

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 1 日現在

機関番号：34419

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02651

研究課題名（和文）超薄厚プラスチックシンチレータによる選別 - 同時/反同時計数放射能測定法の開発

研究課題名（英文）Development of alpha-particle discrimination technique by the use of ultra-thin plastic scintillation sheet and its application to alpha-gamma coincidence/anti-coincidence spectroscopy

研究代表者

山田 崇裕 (Takahiro, Yamada)

近畿大学・原子力研究所・准教授

研究者番号：50618816

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 9,900,000円

研究成果の概要（和文）：シンチレータにおける / パルス高さの重なりの問題は、極薄のプラスチックシンチレータシートを使用することで解決できることを見出した。223Ra壊変系列の各核種の 計数効率を決定するために、線源を極薄プラスチックシンチレータシートで挟んだ線源とGe検出器の組み合わせにより4 - 検出器構成し、4 反同期スペクトロスコーピ手法測を試みた。この技術を223Raの放射能測定に適用した。このサンドイッチ線源は、219Rnの漏洩を防ぐために有効である。ガスの漏洩を防ぐのに有効である。この結果、20 μmシンチレータを用い、線の寄与0.3%以下で、92%の選別 線計数効率達成できることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、短寿命 核種の医療応用が急速に広がっている。一方でこれらの 核種には子孫核種に多数の 核種が混在し放射能測定に困難があった。例えば液体シンチレーション計数法などが試みられているが、スペクトルの重畳によって全計数率の情報しか得られないなど信頼性に課題があった。本研究は、超薄厚プラスチックシンチレータにより 線のみ選択計数し、Ge検出器と組み合わせた同時/反同時計数スペクトロスコーピ手法を用い、多数の壊変生成核種存在下での個別的に 線計数効率を得られる新手法を開発した。これら一連の研究成果により 核種の医療応用における新たな定量的測定技術の基盤を確保しその発展に貢献することが期待できる。

研究成果の概要（英文）：We found that problems of / pulse-height overlapping can be solved by use of ultra-thin plastic scintillator sheets. In order to determine individual -counting efficiencies for nuclides in the 223Ra decay-chain, the 4 anti-coincidence spectrometry technique was employed with a 4 detector configuration composed of a source sandwiched between ultra-thin plastic scintillator sheets and a Ge detector. This technique was applied to the activity measurements of 223Ra. This type of sandwich source is useful to prevent possible leakage of 219Rn. The results showed that use of 20 μm scintillator sheets could achieve a selective -ray counting efficiency of 92% with a -ray contribution of 0.3% or less.

研究分野：放射能測定・分析

キーワード：放射能 核種 標的アイソトープ治療 同時計数 放射線計測 線弁別

## 1. 研究開始当初の背景

標的線内用療法 (TAT: Targeted Alpha Therapy) は、LET が極め高く、飛程が短いという線の特性ゆえ、腫瘍への強い攻撃効果が期待出来る上に健全細胞への影響が軽微で、近年がん治療の有力手段として世界的に注目を集め、臨床応用を目指した研究が世界的に急速に広がっている。例えば、すでに我が国でも臨床応用されているアクチニウム系列に属する  $^{223}\text{Ra}$  は半減期 11.4 日で壊変し、子孫核種は数秒から数十分程度の半減期をもって計 4 回の壊変と 2 回の壊変を経て安定な  $^{207}\text{Pb}$  となる。従って、がん細胞は 4 回の線の波状攻撃を受けることになり、単純な核種と比較し特筆すべき利点がある。このような放射性核種の臨床応用及びその研究において、放射能の定量は、核種の組織への集積量評価や、投与量管理のために欠かせない。その基準となる放射能は絶対測定により放射能を決定するが、臨床応用が期待されている短寿命核種は多数の壊変系列核種が混在する上、各 / 壊変は複雑な分岐を伴うため、一般的な測定法である 4 ( ) 同時計数法の適用が制限される。実際このような核種の測定の報告例も限定的で、将来の臨床応用に向けた開発研究が急速に進む中、放射能測定の手法の確立は喫緊の課題である。

