

令和 4 年 5 月 5 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K08202

研究課題名(和文) ホウ素中性子捕捉療法における中性子測定に適した自己放射化有機シンチレータの開発

研究課題名(英文) Development of the self-activation organic scintillator for neutron measurement at BNCT

研究代表者

納富 昭弘 (Nohtomi, Akihiro)

九州大学・医学研究院・准教授

研究者番号：80243905

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：ヨウ素添加有機シンチレータの自己放射化を利用した中性子検出器の開発を行い、ホウ素中性子捕捉療法(BNCT)への適用可能性を調査した。低出力原子炉(UTR-KINKI)で中性子照射実験を行い、I-128以外の放射化成分の解明及び化学クエンチングの検討を行った。また、ヨウ素添加有機シンチレータに対する実際のBNCT場(KUR)での中性子照射実験を行い、短時間での照射及び測定が実用的であるか検討した。前者の実験結果から、ヨードベンゼンの質量濃度が1wt%以下では化学クエンチングの影響が小さいことが判明した。また、後者の実験結果では、短時間照射・測定によって中性子フラックスを適正に評価可能であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ホウ素中性子捕捉療法(BNCT)は、これまで研究用原子炉中性子源を用いて臨床研究が進められてきたが、医療施設に原子炉を併設することは様々な理由により困難であった。一方、最近、加速器中性子源が開発され、医療機器として認可されたことにより治療施設の普及が進んでいる。臨床の現場では、それぞれの施設毎に異なる可能性のある中性子場の特性を、迅速かつ正確に把握することが品質保証のために不可欠である。本研究では、これまで標準的に使用されてきた金の放射化法の代わりにヨウ素添加有機シンチレータの自己放射化法が使用可能であることを示した。これは、BNCTの日々のQA/QCに有用であると期待される。

研究成果の概要(英文)：The neutron detectors based on the self-activation of iodine-added organic scintillator have been developed. The purpose of the present study is to verify an applicability of this novel neutron measurement-method for boron neutron capture therapy (BNCT). Irradiations with neutrons at a low power research reactor (UTR-KINKI) to iodine-added liquid scintillators were performed to examine the effect of chemical quenching by the iodobenzene. In addition, irradiations at the BNCT field of KUR to iodine-added organic scintillators were performed to examine the practicality of short-time irradiation and measurement. From the results at UTR-KINKI, it was found that the long half-life radioactive component except for I-128 was Na-24 and that the effect of chemical quenching was negligibly small when the mass concentration of iodobenzene was less than 1 wt%. Moreover, from the results at KUR, the neutron flux could be properly estimated by short time irradiation and measurement.

研究分野：放射線計測学・医学物理学

キーワード：ホウ素中性子捕捉療法(BNCT) ヨードベンゼン 液体シンチレータ プラスチックシンチレータ 自己放射化法 化学クエンチング

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、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 近年、加速器中性子源を利用した中性子捕捉療法(BNCT)システムの普及に伴い、BNCTによるがん治療が盛んになってきている。BNCTでは、高強度の中性子ビームを使用するが、そのフラックスの値や分布を正確かつ迅速に測定することは、治療だけでなく、日々のシステムの品質保証(QA)の観点からも重要と考えられる。

(2) 従来から、BNCTの熱中性子の測定には金の放射化法が用いられてきた。この測定方法は確立された手法ではあるが、Au-198の半減期が2.7日と比較的長く、手順が煩雑であり、高純度ゲルマニウム半導体検出器(HPGe)などの特殊な装置が必要であるため、医療現場における日々の品質保証などの用途には適しているとは言えない。

(3) 一方、我々は、ヨウ素含有無機シンチレータ(NaIやCsI等)を用いたヨウ素自己放射化法を独自に開発し、高エネルギーX線治療装置で発生する低強度の光中性子を簡便かつ高精度に測定する方法を確立した。この方法をBNCTに適用する場合、Na-24やCs-134mなどのI-128以外の副放射能が生成することが問題となる。そこで、副放射能が生じない有機シンチレータ(液体シンチレータやプラスチックシンチレータ)にヨウ素を添加すれば、BNCT場の中性子測定が自己放射化法により可能であろうとの着想に至った。また、ヨウ素の添加量を調整することにより、中性子感度を調節できることも利点となると考えた。

