

令和元年5月31日現在

機関番号：23903

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K19235

研究課題名(和文) 6Li含有水シンチレーターを用いた、陽子線治療における二次中性子分布の観測

研究課題名(英文) Measurement of distribution of secondary neutrons in proton therapy with 6Li-loaded water-based liquid scintillator

研究代表者

岐部 佳朗 (Kibe, Yoshiaki)

名古屋市立大学・大学院医学研究科・研究員

研究者番号：40583406

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では陽子線治療などの粒子線治療で発生する二次中性子を効率的に検出するために、6リチウムを含んだ水ベースの液体シンチレーターの開発を行った。水シンチレーターは水に有機溶剤を溶かすための界面活性剤とリチウム化合物、有機溶剤(プソイドクメン)、発光剤(ジフェニルオキサゾール)から構成されている。申請者はこれらの構成要素について種々の薬品の中から選定を行い、界面活性剤としてラウリル硫酸ナトリウム、リチウム化合物として臭化リチウムが適していることを明らかにした。また作成した水シンチレーターについて基礎特性である発光量と透過度の測定を行い、その性能を評価した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

6リチウム含有水シンチレーターは効率的に中性子を検出でき、水をベースにしているため、化学的にも安定した液体シンチレーターである。本研究の成果により、水シンチレーターに必要な構成要素や十分な発光量を得るための知見、その性質の一端を明らかにすることができた。これは素粒子実験や放射線計測といった分野に新たな検出手法を提供する基盤となるものである。

研究成果の概要(英文)：We developed 6Li-loaded water-based liquid scintillator to detect the secondary neutrons effectively in particle therapy such as proton therapy. The 6Li-loaded water-based liquid scintillator is composed of a surfactant, lithium compound, Pseudocumene as organic solvent, and Diphenyloxazole as luminescent agent. The surfactant is used in order to mix water and organic solvent. We shed light on that sodium dodecyl sulfate as surfactant and lithium bromide as lithium compound are suitable for the components of water-based liquid scintillator. Then, we measured the light output and transparency of our handmade Li-loaded water-based liquid scintillator. The light output and transparency are the basic properties of liquid scintillator.

研究分野：素粒子物理、医学物理

キーワード：水シンチレーター 中性子 陽子線

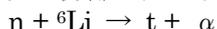
様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

陽子線や炭素線に代表される粒子線治療は、電子線による放射線治療に比べて遥かに高いエネルギーの粒子を利用するため、多くの二次粒子が粒子線を照射する過程で発生する。中でも装置ビームラインの最下流にあるボーラスやコリメータ、患者体内での相互作用によって大量の中性子が生成される。中性子はエネルギーによって生物効果比（RBE）が異なり、中性子の位置やエネルギー分布によっては中性子被曝による障害や二次発がんが懸念される。特に小児がん治療では治療後の余命が長いとため、二次中性子による被曝の影響を評価する必要がある。また粒子線治療の普及と共に、ペースメーカーなど植え込み型医療機器が挿入された患者への治療も増加傾向にある。そのため、中性子の植え込み型医療機器に与える影響を最小限に抑えることが重要となる。

2. 研究の目的

粒子線治療で発生する二次中性子を効率的に観測するために、水を主成分とした⁶Li含有液体シンチレーターの開発を行う。本研究で開発を目指す水シンチレーターは、法令で定められた標準的な線量計測で用いられる水を主成分とすることで、シンチレーション光の光量から線量へと容易に変換することができる。また⁶Liを混入させることで、生成された中性子を以下の反応で効率的に捕獲し、反応する粒子ごとのシンチレーション光の波形の違いからバックグラウンド源となりうる信号（γ線など）を分離・除去することが可能となる。



3. 研究の方法

⁶Li含有水シンチレーターは界面活性剤と発光剤、水などの成分から構成されている。そこで以下のような手順で研究を実施した。

① 最適な界面活性剤やLi化合物などの選定

種々の界面活性剤とLi化合物、水を混ぜ、そこに発光剤であるPPO（2,5-ジフェニルオキサゾール）を混ぜてスターラーで攪拌する。作成したサンプルに沈殿物や着色がないかを確認し、ブラックライトを当て、シンチレーション光を確認した。さらに分光光度計を用いて水シンチレーターの発光波長を調べた。

② γ線源による発光量の測定

γ線源（¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ²²Na）を用いて作成した水シンチレーターの発光量を測定する。発光量はシンチレーターにおいて性能を評価する基本的なパラメータである。水シンチレーターの発光量が界面活性剤などの構成要素によってどのように変化するかを研究した。

③ 透過度の測定

分光光度計を用いて、作成した水シンチレーターの透過度を測定し、水シンチレーターの減衰長を調べる。シンチレーターにおいて減衰長の長さは検出器のサイズなどを決める上で重要な要素となる。本研究では水シンチレーターの構成要素が透過度（減衰長）にどのような依存性があるのかを調べた。

