

平成23年5月15日現在

研究種目：基盤研究（B）  
研究期間：2007～2009  
課題番号：19360429  
研究課題名（和文） 加速器 BNCT 中性子源用低エネルギー中性子スペクトロメータの開発研究  
研究課題名（英文） Development of low energy neutron spectrometer for accelerator based neutron source for BNCT

研究代表者  
村田 勲（MURATA ISAO）  
大阪大学・工学研究科・准教授  
研究者番号：30273600

## 研究成果の概要（和文）：

加速器 BNCT 中性子源用の低エネルギー中性子検出器の開発を行った。BNCT では、特に加速器ベースの場合、その中性子場の特性評価が重要である。が、熱外中性子のエネルギー測定は難しい。本研究では、位置敏感型比例計数管を縦方向に使用し、検出深さ分布を測定することで、中性子のエネルギー分布を推定するという新しい方法を提案した。プロトタイプ検出器を製作し、実際にスペクトル測定が可能であることを実証した。

## 研究成果の概要（英文）：

A new low-energy neutron spectrometer for accelerator based neutron source (ABNS) for BNCT has been developed. For BNCT, it is a crucial issue to characterize the neutron field especially for ABNS. However, measurement of epi-thermal neutrons is not straightforward. In this study, using a position sensitive proportional counter as its one edge of the two is an entrance window of neutrons, detection depth distribution is measured. The measured detection depth distribution is converted to the neutron energy spectrum. Prototype detectors were produced to confirm the feasibility to measure the neutron spectrum in energies from thermal to epi-thermal region.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	4,900,000	1,470,000	6,370,000
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2009年度	3,300,000	990,000	4,290,000
年度			
年度			
総計	9,300,000	2,790,000	12,090,000

## 研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：BNCT、熱外中性子、加速器、スペクトロメータ

## 1. 研究開始当初の背景

2007年当時、日本を中心に世界において加速器を使用したホウ素中性子捕捉療法

(BNCT) のための中性子源開発研究が行われ始めていた。BNCTは、強力な次世代癌治療法として知られているが、現在日本では、京大

及び原子力機構において原子炉で治療が実施されているだけであり、加速器を使用した BNCT 用中性子源の普及が望まれていた。

加速器中性子源を用いる場合、その大きな問題の一つとして、中性子場の特性把握があった。これはこれまでの原子炉を用いた BNCT 治療ではそれほど問題にならなかった事項である。なぜなら、(a)原子炉では中性子源の特性評価が十分なされており、放射化箔等で精度よく中性子照射量等の情報を決めることができるからであり、一方、(b)加速器中性子源の場合、原子炉とは異なり発生源から患者までの距離が近く、にもかかわらず、発生中性子エネルギーが原子炉に比べ一般的に高いため、直接透過成分が問題になること、また高エネルギー $\gamma$ 線がターゲットから直接放出されておりその透過成分もかなりあると推定されること、があり、実はその特性評価はそんなに簡単ではないことが知られている。

加速器 BNCT 中性子源において、「熱から熱外にわたる中性子のエネルギースペクトルを正確に知ることが実用化までの重要な課題である」ということは実は多くの研究者に見過ごされてきた。その理由は、加速器 BNCT 中性子源開発におけるこれまでの最大の関心事は、“如何に熱及び熱外中性子束を上げるか”だったからである。しかし実機を用いた治療が始まった場合、最も重要なことは、実は治療効果（中性子束強度）ではなく患者への無駄な被曝を如何に抑えるかであり、そのためには、どうしても正確なスペクトル測定が必要になってくるのである。