$^{223}\text{Ra}$  をはじめ、臨床応用が期待される核種は、多数の子孫核種がそれぞれ複雑な / 分岐壊変によりエネルギーの異なる膨大な数の / / 線を放出する共有の特徴をもつ。例えば、液体シンチレーション計数法 (Liquid Scintillation Counting; LSC) 及びそれと組み合わせられた同時計数法などが試みられているが、これらの手法では高い / 線検出効率が期待できるものの、 / 線による総計数による情報しか得られず、系列子孫核種個々の測定評価や分岐毎の検出効率評価が出来ない。米国では液体シンチレーション計数法によって  $^{223}\text{Ra}$  放射能標準を確立したが、後にその値は約 10% 修正され、その原因も明らかになっていない。原因として、子孫核種の化学的挙動の違いに関しても言及されているが、従来法では、放射平衡を前提とした / 線による総計数による情報しか得られないことから、測定結果からの個別の詳細分析を行うのは事実上困難である。そこで、本研究では、この課題解決の手段として、多数の子孫系列核種の混在下での個別的な線検出効率の評価が可能な新たな測定手法の開発に取り組む。

## 2. 研究の目的

近年、短寿命線放出核種を用いた線内用療法は注目度が高く、臨床応用を目指した研究が世界的に急速に広がっている。一方、対象の核種には多数の壊変生成核種が混在する上、各 / 壊変は複雑な分岐を伴うため、線源からエネルギーの異なる膨大な数の線が放出され、その放射能の定量測定には困難がある。例えば液体シンチレーション計数法などが試みられているが、スペクトルの重畳によって全計数率の情報しか得られないなど多くの課題がある。本研究は、これらの問題を回避するため、超薄厚プラスチックシンチレータにより線のみを確実に選択計数する方法と独自の同時計数/反同時計数スペクトロスコピ手法を用いて、多数の壊変生成核種存在下での各核種の個別的線検出効率評価の新技术を開発する。これら一連の研究により核種の医療応用における新たな定量的測定の基盤技術を提供し、医療応用の発展に貢献することを目的とする。

## 3. 研究の方法

### (1) 超薄厚プラスチックシンチレータを用いた 4 選別測定

$^{223}\text{Ra}$  が子孫核種と放射平衡にある場合、放射能測定における大きな問題は子孫 / 核種の存在と希ガス ( $^{219}\text{Rn}$ ) が系列の冒頭に位置する点である。本研究では、 $^{219}\text{Rn}$  の散逸を回避し、放射平衡下で線のみを弁別して 4 幾何効率測定を行ない、高い信頼性の上に  $^{223}\text{Ra}$  放射能を決定する。プラスチックシンチレータ (PS) を用いた方法は、 / スペクトルの重畳を回避するため、線によるシンチレータ発光量が計数閾値を下回るような  $20\ \mu\text{m}$  以下の超薄厚シンチレータを用いる。2 枚の超薄厚シンチレータによって線源をサンドイッチ状に密閉し 4 ジオメトリの測定を実現した。線は自己吸収の影響が顕著なため、 $^{223}\text{Ra}$  溶液をシンチレータに滴下後に分散材を滴下し乾燥させ、乾燥後もう 1 枚の PS で線源を挟みこみ接着剤で密閉した。この密閉によって  $^{219}\text{Rn}$  の散逸を回避する。本検討にあたっては、線源として  $^{241}\text{Am}$ 、線源として  $^{32}\text{P}$  を用い、厚さの異なる PS に対する線 / 線検出効率を個別的に評価し、線選別性能評価を行った。なお、線自己吸収の影響を含めた評価を行うため、 $^{241}\text{Am}$  は溶液に含まれるキャリア濃度の異なる 2 種の溶液 ( $0.8\ \mu\text{g Eu/ml}$ ,  $10\ \mu\text{g Eu/ml}$ ) を用いた。

### (2) 弁別線 - 高分解能 4 - 同時計数法・反同時計数スペクトロスコピ法

(1) の超薄厚 PS を用いた線選別検出器に井戸形 Ge 検出器を組み合わせ、高効率高分解能 4 - 同時計数・反同時計数スペクトロスコピ技術による個別的線検出効率評価する。ここでは線検出器に高分解能 Ge 検出器を用い  $^{223}\text{Ra}$  から放出される線の選別線との反同時スペクトル測定を行い、 $^{223}\text{Ra}$  及び子孫核種から放出される線検出効率をスペクトル及び反同時計数スペクトルにおける各ピーク計数率  $n$ 、 $n_{\text{anti}}$  を得て、 $1 - n_{\text{anti}}/n$  から線計数効率を得た。

