修士学位論文

Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD を 併用した熱蛍光の中性子線・γ線弁別解析

(西暦) 2017年 1月 6日 提出

首都大学東京大学院

人間健康科学研究科 博士前期課程 人間健康科学専攻 放射線科学域

学修番号:15897611

氏 名:齋藤 雄介

(指導教員名:眞正 浄光)

(西曆) 2016 年度 博士前期課程学位論文要旨

学位論文題名
Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD を 併用した熱蛍光の中性子線・γ線弁別解析
学位の種類:修士(放射線学) 首都大学東京大学院
人間健康科学研究科 博士前期課程 人間健康科学専攻 放射線科学域 学修番号 15897611
氏名:齋藤 雄介 (指導教員名:眞正 浄光)

ホウ素中性子捕捉療法(Boron Neutron Capture Therapy: BNCT)は、ホウ素同位体¹⁰Bを 集積させた腫瘍細胞に中性子線を照射し、核反応により発生するα粒子と⁷Li粒子を利用す る、腫瘍への高い線量集中性と強力な殺細胞効果を特徴とした次世代型の放射線治療法で ある。高度化の進む昨今の放射線治療の中でも、BNCTは細胞単位の革新的な放射線治療法 として多大な期待が寄せられている。しかし、安定した中性子源の開発や、より高い腫瘍 集積性を有するホウ素薬剤の開発、適応症例の拡大など、医療としての BNCT の普及に向 けて残された課題は多い。放射線計測の分野においても、中性子線とγ線を簡便且つ高精度 に弁別可能な、低コストの放射線測定デバイスの開発が求められている。熱蛍光線量計

(Thermoluminescent Dosimeter : TLD) を用いた中性子線・ γ 線弁別測定法には、中性子吸 収断面積の差が大きい二種類の TLD の TL 量差を利用する手法がある。しかし、BNCT の 線量域に対応した TLD は市販されておらず、実際の BNCT においてこの手法は行われてい ない。

そのような背景の中で、本研究では優れた TL 特性と幅広い利用可能性を有する Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブに着目し、 Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブと BeO TLD を併用した TL の中性子線・ γ 線弁別解析法について検討を行った。中性子感度が非常に小さく BNCT にお いて積算 γ 線線量計として用いられている BeO TLD を併用することにより、BNCT におけ る中性子束及び γ 線量測定を同時に行うことが期待できる。

本論文では、この中性子線・γ線弁別解析の手法を報告するとともに、密封中性子源及び 加速器中性子源を用いた実測結果について記した。その結果、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラ ブが中性子に感度を有することを明らかにした。また、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの TL 量から熱中性子束の試算を行い、金の放射化法より求めた値の3.3倍という結果を得た。 この差の原因として、数 keV ないしは数 MeV 領域の中性子の TL への寄与が考えられた。 しかし、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの示した中性子感度の要因を解明することで、TL 量から中性子束を算出することのできる可能性が示された。

今後、中性子線・γ線の弁別照射やモンテカルロ計算の結果との比較を行い、本解析法の 有用性を明らかにする必要がある。また、前述したように Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの 中性子感度の要因を解明することも大きな課題であるといえる。本研究が今後の BNCT の 発展と普及の一助となることを期し、更なる検討を進めていきたい。

目次

要旨

第1章	序論1
1.1	我が国の死因別にみた死亡率の年次推移1
1.2	ホウ素中性子捕捉療法2
1.3	放射化を利用した中性子束測定法
1.4	TLD を用いた中性子線・γ線弁別測定法4
1.5	Al ₂ O ₃ :Cr セラミック TL スラブ5
1.6	本研究の目的
1.7	本研究の概要
第2章	TL の原理及び測定システム8
2.1	TLの原理
2.2	グロー曲線
2.3	TL 素子10
2.4	グロー曲線測定システム11
2.5	アニーリング処理13
第3章	TL の中性子線・γ線弁別解析法14
3.1	解析法の概要
3.1 3.2	解析法の概要
3.1 3.2 3.3	解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章	解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1	解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1 4.2	 解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1 4.2 4.3	 解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1 4.2 4.3 4.4	 解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1 4.2 4.3 4.4 第5章	 解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1 4.2 4.3 4.4 第5章 5.1	 解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1 4.2 4.3 4.4 第5章 5.1 5.2	 解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1 4.2 4.3 4.4 第5章 5.1 5.2 5.3	 解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1 4.2 4.3 4.4 第5章 5.1 5.2 5.3 5.4	 解析法の概要
3.1 3.2 3.3 第4章 4.1 4.2 4.3 4.4 第5章 5.1 5.2 5.3 5.4 第6章	 解析法の概要

.

謝辞

第1章 序論

1.1 我が国の死因別にみた死亡率の年次推移

厚生労働省が発表した 2015 年の人口動態統計¹⁾によると、2015 年の全死亡者に占める悪 性新生物による死亡者の割合は 28.7%であり、全死亡者の 3.5 人に 1 人が悪性新生物で死亡 している。この割合は年々増加傾向にあり、1981 年以降死因第一位となっている(図 1.1)。 今後も患者数が増えることが予想される悪性新生物に対して、その治療法の更なる発展が 望まれている。

がんの三大療法として手術療法、化学療法、放射線療法がある。中でも放射線療法は臓 器の形態・機能の温存が可能であり、治療後の QOL(生活の質)の高いがん治療法として 期待されている。



図 1.1 主な死因別にみた死亡率の年次推移 1)

1.2 ホウ素中性子捕捉療法

高度化の進む昨今の放射線治療には、小照射野を用いて多方向からの照射を行う定位放 射線治療(Stereotactic Radiotherapy:SRT)や、標的病巣に合わせて強度を調節した照射を 行う強度変調放射線治療(Intensity Modulated Radiation Therapy:IMRT)等がある。これら はいずれも正常組織へのダメージを最小限に抑えながら、標的病巣へ集中的に線量を投与 することを目的としている。

近年、腫瘍への高い線量集中性と強力な殺細胞効果を特徴とする次世代型の放射線治療 法として、ホウ素中性子捕捉療法(Boron Neutron Capture Therapy: BNCT)が注目されてい る。BNCTでは、ホウ素同位体¹⁰Bを集積させた腫瘍細胞に中性子線を照射し、核反応によ り発生する a 粒子と⁷Li 粒子を利用する。これらの荷電粒子は腫瘍細胞内で多量のエネルギ ーを失い、その飛程は腫瘍細胞ほぼ一個分に相当するため、がんを細胞単位で選択的に、 効率良く破壊することが可能である(図 1.2)。従来の BNCT は中性子源として原子炉を必 要としたが、医療としての確立、普及の難しさから、現在では加速器を中性子源とした BNCT システムについて研究が進められている。

中性子源として原子炉、加速器のいずれにおいても、中性子線の発生と同時にγ線が発生 する。腫瘍及び正常組織の吸収線量評価に際して、この中性子線とγ線は生物学的効果比が 異なるため両者の弁別測定が不可欠である。現在、中性子束の測定は金の放射化法によっ て行われており、γ線の積算線量測定は中性子感度が非常に小さい BeO を成分とする熱蛍 光線量計(Thermoluminescent Dosimeter: TLD)を用いて行われている。



図 1.2 BNCT の照射イメージ図

1.3 放射化を利用した中性子束測定法

BNCT において、細胞に与えられる線量は照射される中性子束の大きさに依存する。ここでは、この中性子束の測定法について述べる。

光子や中性子は直接電離作用を持たないが、光子が主に軌道電子と相互作用を起こすの に対して、中性子は原子核とのみ相互作用を起こす。そして、原子核との相互作用によっ て発生した二次粒子が電離作用を起こす。このような特性から、中性子線の測定には大き く分けて二種類の方法がとられている。一つはコンバータやラジエータを用いて中性子線 を α 線や陽子線に変換する方法である。もう一つは、中性子捕獲反応で生成する放射性核 種からの γ 線や β 線を測定する方法であり、放射化法と呼ばれる。

原子核が中性子捕獲反応を起こすと、質量数の1つ大きな励起状態の原子核が生成する。 この生成核種は不安定なため、γ線やβ線を放出して崩壊し基底状態へ移行する。このとき の飽和放射能の値が中性子束に比例することを利用したものが放射化法である。放射化法 では、他の中性子検出器に比較し検出器の質量や寸法を小さくすることが可能であるため、 測定する中性子場を乱すことが少ない。また、γ線の影響を受けないことも大きな利点であ り、非常に精度の高い中性子束測定法として知られている。今日では、熱中性子に対して 高い放射化断面積(98.5 barn)を有し、生成核種が適度な半減期(2.7 日)を持つことから、 主な放射化検出器として¹⁹⁷Auが金箔や金線の形で使用されている(図 1.3)。