## 2. 研究の目的

本研究では、以上の状況を踏まえ、加速器 BNCT 中性子源のための熱から熱外に至る幅広いエネルギー範囲の中性子スペクトルを正確に測定する手法開発を目指した。

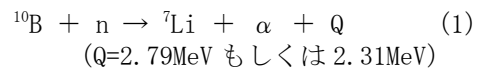
中性子場の測定において問題は以下の3つのカテゴリーに分けられる。(a)熱外以上の高エネルギー中性子成分、(b)詳細に知りたい熱外以下の成分、そして、(c) $\gamma$ 線成分、である。このうち $\gamma$ 線成分は比較的簡単に計測できるので普通問題にはならない。中性子の高エネルギー成分については、生物学的効果が大きいため重要であるが、強度はかなり落ちる。また、この領域については、すでに確立された核融合中性子計測用技術があり50keV以上について詳細に計測できる。最後の熱～熱外(10keV～0.01eV)については、その詳細なエネルギースペクトルの計測はとて難しい。現在可能な方法は、箔等の積分量測定からの推定、もしくはボナーボールを用いたもので、極めてエネルギー分解能の悪い測定であり複雑なスペクトルの決定には向かない。

本研究では、この0.01eV～10keVまでの、従来は測定が困難と言われていたエネルギー領域の中性子スペクトル測定を実現すべく、新しい計測手法の確立を目指すことを目的とする。

## 3. 研究の方法

低エネルギー中性子の測定については、特殊な装置を用いることで測定できる可能性はある。例えばモノクロメータにより測定が可能であるが、6桁にわたるエネルギー範囲を同時測定することは無理である。また、TOF法も考えられるが、特殊な(パルス化できる)加速器に対してのみ有効であり、基本的に直流であるバンデグラフやコッククロフトなどのタイプに応用できなければ汎用性があるとは言えない。本研究では以下に示す新しい原理に基づく、パルス化を必要としない、簡便な低エネルギー中性子スペクトロメータ開発を行った。

放射線計測では、一般的に中性子のエネルギー測定は難しいことが知られている。特に熱中性子近傍の正確なエネルギー測定は極めて困難である。その主たる理由は、熱中性子はエネルギーが低く(室温で0.025eV)、通常中性子検出器では、核反応のQ値が大きいため(～MeV)、検出器に吸収される大きなエネルギー(つまりQ値分のエネルギー)から小さな中性子エネルギー(～eV)を知ることには無理があるからである。例えば、BF<sub>3</sub>カウンターの原理である核反応式として、



があるが、中性子エネルギーが反映されている $\alpha$ 粒子のエネルギー(1.47MeV もしくは1.78MeV)を測定しても、そのエネルギーが中性子エネルギー(～eV)に比べ高すぎるので、中性子のエネルギーを推測できない。そこで本研究では、エネルギーを直接測定するのではなく、“**中性子のエネルギーが核反応断面積と深く関係がある**”という事実を利用する。いま、ガス入り検出器を考える場合、良く知られている通り、核反応が起こる深さ位置はマクロ断面積を $\Sigma(E)$ としたとき、

$$R(x, E) = \Sigma(E)e^{-\Sigma(E) \cdot x} \quad (2)$$

と理想的には指数関数で簡単に表される。ここで、 $R(x, E)$ はエネルギー $E$ の中性子が $x$ で核反応を起こす確率を表す。つまり、入射中性子束 $\phi(E)$ と検出器内の核反応位置分布 $Z(x)$ は以下の関係がある。

$$Z(x) = \int R(x, E)\phi(E)dE \quad (3)$$

この式から、 $Z(x)$ を計測することにより理論的には $\phi(E)$ が Unfolding プロセスにより求められることになる。問題は、 $R(x, E)$ と $E$ の関係であり、一意的に Unfolding されるためには、数学的に $E$ に対して $R(x, E)$ は一次独立である必要がある。この要求に答えることは多少困難であり、物理的には、“異なるエネルギーに対して同じ断面積値を取らない”、と等価になる。これに当てはまる場合は、低エネルギーにおける $1/v$ 断面積のみであり、該当する核反応を持つ核種は ${}^3\text{He}$ 、 ${}^6\text{Li}$ 、 ${}^{10}\text{B}$ 及び熱核分裂性核種のみである。しかし、これは、中性子計測の立場からは逆に都合が良い。つまり、これらの核種を用いたガス入り検出器（比例計数管）は製作可能である、既に存在するからである。

