

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 25 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24360396

研究課題名(和文) 蛍光飛跡検出素子を用いた中性子・荷電粒子・線対応型高機能個人線量計の開発

研究課題名(英文) Development of novel personal dosimeter based on fluorescent nuclear track detector for neutrons, charged particles and gamma-rays

研究代表者

小田 啓二 (ODA, Keiji)

神戸大学・海事科学研究科(研究院)・教授

研究者番号：40169305

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：中性子・荷電粒子・線を測定できる線量計の開発に挑んだ。最も将来性のある素子のひとつはMg添加酸化アルミニウム単結晶である。

素子に記録された核飛跡イメージング技術の開発と、高効率での中性子測定のためのラジエータの設計という2つの重要な課題がある。前者については、高速の飛跡画像取得技術と飛跡再合成処理アルゴリズムの改良によって解決した。後者については、代表者が開発したunfolding法を適用し、ポリエチレン、アルミニウム及びポリイミドから成る多層構造ラジエータを設計した。

研究成果の概要(英文)：We have challenged to develop an all-mighty dosimeter, with which total dose-equivalent is measurable for photons, charged particles and neutrons. One of most promising detector element is Mg-doped aluminum oxide single crystal.

Two important problems are to develop a technique for imaging nuclear tracks recorded in the element, and to construct a suitable radiator for efficient neutron detection. The former has been solved in this study by improving a technique for fast acquisition for each nuclear track, and improvement of algorithm for processing each track. As to the latter, we applied the unfolding technique developed by the author, and we have designed multi-layer type radiator composed of PE (polyethylene), PI (poly-imide), Al and PI plastic.

研究分野：放射線計測

キーワード：蛍光飛跡検出器 飛跡イメージング 中性子用ラジエータ 線量計

1. 研究開始当初の背景

従来の個人線量計では、蛍光ガラスやOSL(光刺激ルミネッセンス)といった γ 線用線量計と、CR-39 エッチング型飛跡検出器を用いた中性子用線量計の2つを併用してきた。この方式では、互いの素子が放射線場を乱す可能性があること、体積が大きくなること、別々の読取り装置によるデータの集計(演算)が必要なこと等のファクターが精度低下の原因となっていた。

2006年、米国の線量計メーカーであるランダウア社、オクラホマ州立大及び放射線医学総合研究所の共同研究が発表された(Akselrod et al., *Nucl. Instrum. Meth.* B247, 2006)。OSL素子の改良によって非常に安定な蛍光中心を形成されることを発見し、さらに、共焦点方式顕微鏡を用いて画像データから重荷電粒子の飛跡像を再合成したという報告であった。この蛍光飛跡素子をCR-39等従来のエッチング型と比べると、(1)安定性(厳しい条件管理が要求される化学処理を必要としない)、(2)低環境負荷(大量の化学溶液の処理が不要)、(3)記録性(飛跡データが記録される、再読み取りが可能)、(4)繰返し使用(高温アニール処理によってデータ消去が可能)等の優れた潜在能力を有している。もし線量計として実用化できれば、約10年前に、それまで $X\cdot\gamma$ 線用線量計として汎用されていたフィルムバッジが蛍光ガラス線量計等にとって代わられたのと同じように、現在中性子用の主流であるCR-39飛跡検出器から蛍光飛跡検出器に変わる可能性が高いと考えられる。

2. 研究の目的

本研究課題では、ほとんどすべての種類の放射線に対して感度を有する「蛍光飛跡検出素子」を、LET分布や γ 線・中性子の識別測定が可能な実用個人線量計に発展させることを目的とした。具体的には、顕微鏡画像読取技術を向上させるとともに、適切なラジエータ設計を行って中性子計測技術を確立し、最終的に放射線の種類ごとの線量当量を評価できる「統合型個人線量計」として実用できることを実証することとした。

