

令和 4 年 5 月 29 日現在

機関番号：34419

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K04996

研究課題名(和文) シンチレータの放射化を利用した放射線治療場中性子測定システムの開発

研究課題名(英文) Development of Neutron Measurement System for Radiation Therapy Field Using the Activation of a Scintillator

研究代表者

若林 源一郎 (Wakabayashi, Genichiro)

近畿大学・原子力研究所・教授

研究者番号：90311852

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：ヨウ化セシウム(CsI)シンチレータに中性子を照射すると、シンチレータ中に含まれるヨウ素とセシウムが放射化され、放射化生成物としてCs-134mとI-128が生成される。これらの生成物はシンチレータ中に内部線源として含まれるので、きわめて高い検出効率で放射能を測定することができる。また、短時間の照射で大きな放射能が得られるので、高感度の測定が可能である。本研究では、1回の短時間の中性子照射によってシンチレータ中に二種類の核種(Cs-134mとI-128)が生成されることを利用して、カドミウムフィルタ法を用いずに熱中性子束を簡便に測定する方法を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した中性子測定法は、従来の方法よりも簡便に高感度な測定が行える方法である。従来の放射化法では、熱中性子束を求める際にカドミウムフィルタ法を用いる必要があり、2回の中性子照射が必要であった。また弱い熱中性子束を測定するためには長時間の照射が必要であった。本方法では、短時間の1回の照射で比較的弱い熱中性子束を精度よく定量することが可能であり、放射線治療場で発生する二次中性子の測定や、低出力原子炉を用いた照射実験における中性子束測定に活用することができる。

研究成果の概要(英文)：When a cesium iodide (CsI) scintillator is irradiated by neutrons, the iodine and cesium contained in the scintillator are activated, and Cs-134m and I-128 are produced as activation products. Since these products are contained in the scintillator as internal radiation sources, the radioactivity can be measured with extremely high detection efficiency. In addition, since a large amount of radioactivity can be obtained with a short irradiation time, measurement with high sensitivity is possible. In this study, we developed a simple method to measure thermal neutron flux without using the cadmium filter method by utilizing the fact that two kinds of nuclides (Cs-134m and I-128) are produced in the scintillator by a single short time neutron irradiation.

研究分野：放射線工学

キーワード：シンチレータ 自己放射化 熱中性子束 ヨウ化セシウム カドミウムフィルタ法

1. 研究開始当初の背景

近年、粒子線がん治療や強度変調放射線治療 (IMRT) など、放射線治療技術が高度化するに伴い、高エネルギーの治療ビームが多用されるようになってきた。これらの治療法は線量集中性に優れ、正常組織への無用な被ばくが少ないことが最大の特長であるが、人体への照射時やビーム整形過程で高エネルギーの入射ビームが核反応を起こし、様々な二次粒子が発生することが知られている。中でも中性子は生物学的効果が大きいため、二次がんの発生をもたらすことが懸念されており、精度の高い治療計画と十分な線量管理が必要である。また最近では、加速器中性子源を用いたホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) に大きな期待が寄せられ、治療施設の建設や治療の実施が拡大しつつあり、治療ビームとして用いられる中性子に対しても十分な線量管理が求められている。

これらの中性子による被ばくは、治療により腫瘍が受ける線量に比べると少ないものの、今後治療の対象者が若年層にも拡大していくこと、医療の個別化が進むことを考慮すると、治療毎に中性子発生量を把握することが望ましい。そこで本研究グループでは、主に治療場における効率的な中性子測定法を開発することを目的として、ヨウ素を成分として含むシンチレータを使った新しい中性子測定法を試みていた。この方法は放射化法の原理に基づいており、シンチレータ中に含まれるヨウ素を中性子場で放射化した後、シンチレータ中に生成した放射能をシンチレータ自身で測定することにより中性子束を求める。具体的には、NaI シンチレータ等のヨウ素を含有するシンチレータに含まれる ^{127}I の放射化により生成する ^{128}I が放出するベータ線を測定して飽和放射能を定量し、中性子束を求める。放射線源が検出器中に内部線源として含まれるため、検出効率はほぼ 100% であり、高精度な測定が可能である。