放射化法による熱中性子束の測定において、カドミウム差引法と呼ばれる手法が用いら れる。カドミウムは低エネルギー中性子に対して大きな吸収断面積を有するため、1 mm 程 度の厚さのカドミウムフィルタ(図 1.4) で放射化検出器を被覆することで、熱中性子によ る放射化を防ぐことができる。裸の放射化検出器とカドミウムフィルタで被覆した放射化 検出器の飽和放射能の差分から、熱中性子束が求められる。



図 1.3 金箔

図 1.4 カドミウムフィルタ

1.4 TLD を用いた中性子線・y線弁別測定法

中性子線・γ線混在場における両者の弁別測定法として、TLDを用いた手法がある。一般 的に TLD の示す熱蛍光(Thermoluminescence: TL)量には加算性があることが知られてい る。中性子線及びγ線を照射した TLD の全 TL 量は、各線質に対する TL 量の和に一致する。

$$TL(n, \gamma) = TL(n) + TL(\gamma)$$
(1.1)

TLD を用いた中性子線・γ線弁別測定ではこの特性を利用して、二種類の TLD の TL 量の 差分を取る手法が用いられている。

例として、リチウムの同位体 ⁶Li は熱中性子に高い吸収断面積 (940.4 barn)を有し、(n, α) 反応により α 粒子と ³H 粒子を生成する。しかし、 ⁷Li においてこのような反応はみられな い。 ⁶Li と ⁷Li をそれぞれ含有し、それ以外の組成が等しい二種類の TLD を併せて用いると、 熱中性子に対して大きな感度差をつくることができる。更に、二つの同位体の γ 線に対する 反応特性は等しいため、二つの TLD 読取値の単純な差引により中性子線・γ 線弁別測定が 可能である (図 1.5)。現在、 ⁶LiF:Mg, Ti と ⁷LiF:Mg, Ti から成る TLD (TLD-600, TLD-700, Harshaw)をはじめとした幾つかの中性子測定用 TLD が製品化されている。しかし、いず れも BNCT のような数+ Gy の線量域には対応していない。



図 1.5 TLD を用いた中性子線・y線弁別測定法

1.5 Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ

我々は、Al₂O₃を主成分とする市販のセラミック板が光子線や重粒子線に高い TL 感度を 有することを発見し、他にも広範なダイナミックレンジや、高空間分解能の二次元イメー ジング特性を有することを明らかにした²⁾。図 1.6 は、Al₂O₃セラミック板による USB メモ リと一円玉硬貨の X 線像である。分解能 50 μm 程度の細密な二次元画像が得られている。

また、我々は Al₂O₃ セラミック板の TL 波長が Cr の発光準位に基づく 693 nm であること を明らかにし、Al₂O₃ セラミック板に微量の Cr₂O₃ を添加した Al₂O₃:Cr セラミック TL スラ ブを開発した。これにより、更なる高感度化と TL の熱安定性向上に成功した。上述した特 長に加えて、安価且つ繰り返しの使用が可能で経済性が高く、加工が容易であることなど から、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブは幅広い利用可能性を有する TL 素子として期待され ている。



図 1.6 Al₂O₃ セラミック板による USB メモリと一円玉硬貨の X 線像²⁾

1.6 本研究の目的

BNCT において、腫瘍及び正常組織の吸収線量評価のために中性子線とγ線の弁別測定が 不可欠である。TLD を用いた中性子線・γ線弁別測定法には、中性子吸収断面積の差が大き い二種類の TLD の TL 量差を利用する手法がある。しかし、BNCT の線量域に対応した TLD は市販されておらず、実際の BNCT においてこの手法は行われていない。

我々は、Al₂O₃を主成分とするセラミック板の優れた TL 特性を発見し、更に TL 感度を 向上させた Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブを開発した。BNCT における簡便な中性子線・γ 線弁別測定デバイスとして、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの利用を検討している。

そこで、我々は中性子吸収断面積が非常に小さく、BNCT において γ 線線量計として用いられている BeO TLD に注目し、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の TL 量差を利用した中性子線・ γ 線弁別測定法を考案した。この手法により、BNCT における中性子束及び γ 線量測定を同時且つ簡便に行うことが期待できる。本研究では、この Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD を併用した TL の中性子線・ γ 線弁別解析法について、その手法と実測結果を報告する。

1.7 本研究の概要

本論文は以下に示す6章にて構成される。

第1章では、序論として本研究の背景と目的について記した。

第2章では、TLの原理と、TL素子及び測定システムについて記した。

第3章では、 Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブと BeO TLD を併用した TL の中性子線・ γ 線 弁別解析法の概要及び原理について記した。

第4章では、密封中性子源に対する TL の中性子線・γ線弁別解析結果について記した。 第5章では、加速器中性子源に対する TL の中性子線・γ線弁別解析結果について記した。 第6章では、結語として本研究の総括と今後の展望について記した。

第2章 TLの原理及び測定システム

2.1 TL の原理

ある種の物質に放射線を照射した後に加熱すると、蛍光を発することがある。これを熱 蛍光(TL)という。このTL量はある線量範囲で物質の得た吸収線量に比例し、それを利用 した線量計がTLDである。

TL 素子に放射線が照射されると、電離作用により価電子帯の電子が励起エネルギーを受けて伝導帯へ移動し、自由電子となる。電子が抜け出した後には正孔が生じる。この自由 電子と正孔は物質中の不純物や結晶の格子欠陥による捕獲中心に捕獲され、準安定状態と なる。この準安定状態の TL 素子を加熱すると、捕獲されていた電子と正孔が再結合し、そ の準位差のエネルギーが蛍光として放出される(図 2.1)。

TL素子が放射線のエネルギーを受けてTLを生じるとき、そのエネルギー変換効率はTL 素子の組成によって異なり、物質固有である。但し実際のTL測定においては、それ以外に も厚さや密度等、TL素子の構造によって得られるTL強度は異なる。本論文では、このTL 素子の構造を考慮したエネルギー変換効率を、発光効率と呼称する。また、物質が得る吸 収線量は放射線の線質やエネルギーによって変化するため、TLには線質依存性やエネルギ ー依存性がみられる。



図 2.1 TLの原理

2.2 グロー曲線

TL 素子を一定の昇温速度で加熱して TL を測定したとき、その加熱温度と TL 量の関係を 示したグラフをグロー曲線と呼ぶ。グロー曲線の形状や面積、半値幅、グローピーク温度 等にその TL 素子の TL 特性が表れる。例として、図 2.2 に昇温速度約 0.13°C/s で加熱した Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブのグロー曲線を示す。

励起された電子が全て発光すると仮定したとき、グロー曲線は以下のモデルによって説 明される³⁾。

$$I(T) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^{T} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]$$
(2.1)

I(T)	:	温度 T [K]における TL 強度	S	:	頻度因子[1/s]
n_0	:	捕獲電子数	k	:	ボルツマン定数[eV/K]
E	:	捕獲エネルギー準位[eV]	β	:	昇温速度[K/s]



2.3 TL 素子

一般的に、TLD は小型で安価な受動型積算線量計として、主に個人被ばく線量計や環境 モニタリングに用いられている。TL 物質の種類が多いことも特徴のひとつであり、特に生 体組織等価の TLD は人体の吸収線量評価に適している。

本研究で使用する Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ(千葉セラ)は、Al₂O₃ セラミック板に 微量の Cr₂O₃を添加した TL 素子であり、その組成は Al₂O₃:>99.5wt%、Cr₂O₃: 0.05wt%で ある。また、実効原子番号は 11.1、密度は 3.7 g/cm³ である。1.5 項でも述べたように、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブは以下の特性を有する。

- 光子線や重粒子線に高い TL 感度を有し、TL の熱安定性が高い
- 広範なダイナミックレンジを有する
- 高空間分解能の二次元イメージング特性を有する

加工が容易で、ポイント測定から大面積の二次元イメージングまで用途が幅広い
 本研究では11 mm×11 mm×1.2 mm 厚のチップ型素子を使用した(図 2.3)。

