

(2) シンチレータの自己放射化を用いた高感度中性子検出方法の研究

九州大学大学院医学研究院保健学部門 納富昭弘
九州大学大学院医学系学府保健学専攻 花田侑美佳、神崎祐依、坂本直哉
近畿大学原子力研究所 若林源一郎

1. はじめに

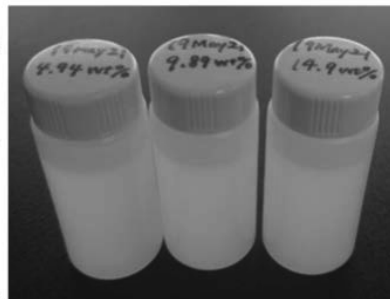
我々は昨年度から、将来的にホウ素中性子捕捉療法(BNCT)場への適用を目指し、液体シンチレータやプラスチックシンチレータ等の有機シンチレータにヨードベンゼンを添加して、中性子場で自己放射化検出器として使用する可能性について検討を行っている。この方法は、NaIやCsI等のヨウ素を結晶内に含有する無機シンチレータに中性子が入射することによりシンチレータ自身が放射化して生じる内部放射能を測定することに基づく検出方法¹⁾に比べて低感度であるが、BNCTへの適用を考えると、過剰な照射に対しては計数系への負荷が低減できる利点がある²⁾。また、NaIやCsIと異なり、副生成物として半減期25分のI-128の他に、やや長い半減期のCs-134m(半減期174分)やNa-24(半減期15時間)が生成されることが避けられることが期待される。今年度は、液体シンチレータへのヨードベンゼンの添加量を変化させて、中性子検出器としての応答特性を調べた。また、新規無機シンチレータであるCaI₂についても原子炉で照射を行い、応答をテストした。

2. 方法

液体シンチレータカクテル(Insta-Gel Plus:主成分プソイドクメン)に異なる濃度のヨードベンゼンを5wt%、10wt%、15wt%添加して溶解させたものを20mlのポリエチレンバイアルに封入して照射試料とした(表1)。また、東北大の黒澤等により試作されたCaI₂結晶片を樹脂でパッケージしたものを照射試料とした(図1)。CaI₂シンチレータは潮解性を示すが、表2に示す様にNaIに比べて2倍以上の光収率があることが特徴である。Caの放射化による副生成物が少ないことも期待される。これらの試料を近大炉(UTR-KINKI)の照射孔にて2時間の照射を行った。熱中性子フルエンス率は約 10^7 (n/cm²/s)であった。照射終了後、光電子増倍管を用いてシンチレーション光を読み出して、MCAでβ線の波高分布の経時変化を記録した。各照射試料の読み出し面以外の面には、反射材としてテフロンテープをはりつけた。

表1 作成した液体シンチレータ

プソイドクメン (g)	ヨードベンゼン (g)	濃度 (wt%)
17.2	0.893	4.94
16.2	1.78	9.89
16.0	2.79	14.9



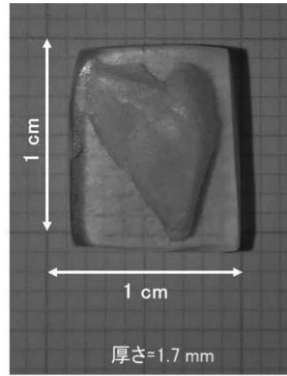


図1: 樹脂でバックングされたCaI₂結晶

表2 CaI₂結晶の性能

	CaI ₂	NaI(Tl)
光収率 (photon/MeV)	106000	45000
エネルギー分解能 @662 keV(%)	3.2	5.6
減衰時間 @662 keV(ns)	834	230
発光波長(nm)	410	415

3. 結果・考察

図2に示すように、ヨウ素添加液体シンチレータをポリエチレンバイアルに封入して原子炉中性子で照射した場合、壊変曲線ではI-128の半減期25分の成分が支配的であった。しかし微量ではあるが、半減期が約900分(15時間)の成分が見られた。これは不純物としてNaが混入しNa-24が生成された可能性が高いと考えられる。I-128の初期計数率は、表3に示す様にヨードベンゼンの添加量が増える程、かえって減少する傾向が見られた。これは、クエンチングの影響で波高が低エネルギー側にシフトし、数え落としが増加したことが原因である。