以下、本研究で開発した新しい検出器（位置敏感型比例計数管）について、順に述べていく。

#### 4. 研究成果

##### 4.1 検出器の設計と製作

検出器製作に際しては、いくつかの自由度がある。ガスの種類( $\text{BF}_3$ もしくは ${}^3\text{He}$ )、ガス圧(10気圧以下)、寸法(特に長さ)、コリメータ寸法などである。これらの自由変数を変化させた場合に、どのような反応位置分布が得られるか、その効率は何の程度か、を知ることが測定可能性を議論する上で重要になる。本研究では、まず、これらの自由変数を入力した場合に、得られる検出器応答を計算で評価するシステムを構築した。この評価計算には、オリジナルコードに、モンテカルロコード MCNP を組合わせた。

方針としては、ガス圧はできるだけ高く設定し、検出器長もできるだけ長くしたい。高エネルギー中性子の効率を上げるためである。そして、検出器の直径もできるだけ大きくしたい。ガス圧については、使用するガスの種類に依存する。これは、 ${}^3\text{He}$ と $\text{BF}_3$ が考えられる。どちらにするかは、両者の存在比、反応断面積、 $n/\gamma$ 弁別性能、使用できるガス圧、等を考慮する必要がある。まず、純粋にマクロ断面積を比較してみる。 ${}^3\text{He}$ の方が、断面積で1.4倍、原子数密度で5倍大きい。つまり、マクロでは、7倍の優位性がある。しかし、一般的に ${}^3\text{He}$ 検出器の $n/\gamma$ 弁別性能は低いことが知られている。Q値が小さいためである。これは、壁効果とも深く関係があるが、壁効果の方は、逆にQ値の小さい ${}^3\text{He}$ の方が、大きくなってしまふ。この原因は、 ${}^3\text{He}$ の(n, p)反応の生成粒子が水素原子核であることに起因している。結局、 ${}^3\text{He}$ の場合、この欠点を補うためには、高圧にする他はない。幸い、 ${}^3\text{He}$ は10気圧までのガスを比較的簡単に手に入れることができる。一方、 $\text{BF}_3$ は、ガス増幅の性能が悪化するため高圧にで

きず、1気圧程度までしか使用できないことが知られている。本研究では、できるだけ高エネルギーまで効率よく測定したい、という希望があるため、 $n/\gamma$ 性能をある程度犠牲にし、 ${}^3\text{He}$ 検出器を選択することとした。なお、実際には、ガスを詰める作業があることから、10気圧の検出器は無理で、5気圧の検出器を製作することとした。直径については、5cmを目指したが、製作性が極めて悪く、ガス漏れを防ぐことが難しかったため、2.5cm直径と少し小さめのものにせざるを得なかった。

そして、次に、位置敏感型検出器で最も気を使う芯線である。もちろん、位置測定性能を上げるため、抵抗率の高い材質を使う必要がある。本研究では、炭素繊維を使用した新たな芯線を開発した。

最終的な検出器は、3回試作を行い、完成させた。検出器の写真を図1に示す。



図1 開発した ${}^3\text{He}$ 検出器

##### 4.2 位置検出回路

反応位置の検出については、そもそも、位置敏感型比例計数管の空間分解能が一般的に非常にすぐれていることと、応答関数が、(2)式のように、ピークを持たず、測定されるスペクトルのエネルギー分解能の劣化が予想されたため、それほど厳密に議論を行う必要がないと判断した。ただし、実際の回路では、いろいろな試行錯誤が必要であった。ここでは、それについて少し述べる。

