

令和 元年 6 月 14 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K09030

研究課題名(和文) BNCT領域の熱外中性子線量精密評価用可搬型検出器の開発

研究課題名(英文) Development of a portable type epi-thermal neutron detector for precise evaluation of a BNCT field

研究代表者

松本 哲郎 (Matsumoto, Tetsuro)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・主任研究員

研究者番号：70415793

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：ホウ素中性子捕捉療法において熱外中性子の精密測定が大変重要になる。本研究では、熱外中性子を核反応断面積に依存しない方法で測定する検出器システムの開発を行った。本研究の検出器システムは、LGBシンチレータ、BGOシンチレータ、全吸収10B4C試料によって構成される。10B(n,ag)反応によって生成される線と線の同時測定を利用することによって、BGO検出器の線検出効率が絶対測定される。その後全吸収10B4C試料を用いることによって核反応断面積に依存せず中性子フルエンスを求めることができる。本研究では、中性子飛行時間法によって検出器システムの特長評価を行い、原理実証を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

BNCTは、現在複数の装置が開発中であり、今後の放射線医療として注目されている分野である。一方で熱外というエネルギー領域の測定手法はこれまで研究が遅れていたが、本研究は、BNCTの医療ニーズに応えられる測定精度実現に向けて貢献できる。また、学術的には、核反応断面積に依存しない中性子測定手法は、随伴粒子検出器などに代表されるように究極の中性子測定法であり、本研究は価値がある。

研究成果の概要(英文)：Precise measurements of epi-thermal neutrons are important for the boron neutron capture therapy. In the present study, we developed an epi-thermal neutron detection system that is principally independent of nuclear data. The detection system is composed of an LGB and two BGO scintillation detectors, and thick 10B4C sample. The gamma-ray efficiency of the BGO is absolutely obtained using coincidence measurements of alpha ray and gamma ray emitted from the 10B(n,ag) reaction in the LGB scintillator. Finally, the neutron fluence is obtained by using the thick 10B4C sample. Characteristics of the detection system were evaluated using the time of flight method. The measurement method proposed in the present study was successfully shown.

研究分野：中性子計測

キーワード：熱外中性子 BNCT 絶対測定 測定精度 核反応断面積 シンチレータ

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年のホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) は、加速器ベースの装置開発が進み、国内に複数の施設が建設され、一部は治験等実施されている。将来的に有効ながん治療法になることが期待されている。BNCT においては、現在では 0.5 eV ~ 10 keV 領域の熱外中性子を用いて治療される。一方で、熱外中性子の計測方法について注目すると、 $^{197}\text{Au}(n,\gamma)$ 反応 (放射化法)、 $^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ 反応、 $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)^7\text{Li}$ 反応、 $^3\text{He}(n,p)\text{T}$ 反応など熱中性子測定用の核反応を応用した検出器を用いるしかないのが現状である。すなわち、これらの核反応断面積に依存した測定を行っている。しかしながら、これらの核反応断面積は基本的に熱中性子領域よりも熱外中性子領域の方が不確かさは大きく、結果として熱外中性子領域の中性子測定精度には限界があった。また、熱外中性子のみで大きな反応を起こす核反応というのも難しい。熱外中性子領域の測定精度は、今後 BNCT 現場において使用される中性子検出器の感度校正の不確かさに影響を与えるものであり、重要である。

2. 研究の目的

本研究では、高精度に熱外中性子を測定するために、核反応断面積に依存しない熱外中性子測定手法の開発を目的とした。この目的を実現するために、数式として原理を組み立て、原理を実証するための検出器システムを作製した。その後、検出器システムを熱外中性子を使って測定することにより、本研究の測定手法が核反応断面積に依存しないことを示す。

3. 研究の方法

核反応断面積に依存しない測定手法を実現するために、 ^{10}B 試料 (本研究では、 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 試料を用いた。) による熱外中性子の全吸収によって $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応で生成される 478 keV 単色 γ 線を測定するというのが、基本的なコンセプトである。本研究では、図 1 に示すような $^6\text{Li}_6^{\text{nat}}\text{Gd}^{10}\text{B}_3\text{O}_9:\text{Ce}^+$ (LGB) シンチレータと 2 つの $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) によって構成される検出器システムを開発した。LGB シンチレータは 50 mm \times 5 mm、BGO シンチレータは 50.8 mm \times 50.8 mm の形状である。BGO シンチレータの前面には、中性子照射による放射化等劣化の影響を軽減させるために遮蔽タイルを置いた。光電子増倍管を接続したシンチレーション検出器からの信号は、前置増幅器、増幅器を経由してデータ収集系に取り込まれる。