本研究グループでは、当時近畿大学原子炉 (UTR-KINKI) や九州大学病院のがん治療用 X 線照射装置 (Varian Clinac 21EX) を用いて照射実験を行い、 $10^3 [\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}]$ 程度までの熱中性子束を高感度で測定可能であることを確認していた。またこれらの実験を通じて、CsI シンチレータを用いた方が、NaI シンチレータがもつような潮解性がほとんどなく、安価で取り扱いが容易であることなど様々な点で有利であることに思い至った。

2. 研究の目的

以上のような経緯から、本課題では、CsI シンチレータの放射化を用いた中性子測定法について研究し、典型的な中性子場を対象として簡便に中性子場の特性を測定できる方法を開発することを目的とした。具体的には、まずカドミウムフィルタ法の原理を応用し、CsI シンチレータを用いた熱中性子束測定法を確立し、次に CsI シンチレータに含まれるヨウ素とセシウムの放射化を利用して、カドミウムフィルタ法を用いずに熱中性子束を求める方法を開発することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) Cs-134m からの内部転換電子を利用した熱中性子束測定

CsI シンチレータを中性子場で放射化させると、 ^{127}I とともに ^{133}Cs が放射化され、 $^{134\text{m}}\text{Cs}$ が生成される。 $^{134\text{m}}\text{Cs}$ は一定の割合で内部転換電子を放出するため、放射化後の CsI シンチレータからの出力の波高分布は、 ^{128}I の壊変に伴うベータ線スペクトルと $^{134\text{m}}\text{Cs}$ 由来の内部転換電子による線スペクトルが重なったものとなる。このうち $^{134\text{m}}\text{Cs}$ が放出する内部転換電子は線スペクトルとして観測されるため、ほぼ 100% の検出効率で測定することができる。しかしながら、 ^{133}Cs は、熱中性子だけでなく熱外中性子によっても放射化されるため、シンチレータ中に生成する $^{134\text{m}}\text{Cs}$ の飽和放射能には熱中性子によって生成した成分と熱外中性子によって生成した成分が含まれる。そこで、従来の放射化法でよく用いられているカドミウムフィルタ法の原理を応用することにより、熱中性子によって生成した成分のみを求めた。原理は金箔等を用いた従来の方法と同じであるが、放射化断面積と半減期の関係から、短時間の照射では金箔を使った放射化法に比べて生成する放射能が圧倒的に大きく、きわめて高い検出効率で測定できることなど、従来の方法に比べて有利な点が多い。

UTR-KINKI の中性子ラジオグラフィ設備内に光電子増倍管を接続した円柱型 CsI シンチレータ (直径 2.54 cm、厚さ 2.54 cm) を設置し、原子炉熱出力 1W で 75 分間の照射を行った。その後、CsI シンチレータ内に生成した $^{134\text{m}}\text{Cs}$ から放出される内部転換電子 (128 keV) のエネルギースペクトルを多重波高分析器 (MCA) で測定するとともに、計数率の経時変化を得た。同様の手順で、Cd 板で覆った CsI シンチレータを 180 分間照射し、先に得られた測定結果と合せてカドミウムフィルタ法を適用することにより熱中性子束を求めた。また、金箔を同じ照射条件で 3 時間照射した後、高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いて ^{198}Au の放射能を定量し、従来の方法により熱中性子束を求めた。

さらに、CsI シンチレータの自己遮蔽効果による影響を補正するため、粒子・重イオン輸送計算コード PHITS を用いてシミュレーション計算を行った。また、 $^{134\text{m}}\text{Cs}$ から放出されるガンマ線がシンチレータ中で光電効果を起こし、内部転換電子と同じピークとして計数される影響に

ついてもシミュレーション計算を行い、測定結果の補正に用いた。

(2) カドミウムフィルタ法を用いずに熱中性子束を求める方法

(1) で述べたように、CsI シンチレータを中性子場で放射化させると、CsI シンチレータからの出力の波高分布は、 ^{128}I の壊変に伴うベータ線スペクトルと $^{134\text{m}}\text{Cs}$ 由来の内部転換電子による線スペクトルが重なったものとなり、それぞれの半減期に従って減衰していく。そのため計数率の経時変化から半減期の違いを利用して複数の放射化物の放射能を区別して定量することが可能であり、それぞれの放射能から中性子束を求めることができる。ここで、 ^{127}I 及び ^{133}Cs は、熱中性子領域及び共鳴領域においてそれぞれ異なる放射化断面積を持っており、測定対象とする中性子場のエネルギースペクトルの形があらかじめ決まっていれば、 ^{128}I 及び $^{134\text{m}}\text{Cs}$ 放射能の測定値から熱中性子束、熱外中性子束を同時に求めることが可能である。しかも、カドミウムフィルタを必要とせず、単独のシンチレータで測定が可能となる。