4. 研究成果

上記「3. 研究の方法」で挙げた各項目について成果を述べる。

① 最適な界面活性剤やLi化合物などの選定

まずLi化合物の候補として、水に容易に溶け、安価に入手できる臭化リチウム（LiBr）と塩化リチウム（LiCl）を用意した。界面活性剤としては直鎖構造を持ったものとしてドデシル硫酸ナトリウム（SDS）を、ベンゼン環を含むものとして直鎖アルキルベンゼン（LAB）、塩化ベンゼトニウムを候補として選んだ。加えて、高分子化合物の界面活性剤としてノニルフェニルエーテルの水シンチレーターも試作した。

それぞれの結果について表1に示す。

Li化合物	界面活性剤	液体の状態	シンチレーション光の有無
LiCl	SDS	白色の沈殿物が生じる	×
	LAB	白色の沈殿物が生じる	×
	塩化ベンゼトニウム	白色の沈殿物が生じる	×
	ノニルフェニルエーテル	白色の沈殿物が生じる	×
LiBr	SDS	無色透明	○
	LAB	白色の沈殿物が生じる	×
	塩化ベンゼトニウム	白色の沈殿物が生じる	×
	ノニルフェニルエーテル	わずかに黄色がる	○

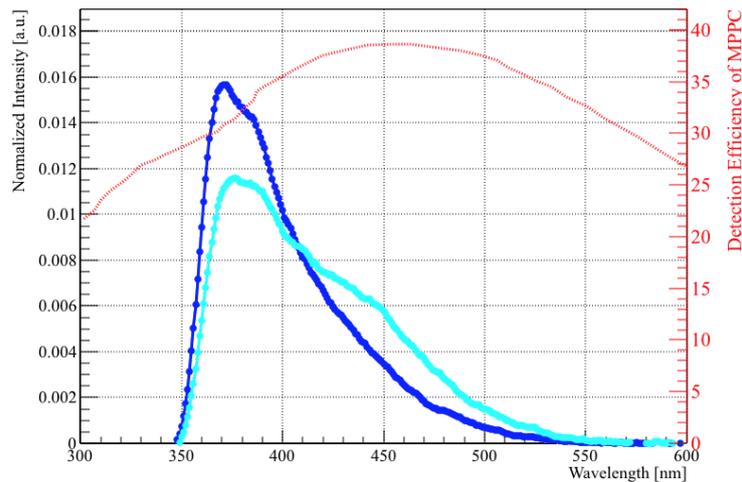
（表1：Li化合物と界面活性剤の組み合わせ）

LiClを用いた場合はいずれの界面活性剤においても白色の沈殿物が生じ、シンチレーターとしての有用性は確認できなかった。それに対してLiBrの場合では、SDSまたはノニルフェニルエーテルを組み合わせることで水シンチレーターを作成することができた。LiBrでもLABや塩化ベンゼトニウムを組み合わせた場合は白色の沈殿物が生じたが、これは水中のベンゼン環と反応するためではないかと考えられる。

次に作成した水シンチレーター（LiBrとSDSのサンプル、LiBrとノニルフェニルエーテルの

サンプル) について、その励起および発光スペクトルの測定を行なった。測定には名古屋大学の施設共同利用システムを活用し、分光光度計 (日本分光) を用いた。結果を図 1 に示す。

Emission Spectrum of Li-loaded Water-based LS



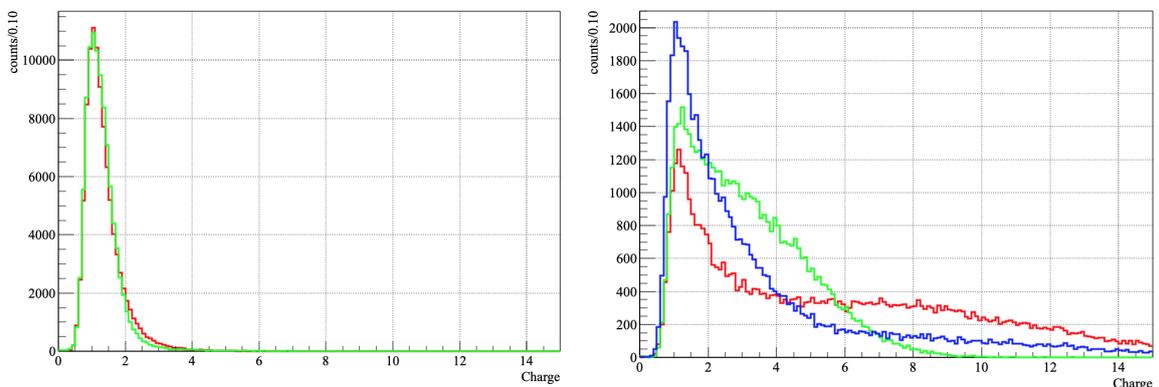
(図 1 : 水シンチレーターの発光スペクトル、青が LiBr + SDS、水色が LiBr + ノニルフェニルエーテルのサンプルを示す。赤点線は MPPC の検出効率を表す)

これにより作成した水シンチレーターの最大発光波長が 370nm 付近にあることがわかった。これはシンチレーション検出器で広く用いられている光電子増倍管や MPPC (Multi Pixel Photon Counter) といった光検出器の感度領域に対して、やや低い波長になっており、検出効率を最大限にするためには波長変換する機構が必要であると思われる。