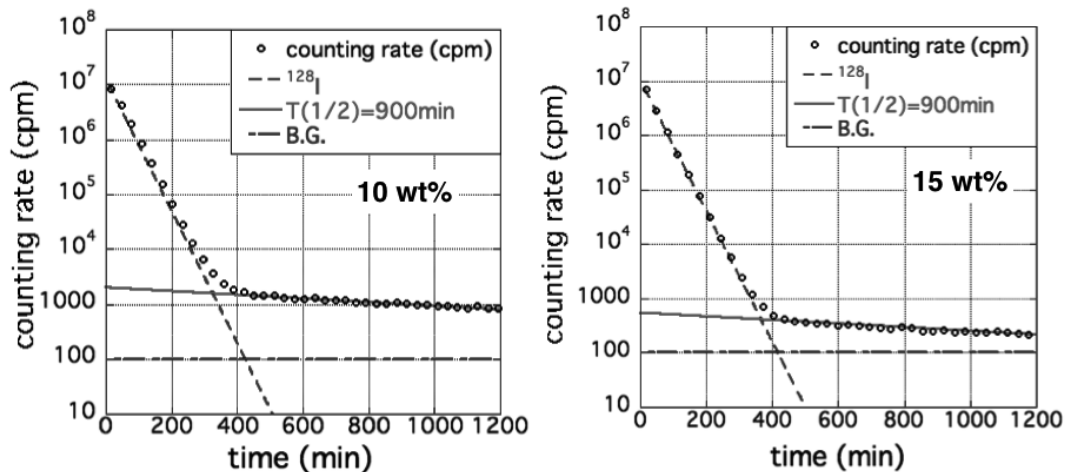


図2 ヨウ素添加液体シンチレータで得られた壊変曲線

表3 ¹²⁸Iの初期計数率

ヨードベンゼン添加濃度	初期計数率 (cpm)
5 wt%	1.65×10^7
10 wt%	1.30×10^7
15 wt%	1.05×10^7

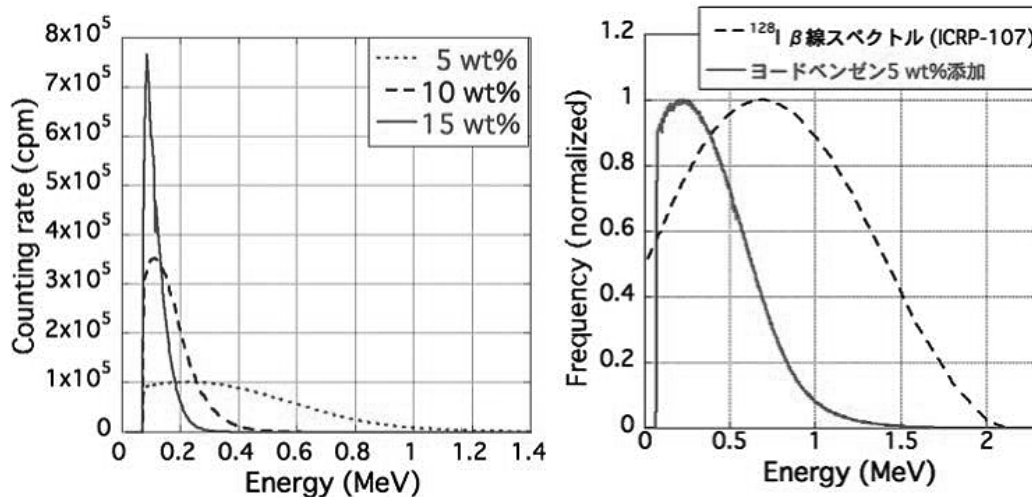


図 3 異なるヨードベンゼン濃度に対する I-128 β 線エネルギースペクトル

実際、ヨードベンゼンはシンチレーション光に対する強力なクエンチャーであるため、図 3 に示す様に添加濃度の増加とともに著しい波高の低下が観測された。最も低濃度の 5wt% に対しても、波高分布は明らかに低波高側にシフトしていた。今後、ヨードベンゼンの添加量を減少させて感度を調整することにより、BNCT 場のような高強度の中性子場での自己放射化法に適した安価なシンチレータとなる可能性があることが示された。例えば、ヨードベンゼンの添加濃度を 1% 程度かそれよりも低い値とすれば、ほとんどクエンチングの影響が無視できるレベルとなることが期待される。一方で、微量のヨウ素の添加に対しても、高強度の BNCT 場(熱中性子束 $\sim 10^9$ [n/cm²/s])においては、短時間で測定に実用的な量の I-128 が生成するものと予想される。