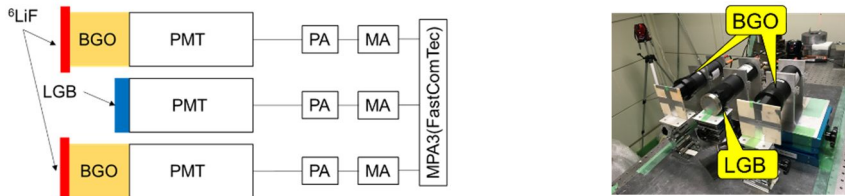


図 1 LGB シンチレータと 2 台の BGO シンチレータによって構成される検出器システム



図 2 (a) LGB と BGO の同時測定

(b) 全吸収 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 試料の測定

測定では、図 2 (a) のようにまず中性子が LGB シンチレータに入射し、LGB 内で $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応を起こし、線と 478 keV 単色線を生成する。線は LGB 内で検出され、線は BGO によって検出される。LGB シンチレータと BGO シンチレータを同時計数計測することによって、以下の式(1)のような関係が成立する。放射能絶対測定に使用される $4\pi\beta\gamma$ 測定法と同様の考え方である。

$$R_L = \frac{N_{BGO}}{\varepsilon_\gamma}, R_L = \frac{N_{LGB}}{\varepsilon_\alpha}, R_L = \frac{N_{C_BGO}}{\varepsilon_\gamma \varepsilon_\alpha} \quad (1)$$

$$\varepsilon_\gamma = \frac{N_{BGO}}{R_L} = \frac{N_{C_BGO}}{N_{LGB}} \quad (2)$$

ここで、 R_L は LGB シンチレータ内における $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応率、 N_{LGB} は LGB における $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応起因の線の計数率、 N_{BGO} は BGO における 478 keV 線の計数率、 N_{C_BGO} は同時計数測定時の BGO における 478 keV 線の計数率、 ε_γ は $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応数に対する BGO の 478 keV 線の検出効率、 ε_α は $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応数に対する LGB の線検出効率である。 ε_α は、ほぼ 1 であると考えられる。したがって、式(2)のように BGO シンチレータの 478 keV 単色線に対する検出効率を原理的には求めることができる。また、 $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応によって生成される線の方向分布は、熱外中性子以下においてほぼ変化はないと考えられるので、 ε_γ はエネルギーによらず一定であ

ると推測される。

同時測定の後、LGB シンチレータの位置に全吸収 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 試料を設置する。試料を ^{10}B 濃縮試料にすると、約 20 mm で熱外領域以下のエネルギーを持つ中性子は 98 % 以上吸収することができる。 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 試料内の $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応によって生成された γ 線を BGO 検出器で測定することによって、以下の式(3)のように最終的に中性子フルエンス率($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)を導出することができる。

$$R_B = \phi = \frac{N}{\varepsilon_\gamma} = \frac{N N_{LGB}}{N_{C_{BGO}}} \quad (3)$$

ここで、 R_B は $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 試料内の $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応率であり、 N は $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 試料測定時の計数率である。式(3)には断面積情報が含まれていない。したがって、得られる中性子フルエンス率は核反応断面積に依存しない結果と言える。このことは、 γ が断面積に依存しない量であるということによって成立する。したがって、検出器の特性試験として、中性子飛行時間法(TOF 法)を用いて γ が断面積に依存しない、すなわちエネルギー依存性がないことを示す。

実験は、京都大学複合原子力科学研究所電子ライナックによる光核反応中性子源を用いた。図 3 のように、電子ライナックからの電子ビームと Ta ターゲットとの反応によって生成される中性子を水で減速している。ビームは 50 Hz のパルス状に得られ、TOF 法によって検出器の特性評価を行った。

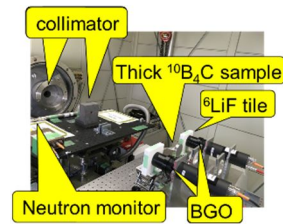
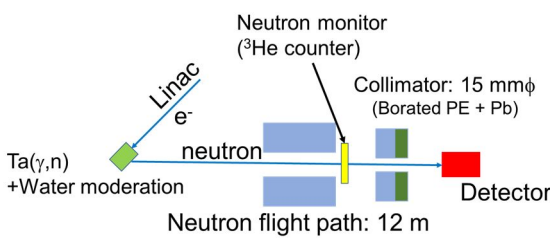


図 3 京都大学電子ライナックによる中性子源を用いた実験配置

図 4 実験体系

4. 研究成果

測定によって、LGB シンチレータによる測定では、図 5 のような TOF と波高(PH)の 2 次元分布が得られた。また、LGB シンチレータと BGO シンチレータの同時計数では、図 6 のような PH の 2 次元分布が得られた。 $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応に起因する部分をゲートにとることによって、 $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応に起因する計数の TOF 分布が得られる(図 7)。