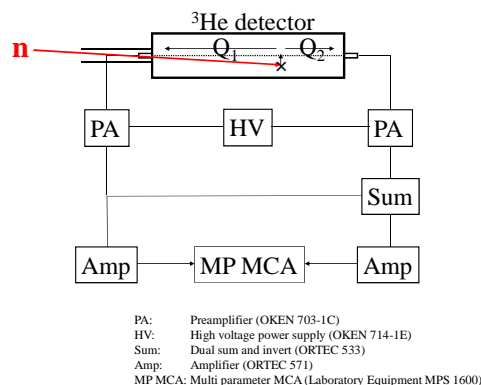


図2 測定回路図

測定回路を図2に示す。まず、印加電圧であるが、あとで述べる深さ分布測定のために、両端の印加電圧値が同じで、しかも毎回同じ電圧値である必要がある。なので、当初は、2台の同じ高圧モジュールを使用していたが、それでは、原因不明の大きなノイズが乗るため、1台にして、モジュールが持つ2つの出力を使用することにした。電圧の再現性については、毎回、高圧の数値をテスターで測定し微調整した。しかし、それでもノイズは問題だった。片側だけの電圧印加にするとノイズがなくなり安定するので、プラトーカーブ測定は、その状態で実施し、電圧値を決めた。

このノイズの除去には、いろいろな方法を試したが、結局、以下のような方法を採用した。ノイズを詳細に調べると、ある周波数が浮かび上がってきた。そのパターンは、複雑であったが、よく見ると、おおむね両プリアンプからの出力では、極性が逆になっている場合が多いことがわかってきた。それらをアンプを通してから、Sum信号とし、その信号と片側の増幅信号の2次元コントラストを作り、深さ分布測定を実現させた。しかし、これでは、Sum信号を使用しない場合よりはましではあるが、まだ、ノイズ成分が多く、コントラスト上の信号の計数率が実際より若干落ちる傾向を示した。つまり、高効率に耐えられなくなりそうである。そこで、プリアンプの信号をDual sum and invertで直接Sumをとることとした。これは、通常はあまりやられないが、比例計数管の信号は結構時間的に遅く、このモジュールを通すことができた。そして、その状態でアンプを通すと、かなりノイズが抑えられることが分かった。しかし、コントラストを作るためにはもう一つのアンプ出力が必要である。これは仕方ないのでそのまま使用することにしたが、コントラスト上では、X軸及びY軸付近に形成されるノイズ成分となるため、ディスクリレベルをうまく設定することにより、かなり効率的な測定ができることが分かった。

#### 4.3 コリメータ

コリメータは、中性子を検出器の軸に平行に入射させる役割を持っており、正確な計測には不可欠である。しかし、今回の検出器は、製作性の問題から、2.5 cm直径になったため、コリメータ径を絞ることがほとんどできず、検出器径と同じ大きさのCd製コリメータを製作し、使用した。なお、コリメータ径を変化させたときの検出器応答の変化は少なく、絶対値の減少のみだったことから、2.5 cmを採用した。なお、長さは、20 cmとした。今回のテスト計測では、AmBeによる熱中性子場を使用したため、概ね平行ビームが得られたため、10 cm以上であれば、ほぼ、問題なく測定をすることができた。

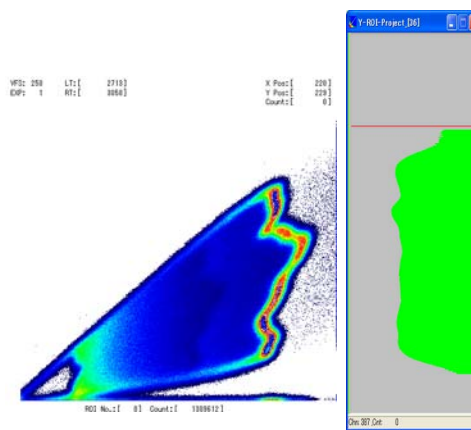


図3 2次元コントラストの例（左の縦軸は、片側の出力。横軸は、Sum信号。赤色の領域が、ピークを示している。その部分にROIをセットし、y軸方向に射影したものが右の緑色のスペクトル。きれいな台形にはならないことが分かる。）

#### 4.4 深さ分布測定

得られた2次元コントラストの例を図3に示す。この例は、中性子場に入れるべきAmBe線源を貯蔵庫に貯蔵した状態でのスペクトルである。つまり、中性子源がない状態、ということであり、測定には数日間を要する。つまり、こうすることで、非常に弱い等方の中性子場が形成され、検出器に均等に入射したスペクトルを得ることができる。この測定により、検出器の場所依存の相対効率を知ることができる。なお、コントラストのピーク領域を示す領域が直線になっていないが、この理由は現段階では不明である。ガスの封入孔が、中央にあることは理由の一つであるとは考えている。再現性があることから、このままのコントラストで計測を進めることとした。