BeO TLD (UD-170LS、松下電器) は BeO:Na セラミック粒を 2 mm φ ×12 mm の石英ガラス 管に封入した TL 素子である (図 2.4)。BeO TLD は実効原子番号が 7.6 と生体組織に近く、 エネルギー依存性が小さいため、生体組織の吸収線量測定に用いられてきた。また、BeO は中性子に超低感度のため、中性子線・ γ 線混在場における γ 線測定に適した TL 物質であ る。しかし、従来のホウケイ酸ガラス管封入 BeO TLD (UD-170L、松下電器) はガラス中 の元素が原因で、熱中性子に対して 3.2×10⁻¹² Gy/(1/cm²)の感度を示すことが報告されている ⁴⁾。本 TLD は石英ガラス管を用いることで、その熱中性子感度を 8×10⁻¹⁴ Gy/(1/cm²)に低減し た TLD である ⁵⁾。本研究で使用したこの石英ガラス管封入 BeO TLD は、実際の BNCT にお いて積算 γ 線線量計として使用されている。



図 2.3 Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ

図 2.4 BeO TLD

2.4 グロー曲線測定システム

一般的な TLD 読取装置の昇温速度は 10~40°C/s であるが、速い昇温速度はヒータ温度と TL 素子の温度に差異を生じやすく、詳細な TL 特性の調査に適していない。我々は、約 0.13° C/s (400°C/50 min)の非常に遅い昇温を可能とする独自のグロー曲線測定システムを 用いることにより、TL 測定精度の向上に成功した⁶。

このグロー曲線測定システムは真鍮製ヒータ及びフォトンカウンティングヘッドを内蔵 した暗箱、プログラム温度調節器、PCから構成される。構成機器の詳細を表 2.1 に示す。 また、図 2.5、図 2.6 にグロー曲線測定システムの全体図及び暗箱内部の拡大図を示す。

機器	製造	型番
暗箱	サイエンテックス	BOX-U2
温度調節器	坂口電熱	SCR-SHQ-A
ヒータ	坂口電熱	特注品
フォトンカウンティングヘッド	浜松ホトニクス	H11890-210

表 2.1 測定システム構成機器

測定の際は、暗室下にてヒータ上に TL 素子を設置し、暗箱を閉じた後、ヒータ温度を昇 温速度 0.13℃/s で室温から 400℃ まで上昇させた。ヒータ温度は熱電対でモニタし、プロ グラム温度調節器で出力を調節した。素子からの TL はレンズで集光してフォトンカウンテ ィングヘッドで検出し、PC に記録した。測定後、素子を室温から 400℃ まで再加熱し、得 られたカウントをバックグラウンド値とした。



図 2.5 グロー曲線測定システム(全体図)



図 2.6 グロー曲線測定システム (暗箱内部)

2.5 アニーリング処理

TL素子の繰り返し使用の際には、読み出されなかった蛍光中心を高温の加熱処理によって初期化する必要がある。これをアニーリング処理という。

Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブのアニーリング処理は図 2.7 に示す電気炉及び制御盤 (SAH0869、坂口電熱)を使用し、1000℃の加熱処理を1時間行った。



図 2.7 アニーリング処理装置(Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ)

BeO TLD のアニーリング処理は図 2.8 に示す電気炉(VTDW-2R、いすゞ製作所)を使用 し、450℃の加熱処理を1時間行った。



図 2.8 アニーリング処理装置 (BeO TLD)

第3章 TL の中性子線·γ線弁別解析法

3.1 解析法の概要

一般的に TLD を用いた中性子線・γ線弁別測定では、中性子吸収断面積の差が大きく、γ 線に対する TL 特性が等しい二種類の TLD を併用する。一方の中性子吸収断面積がもう一 方に対して非常に小さいとき、両者の TL 量差は中性子線に対する TL とみなせるため、中 性子線とγ線とが弁別できる。

本研究は BNCT における中性子線・ γ 線弁別測定デバイスの開発を目的としており、中性 子吸収断面積が非常に小さく、実際の BNCT において使用される BeO TLD を Al₂O₃:Cr セラ ミック TL スラブと併用することを考えた。しかし、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の γ 線に対する TL 特性は異なるため、単純な TL 量の差引で中性子線と γ 線を弁別す ることはできない。そこで、本研究では BeO TLD の TL 量に γ 線エネルギー依存性及び発 光効率の補正を行い、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの γ 線に対する TL 量に変換する手法 を検討した。その後、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの全 TL 量との差引により中性子線と γ 線の弁別を図った(図 3.1)。



3.2 解析法の原理

TL 素子が吸収線量 D で熱蛍光 TL を生じたとき、その発光効率 η は

$$\eta = \mathbf{T}\mathbf{L}/\mathbf{D} \tag{3.1}$$

式(3.1)より、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の発光効率比 **7**AbO3Cr, BeO は

$$\eta_{\text{Al2O3Cr, BeO}} = \frac{\text{TL}_{\text{Al2O3Cr}} / D_{\text{Al2O3Cr}}}{\text{TL}_{\text{BeO}} / D_{\text{BeO}}}$$
(3.2)

Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の γ 線吸収線量は γ 線のエネルギーに依存する。 このときの γ 線吸収線量比はそれぞれの質量エネルギー吸収係数 μ en/ ρ の比で表される。

$$\frac{D_{\text{Al2O3Cr}}(\gamma)}{D_{\text{BeO}}(\gamma)} = \frac{(\mu_{\text{en}} / \rho)_{\text{Al2O3Cr}}}{(\mu_{\text{en}} / \rho)_{\text{BeO}}}$$
(3.3)

式(3.2)(3.3)より、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の γ線に対する発光効率比は

$$\eta_{\text{AbC03Cr,BeO}}(\gamma) = \frac{\text{TL}_{\text{AbC03Cr}}(\gamma)/(\mu_{\text{en}}/\rho)_{\text{AbC03Cr}}}{\text{TL}_{\text{BeO}}(\gamma)/(\mu_{\text{en}}/\rho)_{\text{BeO}}}$$
(3.4)

 $Al_2O_3:Cr$ セラミック TL スラブと BeO TLD に中性子線及び γ 線を照射したとき、 $Al_2O_3:Cr$ セラミック TL スラブの全 TL は、各線質に対する TL の和に一致すると仮定できる。

$$TL_{AbO3Cr}(\mathbf{n}, \gamma) = TL_{AbO3Cr}(\mathbf{n}) + TL_{AbO3Cr}(\gamma)$$
(3.5)

また、BeO TLD は中性子に超低感度のため

$$TL_{BeO}(\mathbf{n}, \boldsymbol{\gamma}) = TL_{BeO}(\boldsymbol{\gamma}) \tag{3.6}$$

とみなせる。式(3.4)の関係より、この BeO TLD の TL に Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の質量エネルギー吸収係数比(μ en/ ρ)AbO3Cr,BeO 及び、 γ 線に対する発光効率比 η AbO3Cr,BeO(γ)を乗じることで、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの γ 線に対する TL が求めら れる。

$$TL_{AbO3Cr}(\gamma) = TL_{BeO}(\gamma) \times (\mu_{en} / \rho)_{AbO3Cr, BeO} \times \eta_{AbO3Cr, BeO}(\gamma)$$
(3.7)

式(3.7)の結果を用いて、式(3.5)の関係より Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの中性子線に対する TL が得られる。

$$TL_{AbO3Cr}(\mathbf{n}) = TL_{AbO3Cr}(\mathbf{n}, \gamma) - TL_{AbO3Cr}(\gamma)$$
(3.8)

3.3 質量エネルギー吸収係数

TL 素子のγ線エネルギー依存性は、その構成元素の質量エネルギー吸収係数に依存する。 質量エネルギー吸収係数は物質の光子エネルギーの吸収の大きさを表す指標であり、元素 の種類と光子エネルギーによって異なる。図 3.2 及び表 3.1 に、アルミニウム、酸素、クロ ム、ベリリウムの質量エネルギー吸収係数を示す⁷⁾。



図 3.2 各元素の質量エネルギー吸収係数 7)