(1)蛍光飛跡画像取得技術の高度化

顕微鏡画像技術については、共同研究者である安田研究員が開発したラインセンサを用いた高速画像取得技術(*Radiat. Meas.*, 40, 2005)をベースとし、最先端ブルーレイディスク読取技術を組み合わせ、神戸大学所有の共焦点顕微鏡(科研費18360457で購入)を改造し、共焦点式スキャニング手法を確立するとともに、高エネルギー粒子(低LET粒子)を記録できることを実証する。

(2)高速中性子用ラジエータの設計

素子材料組成から判断すると、低エネルギーでは検出器内部での核反応による飛跡生成が見込まれないため、ラジエータ/コンバータによる荷電粒子への変換が必要である。これまで研究代表者が科研費を通して開発

したラジエータ設計技術(Oda et al., *Radiat. Meas.* 43, 2008)を適用し、適切な中性子感度を持たせるようにする。これによって、線量計として実用できることを証明する。

(3)飛跡構造関連知見の取得

潜在飛跡構造及び記録特性の解明という観点から、各種プラスチック飛跡検出器を対象とした放射線化学的特性を評価する。

3. 研究の方法

研究組織としては、神戸大学を中心とし、素子特性評価技術及び高度顕微鏡技術を持っている放射線医学総合研究所(放医研)、また、線量評価に関する基盤技術を有している日本原子力研究開発機構との共同研究体制の下で研究を進めることにした。

中心研究機関である神戸大学では、テーマ(2)は代表者、テーマ(3)は分担者(山内)が各々中心となり、協力者(院生)が加わることですすめた。本研究課題のキーポイントであるテーマ(1)は、高速顕微鏡の開発の実績がある分担者(安田及び小平)及び研究協力者(院生)と一緒に進めた。

4. 研究成果

(1)蛍光飛跡画像取得技術の高度化

本研究においては、Mgを添加した酸化アルミニウム単結晶を母材とした蛍光飛跡検出素子を用いた。これまでに低LET粒子に対して感度を有することは報告されているものの、既存の性能では、十分なLET分解能で電荷識別ができていないことや、入射角度に対する蛍光信号の依存性のほか、本来素子が有する電子トラックについては十分な分解能で定量計測はできていない。従って、重粒子線を用いた蛍光飛跡検出器の応答特性の系統的把握と共焦点顕微鏡系での測定条件の最適化を試みた。

共焦点顕微鏡で得られる蛍光トラック画像の画像処理による蛍光トラック抽出アルゴリズムとその蛍光強度や位置情報などを自動解析するプログラムを開発した。放医研HIMACを用いて、蛍光飛跡検出器に陽子線(プロトンビーム)からキセノンイオンにわたるさまざまな重粒子線を照射し、上記プログラムを用いて解析することによって、電荷分解能を評価した。その結果、核破砕反応で生成したフラグメント粒子は5度程度のごく小さい放出角を持つことを蛍光飛跡検出法でとらえることができた。入射角度に対する蛍光強度の依存性に基づいた補正や断層画像取得による統計精度の改善、1画像内における蛍光強度のバックグラウンドのムラ補正を行った結果、炭素線に対する電荷分解能0.25cuを達成した。この成果によって、これまでCR-39や原子核乾板などの閾値型検出器では成し得なかったダイナミックレンジ・粒子識別精度で核反応断面積の決定が可能であることを示した。

また、もうひとつの実証実験として、蛍光

飛跡検出器上に生物細胞を培養し、ネオンビームを照射することで、重イオンヒット位置と DNA 二重鎖切断位置を可視化する実験体系を構築した。共焦点顕微鏡系において、物理付与線量と生物応答を一对一对応させることに成功した。これまでのランダム照射による細胞へのヒット確率が LET の異なるイオンビームで異なる問題を解決することによって、これまでの放射線生物学で問題となっている RBE (生物学的効果比) の LET 依存性の新たな解釈や、タイムラプス法を用いた細胞死・修復過程の研究に貢献できると期待される。