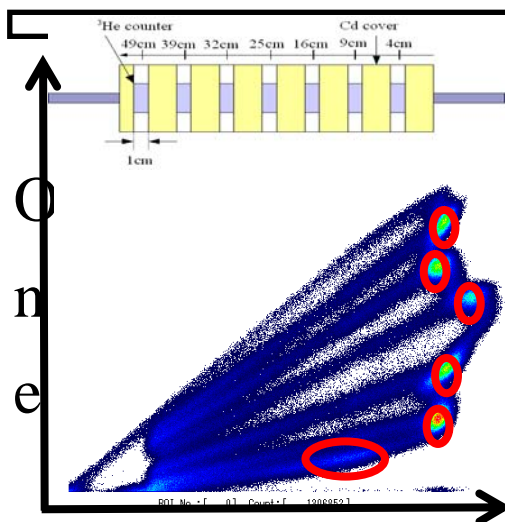


図4 コントラストのピーク位置と検出器の位置との関係の測定（一番下の赤い丸で囲んだ部分が4 cm。順に9cm、16 cm、25 cm、32 cm、39 cmと並んでおり、49 cmは見えない。）

次に、図4の上部の図のように、検出器を部分的にCdシートで被い、ある特定の位置からのみ中性子が入射し、検出されるようにした。コントラストの結果を同図に示す。この結果から、得られた2次元コントラストのどの部分（ピーク領域）が、検出器のどの位置に相当するかを割り出すことができる。この測定の結果、測定可能領域が、検出器端部から4cm～44cmであり、それをエネルギーに換算すると、0.005eV～1keVとなった。

#### 4.5 スペクトル測定

検出深さの分布測定結果から中性子のエネルギースペクトルに変換するには、いわゆる逆問題を解く必要がある。そのためにはまず、検出器の応答関数を求めなければならない。それぞれの中性子エネルギーに対する、検出器応答（検出深さ分布）である。これは、 $^3\text{He}$  検出器の場合、簡単に求めることができる。 $^3\text{He}(n, p)$  反応以外の核反応が低エネルギーでは起こりえないからで、理論計算で求めた応答関数で、ほぼ実験結果の解析に利用可能と推定できる。唯一の補正点は、入射面に存在する物質による減衰補正である。この検出器の場合、入射面は、検出器のどちらかの端部になり、BNCコネクタがついている。この部分の構造を考慮した減衰補正が必要になる。現在は、これを簡易的に一様な厚さと仮定して補正している。この効果については、今後、単色の中性子源による応答関数測定で妥当性を検証する必要がある。評価した応答関数を図5に示す。本研究では、この応答関数を用い、ベイズ推定法により中性子エネルギースペクトルを得た。なお、現段階では、いまだ絶対測定はできていない。

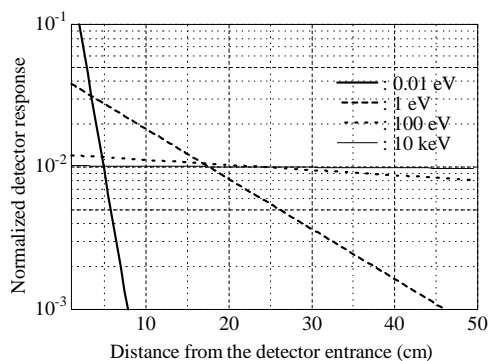


図5 応答関数

#### 4.6 測定結果

本手法により、AmBe 中性子線源を用いて製作された黒鉛サーマルカラムの中性子スペクトルを測定した。図6に、製作した黒鉛サーマルカラムと検出器の配置の様子を示す。検出器は、周りをCdのシートで被い、前面（サーマルカラム側の端）のみを開けてある。図7は、測定された2次元コントラストである。

