

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25461921

研究課題名(和文)板状熱蛍光線量計による新しい中性子オートラジオグラフィ法の開発

研究課題名(英文)Development of neutron auto-radiography using thermoluminescence slab dosimeter

研究代表者

眞正 浄光 (Shinsho, Kiyomitsu)

首都大学東京・人間健康科学研究科・准教授

研究者番号：20449309

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：治療効果の高い放射線治療の一つとして期待されているホウ素中性子補足療法(BNCT)の治療計画の検証や機器の精度管理などに応用可能な中性子イメージングデバイスを開発した。中性子線の測定は、ホウ素やリチウムなどの高価な中性子捕獲材を必要とすることや、中性子線の他にも線などの他の放射線種も混在し、様々な核反応も生じてしまうため、困難を伴うが、この測定に比較的安価で製造可能なクロム添加酸化アルミニウム熱蛍光体を利用できることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We developed a neutron imaging device for the verification of the treatment plan of boron neutron capture therapy (BNCT) expected as one of the high precise radiation therapies. The measurement of the neutron is difficult due to it being mixed with another type of radiation such as a gamma ray or beta ray etc., and it produces various nuclear reactions. Furthermore, expensive neutron capture materials such as boron or lithium is necessary for the measurement. In this study, we clarified that inexpensive Cr doped aluminum oxide thermoluminescence phosphor was available in this measurement.

研究分野：放射線化学

キーワード：ホウ素中性子補足療法 熱蛍光

1. 研究開始当初の背景

画像上で確認できない微小ながん病巣も周囲の正常細胞を損傷せずに破壊できるホウ素中性子補足療法 (BNCT) は、生活の質 (QOL) の高いがん治療法として大いに期待されている。次世代治療法として発展していくにはガン細胞を選択的に効率よく標的化できるホウ素薬剤の開発と同時に、薬剤効果や BNCT の有効性に対する検証法の開発も不可欠である。現在、薬剤効果に関するマウスによる基礎研究として、薬剤投与後の ^{10}B 分布や濃度の定量、腫瘍部内の線量計測が、CR-39 プラスチック飛跡検出器によって行われている。これは、中性子と、体内に投与された薬剤に含まれる ^{10}B との反応によって生じる線を検出しているため、生体中の ^{10}B 分布や濃度の定量、腫瘍部内の線量計測が行える。しかし、中性子線には感度を有していないため中性子線の分布や線量評価は難しい。

申請者は、これまでに組織等価ファントム熱ルミネセンス線量計 (TEP-TLD) (図 1) を開発している。放射線活性を有し、また生体の軟組織に近い実効原子番号 (7.3-7.5) を有する四ホウ酸リチウム系熱蛍光体と合成樹脂を主材料として、ほぼ生体密度に近い密度 1.0 gcm^{-3} の板状体を作製し、これを数十枚重ねてマトリックスとして、全体を組織等価ファントム兼 3 次元放射線線量計システムとして用いる。つまり、人体組織等価ファントムそのものが組織等価 3 次元熱蛍光線量計として機能する。放射線が照射された後に板状体を 1 枚ずつ加熱し、得られる 2 次元熱蛍光像を合成して人体に照射された場合に各部分が吸収する 3 次元線量分布を得る。繰り返し使用できることからランニングコストも小さい。図 2 に TEP-TLD による強度変調放射線治療の前立腺がん照射に対する 3 次元の線量分布を示す。1 回の照射により 3 次元の線量分布を簡易かつ高分解能で取得できている。その他、X 線および電子線の深部線量百分率や軸外線量比から 3 次元的に高い組織等価性を持っていることが確かめられている。

そこで、申請者は B を多量に含む TEP-TLD に $^{10}\text{B}96\%$ 濃縮ホウ酸を原材料にすると、中性子イメージングに利用できるのではと考えた。まず、TEP-TLD の現時点での X 線画像を示す。(図 3)ペンライトの電球中のフィラメントも明瞭に確認できる。また、近畿大学原子炉 (UTR-KINKI) にて熱中性子束 $1.2 \times 10^4 (\text{n} \cdot \text{cm}^2 / \text{sec})$ 2 h 照射で得られた TEP-TLD による中性子写真を図 4 に示す。うっすらとだが、ボールペンの中性子イメージングに成功した。図 3 で示した分解能と図 4 の結果は、 $^{10}\text{B}96\%$ 濃縮ホウ酸を用いて TEP-TLD を製作した時の NCAR としての有用性を期待させる結果であった。さらに現在は、ホウ酸含有の硝子フリットをバインダーとしてセラミックス基板に TL 素子を焼結