更に、炭素線とキセノンイオンを照射した蛍光飛跡検出器を用いて、共焦点顕微鏡系の解析条件の最適化を行った。従来、対物レンズ 40 倍 (開口数 NA 0.95) を用いて走査し、蛍光飛跡画像を得ており、陽子線 70MeV の蛍光飛跡を自動解析可能なレベルの S/N 比で計測できている。一方で、本来素子が有する電子トラックについては十分な分解能で定量計測はできていない。点像分布関数 (PSF) で表される共焦点系における空間分解能は、主に蛍光波長と NA に依存している。波長は固定のため、高 NA 化による分解能向上を検討した。水浸対物レンズ 60 倍 (NA 1.00) ならびに油浸対物レンズ 60 倍 (NA 1.35) を用いた蛍光飛跡計測を行った。NA が 1 を超える条件では、重イオンビームに沿って放出される二次電子のトラックが観測されるようになった。特に、NA 1.35 では、図 1 に示すように炭素線 290MeV/n の水平トラックに沿って、二次電子がひげ状に放出されている様子が明瞭に観測された。

この条件により、電子トラックを用いた線量分布の導出が可能であることを示せたと言える。

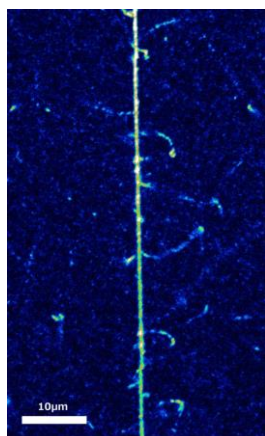


図 1. 水平照射した炭素線 290MeV/n の蛍光トラックと、トラックに沿ってひげ状に放出された二次電子の蛍光トラック画像

(2)高速中性子用ラジエータの設計

近年、X・γ線用積算型個人線量計の一つである OSL 線量計を改良した蛍光飛跡検出素子 (Fluorescent Nuclear Track Detector) が開発された。同素子は荷電粒子によって与えられたエネルギーの一部を安定な光中心による電子または正孔の捕獲という形で記録できるので、共焦点蛍光顕微鏡をリーダーとして用いれば、プロトンを含む重イオンの潜在飛跡を光刺激蛍光として観察することができる。従って、適切なラジエータと組み合わせることで中性子に対する個人線量計

として利用可能であると考えられる。本研究では過去に提案された線量計レスポンスの制御手法を参考にして蛍光飛跡検出器用のラジエータの設計を試みた。

プロトンの検出可能な入射角度及び検出器表面から垂直方向への深さまで到達するかを変えることで文献値へのフィッティングを試みた。その結果、入射角 θ のとりうる範囲が $\cos \theta \geq 0.75$ を満たす場合、つまり検出器表面に対する垂線から約 40 度の角度範囲、検出器表面から 0.4 μm 以上の深さ到達距離という 2 つを検出しきい値と仮定することにした。図 2 は、これらの条件を入れて計算した線量計レスポンスである。文献では約 5 MeV までのエネルギーに対する実験値しかなかったが、更に高エネルギーまでの計算を追加した。CR-39 と比べると、FNTD のレスポンスは、プロトンの記録特性が反映され、約 8 MeV 付近で線量計レスポンスはピークに達し、その後急激に落ちているのに対し、蛍光飛跡検出器は 100 MeV まである程度の感度を保つことから、高中性子エネルギー領域への適用が期待できると言える。

