCTAフィルム）は、無走査型では連続照射であるが、走査型ではビーム走査の周期に依存して不連続照射となる。ビーム中心で被照射体が受ける時間的な吸収線量率の変化は、ビーム走査周波数400 Hz（周期2.5 ms）で等速往復運動する場合のFe基材上の各種厚さのフィルムについて計算すると図5.13に示すようになる。ここで平均線量率を1とすると、本照射条件（走査幅30 cm）の場合には、最大吸収線量率は平均吸収線量率の約2.5倍になる。また、平均吸収線量率以上で照射している時間は全体の約42.5%である。フィルム層を38, 114 μm 及び半無限厚さと変化させた場合の結果から層が厚いほど最大および最小吸収線量率の差が大きい。

5. 7 結論

照射窓、空気を通じた電子線が電子飛程より薄いCTAフィルムに入射した場合のフィルム中の吸収線量とその分布に与える散乱電子の影響等について計算と実測を行った。これらの結果を要約して以下に示す。

- (1) 深度線量分布のフィルム厚さ依存性と基材の原子番号依存性を定量化し、フィルムの厚さが薄いほど、また基材の原子番号が大きいほどフィルム中の吸収線量は増大し、後方散乱効果が大きいことを明らかにした。
- (2) 試料の表面および裏面を通過する電子のエネルギースペクトルを求め、基材の原子番号が大きいほど散乱電子には高エネルギー成分が含まれることを示した。
- (3) 各種基材に対する後方散乱電子に関する散乱係数を評価し、実用照射条件では基材からの後方散乱電子数は、物質に単一エネルギー電子線が垂直入射する場合の後方散乱電子数に比べてかなり大きいことを明らかにした。
- (4) フィルムの表面線量分布は、基材の原子番号が大きいほどシャープになる。
- (5) 走査型電子線照射では、被照射体は不連続照射される、半無限厚さの被照射体の場合の最大吸収線量率は平均吸収線量率よりも約2.5倍大きいことを明らかにした。
- (6) 後方散乱電子の取扱いで物質に直接電子線が垂直入射するとして計算されることが多いが、実用の電子線照射においては、被照射体に入射する電子は拡散入射であり、基材からの散乱電子も拡散散乱として再入射することを明らかにした。

参 考 文 献

- [1] 大成社編集部編: "光・放射線硬化技術", 大成社 (1985).
- [2] 坂本良憲: "実務者のための電子線加工", 高分子刊行会 (1989).
- [3] 材料技術研究協会編: "プラスチックのコーティング技術総覧", 産業技術サービス (1989).
- [4] 日本学術振興会編: "電子・イオンビームハンドブック (第2版)", 日刊工業 (1986).
- [5] Eisen H., Rosenstein M. and Silverman J. : "Electron depth-dose distribution measurements in two-layer slab absorbers", Radiat. Res., 52, pp. 429-447 (1972).
- [6] Seltzer S. M. and Berger M. J. : "Energy deposition by electron, bremsstrahlung, and ^{60}Co gamma-ray beams in multi-layer media", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 38, 5, pp. 349-364 (1987).
- [7] 松田光司, 来島利幸: "電子線のエネルギー後方散乱と薄層の吸収線量", JAERI M 87-170, 64p., 日本原子力研究所 (1987).
- [8] Matsuda K. and Kijima T. : "Energy backscattering of electron beams (0.8 -1.5 MeV) and absorbed dose in thin films", JAERI M 88-272, pp. 36-39, Japan Atom. Ener. Res. Inst. (1987).
- [9] 放射線照射振興協会編: "工業照射用の電子線量計測", 放射線照射振興協会 (1990).
- [10] Ebert P. J., Lauzon A. F. and Lent E. M. : "Transmission and backscattering of 4.0- to 12.0-MeV electrons", Phys. Rev., 183 (2), pp. 422-430 (1969).
- [11] Jakschik J. and Jungst K. P. : "Rückstreuung von elektronen bei 0.25 und 0.5 MeV an aluminium", Nucl. Instrum. and Methods, 79, pp. 240-244 (1970).
- [12] Paul W. and Steinwedel: "Interaction of electrons with matter", in "Alpha-, beta- and gamma-ray spectroscopy", ed. Siegbahn K., 1, pp. 1-25, North-Holland Publishing, Amsterdam (1968).
- [13] 山崎文男編: "実験物理学講座 26 放射線", 共立出版 (1973).
- [14] 岡部茂, 多幡達夫, 中井洋太: "10 eV~数十MeVのエネルギー領域における電子と物質との相互作用", 応用物理, 45 (1), pp. 2-17 (1976).
- [15] 伊藤憲昭: "最新応用物理学シリーズ 4 放射線物性 1", 森北出版 (1981).
- [16] Tabata T., Ito R. and Okabe S. : "An empirical equation for the back-scattering coefficient of electrons", Nucl. Instrum. and Methods, 94 (3), pp. 509-513 (1971).
- [17] Tabata T., Ito R. and Okabe S. : "An empirical equation for the average energy-loss fraction of backscattered electrons. II", Japan J. Appl. Phys., 11, pp. 1220 (1972).

- [18] 多幡達夫: "0.1~10 MeV電子の物質中での深度線量分布", 放射線化学, 53, pp. 2-10, (1992).
- [19] McLaughlin W. L., Hjortenbergs P. E. and Pedersen W. B. : "Low energy scanned electron-beam dose distributions in thin layers", Int. J. Appl. Radiat. Isot. 26, pp. 95-106 (1975).
- [20] Kijima T. and Nakase Y. : "Monte Carlo calculations of the behavior of 300 keV electrons from accelerators", Radiat. Measurem., 26 (2), pp. 159-168 (1996).
- [21] Kijima T., Kotera M., Suga H. and Nakase Y. : "Monte Carlo calculations on the passage of electrons through thin films irradiated by 300 keV electrons", IEICE Trans. Elect., E78-C (5), pp. 557-563 (1995).
- [22] Matuda K. and Kijima T. : "Electron beam dosimetry for a multi layer absorber", Appl. Radiat. Isot., 42 (3), pp. 235-239 (1991).
- [23] Matuda K. and Kijima T. : "EB dosimetry using a multilayer dosimeter", Conf. Radiation Curing Asia (CRCA) '88, 2M07, pp. 379-384, Tokyo (10. 1988).
- [24] Kijima T., Nakase Y. and Nakato K. : "Simulation of the absorbed dose in thin films irradiated by 300-keV electrons", JAERI-Review 95-015, pp. 54-58, Japan Atom. Ener. Res. Inst. (1995).
- [25] RSIC: "EDMULT 3.11 MICRO: Electron depth-dose distributions in multilayer slab absorbers", Computer Code Collection CCC-430, Radiation Shielding Information Center, Oak Ridge Natl. Lab. (1992).
- [26] Andeo P., Ito R. and Tabata T. : "Tables of charge- and energy-deposition distributions in Elemental materials irradiated by plane-parallel electron beams with energies between 0.1 and 100 MeV", Report RIAST-UOP-TR 1, Res. Inst. Adv. Sci. Tech., Univ. Osaka Prefect. (1992).
- [27] 来島利幸, 菅博, 中瀬吉昭: "走査型EB照射装置による300 keV電子線の吸収線量分布(II)", 電子情報通信学会 '93 秋大講論, C-313, 5, pp. 23, 北海道 (1993).
- [28] 岡部茂, 津守邦彦, 多幡達夫, 吉田俊男, 永井昭男, 広三寿, 石田国彦, 坂本勇, 河合禎, 荒川和男, 井上崇, 村上知之: "電子線吸収線量の算出と測定-300 keV電子線加速器の場合-", 応用物理, 43 (9), pp. 909-918 (1974).

表5.1 CTAフィルムの積層枚数とフィルム中の相対吸収線量

RELATIVE DOSE	BACKING MATERIAL	NO. OF LAYER							SEMI- INFI.
		1	2	3	4	5	6	7	
	Al	1.18	1.12	1.09	1.07	1.05	1.03	1.02	1.00
	Fe	1.35	1.27	1.21	1.16	1.12	1.08	1.05	1.00

表5.2 照射窓(Ti, 30 μ m), 空気(10cm), CTA フィルムおよび背面基材中で吸収されるエネルギー(keV).

BACKING MATERIAL	BACK SCATTERING	Ti	AIR	CTA	BACKING	TOTAL
VACUUM	29.1	47.4	58.9	62.9	0.0	199.7
CTA	29.1	47.4	59.1	68.8	95.6	300.0
Al	29.1	47.6	59.5	74.7	89.1	300.0
Fe	29.1	48.0	61.7	83.0	78.2	300.0
Sn	29.1	48.5	65.5	92.2	64.7	300.0
Pb	29.1	49.1	68.5	100.1	53.2	300.0

表5.3 各種基材による散乱電子の数後方散乱係数, 平均エネルギーおよびエネルギー後方散乱係数.

BACKING MATERIAL	η_{BN}	$E_B(\text{keV})$	$\eta_{BE}(=E_B/E_0 \cdot \eta_{BN})$
CTA	0.082	99	0.047
Al	0.180	107	0.112
Fe	0.318	119	0.220
Sn	0.466	131	0.355
Pb	0.582	139	0.470

表5.4 入射電子が垂直入射と仮定した場合の, 各種基材による散乱電子の数後方散乱係数, 平均エネルギーおよびエネルギー後方散乱係数.

BACKING MATERIAL	η_{BNN}	$E_{BN}(\text{keV})$	$\eta_{BEN}(=E_{BN}/E_0 \cdot \eta_{BNN})$
CTA	0.051	84	0.025
Al	0.133	95	0.074
Fe	0.267	111	0.172
Sn	0.409	127	0.302
Pb	0.525	137	0.418

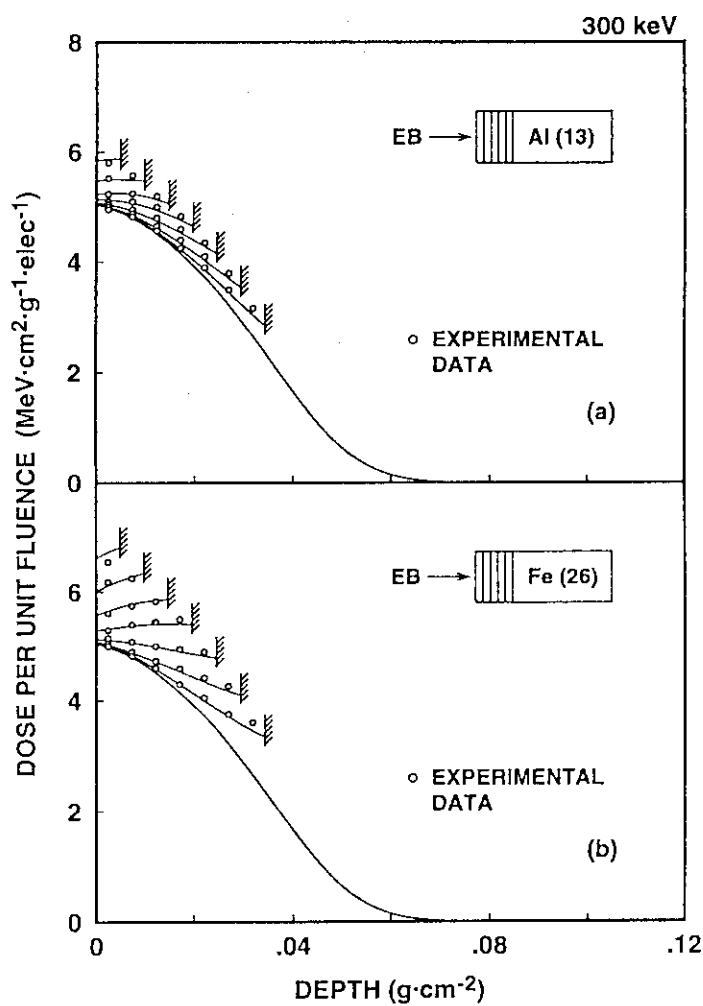


図 5.1 半無限厚さの基材の上に、CTAフィルムを1~7枚置いた場合の深度線量分布の実測値と計算値。

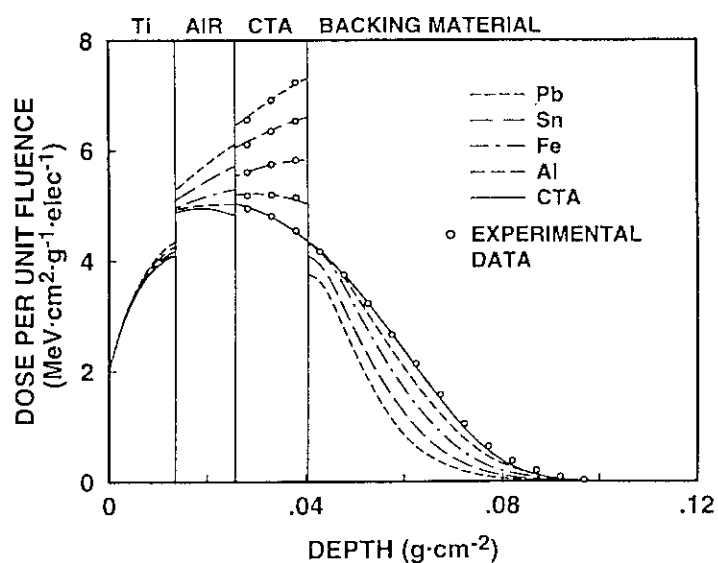


図 5.2 照射窓(Ti, 30 μm), 空気(10 cm), CTAフィルム(114 μm)および基材中の深度線量分布の背面基材による変化。

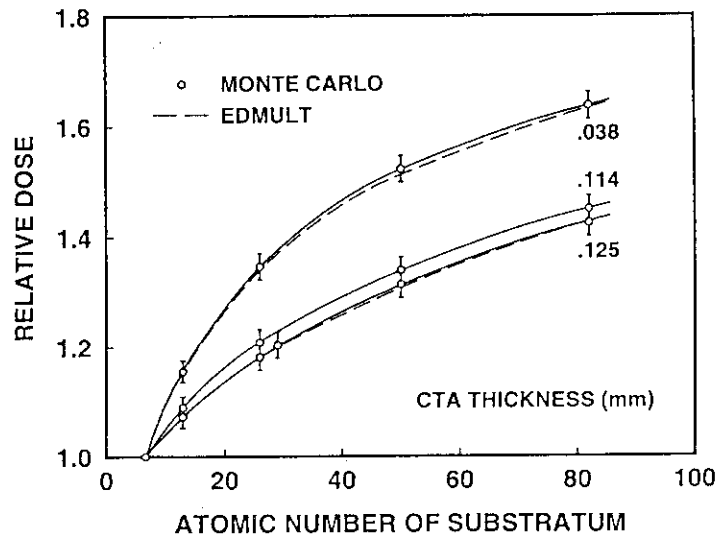


図 5.3 各種厚さのCTAフィルム中の相対吸収線量に対する背面基材の原子番号依存性.

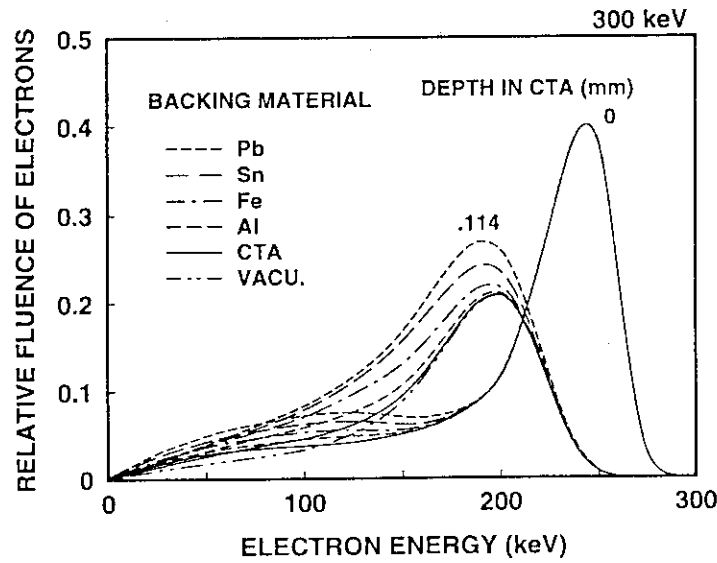


図 5.4 CTAフィルムの表面および裏面を通過する電子のエネルギースペクトル.

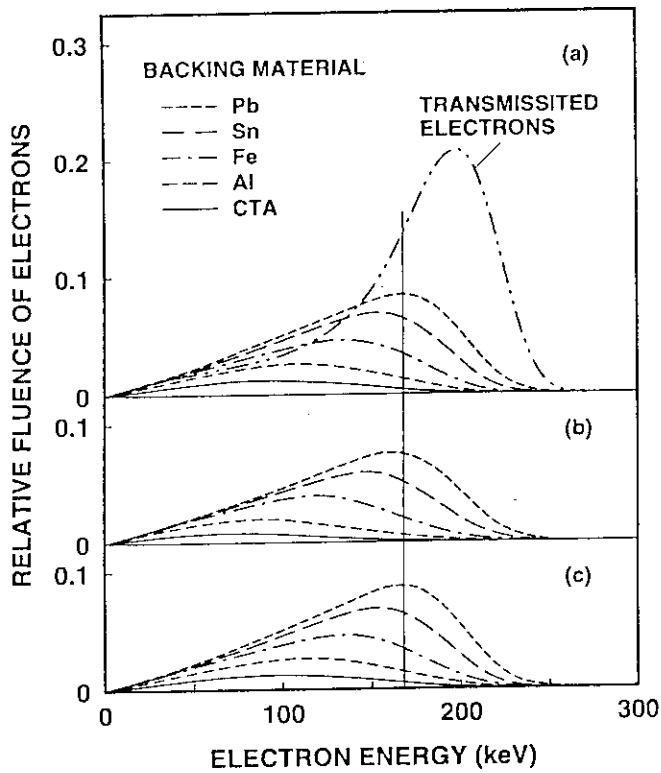


図 5.5 各種基材からの後方散乱電子のエネルギースペクトル。基材に対する電子の入射が、通常の透過電子(a)，垂直(b)および拡散入射(b)と仮定した場合の比較。

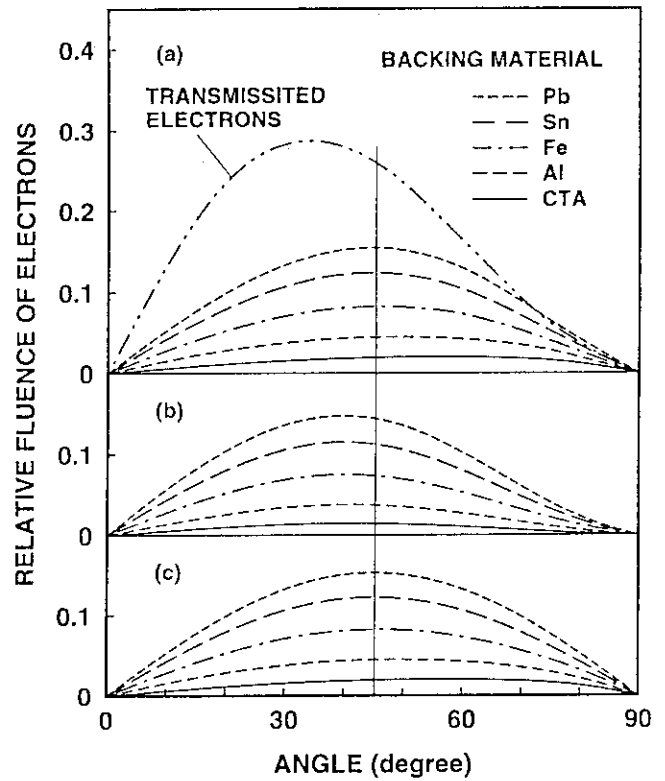


図 5.6 各種基材からの後方散乱電子の入射角度分布。基材に対する電子の入射が、通常の透過電子(a)，垂直(b)および拡散入射(b)と仮定した場合の比較。

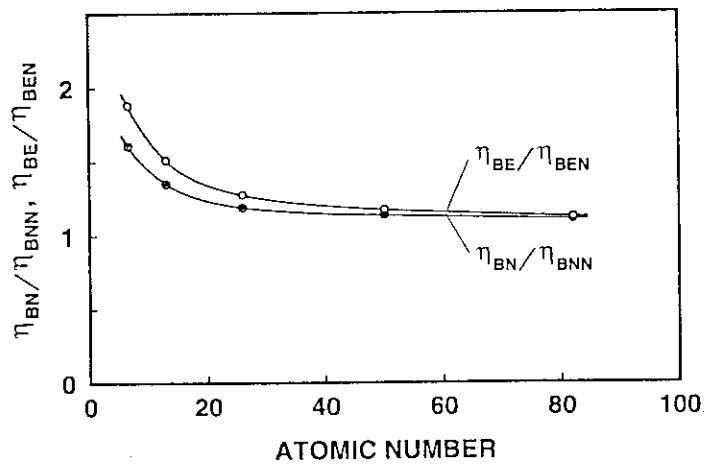


図 5.7 後方散乱係数の比， η_{BN}/η_{BNN} および η_{BE}/η_{BEN} の原子番号に対する依存性。

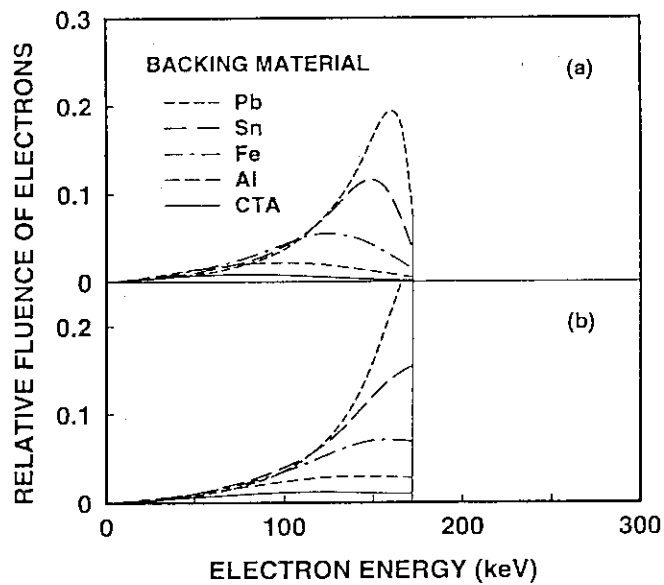


図5.8 単一エネルギーの入射電子による各種基材からの後方散乱電子のエネルギースペクトル。基材に対する電子の入射が、垂直(a), および拡散入射(b)と仮定した場合の比較。