十分に減速された吸収のない体系の中性子スペクトル $\phi(E)$ は Maxwell 分布と $1/E$ 分布の重ね合わせとして次のように近似できることが知られている。

$$\phi(E) = \phi_t \frac{E}{(kT)^2} e^{-E/kT} + \theta \frac{\Delta}{E} \quad (1)$$

ここで、 ϕ_t は熱中性子束、 E は中性子エネルギー、 k はボルツマン定数、 T は中性子温度、 Δ はレサジーあたりの中性子束である。 Δ は結合関数であり、熱外領域では $\Delta = 1$ となり、他の領域では $\Delta = 0$ となる。式(1)で示されるような中性子スペクトルによって CsI シンチレータが放射化された場合、 $^{134\text{m}}\text{Cs}$ と ^{128}I の標的原子あたりの飽和放射能 A_1 及び A_2 は、熱中性子と熱外中性子の寄与により生成した飽和放射能の合計で表すことができる。

$$A_1 = \sigma_1 \phi_0 + I_1 \theta \quad (2)$$

$$A_2 = \sigma_2 \phi_0 + I_2 \theta \quad (3)$$

ここで、 σ_1 と σ_2 は $^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134\text{m}}\text{Cs}$ 反応及び $^{127}\text{I}(n,\gamma)^{128}\text{I}$ 反応の中性子最確速度 $2200 \text{ [m s}^{-1}\text{]}$ における断面積、 I_1 と I_2 は $^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134\text{m}}\text{Cs}$ 反応及び $^{127}\text{I}(n,\gamma)^{128}\text{I}$ 反応の共鳴積分である。 ϕ_0 の定義は以下のとおりである。

$$\phi_0 = n v_0 \quad (4)$$

ここで、 n は熱中性子密度 [cm^{-3}]、 $v_0 = 2200 \text{ [m s}^{-1}\text{]}$ である。式(2)、(3)を連立方程式として解くことで、 ϕ_0 を求めることができる。熱中性子束 ϕ_t は ϕ_0 から次の関係を用いて求めることができる。

$$\phi_t = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \phi_0 \quad (5)$$

UTR-KINKI の中央ストリンガー孔内に直方体の CsI シンチレータ ($1.0 \text{ cm} \times 1.0 \text{ cm} \times 0.3 \text{ cm}$) を設置し、熱出力 1W で原子炉を臨界にして中性子を 30 分間照射した。照射終了後、放射化した CsI シンチレータを中央ストリンガー孔から取り出し、光電子増倍管 (Hamamatsu H7195) に接続して 1 分間の測定を行った。得られた波高スペクトル及び計数率の経時変化から $^{134\text{m}}\text{Cs}$ と ^{128}I の計数値を抽出し、シンチレータ中に生成した $^{134\text{m}}\text{Cs}$ と ^{128}I の飽和放射能を求めた。その際、(1)と同様に自己遮蔽効果及び内部転換電子の計数への影響をシミュレーション計算によって求め、補正した。

4. 研究成果

(1) Cs-134m からの内部転換電子を利用した熱中性子束測定

図 1 に CsI シンチレータの放射化によって得られたエネルギースペクトルの例を示す。 ^{128}I のベータ線による連続スペクトルと $^{134\text{m}}\text{Cs}$ の内部転換電子によるピークが確認できた。さらに $^{134\text{m}}\text{Cs}$ から放出される内部転換電子の計数値から熱中性子束を求めると、 $(6.1 \pm 0.1) \times 10^3 \text{ [cm}^{-2} \text{ s}^{-1}\text{]}$ となった。金箔の放射化から求めた熱中性子束は $(6.6 \pm 0.5) \times 10^3 \text{ [cm}^{-2} \text{ s}^{-1}\text{]}$ であり、CsI シンチレータの自己放射化法によって従来の方法と同様の結果を得ることができた。したがって、CsI シンチレータの放射化によって生成する $^{134\text{m}}\text{Cs}$ からの内部転換電子を利用した熱中性子束測定法は、弱い熱中性子束を精度よく求める方法として有用であることが分かった。