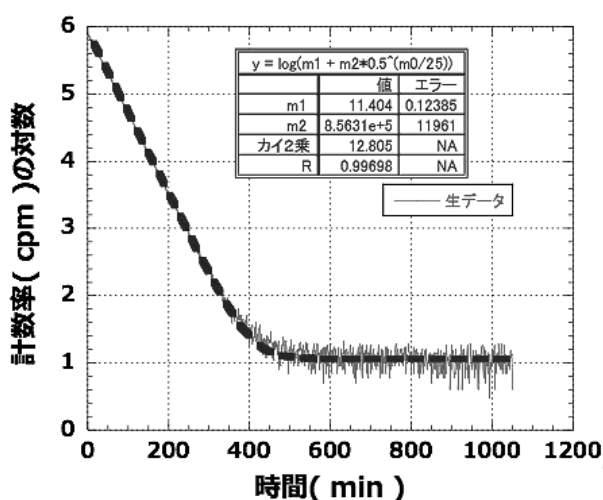


図 4 CaI_2 の β 線の壊変曲線

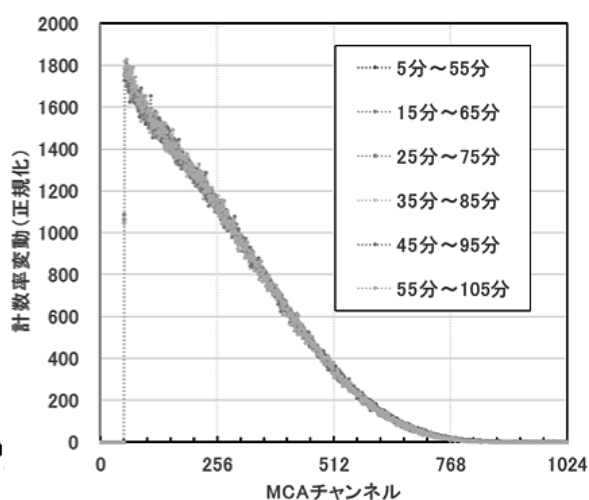


図 5 CaI_2 の I-128 β 線エネルギースペクトル

一方、CaI₂の壊変曲線には、I-128の半減期25分の成分のみが観測された(図4)。また、Caの放射化によるそれ以外の放射能の生成はほぼ無視できるレベルであることが、PHITSによるシミュレーション計算により確認された。これは、自己放射化法に利用する無機シンチレータとしては、従来のNaIやCsIに比べて有利な特性である。今回は、試作された結晶片が小型であったため、I-128から放出されるβ線の大部分が結晶の外側に飛び出す効果[β-escape effect]³⁾により、波高分布が著しく低波高側にシフトしている(図5)。将来的に大型の結晶の製作が可能になれば、良好なエネルギースペクトルを示すものと考えられる。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、近畿大学原子力研究所の皆様にはたいへんお世話になりました。この場を借りてお礼を申し上げます。また、CaI₂結晶の試作には、東北大学・黒澤俊介博士に御協力を頂きました。ありがとうございました。更に、データ処理に協力頂いた本研究室の卒業研究生 長野永実さん、前田英哉さんに感謝いたします。なお、本研究の一部は、JSPS 科研費 JP19K08202 の助成を受けたものです。

参考文献

- 1) G. Wakabayashi, A. Nohtomi et al., Radiological Physics and Technology **8** (2015) pp.125-134.
- 2) R. Kurihara, A. Nohtomi et al., Journal of Nuclear Science and Technology **56** (2019) pp.70-77
- 3) S. Honda, A. Nohtomi et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **A871** (2017) pp.148-153

業績一覧

[研究発表]

- ・ 花田侑美佳 他, 「Fundamental study of the neutron ambient dose-equivalent measurement using two CsI self-activation sensors」 第117回医学物理学学会学術大会 (パシフィコ横浜、2019年4月11日~14日) [President's Award Gold 受賞]
- ・ Y. Hanada, A. Nohtomi, T. Ueki, R. Kurihara "A fundamental study of a development of neutron dosimeter using double self-activated CsI scintillator for neutron doses around clinical Linacs" 2019 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (Manchester、2019年10月26日~11月3日)

- ・ 納富昭弘 他, 「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」 第34回研究会「放射線検出器とその応用」 (つくば市KEK、2020年1月15日～17日)

[原著論文]

- ・ T. Ueki, A. Nohtomi, G. Wakabayashi, J. Fukunaga, T. Kato, S. Ohga “A design study of application of the CsI self-activation method to the neutron rem-counter technique” Radiation Measurements **128** (2019) 106181

実験・測定補助者リスト

花田侑美佳	九州大学大学院医学系学府医用量子線科学分野	修士2年
神崎祐依	九州大学大学院医学系学府医用量子線科学分野	修士1年
坂本直哉	九州大学大学院医学系学府医用量子線科学分野	研究生

(計3名)