2. 研究の目的

(1) 本研究では、ヨードベンゼンを添加した液体シンチレータおよびプラスチックシンチレータを作成して中性子に有感な検出器とする。シンチレータの発光を光電子増倍管で電気信号に変換し、出力信号を時系列で処理して半減期25分のI-128の成分を抽出することにより、BNCT場の高強度中性子を簡便に測定する手法の確立を目指す。

(2) ヨードベンゼンは、有機シンチレータの強力な化学クエンチャーとして作用することが知られている。そこで、ヨードベンゼンの添加が出力パルス波高の低下に与える影響を詳細に調査する必要がある。

(3) 実際のBNCT中性子場では、極めて微量のヨードベンゼンの添加で有効なI-128の信号を得られることが予想される。その場合、ヨードベンゼンの添加による信号波高の低下の影響は非常に小さくなることが期待される。このことを中性子照射実験により確認する。

3. 研究の方法

(1) 市販の液体シンチレータ(Insta-Gel Plus: PerkinElmer Co., Ltd)に異なる量のヨードベンゼンを添加したものを、ポリエチレンバイアルに封入し、テフロンテープを反射材としてヨウ素添加液体シンチレータ(ヨードベンゼン濃度1, 3, 5, 10, 15wt%)を作成した。近畿大学原子力研究所の研究用原子炉UTR-KINKI(熱出力1W)の中央ストリンガー($\phi_{th} = 1.2 \times 10^7$ n/cm²/s)にて30分間の中性子照射を行った。また、同様の方法で作成したヨウ素添加液体シンチレータ(ヨードベンゼン濃度1wt%, 0.1wt%)と、3次元光造形法で作成したヨウ素添加プラスチックシンチレータ(ヨードベンゼン濃度1wt%, 0.1wt%)を準備し、京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉KUR(熱出力1MW)のレーン照射設備($\phi_{th} = 1 \times 10^9$ n/cm²/s)にて短時間の照射を行った。

(2) 中性子の照射終了後、各シンチレータを光電子増倍管(Hamamatsu H6410)に光学グリースで結合し、遮光シートで覆い、出力信号を波高分析器(AMPTTEK MCA-8000D)にて解析して波高分布を1分間隔で読み出した。得られた計数率の経時変化曲線から、半減期25分のI-128成分をfitting処理により抽出した。また、初期計数率、飽和放射能から熱中性子束を評価した。

(3) 測定により得られたI-128の初期計数率と、モンテカルロシミュレーションコードPHITSによって評価された生成放射能から、各検出器の計数効率の算出を行い、ヨウ素添加有機シンチレータを用いた中性子測定のBNCTへの適用可能性を検討した。



図1 ヨウ素添加液体シンチレータ



図2 ヨウ素添加プラスチックシンチレータ

4. 研究成果

(1) 近畿大学原子力研究所の UTR-KINKI (熱出力 1W) にて、ヨードベンゼン濃度 1, 3, 5, 10, 15wt% のヨウ素添加液体シンチレータに各 30 分間の照射を行った。図 3 に示す 1wt% の場合の様に、照射終了後、時間の経過と共に I-128 の線スペクトルが減衰する様子が観測された。また、ヨードベンゼン濃度を 1wt% から徐々に 15wt% まで増加させると、図 4 に示す様に化学クエンチングによる波高分布の低下が顕著に観測された。