Photon Energy	$\mu_{en} / \rho [cm^2/g]$			
[MeV]	Al	0	Cr	Be
1.00E-03	1.18E+03	4.58E+03	7.39E+03	6.04E+02
1.50E-03	4.00E+02	1.55E+03	2.69E+03	1.79E+02
1.56E-03	3.60E+02	1.44E+03	2.52E+03	1.67E+02
1.56E-03	3.83E+03	1.44E+03	2.52E+03	1.67E+02
2.00E-03	2.20E+03	6.93E+02	1.27E+03	7.42E+01
3.00E-03	7.73E+02	2.16E+02	4.31E+02	2.09E+01
4.00E-03	3.55E+02	9.22E+01	1.96E+02	8.37E+00
5.00E-03	1.90E+02	4.72E+01	1.06E+02	4.08E+00
5.99E-03	1.14E+02	2.73E+01	6.38E+01	2.28E+00
5.99E-03	1.14E+02	2.73E+01	4.03E+02	2.28E+00
6.00E-03	1.13E+02	2.71E+01	4.03E+02	2.26E+00
8.00E-03	4.92E+01	1.12E+01	2.09E+02	8.84E-01
1.00E-02	2.54E+01	5.57E+00	1.19E+02	4.26E-01
1.50E-02	7.49E+00	1.55E+00	4.09E+01	1.14E-01
2.00E-02	3.09E+00	6.18E-01	1.85E+01	4.78E-02
3.00E-02	8.78E-01	1.73E-01	5.78E+00	1.90E-02
4.00E-02	3.60E-01	7.53E-02	2.48E+00	1.44E-02
5.00E-02	1.84E-01	4.41E-02	1.28E+00	1.40E-02
6.00E-02	1.10E-01	3.21E-02	7.42E-01	1.47E-02
8.00E-02	5.51E-02	2.47E-02	3.18E-01	1.66E-02
1.00E-01	3.79E-02	2.36E-02	1.70E-01	1.84E-02
1.50E-01	2.83E-02	2.51E-02	6.54E-02	2.16E-02
2.00E-01	2.75E-02	2.68E-02	4.21E-02	2.35E-02
3.00E-01	2.82E-02	2.88E-02	3.16E-02	2.55E-02
4.00E-01	2.86E-02	2.95E-02	2.94E-02	2.62E-02
5.00E-01	2.87E-02	2.97E-02	2.85E-02	2.64E-02
6.00E-01	2.85E-02	2.96E-02	2.79E-02	2.63E-02
8.00E-01	2.78E-02	2.89E-02	2.68E-02	2.57E-02
1.00E+00	2.69E-02	2.79E-02	2.58E-02	2.48E-02
1.25E+00	2.57E-02	2.67E-02	2.45E-02	2.37E-02
1.50E+00	2.45E-02	2.55E-02	2.34E-02	2.27E-02
2.00E+00	2.27E-02	2.35E-02	2.18E-02	2.08E-02
3.00E+00	2.02E-02	2.07E-02	2.01E-02	1.81E-02
4.00E+00	1.88E-02	1.88E-02	1.95E-02	1.62E-02
5.00E+00	1.80E-02	1.76E-02	1.93E-02	1.48E-02
6.00E+00	1.74E-02	1.67E-02	1.93E-02	1.38E-02
8.00E+00	1.68E-02	1.55E-02	1.97E-02	1.23E-02
1.00E+01	1.65E-02	1.48E-02	2.02E-02	1.14E-02
1.50E+01	1.63E-02	1.40E-02	2.11E-02	1.00E-02
2.00E+01	1.63E-02	1.36E-02	2.17E-02	9.29E-03

表 3.1 各元素の質量エネルギー吸収係数 7)

Al₂O₃:Cr 及び BeO の質量エネルギー吸収係数を算出するため、式(3.9)よりそれぞれの構成元素の質量比を求めた。Al₂O₃:Cr 中の元素の質量比は、Al₂O₃及び Cr₂O₃中の元素の質量 比を基に求めた。組成比は Al₂O₃: 99.95wt%、Cr₂O₃: 0.05wt%とした。結果を表 3.2 に示す。

$$\boldsymbol{\omega}_i = \frac{N_i \times A_i}{M} \times 100 \tag{3.9}$$

表 3.2 Al₂O₃:Cr 及び BeO の構成元素の質量比

	Al ₂ O ₃ :Cr			Be	eO
構成元素	Al	0	Cr	Be	0
質量比[%]	52.90	47.07	0.03	36.03	63.97

表 3.2 の結果を用いて、式(3.10)より Al₂O₃:Cr 及び BeO の質量エネルギー吸収係数を算出 した。結果を図 3.3 及び表 3.3 に示す。本解析法では、この結果と照射したγ線のエネルギ ースペクトルから平均質量エネルギー吸収係数を導出し、γ線エネルギー依存性の補正に用 いる。

$$\mu_{\rm en} / \rho(E) = \sum_{i} \left\{ (\mu_{\rm en} / \rho)_i(E) \times \frac{\omega_i}{100} \right\}$$
(3.10)

(μen/ρ)i(E): 光子エネルギーEにおける元素iの質量エネルギー吸収係数[cm²/g]
 Øi: 元素iの質量比[%]



図 3.3 Al₂O₃:Cr 及び BeO の質量エネルギー吸収係数

Photon Energy	$\mu_{en} / \rho [cm^2/g]$		
[MeV]	Al ₂ O ₃ :Cr	BeO	
1.00E-03	2.78E+03	3.14E+03	
1.50E-03	9.40E+02	1.05E+03	
1.56E-03	8.71E+02	9.83E+02	
1.56E-03	2.71E+03	9.83E+02	
2.00E-03	1.49E+03	4.70E+02	
3.00E-03	5.11E+02	1.46E+02	
4.00E-03	2.31E+02	6.20E+01	
5.00E-03	1.23E+02	3.16E+01	
5.99E-03	7.32E+01	1.83E+01	
5.99E-03	7.34E+01	1.83E+01	
6.00E-03	7.28E+01	1.81E+01	
8.00E-03	3.13E+01	7.46E+00	
1.00E-02	1.61E+01	3.71E+00	
1.50E-02	4.70E+00	1.03E+00	
2.00E-02	1.93E+00	4.13E-01	
3.00E-02	5.48E-01	1.17E-01	
4.00E-02	2.27E-01	5.34E-02	
5.00E-02	1.19E-01	3.33E-02	
6.00E-02	7.35E-02	2.58E-02	
8.00E-02	4.09E-02	2.18E-02	
1.00E-01	3.12E-02	2.17E-02	
1.50E-01	2.68E-02	2.38E-02	
2.00E-01	2.71E-02	2.56E-02	
3.00E-01	2.84E-02	2.76E-02	
4.00E-01	2.90E-02	2.83E-02	
5.00E-01	2.92E-02	2.85E-02	
6.00E-01	2.90E-02	2.84E-02	
8.00E-01	2.83E-02	2.77E-02	
1.00E+00	2.74E-02	2.68E-02	
1.25E+00	2.61E-02	2.56E-02	
1.50E+00	2.50E-02	2.45E-02	
2.00E+00	2.31E-02	2.25E-02	
3.00E+00	2.04E-02	1.97E-02	
4.00E+00	1.88E-02	1.79E-02	
5.00E+00	1.78E-02	1.66E-02	
6.00E+00	1.71E-02	1.56E-02	
8.00E+00	1.62E-02	1.44E-02	
1.00E+01	1.57E-02	1.36E-02	
1.50E+01	1.52E-02	1.25E-02	
2.00E+01	1.50E-02	1.20E-02	

表 3.3 Al₂O₃:Cr 及び BeO の質量エネルギー吸収係数

第4章 密封中性子源に対する

TL の中性子線・y線弁別解析

4.1 緒言

我々は、BNCT における簡便な中性子線・γ線弁別測定デバイスの開発を目的として、 Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD を併用した TL の中性子線・γ線弁別解析法を考 案した。本章では、本解析法を用いた実測結果について報告する。まず、我々は簡易な中 性子場として、近畿大学原子炉に備える原子炉起動用 Pu-Be 密封中性子源を用いて照射及 び解析を行った。

4.2 方法

4.2.1 素子間個体差調查

TL 感度の素子間個体差を補正するため、 Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブ及び BeO TLD 全 素子にリニアック (Clinac-21EX、Varian) にて 6 MV X 線を 5 Gy 照射した。SCD は 100 cm とし、素子の上下に 10 cm 厚のタフウォーターファントムを設置して照射を行った。照射体 系を図 4.1 に示す。照射後、各 TL 素子のグロー曲線を測定した。昇温速度 0.13°C/s で室温 から 400°C まで加熱し、1 秒間隔で積算 TL 量を収集した。