させる技術を開発しており、硝子フリットやセラミックス、及び TL 素子すべてに中性子捕獲断面積の大きい元素を多用することでさらに高効率高分解能の中性子用板状 TL 線量計 (Neutron capture TL slab dosimeter: NCTLSD) を開発できると考えた。



図 1. 組織等価ファントム熱ルミネセンス線量 (TEP-TLD)

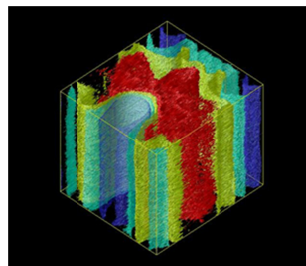


図 2. TEP-TLD による強度変調放射線治療の前立腺がん照射 3 次元線量分布 (実測データ)

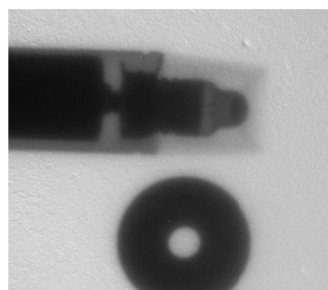


図 3 .TEP-TLD による X 線写真(上: ペンライト, 下: 5 円玉)



図 4 .TEP-TLD によるボールペンの中性子写真

2. 研究の目的

様々な形状に成形が可能で、かつ目的の元素を比較的自由に組み込める板状熱蛍光 (TL) 線量計を用いて、濃縮 ^{10}B を含有するホウ酸リチウム系の TL 素子とホウ酸ガラスフリットによる板状 TL 線量計を製作すると、中性子検出効率の高い板状線量計が設計可能である。特に、ホウ素中性子補足療法 (BNCT) の ^{10}B 分布と濃度測定等に有用な新しい中性子オートラジオグラフィ (NCAR) 法として大いに期待できる。既存の CR-39 プラスチック飛跡検出器と異なり中性子の線量分布を簡易的に取得できる点において優位性が高い。本研究では、中性子の検出効率と空間分解能を最適化するだけでなく、線に対する TL 依存性を調査し、他線種との弁別も図り、板状 TL 線量計による新しい NCAR 法を開発する。

3. 研究の方法

研究期間は、平成 25 - 28 年度までの 4 年間とする。使用する施設は、申請者の所属先である首都大学東京と、中性子照射を行う近畿大学原子炉である。首都大学東京では、TL 素子の合成や TL 測定に関する実験を行う。また、線源を複数所有しているため、TL の線質依存性に関する照射や精密な熱蛍光特性の調査も行う。近畿大学では、合成または製作した TL 素子や板状 TL 線量計の中性子照射、および中性子に対する TL 特性調査とイメージング測定を行う。近畿大学原子炉の利用資格およびに使用経験については、平成 24 年度近畿大学原子炉等利用共同研究課題として採択されており、今後も継続申請を行う。また、近畿大学原子力研究所 講師 若林源一郎氏と、放射線医学総合研究所 研究員 古場裕介氏に連携研究者として、原子炉の運転や中性子線量測定、TL 画像解析に関する助言を頂く。

4. 研究成果

我々は、安価な Al_2O_3 を主成分とする市販のセラミック板の優れた熱蛍光 (TL) 特性や高分解能の二次元イメージング特性を発見し、更に Al_2O_3 セラミック板に微量の Cr_2O_3 を添加した $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}$ セラミック TL スラブを開発した。本研究では、 $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}$ セラミック TL スラブの BNCT における中性子測定デバイスとしての利用を目的とし、 $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}$ セラミック TL スラブと γ 線線量計 BeO TLD を併用した中性子線・ γ 線弁別測定について検討を行った。結果として、TL 量の弁別を行うことができ、特許の出版に至った。今後の課題としては、弁別した TL 量より試算した熱中性子束は実測値と差異が生じたため、実用化に向けて測定精度の向上が求められる。今回、原子炉や加速器に比較し簡易な中性子場として