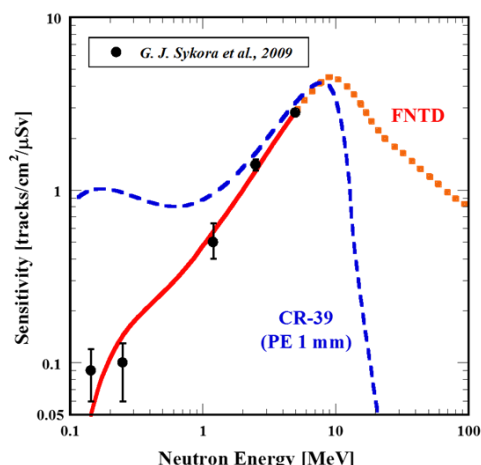


図 2. プロトンに対する線量計レスポンス

次に、2-50 MeV のエネルギー範囲における感度の平坦化の計算結果の一例を図 3 に示す。Unfolding 法によって求められた 10 層のラジエータを、順次簡略化して最終的に 4 層とした。各層の相対水素原子密度は、それぞれ 1.00、0.15、0、0.16 であった。そして、各々の密度に近い実在物質へ置き換えた結果、1 層目の物質には PE (ポリエチレン PE: 33 μm)、2 層目には PVCD (ポリ塩化ビニリデン PVCD: 554 μm)、3 層目にはアルミニウム (Al: 273 μm)、4 層目には PVCD (779 μm) を用いることにした。図 3 に上記の条件でラジエータを設計した場合に得られる線量計レスポンスを青、緑、ピンクの実線で示し、それらの和を赤の実線で表している。同図中の黒の破線で示した簡略化された分布より求めた線量計レスポンスとほぼ同様のレスポンス曲線を描く結果となり、感度の偏差は 25.3% となった。

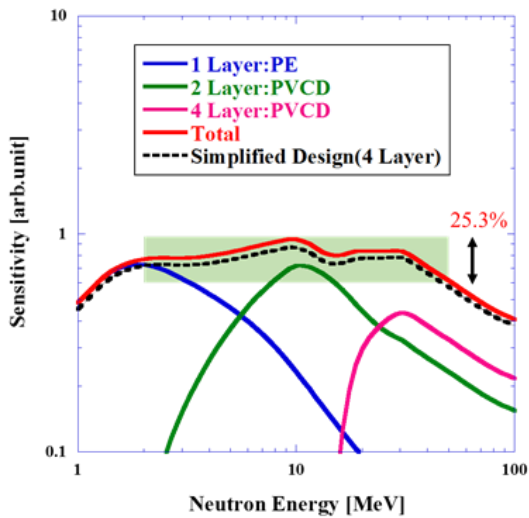


図3. 設計したラジエータを装着した FNTD 線量計レスポンスの中性子エネルギー依存性

(3) 飛跡構造関連知見の取得

蛍光飛跡検出器に対する参照データとして高分子系エッチング型飛跡検出器の応答特性と潜在飛跡構造との関係について実験的分析を進めた。

最も検出感度が高いポリアリルジグリコールカーボネート (PADC) 中のイオントラック内に生じているヒドロキシル基の変化を定量的に評価した。図4から、エーテル基は繰り返し構造の中心に一つ存在するが、生成しているヒドロキシル基との量的関係は 1:1 から 1:2 の範囲にあることを示した。

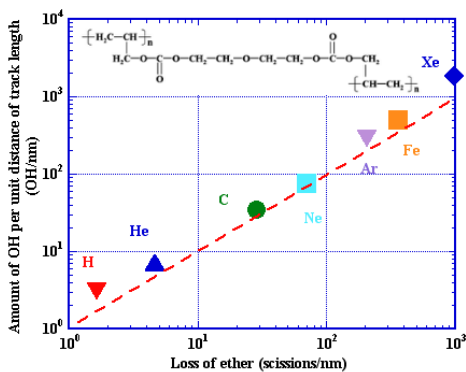


図4. PADC における OH 基とエーテル損失の関係。

また、比較的検出閾値の高いポリエチレンテレフタレート (PET) に種々の重イオンを照射した実験結果から、検出閾値周辺で放射線化学収率にステップ状の変動のあることを見出した。製品によって感度にばらつきが存在するが、一般に同検出器はアルファ線に対する感度を持たないことが知られている。図5に示すようにいずれの官能基についても検出閾値周辺で放射線化学収率にステップ状の変動が確認された。