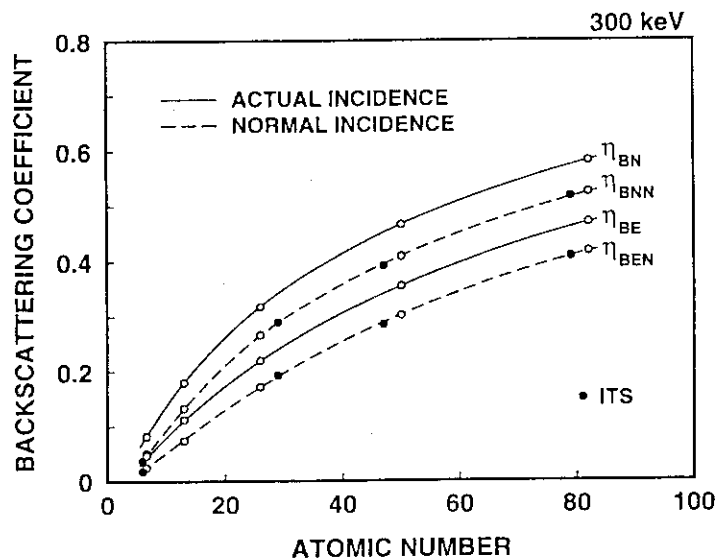


図5.9 電子数およびエネルギー後方散乱係数の原子番号依存性。

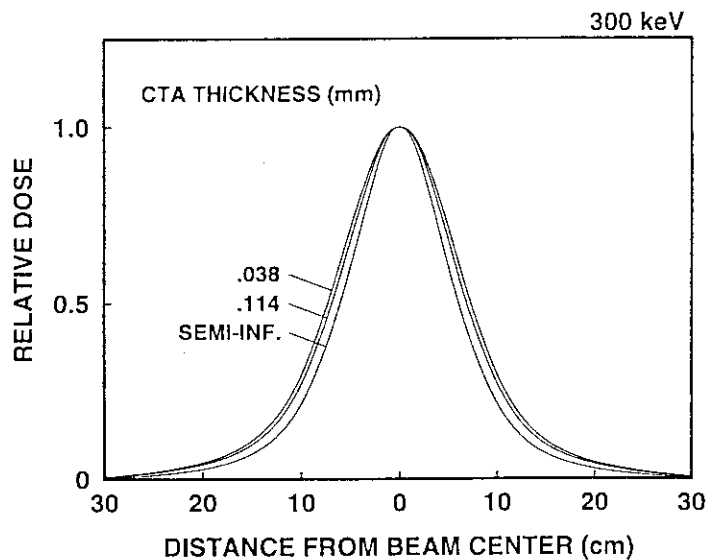


図5.10 フィルム厚さを変化させた場合の表面線量分布。

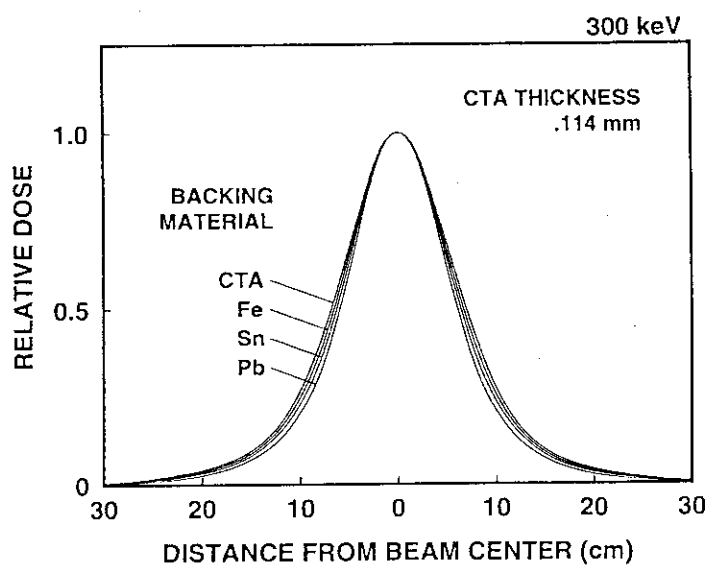


図 5.11 基材の種類を変化させた場合の表面線量分布の変化.

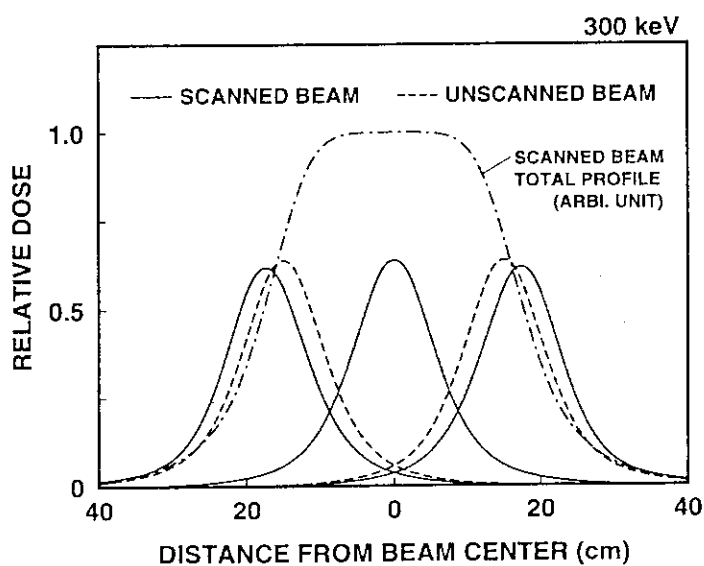


図 5.12 ビーム走査方向の表面線量分布.

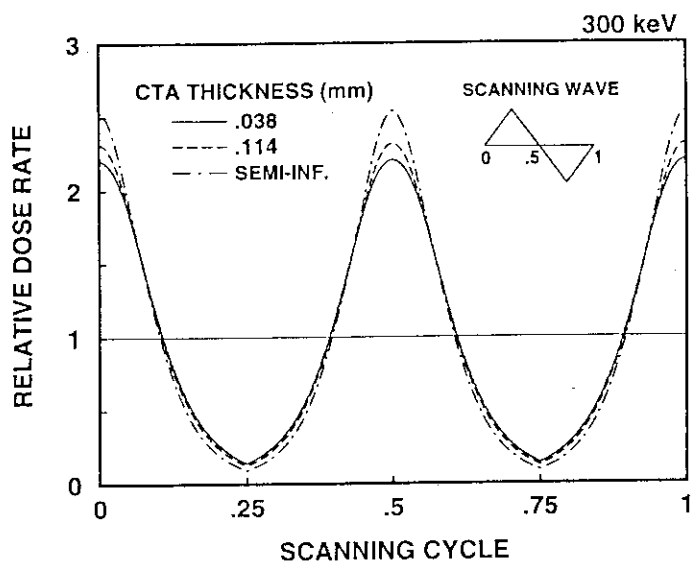


図 5.13 ビーム中心点における吸収線量率の時間的变化.

6. 極表面層の吸収線量評価

6. 1 まえがき

低エネルギー電子線照射における有機薄膜層中の深度線量分布を、積層 CTA フィルム層を用いて実測した結果、実用照射条件下で極表面層の吸収線量の実測値と計算値の間に差が見られることを第3章で示した。Harrah [1, 2] は、プラスチックロッドを 1.35 MeV パルス電子線で高電荷フルエンス ($0.5 \sim 6 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}$) 照射した場合に表面層で吸収線量が低下することを見いだしている。McLaughlin ら [3] も、Radiachromic dye フィルムを用いて 200 および 300 keV の無走査電子加速器を用いた実験で、深度線量分布において絶縁した積層フィルムの場合と沈積電荷を放電するために $9 \mu\text{m}$ 厚さのアルミホイルを挿入した積層フィルムでは、表面近傍で差があること、さらに 400 keV 走査電子線照射における積層 Gafchromic フィルムを用いた実測値とマイラー中の計算値が同様に表面近傍で違いがあることを報告している。彼らはこれらの差異についてさらに検討を進め、荷電担体捕捉剤の添加により表面層の吸収線量が増加すること、低電荷フルエンスの場合には、計算値との差が小さくなることを見いだした。これらの結果をもとに、この原因は入射電子の電荷蓄積によるもので、電子の沈積率が大きい場合 ($1 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 以上) に起きると結論している。

電子飛程が絶縁体の厚さより短い場合に、絶縁体内部に空間電荷による高電界が形成されることの最初の定量的研究は Gross ら [4-7] によって行われ、絶縁破壊を起こすに十分な高電界が絶縁体内部に形成されることを示した。Lackner ら [8] は $0.1 \text{ C}\cdot\text{cm}^{-2}$ オーダーの高電流密度のパルス電子線照射によって形成された内部の高電界が、後続の入射電子の飛程を減少させることを蛍光写真の観察によって見出した。Raugh ら [9] は厚さの異なる薄い PMMA 板を透過した電子のエネルギー吸収の割合から電子飛程の減少を確認した。一方、Harrah [1] も電子線感受性プラスチック共重合体を用いて $1 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}$ 以上の電荷フルエンスの場合に深度線量分布が表面側に移動することを報告している。真空中の照射では Kotera ら [10] は $5 \text{ nC}\cdot\text{cm}^{-2}$ 以上の電荷フルエンスで PMMA 中の深度線量分布が表面寄りに移動することを計算で示した。

上述のように空气中照射では、沈積電荷による高電界の発生やこの電界の深度線量分布への影響は高電荷フルエンス率の場合に起きることが報告されている。しかし、積層 CTA フィルムを用いた実測では $0.5 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 以下の比較的低電荷フルエンス率照射の場合にも吸収線量分布の計算値と実験値の間に差異が生じることを第3章で示した。機能性分子素子等の作成を目的とした薄膜製造技術の開発においては、極薄層における電子線の吸収線量の評価は極めて重要である。本章では、上述の $0.01 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}$ 以下の極表面層における吸収線量の実測値と計算値との違いを解明し、有機薄膜層に対する吸収線量評価をより正確に行うために、照射電荷フルエンス率による吸収線量の変化および積層した薄い CTA フィルム中の帯電量の実測を行い、吸収線量評価に必要な因子 (補正項) を検討した [11]。

6. 2 極表面層の吸光度変化に及ぼす外的要因

表面層における計算値と実測値との差は、有機薄膜層を空気中で照射した場合、薄膜層中の酸化生成物による実測値の変動に帰因する可能性がある。CTA フィルムの場合、Matsuda ら [12-14] は照射に基づく着色は CTA 分子上に生成するラジカル成分と照射生成物の酸あるいはカルボニル化合物によることを報告している。前者のラジカルは空気中の O_2 と容易に反応して減衰する不安定成分であり、後者の生成物は照射後の放置時間と共に増加する比較的安定な着色成分である。計算値と実測値のずれが、上述の不安定成分の急速な減衰によるものである可能性があると仮定して、電子線照射後の吸光度の経時変化を検討した。第2章(図2.1)ですでに述べたが、薄層 CTA フィルム(厚さ $38 \mu m$)では、上述の不安定成分は5分以内に急速に減衰して安定成分のみになった。また、安定成分の増加は CTA フィルムの厚さによらないことが分かった。従って、計算値と実測との差異は不安定成分の減衰や安定成分の増加とは無関係であるといえる。

一般に、電子線によって誘起された有機薄膜層中の化学反応は温度や湿度によって影響される。CTA フィルムについても、照射前後は恒温槽で $25^\circ C$, 50 % に維持することができるが、照射中には温度が上昇する場合がある。Tanaka ら [15] は線量率 $1 \text{ MGy} \cdot \text{h}^{-1}$ および照射中の温度が $50^\circ C$ 以下の照射条件のもとでは、照射中の CTA フィルムの温度上昇および湿度の影響は無視できることを報告している。また、Matsuda ら [12] も同一吸収線量に対する光学密度変化は、 $50^\circ C$ 以下では温度が高いほど大きくなるが、湿度については顕著な影響がないことを報告している。そこで、予備的に照射直後の CTA フィルムの表面温度をスポット型赤外線放射温度計(TA-0510bF, ミノルタカメラ)を用いて実測した。電荷フルエンス率 $0.047 \mu C \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ の電子ビーム中をコンベアを用いて10回通過させた後の積層 CTA フィルムおよび比較のための金属基材上に直接置いた CTA フィルムの表面温度上昇は、それぞれ 3 および $1^\circ C$ であり、 $0.47 \mu C \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合にはそれぞれ 10 および $3^\circ C$ であった。従って、照射中に CTA フィルムが $50^\circ C$ 以上になることはないの、計算値と実測値との差異は温度や湿度等の外的要因によるものではないと結論できる。

6. 3 深度線量分布と照射電荷フルエンス率の関係

電子加速器のビーム電流値を 0.03 , 0.075 , 0.15 , 0.3 , 3 mA (フィルム面における電荷フルエンス率は各々 0.047 , 0.118 , 0.235 , 0.47 , $4.7 \mu C \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)とした場合の動的照射の深度線量分布の実測値を図6.1に示す。同図には、表面から深さ $0.06 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$ までの表面層部分のみの分布を示した。 0.075 mA 以下では表面層での吸収線量の低下が見られないのに対して、 0.15 mA 以上ではビーム電流値の増加と共に吸収線量の実測値は大きく低下する。電荷フルエンス率とフィルム表面(1枚目)の吸収線量の関係を図6.2に示す。この図の解析から $0.12 \mu C \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ までは、吸収線量の変化は認められず、 $0.12 \sim 0.6 \mu C \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ の範囲では電荷フルエンス率の増加と共に

に吸収線量が低下し、 $0.6 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 以上では吸収線量の低下の割合が小さくなり、沈積電荷量は殆ど飽和すると結論できる。

CTA, Al, Fe, Sn, Pb の各基材の上に置いた薄層 CTA フィルム 3 枚 ($114 \mu\text{m}$) を、低線量率 (電荷フルエンス率 $0.047 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) で照射した場合の深度線量分布の実測値と計算値を図 6. 3 に示す。図中で点線 (AIR, VACU) は、それぞれ基材が空気および真空の場合の計算値である。いずれの場合も実測値と計算値はよい一致を示している。一方、図 6. 4 は電荷フルエンス率 $0.47 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合の実測値と計算値を示す。なお、この場合の点線は実測点変化を示すために描いたものである。高電荷フルエンス率の場合には吸収線量の実測値が計算値よりも小さく、第 1 層におけるこの差は CTA 基材の場合を除いてほぼ同一である。

6. 4 沈積電子数分布の評価

絶縁性の高い有機物質中の沈積電荷が、深度線量分布に影響することは、電子線照射による実測や計算をもとに報告されている [10, 16, 17]。これらの報告では、エネルギーを失った入射電子が過剰電荷として後続の電子に影響を与えることを想定している。そこで、過剰電荷の影響を考えるために CTA フィルム中の通過電子数と沈積電子数を評価する必要がある。図 6. 5 は、通過電子数、吸収線量、および沈積電子数の分布の計算値を、それぞれ実線、点線、および一点鎖線で示した。沈積電子数は、沈積電子の層外への流出や、入射電子による CTA 層表面からの電子や原子の叩き出しがないと仮定して計算した。縦軸は各分布の最大値を 1 として、相対値で示した。通過電子数は深部になるに従い急速に減少するが、飛程末端部を除けば、ほぼ直線的に減少する。また、運動エネルギーを失って CTA 中に沈積した入射電子の分布は、表面より約 $0.03 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}$ (CTA フィルム 6 枚分, 0.228 mm) の深さの位置に最大値があり、表面から 0.114 mm (CTA フィルム 3 枚) 以内の部分でも電子の沈積量は比較的多い。一般的に 300 keV 電子線による表面層からの電子や原子の叩き出しは表面から $0.001 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}$ 以内 [18, 19] であり、沈積電荷分布を左右するほどの影響力はない。

6. 5 表面電荷密度の測定

帯電した物質中の電荷量測定には、いくつかの方法が考案されている [20-23]。フィルム中の沈積電荷量はファラデーケージ (Faraday Cage) を用いることによって測定できるが、電子線の照射後積層フィルムを直ちにケージ内に入れて測定することは操作上困難である。従って、ここでは照射直後ただちにフィルムの表面電荷密度を測定した。ビーム中心に置いた半無限厚さの積層 CTA フィルム ($100\times 100\times 5 \text{ mm}$) を静的照射し、遠隔操作によって照射後、対面電極を試料上に近づけエレクトロメータ (Model 617, KEITHLEY Instruments Inc.) で表面電荷密度を測定した。測定値の経時変化を連続的に記録し、得られた減衰曲線の外挿により照射直後の表面電荷密度を求めた。表面電荷密度 ρ_s は次式によって求められる [24]。

$$\rho_s = -\frac{VC}{A} \left\{ 1 + \frac{\epsilon_2 h_1}{\epsilon_1 h_2} \right\} \quad (6.1)$$

ここで、 V は誘起電圧 (V), C は電極間に並列に入れたコンデンサーの容量 (F), A は誘導電極の表面積 (cm^2), ϵ_1, ϵ_2 は空気, フィルムの比誘電率, h_1, h_2 は空気, フィルムの各層の厚さ (cm) である. CTA フィルムの比誘電率は誘電体測定用電極 (HP164 51, YHP Ltd.) と LCR メータ (HP 4263A, YHP Ltd.) を用いて測定した. 単層および積層 CTA フィルムの 0.1 kHz における比誘電率は, それぞれ 3.01 および 2.90 である. 積層フィルムでは層界面があるため単層に比べて, 比誘電率は少し減少した.

図 6. 6 に, 静的照射の場合の積層 CTA フィルムの表面電荷密度と吸収線量の関係を示す. 吸収線量の増加と共に, 60 kGy までは表面電荷密度は直線的に増加するが, それ以上では電荷密度は飽和 ($4.71 \times 10^{-10} \text{C} \cdot \text{cm}^{-2}$) する傾向にある. 動的照射の場合の飽和表面電荷密度は $5.87 \times 10^{-10} \text{C} \cdot \text{cm}^{-2}$ である. いずれの場合でも, フィルム表面の電位は約 1.8 kV であった.

6. 6 深度沈積電荷量の測定

CTA フィルムの吸収線量が 1.8 keV の電位で影響されるかどうかについて基板に課電して検討した. Fe 基材上に CTA フィルムを 3 枚積層し, 基板に正負の電位を印加して動的照射した. 図 6. 7 は, 基材に 0 および ± 3 kV の電位を印加した場合の CTA フィルム 3 層の深度線量分布を示す. 0 kV は基材を接地した状態を示し, 通常の照射方法である. 0 kV の場合の吸収線量に比べて正電位の場合にはやや増加し, 負電位の場合には逆に減少する. すなわち, フィルム内部に形成される比較的小さい電界によって, CTA フィルムの吸収線量は増減することがわかった.