図 4.1 リニアック照射体系

4.2.2 発光効率比導出

Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の発光効率比を求めるため、量子科学技術研 究開発機構 放射線医学総合研究所に備えるコバルト照射装置(図 4.2)にて、Al₂O₃:Cr セラ ミック TL スラブ及び BeO TLD に⁶⁰Co-γ線を空気カーマ 0.5 Gy 照射した。照射後、各 TL 素子のグロー曲線を測定した。昇温速度 0.13°C/s で室温から 400°C まで加熱し、1 秒間隔で 積算 TL 量を収集した。

このTL量を用いて、Al2O3:CrセラミックTLスラブの発光効率は次式で定義される。

$$\eta_{AbO3Cr} = TL_{AbO3Cr} / D_{AbO3Cr}$$
(4.1)

ここで、
$$\frac{D_{Al_{2}O_{3}Cr}(\gamma)}{D_{Air}(\gamma)} = \frac{(\mu_{en} / \rho)_{Al_{2}O_{3}Cr}}{(\mu_{en} / \rho)_{Air}}$$
の関係より

$$\eta_{AbO3Cr} = TL_{AbO3Cr}(\gamma) / \left[D_{Air}(\gamma) \times (\mu_{en} / \rho)_{AbO3Cr, Air} \right]$$
(4.2)

となり、式(4.2)から Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの発光効率が求められる。同様にして BeO TLD の発光効率を求め、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の発光効率比を導 出した。



図 4.2 コバルト照射装置

4.2.3 密封中性子源照射及び TL 測定

アニーリング処理を行った Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ及び BeO TLD を 3 個ずつ遮光 ビニールで被覆し、照射サンプルとした。Pu-Be 密封中性子源(1 Ci)を封入した線源保管 用中性子減速材の外壁にサンプルを設置し、7, 17, 24, 30 時間照射を行った。照射体系を図 4.3 に示す。照射後、各 TL 素子のグロー曲線を測定した。昇温速度 0.13°C/s で室温から 400°C まで加熱し、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブは 1 秒間隔、BeO TLD は 10 秒間隔で積算 TL 量を収集した。



図 4.3 密封中性子源照射体系

4.2.4 y線エネルギースペクトル測定

Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ及び BeO TLD の平均質量エネルギー吸収係数を決定する ため、サンプル位置における γ線エネルギースペクトルを測定した。測定には図 4.4 に示す LaBr3(Ce)シンチレーション検出器(LABR-1.5x1.5、CANBERRA)を使用した。検出器のエ ネルギー較正は⁶⁰Co 及び¹³⁷Cs 線源を用いて行った。



図 4.4 LaBr3(Ce)シンチレーション検出器

4.2.5 y線量及び熱中性子束測定

サンプル位置における γ 線量は BeO TLD を用いて測定した。TL 測定と同様の体系で、 BeO TLD に密封中性子源を 7, 17, 24, 30 時間照射した。照射後、図 4.5 に示す TLD 読取装置 (UD-512、Panasonic) にて線量当量を測定し、式(4.3)より空気カーマに換算した。空気カ ーマー線量当量換算係数は、4.2.4 項にて測定した γ 線エネルギー範囲における係数を表 4.1⁸⁾ から内挿して求め、スペクトルの計数値で加重平均した。

$$K_{\text{air}} = \frac{X}{\left[\frac{\sum\limits_{E \min}^{E \max} \{k_{S\nu, Gy}(E) \times C(E)\}}{\sum\limits_{E \min}^{E \max} C(E)}\right]}$$
(4.3)

Kair : 空気カーマ[mGy]

X : 線量当量[mSv]

- $k_{Sv,Gy}(E)$: γ 線エネルギーEにおける空気カーマー線量当量換算係数
 - C(E): γ線エネルギーEにおけるエネルギースペクトルの計数値



図 4.5 TLD 読取装置

Photon Energ	gy 換算係数
[MeV]	k_{Sv}, c_y
0.010	0.008
0.015	0.26
0.020	0.61
0.030	1.10
0.040	1.47
0.050	1.67
0.060	1.74
0.080	1.72
0.10	1.65
0.15	1.49
0.20	1.40
0.30	1.31
0.40	1.26
0.50	1.23
0.60	1.21
0.66	1.20
0.80	1.19
1.00	1.17
1.25	1.16
1.5	1.15
2.0	1.14
3.0	1.13
4.0	1.12
5.0	1.11
6.0	1.11
8.0	1.11
10	1.10

表 4.1 空気カーマー1 cm 線量当量換算係数⁸⁾

サンプル位置における熱中性子束は金の放射化法にて求めた。TL 測定と同様の体系で、 裸及びカドミウムフィルタで被覆した金箔に密封中性子源を照射して放射化させた。十分 に放射化させた後、放出されたβ線を図4.6に示す端窓型GM計数管(NDE11001、富士電 機)により測定し、式(4.4)から金箔の飽和放射能を算出した。GM計数管の検出効率はU₃O₈ 標準線源を用いて求めた。更に、式(4.5)より裸の金箔とカドミウムフィルタで被覆した金箔 の飽和放射能の差から、熱中性子束を算出した。

$$A_{\infty} = \frac{\lambda_{\rm lb} T_{\rm c} C_{\rm av} (1+\alpha)}{\varepsilon (1-e^{-\lambda_{\rm lb} T_{\rm i}}) e^{-\lambda_{\rm lb} T_{\rm w}} (1-e^{-\lambda_{\rm lb} T_{\rm c}})}$$
(4.4)

$$\phi_{\rm th} = \frac{A_{\infty,\,\rm bare} - A_{\infty,\,\rm Cd}}{N_{\rm Ia}\sigma_{\rm Ia}} \tag{4.5}$$

 A_∞: 飽和放射能[1/s]
 λ_b: 生成元素 Ib の崩壊定数[1/s]

 Ti: 照射時間[s]
 Cav: 平均計数率[1/s]

 Tc: 測定時間[s]
 E: 検出効率

 Tw: 照射終了から測定開始までの待ち時間[s]
 Cav: 内部転換係数 (=0.041)

 \$\phi_h: 熱中性子束[1/cm²/s]
 NIa: 放射化元素 Ia の原子数

 Ola: 放射化元素 Ia の熱中性子放射化断面積[cm²]



図 4.6 GM 計数管

4.3 結果

4.3.1 素子間個体差調查

測定した TL 量の内、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブは 200-400℃、BeO TLD は 100-200℃ を積算範囲として積算 TL 量を算出した。これを全体の平均値で除し規格化した。結果を図 4.7 及び図 4.8 に示す。Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブは最大 20%、BeO TLD は最大 37%の 個体差がみられた。この結果を用いて TL 感度の素子間個体差を補正した。



図 4.7 Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの素子間個体差



4.3.2 発光効率比導出

測定した TL 量の内、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブは 200-400°C、BeO TLD は 100-200°C を積算範囲として積算 TL 量を算出した。まず、式(4.2)より Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ の発光効率を求めた。

$$\eta_{AbO3Cr} = TL_{AbO3Cr}(\gamma) / \left[D_{Air}(\gamma) \times (\mu_{en} / \rho)_{AbO3Cr, Air} \right]$$

$$= (1.71 \times 10^{7}) / \left[0.5 \times \frac{2.62 \times 10^{-2}}{2.67 \times 10^{-2}} \right] = 3.48 \times 10^{7}$$
(4.6)

Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと空気の質量エネルギー吸収係数は、それぞれの 1.17 MeV 及び 1.33 MeV のγ線エネルギーに対応した質量エネルギー吸収係数の平均値とした。 同様にして、BeO TLD の発光効率は

$$\eta_{\text{BeO}} = \text{TL}_{\text{BeO}}(\gamma) / \left[D_{\text{Air}}(\gamma) \times (\mu_{\text{en}} / \rho)_{\text{BeO,Air}} \right]$$

$$= (1.01 \times 10^7) / \left[0.5 \times \frac{2.56 \times 10^{-2}}{2.67 \times 10^{-2}} \right] = 2.11 \times 10^7$$
(4.7)

以上より、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の発光効率比は

$$\eta_{AbO3Cr, BeO} = \frac{\eta_{AbO3Cr}}{\eta_{BeO}} = \frac{3.48 \times 10^7}{2.11 \times 10^7} = 1.65$$
 (4.8)

4.3.3 密封中性子源照射及び TL 測定

図 4.9 に、密封中性子源を 7, 17, 24, 30 時間照射した Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブのグ ロー曲線を示す。310°C にグローピークが観測された。同様に、図 4.10 に BeO TLD のグロ ー曲線を示す。160°C 及び 290°C 付近にグローピークが観測された。