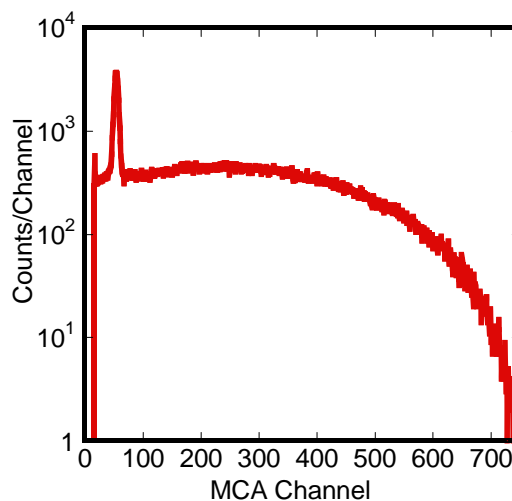


図 1 CsI シンチレータの放射化によって得られたエネルギースペクトルの例

(2) カドミウムフィルタ法を用いずに熱中性子束を求める方法

図 2 に放射化後の計数率の経時変化を示す。 $^{134\text{m}}\text{Cs}$ (半減期: 2.9 h) 及び ^{128}I (半減期: 25 min) の減衰による 2 つの指数関数成分と定数成分 (B.G.) で全計数率の経時変化をフィッティングす

ることができた。 ^{134m}Cs 及び ^{128}I の飽和放射能から熱中性子束を算出すると、結果は $(1.49 \pm 0.14) \times 10^7 [\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}]$ となった。UTR-KINKI の中央ストリンガー孔内の最大熱中性子束の公称値は $1.2 \times 10^7 [\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}]$ とされているが、過去に多重箔放射化法によって測定された熱中性子束として $(1.54 \pm 0.16) \times 10^7 [\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}]$ と報告されている例もあり、過去の測定値に近い値が得られた。

熱中性子炉の中性子スペクトルが Maxwell 分布と $1/E$ 分布で近似されること、CsI シンチレータの放射化によってシンチレータ中に二つの放射化物 (^{134m}Cs 、 ^{128}I) が生成されることを利用して、短時間の1回の照射でカドミウムフィルタ法を用いずに熱中性子束を測定できることが示された。

< 引用文献 >

T. Sato, et al., “Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02”, J. Nucl. Sci. Technol. Vol. 55(5-6), pp. 684-690, 2018.

K. Kobayashi, et al., “Determination of thermal and intermediate neutron spectrum at UTR-KINKI using Cd-ratio measurements by activation method”, Annual Report of Kinki University Atomic Energy Research Institute, vol. 35, pp.15-22, 1998.