電子線照射により CTA フィルム中に沈積する電荷量をファラデーケージ法で実測した. 動的照射後の積層 CTA フィルムの全体, および CTA フィルムを一枚ずつ分離してファラデーケージ (SHIMADZU RIKKA Instruments Co., LTD., ケージ容量 24.8 pF) に入れ, 静電気電界強度計 (EVL-3R, SIMCO JAPAN Inc.) を用いて沈積電荷量の経時変化を測定した. 照射後の時間経過による電荷量の補正を行い照射直後の電荷量を求めた.

図 6. 8 は, 図 6. 7 で使用した各フィルム中の電荷量の実測値を示す. 横軸の深さ 0 はフィルム表面, $0.0147 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$ は基板との境界面を示す. 図中で, 点線は通常の開放状態, 実線は外部雰囲気の影響を除去するためにフィルムを薄い Al 膜 ($9 \mu\text{m}$ 厚) で覆い, 基板と同電位として照射した場合である. いずれの場合でもフィルムの 1 層目には正, 3 層目には負電荷が存在する. また, ± 3 kV の電位が存在する場合には正負電荷量の差が大きくなり, 負電位を印加した場合は 2 層目まで正電位になることが分かった. 表面を薄い Al 膜で覆い基材と同電位とした場合には, 変化は小さくなるが正負電荷領域の存在は同様である.

図 6. 9 は, 半無限厚さの積層 CTA フィルムの深度沈積電荷分布の実測を, 静的,

動的照射で行い、電荷量の最大値を1とした相対値で示した。動的および静的照射のいずれの場合でも表面層に正、深部に負電荷領域が存在する。また、正および負電荷量は静的照射の場合にはそれぞれ 4.76 および $7.90 \times 10^{-10} \text{C} \cdot \text{cm}^{-2}$ 、動的照射の場合にはそれぞれ 2.72 および $6.64 \times 10^{-10} \text{C} \cdot \text{cm}^{-2}$ であることが分かった。

6. 7 各種フィルムの沈積電荷の評価

積層 CTA フィルムを、電荷フルエンス率 $0.047 \mu\text{C} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ で電子線照射した場合には表面層に正電荷領域、深部に負電荷領域が形成されることを明らかにした。この帯電現象が有機材料における一般的現象であるかどうかを知るために、CTA フィルム以外の積層フィルムについても深度沈積電荷量分布を実測した。その結果、フィルムの種類により帯電様式に差があることが分かった。定性的な結果として、Polyethylene (PE), Polytetrafluoroethylene (PTFE) フィルムは CTA フィルムと同様に、表面層には正電荷領域が存在し、Polystyrene (PS), High density polyethylene (HDPE) フィルムは帯電量が小さく、正電荷領域の存在は不明瞭であった。また、Polyvinylidene fluoride (PVDF) フィルムはほとんど帯電しなかった。電子線照射によるフィルムの帯電は、ラジオフィルムエレクトレットとして研究 [25-28] が行われた。Kajimaki ら [25] は、高帯電性のものに、Polypropylene (PP), Polyethylene terephthalate (PET), Polyvinyl chloride (PVC) フィルム等が、低帯電性のものに Polytetrafluoroethylene-co-hexafluoropropylene (FEP), Low density polyethylene (LDPE), HDPE, Polyimide (PI), PS, FEP フィルム等があることを報告しており、上述の実測結果と一致する。実測した CTA を初めとする高帯電性積層フィルムの場合には、いずれも表面層に明確な正電荷領域の存在を示し、全電荷量の極性は負電荷を示した。

6. 8 フィルム表面における正電荷発生を検討

電子線照射による絶縁体の帯電効果については、Cazaux [29] は簡単な静電気理論を用いた解釈を試み、その後 Lehuède [30] と共に放出粒子の全収率に基づいた物理的説明を行った。Gressus ら [31] は絶縁体中の電子捕獲に基づく帯電現象の理論的解析を行った。また、Dyrkov ら [32] は $50 \sim 200 \text{ keV}$ 電子線で、絶縁体を照射した場合の、電流密度と電荷による電場の強さの分布を調べた。Vallayer ら [33] は電子線照射による帯電現象を電子線量と電位変化について測定し、(1) 電位は電子線量に比例する、(2) 臨界空間電荷に達したときに起こる定常漏れ電流の出現により電位は飽和する、(3) 連続的な電子の捕捉-非捕捉に対応する材料構造の変化により電位と電子線量は複数の極大をもつ、ことを報告した。

入射電子による CTA フィルム原子のはじき出し断面積を計算 [34] して図 6. 10 に示す。はじき出しエネルギー (E_d) を 25 eV として計算した。参考のために、Si, Al, Fe の計算値についても示した。入射電子 (平均電子エネルギー 207 keV) による CTA フィルム原子のはじき出しが十分に起きていることが分かる。

300 keV 電子線による電子のはじき出し等による正電荷領域は、真空中で照射した場合には Andreo ら [18] による炭素の計算や Frederickson ら [19] によるポリエチレンの実験でも、試料表面から $0.00125 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}$ 以内にあり、フィルム厚さに比べて十分小さいことが報告されている。一方、Roguv [39] が絶縁体中の境界近くの熱化した電子の空間分布 (体積電荷分布) は、空气中で照射した場合には非常に小さいことを計算で示しており、結果として真空中照射の場合に比べて電子のはじき出し等によって生じた正電荷領域は大きいことが推定される。本研究の実測から得られた正電荷領域はこれらの推定値よりもかなり大きい。福永 ら [36] は、ポリイミドフィルムに直流電界を印加した場合のフィルム中の空間電荷分布を測定し、フィルムの表裏面層に比較的大きな領域をもつ正負電荷が形成されること、負電荷は短時間で飽和するが正電荷は時間と共に増加し厚さ方向に広がることを報告している。彼らは、正電荷領域の広がりには沈積負電荷による電界により、内部の比較的浅い準位に存在している電子が伝導に寄与するためとしている。本研究においても、極表面層の正電荷領域について同様の理由が考えられる。すなわち、極表面層には入射電子による電子原子の叩き出し等に起因する正電荷が生じる。また運動エネルギーを失った入射電子によって深部には過剰の負電荷が沈積される。負電荷は物質の性質で決まる伝導条件で、短時間のうちに飽和する。一方、正電荷は表面から容易に注入されと考えられる。このため、正負電荷の境界付近の電子は内部電界によって表面側に移動し正電荷領域は拡大する。一般的に、高分子表面には電荷を授受しやすい浅い準位の伝導キャリアが多数存在していること、また積層フィルムでは単層フィルム (バルク) に比べて界面が多数存在するために、この傾向は促進される。但し、帯電の様相はフィルムの分子構造および製造方法にも影響することが知られており [37, 38]、個々のケースについてはより詳細に検討する必要がある。

6. 9 結論

電荷フルエンス率約 $0.5 \text{ }\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ で積層 CTA フィルムを照射した場合に、極表面層における吸収線量の実測値が計算値より低下する現象を解明するため、実測および計算を行った。それらの結果を要約して以下に示す。

- (1) 電子線照射時の電荷フルエンス率を $0.05 \text{ }\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 以下にして照射した場合には、基材の種類を変化させた場合でも実測値と計算値は一致する。
- (2) フィルム表面層の吸収線量分布は比較的小さな背面電位によって影響を受ける。
- (3) 薄い積層 CTA フィルムの沈積電荷を実測した結果、高線量率の場合、表面層に正電荷領域、深部に負電荷領域が形成される。
- (4) 極表面層の吸収線量が低下する原因には、表面層に形成される正電荷沈積が寄与している。

参考文献

- [1] Harrah L. A. : "Stored charge effects on electron dose-depth profiles in insulators", Appl. Phys. Lett., 17(10), pp. 421-423 (1970).
- [2] Harrah L. A. : "Pulsed electron beam energy deposition profiles using solid radiation sensitive plastics", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-17, pp. 278-283 (1970).
- [3] McLaughlin W. L., Kahn H. M., Farahani M., Walker M. L., Puhl J. M., Seltzer M., Soares C. G. and Dick C. E. : "Low-energy electron dose-distribution measurements with thin-film dosimeters", Beta-Gamma, 4(2+3), pp. 20 (1991).
- [4] Gross B. and Wright K. : "Charge distribution and range effects produced by 3-MeV electrons in plexiglas and aluminum", Phys. Rev., 114, 3, pp. 725-727 (1959).
- [5] Gross B., Dow J. and Nablo S. V. : "Charge buildup in electron-irradiated dielectrics", J. Appl. Phys., 44(6), pp. 2459-2463 (1973).
- [6] Gross B., Sessler G. M. and West J. E. : "Charge dynamics for electron-irradiated polymer-foil electrets", J. Appl. Phys., 45(7), pp. 2841-2851 (1974).
- [7] Gross B., West J. E., Seggern H., Berkley D. A. : "Time-dependent radiation-induced conductivity in electron-irradiated teflon foils", J. Appl. Phys., 51(9), pp. 4875-4881 (1980).
- [8] Lackner H., Kohlberg I. and Nablo S. V. : "Production of large electric fields in dielectrics by electron injection", J. Appl. Phys., 36, 6, pp. 2064-2275 (1965).
- [9] Rauch J. E. and Andrew A. : "Breakdown of dielectrics due to pulsed electrons", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-13(6), pp. 109-118 (1966).
- [10] Kotera M. and Suga H. : "Asimulation of keV electron scatterings in a charged-up specimen", J. Appl. Phys., 63(2), pp. 261-268 (1988).
- [11a] Kijima T., Suga H. and Nakase Y. : "Depth-dose distributions in a thin-layer absorber irradiated by 300-keV electrons", Appl. Radiat. Isot., 45(7), pp. 759-765 (1994).
- [11b] 来島利幸, 中瀬吉昭: "低エネルギー電子線の深部吸収線量分布", 第37回放射線化学討論会, 1P01, pp. 23-24, 北海道 (1994).
- [11c] 来島利幸, 菅博, 中瀬吉昭: "EB照射装置による300 keV電子線の試料表面層吸収線量分布", 電子情報通信学会'94秋大講論, C-365, エレクトロニクス, 2, pp. 43, 宮城 (1994).
- [11d] 来島利幸, 菅博, 中瀬吉昭: "EB照射装置による300 keV電子線の試料表面層吸収線量分布(II)", 電子情報通信学会'95総大講論, C-425, エレクトロニクス, 2, pp. 17, 福岡 (1995).

- [12] 松田光司, 永井士郎: "CTAフィルム線量計の着色機構", JAERI-M 8471, 日本原子力研究所 (1979).
- [13] Tamura N., Tanaka R., Mitomo S., Matsuda K. and Nagai S. : "Properties of cellulose triacetate dose meter", Radiat. Phys. Chem., 18, 5-6, pp. 947-956 (1981).
- [14] Matsuda K. and Nagai S. : "Studies on the radiation-induced coloration mechanism of the cellulose triacetate film dosimeter", Appl. Radiat. Isot., 42 (12), pp. 1215-1221 (1991).
- [15] 田中隆一, 三友昭市, 須永博美, 松田光司, 田村直幸: "CTA線量計マニュアル", JAERI-M 82-033, 日本原子力研究所 (1982).
- [16] Tanaka R., Sunaga H. and Tamura N. : "The Effect of Accumulated charge on Depth Dose Profile in Poly (Methylmethacrylate) Irradiated with Fast Electron Beam", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-26 (4), pp. 4670-4675 (1979)
- [17] 田中隆一: "固体絶縁物の放射線照射効果と線量の物理計測", 大阪大学学位論文 (1980)
- [18] Andreo P., Ito R. and Tabata T. : "Tables of charge- and energy-deposition distributions in Elemental materials irradiated by plane-plallal electron beams with energies between 0.1 and 100 MeV", Report RIAST-UOP-TR 1, Res. Inst. Adv. Sci. Tech., Univ. Osaka Prefect. (1992).
- [19] Frederickson A. R. : "Electron beam current penetration in semi infinite slabs", IEEE Trans. Nucl. Scien., NS-28 (6), pp. 4186-4191 (1981).
- [20] 水谷照吉: "固体誘電体中の電荷分布の測定", 応用物理, 57, 7, pp. 996-1003 (1988).
- [21] 上原利夫: "帯電した絶縁物の表面電位測定法", 静電気学会誌, 13 (4), pp. 284-291 (1989).
- [22] 穂積直裕: "絶縁体内部の電荷分布の測定", *ibid.*, 18 (3), pp. 202-203 (1994).
- [23] 和泉健吉: "静電気についての基礎実験, 第II講静電気を計る", *ibid.*, 18, 4, pp. 376-384 (1994).
- [24] Sessler G. M. and West J. E. : "Method for measurement of surface charge densities on electrets", Rev. Scientific Instruments, 42 (1), pp. 15-19 (1971).
- [25] Kajimaki M. and Okada : "Polymer electret by electron irradiation", JAERI-M 7355, pp. 52-56 (1977).
- [26] Kajimaki M. and Okada T. : "Formation of electret in polymers by high energy electron irradiation", JAERI-M 7949, pp. 83-88 (1978).
- [27] Kajimaki M., Takagaki T. and Matsuda K. : "Formation of surface charge on polymer films by electron irradiation", JAERI-M 8569, pp. 138-141 (1979).
- [28] 高分子学会: "高分子科学の展望-2, 1971 Annual Review", 丸善 (1972).

- [29] Cazaux J. : "Introduction to charging effects of insulators by incident electron beams", Microbeam Anal. 1989 (USA), Eds., Romig Jr. A. D. and Chambers W.F., 21st, pp.527-531 (1986).
- [30] Cazaux J. and Lehuède P. : "Some physical descriptions of the charging effects of insulators under incident particle bombardment", J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., 59(1), pp.49-71 (1992).
- [31] Gressus C. L. and Blaise G. : "Insulator surface analysis", J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., 59(1), pp.73-96 (1992).
- [32] Dyrkov V. A. and Kononov A. : "Electrification of dielectrics by fast electrons", Sov. At. Energy (USA), 68(4), pp.316-318, Scientific-technical communications, Plenum Publish. Corp. (1990), Translated from Atomnaya Energiya, 68(4), pp.276-277 (1990).
- [33] Vallayer B., Legressus C., Blaise G. and Treheux D. : "Investigation of insulator electron beam charging effects and related breakdown phenomena", Annual Report, Conference on Electric Insulation and Dielectric Phenomena, National Academy of Sciences, USA, 1992, pp.43-48 (1992).
- [34] 石野栞: "原子力工学シリーズ 8 照射損傷", 東京大学出版会 (1987).
- [35] Rogov Y. V. : "Volume charge near the boundary of a dielectric irradiated with an electron beam", Sov. At. Energy (USA), 70(4), pp.323-326, Plenum Pub. Corp. (1991). Translated Atomnaya Energiya, 70(4), pp.256-257 (1991).
- [36] 福永香, 前野恭: "ポリイミドフィルムの空間電荷蓄積現象の観測", 電子情報通信学会, A, 114(7/8), pp.560-561 (1994).
- [37] 高分子学会編: "静電気ハンドブック", 高分子学会, 地人書館 (1967).
- [38] 静電気学会編: "静電気ハンドブック", 静電気学会, オーム社 (1981).

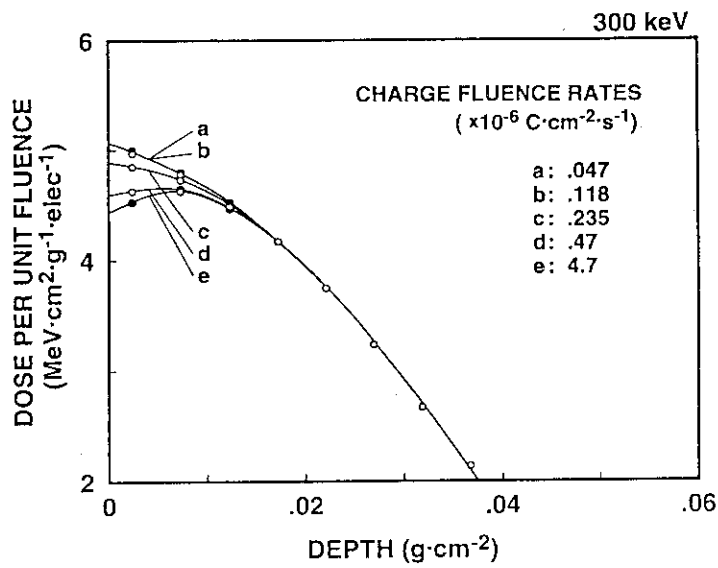


図 6.1 照射電荷フルエンス率による, CTAフィルム中の深度線量分布の表面層の変化.

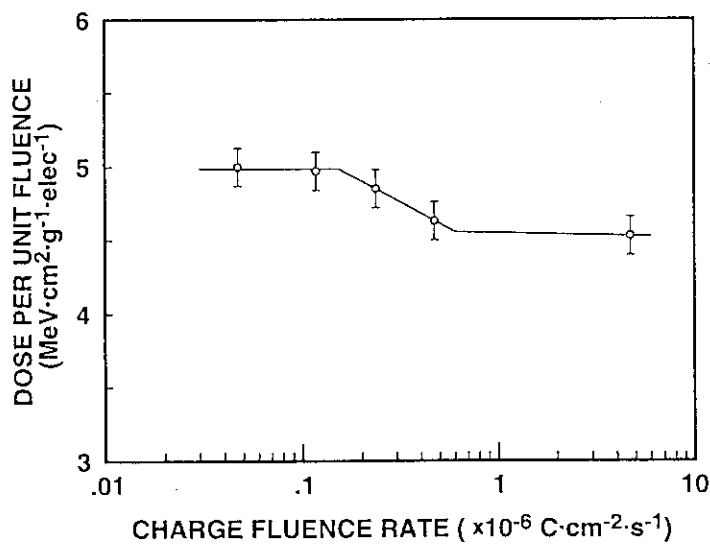


図 6.2 照射電荷フルエンス率による, CTAフィルム(1枚目)中の吸収線量の変化.

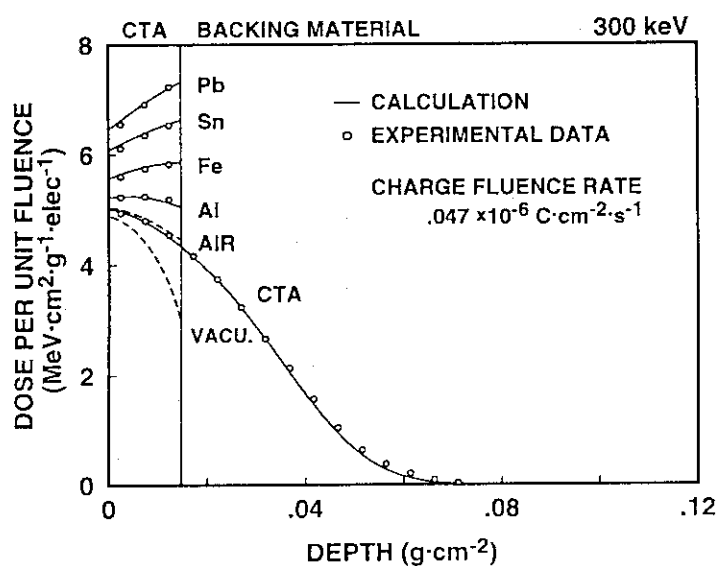


図 6.3 電荷フルエンス率
 $0.047 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ で照射した
場合の深度線量分布の実測
値と計算値.

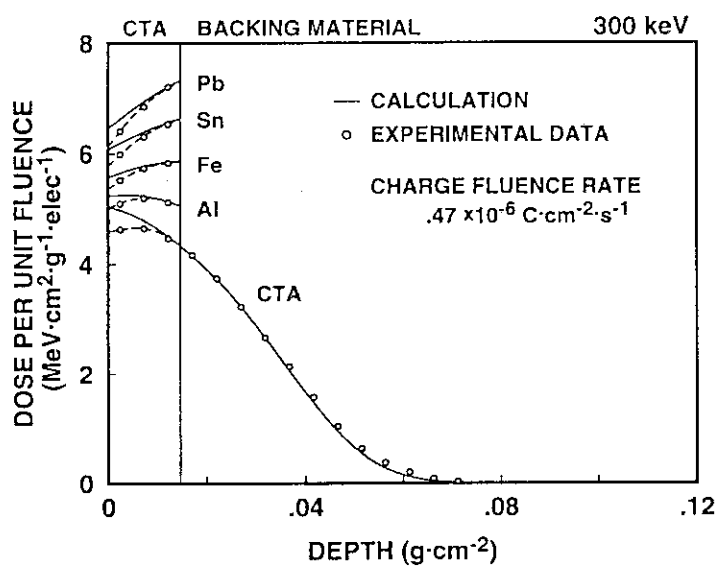


図 6.4 電荷フルエンス率
 $0.47 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ で照射した
場合の深度線量分布の実測
値と計算値.