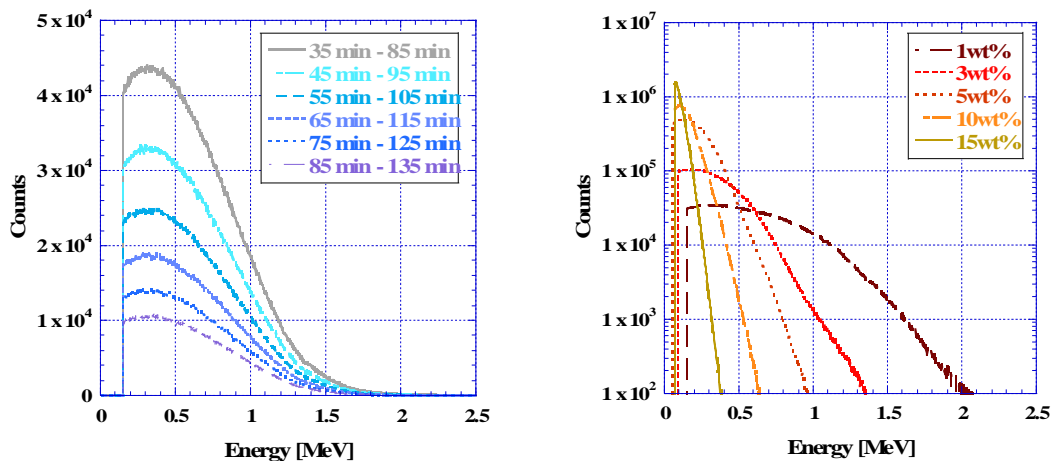


図 3 I-128 線スペクトルの経時変化(1wt%) 図 4 ヨードベンゼンの化学クエンチングの効果

図 5 に異なるヨードベンゼン濃度に対する計数率の変化と fitting 結果を示す。初期計数率は、ヨードベンゼン濃度が高くなるほど大きくなった。fitting 処理の結果、I-128 の半減期 25 分の成分が支配的であったが、半減期が 900 分程度の成分もわずかながら見られた。そこで、液体シンチレータに中性子を照射して、放出される線のスペクトルを HPGe で測定(放射化分析)したところ、図 6 に示す様に、Na-23 の放射化に伴い生成した Na-24 のピークが観測された。使用した液体シンチレータ (Insta-Gel Plus) は仕様上、Na-23 を含まないことになっているが、以上によりわずかな不純物として Na-23 が混入していることが判明した。

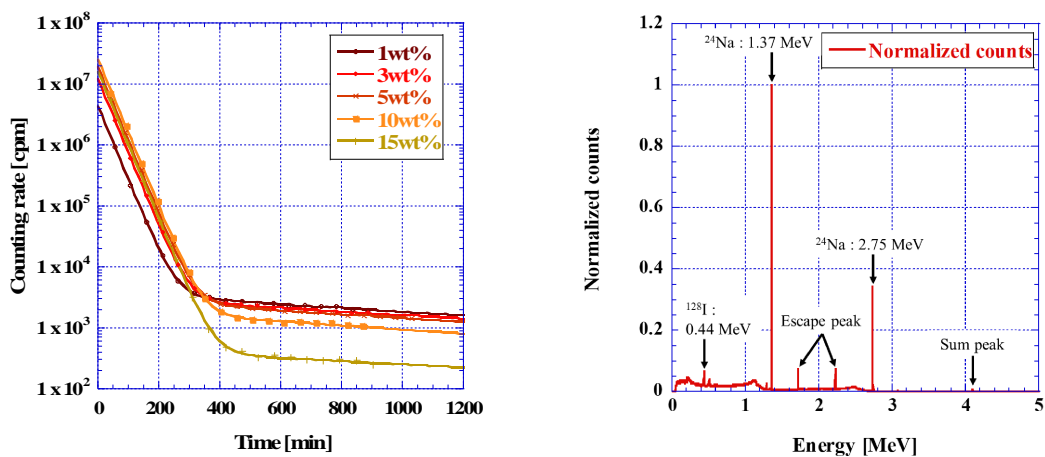


図 5 異なる濃度に対する計数率の減衰曲線

図 6 液体シンチレータの放射化分析結果

(2) 京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉 KUR の BNCT 用照射場で、極微量ヨードベンゼンを添加した有機シンチレータ(液体シンチレータおよびプラスチックシンチレータ)に短時間の中性子照射を行って応答を調査した。ヨードベンゼン濃度が 1wt% と 0.1wt% の、液体シンチレータとプラスチックシンチレータを作成し、同施設のレーン照射設備にて、1wt% については 10 秒間、0.1wt% については 100 秒間の照射を行った。