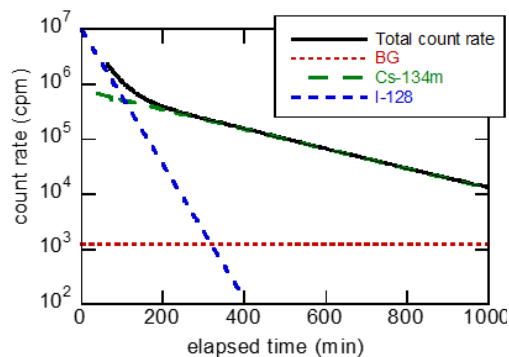


図2 CsI シンチレータの放射化によって得られた計数率の経時変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 島津美宙、若林源一郎、納富昭弘、古場裕介、真正浄光	4. 巻 43
2. 論文標題 近畿大学原子炉におけるCsIシンチレータの自己放射化を用いた中性子束測定	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 放射線	6. 最初と最後の頁 135-138
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Miyu Shimazu, Genichiro Wakabayashi, Akihiro Nohtomi, Yusuke Koba, Kiyomitsu Shinsho	4. 巻 -
2. 論文標題 Thermal neutron flux measurement by counting conversion electrons from Cs-134m generated in a CsI scintillator	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 2018 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Proceedings (NSS/MIC), Sydney, Australia, 2018	6. 最初と最後の頁 1-3
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/NSSMIC.2018.8824515	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kurihara Ryosuke, Nohtomi Akihiro, Wakabayashi Genichiro, Sakurai Yoshinori, Tanaka Hiroki	4. 巻 56
2. 論文標題 Preliminary design study of a simple neutron energy spectrometer using a CsI self-activation method for daily QA of accelerator-based BNCT	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 70-77
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/00223131.2018.1523757	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ueki Taishi, Nohtomi Akihiro, Wakabayashi Genichiro, Fukunaga Junichi, Kato Toyoyuki, Ohga Saiji	4. 巻 128
2. 論文標題 A design study of application of the CsI self-activation method to the neutron rem-counter technique	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Radiation Measurements	6. 最初と最後の頁 106181-106181
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.radmeas.2019.106181	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 長友那豊、若林源一郎、納富昭弘、堀内雅一、松村陸
2. 発表標題 CsIシンチレータの放射化を用いた原子炉熱中性子束の測定
3. 学会等名 次世代放射線シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 N. Nagatomo, G. Wakabayashi, A. Nohtomi, M. Horiuchi, R. Matsumura
2. 発表標題 Measurement of Thermal Neutron Flux in Thermal Reactor by Using Activation of a CsI Scintillator
3. 学会等名 2021 Virtual IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 堀内雅一、若林源一郎、納富昭弘、長友那豊、松村陸
2. 発表標題 CsIシンチレータの自己放射化法における自己遮蔽因子の評価
3. 学会等名 2022年第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松村陸、若林源一郎、納富昭弘、長友那豊、堀内 雅一
2. 発表標題 CsIシンチレータの自己放射化法における内部転換電子の計数の評価
3. 学会等名 2022年第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 長友那豊、若林源一郎、納富昭弘、堀内雅一、松村陸
2. 発表標題 CsIシンチレータの放射化を用いた原子炉熱中性子束の測定
3. 学会等名 次世代放射線シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Nayuta Nagatomo, Genichiro Wakabayashi, Akihiro Nohtomi, Masakazu Horiuchi, Riku Matsumura
2. 発表標題 Measurement of Thermal Neutron Flux in Thermal Reactor by Using Activation of a CsI Scintillator
3. 学会等名 2021 Virtual IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 堀内雅一、若林源一郎、納富昭弘、長友那豊、松村陸
2. 発表標題 CsIシンチレータの自己放射化法における自己遮蔽因子の評価
3. 学会等名 2022年第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松村陸、若林源一郎、納富昭弘、長友那豊、堀内 雅一
2. 発表標題 CsIシンチレータの自己放射化法における内部転換電子の計数の評価
3. 学会等名 2022年第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 長友那豊、堀内雅一、松村陸、佐々木海斗、深海星也、大塚壮真、若林源一郎、納富昭弘
2. 発表標題 CsIシンチレータの放射化を用いた原子炉熱中性束の測定
3. 学会等名 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 島津美宙、若林源一郎、納富昭弘
2. 発表標題 CsIシンチレータの自己放射化を用いたPu-Be中性子照射場の熱中性子束評価
3. 学会等名 次世代放射線シンポジウム2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 島津美宙、若林源一郎、納富昭弘
2. 発表標題 Pu-Be中性子源照射場におけるCsIシンチレータの自己放射化を用いた熱中性子束測定
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 島津美宙、若林源一郎、納富昭弘
2. 発表標題 CsIシンチレータの自己放射化を用いた熱中性子束測定
3. 学会等名 次世代放射線シンポジウム2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Shimazu, G. Wakabayashi, A. Nohtomi, Y. Koba, K. Shinsho
2. 発表標題 Thermal Neutron Flux Measurement by Counting Conversion Electrons from Cs-134m Generated in a CsI Scintillator
3. 学会等名 IEEE 2018 Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 島津美宙、若林源一郎、納富昭弘、古場裕介、眞正浄光
2. 発表標題 CsIシンチレータ中に生成したCs-134mから放出される内部転換電子を用いた熱中性子束測定
3. 学会等名 放射線治療と放射線防護のための放射線計測に関する研究会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関