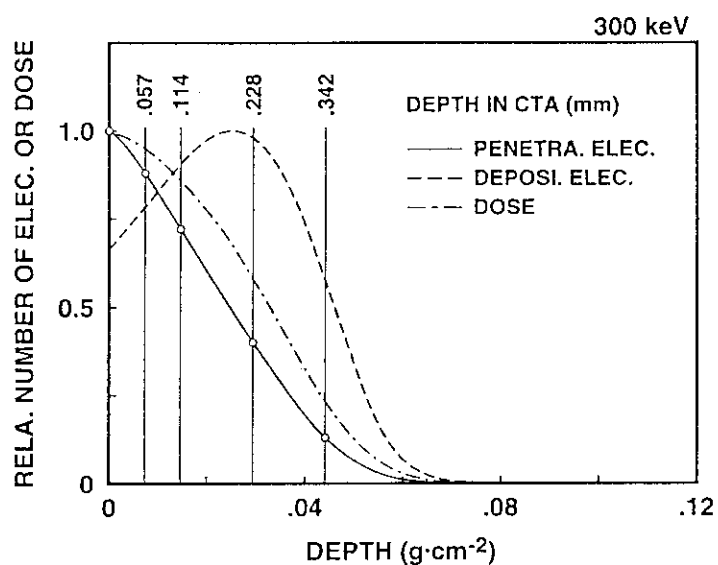


図 6.5 積層CTAフィルム中の通過電子, 吸収線量, および沈積電子数の分布.

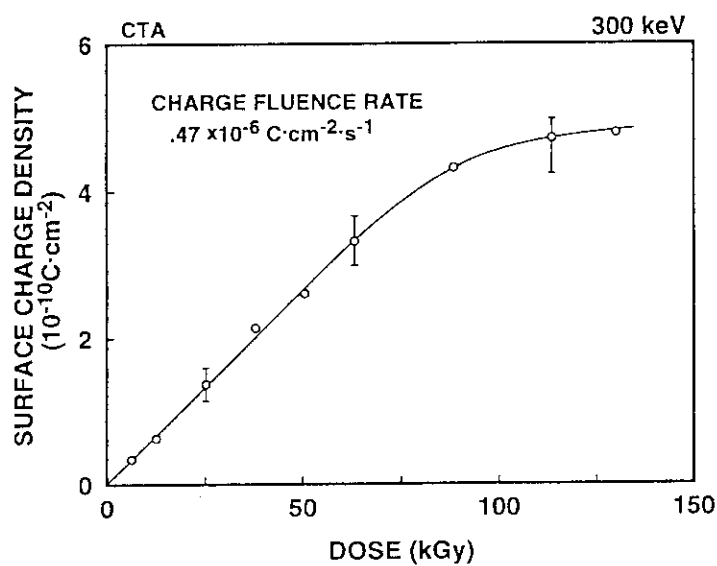


図 6.6 積層CTAフィルムの表面電荷密度と吸収線量の関係.

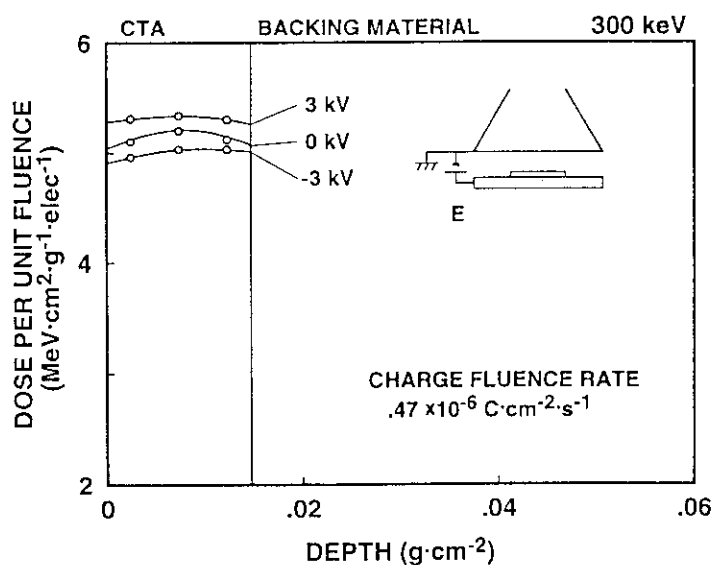


図 6.7 積層CTAフィルムの表面電荷密度と吸収線量の関係.

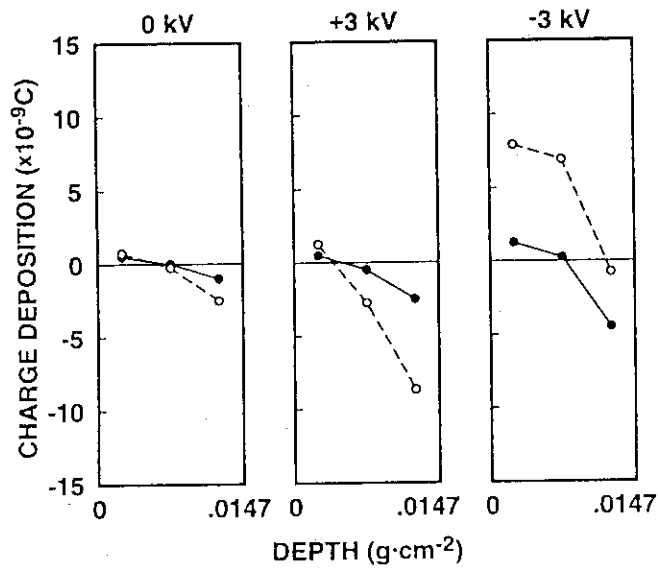


図6.8 荷電基材上のCTA フィルム層(38 $\mu\text{m} \times 3$)の電荷密度
実線:CTAをAl箔で覆った場合
点線:標準状態(覆わない場合)

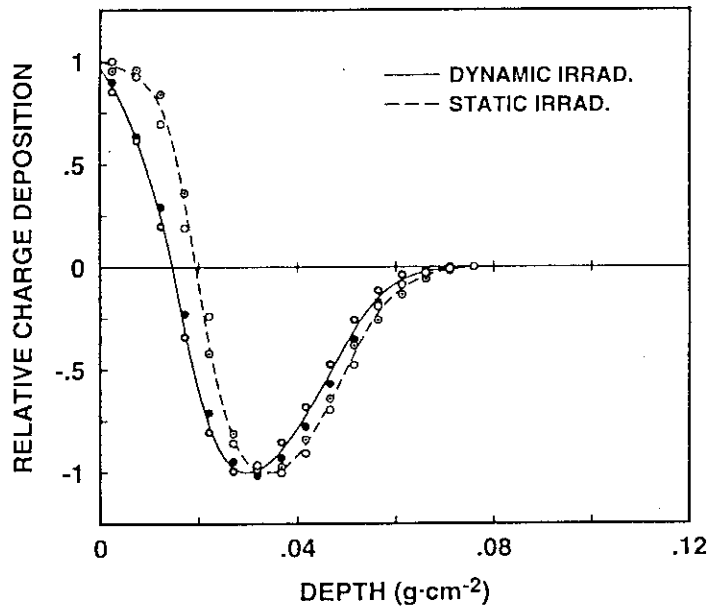


図6.9 半無限厚さの積層CTAフィルム中の電荷密度.

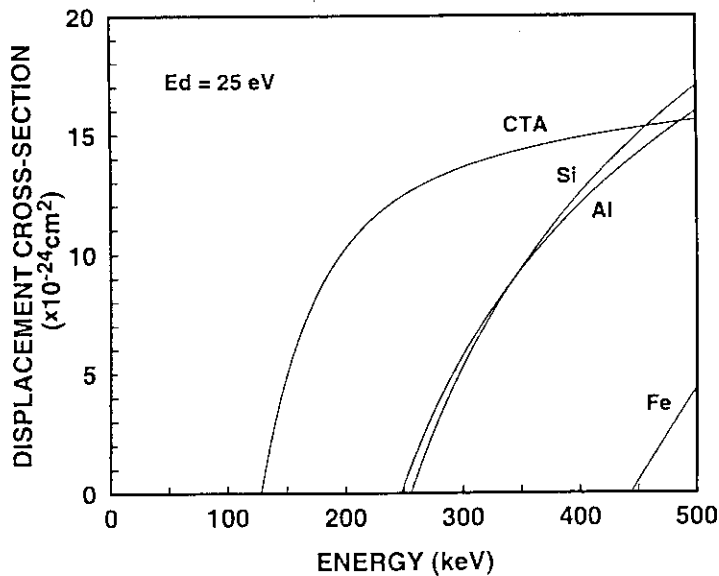


図6.10 入射電子による原子のはじき出し断面積. はじき出しエネルギー $E_d = 25\text{ eV}$ と仮定.

7. 電界を考慮した吸収線量評価法

7. 1 まえがき

絶縁性の被照射体を電子線照射する場合には、一般に照射電子による被照射体への電荷の注入量と被照射体からの流出量が一致しない場合が多く、被照射体は正または負に帯電する。被照射体表面の小さな正または負の帯電は、電子線の入射に対してわずかな加速電圧の増大あるいは減少として働く程度であり大きな問題とはならない。また、空気中で行う電子線照射の場合には、真空中で行う場合に比べて、空気中への漏洩電流が大きいいため被照射体中の帯電量は小さいことは経験的に知られている。しかし、加速電圧や照射電流が大きい工業用電子線照射の場合には、ときには被照射体を破壊するまで帯電する。また、被照射体中に沈積した電荷は内部に電界を形成し、2次電流を誘起して電荷漏洩する。被照射体中の内部電界は、照射中の導電率と電荷沈積率によって決まるが高電界が形成される場合には、引き続いて入射する電子の進入に影響を与え、また、ある条件下では深度線量分布に影響することが報告されている[1-6]。

絶縁体に電子線照射した場合に見られる電子飛程の短縮は、Lackner ら[7]、Rough ら[8]、Harrah [4, 5]等によって報告された。高電流密度短時間照射の場合の、内部電界の形成に伴う電子飛程の減少に対する半定量的な図式は Gross ら[9-11]によって単純な数学的モデルとして与えられ、誘起電流による電荷漏洩の効果についても解析された。Tanakaら[1, 2]は、電子線照射で用いられる相対的に低い電流密度領域について電荷沈積率分布と線量率分布をもとに、1次元の数値解析を行うとともに電子飛程の時間的変動を実験的に求めた。Barkley[12]、Fredericksonら[13]は、入射電子による電荷分布を基に計算を行い内部電界や沈積電荷の時間的解析をした。しかし、こうした研究は絶縁破壊を伴うような極めて高電界が生じる場合であり、当然電子飛程の短縮が伴う。Harrah [4, 5]、McLaughlin ら[6]は、電子の飛程短縮が起こらない程度の電荷フルエンス率照射の場合に絶縁体表面層の吸収線量が低下することを見いだした。相対的に低電流密度で電子線照射する絶縁体中の電荷沈積や帯電現象の研究[14-18]は主として電子線(ラジオ)エレクトレットへの応用として行われてきた。また、それらの現象に対する静電氣的、物理的な解釈も幾つか試みられた[19-23]。

筆者らは低エネルギー電子線照射において、積層 CTA フィルム中に 従来沈積電荷分布の計算値[24-27]として報告されてきた以上に比較的大きな正電荷沈積領域の存在を実測から見だし、表面層の吸収線量に対する帯電の影響が大きいことを第6章で示した。

本章では、電子線照射によって帯電した被照射体中の電子の振る舞いを解析するために、静電界による電子の散乱を考慮したモンテカルロ法による計算評価法を提案し、帯電した CTA フィルム中の深度線量分布を計算して実測値と比較した[28-30]。

7. 2 電界を考慮した電子軌道モデル

電磁界の存在する物質中における電子の振る舞いを、モンテカルロ法で計算するためのモデルはいくつか提案されている [3, 13]。本章では、単一散乱モデルによるモンテカルロ法に、電磁界による電子の偏向を考慮したモデル [3] を使用し、簡単のために静電界のみを取り扱った。図 7. 1 において、点 1 にある電子は Screened Rutherford の式と確率乱数によって散乱方向 (θ_1, ϕ_1) が決定される。静電界による電子の偏向を考慮しない場合には、点 1 から弾性散乱の平均自由行程に等しい距離 Λ_1 だけ直進した点 2 が次の散乱位置となる。このときの電子エネルギー E_2 は非弾性散乱に基づくエネルギー損失量 ΔE だけ低下している。一方、電界による電子の偏向を考慮した場合には、電子の軌道は電界の影響で偏向され点 2' に達する。ここで、 Λ'_1 は Λ_1 に等しい。点 2' における方向は (θ'_1, ϕ'_1) となり、電子エネルギーは E'_2 は非弾性散乱損失 ΔE による低下と、点 1 および点 2' における静電ポテンシャル差によるエネルギー授受が加わったものである。

本計算法では、始めに計算対象とする被照射体中の空間電荷密度分布から内部電位分布を求め、その静電界強度を用いて電子の軌道を求める。そのため、電磁界方程式を差分方程式で表し、逐次加速緩和法によって計算対象領域内部の全ての電位を求める。次に、単一散乱モデルによるモンテカルロ法によって、ステップ毎に静電界中の電子の運動方向を運動方程式を用いて計算する [31]。

7. 2. 1 差分化ポアソン方程式

真空をも含めて誘電体空間における電荷分布によって生じる電位、電界を求める最も一般的な方法は、ポアソンあるいはラプラスの方程式を与えられた境界条件の下で解くことである。しかし、少し複雑な境界条件になれば、解析的に解くことは困難となり、コンピュータを用いた数値計算法が使用される [31, 32]。

電位 V に対して、一様な誘電体空間 (誘電率 ϵ) において電荷が体積密度 ρ で分布している場合にはポアソン (Poisson) の方程式が成立する。

$$\nabla^2 V = -\frac{\rho}{\epsilon} \quad (7.1)$$

直交座標系で表したベクトル微分演算子ラプラシアン (Laplacian)

$$\nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \quad (7.2)$$

を用いると、x-y-z 3次元系におけるポアソン方程式は、次式となる。

$$\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial z^2} = -\frac{\rho}{\epsilon} \quad (7.3)$$

図 7. 2 のように領域内部に格子点を設定すると、点 0 (x_0, y_0, z_0) に隣接する格子点の各電位 $V_1 \sim V_6$ はテイラー展開により次式で近似できる。但し、 $A \sim F$ は格子間隔、添字 0 は格子点 (x_0, y_0, z_0) における値を意味する。

$$V_1 = V_0 + \left(\frac{\partial V}{\partial x} \right)_0 A + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} \right)_0 A^2, \quad (7.4)$$

$$V_2 = V_0 + \left(\frac{\partial V}{\partial y} \right)_0 B + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 V}{\partial y^2} \right)_0 B^2, \quad (7.5)$$

$$V_3 = V_0 - \left(\frac{\partial V}{\partial x} \right)_0 C + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} \right)_0 C^2, \quad (7.6)$$

$$V_4 = V_0 - \left(\frac{\partial V}{\partial y} \right)_0 D + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 V}{\partial y^2} \right)_0 D^2, \quad (7.7)$$

$$V_5 = V_0 + \left(\frac{\partial V}{\partial z} \right)_0 E + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 V}{\partial z^2} \right)_0 E^2, \quad (7.8)$$

$$V_6 = V_0 - \left(\frac{\partial V}{\partial z} \right)_0 F + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 V}{\partial z^2} \right)_0 F^2. \quad (7.9)$$

式 (7.4) ~ (7.9) より、格子点 (x_0, y_0, z_0) における各微係数は次式で示される。

$$\left(\frac{\partial V}{\partial x} \right)_0 = \{V_1 C^2 + V_3 A^2 - V_0 (A^2 + C^2)\} / 2O, \quad (7.10)$$

$$\left(\frac{\partial V}{\partial y} \right)_0 = \{V_2 D^2 + V_4 B^2 - V_0 (B^2 + D^2)\} / 2P, \quad (7.11)$$

$$\left(\frac{\partial V}{\partial z} \right)_0 = \{V_5 F^2 + V_6 E^2 - V_0 (E^2 + F^2)\} / 2Q, \quad (7.12)$$

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} \right)_0 = \{V_1 C + V_3 A - V_0 (A + C)\} / O, \quad (7.13)$$

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial y^2} \right)_0 = \{V_2 D + V_4 B - V_0 (B + D)\} / P, \quad (7.14)$$

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial z^2} \right)_0 = \{V_5 F + V_6 E - V_0 (E + F)\} / Q. \quad (7.15)$$

但し、

$$O = AC(A+C)/2, \quad (7.16)$$

$$P = BD(B+D)/2, \quad (7.17)$$

$$Q = EF(E+F)/2. \quad (7.18)$$

式 (7.13) ~ (7.18) および式 (7.3) から、 V_0 について解くと次式が得られる。

$$V_0 = \{(V_1 C + V_3 A)PQ + (V_2 D + V_4 B)OQ + (V_5 F + V_6 E)OP + \rho OPQ/\epsilon\} / R. \quad (7.19)$$

但し,

$$R = (A + C)PQ + (B + D)OQ + (E + F)OP. \quad (7.20)$$

すなわち, 格子点 (x_0, y_0, z_0) における電位 V_0 は周囲の近接格子点電位 $V_1 \sim V_6$ から求めることができる. 特に, $A = B = C = D = E = F = 1$ とした場合には次式となる.

$$V_0 = (V_1 + V_2 + V_3 + V_4 + V_5 + V_6 + \rho/\epsilon) / 6. \quad (7.21)$$

また, 格子点 (x_0, y_0, z_0) における偏微係数は, その格子点に隣接する各電位 $V_1 \sim V_{16}$ を用いて次式で表せる.

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial y}\right)_0 = \{V_7 - V_8 + V_9 - V_{10}\} / (AB + BC + CD + AD), \quad (7.22)$$

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial y \partial z}\right)_0 = \{V_{12} - V_{14} + V_{18} - V_{16}\} / (BE + DE + DF + BF), \quad (7.23)$$

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial z}\right)_0 = \{V_{11} - V_{15} + V_{17} - V_{13}\} / (AE + EC + CF + AF). \quad (7.24)$$

従って, 格子点以外の位置 $P(x, y, z)$ における微係数および電位 V_P は次式で与えられる.

$$\left(\frac{\partial V}{\partial x}\right)_P = \left(\frac{\partial V}{\partial x}\right)_0 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2}\right)_0(x - x_0) + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial y}\right)_0(y - y_0) + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial z}\right)_0(z - z_0), \quad (7.25)$$

$$\left(\frac{\partial V}{\partial y}\right)_P = \left(\frac{\partial V}{\partial y}\right)_0 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial y^2}\right)_0(y - y_0) + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial y}\right)_0(x - x_0) + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial y \partial z}\right)_0(z - z_0), \quad (7.26)$$

$$\left(\frac{\partial V}{\partial z}\right)_P = \left(\frac{\partial V}{\partial z}\right)_0 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial z^2}\right)_0(z - z_0) + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial z}\right)_0(x - x_0) + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial y \partial z}\right)_0(y - y_0). \quad (7.27)$$

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2}\right)_P = \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2}\right)_0, \quad (7.28)$$

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial y^2}\right)_P = \left(\frac{\partial^2 V}{\partial y^2}\right)_0, \quad (7.29)$$

$$\left(\frac{\partial^2 V}{\partial z^2}\right)_P = \left(\frac{\partial^2 V}{\partial z^2}\right)_0. \quad (7.30)$$

$$\begin{aligned}
V_P = & V_0 + \left(\frac{\partial V}{\partial x} \right)_0 (x-x_0) + \left(\frac{\partial V}{\partial y} \right)_0 (y-y_0) + \left(\frac{\partial V}{\partial z} \right)_0 (z-z_0) \\
& + \frac{1}{2} \left\{ \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} \right)_0 (x-x_0)^2 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial y^2} \right)_0 (y-y_0)^2 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial z^2} \right)_0 (z-z_0)^2 \right. \\
& \left. + 2 \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial y} \right)_0 (x-x_0)(y-y_0) + 2 \left(\frac{\partial^2 V}{\partial y \partial z} \right)_0 (y-y_0)(z-z_0) + 2 \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial z} \right)_0 (x-x_0)(z-z_0) \right\}. \quad (7.31)
\end{aligned}$$

7.2.2 誘電体空間の電位分布

誘電体空間の電位分布を，逐次加速緩和法 SOR (Successive Over-Relaxation) で求める．すなわち，境界の電位と境界内部の空間電荷密度を用いて領域内の格子点電位を，差分方程式 (7.19) によって計算する．

$$V_{0(k+1)} = \{ (V_{1(k)} C + V_{3(k)} A) PQ + (V_{2(k)} D + V_{4(k)} B) OQ + (V_{5(k)} F + V_{6(k)} E) OP + \rho OPQ / \epsilon \} / R. \quad (7.32)$$

但し， k は電位計算の更新回数を示す．格子点電位は，式 (7.19) を繰り返し，全ての内部格子点の収束値として得られるが，収束を早めるために加速緩和係数 ω を用いて次式のように表す．

$$V_{0(k+1)} = V_{0(k)} + \omega \{ (V_{1(k)} C + V_{3(k)} A) PQ + (V_{2(k)} D + V_{4(k)} B) OQ + (V_{5(k)} F + V_{6(k)} E) OP - R V_{0(k)} + \rho OPQ / \epsilon \} / R. \quad (7.33)$$

$\omega = 1$ の場合には，式 (7.19) に一致する．さらに， $V_{0(k+1)}$ を求める時点では V_3, V_4, V_6 の $k+1$ 回目の値が分っていることを用いて，実際の計算では次式とする．

$$V_{0(k+1)} = V_{0(k)} + \omega \{ (V_{1(k)} C + V_{3(k+1)} A) PQ + (V_{2(k)} D + V_{4(k+1)} B) OQ + (V_{5(k)} F + V_{6(k+1)} E) OP - R V_{0(k)} + \rho OPQ / \epsilon \} / R. \quad (7.34)$$

ω の値は，格子点の設定に大きく依存しており最適な値を選ぶことは容易ではないが，一般には次の経験式が良く用いられる [33]．

$$\omega = \frac{2}{1 + \sin(\pi/\sqrt{N})}. \quad (7.35)$$

ここで， N は領域内格子点の総数である．但し，周辺部の境界条件が全て微係数で与

えられているときは、式 (7.35) の $\sqrt{N}$ の代わりに $1.5\sqrt{N}$ を用いる [34].