② γ 線源による発光量の測定

^6Li 含有水シンチレーターを作成し、 γ 線源による発光量の測定を実施した。作成した水シンチレーターは界面活性剤として SDS、発光剤として PPO、Li 化合物として LiBr を水に混ぜたものである。用いた γ 線源は ^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 ^{22}Na の三種類で、測定には筑波大学数理物質系物理学域・飯田崇史氏の協力を得て実施した。すると、上記のレシピで作った水シンチレーターではブラックライトでの発光は目視で確認できるものの、1MeV 前後の放射線源では十分な発光量が得られないということが判明した (図 2 左)。

液体シンチレーターは放射線などが入射してきた時、液体中に存在する分子を励起してそのエネルギーが伝達することにより光を放出している。したがって、作成した水シンチレーターはエネルギー伝達効率が悪いと発光量が少ないのではないかと考え、エネルギー伝達効率が高いと言われている物質を加えた構成を試してみることにした。液体シンチレーターの中でも特にベンゼン環を持った溶媒はエネルギー伝達効率が高いと知られている。そこで上記の組成に有機溶剤であるプソイドクメン (PC) を少量加えた水シンチレーターを作成し、 γ 線源による発光量の測定を再度実施した。その結果、有機溶剤を入れなかった場合に比べて 10 倍以上の発光量を得ることに成功し、 γ 線によるコンプトン端を確認できた (図 2 右)。



(図 2 : γ 線源による発光量の測定、左 : PC を含まない水シンチレーター、右 : PC を含む水シンチレーター、赤は ^{60}Co のスペクトル、黄緑は ^{137}Cs のスペクトル、青は ^{22}Na のスペクトルをそれぞれ示す)

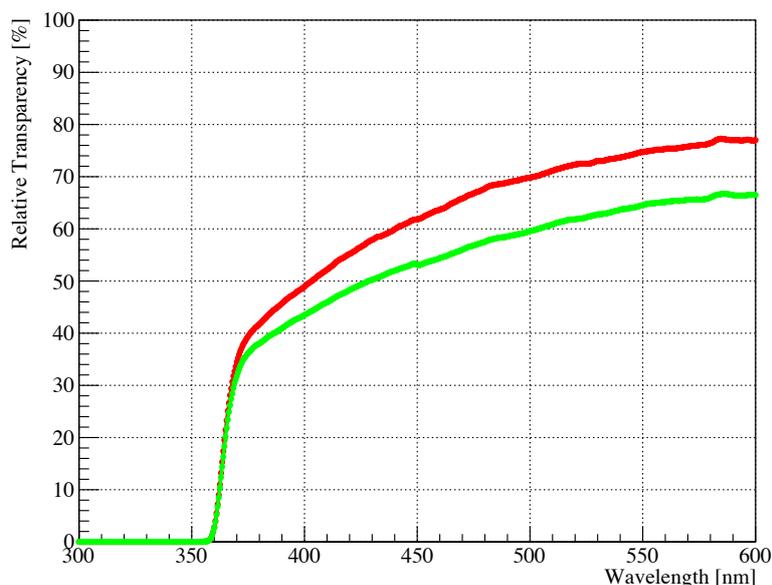
③ 透過度の測定

作成した水シンチレーターについて透過度の測定を行なった。作成した水シンチレーターは界面活性剤として SDS、発光剤として PPO、Li 化合物として LiBr に加えて有機溶剤である PC と水を混ぜ合わせたものである。測定には福井大学原子力・エネルギー安全工学専攻・中島恭

平氏の協力を得て、分光光度計（日立ハイテクサイエンス）を用いた。

本実験では界面活性剤の量による透過度の依存性を確認するため、SDS が 10wt%（重量パーセント）のサンプルと 15wt%のものについてそれぞれ透過度を測定し、比較した。結果を図 3 に示す。これにより界面活性剤の増加に伴い、透過度（減衰長）が下がる傾向が明らかになった。

Transparency of Li-loaded WbLS



(図 3 : 水シンチレーターの透過度、赤が SDS=10wt%のサンプル、黄緑が SDS=15wt%のサンプルを示す)

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 3 件)

- ① Y. Kibe and T. Iida, “Development of ^6Li -loaded water-based liquid scintillator for the detection of secondary neutrons in proton therapy”, 2018 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, N-22, NSS-Poster II, 2018 年 11 月 10-17 日
- ② 岐部佳朗、「 ^6Li 含有水シンチレーターの開発と応用」、SMART2018、2018 年 5 月 17-19 日
- ③ Y. Kibe, “Development of ^6Li -loaded water-based liquid scintillator for the detection of secondary neutrons in proton therapy”, 8th Japan-Korea Joint Meeting on Medical Physics, P-047, 2017 年 9 月 15-17 日

6. 研究組織

(1) 研究協力者

研究協力者氏名：飯田 崇史

ローマ字氏名：Takashi Iida

研究協力者氏名：中島 恭平

ローマ字氏名：Kyohei Nakajima

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。