図 4.9 密封中性子源照射に対する Al2O3:Cr セラミック TL スラブのグロー曲線



図 4.10 密封中性子源照射に対する BeO TLD のグロー曲線

更に、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブは 200-400°C、BeO TLD は 100-200°C を積算範囲と して積算 TL 量を算出した。照射時間に対する Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の積算 TL 量を図 4.11 に示す。3 個の素子の積算 TL 量の平均値でプロットした。また、そ の標準偏差をエラーバーとして示した。Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD ともに、 照射時間に対する TL に高い直線性がみられた。



図 4.11 Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ及び BeO TLD の照射時間に対する積算 TL 量

4.3.4 y線エネルギースペクトル測定

図 4.12 に、LaBr3(Ce)シンチレーション検出器により測定したエネルギースペクトルを示 す。但し、これはLaBr3(Ce)結晶内で生成した二次電子のスペクトルであるため、入射γ線 スペクトルを得るためにはスペクトルの復元処理(アンフォールディング)が必要となる。 本実験では、簡便のためこの測定結果をサンプル位置における入射γ線のエネルギースペク トルとした。



4.3.5 γ線量及び熱中性子束測定

表4.2 に、サンプル位置における線量当量及び式(4.3)から求めた空気カーマを示す。また、 表4.3 に式(4.4)、式(4.5)から求めた金箔の飽和放射能及びサンプル位置における熱中性子束 を示す。尚、金箔の測定に用いた GM 計数管の検出効率は、標準線源の測定結果より15.2% とした。

衣 4.2 Y 林里				
照射時間[Hour]	線量当量X [mSv]	空気カーマ Kair [mGy]		
7	1.72	1.31		
17	3.95	3.02		
24	5.35	4.09		
30	7.14	5.46		

表 4.2 γ線量

表 4.3	熱中性子束
11 4.5	100 I I I I I I I I I I I I I I I I I I

金箔	飽和放射能 A_{∞} [1/s]	熱中性子束 ¢_{th} [1/cm ² /s]
裸	13.9	
カドミウムフィルタ	3.77	
裸-カドミウムフィルタ	10.1	7.40×10^{2}

4.3.6 中性子線·y線弁別解析

3.2 項より、次式から Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブのγ線に対する TL 量を導出した。

$TL_{AbO3Cr}(\gamma) = TL_{BeO}(\gamma) \times (\mu_{en} / \rho) AbO3Cr, BeO \times \eta_{AbO3Cr, BeO}(\gamma)$

まず、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の質量エネルギー吸収係数比を求めた。 図 4.13 に照射場のγ線エネルギースペクトルと、そのエネルギー範囲における Al₂O₃:Cr セ ラミック TL スラブ及び BeO TLD の質量エネルギー吸収係数を示す。



図 4.13 y線エネルギースペクトルと質量エネルギー吸収係数

次式より、それぞれの質量エネルギー吸収係数をγ線エネルギースペクトルで加重平均して 平均質量エネルギー吸収係数を算出し、その比を求めた。

$$(\mu_{en} / \rho)_{AbO3Cr,BeO} = \frac{\left[\frac{\sum_{E \min}^{E \max} \{(\mu_{en} / \rho)_{AbO3Cr}(E) \times C(E)\}}{\sum_{E \min}^{E \max} C(E)}\right]}{\left[\frac{\sum_{E \min}^{E \max} \{(\mu_{en} / \rho)_{BeO}(E) \times C(E)\}}{\sum_{E \min}^{E \max} C(E)}\right]} = \frac{6.78 \times 10^{-2}}{3.31 \times 10^{-2}} = 2.05$$
(4.9)

また、式(4.8)より Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の γ線に対する発光効率比は 以下の値とした。

$$\eta_{AbO3Cr,BeO}(\gamma) = 1.65 \tag{4.10}$$

以上の結果を用いて、BeO TLD の TL 量に Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の 質量エネルギー吸収係数比及び γ 線に対する発光効率比を乗じ、 Al_2O_3 :Cr セラミック TL ス ラブの γ 線に対する TL 量を導出した。図 4.14 に、密封中性子源照射に対する Al_2O_3 :Cr セ ラミック TL スラブの積算 TL 量及び、導出した γ 線に対する積算 TL 量を示す。また、表 4.4 に Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブの各線質に対する積算 TL 量を示す。



図 4.14 中性子線·γ線弁別解析結果

照射時間[Hour]	TLAbO3Cr (n, γ)	TLAI2O3Cr(γ)	$TL_{Al2O3Cr}(n)$
7	3.49×10 ⁵	8.36×10^{4}	2.65×10 ⁵
17	7.45×10 ⁵	1.94×10 ⁵	5.52×10 ⁵
24	1.05×10^{6}	2.74×10 ⁵	7.75×10 ⁵
30	1.30×10 ⁶	3.37×10 ⁵	9.58×10 ⁵

表 4.4 中性子線·y線弁別解析結果

4.4 考察

図 4.9 及び図 4.10 において、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD ともにグローピ ーク以降で再びカウントが増加しているが、これはヒータの熱輻射の光を原因とするバッ クグラウンド値を十分に減算できていないためである。SN 比が小さく、その影響が顕著に みられたものと考えられる。

図 4.14 及び表 4.4 より、 Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の TL 量差を利用した TL の中性子線・ γ 線弁別解析の結果、 Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブが中性子に感度を有す ることが明らかになった。本実験において、 Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブの中性子線に対 する TL は全体の 74%、 γ 線に対する TL は 26%の割合であった。

 $Al_2O_3:Cr セラミック TL スラブの示した中性子感度の要因を検討するため、表 4.5 にスラ$ ブ構成元素の熱中性子捕獲断面積を示す⁹⁾。Cr の捕獲断面積は、同位体 ⁵⁰Cr、⁵²Cr、⁵³Cr、⁵⁴Cr の各熱中性子捕獲断面積を、その天然存在比で加重平均して算出した。表 4.5 より、 $<math>Al_2O_3:Cr セラミック TL スラブの中性子感度の要因として、アルミニウムの熱中性子捕獲反$ 応が考えられる。図 4.15 に、アルミニウムの中性子捕獲反応及びそれに関わって発生する放射線について示す。まず、²⁷Al の中性子捕獲の過程で 7.72 MeV の即発 γ線が放出される。更に、生成した ²⁸Al は半減期 2.24 分で β⁻崩壊し、安定な ²⁸Si となる。その際に平均エネル $ギー1.25 MeV の β線及び 1.78 MeV の γ線が放出される。今回使用した <math>Al_2O_3:Cr$ セラミック TL スラブの厚さとこれらの放射線のエネルギーを考慮すると、中性子感度の要因には ²⁸Al からの β線の寄与が大きかったことが推測される。

構成元素	質量比[%]	熱中性子捕獲断面積
Al	52.90	230.3 mb
0	47.07	189.9 μb
Cr	0.03	3.144 b

表 4.5 Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ構成元素の熱中性子捕獲断面積⁹⁾



図 4.15 アルミニウムの中性子捕獲反応

ここまで、簡易な中性子場として Pu-Be 密封中性子源を用いた実測を行い、Al₂O₃:Cr セラ ミック TL スラブが中性子に感度を有することを明らかにした。しかし、本実験では照射場 のγ線量や熱中性子束が小さく、十分な精度で解析が行えていない。そのため、より高線量 の照射場における本弁別解析法の検討が求められる。また、本解析法は Al₂O₃:Cr セラミッ ク TL スラブ及び BeO TLD の平均質量エネルギー吸収係数を決定するため、照射場のγ線 エネルギースペクトルを得る必要がある。本実験では、測定したエネルギースペクトルに アンフォールディングを行っていないため、その影響についても今後の検討が求められる。

第5章 加速器中性子源に対する

TL の中性子線・y線弁別解析

5.1 緒言

我々は、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD を併用した TL の中性子線・γ線弁別 解析法を考案し、Pu-Be 密封中性子源を用いた実測を行った。しかし、照射場のγ線量や熱 中性子束が小さく、結果に十分な精度が得られなかった。我々はより高線量の照射場にお ける本解析法の検討を行うため、量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所に備え る中性子発生用加速器システム NASBEE (Neutron exposure Accelerator System for Biological Effect Experiments)を用いて照射及び解析を行った。本章ではその結果を報告する。