図 7(a)(b)に、濃度が 0.1wt% の時の I-128 線スペクトルの経時変化を示す。液体シンチレータ、プラスチックシンチレータどちらの場合も、極微量のヨードベンゼン濃度にもかかわらず、明瞭な I-128 線スペクトルが観測されており、化学クエンチングの影響も小さいことがわかる。

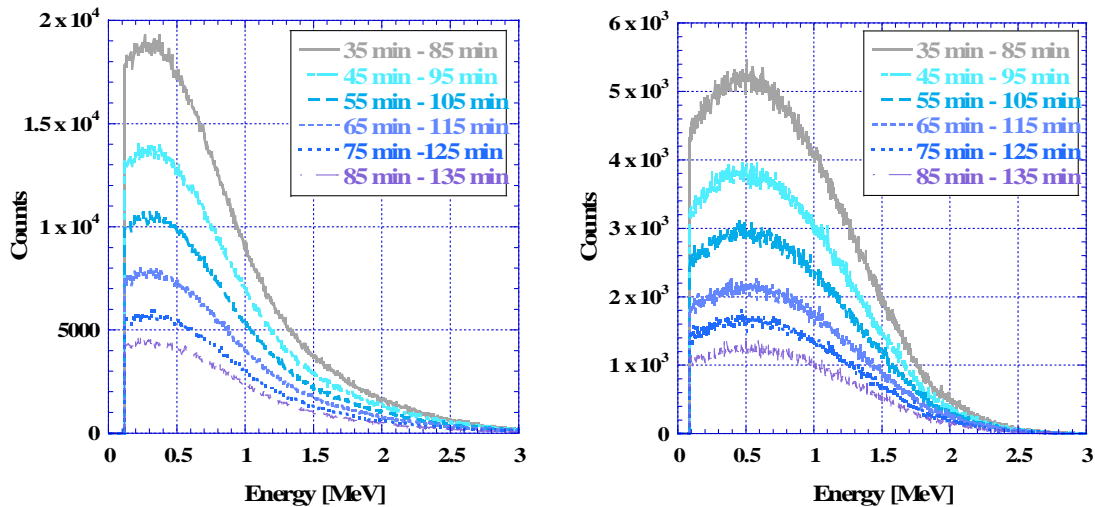


図7 0.1wt%の場合の線スペクトルの経時変化
(a)液体シンチレータ[左]、(b)プラスチックシンチレータ[右]

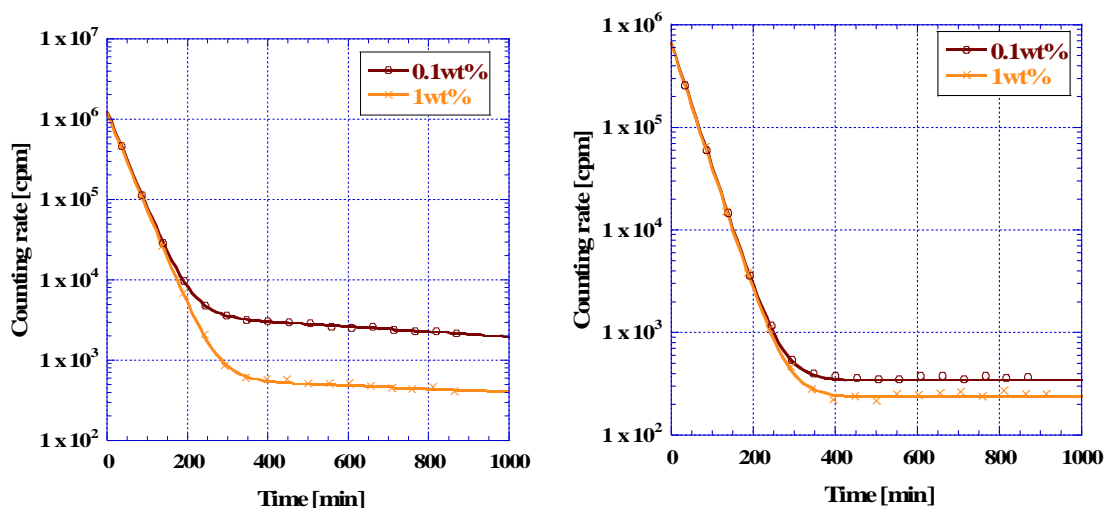


図8 計数率の減衰曲線 (a)液体シンチレータ[左]、(b)プラスチックシンチレータ[右]

