

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K12652

研究課題名（和文）高分子の照射損傷を利用した新しい中性子線量計の開発

研究課題名（英文）Development of neutron dosimeter using irradiation damage of polymer

研究代表者

小林 知洋（Kobayashi, Tomohiro）

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究センター・専任研究員

研究者番号：40282496

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,700,000円

研究成果の概要（和文）：CNT・B4C混練シリコン試料の抵抗値を中性子ビームを照射しながらリアルタイムで測定した結果、中性子ビーム照射時に連続的に抵抗率が減少し、ビーム停止とともにほぼ一定値を取った。また照射時の減少率は中性子フラックスに比例した。本結果は照射によって高分子が架橋することにより、導電パスが増加するという当初の予想を支持している。本試料は熱中性子のフルエンスおよびフラックスモニタとして動作することが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

新しい原理で動作するシンプルな線量計を提案した。安価な材料の組み合わせで熱中性子線量計を構成できたことは、将来本格化するホウ素中性子捕捉療法の実施時に同時多点モニタリングを行うにあたり、その低コスト化に寄与すると考えられる。また、本線量計の検出は高分子材料の抵抗変化で行うため、小型化に限界がない。治療部位の近傍で線量測定を行うことが可能になると考えられる。

研究成果の概要（英文）：The resistivity of CNT/B4C mixed silicone samples was measured in real time during neutron beam irradiation. The resistivity decreased continuously during neutron beam irradiation and reached a nearly constant value when the beam was stopped. The decrease rate during irradiation was proportional to the neutron flux. These results support our initial prediction that irradiation increases the conductive path through cross-linking of polymers. The sample was shown to work as a thermal neutron fluence and flux monitor.

研究分野：中性子ビーム工学

キーワード：カーボンナノチューブ シリコン ボロンカーバイド 中性子線量計 抵抗率

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年我国において、研究用原子炉(京大、原子力機構)の再稼働計画が進むとともに、ホウ素中性子捕捉療法(Boron Neutron Capture Therapy, BNCT)や物性解析のための数 MV の小型加速器を使用した中性子源立ち上げ計画が各所で進んでいる。特に BNCT 利用では、施設毎に中性子のエネルギースペクトルやフラックスが異なることから正確かつ局所的な線量計測が欠かせない。現存する線量計は照射後に読み取り処理が必要でありリアルタイム性がない、あるいは小型化が難しいといった問題を抱えており、リアルタイムに局所線量を把握するデバイスの開発が望まれる。BNCT は、ホウ素を含む薬剤をガン組織に集めた後に中性子を照射し、 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ 反応による および Li 粒子のエネルギー付与によってガン細胞を死滅させる手法である。このときの および Li 粒子の飛程は高々数マイクロメートルであるため、ほとんどのエネルギーはガン細胞内に付与され、近傍の正常細胞に対する影響は最小限に留まる。他の放射線治療や外科手術よりも患者への負担が少ない手法として期待される。BNCT の研究は 40 年以上の歴史があり、特に日本において一定の成果が出ているが、必要な中性子束を得るために原子炉を利用する必要があり、施設の利便性、人員コスト、患者負担などから普及は進まなかった。加速器を用いた中性子発生設備については、茨城県東海村の大強度陽子加速器施設 J-PARC が有名であるが、近年数 MV クラスの小型加速器を用いた設備が各地で整備され、材料解析などの分野では大型と小型の使い分けが定着しつつある。小型加速器中性子発生設備を BNCT に利用しようという機運も高まっており、今後は病院等への配備が進むと予想される。加速器利用 BNCT を普及させるにあたり、エネルギースペクトルやフラックス分布が施設ごとに異なる状況で治療の質を高めるためには、体内各所における局所的な中性子線量を評価する必要がある。さらに、加速器のコンディション変化に伴う線量変化をリアルタイムで捉えることも必要である。現在普及している小型化が可能な中性子線量測定器としては、フィルムバッジ、熱ルミネッセンス線量計(TLD)、飛跡検出プラスチック(CR-39)、バブル線量計、半導体式線量計などが挙げられる。このうち半導体式線量計を除いて読み取り機に掛ける等の後処理工程が必要であり、リアルタイムの線量把握には適さない。また、半導体式は駆動回路および電源が必要であるため、小型化に限界がある。そこで申請者は、炭化ホウ素(B_4C)を分散させたケイ素樹脂(シリコン)の電気抵抗変化を利用した上記の欠点をクリアする新しい中性子線量計を提案する。高分子の電気抵抗がイオンの照射損傷に敏感であることを利用するものである。この方法による中性子線量には以下の利点がある。

- ・検出は高分子材料の抵抗変化で行うため、小型化に限界がない
- ・BNCT プロセスそのものである および Li 粒子による照射損傷を利用する
- ・オンライン計測(リアルタイム計測) / オフライン計測(長期残置で積算) いずれも可能
- ・簡便かつ安価である

2. 研究の目的

本研究では、申請者がこれまでにイオン照射実験によって得た高分子材料が照射損傷を受けて電気伝導性が大きく変化する現象を利用し、小型かつ安価な中性子線量計測デバイスを開発することを目的とする。