7.2.3 電子軌道計算

一般に電荷 e を持つ粒子の質量を m 、その位置ベクトルを $\mathbf{r}$ とすれば、任意の時刻 ($t > 0$) における運動方程式は次式で表される。

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = m \frac{d\mathbf{v}}{dt} = e (\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (7.36)$$

ここで、 E は電界の強さ、 v は粒子速度、 B は磁界密度である。今、静電界中での電子の運動を考えるため電界 E の項のみを考慮すれば、次式となる。

$$\frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = \eta \mathbf{E} \quad (7.37)$$

ここで、 η は電子の比電荷である。

$$\eta = e/m \quad (7.38)$$

従って、直交座標系では式 (7.37) は次式のように表される。但し、この項では全て x - y - z 3次元系であるが、簡略のため各式では x 成分についてのみ表示する。

$$\frac{d^2 x}{dt^2} = \eta E_x = -\eta \frac{\partial V}{\partial x} \quad (7.39)$$

ここで、時刻 $t = 0$ において座標 (x_0, y_0, z_0) にあった電子の t 秒後の位置 (x, y, z) 、および速度を時間 t の級数展開近似によって、次のように表す。但し、添字 0 は位置 (x_0, y_0, z_0) における値を意味する。

$$x = x_0 + \left(\frac{dx}{dt}\right)_0 t + \frac{1}{2} \left(\frac{d^2 x}{dt^2}\right)_0 t^2 + \frac{1}{6} \left(\frac{d^3 x}{dt^3}\right)_0 t^3, \quad (7.40)$$

$$\frac{dx}{dt} = \left(\frac{dx}{dt}\right)_0 + \left(\frac{d^2 x}{dt^2}\right)_0 t + \frac{1}{2} \left(\frac{d^3 x}{dt^3}\right)_0 t^2 \quad (7.41)$$

一方、2階(加速度)および3階微係数は式 (7.39) から次式で表される。

$$\frac{d^2 x}{dt^2} = -\eta \left(\frac{\partial V}{\partial x}\right)_0 \quad (7.42)$$

$$\frac{d^3 x}{dt^3} = -\eta \left[\left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2}\right)_0 \left(\frac{dx}{dt}\right)_0 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial y}\right)_0 \left(\frac{dy}{dt}\right)_0 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial z}\right)_0 \left(\frac{dz}{dt}\right)_0 \right] \quad (7.43)$$

従って、式(7.40)および式(7.41)～(7.43), 式(7.41)および式(7.42), (7.43)より, それぞれ t 秒後の電子の座標と速度は次式で与えられる.

$$x = x_0 + \left(\frac{dx}{dt}\right)_0 t - \frac{\eta}{2} \left(\frac{\partial V}{\partial x}\right)_0 t^2 - \frac{\eta}{6} \left[\left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2}\right)_0 \left(\frac{dx}{dt}\right)_0 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial y}\right)_0 \left(\frac{dy}{dt}\right)_0 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial z}\right)_0 \left(\frac{dz}{dt}\right)_0 \right] t^3, \quad (7.44)$$

$$\frac{dx}{dt} = \left(\frac{dx}{dt}\right)_0 - \eta \left(\frac{\partial V}{\partial x}\right)_0 t - \frac{\eta}{2} \left[\left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2}\right)_0 \left(\frac{dx}{dt}\right)_0 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial y}\right)_0 \left(\frac{dy}{dt}\right)_0 + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x \partial z}\right)_0 \left(\frac{dz}{dt}\right)_0 \right] t^2. \quad (7.45)$$

7.2.4 散乱位置およびエネルギー損失

静電界を考慮した場合の, 単一散乱モデルによる電子の散乱後の位置を求める方法を次に示す. x - y - z 座標軸の取り方は, 電界を考慮しない場合の単一散乱モデルの場合と同一である. 電子の n 番目の散乱位置 (x_n, y_n, z_n) において, 散乱後の電子の速度 v_{n+1} および x, y, z 座標軸に対する速度成分は次式で求められる.

$$v_{n+1} = c \sqrt{1 - \left(\frac{mc^2}{mc^2 + E_{n+1}} \right)^2}, \quad (7.46)$$

$$\left(\frac{dx}{dt}\right)_{n+1} = v_{n+1} \sin \theta_{n+1} \cos \phi_{n+1}, \quad (7.47)$$

$$\left(\frac{dy}{dt}\right)_{n+1} = v_{n+1} \sin \theta_{n+1} \sin \phi_{n+1}, \quad (7.48)$$

$$\left(\frac{dz}{dt}\right)_{n+1} = v_{n+1} \cos \theta_{n+1}. \quad (7.49)$$

ここで, c は光速, E_{n+1} は電子エネルギー, 角度 $(\theta_{n+1}, \phi_{n+1})$ は式(3.21)～(3.25)で与えられる x, y, z 座標軸に対する方向角である. 速度成分は, 電子軌道計算の初期値 ($t = 0$) として用いる. また, 1ステップ進むために必要な時間 t_{n+1} は式(7.28)とステップ長 Λ_{n+1} を用いて, 次式で与えられる.

$$t_{n+1} = \frac{\Lambda_{n+1}}{v_{n+1}}. \quad (7.50)$$

従って, 静電界を考慮した場合の電子の散乱後の座標は, 式(7.10)～(7.15), 式(7.46)～(7.50) および式(7.44), (7.45)を用いて決定できる. 平均自由行程に寄らないス

ステップ長を用いる場合には、 Δ はポアソン方程式の差分化に用いた格子間隔の 1/5 程度とする。また、静電界を考慮した場合の電子の散乱後の速度 v'_{n+1} と方向角 $(\theta'_{n+1}, \phi'_{n+1})$ は、 t_{n+1} 秒後の電子の位置、速度成分を用いて次式で表される。

$$v'_{n+1} = \sqrt{(x_{n+1} - x_n)^2 + (y_{n+1} - y_n)^2 + (z_{n+1} - z_n)^2} \quad (7.51)$$

$$= \sqrt{\left(\frac{dx}{dt}\right)_{n+1}^2 + \left(\frac{dy}{dt}\right)_{n+1}^2 + \left(\frac{dz}{dt}\right)_{n+1}^2}, \quad (7.52)$$

$$\cos \theta'_{n+1} = \left(\frac{dz}{dt}\right)_{n+1} / v'_{n+1}, \quad (7.53)$$

$$\sin \phi'_{n+1} = \left(\frac{dy}{dt}\right)_{n+1} / (v'_{n+1} \sin \theta'_{n+1}), \quad (7.54)$$

$$\cos \phi'_{n+1} = \left(\frac{dx}{dt}\right)_{n+1} / (v'_{n+1} \sin \theta'_{n+1}). \quad (7.55)$$

また、1 ステップ間のエネルギー損失量は式 (3.27) による損失量に、静電界から電子が受けるエネルギーを加えて計算する。

$$E_{n+1} = E_n - \Delta E_{n+1} + (P'_{n+1} - P_{n+1}). \quad (7.56)$$

ここで、 P_{n+1} は散乱前、 P'_{n+1} は静電界を考慮した場合の散乱後の座標点における静電ポテンシャルである。

7.2.4 シミュレーションプログラム

実際のプログラムによる計算順序を次に示す。

- ① シミュレーションの幾何学的な配置と物質の性質を定義する。
- ② 物質中の諸定数 (空間電荷密度、境界電位) を設定する。
- ③ 逐次加速緩和法によりポアソン方程式を解き電位分布を求める。式 (7.34, 35)
- ④ 電界を考慮しない場合の単一散乱モデルによる電子のステップ長、散乱角度を計算する。
- ⑤ 電子の速度および静電ポテンシャルを求める。式 (7.46), (7.31)
- ⑥ 静電界を考慮した場合の 1 ステップ後の電子の座標、静電ポテンシャルを計算する。式 (7.50), (7.44), (7.31)
- ⑦ 1 ステップ間のエネルギー損失を計算する。式 (7.56)
- ⑧ 電子の状態をチェックして、散乱を続けるときは⑥で求めた電子の座標、⑦のエネルギーを新たな計算条件として④へ、計算終了条件を満たしているときは⑨へ。
- ⑨ 統計的に必要な電子数だけ、④～⑧を繰り返す。

以上の主プログラムに、各種の情報を計算するプログラムを追加して実際のシミュレーションプログラムを構成する。また、実際の計算では、計算誤差を小さくするために⑤、⑥における計算に対して、単位の無次元化(正規化)を行った式を用いた[31]。

7. 3 帯電フィルムの深度線量分布計算

静電界による散乱を考慮したモンテカルロ法を用いて、帯電しているフィルム中の深度線量分布を次のように計算する。

7. 3. 1 計算モデル

計算のための幾何学的配置には、第6章の実測条件と同じくコンベア(金属基材)上に置いた厚さ5 mmのCTAフィルム層を、照射窓から10 cmの距離で電子線照射する場合を想定する。従って、計算での上の境界は照射窓、下の境界はフィルムを置くための金属基材で、共に接地電位である。本計算法では、初めにフィルム中の空間電荷密度分布を知る必要があるため、実験的に求めた空間電荷密度分布を用いる。本来、電子加速器から照射された電子によるフィルム中の空間沈積電荷は3次元的な広がりをもっている。しかし、実際の走査型電子線照射装置の場合には、コンベアの移動速度(8 mm/s)に比べてビーム走査の周期(2.5 ms)は十分早い速度に設定されていることから、ビーム走査方向には一様な照射電子数密度の分布であると仮定する。すなわち、図7.3に示すようにビーム走査と垂直な方向のx-z軸断面の沈積電荷分布が、走査方向(y軸)には一様に存在しているとして計算する。

7. 3. 2 フィルム中の電位計算

300 keV 電子線照射の条件のもとでは、第4章で求めたCTAフィルム層への電子の最大侵入深さから、空間電荷の存在は0.6 mm以内に限定される。従って、逐次加速緩和法を用いてポアソン方程式を解く領域は、フィルム表面から0.6 mm以内の部分とする。図7.4に計算上の各領域の境界を示す。ここで、 d_1 、 d_4 は上下の計算上の境界から緩和領域の境界までの距離、 d_2 、 d_3 は緩和領域の境界から負電荷の電荷重心点までの距離、 V_1 、 V_2 は緩和領域の境界電位である。また、ここでは ϵ_1 は空気、 $\epsilon_2 \sim \epsilon_4$ はCTAフィルム各層の比誘電率を示す。緩和法を適用する領域の境界条件の計算には、空間電荷のないところでは電位は直線的变化をすること、および電束連続の条件から次の式が得られる。

$$\epsilon_1 \left(\frac{dV}{dz} \right)_{z_{1-0}} = \frac{V_1}{z_1}, \quad (7.57)$$

$$\epsilon_1 \left(\frac{dV}{dz} \right)_{z_{1-0}} = \epsilon_2 \left(\frac{dV}{dz} \right)_{z_{1+0}}, \quad (7.58)$$

$$\epsilon_4 \left(\frac{dV}{dz} \right)_{z_{2+0}} = \frac{V_2}{z_2 - z_3}, \quad (7.59)$$

$$\epsilon_4 \left(\frac{dV}{dz} \right)_{z2=0} = \epsilon_3 \left(\frac{dV}{dz} \right)_{z2=0} \quad (7.60)$$

ここで、式(7.57)、(7.58)はフィルム表面、式(7.59)、(7.60)はフィルム表面から 0.6 mm の位置における z 軸方向に対する境界条件式である。境界条件下による緩和領域内の電位は反復法によって求める。すなわち、境界電位を初期値 $V_{1(0)}$ 、 $V_{2(0)}$ としてポアソン方程式を解き、そのときの境界電位 V_1 、 V_2 を境界条件式を用いて求める。両者の値が許容範囲で一致するまで、 V_1 、 V_2 を新しい初期値として繰り返し収束値を結果とする。初期値には、緩和計算の収束性を考慮して、正電荷はフィルム表面に、負電荷は負電荷分布の電荷重心に各電荷が集中していると仮定した場合の境界電位を、次式で計算して指定する。この初期値の指定を x 軸方向の全ての位置について行う。

$$V_{1(0)} = \frac{(Q_1 + Q_2)(\epsilon_4 d_3 + \epsilon_3 d_4)}{\epsilon_4(\epsilon_2 d_1 + \epsilon_1 d_2) + \epsilon_1(\epsilon_4 d_3 + \epsilon_3 d_4)} d_1, \quad (7.61)$$

$$V_{2(0)} = \frac{(Q_1 + Q_2)(\epsilon_1 d_2 + \epsilon_2 d_1)}{\epsilon_4(\epsilon_2 d_1 + \epsilon_1 d_2) + \epsilon_1(\epsilon_4 d_3 + \epsilon_3 d_4)} d_4. \quad (7.62)$$

ここで、 Q_1 は正電荷、 Q_2 は負電荷の全電荷量である。

7.3.3 深度線量分布の計算

フィルム中の沈積電荷量は、電荷フルエンス率 0.047, 0.47 および $4.7 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ で照射した場合の実測値を用いた。フィルム中の単位体積当りの電荷量は、電荷フルエンス率 0.047, 0.47 および $4.7 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合について、 $0.12 \times 10^{-9} \text{C}\cdot\text{cm}^{-3}$ (正負電荷量は、それぞれ 0.08 , $0.20 \times 10^{-9} \text{C}\cdot\text{cm}^{-3}$)、 $2.44 \times 10^{-9} \text{C}\cdot\text{cm}^{-3}$ (同、 1.70 , $4.14 \times 10^{-9} \text{C}\cdot\text{cm}^{-3}$)、および $3.52 \times 10^{-9} \text{C}\cdot\text{cm}^{-3}$ (同、 2.45 , $5.97 \times 10^{-9} \text{C}\cdot\text{cm}^{-3}$) である。Kajimaki ら[15]は、フィルムエレクトレットの実験からフィルム中の電荷量は加速電圧、照射線量率に依存しないことを示している。上述の電荷量は、第6章で示した電荷フルエンス率 $0.47 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 場合の通常の実測条件(コンペア 5 pass 照射, 62.5 kGy) および電荷量が飽和する条件(同 10 pass 照射)におけるフィルム中の沈積電荷量とよく一致している。CTA フィルム中の深度線量分布の計算値を図 7.5 に示す。電荷フルエンス率の増加により、極表面層の吸収線量が低下する実測値を十分シミュレーションすることができた。CTA フィルム中の沈積電荷量が $3.52 \times 10^{-9} \text{C}\cdot\text{cm}^{-3}$ の場合のフィルム中の電位は約 1.9 kV, その電界は約 $10 \text{kV}\cdot\text{cm}^{-1}$ である。

後方散乱の多い場合についても検討した結果を次に示す。金属基材の上に置いた薄い CTA フィルムに各種フルエンス率で照射した場合の深度線量分布の計算値を図 7.

6に示す。薄いフィルム中の単位体積当りの電荷量は、 $1.50 \times 10^{-9} \text{C} \cdot \text{cm}^{-3}$ (正負電荷量は、それぞれ $0.57, 2.07 \times 10^{-9} \text{C} \cdot \text{cm}^{-3}$) として計算に利用し、実測値とよく一致する結果が得られた。

Cazaux ら [20] は、絶縁体の帯電効果を2次電子および後方散乱電子の放出係数に基づく考察から、表面層の正電荷の生成には 50~200 eV から 2.5~5 keV の範囲の入射電子が作用することを示している。低エネルギー電子線照射の場合には、被照射体表面に入射する電子には多くの低エネルギー成分と高角度入射成分が含まれていることから、CTA フィルム中の内部電界は低エネルギーの入射電子に対して効果的に作用すると考えられる。この内部電界は、従来被照射体中を透過する電子に影響を与えるとされてきた値よりもかなり小さく、従来報告されているような、電子飛程の短縮は認めれない。しかし、本章で明らかにしたように低エネルギー電子線照射により発生した表面層の正電荷に基づいて形成され、その電界が入射電子に対して極表面層における沈積阻止や再結合による電荷の消滅に働いて、極表面層でのエネルギー付与を小さくしていると考えられる。

7. 4 結論

帯電した被照射体中の電子の振る舞いをシミュレーションするための新しいモンテカルロ法を開発し、帯電した CTA フィルム中の深度線量分布を計算した。

- (1) 単一散乱モデルに、新しく静電界による散乱を考慮したモンテカルロ法線量評価用計算コードを開発した。
- (2) 積層フィルム中の内部電荷量の実測値を用いて、照射電荷フルエンス率を変化させた場合の CTA フィルム中の深度線量分布を本計算コードで計算し、実測値と一致することを確認した。

参 考 文 献

- [1] Tanaka R., Sunaga H. and Tamura N. : "The Effect of Accumulated charge on Depth Dose Profile in Poly (Methylmethacrylate) Irradiated with Fast Electron Beam", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-26 (4), pp.4670-4675 (1979)
- [2] 田中隆一: "固体絶縁物の放射線照射効果と線量の物理計測", 大阪大学学位論文 (1980)
- [3] Kotera M. and Suga H. : "Asimulation of keV electron scatterings in a charged-up specimen", J. Appl. Phys., 63 (2), pp.261-268 (1988)
- [4] Harrah L. A. : "Stored charge effects on electron dose-depth profiles in insulators", Appl. Phys. Lett., 17 (10), pp.421-423 (1970).