計数率の減衰曲線を図8(a)(b)に示す。液体シンチレータには、Na-23と思われる半減期900分程度の成分が見られるが、プラスチックシンチレータについては、I-128の半減期25分の成分のみが観測されていることがわかる。また、ヨードベンゼン濃度は1wt%と0.1wt%で10倍異なるが、照射時間が各々10秒間と100秒間なので、生成するI-128の放射能はほぼ等しくなり、初期計数率はふたつの濃度で一致している。更に、10分間の測定と1000分間の測定で初期計数率(生成放射能)の評価精度を比較したところ、測定時間が10分でも1000分間の測定に遜色ない精度が確認され、短時間の測定による高精度評価が可能であることが示された。

(3) 京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉KURでの測定により得られたI-128の初期計数率と、モンテカルロシミュレーションコードPHITSによって計算された生成放射能から、各検出器の計数効率の算出を行った。表1に示す様に、液体シンチレータでは計数効率はほぼ1であったが、プラスチックシンチレータでは、0.7~0.8程度となった。この計数効率の低下は、テフロンテープの反射材を使用しなかったことが主たる原因だと考えられる。

表1 各シンチレータにおける計数効率の評価

シンチレータ	質量濃度 [wt%]	C_0 [cpm]	A_0 [Bq]	計数効率 ϵ
液体	0.1	1.19×10^6	2.48×10^4	0.926
	1	1.17×10^6	2.09×10^4	1.08
プラスチック	0.1	6.36×10^5	1.58×10^4	0.771
	1	6.08×10^5	1.67×10^4	0.698