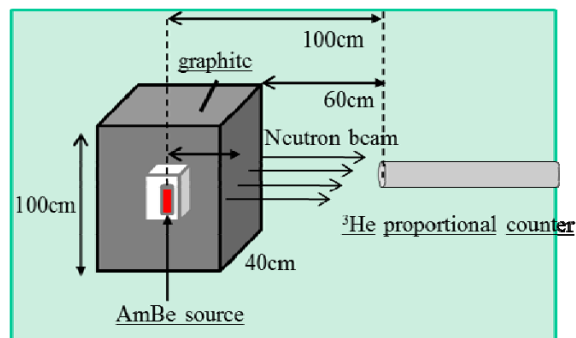


図6 AmBe線源を用いた黒鉛サーマルカラム

下側の計数値が多いのは、 $y=0$  が中性子の入射側の端であることによる。図8は、検出深さ分布である。これから、求めた中性子スペクトルを図9に示す。本測定では、ノイズをできるだけ減らすため、前面にCdの覆いを付けた場合と外した場合の測定結果の差を取っている。これにより、純粋な、熱中性子場の測定となっていると考えられる。計算値は、Cdのフィルターがないため、高エネルギーまでスペクトルが得られている。Cdのカットオフである0.5eV以下を比較した場合、きわめていい一致が得られていることが分かった。以上から、本検出器が、正常に機能していることが確認できた。なお、熱外中性子については、今後確認測定が必要になる。

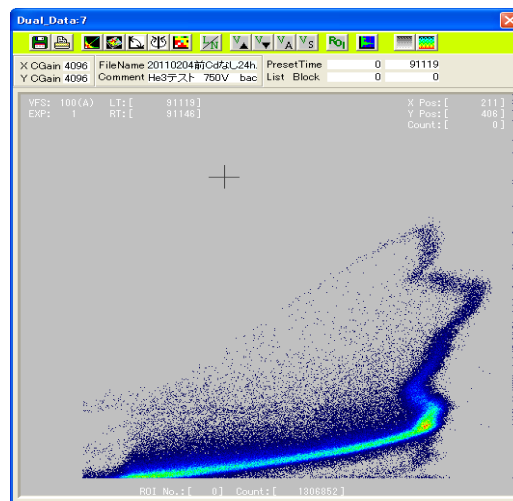


図7 測定された2次元コントラスト

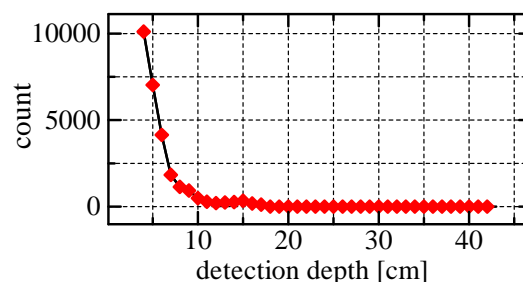


図8 2次元コントラストから抽出された検出深さ分布

## 5. 今後の課題

今回の一連の研究の結果、位置敏感型比例計数管を用いた低エネルギー中性子スペクトロメータを完成させることができた。しかし、現段階では、まだその基本性能が確認されただけであり、今後以下の研究が必要である。

### ○絶対効率測定

放射化箔などによる、測定スペクトルの絶対値化が必要である。AmBe線源を用いたサーマルカラムでは若干弱いため、強力な中性子場で実施する必要がある。

### ○単色中性子源による応答関数測定

応答関数は、現在のところ理論計算に、簡易的な端部の補正が入っているだけであるため、単色中性子源による、応答関数の検証が必要である。

### ○熱外中性子測定

今回の測定では、熱中性子のみであったため、6桁のダイナミックレンジを検証したとは言えない。10keVまでの測定が実現できるかどうかは、実際に熱外中性子場での測定を試して確認してみる必要がある。