Pu-Be 中性子源を用いたため、照射場の γ 線量や熱中性子束が小さく、十分な精度で弁別測定が行えていないことが原因として考えられる。そのため、より高線量の照射場における本弁別測定法の検討が求められる。

本技術は、高価な中性子捕獲剤を必要としない、新たな中性子測定技術として大いに期待ができるものであった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 10 件)

Kiyomitsu Shinsho, Yasuyuki Kawaji, Keisuke Otsubo, Yusuke Koba, Shin Yanagisawa, Genichiro Wakabayashi, Kazuki Matsumoto, Hiroaki Ushiba, X-ray imaging using thermoluminescent properties of commercial Al_2O_3 ceramics plates, Applied Radiation and Isotopes, (2016), pp. 117-12, 査読有
DOI:10.1016/j.apradiso.2016.02.020

眞正浄光, 熱蛍光線量計の歴史と未来, FBNews No464, p11-15, 2015, 査読有

Kiyomitsu Shinsho, Yusuke Koba, Genichiro Wakabayashi, Satoshi Tamatsu, Shigekazu Fukuda, Ryo Morimoto, Daiki Maruyama, Hidetoshi Saitoh and Noboru Sakurai, Basic Characteristics of Tissue Equivalent Phantom Thermoluminescence Slab Dosimeter using New TL phosphor $\text{Li}_3\text{B}_7\text{O}_{12}:\text{Cu}$, Radiation Measurements, Vol 62C, No. , 2014, pp 15 - 21, 査読有
DOI:10.1016/j.radmeas.2014.01.001

Yusuke Koba, Kiyomitsu Shinsho, Satoshi Tamatsu, Shigekazu Fukuda, Genichiro Wakabayashi, Thermoluminescent responses of $\text{Li}_3\text{B}_7\text{O}_{12}:\text{Cu}$ to proton beam, Radiation Protection Dosimetry, 161(1-4), 2014, pp. 437-440, 査読有
DOI:10.1093/rpd/ncu140

Yusuke Koba, Kiyomitsu Shinsho, Genichiro Wakabayashi, Satoshi Tamatsu, Shigekazu Fukuda "Response of a Plate-type Thermoluminescence Dosimeter to a Therapeutic Carbon Beam", Journal of the Korean Physical Society, Vol. 63, No. 7, October 2013, pp. 1432-1436, 査読有
DOI:10.3938/jkps.63.1432

眞正浄光, 古場裕介, 玉津早駿, 櫻井昇, 若林源一郎, 福田茂一「熱ルミネッセンススラブ線量計」, 医学物理, 2013, 33 巻 3 号 pp.137-144, 査読有

眞正浄光、熱蛍光体による放射線イメージング = 放射線治療計画の検証から環境放射線測定まで =、光アイアンス、24(6)、26-30、2013-06、査読無

〔学会発表〕(計 59 件)

齋藤雄介、眞正浄光、古場裕介、田中浩基、若林源一郎、納富昭弘、安藤隆之、松本和樹、牛場洋明、 $Al_2O_3:Cr$ セラミック TL スラブを用いた熱蛍光の中性子線・ γ 線弁別解、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年 3 月 14 日 - 17 日、パシフィコ横浜 (神奈川県、横浜市)

相澤若奈、眞正浄光、古場裕介、齋藤雄介、若林源一郎、納富昭弘、中性子 - γ 線混在場における $CaSO_4:Tm, ^6Li$ と $CaSO_4:Tm, ^7Li$ の精密グロ-曲線、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年 3 月 14 日 - 17 日、パシフィコ横浜 (神奈川県、横浜市)

眞正浄光、TLD による線量分布測定の高精度化 ~ 放射線治療の線量検証システムを目指して ~、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会シンポジウム、2016 年 9 月 13 日 - 16 日、朱鷺メッセ (新潟県、新潟市)

齋藤雄介、眞正浄光、古場裕介、田中浩基、若林源一郎、納富昭弘、安藤隆之、松本和樹、牛場洋明、 $Al_2O_3:Cr$ セラミック TL スラブの中性子感度の検討、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、2016 年 9 月 13 日 - 16 日、朱鷺メッセ (新潟県、新潟市)