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4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 Yumika Hanada, Akihiro. Nohtomi, Junichi Fukunaga, Yoshiyuki Shioyama	4. 巻 192
2. 論文標題 DEVELOPMENT OF A NEUTRON DOSIMETRY SYSTEM BASED ON DOUBLE SELF-ACTIVATED CsI DETECTORS FOR MEDICAL LINAC ENVIRONMENTS	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Radiation Protection Dosimetry	6. 最初と最後の頁 pp.378-386
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1093/rpd/ncaa218	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 -
1. 著者名 Akihiro Nohtomi, Yui Kanzaki, Naoya Sakamoto, Hideya Maeda	4. 巻 988
2. 論文標題 Observation of water luminescence for diagnostic 120-kV X-rays by using PMT and CCD camera	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Method in Physics Research A	6. 最初と最後の頁 164935
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nima.2020.164935	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 -
1. 著者名 T. Ueki, A. Nohtomi, G. Wakabayashi, J. Fukunaga, T. Kato, S. Ohga	4. 巻 128
2. 論文標題 A design study of application of the CsI self-activation method to the neutron rem-counter technique	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Radiation Measurements	6. 最初と最後の頁 106181
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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 -
1. 著者名 A. Nohtomi, H. Maeda, N. Sakamoto, G. Wakabayashi, T. Takata. Y. Sakurai	4. 巻 15
2. 論文標題 First optical observation of ^{10}B -neutron capture reactions using a boron-added liquid scintillator for quality assurance in boron neutron capture therapy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Radiological Physics and Technology	6. 最初と最後の頁 pp.37-44
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s12194-021-00645-z	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15件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Y. Kanzaki, A. Nohtomi, J. Fukunaga, Y. Shioyama
2. 発表標題 An observation of luminescence imaging of water during irradiation by 10 MV clinical linac using a CCD camera
3. 学会等名 2020 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, 27th International Symposium on Room Dosimetry and Reactor Applications Dosimetry and Reactor Applications (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 坂本直哉、納富昭弘、花田侑美佳、金政浩、新城優治、櫻井良憲
2. 発表標題 ヨウ素添加プラスチックシンチレータのBNCT中性子場への適用に関する検討
3. 学会等名 2020年 次世代放射線シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 前田英哉、納富昭弘、黒澤俊介、小玉翔平、若林源一郎、島津美宙
2. 発表標題 Ca12結晶のヨウ素自己放射化法による中性子測定への適用
3. 学会等名 2020年 次世代放射線シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 納富昭弘、神崎結衣、坂本直哉、前田英哉
2. 発表標題 120kV診断用X線による水発光の光電子増倍管とCCDカメラ による観測
3. 学会等名 第35回 研究会 放射線検出器とその応用 (KEK)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 式見夢希、納富昭弘、神崎祐依、坂本直哉、前田英哉
2. 発表標題 120kV診断X線を用いた水発光現象のCCDカメラによる観測
3. 学会等名 第15回九州放射線医療技術学術大会(長崎)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 長友勇樹、納富昭弘、神崎祐依、坂本直哉、前田英哉
2. 発表標題 120kV診断X線を用いた水発光現象の光電子増倍管による観測
3. 学会等名 第15回九州放射線医療技術学術大会(長崎)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 新留聖哉、納富昭弘、花田侑美佳、若林源一郎、櫻井良憲
2. 発表標題 ヨウ素添加プラスチックシンチレータのBNCT中性子場への適用に関する検討
3. 学会等名 第15回九州放射線医療技術学術大会(長崎)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中野 優、納富昭弘、坂本直哉、福永淳一、塩山善之
2. 発表標題 In箔と液体シンチレータを用いた中性子検出方法の検討
3. 学会等名 第15回九州放射線医療技術学術大会(長崎)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Hanada, A. Nohtomi, T. Ueki, R. Kurihara
2. 発表標題 Fundamental Study of the neutron ambient dose-equivalent measurement using two CsI self-activation sensors
3. 学会等名 第117回日本医学物理学会学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 坂本直哉, 納富昭弘, 長野永実, 若林源一郎, 島津美宙
2. 発表標題 ヨウ素添加液体シンチレータを用いた自己放射化法による中性子計測の検討とクエンチングの影響
3. 学会等名 次世代放射線シンポジウム2019(第31回放射線夏の学校)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神崎祐依, 納富昭弘, 櫻井良憲, 栗原凌佑
2. 発表標題 CsI板の自己放射化とCCDを用いた熱中性子ビーム測定と生成放射能の校正
3. 学会等名 次世代放射線シンポジウム2019(第31回放射線夏の学校)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Hanada, A. Nohtomi, T. Ueki, R. Kurihara
2. 発表標題 A fundamental study of a development of neutron dosimeter using double self-activated CsI scintillators for neutron doses around clinical Linacs
3. 学会等名 2019IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 長野永実, 納富昭弘, 坂本直哉, 若林源一郎, 島津美宙
2. 発表標題 ヨウ素添加液体シンチレータを用いた自己放射化法による中性子計測の検討とヨードベンゼンの添加量の影響
3. 学会等名 第14回九州放射線医療技術学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 前田英哉, 納富昭弘, 黒澤俊介, 小玉翔平, 若林源一郎, 島津美宙
2. 発表標題 Ca12結晶のヨウ素自己放射化法による中性子測定への適用
3. 学会等名 第14回九州放射線医療技術学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 納富昭弘, 花田侑美佳, 坂本直哉, 長野永実, 金政浩, 新城優治, 若林源一郎, 島津美宙, 櫻井良憲
2. 発表標題 ヨウ素添加有機シンチレータを用いた自己放射化法による中性子検出技術のBNCTへの応用に関する検討
3. 学会等名 第34回 研究会「放射線検出器とその応用」
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 納富昭弘	4. 発行年 2020年
2. 出版社 共立出版	5. 総ページ数 264
3. 書名 診療放射線基礎テキストシリーズ[4] 放射線計測学	

〔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
研究分担者	金 政浩 (Kin Tadahiro) (80450310)	九州大学・総合理工学研究院・准教授 (17102)	ヨウ素添加プラスチックシンチレータ作成担当
研究分担者	若林 源一郎 (Wakabyashi Genichiro) (90311852)	近畿大学・原子力研究所・教授 (34419)	UTR-KINKI 中性子照射実験補助担当

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