5.2 方法

5.2.1 加速器中性子源照射及び TL 測定

アニーリング処理を行った Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ及び BeO TLD を 3 個ずつ遮光 ビニールで被覆し、照射サンプルとした。加速器中性子源(NASBEE)からの中性子線を減 速し熱中性子束を増大させるため、直径 25.4 cm のポリエチレン製ボナーボール中心部にサ ンプルを設置して照射を行った。照射ローサンプル距離は 20 cm とした。サンプル位置にお いて電離箱で測定した空気吸収線量が 0.5, 0.75, 1.0, 1.5, 2.0 Gy となる時間を求め、照射時間 は 7.5, 11.25, 15, 22.5, 30 分とした。その他の照射条件を以下に示す。

- 加速ビーム核種:¹H
- ビームエネルギー:4 MeV
- 中性子発生ターゲット:Be

照射体系を図 5.1 及び図 5.2 に示す。照射後、各 TL 素子のグロー曲線を測定した。昇温速度 0.13℃/s で室温から 400℃ まで加熱し、1 秒間隔で積算 TL 量を収集した。TL 感度の素子 間個体差は、4.3.1 項にて示した結果から補正を行った。



図 5.1 加速器中性子源照射体系(1)



5.2.2 y線エネルギースペクトル計算

サンプル位置における γ 線エネルギースペクトルは、モンテカルロ計算コード PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) ver. 2.82 を用いて計算した。Ge(Li)半導体検 出器で測定した空気中の γ 線エネルギースペクトル(図 5.3)を線源として、ボナーボール 中心部における γ 線エネルギースペクトルを計算した。計算ヒストリー数は 1.0×10⁸ とした。



図 5.3 空気中の実測γ線エネルギースペクトル

5.2.3 熱中性子束測定

サンプル位置における熱中性子束は金の放射化法にて求めた。TL 測定と同様の体系で、 裸及びカドミウムフィルタで被覆した金箔に加速器中性子源を用いて照射を行った。十分 に放射化させた後、放出されたγ線を図 5.4 に示すウェル型 Nal(Tl)測定装置(Model 7J7、 CANBERRA)により測定し、式(4.4)から金箔の飽和放射能を算出した。測定装置の検出効 率は²²Na、⁶⁰Co、¹³⁷Cs、²⁴¹Amの較正用γ線源を用いて求めた。更に、式(4.5)より裸の金箔 とカドミウムフィルタで被覆した金箔の飽和放射能の差から、熱中性子束を算出した。



図 5.4 ウェル型 Nal(Tl)測定装置

5.3 結果

5.3.1 加速器中性子源照射及びTL 測定

図 5.5 に、加速器中性子源にて空気吸収線量 0.5, 0.75, 1.0, 1.5, 2.0 Gy 照射した Al₂O₃:Cr セ ラミック TL スラブのグロー曲線を示す。310℃ にグローピークが観測された。同様に、図 5.6 に BeO TLD のグロー曲線を示す。図 4.10 に示した密封中性子源照射に対するグロー曲 線と形状が異なり、160℃ のグローピークが顕著にみられた。



図 5.5 加速器中性子源照射に対する Al2O3:Cr セラミック TL スラブのグロー曲線



図 5.6 加速器中性子源照射に対する BeO TLD のグロー曲線

Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブは 200-400°C、BeO TLD は 100-200°C を積算範囲として積 算 TL 量を算出した。照射時間に対する Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の積算 TL 量を図 5.7 に示す。3 個の素子の積算 TL 量の平均値でプロットし、その標準偏差をエラ ーバーとして示した。Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD ともに、照射時間に対す る TL に高い直線性がみられた。



図 5.7 Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ及び BeO TLD の照射時間に対する積算 TL 量

5.3.2 y線エネルギースペクトル計算

図 5.8 に、PHITS により計算したサンプル位置における γ線のエネルギースペクトルを示 す。



図 5.8 γ線エネルギースペクトル計算結果

5.3.3 熱中性子束測定

表 5.1 に、式(4.4)、式(4.5)から求めた金箔の飽和放射能及びサンプル位置における熱中性 子束を示す。尚、金箔の測定に用いたウェル型 Nal 測定装置の検出効率は、各較正用γ線源 の測定結果より¹⁹⁸Au-γ線のエネルギー411.8 keV に相当する検出効率を内挿して求め、 30.8%とした。

表 5.1 熱中性子束

金箔	飽和放射能 A _∞ [1/s]	熱中性子束 ø_{th} [1/cm ² /s]			
裸	7.71×10 ⁵				
カドミウムフィルタ	6.10×10 ⁴				
裸ーカドミウムフィルタ	7.10×10 ⁵	5.50×10 ⁷			

5.3.4 中性子線·y線弁別解析

4.3.6 項と同様に、次式から Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブのγ線に対する TL 量を導出した。

TLAbO3Cr(
$$\gamma$$
) = TLBeO(γ) × (μ en / ρ)AbO3Cr,BeO × η AbO3Cr,BeO(γ)

図 5.9 にサンプル位置における γ線エネルギースペクトルと、そのエネルギー範囲における Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブ及び BeO TLD の質量エネルギー吸収係数を示す。



図 5.9 γ線エネルギースペクトルと質量エネルギー吸収係数

次式より、それぞれの質量エネルギー吸収係数をγ線エネルギースペクトルで加重平均して 平均質量エネルギー吸収係数を算出し、その比を求めた。

$$(\mu_{en} / \rho)_{AbO3Cr, BeO} = \frac{\left[\frac{\sum_{E\min}^{E\max} \{(\mu_{en} / \rho)_{AbO3Cr}(E) \times Flux(E)\}}{\sum_{E\min}^{E\max} Flux(E)}\right]}{\left[\frac{\sum_{E\min}^{E\max} \{(\mu_{en} / \rho)_{BeO}(E) \times Flux(E)\}}{\sum_{E\min}^{E\max} Flux(E)}\right]} = \frac{3.59 \times 10^{-2}}{2.70 \times 10^{-2}} = 1.33 \quad (5.1)$$

また、式(4.8)より Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブと BeO TLD のγ線に対する発光効率比は 以下の値とした。

$\eta_{AbO3Cr, BeO}(\gamma) = 1.65$

以上の結果を用いて、BeO TLD の TL 量に Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブと BeO TLD の 質量エネルギー吸収係数比及び γ 線に対する発光効率比を乗じ、 Al_2O_3 :Cr セラミック TL ス ラブの γ 線に対する TL 量を導出した。図 5.10 に、加速器中性子源照射に対する Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブの積算 TL 量及び、導出した γ 線に対する積算 TL 量を示す。また、 表 5.2 に Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブの各線質に対する積算 TL 量を示す。



図 5.10 中性子線·γ線弁別解析結果

照射時間[min]	TLALO3Cr (n, γ)	TLA1203Cr(Y)	$TL_{Al2O3Cr}(n)$		
7.5	6.21×10^{6}	4.53×10 ⁶	1.67×10 ⁶		
11.25	9.72×10^{6}	6.52×10^{6}	3.20×10^{6}		
15	1.23×10^{7}	8.72×10^{6}	3.58×10 ⁶		
22.5	1.84×10^{7}	1.32×10^{7}	5.28×10^{6}		
30	2.36×10 ⁷	1.74×10^{7}	6.22×10 ⁶		

	表 5.2	中性子線·	γ 線弁別解析結	果
--	-------	-------	----------	---

5.4 考察

図 5.6 の加速器中性子源照射に対する BeO TLD のグロー曲線について、図 4.10 で示した 密封中性子源照射に対する同素子のグロー曲線と異なる形状がみられた。160°C のグローピ ークが顕著にみられ線量直線性を示したのに対して、290°C 付近のグローピークは小さく、 線量依存性もみられなかった。これは、BeO 中の 290°C のグローピークを成すエネルギー 準位の捕獲中心が、飽和状態に近づいたためと考えられる。捕獲電子数の増加に伴って 290°C のグローピークを形成する捕獲中心の電子捕獲効率が低下し、その後は 160°C のグロ ーピークを形成する捕獲中心による電子捕獲が支配的になることが示唆された(図 5.11)。

表 5.1 より、本実験のサンプル位置における熱中性子束は 5.5×10^7 1/cm²/s であった。これ は実際の BNCT 照射場における中性子束の大きさに近く、本研究の利用目的として十分な 条件下で実験が行えたといえる。図 5.10 及び表 5.2 より、加速器中性子源に対する TL の中 性子線・ γ 線弁別解析の結果、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの中性子線に対する TL は全 体の 29%、 γ 線に対する TL は 71%の割合であった。