これらの結果はエッチング前のイオントラック構造と検出感度との関係を解明する端緒となる成果である。

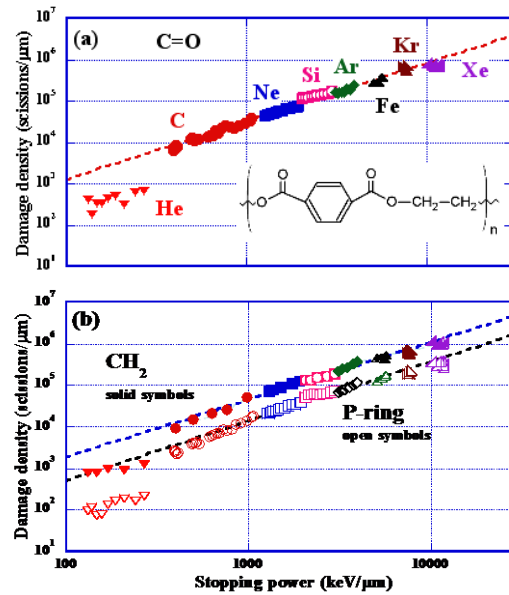


図5. PET におけるカルボニル基(a)と CH₂ 損失の阻止能依存性。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 14 件)

- ① K. Oda, T. Nakayama, K. Umetani, M. Kajihara and T. Yamauchi: "Generalization of radiator design techniques for personal neutron dosimeter by unfolding method", *Radiation Protection Dosimetry*, 査読有, 2015. doi:10.1093/rpd/ncv410
- ② S. Kodaira, Y. Miyamoto, Y. Koguchi, D. Maki, H. Shinomiya, K. Hanaoka, N. Hasebe, H. Kawshima, M. Kurano, H. Kitamura, Y. Uchihori, K. Ogura, "Application of Ag⁺-doped phosphate glasses as nuclear track etch detectors", *Radiation Measurements*, 査読有, 2014. doi:0.1016/j.radmeas.2014.04.015
- ③ T. Kusumoto, Y. Mori, M. Kanasaki, T. Ueno, Y. Kameda, K. Oda, S. Kodaira, H. Kitamura, R. Barillon, T. Yamauchi, "Yields on the formation of OH groups and the loss of CH groups along nuclear tracks in PADC films", *Radiation Measurements*, 査読有, 83, 2015, pp.217-220. doi:10.1016/j.radmeas.2015.04.008

[学会発表] (計 30 件)

- ① 中山 高宏、梅谷 圭吾、山内 知也、小田 啓二、"蛍光飛跡検出器をベースとした個人中性子線量計用ラジエータの設計"、日本保健物理学会第 48 回研究発表会、2015.7.3、首都大学東京 (東京都)
- ② S. Kodaira, Y. Miyamoto, Y. Koguchi, D. Maki, H. Kawshima, M. Kurano, H. Kitamura, Y. Uchihori and K. Ogura, "Application of Ag-doped phosphate glasses for the nuclear track detectors", 17th International Conference

on Solid State Dosimetry, 2013.9.24, レシフェ
(ブラジル)

③山内 知也、ムハンマド エリワ、楠本
多聞、田尾 陽、池永 龍之介、安田 修
一郎、小田 啓二、小平 聡、北村 尚、
西内 満美子、榊 泰直、金崎 真聡、福
田 祐仁、近藤 公伯、“重イオン成分を含
む混成場への固体飛跡検出器群の適用”、第
62 回応用物理学会春季学術講演会、
2015.3.13、東海大学 (神奈川県)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小田 啓二 (ODA, Keiji)
神戸大学・大学院海事科学研究科・教授
研究者番号：40169305

(2) 研究分担者

山内 知也 (YAMAUCHI, Tomoya)
神戸大学・大学院海事科学研究科・教授
研究者番号：40211619

安田 仲宏 (TASUDA, Nakahiro)
福井大学・国際原子力工学研究所・教授
研究者番号：30392244

小平 聡 (KODAIRA, Satoshi)
放射線医学総合研究所・研究基盤センタ
ー・研究員
研究者番号：00434324

谷村 嘉彦 (TANIMURA, Yoshihiko)
日本原子力研究開発機関・原子力科学研究
所・副主任研究員 (当時)
研究者番号：20354714
(原子力規制庁への出向のため、平成 25
年度まで)