相澤若奈、眞正浄光、古場裕介、齋藤雄介、柳澤伸、 $CaSO_4:Tm, ^6Li$ と $CaSO_4:Tm, ^7Li$ の X 線に対する高線量域での線量応答性、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、2016 年 9 月 13 日 - 16 日、朱鷺メッセ (新潟県、新潟市)

Kiyomitsu Shinsho、Analysis of thermoluminescence data and future uses、The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015、Dec.、2015、Hawaii convention center (Hawaii, USA)

眞正浄光、熱蛍光線量計による新しい線量算出法、第 9 回次世代先端光科学研究会、2015 年 9 月 24 日、静岡大学 (静岡県、浜松市)

相澤若奈、眞正浄光、齋藤雄介、古場裕介、若林源一郎、納富昭弘、“中性子線、 γ 線混在場での $CaSO_4:Tm, ^6Li$ と $CaSO_4:Tm, ^7Li$ の熱蛍光特性”、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、2015 年 9 月 13 日 - 16 日、名古屋国際会議場 (愛知県、名古屋市)

眞正浄光、熱蛍光線量計の今 ~ 医療現場で

の実情と研究 ~、応用物理学会放射線分科会原子力学会放射線工学部会共催 第 27 回放射線夏の学校、2015 年 8 月 4 日 - 6 日、萬波 MANPA RESORT (和歌山県、和歌山市)

齋藤雄介、眞正浄光、若林源一郎、古場裕介、安藤隆之、Cr 添加アルミナセラミックス TL スラブの線に対する熱蛍光特性、応用物理学会放射線分科会原子力学会放射線工学部会共催 第 27 回放射線夏の学校、2015 年 8 月 4 日 - 6 日、萬波 MANPA RESORT (和歌山県、和歌山市)

〔図書〕(計 1 件)

森田 昌敏、眞正浄光、他、株式会社エヌ・ティー・エス、放射性物質対策技術 除去、モニタリング、装置・システム開発、2015、208-211

〔産業財産権〕

出願状況 (計 5 件)

名称：中性子線・線弁別測定用の熱蛍光体及び中性子線・線弁別測定法
発明者：眞正浄光、古場裕介
権利者：公立大学法人首都大学東京
種類：特許
番号：特願 2016-151517
出願年月日：2016 年 8 月 1 日
国内外の別：国内

名称：吸収線量の解析方法
発明者：眞正浄光、大坪圭介
権利者：公立大学法人首都大学東京
種類：特許
番号：特願 2016-17991
出願年月日：2016 年 2 月 2 日
国内外の別：国内

名称：LET 非依存性ピーク検出法、線量分布測定法、並びに、熱蛍光特性の判定法
発明者：眞正浄光、古場裕介
権利者：公立大学法人首都大学東京、株式会社千代田テクノル
種類：特許
番号：特願 2014-176380
出願年月日：2014 年 8 月 29 日
国内外の別：国内

名称：積層型熱蛍光体
発明者：眞正浄光、柳澤伸
権利者：公立大学法人首都大学東京、株式会社千代田テクノル
種類：特許
番号：特願 2014-176381
出願年月日：2014 年 8 月 29 日
国内外の別：国内

名称：熱蛍光体、及び熱蛍光放射線検出デバ

イス

発明者：眞正浄光

権利者：公立大学法人首都大学東京、株式会社千代田テクノロ

種類：特許

番号：特願 2014-38797

出願年月日：2014 年 2 月 28 日

国内外の別：国内

取得状況（計 1 件）

名称：熱蛍光体、及び熱蛍光放射線検出デバイス

発明者：眞正浄光

権利者：公立大学法人首都大学東京、株式会社千代田テクノロ

種類：特許

番号：特許第 5692883 号

取得年月日：2015 年 2 月 13 日

国内外の別：国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

眞正 浄光 (Kiyomitsu Shinsho)

首都大学東京・人間健康科学研究科・准教授

研究者番号：20449309

(2) 連携研究者

若林 源一郎 (Genichiro Wakabayashi)

近畿大学・原子炉実験所・准教授

研究者番号：90311852

(3) 連携研究者

古場 裕介 (Yusuke Koba)

量研機構放医研・放射線防護情報統合センター・研究員

研究者番号：10583073