価電子帯

図 5.11 BeO TLD の電子捕獲の変化

ここで、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの中性子線に対する TL を全て ²⁸Al からのβ線に 起因するものと仮定し、照射場の熱中性子束の試算を行う。

質量 M [kg]、体積 V [cm³]の Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブに熱中性子束 ϕ_{th} [1/cm²/s]を T [s]時間照射したとき、熱中性子捕獲反応を起こす中性子数 N は

$$N = \Sigma \phi_{\rm th} T V \tag{5.2}$$

 Σ [1/cm]は Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの巨視的熱中性子捕獲断面積で、微視的熱中性子 捕獲断面積 σ [cm²]にスラブ中の²⁷Al (質量比 ω [%]、原子量A)の原子数密度を乗じた値 である。

$$\Sigma = \sigma \times \frac{\frac{1000 M \times \frac{\omega}{100}}{A} \times (6.02 \times 10^{23})}{V}$$
(5.3)

 $Al_2O_3:Cr セラミック TL スラブの熱中性子捕獲反応により β 線が放出されたとき、その数$ は反応を起こした中性子数 <math>N に等しい。エネルギー E[J]の β 線が全て $Al_2O_3:Cr$ セラミッ ク TL スラブに吸収されたと仮定すると、スラブの吸収線量 D(n) [Gy]は

$$D(\mathbf{n}) = \frac{E \times N}{M} \tag{5.4}$$

TL(n) =
$$\eta D(\mathbf{n})$$
の関係より TL(n) = $\eta \frac{E \times N}{M}$ (5.5)

式(5.2)より
$$TL(\mathbf{n}) = \eta \frac{E \times \Sigma \phi_{\text{th}} TV}{M}$$
(5.6)

変形して
$$\phi_{th} = \frac{TL(n)M}{\eta E \Sigma T V}$$
 (5.7)

となり、式(5.7)から熱中性子束が求められる。各値を代入すると

$$\phi_{\rm th} = \frac{(6.22 \times 10^6) \times (5.37 \times 10^{-4})}{(3.48 \times 10^7) \times (2.00 \times 10^{-13}) \times (1.01 \times 10^{-2}) \times (1.80 \times 10^3) \times (1.45 \times 10^{-1})}$$
(5.8)

$$= 1.83 \times 10^8 \, [1/cm^2/s]$$

以上より照射場の熱中性子束の試算を行ったが、結果は金の放射化法により求めた値の 3.3 倍となった。この差の原因を検討するため、図 5.12 に²⁷AI の中性子エネルギーに対する 反応断面積を示す⁹⁾。中性子捕獲反応は中性子エネルギーが小さいほど起こり易くなるが、 ²⁷AI は約 6 keV の中性子エネルギーに顕著な中性子捕獲断面積の共鳴ピークがあり、このエ ネルギーの中性子に対しても捕獲反応を起こし易い。更に、数十~数百 keV の領域にも複 数の共鳴ピークがみられる。金の放射化法によって求めた熱中性子束はカドミウム差引法 により共鳴ピークの影響が除かれているため、その違いが過大評価の原因となったと考え られる。また、図 5.13 に速中性子領域における²⁷AI の反応断面積を示す⁹⁾。照射した中性 子線に数 MeV の速中性子が含まれていた場合、²⁷AI(n, p)²⁷Mg や²⁷AI(n, α)²⁴Na 反応により各 種粒子線が発生するため、それらの TL への寄与も原因として考えられる。

本研究では、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの中性子線及びγ線に対する TL の弁別解析 法を示した。更に、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの中性子線に対する TL 量から中性子束 を算出することのできる可能性を示した。今後、この算出精度の向上に向けて Al₂O₃:Cr セ ラミック TL スラブの示した中性子感度の要因の解明を進める。



図 5.12²⁷AIの中性子エネルギーに対する反応断面積(1)⁹⁾



図 5.13 ²⁷Al の中性子エネルギーに対する反応断面積(2)⁹⁾

第6章 結語

高度化の進む昨今の放射線治療の中でも、BNCT は細胞単位の革新的な放射線治療法とし て多大な期待が寄せられている。しかし、安定した中性子源の開発や、より高い腫瘍集積 性を有するホウ素薬剤の開発、適応症例の拡大など、医療としての BNCT の普及に向けて 残された課題は多い。放射線計測の分野においても、中性子線とγ線を簡便且つ高精度に弁 別可能な、低コストの放射線測定デバイスの開発が求められている。

そのような背景の中で、本研究では優れた TL 特性と幅広い利用可能性を有する Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブに着目し、 Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブと BeO TLD を併用した TL の中性子線・ γ 線弁別解析法について検討を行った。中性子感度が非常に小さく BNCT にお いて積算 γ 線線量計として用いられている BeO TLD を併用することにより、BNCT におけ る中性子束及び γ 線量測定を同時に行うことが期待できる。

本論文では、この中性子線・γ線弁別解析の手法を報告するとともに、密封中性子源及び 加速器中性子源を用いた実測結果について記した。その結果、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラ ブが中性子に感度を有することを明らかにした。また、Al₂O₃:Cr セラミック TL スラブの示 した中性子感度の要因を解明することで、TL 量から中性子束を算出することのできる可能 性についても示した。

しかしながら、本論文ではこの Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブと BeO TLD を併用した TL の中性子線・ γ 線弁別解析法の確かさについて、十分な検討を行えていない。今後、中性子線・ γ 線の弁別照射やモンテカルロ計算の結果との比較から、本解析法の有用性を明らかにする必要がある。また、前述したように Al_2O_3 :Cr セラミック TL スラブの中性子感度の要因を解明することも大きな課題であるといえる。本研究が今後の BNCT の発展と普及の一助となることを期し、更なる検討を進めていきたい。

50

参考文献

- 1) 厚生労働省:平成27年人口動態統計月報年計の概況
- K. Shinsho, Y. Kawaji, S. Yanagisawa *et al.*: X-ray imaging using the thermoluminescent properties of commercial Al₂O₃ ceramic plates, Applied Radiation and Isotopes, 111: 117-123, 2016
- 3) J. T. Randall, M. H. F. Wilkins : Phosphorescence and Electron Traps. I. The Study of Trap Distributions, Proceedings of the Royal Society A, 184 : 365-389, 1945
- S. Hisanaga, T. Yamashita, I. Kitamura *et al.* : Investigation on thermal-neutron sensitivity of commercial BeO(Na) thermoluminescence dosimeter and development of thermal-neutron insensitive BeO(Na) phosphors encapsulated in quartz-capillary, RADIOISOTOPES, 39 : 381-385, 1990
- 5) Y. Sakurai, T. Kobayashi: Characteristics of the KUR Heavy Water Neutron Irradiation Facility as a neutron irradiation field with variable energy spectra, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 453 : 569-596, 2000
- 6) K. Shinsho, Y. Suzuki, Y. Yamamoto *et al.* : The thermoluminescence activation energy and frequency factor of the main glow of CaSO₄:Tm phosphor determined by heating rate method including very slow rates of heating, Journal of Applied Physics, 97 : 123523, 2005
- 7) J. H. Hubbell, S. M. Seltzer : Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients 1 keV to 20 MeV for Elements Z = 1 to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest, National Institute of Standards and Technology Interagency Report, 5632, 1995
- 8) 日本工業標準調査会: JIS Z 4511 付表 1 1 cm 線量当量換算係数, 2005
- 9) K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa *et al.* : JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering, Journal of Nuclear Science and Technology, 48 : 1-30, 2011

謝辞

本稿を終えるにあたり、長い間数々の御指導、ご鞭撻を賜りました首都大学東京大学院 人間健康科学研究科 放射線科学域 眞正浄光准教授に深く感謝致します。共同研究におい ては、量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所 古場裕介先生ならびに福田茂一 先生、近畿大学原子力研究所 若林源一郎准教授、九州大学 医学研究院 保健学部門 納富昭 弘准教授に多大なお力添えを賜り、大変お世話になりました。心より感謝申し上げます。 京都大学原子炉実験所 田中浩基先生には BeO TLD をお貸し頂き、また研究について貴重 なご助言を頂きましたことに厚く御礼申し上げます。最後に、本研究を行うにあたって、 セラミック板を提供して頂きました株式会社千代田テクノルならびに千葉セラミック工業 株式会社に感謝申し上げます。