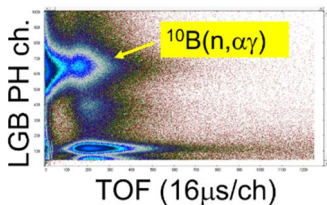


図 5 LGB シンチレータの TOF と PH の 2 次元

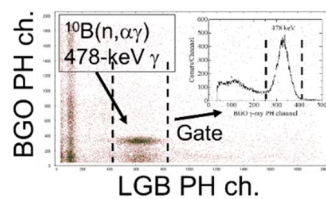


図 6 LGB と BGO の PH の 2 次元

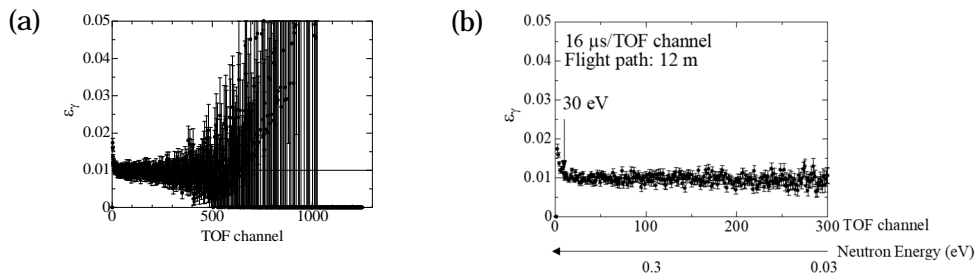


図 7 BGO の 478keV に対する検出効率の TOF 分布、(a)全体、(b)熱領域以上を拡大

図 7 は、1eV 以下のエネルギー領域において、LGB シンチレータ内で $^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma)$ 反応によって生成された γ 線の検出効率がエネルギーによらず一定になることを示している。このことは、式(2)が核反応断面積に依存していないということ、結果として式(3)が核反応断面積に依存しないということを示している。一方で、1eV 以上において γ が分布を持っていることを示している。これは、ターゲットからの フラッシュによる影響を取り除けていないためであり、今後実験条件を改善することによって部分はなくなると考えられる。同様の結果は、LGB と BGO の配置を

変更しても得られる。

中性子フルエンス導出にあたっては、式(3)のように単純ではなく、LGB シンチレータの形状と¹⁰B₄C 試料の形状の違いによる検出効率への影響、¹⁰B₄C 試料のケースとして使用しているアルミ材による遮蔽の影響、¹⁰B₄C 試料の透過率などの補正が必要になってくる。これらは、今後の課題として主にモンテカルロシミュレーションを用いて行われることになる。これら補正を含めて、今後中性子フルエンスの不確かさを導出していく。

本研究は、当初 NaI(Tl)シンチレータを 線検出器として使用していた。しかしながら、検出器の放射化による影響の軽減を考えてBGO シンチレータへ変更した。また、簡単に手に入れることができないLGB シンチレータの代わりにB 入りプラスチックシンチレータ、BF₃ 比例計数管を用いた測定も行った。B 入りプラスチックシンチレータを用いた測定の場合には、プラスチックシンチレータによる中性子の減速をどのように考えるかというところが課題として残っている。また、BF₃ 比例計数管を使う場合は、比例計数管の形状と¹⁰B₄C 試料の形状が大きく異なるため実用的ではないと考えている。

本研究の成果は、今後 BNCT 用の検出器を校正する中性子源開発の際に、中性子量評価測定に利用される。また、エネルギー領域を少し拡張し ISO8529 で推奨される 24 keV 中性子標準場の評価にも応用可能と考えている。中性子測定や核データ分野において、熱外領域の測定精度は現状では 1 で 3 %程度と考えられるが、本研究の成果によって大きく向上することに役立つものと考えている。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 件)

〔学会発表〕(計 7 件)

・松本哲郎、増田明彦、原野英樹、堀順一、佐野忠史、「熱外中性子絶対測定用検出器の開発」、2018 年度計量標準総合センター成果発表会、2019 年 2 月

・T. Matsumoto, A. Masuda, H. Harano, J. Hori, T. Sano, Development of a Neutron Detection System using an LGB Scintillator for Precise Measurements of Epi-Thermal Neutrons, 2018IEEE NSS-MIC, 2018 年 11 月

・増田明彦、「先進医療開発を支える高精度中性子計測技術」、JASIS 2018 コンファレンス 分析計測標準研究部門 第 4 回シンポジウム、2018 年 9 月

・増田 明彦、松本 哲郎、原野 英樹、熊田 博明、高田 健太、大西 貴博、榮 武二、「がん治療用中性子ビームのエネルギー分布測定技術」、JASIS 2017 コンファレンス、2017 年 9 月

・増田 明彦、松本 哲郎、熊田 博明、高田 健太、大西 貴博、原野 英樹、榮 武二、「加速器 BNCT 施設における中性子スペクトラルフルエンス評価」、第 60 回放射線化学討論会、2017 年 9 月

・松本哲郎、増田明彦、原野英樹、堀順一、佐野忠史、「Li ガラスシンチレータを用いた電流モードによる測定と応用」、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年 3 月

・松本哲郎、増田明彦、原野英樹、堀順一、「Li ガラスシンチレータを用いた電流モードによる測定法の精密化に関する研究」、2016 年度計量標準総合センター成果発表会、2017 年 1 月

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

出願年：

国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<https://unit.aist.go.jp/rima/ract-neu/neutron/newhp.html>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：増田明彦

ローマ字氏名：Masuda Akihiko

所属研究機関名：国立研究開発法人産業技術総合研究所

部局名：分析計測標準研究部門

職名：主任研究員

研究者番号（8桁）：70549899

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。