- [5] Harrah L. A. : "Pulsed electron beam energy deposition profiles using solid radiation sensitive plastics", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-17, pp. 278-283 (1970).
- [6] McLaughlin W. L., Kahn H. M., Farahani M., Walker M. L., Puhl J. M., Seltzer M., Soares C. G. and Dick C. E. : "Low-energy electron dose-distribution measurements with thin-film dosimeters", Beta-Gamma, 4 (2+3), pp. 20 (1991).
- [7] Lackner H., Kohlberg I. and Nablo S. V. : "Production of large electric fields in dielectrics by electron injection", J. Appl. Phys., 36 (6), pp. 2064-2275 (1965).
- [8] Rauch J. E. and Andrew A. : "Breakdown of dielectrics due to pulsed electrons", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-13 (6), pp. 109-118 (1966).
- [9] Gross B., Dow J. and Nablo S. V. : "Charge buildup in electron-irradiated dielectrics", J. Appl. Phys., 44 (6), pp. 2459-2463 (1973).
- [10] Gross B., Sessler G. M. and West J. E. : "Charge dynamics for electron-irradiated polymer-foil electrets", J. Appl. Phys., 45 (7), pp. 2841-2851 (1974).
- [11] Gross B., West J. E., Seggern H. Berkley D. A. : "Time-dependent radiation-induced conductivity in electron-irradiated teflon foils", J. Appl. Phys., 51 (9), pp. 4875-4881 (1980).
- [12] Berkley D. A. : "Computer simulation of charge dynamics in electron-irradiated polymer foils", J. Appl. Phys., 50 (5), pp. 3447-3453 (1979).
- [13] Frederickson A. R., Woolf S. and Garth J. C. : "Model space charge evolution and dose in irradiated insulators at high electric fields", IEEE Trans. Nucl. Science, 40 (6), pp. 1393-1401 (1993).
- [14] 畑田元義: "エレクトレットについて", 第15回EB懇話会, 大阪 (1993).
- [15] Kajimaki M. and Okada: "Polymer electret by electron irradiation", JAERI-M 7355, pp. 52-56 (1977).
- [16] Kajimaki M. and Okada: "Formation of electret in polymers by high energy electron irradiation", JAERI-M 7949, pp. 83-88 (1978).
- [17] Kajimaki M., Takagaki T. and Matsuda K. : "Formation of surface charge on polymer films by electron irradiation", JAERI-M 8569, pp. 138-141 (1979).
- [18] 高分子学会: "高分子科学の展望-2, 1971 Annual Review", 丸善 (1972).
- [19] Cazaux J. : "Introduction to charging effects of insulators by incident electron beams", Microbeam Anal. 1989 (USA), Eds., Romig Jr. A. D. and Chambers W. F., 21st, pp. 527-531 (1986).
- [20] Cazaux J. and Lehuède P. : "Some physical descriptions of the charging

- effects of insulators under incident particle bombardment", J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., 59(1), pp. 49-71 (1992).
- [21] Gressus C. L. and Blaise G. : "Insulator surface analysis", J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., 59(1), pp. 73-96 (1992).
- [22] Dyrkov V. A. and Kononov A. : "Electrification of dielectrics by fast electrons", Sov. At. Energy (USA), 68(4), pp. 316-318, Scientific-technical communications, Plenum Publish. Corp. (1990), Translated from Atomnaya Energiya, 68(4), pp. 276-277 (1990).
- [23] Vallayer B., Legressus C., Blaise G. and Treheux D. : "Investigation of insulator electron beam charging effects and related breakdown phenomena", Annual Report, Conference on Electric Insulation and Dielectric Phenomena, National Academy of Sciences, USA, 1992, pp. 43-48 (1992).
- [24] Andreo P., Ito R. and Tabata T. : "Tables of charge- and energy-deposition distributions in Elemental materials irradiated by plane-plallal electron beams with energies between 0.1 and 100 MeV", Report RIAST-UOP-TR 1, Res. Inst. Adv. Sci. Tech., Univ. Osaka Prefect. (1992).
- [25] Frederickson A. R. : "Electron beam current penetration in semi infinite slabs", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-28(6), pp. 4186-4191 (1981).
- [26] Frederickson A. R. : "Radiation-induced voltage on spacecraft internal surfaces", IEEE Trans. Nucl. Sci., 40(6), pp. 1547-1554 (1993).
- [27] Rogov Y. V. : "Volume charge near the boundary of a dielectric irradiated with an electron beam", Sov. At. Energy (USA), 70(4), pp. 323-326, Plenum Pub. Corp. (1991). Translated Atomnaya Energiya, 70(4), pp. 256-257 (1991).
- [28] 来島利幸, 中瀬吉昭: "低エネルギー電子線の深部吸収線量分布", 第37回放射線化学討論会, 1P01, pp. 23-24, 北海道 (1994).
- [29] 来島利幸, 菅博, 中瀬吉昭: "EB照射装置による300 keV電子線の試料表面層吸収線量分布(II)", 電子情報通信学会'95総大講論, C-425, エレクトロニクス, 2, pp. 17, 福岡 (1995)
- [30] 来島利幸, 中瀬吉昭: "有機薄層に対する300 keV電子線のモンテカルロシミュレーション", 平7日本原子力研究所大阪研報, P2, pp. 13, 大阪 (1996).
- [31] 菅博: "電磁界内における空間電子流のデジタルシミュレーション", 大阪工業大学中研所報, 13, 2, pp. 113-155 (1980).
- [32] 菅博: "電子銃の設計法に関する研究", 大阪府立大学学位論文 (1969. 12).
- [33] 山内二郎, 森口繁一, 一松信: "数理学シリーズ1, 電子計算機のための数値計算法I", pp. 160-172, 培風館 (1965).
- [34] 森住祥宏: "高パービアンズ軸対象電子銃のデジタルシミュレーション", 電子情報通信学会誌, 50(4), pp. 664-671 (1967).

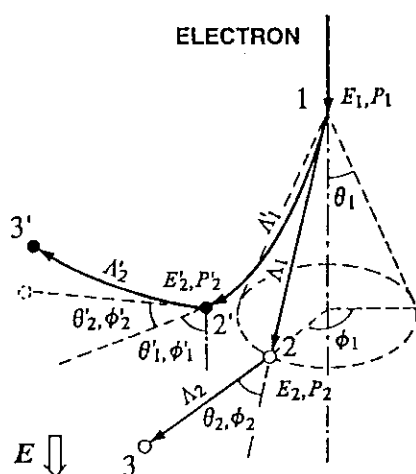
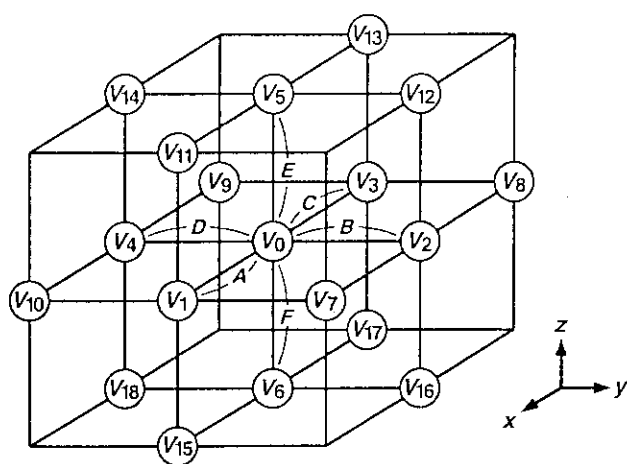


図 7.1 電界を考慮した電子軌道モデル.



$$\begin{aligned}
 V_0 &= V(x_0, y_0, z_0) \\
 V_1 &= V(x_0 + A, y_0, z_0) \\
 V_2 &= V(x_0, y_0 + B, z_0) \\
 V_3 &= V(x_0 - C, y_0, z_0) \\
 V_4 &= V(x_0, y_0 - D, z_0) \\
 V_5 &= V(x_0, y_0, z_0 + E) \\
 V_6 &= V(x_0, y_0, z_0 - F) \\
 V_7 &= V(x_0 + A, y_0 + B, z_0) \\
 V_8 &= V(x_0 - C, y_0 + B, z_0) \\
 V_9 &= V(x_0 - C, y_0 - D, z_0) \\
 V_{10} &= V(x_0 + A, y_0 - D, z_0) \\
 V_{11} &= V(x_0 + A, y_0, z_0 + E) \\
 V_{12} &= V(x_0, y_0 + B, z_0 + E) \\
 V_{13} &= V(x_0 - C, y_0, z_0 + E) \\
 V_{14} &= V(x_0, y_0 - D, z_0 + E) \\
 V_{15} &= V(x_0 + A, y_0, z_0 - F) \\
 V_{16} &= V(x_0, y_0 + B, z_0 - F) \\
 V_{17} &= V(x_0 - C, y_0, z_0 - F) \\
 V_{18} &= V(x_0, y_0 - D, z_0 - F)
 \end{aligned}$$

図 7.2 3次元座標系による格子点配置.

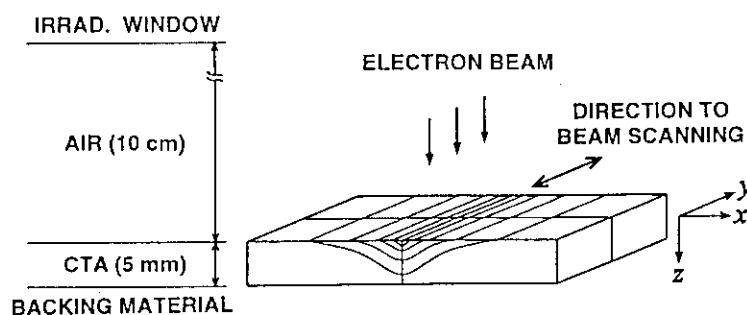


図 7.3 積層CTAフィルムの一様な沈積電荷分布の仮定.

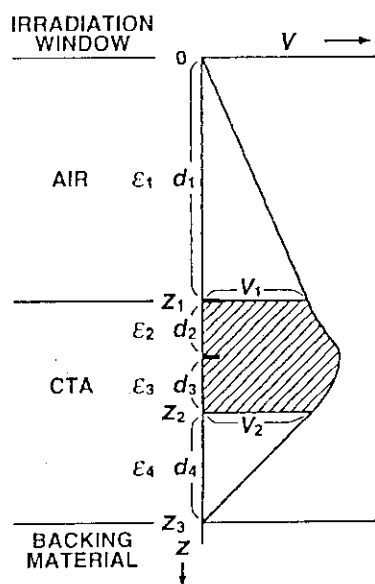


図 7.4 計算上の各領域の境界と電位。

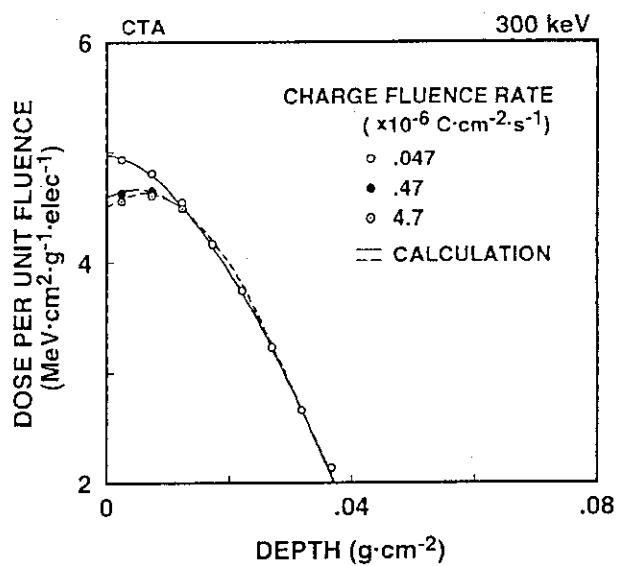


図 7.5 積層CTA フィルム中の深度吸収線量分布

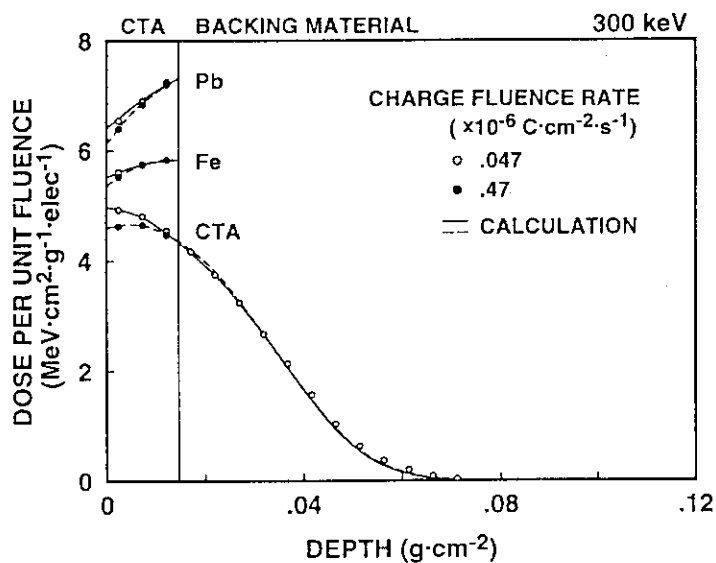


図7.6 各種基材の薄いCTA フィルム中の深度吸収線量分布

8. 吸収線量の簡易計算法

8. 1 まえがき

照射利用の現場では吸収線量の概略値を，加速電圧(初期エネルギー)，加速器ビーム電流，照射幅，コンベア速度等の単純な基本パラメータをもとに簡易な計算法で推定することが必要となる場合が多い．例えば，照射装置の運転条件や照射条件の設定のために，対象とする物質に対する吸収線量の推定は重要である．特に，低エネルギー電子線照射の場合には実測による線量評価が比較的困難であるために，線量算出法の有用性は大きい．そのために，現在までにいくつかの実用的な線量概算式が提案されてきた[1-7]．しかしながら，従来の概算計算式は中高エネルギー領域の電子線照射のために開発されてきたものであるため，照射窓や空気層での電子の散乱やエネルギー損失が大きい低エネルギー電子線照射へ適用して正確さを高めるのは困難であるといわれている[6, 8]．Tanaka ら[8] は，低エネルギー電子線用に改良した線量概算式を用いて，国内外の照射機関の線量相互比較用の測定データをもとに吸収線量を計算し実測値と比較した．その結果，計算値と実測値の間に最高2倍以上の差があることを見出し，その不一致を示す支配的な原因は，実効ビーム電流が正しく評価されていないことを指摘した．そして，実際に被照射体に照射されるビーム電流が正しく求められれば約20%以内の精度で吸収線量を概算できるとしている．一方，被照射体の厚さを考慮したEDMULTによる計算値を上記線量概算式に代入して，動的照射の場合の吸収線量を通常の照射条件下で $\pm 20 \sim 30$ %以内の精度で求める方法[7]もある．筆者らは，従来線量概算式では考慮されなかった照射窓や空気層でのビーム電流の低下をモンテカルロ計算による電子数透過率で補正し，電子散乱による広がりについて等価ビーム幅を考慮することによって，ビーム電流から有機薄膜層に対する吸収線量を正確に評価することを，静的および動的照射の場合について検討した[9]．

本章では，電子の初期エネルギー，ビーム電流，被照射体表面電流密度と吸収線量率の関係を，静的および動的照射の場合について実測と計算によって明確にし，電流密度と吸収線量率の関係を示す吸収線量係数を求めた．次に，被照射体表面における電流密度を従来より正確に評価し，それらの値を用いて線量を概算した．

8. 2 静的照射

電子加速器に関するパラメータ(装置パラメータ)のうち，被照射体の吸収線量に影響を与える基本的なパラメータは，初期エネルギーおよびビーム電流であり，被照射体表面における電流密度と吸収線量率の関係を明確にし，電流密度と吸収線量率の関係を吸収線量係数として求める必要がある．

8. 2. 1 ビーム電流と被照射体表面電流密度

ビーム電流と被照射体表面における電流密度は，本来，比例するはずである．そこ

で、初期エネルギー200, 300, 500 keV について、ビーム電流を 0.025 mA から 3 mA 迄変化させた 場合の窓下 10 cm の距離に置いた CTA フィルム表面の電流密度をファラデーカップを用いて実測した結果を図 8. 1 に示す。上記のビーム電流範囲において、いずれの初期エネルギーの場合でも、フィルム表面の電流密度はビーム電流に比例して増加することを確認した。従って、ビーム電流 I_B とフィルム表面位置の電流密度 I_s の間には次式の関係が成立する。

$$I_s = C_B I_B \quad (8.1)$$

但し、 C_B は装置定数である。照射装置が異なる場合には、装置定数 C_B も異なるが一般的な照射条件のもとでは同じ関数形式で表せる。

8. 2. 2 電流密度の初期エネルギー依存性

初期エネルギー 125~600 keV, ビーム電流 0.1 mA で照射した場合の、窓下10cm の距離に置いた CTA フィルム表面位置の電流密度をファラデーカップを用いて実測した結果を図 8. 2 に示す。初期エネルギーが 300 keV 以上の領域では、電流密度はエネルギーの増大にほぼ比例して増加するが、これは照射窓と空気における散乱が少なく収束性が高まることによる。図 8. 2 の実測値を、最小 2 乗法による回帰分析を行い指数関数 aE^b を当てはめフィルム表面位置の電流密度 I_s を近似的に次式で表すことができる。

$$I_s = 0.097 \times (E - 148)^{0.546} \cdot I_B, \quad (E \geq 148) \quad (8.2)$$

ここで、 E は初期エネルギー (keV), I_B の単位は mA である。式中の 148 (keV) は、CTA フィルム表面に電子が到達する限界初期エネルギーであり、照射窓の厚さ、空気層の厚さで決まる。式 (8. 2) による近似曲線を図 8. 2 中に実線で示した。式 (8. 1) と式 (8. 2) の比較から $C_B = 0.097 (E - 148)^{0.546}$ となる。

8. 2. 3 電流密度と吸収線量率の関係

実際の照射条件における電流密度と被照射体における吸収線量率の関係を検討した。初期エネルギー 300 keV で静的照射した場合の、CTA フィルム表面における電流密度と厚さ 38 μm の CTA フィルムの吸収線量率の実測値を図 8. 3 に示す。電流密度と吸収線量率は比例関係にあることが分かる。300 keV 以外の 200, 500 keV 電子線の場合についても電流密度と吸収線量率の関係は、300 keV 電子線の場合と同様に比例関係にあることを図 8. 4 に示す。初期エネルギーが高いほど吸収線量率は高くなるが、吸収線量率 D と電流密度 I_s の間には次式の関係が成立する。

$$D = KI_s \quad (8.3)$$

ここで、 K は吸収線量係数である。

8.2.4 吸収線量率の初期エネルギー依存性

静的照射の場合について、ビーム電流 0.4 mA を一定として初期エネルギー 200, 250, 300, 400, 500, 600 keV の場合の積層 CTA フィルムの一層目の吸収線量率の実測値を図 8.5 に示す。実測値は、本研究のために用いた 38 μm 厚さと、一般に用いられている 125 μm 厚さの CTA フィルムについて示した。縦軸はビーム電流 0.1 mA 当りに換算した吸収線量率で示した。初期エネルギー 300 keV 以上では、図 8.2 の場合と同様に電子ビームの収束性の向上に基づく電流密度の増大に比例し吸収線量率はやや増加する。一方、125 μm CTA フィルム線量計による実測値はフィルム全体の平均吸収線量であることに対応して、フィルム中の透過電子数の急速な減少が起きる 300 keV 以下で吸収線量率は低下する。

8.2.5 吸収線量係数

電流密度から吸収線量率を求めるために、式 (8.3) を書き直しフィルム表面における電流密度 I_s ($\text{A}\cdot\text{m}^2$) を用いて吸収線量係数 K ($\text{kGy}\cdot\text{m}^2\cdot\text{C}^{-1}$) を求める。

$$K = D/I_s \quad (8.4)$$

ここで、 D は吸収線量率 ($\text{kGy}\cdot\text{s}^{-1}$) である。図 8.5 をもとにして求めた、初期エネルギーと吸収線量係数の関係を図 8.6 に示す。照射電子の初期エネルギーが低いほど物質中での入射電子と物質との相互作用が大きく、入射電子のエネルギー散逸量、すなわち物質に対するエネルギー付与量が増大するために吸収線量係数は大きくなる。

式 (8.1) および式 (8.3) より、ビーム電流と初期エネルギーによって決まる吸収線量係数が分かれば吸収線量率が求められる。

8.3 動的照射

低エネルギー電子線の工業照射利用においては、被照射体はコンベア上で移動しながら照射される場合が多い。本節では、コンベアを用いて照射する動的照射の場合について、静的照射の場合と同様に吸収線量係数を求める事が出来る。

8.3.1 電流密度分布と吸収線量率分布

動的照射の場合、被照射体は照射窓下の電子線照射領域を端から端まで通過する。このような移動状態にある被照射体表面の電流密度と吸収線量率の分布を、初期エネルギー 300 keV、加速管内ビーム電流 0.1 mA で電子を空気中に放射した場合につい

てモンテカルロ計算によって求めた。窓下 10 cm の距離に置いた CTA フィルム表面に到達する電子の電流密度分布を、鳥瞰図として図 8.7 に示す。図中の等高線の間隔は電流密度 $0.14 \sim 0.02 \mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ の範囲では、 $0.02 \mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ 間隔の 7 本の線で示し、電流密度 0.01 と $0.001 \mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ はそのままの値を示す。ビーム中心部におけるフィルム表面の電流密度は $0.147 \mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ (最大値) である。フィルム表面に到達する電流は、表面全ての電流密度の積算値であり $80.3 \mu\text{A}$ となる。一方、加速器からのビーム電流は $100 \mu\text{A}$ であることから、約 $20 \mu\text{A}$ の差は、照射窓と空気層を通過することによって減衰したことを示す。実測から得られた 300 keV 電子線に対する電流密度 ($0.1501 \mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$) は、計算値 ($0.147 \mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$) に対して 2.1 % 大きい。この違いは、ビームシャッター、冷却機構等、照射装置の構造因子に基づく散乱・吸収があるため余分の電子の流入が起ったことによると考えられる。