個別的に評価した。

#### 4. 研究成果

##### (1) 超薄厚プラスチックシンチレータを用いた $^{32}\text{P}$ 選別測定

図1に厚さの異なるPSを用いた測定で得られたスペクトルを示す。観測された  $^{32}\text{P}$  による  $\beta$  線スペクトルの終端部はPSの厚さが薄くなるにつれ低エネルギー側にシフトし、線によるPSへの付与エネルギーが減じていることが示された。一方、線はPS厚を飛程厚より薄くすると全エネルギーをシンチレータに付与することなく一部のみ付与して透過する成分によって低エネルギー側へのスペクトルの崩れが観測された。 $\alpha$  線選別性能の評価のために、各厚さのPSで得られた  $\beta$  線スペクトルにおいて、計数効率が1%となるまで閾レベルを上げ、同じ閾レベルでの  $\alpha$  線計数効率を求めた。その結果、50、20及び10  $\mu\text{m}$  PSでいずれもほぼ100%の計数効率を得られた。一方、溶液中のキャリア濃度(10  $\mu\text{g}$  Eu/ml)溶液を用いた試料では同条件での  $\alpha$  線計数効率は50、20及び10  $\mu\text{m}$  でそれぞれ65.9%、85.8%及び91.3%まで低下し、キャリア濃度が計数効率に大きく影響することがわかった。本結果から、 $\beta$  線の寄与の低減化にあたり閾レベルを上げることにより、キャリア濃度の違いによる影響が顕在化し、高い線計数効率を維持しつつ選別するには、キャリア濃度の抑制が重要であることが示唆された。

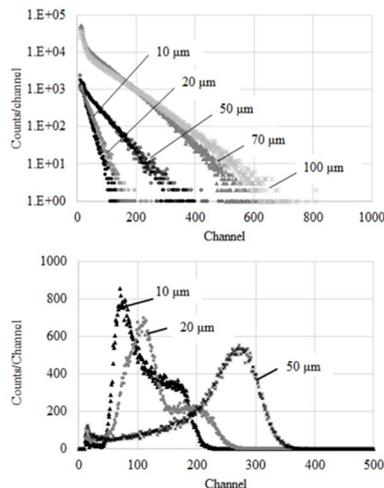


図1 厚さの異なるPSによる  $^{32}\text{P}$  (上)  $^{241}\text{Am}$  (下) スペクトル

##### (2) 弁別線 - 高分解能 4 - 同時計数法・反同時計数スペクトロスコピ法

図2に本測定で用いた測定システムを示す。(1)と同様の手順で作成した  $^{223}\text{Ra}$  のPS線源を作成した。本実験では医療に用いられる溶液を50倍に希釈し試料を作成した。Ge直上に配置し、MCAのゲートにPSからの信号を入力、ゲートあり、なしの条件で、反同時スペクトル及び  $^{32}\text{P}$  スペクトルを得た。図3に20  $\mu\text{m}$  のPS線源により得られたスペクトルを示す。ゲート信号の閾レベルは線の寄与が1%以下となるよう  $^{32}\text{P}$  測定の結果により決定した。この両スペクトルのピーク面積比により得られる  $\beta$  線非検出効率から得た検出効率を図4に示す。ここでは異なるゲート信号レベル条件での結果を示した。ここに示す通り、 $^{223}\text{Ra}$ 、 $^{211}\text{Bi}$ 、 $^{219}\text{Rn}$  について、線レスポンスは阻止能  $dE/dx$  に依存しエネルギーに依存せずほぼ一致する結果となった。これにより線放出をほとんど伴わない  $^{215}\text{Po}$  の壊変についても、放出される線エネルギーはほぼ等しいことが予測でき、 $^{223}\text{Ra}$  の放射能を次式で求めた。

$$n_{0,Ra} = \frac{n_{\alpha}}{\frac{4}{3}(\epsilon_{Ra} + \epsilon_{Rn} + \epsilon_{Bi})}$$

その結果は、液体シンチレーション検出器を用いた Ciemat/NIST トレーサ法の結果より0.54%低い結果となったが、両者の不確かさの範囲で一致するものであった。

本法は薄膜シンチレータの使用により、単純場波高弁別により線を高い検出効率で選別でき、他の医用応用が期待される核種他、 $^{223}\text{Ra}$  /  $^{211}\text{Bi}$  核種の混在下で、核種のみ選択的に測定できる有力な手段と出来ることが期待される。