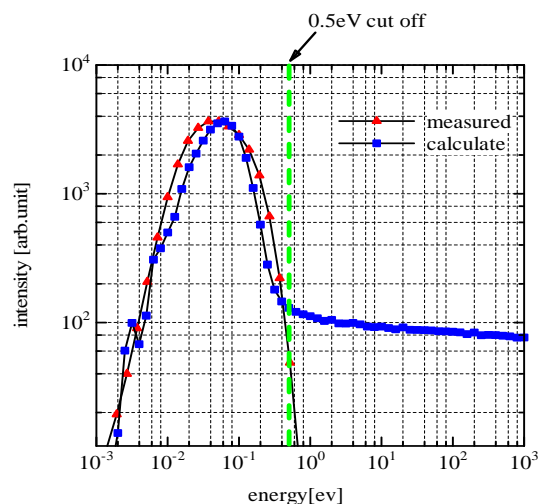


図9 中性子スペクトル測定結果

## 6. まとめ

これまで測定が困難であると考えられてきた、熱外領域の中性子スペクトル測定を実現できる新しいスペクトロメータの開発を行った。現在、BNCT用の中性子源が立ち上がりつつある状況であり、今後、実用化を目指した研究をさらに進めていく予定である。

## 7. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

(1) I. Kato, Y. Fujita, A. Maruhashi, H. Kumada, M. Ohmae, M. Kirihata, Y. Imahori, M. Suzuki, Y. Sakurai, T. Sumi, S. Iwai, M. Nakazawa, I. Murata, H. Miyamaru, K. Ono, "Effectiveness of Boron Neutron Capture Therapy for Recurrent

Head and Neck Malignancies," *Applied Radiation and Isotopes*, **67**, pp. 537-542 (2009).(査読有)

(2) I. Murata, H. Miyamaru, I. Kato, S. Yoshida and Y. Mori, "A New Low Energy Neutron Spectrometer Based on Position Sensitive Proportional Counter for Accelerator Based Neutron Source," *Nucl. Technol.*, **168**, 373-377 (2009).(査読有)

(3) I. Murata, H. Miyamaru, I. Kato, Y. Mori, "On Accelerator Based Neutron Sources and Neutron Field Characterization with Low Energy Neutron Spectrometer Based on Position Sensitive <sup>3</sup>He Counter," *Applied Radiation and Isotopes*, **67**, pp. 288-291(2009).(査読有)

(4) I. Murata, H. Miyamaru, "Low Energy Neutron Spectrometer Using Position Sensitive Proportional Counter – Feasibility Study Based on Numerical Analysis -," *Nucl. Instrum. Meth. in Phys. Res. A* **589**, 445-454 (2008).(査読有)

〔学会発表〕(計3件)

(1) M. Ito, I. Murata, "Thermal / epi-thermal neutron spectrometer with a <sup>3</sup>He position sensitive proportional counter," P-1, *2010 Annual Symposium on Nucl. Data*, Nov. 25-26, 2010, C-CUBE, Chikushi Campus, Kyushu University (2010).

(2) I. Kato, Y. Fujita, M. Ohmae, Y. Sakurai, H. Kumada, I. Murata, H. Miyamaru, A. Maruhashi, M. Kirihata, Y. Imahori, M. Suzuki, T. Sumi, S. Iwai, M. Nakazawa, K. Ono, "Boron Neutron Capture Therapy for Recurrent Head and Neck Cancer," *Proc. Int. Conf. on Neutron Capture Therapy*, Oct. 25-29, Buenos Aires, Argentina, pp. 529 (2010).

(3) 村田 勲、宮丸広幸、加藤逸郎、森 義治、"位置敏感型比例計数管を用いた低エネルギー中性子スペクトロメータの開発"、C24、日本原子力学会 2008 年春の年会、3月26日～28日、大阪大学吹田キャンパス (2008).

## 8. 研究組織

### (1) 研究代表者

村田 勲 (MURATA ISAO)  
大阪大学・工学研究科・准教授  
研究者番号：30273600

### (2) 研究分担者

宮丸 広幸 (MIYAMARU HIROYUKI)  
大阪大学・工学研究科・助教  
研究者番号：80243187

加藤 逸郎 (KATO ITSURO)  
大阪大学・歯学研究科・助教  
研究者番号：60314390