単位質量当りの吸収エネルギーである吸収線量 ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、特別名称は Gy) は、フィルムに入射する電子の電流密度に比例すること、低エネルギー電子線照射では深さ方向の電流密度の変化が無視できないため、フィルム厚さ方向に対して平均の吸収線量を表すことを 8.2.3 および 8.2.4 で述べた。図 8.7 の鳥瞰図におけるビーム中心でビーム走査と垂直な方向についてファラデーカップで測定した電流密度 ($\mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2} = \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) とフィルム (厚さ $38 \mu\text{m}$ および $125 \mu\text{m}$) の吸収線量率 ($\text{Gy}\cdot\text{s}^{-1}$) 分布をそれぞれのピーク値に規格化して図 8.8 に示した。厚い CTA フィルムのほうが吸収線量率分布はシャープになっているが、これは透過電子数の減少率が、フィルムが厚いほど大きいためである。静的照射ではビーム中心位置に固定して照射する場合であり、 $38 \mu\text{m}$ および $125 \mu\text{m}$ 厚さの CTA フィルムに対する吸収線量率は、それぞれのピーク値は 0.601 , $0.656 \text{ kGy}\cdot\text{s}^{-1}$ であった。一方、動的照射の場合は吸収線量率分布の累積したものであり、コンベア速度 $8 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合の 1 パス当りの吸収線量率は、それぞれ 12.684 , $12.510 \text{ kGy}\cdot\text{pass}^{-1}$ となる。

図 8.9 は、図 8.8 の $38 \mu\text{m}$ CTA フィルムについて吸収線量率と、対応する電流密度の比、すなわち単位フルエンス当りの吸収線量分布を MeV 単位で示したものである。ビーム中心から離れるに従って、単位フルエンス当りの吸収線量が増加する。ビーム中心から左右 18 cm の位置で極大値を示すのは、高角度入射電子や低エネルギー電子数が増加することによる。しかし、ビーム中心から 18 cm 以上離れた位置の単位フルエンス当りの吸収線量の低下は、より高角度入射が起こること、またエネルギーの低下によって全入射電子数が少なくなることによる。図 8.9 で示す単位フルエンス当りの吸収線量は、ビーム中心及び全領域の平均値はそれぞれ 4.09 , $4.63 \text{ MeV}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}$ である。第 4 章の単位フルエンス当りの深度線量分布の計算値から求めた、表面から深さ $38 \mu\text{m}$ までの厚さに対する静的 (ビーム中心) および動的照射 (全領域の平均値) の場合の平均吸収線量 4.09 および $4.625 \text{ MeV}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}$ とよく一致する。また、同様な計算から、 $125 \mu\text{m}$ 厚さのフィルムに対するビーム中心 (静的照射) および全領域の平均値 (動的照射) は、それぞれ 4.46 , $4.56 \text{ MeV}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}$ であり深度線量分布の計算

値から求めた平均吸収線量とも一致する。

8.3.2 電流密度および吸収線量率の関係

動的照射の場合の、電流密度と吸収線量率の関係を初期エネルギーを変えて実測した結果を図 8.10 に示す。コンベア速度 $8 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$ 、1 パス当りの線量率で比較した。いずれのエネルギーの場合でも両者は比例関係にあり、静的照射の場合と同じ傾向にある。動的照射において、ビーム電流を一定 (0.1 mA) にした場合の初期エネルギーと吸収線量率の関係の実測値を図 8.11 に示す。測定条件は静的照射の場合と同じである。300 keV 以上では入射電子の初期エネルギーの増大と共に、静的照射の場合とは逆に吸収線量率は低下する。これは、動的照射では、図 8.8 に示した電子密度分布全体の累積であるため、分布の形は吸収線量率に影響せず、初期エネルギーの増大により電子が物質を通過しやすくなって付与エネルギーの低下が起きたことによる。また、300 keV 以下では静的照射の場合と同様に、フィルム表面に到達する電子数の減少によって吸収線量率は低下する。

8.3.3 吸収線量係数

動的照射の場合の初期エネルギーと吸収線量係数の関係を 2 種の厚さの CTA フィルムについて図 8.12 に示す。ここで吸収線量係数 k は、図 8.11 に示した吸収線量を各初期エネルギーでの電流密度で除して求めた。静的照射の場合と同様の傾向を示し、両 CTA フィルムの吸収線量係数のピークは約 220 keV に存在すると思われる。38 μm 厚さの CTA フィルムの場合について比較すると 300 keV 電子線に対する静的および動的照射の場合の吸収線量係数は、それぞれ $409, 463 \text{ kGy} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{C}^{-1}$ である。吸収線量係数 ($\text{kGy} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{C}^{-1}$) を単位変換係数 10^2 (無次元) で除すれば、単位フルエンス当りの被照射体中の厚みにわたって平均した吸収線量 ($\text{MeV} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$) が得られる [7]。したがって、単位フルエンス当りの吸収線量のそれぞれの計算値 ($4.09, 4.63 \text{ MeV} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$) とよく一致する。

初期エネルギーによって決まる吸収線量係数とビーム電流が分かれば、静的照射の場合と同様に、吸収線量率は求めることができる。

8.4 吸収線量率の簡易計算法

初期エネルギー及びビーム電流をもとにして、電子数透過係数と等価ビーム幅から被照射体表面の電流密度を見積り、吸収線量係数を用いて、静的および動的照射における吸収線量率を計算する。

8.4.1 電子数透過係数と等価ビーム幅

低エネルギー電子線照射の場合には、電子線の透過経路中の減衰が大きく、ビーム電流の設定値はそのまま電流密度に結びつかないことを 8.2 および 8.3 で示した。

正確な電流密度を知るためには、照射窓および空気層によるビーム電流の減衰を評価する必要がある。電子加速器の加速管内ビーム電流を 1 とした場合の各層透過後の電流値を透過電子数 (透過係数) から求める。照射窓 (Ti: 30 μm) および空気層 (10 cm) 透過後の電子数透過係数をモンテカルロ計算で求めて図 8. 1 3 に示す。フィルム表面における電子数は 250 keV 以下で急速に低下し 148 keV で 0 になる。図 8. 2 に示した、電流密度の実測値が急速に低下する領域およびフィルムに到達しなくなるエネルギーと一致する。初期エネルギー 300 keV の場合の電子数透過係数は 0. 803 であり、加速器ビーム電流の約 80 % のみがフィルム表面に到達することが分かる。

工業用電子線照射では、照射窓直下のビーム中心を基準としてビーム走査方向の電流密度分布の均一な部分を照射領域として用いる。そこで、加速器内で加速された電子が照射窓と空気層で散乱されてフィルム表面に到達するときの広がりおよびビーム走査とを考慮し、フィルム表面における電子線の実効照射面積を求める。ビーム中心の電流密度 (最大電流密度) を一辺とした電流密度分布の積分値に等しい体積の直方体を仮定し、その底面積を電子線の実効照射面積とする。フィルム表面における電流密度は、上述の減衰した後のビーム電流を実効照射面積で除した値として求められる。

初期エネルギー 300 keV で照射した場合の、照射窓から 10 cm の距離に置いた CTA フィルム表面における、ビーム走査方向 (A) およびビーム走査方向と垂直な方向 (B) の電流密度分布の実測値を図 8. 1 4 に示す。ここで、測定データはエレクトロメーター (Model 617 Programmable Electrometer, Keithley Instruments, Inc.) とパソコン計測システム [11] を用いて収録し、スムーディング処理を行って実測値とした。それぞれの方向の電流密度分布曲線において、その囲まれた面積と同一になるように最大値を一辺とした矩形を仮定した場合の他の辺の長さ (等価ビーム幅) は、ビーム走査方向 (A) およびビーム走査方向と垂直な方向 (B) で、それぞれ 37. 0, 15. 0 cm となる。従来、概算線量計算のためによく用いられている各分布に対する半値幅を求める [4, 5, 7] と、それぞれ 34. 4, 12. 4 cm となり本方法から得られた等価ビーム幅に比べて 7~17 % 小さい値となる。すなわち、従来法では分布の積分値を考慮しないために電流密度を約 30 % も過大に評価していることになる。

8. 4. 2 簡易計算法

前項に述べた電子数透過係数と等価ビーム幅、および吸収線量係数を用いて低エネルギー電子線照射における CTA フィルム中の吸収線量率を計算することができる。すなわち、照射窓と空気層に対する電子数透過率で補正したビーム電流値 (実効ビーム電流値) と、電流密度分布の実測値をもとに等価な直方体に置き換えた照射面積を用いて CTA フィルム表面における電流密度を求め、吸収線量係数を用いて吸収線量率を計算することができる。

静的照射の場合における吸収線量率 D_s ($\text{kGy} \cdot \text{s}^{-1}$) は次式で表せる。

$$D_s = \frac{K_s}{a w} I_s = \frac{K_s}{a w} \eta_B I_B \quad (8.5)$$

ここで、 K_s は静的照射における吸収線量係数 ($\text{kGy} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{C}^{-1}$)、 a はビーム走査方向と垂直な方向の等価ビーム幅 (m)、 w はビーム走査方向の等価ビーム幅 (m)、 I_s は実効ビーム電流 (A)、 I_B はビーム電流 (A)、 η_B は照射窓および空気層を透過直後の電子数透過率である。本照射条件では、 K_s は図 8. 6、 η_B は図 8. 13 から求められる。

初期エネルギー 300 keV、ビーム電流 0.1 mA、フィルム厚さ 38 μm とした場合に、 $K_s = 409$ ($\text{kGy} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{C}^{-1}$)、 $a = 15$ (cm)、 $w = 37$ (cm)、 $\eta_B = 0.803$ が得られるから、これらを代入して式 (8. 5) から得られる吸収線量率 0.592 $\text{kGy} \cdot \text{s}^{-1}$ は実測値 0.601 $\text{kGy} \cdot \text{s}^{-1}$ と 1.5 % の差異でよい一致を示す。

コンベアを用いた動的照射の場合の 1 パス当りの吸収線量率 D_D ($\text{kGy} \cdot \text{pass}^{-1}$) は、次式で表せる。

$$D_D = \frac{K_D}{a w} \cdot \frac{a}{v} I_s = \frac{K_D}{v w} I_s = \frac{K_D}{v w} \eta_B I_B \quad (8.6)$$

ここで、 K_D は動的照射における吸収線量係数 ($\text{kGy} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{C}^{-1}$)、 v はコンベア速度 ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$) である。本照射条件では、 K_D は図 8. 12 から求められる。

初期エネルギー 300 keV、ビーム電流 0.1 mA、コンベア速度 8 $\text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$ 、フィルム厚さ 38 μm とした場合に、 $K_D = 463$ ($\text{kGy} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{C}^{-1}$)、 $w = 37$ (cm)、 $\eta_B = 0.803$ が得られるから、これらを代入して式 (8. 6) から得られる吸収線量率 12.56 $\text{kGy} \cdot \text{pass}^{-1}$ は実測値 12.68 $\text{kGy} \cdot \text{pass}^{-1}$ と 1.0 % の差異でよい一致を示す。

これらの結果から、本簡易計算法は実際の使用状態を考慮した場合でも、実用フィルム線量計による実測値 (精度 $\pm 10 \sim 20$ %) と同程度に吸収線量が計算できることが分かった。

8. 5 結論

本章では、走査型電子加速器から照射される低エネルギー電子線の初期エネルギー、ビーム電流、フィルム表面における電流密度および吸収線量率を実測と計算を行った。低エネルギー電子線に対する静的および動的照射の場合の簡易な線量概算式を提案し、300 keV 電子線の場合について適用してその精度を示した。それらの結果を要約して以下に示す。

- (1) 初期エネルギーとビーム電流からフィルム表面における電流密度を与えるための係数、および電流密度から吸収線量率を求めるための吸収線量係数を求めた。
- (2) 照射窓、空気層に対する電子数透過率を考慮して実効ビーム電流と、電流密度分布に対する等価ビーム幅を用いてフィルム表面における電流密度を求めることを提案した。
- (3) 静的および動的照射の場合について、実効ビーム電流、電流密度分布に対する

等価ビーム幅，および吸収線量係数を用いて，簡易な線量概算式から従来より正確に吸収線量を求め得ることを示した。

参 考 文 献

- [1] 岡部茂，津守邦彦，多幡達夫，吉田俊男，永井昭男，広三寿，石田国彦，坂本勇，河合禎，荒川和男，井上崇，村上知之：“電子線吸収線量の算出と測定-300 keV電子線加速器の場合-”，応用物理，43(9)，pp. 909-918 (1974)。
- [2] 団野皓文：“放射線化学工業化の諸問題 (II)”，放射線化学専門課程，ラジオアイソトープ研修所，1-26 (1976)。
- [3] Tanaka R., Sunaga H., Yotsumoto K., Mizuhashi K. and Tamura N. : "Dose Evaluation in Electron Beam Processing", Radiat. Phys. Chem., 18(5-6), p p. 927-936 (1981)。
- [4] 坂本良憲：“電子線照射システム・その応用と適用 (3)”，高分子加工，35(10)，p p. 43-49 (1986)。
- [5] 坂本良憲：“実務者のための電子線加工”，高分子刊行会 (1989)。
- [6] Tanaka R., Sunaga H., Kuriyama I. and Moriuchi Y. : "Intercomparative Study on Low Energy electron Beam Dosimetry", Radiat. Phys. Chem. 33(3), pp. 407-410 (1989)。
- [7] 放射線照射振興協会編：“工業照射用の電子線量計測”，放射線照射振興協会 (1990)。
- [8] 須永博美，田中隆一：“低エネルギー電子線照射における線量評価の現状と問題点”，放射線と産業，37，pp. 29-34 (1987)。
- [9] 来島利幸，菅博，中瀬吉昭：“EB照射装置による電子線の試料表面層吸収線量分布”，電子情報通信学会'95エレクトロニクスソサエティ大講論，C-344，2，pp. 36，東京 (1995)。
- [10] RSIC:"EDMULT 3.11 MICRO:Electron depth-dose distributions in multilayer slab absorbers", Computer Code Collection CCC-430, Radiation Shielding Information Center, Oak Ridge Natl. Lab. (1992)。
- [11] 松田光司，来島利幸：“電子線のエネルギー後方散乱と薄層の吸収線量”，JAERI-M 87-170，日本原子力研究所 (1987)。

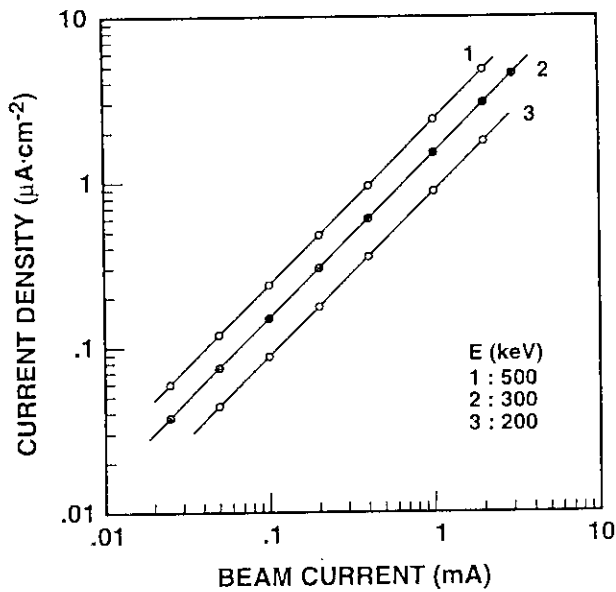


図 8.1 加速器ビーム電流と照射窓から10cmの距離に置いたフィルム表面の電流密度の関係.

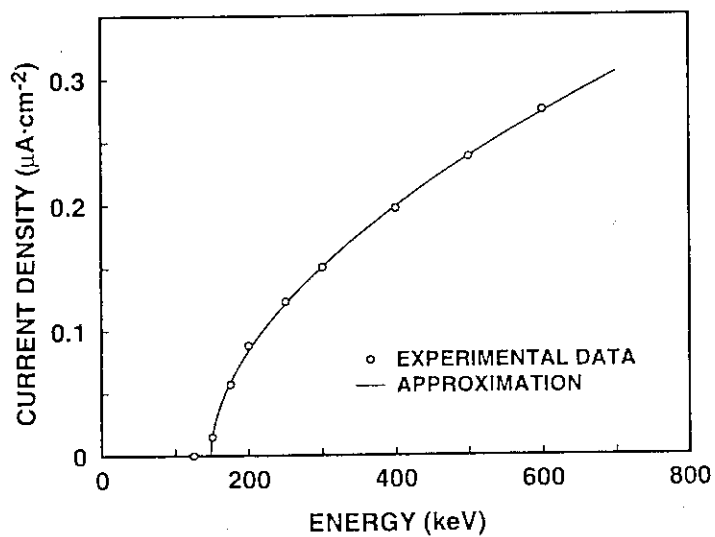


図 8.2 照射窓から10 cmの距離に置いたフィルム表面における電流密度と初期エネルギーの関係. ($I_b=0.1\text{mA}$)

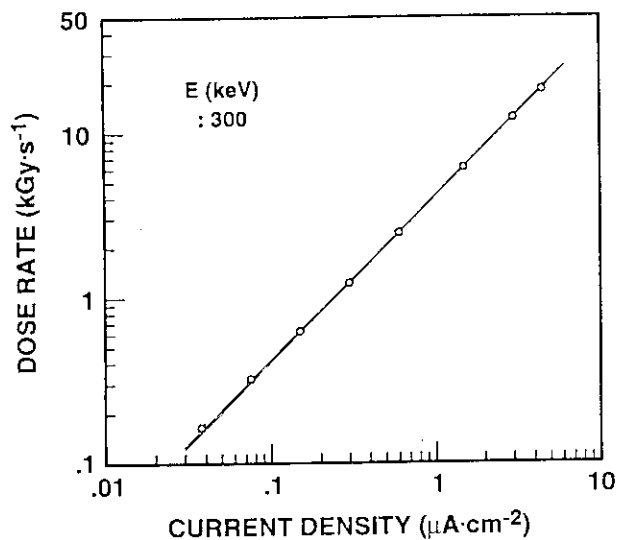


図 8.3 静的照射の場合の電流密度と吸収線量率の関係(初期エネルギー:300keV).