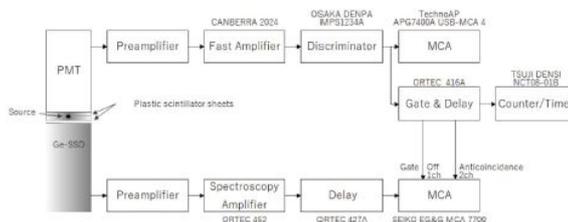


図2 4 - 反同時スペクトロスコピシステム

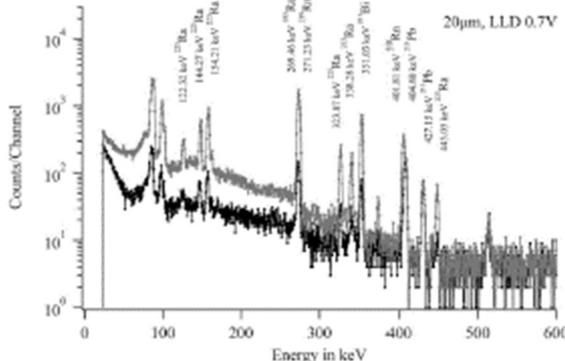


図3  $^{223}\text{Ra}$  の  $\beta$  - 反同時スペクトル

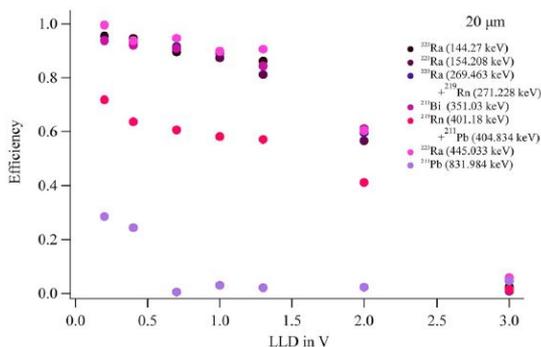


図4  $\beta$  /  $\alpha$  線計数効率

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 0件）

1. 著者名 Yamada Takahiro, Sato Yasushi, Yunoki Akira, Kawada Yasushi	4. 巻 159
2. 論文標題 -particle discrimination in the measurement of / decaying chains by the use of ultra-thin plastic scintillation sheets	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Radiation and Isotopes	6. 最初と最後の頁 109069 ~ 109069
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.apradiso.2020.109069	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8件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 濱上せな、山田崇裕
2. 発表標題 4 超薄厚プラスチックシンチレーション検出器を用いた 線選別測定における 線寄与の実験的評価
3. 学会等名 日本保健物理学会第53回研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 森健一、濱上せな、山田 崇裕
2. 発表標題 超薄厚プラスチックシンチレータを用いた4 - 反同時スペクトロスコピ手法による 核種放射能測定 of 検討
3. 学会等名 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 藤野隼輔、濱上せな、山田 崇裕
2. 発表標題 超薄厚プラスチックシンチレータに対する 線感度の厚さ依存性評価
3. 学会等名 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 濱上せな、山田 崇裕
2. 発表標題 ZnS(Ag)シンチレータシートを用いた4 /2 測定における計数効率の実験的評価
3. 学会等名 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 Takahiro Yamada, Akira Yunoki, Yasushi Sato, Yasushi Kawasa
2. 発表標題 Alpha particles discrimination in the measurement of alpha/beta decaying chains by use of ultra-thin plastic scintillation sheets
3. 学会等名 22nd Radionuclide Metrology and its applications (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 濱上 せな, 山田 崇裕, 藤野 隼輔, 森 健一
2. 発表標題 薄厚シンチレータを用いた選別 線による医用 核種放射能測定法の検討
3. 学会等名 第58回アイソトープ・放射線研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山田 竜也, 森 健一, 藤野 隼輔, 堀口哲男, 山西弘城, 山田崇裕
2. 発表標題 プラスチックシンチレータ式放射性希ガス検出器の計数効率評価
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 濱上せな、山田 崇裕、藤野隼輔、森健一
2. 発表標題 薄厚プラスチックシンチレータを用いた 線選別測定における 線自己吸収の影響
3. 学会等名 第3回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会
4. 発表年 2021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
---------	---------