3. 研究の方法

パテ状のシリコン樹脂に B_4C 粉末を 60wt% 分散させたものを用意した。体積抵抗率を測定したところ、数百 M $\Omega\cdot\text{cm}$ 以上の高抵抗であり絶縁抵抗計(メガ Ω)等を必要とした。 B_4C 粉末は導電性を持つものの、高濃度で分散させても導電パスが繋がらないことを示している。これに対し、市販の単層カーボンナノチューブを 0.05 ~ 5% 添加し、乳鉢で混練したものをスパーサーとともに銅板で挟み(図 1)、体積抵抗率を測定する。導電パス数の増加により、急激な抵抗率低下を示す。CNT 分散により、市販のテスターやデジタルマルチメーターによる抵抗測定が可能となる。

別系統の試料として、次のものも用意した。市販の窒化ホウ素(BN)板にカーボンナノチューブ分散液を塗布・乾燥し、さらにもう一枚の BN 板で挟んだものを準備した。アルミ箔で作製した電極を 2 枚挿入し、抵抗値を測定することにより導電パスの変化を計測する(図 2)。

申請者が所属する理化学研究所では加速器駆動中性子源 RANS(RIKEN Accelerator-driven compact Neutron Source)が稼働中である(図 3)。直線加速器により陽子を 7MeV に加速し、ベリリウム標的に照射することにより、 $^9\text{Be}(p,n)^8\text{B}$ 反応により中性子を発生させる。発生する中性子は 4MeV 程度の高速中性子が主であるが、減速材(ポリエチレンブロック)によって減速され熱中性子(0.025meV)までの幅広いエネルギー分布を持たせることができる。今回の照射位置における中性子束は実測されていないが、単純化したモデルを用いたモンテカルロシミュレーションでは BNCT 照射場よりやや低い 10^8 n/cm²/sec オーダーと計算されている。

照射後は試料ホルダーやケーブル等が放射化するため、実験者との距離を取るために図 4 に示す照射ホルダーを作製した。

4. 研究成果

CNT・B₄C 混練シリコン試料の抵抗値をリアルタイムで測定した結果例を図5に示す。中性子ビーム照射時に連続的に抵抗率が減少し、ビーム停止とともにほぼ一定値を取っている。また照射時の減少率（傾き）は中性子フラックス（正確には熱中性子フラックス）に比例している。本結果は照射によって高分子が架橋することにより、導電パスが増加するという当初の予想を支持している。本試料は熱中性子のフルエンスおよびフラックスモニタとして動作することが示された。一方、オフラインで照射前後に抵抗率を測定し、フルエンスを算出する試みについては値のばらつきが大きく、研究期間内に成功例を示すことができなかった。CNT 塗布 BN 試料については、本中性子源にて得られる熱中性子フラックスでは抵抗値の変化を示さなかった。本試料については研究期間終了後も長期に渡って挙動を観測する予定である。

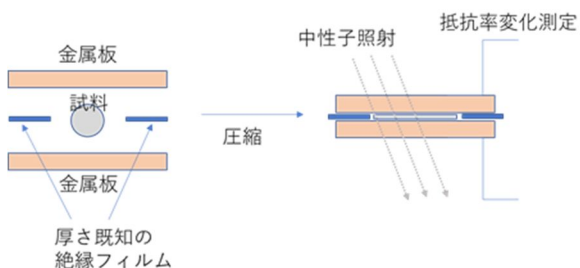


図1 CNT・B₄C 混練シリコン試料の抵抗率測定方法の模式図



図2 BN 板上に形成した CNT ネットワークの抵抗率測定治具



図3 RANS ターゲットステーション



図4 ビーム口より挿入する試料ホルダー

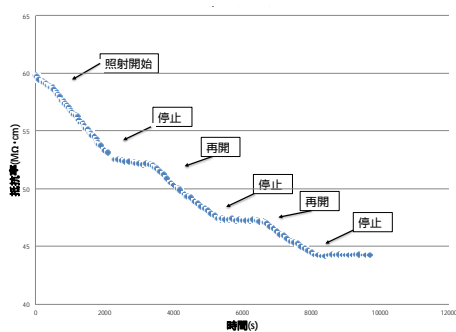


図5 導電パスの変化による抵抗率変化の例

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Kobayashi Tomohiro, Ikeda Shota, Otake Yoshie, Ikeda Yujiro, Hayashizaki Noriyosu	4. 巻 994
2. 論文標題 Completion of a new accelerator-driven compact neutron source prototype RANS-II for on-site use	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment	6. 最初と最後の頁 165091 ~ 165091
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nima.2021.165091	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 1件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 Kobayashi Tomohiro, Ikeda Shota, Otake Yoshie, Ikeda Yujiro, Hayashizaki Noriyosu
2. 発表標題 Small accelerator-driven neutron source for material analysis
3. 学会等名 第30回日本MRS年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小林知洋、大竹淑恵
2. 発表標題 小型陽子線加速器を用いた中性子源開発と材料分析への応用
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

中性子ビーム技術開発チーム
https://www.riken.jp/research/labs/rap/neutr_beam/index.html
加速器駆動小型中性子源RANS
<http://rans.riken.jp>

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
---------	---------