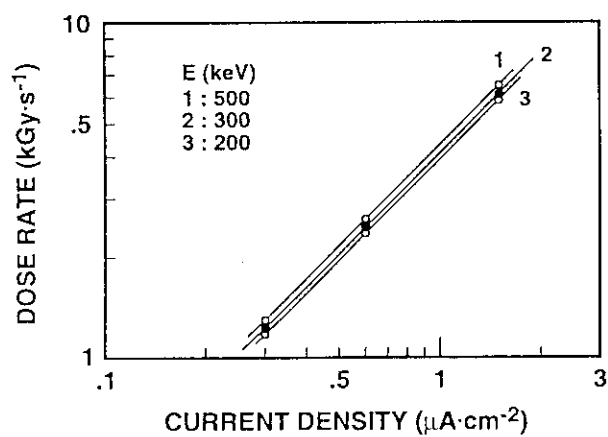


図 8.4 静的照射の場合の
電流密度と吸収線量率の関
係。

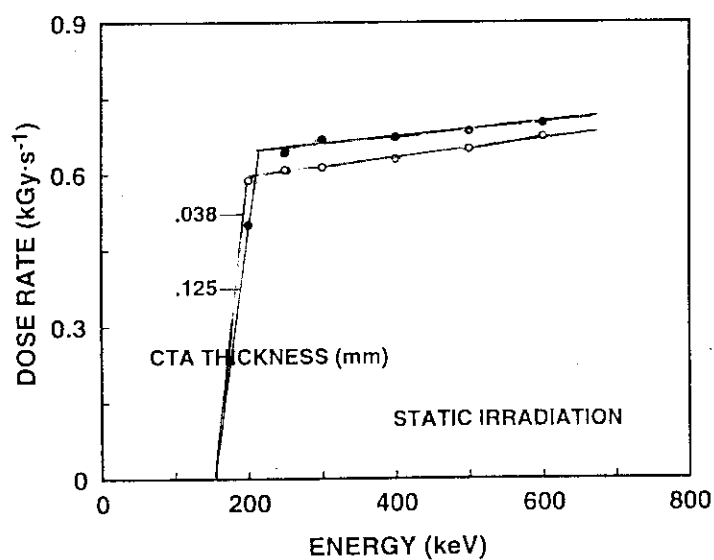


図 8.5 静的照射の場合の
ビーム初期エネルギー
と0.1mA 当たりの吸収
線量率の関係

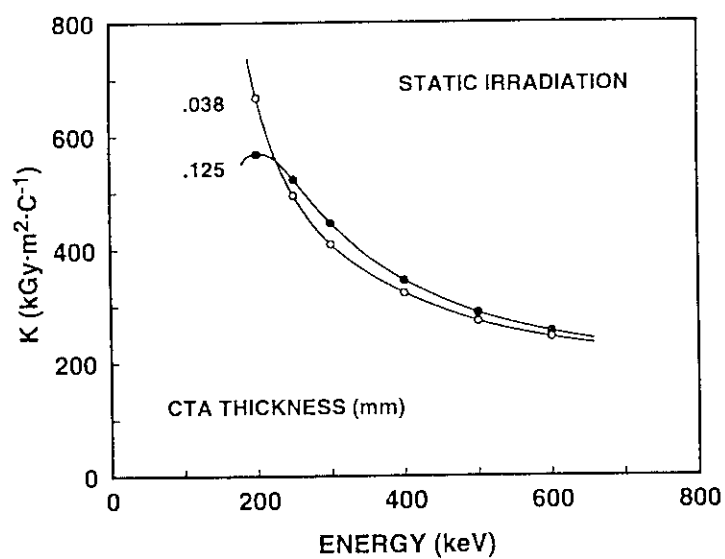


図 8.6 静的照射の場合の
初期エネルギーと吸収線量
係数の関係。

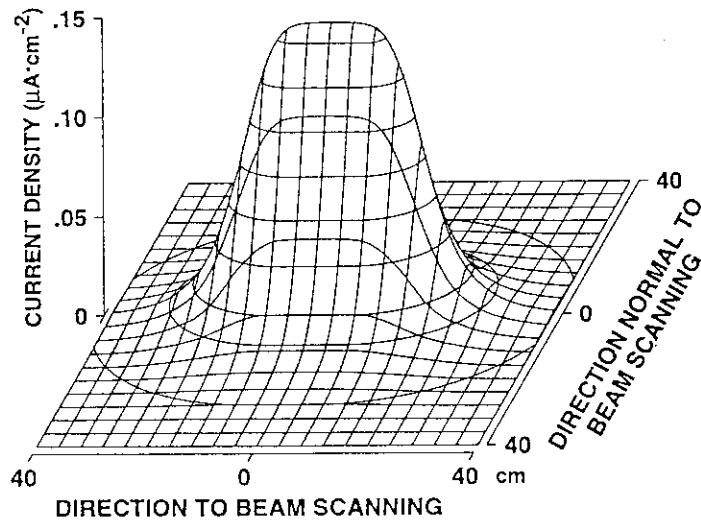


図 8.7 照射窓から10 cmの距離に置いたCTAフィルム表面における電流密度分布の鳥瞰図

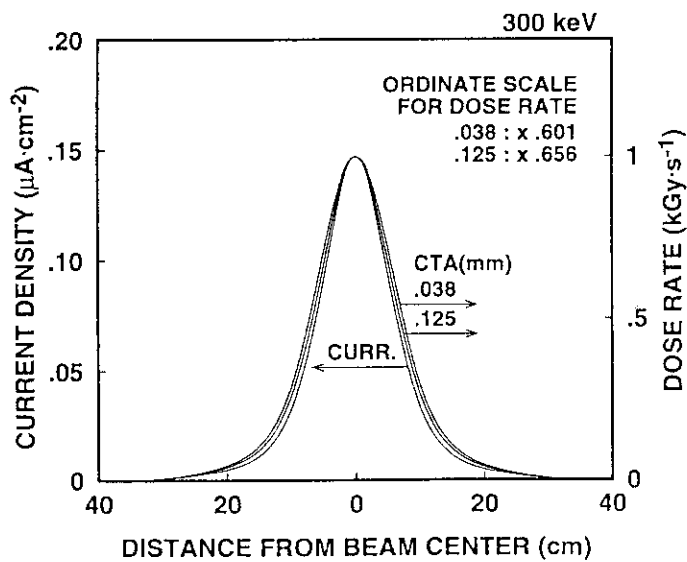


図 8.8 照射窓から10 cmの距離に置いたCTAフィルム表面の電流密度とフィルム中の吸収線量率の分布.

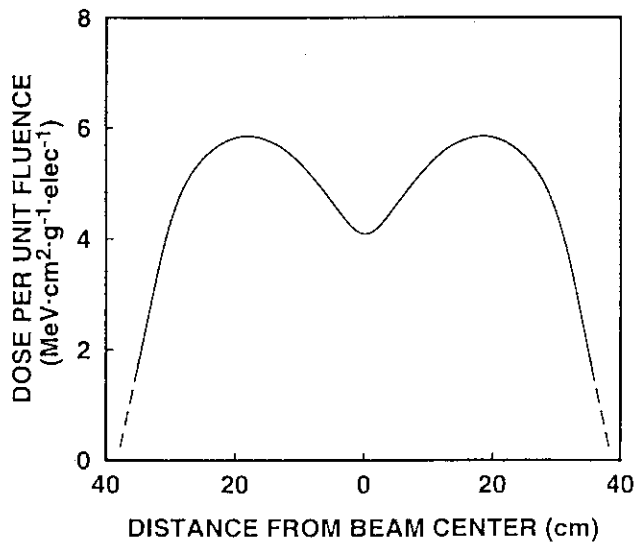


図 8.9 照射窓から10 cmの距離に置いたCTAフィルム (38 μm)中の単位フルエンス当りの吸収線量の分布.

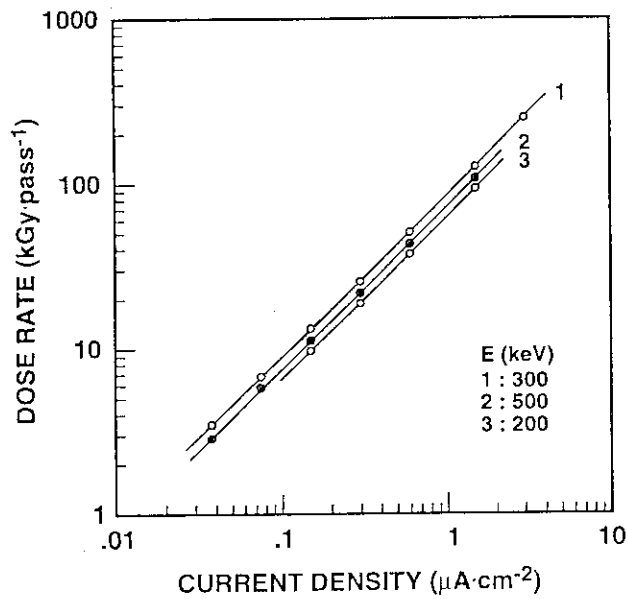


図 8.10 動的照射の場合の
電流密度と吸収線量率の関
係.

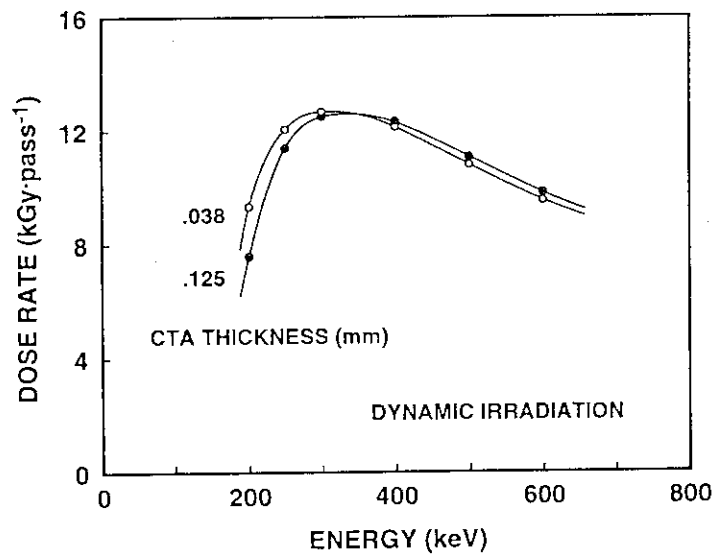


図 8.11 動的照射の場合の
ビーム初期エネルギー
と0.1mA 当たりの吸収
線量率の関係

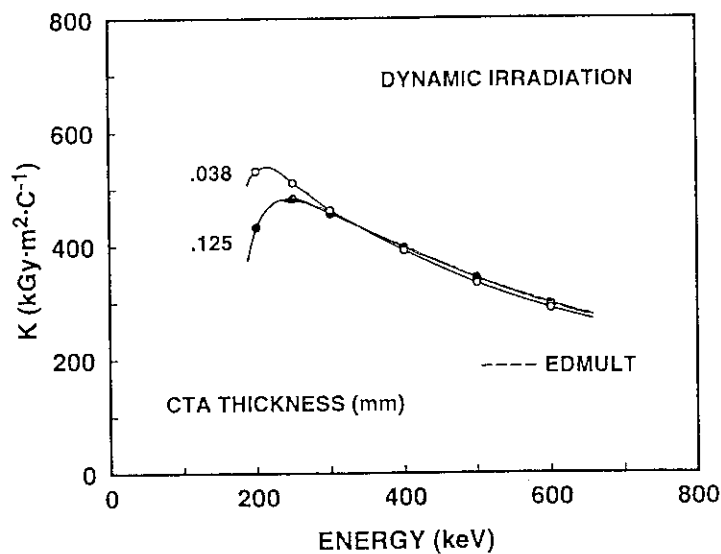


図 8.12 動的照射の場合の
初期エネルギーと吸収線量
係数の関係.

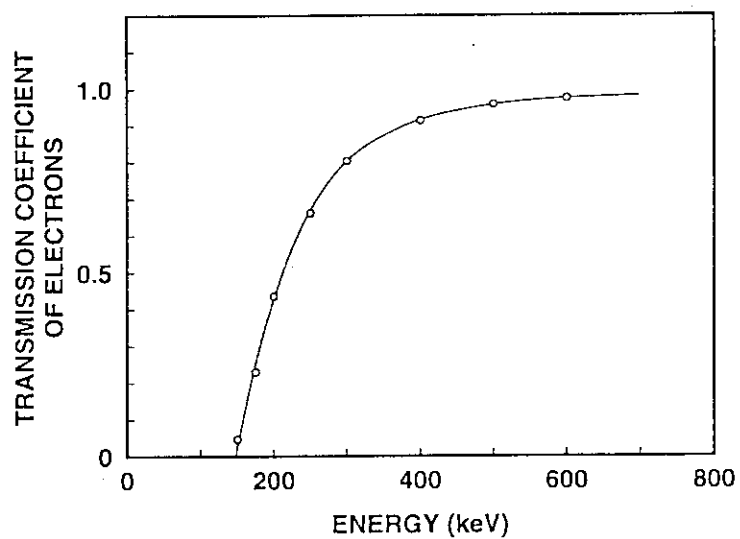


図8.13 照射窓(Ti, 30 μm)と空気(10 cm)を透過した後の低エネルギー電子線の透過係数.

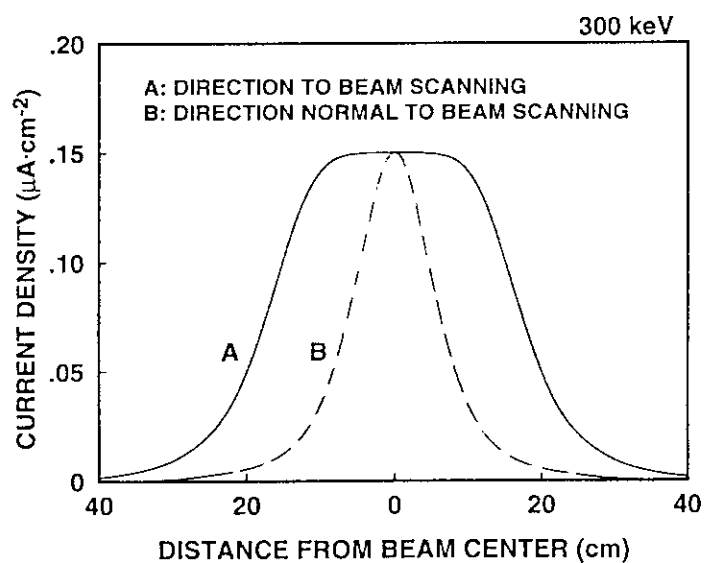


図8.14 ビーム走査および走査方向と垂直な方向の電流密度分布.

9. 総括

本論文は、低エネルギー電子線照射時の、有機薄膜層における線量評価法を確立することを目的に行った成果をまとめたものである。本論文では、まず、従来より正確かつ簡便な有機薄膜層中の電子線量評価を目的とした計算評価法の必要性を述べ、かつその具体的な評価法を提案した。第2に開発した計算評価法を用いて、正確な線量評価のために工業用低エネルギー電子線照射における電子の振る舞いを解析し、有機薄膜層に対する電子線照射の特徴と電子線量に影響する因子を明確にした。第3に電子線照射によって有機薄膜層中に形成される内部沈積電荷が電子線量に与える効果を検討し、帯電した有機薄膜層に対する新しい計算評価法を提案した。第4に単純な照射パラメータをもとに、吸収線量の概算値を求める簡易な線量計算法を検討したことを特徴とする。

本研究によって得られた主要な成果を以下に総括する。

1. 走査型工業用低エネルギー電子線照射装置から照射された 300 keV 電子線に対する有機薄膜層中の深度線量分布を、従来の約 1/3 の厚さの CTA フィルム線量計を用いて高精度に実測評価することを試み、極表面層の吸収線量分布を正確に測定することができた。

関連論文： K. Matsuda and T. Kijima,
 "Electron Beam Dosimetry for a Multilayer Absorber"
 Appl. Radiat. Isot., Vol. 42 (3), pp. 235-239, 1991.

2. 単一散乱モデルによるモンテカルロ法を用いて、低エネルギー電子線に対する電子線量評価用計算コードを開発し、その妥当性を示した。フィルム線量計では得られない入射電子のエネルギースペクトルや電子の透過、散乱の程度を解析できることを示し、電子線量評価とともに、入射電子の物質中の振る舞いを明らかにするために有用な手段になることを示した。

関連論文： T. Kijima, M. Kotera, H. Suga and Y. Nakase,
 "Monte Carlo Calculations on the Passage of Electrons
 through Thin Films Irradiated by 300 keV Electrons"
 IEICE Trans. Electron., Vol. E78-C (5), pp. 557-563, 1995.

3. 照射装置から放出された 300 keV 電子線の散乱様式を計算によって求め、工業用低エネルギー電子線照射の特徴を明らかにした。300 keV 電子線は照射窓と空気層で数 100 回の散乱後、有機薄膜層に入射し、最多エネルギーは 250 keV 程度で、

そのスペクトルは広い分布をもち、入射角度には高角度成分が多く含まれていることを明らかにした。

関連論文： T. Kijima and Y. Nakase,
 "Monte Carlo Calculations on the Behavior of 300 keV
 Electrons from Accelerators"
 Radiation Measurements, Vol. 26 (2), pp. 159-168, 1996.

4. 静的および動的照射における深度線量分布の違いを、エネルギー・スペクトルと入射角度分布によって検討した。静的照射に比べて動的照射における深度線量分布のピーク位置が表面寄りに移動する原因として、ビーム中心から離れた位置に入射する電子の入射角度が大きくなることによることを明らかにした。

関連論文： T. Kijima and Y. Nakase,
 "Electron Beam Dosimetry for a Thin-layer Absorber
 Irradiated by 300-keV Electrons"
 Appl. Radiat. Isot., Vol. 44 (4), pp. 693-699, 1993.

5. 電子飛程より薄い有機薄膜層に照射する場合の、吸収線量に対する影響因子を検討した。薄膜層の吸収線量は、薄膜層の厚さが薄いほど、また基材の原子番号が大きいほどが増大することを定量的に示し、基材の原子番号が大きいほど後方散乱により薄膜層を通過する電子は高エネルギー成分が多い含まれることを明らかにした。

関連論文： T. Kijima, H. Suga and Y. Nakase,
 "Depth-Dose Distributions in a Thin-layer Absorber
 Irradiated by 300-keV Electrons"
 Appl. Radiat. Isot., Vol. 45 (7), pp. 759-765, 1994

6. 薄膜層を透過した電子の基材による後方散乱係数を評価した。動的照射の場合、基材からの後方散乱電子数とエネルギーは、物質に単一エネルギー電子線が垂直入射すると仮定した場合に比べてかなり大きいことを明らかにした。

関連論文： T. Kijima and Y. Nakase,
 "Monte Carlo Calculations on the Behavior of 300 keV
 Electrons from Accelerators"
 Radiation Measurements, Vol. 26 (2), pp. 159-168, 1996.

7. 表面線量分布に対する薄膜層の厚さ, 基材の種類の影響を検討した. 基材の原子番号が大きいほど表面線量分布はシャープになることを明らかにした. 走査型電子線照射では, 薄膜層中の瞬時の最大吸収線量率は平均吸収線量率よりもかなり大きいことを示した.

関連論文: T. Kijima, M. Kotera, H. Suga and Y. Nakase,
"Monte Carlo Calculations on the Passage of Electrons
through Thin Films Irradiated by 300 keV Electrons"
IEICE Trans. Electron., Vol. E78-C (5), pp. 557-563, 1995.

8. 比較的低電荷フルエンス率 ($0.5 \mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 以下) での照射の場合においても, 極表面層の吸収線量が低下することを見いだした. 極表面層の吸収線量は, 比較的小さな背面電位によって影響を受けること, 積層 CTA フィルムに対する帯電量分布の実測から, 電子線照射によって表面層に正, 深部に負の電荷沈積領域が形成されることを見いだした. 極表面層の吸収線量の低下には, 表面層に形成する正電荷沈積が大きく影響していることを明らかにした.

関連論文: T. Kijima, H. Suga and Y. Nakase,
"Depth-Dose Distributions in a Thin-layer Absorber
Irradiated by 300-keV Electrons"
Appl. Radiat. Isot., Vol. 45 (7), pp. 759-765, 1994

9. 帯電した有機薄膜層中の電子の振る舞いを解析するために, 電界による散乱を考慮したモンテカルロ法による電子線量評価用計算コードを開発した. 積層フィルム中の沈積電荷量の実測値を用いて深度線量分布の計算を行い, 計算結果が実測値と一致することを確認した. 極表面層の計算評価には, 薄膜層の内部沈積電荷に基づく電界の形成を考慮する必要性を示した.

関連論文: T. Kijima, and Y. Nakase,
"Monte Carlo Calculations on the Depth-Dose Distributions
in a Thin Films accounting Charge Deposition Effects"
to be published

10. 照射装置で設定した電子線の初期エネルギーとビーム電流をもとに, 照射窓および空気層に対する電子透過係数と薄膜層表面における等価ビーム幅を用いて吸収線量を評価する簡易な線量計算式を提案し, 従来よりも正確に薄膜層中の吸収線量が評価できることを示した.

関連論文： T. Kijima, and Y. Nakase,
"A Simple Method for Absorbed dose Calculations in
a Thin Films based on beam currents from an accerelator"
to be published

謝辞

本研究をまとめるに当たり、研究の全般に渡りご指導ならびに助言を賜った大阪工業大学工学部電子工学科菅博教授に深く感謝の意を表します。本研究におけるコード作成のために助言を頂いた同大学小寺正敏教授に感謝するとともに、計算結果と実験値との比較方法に関して助言を頂いた大阪府立大学先端科学研究所放射線物理研究分野多幡達夫教授に感謝いたします。各種木材材からの後方散乱係数の計算に関してご指導頂いた近畿大学原子力研究所中井洋太教授に感謝の意を示します。さらに、大阪支所(現関西研究所寝屋川事務所)の元支所長畑田元義博士、前支所長中野正文博士に本研究の機会をご提供頂いたこと、および常に変わらぬご支援に対し深く感謝いたします。本研究の初期にご指導頂いた同支所の故松田光司氏、その後ご指導頂いた中戸喜寄氏に感謝の意を表します。

関連論文： T. Kijima, and Y. Nakase,
"A Simple Method for Absorbed dose Calculations in
a Thin Films based on beam currents from an accerelator"
to be published

謝辞

本研究をまとめるに当たり、研究の全般に渡りご指導ならびに助言を賜った大阪工業大学工学部電子工学科菅博教授に深く感謝の意を表します。本研究におけるコード作成のために助言を頂いた同大学小寺正敏教授に感謝するとともに、計算結果と実験値との比較方法に関して助言を頂いた大阪府立大学先端科学研究所放射線物理研究分野多幡達夫教授に感謝いたします。各種木材材からの後方散乱係数の計算に関してご指導頂いた近畿大学原子力研究所中井洋太教授に感謝の意を示します。さらに、大阪支所(現関西研究所寝屋川事務所)の元支所長畑田元義博士、前支所長中野正文博士に本研究の機会をご提供頂いたこと、および常に変わらぬご支援に対し深く感謝いたします。本研究の初期にご指導頂いた同支所の故松田光司氏、その後ご指導頂いた中戸喜寄氏に感謝の意を表します。