

(1) 医療用リニアックの中性子場を模擬した水晶体サイズでの 中性子束密度及び線量評価

徳島大学大学院医歯薬学研究部 松本（川口） 絵里佳, 阪間 稔, 濱邊 大, 神谷 慶和, 横田健斗
核融合科学研究所 佐瀬 卓也
徳島大学放射線総合センター 桑原 義典
近畿大学原子力研究所 若林 源一郎, 稲垣 昌代

1 緒言

本研究では、2011年4月、ICRPが発表した確定的影響における組織反応の声明で、計画被ばく状況下にある職業被ばくのうち、眼の水晶体の等価線量に対して、「5年間の平均が20 mSv/yを越えず、いかなる1年間においても50 mSvを越えないようにすべきである。」⁽¹⁾ことが提示された。この根拠は、最近の疫学調査等の結果を踏まえ、これまで考えられてきた白内障のしきい線量、8 Gyがより低い、0.5 Gyであることによるものである。このことは、ICRP Publication 118⁽¹⁾に詳細に述べられている。これには、疫学的知見の不確定性があり、ここで示されているしきい線量に対して慢性被ばく（医療用リニアックでの分割照射と関連する分割・蔓延被ばくに相当）と急性被ばくを同じような仮定で評価しているなど、多くの問題点を抱えている。また、ICRUが定義する「実用量」では、水晶体（3 mm）の深さにおける吸収線量に線質係数Q(L)を乗ずることにより算出しているが、特に中性子の場合、白内障へのこの値をそのまま用いて良いかなどといった問題がある。

そこで、本研究では近畿大学原子力研究所の原子炉中性子場を活用し、水晶体レベルのスマールスケールファントムを模擬することにした。それには微小サイズ金箔を眼球に見立てた小さな空間の水中に含浸させた簡易ファントムを作製し、これまでと同様の箔放射化法により中性子照射実験を行った。放射化した金箔の高確度な測定に際しては、照射終了時より一定の冷却時間から時間的なロスを伴わない移動距離と、QA/QCが確実に整備されている高純度ゲルマニウム半導体検出器による測定機器環境が整っていることが、共同利用ユーザーにとっては非常に大きな研究支援となる。当該報告年度では、この優れた測定環境が近畿大学原子力研究所に整備されたので、本実験に対応する至適条件を求めたので、その結果について解説する。

2 実験

2.1 使用機器

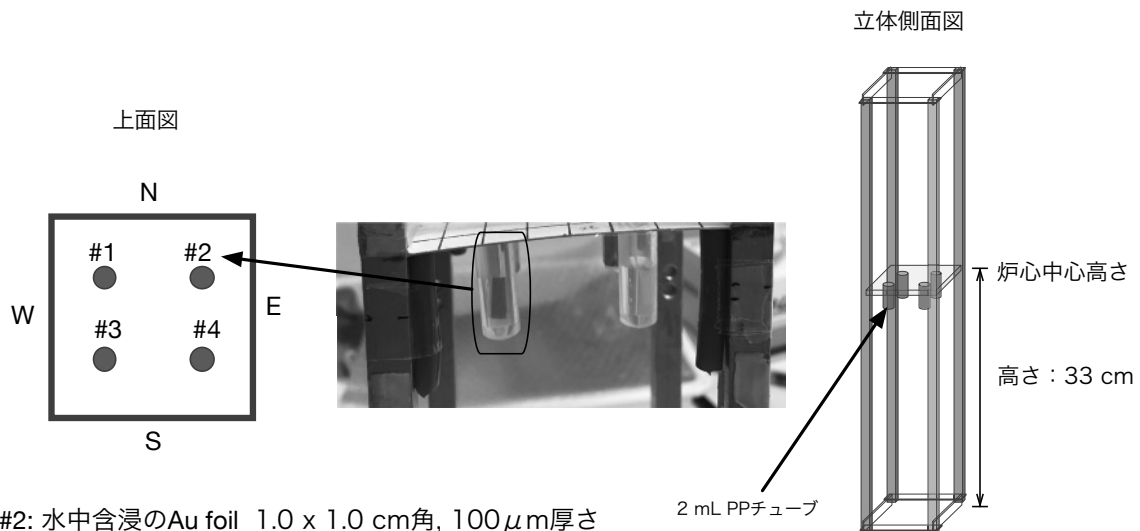
- 2 mL容量のPPマイクロチューブ（Axygen社製、可能な限り円柱形状にちかいもの）
- 金箔 1×1 cm² 正方形角、100 μm厚さ（ニラコ製、AU-173328、純度99.5%）
- 超純水（メルクミリポア製Direct-Q UV 8から供給、18.2 MΩ·cm以上）
- 新しい高純度ゲルマニウム半導体（HPGe）検出器（近畿大学原子力研究所）：（2018年度導入、ミリオンキャンベラ社製同軸型GC-2018、相対効率20% Ge結晶サイズが直径62.0 mm、長さ31.5 mm、検出面材質1.5 mm厚さのアルミニウム）
- HPGe検出器の高電圧制御・データ取得・解析の全てを統括したエミュレーションガンマ線スペクトロメトリソフトウェアPrime Spectrum User Interface ver.2.1.3.0（アドヒューテック

社製)

- マルチチャンネルアナライザー GBS Elektronik 社製 MCA527 4k チャンネルでデータ取得 (16k ch まで可能), 3600V までの高電圧印加が可能である。

2.2 原子炉照射の状況

図 1 は, 原子炉照射時における水晶体レベルのsmallスケールファントムを模擬した水中含浸の金箔をアルミアングルステイ (炉心照射用支持台) に配置したときの模式図及び写真を表している。



#2: 水中含浸のAu foil 1.0 x 1.0 cm角, 100 μ m厚さ

図 1 水晶体レベルのsmallスケールファントムを模擬した水中含浸の金箔を, 炉心中心部へ装填するときの炉心照射用アルミニウム支持台への設置状況

2019年6月7日 AM 10:46 に, 臨界到達に向けた Pu-Be 中性子源の挿入が開始され, AM 11:08 に臨界条件の 1 W 運転に到達した。その直後に手持ちのタイマーをスタートさせ, 時計を記録した。同日 PM 5:00 に臨界ストップ (照射終了) 後, タイマーをストップし合計 5 時間 51 分間の照射時間を確認した。この間, 炉心脇に設置した空間線量率測定装置の Radi PA-1100 (Bluetooth 通信機能付き) によるデータ取得から, 原子炉運転時の全時間帯において, 空間線量率推移変動は常時平均 0.60 (μ Sv/h) 前後の一定値を示していた。照射終了後, 直ちに炉心から照射用アルミニウム支持台を取り出して, 2 mL マイクロ PP チューブ内の水中に含浸させている金箔をピンセットで取り出し, 梱包用ビニール小袋へシール封入してから, 本実験用に至適条件を構築した新しい高純度ゲルマニウム半導体検出器にて, ガンマ線スペクトロメトリーを行った。

2.3 新しい高純度ゲルマニウム半導体検出器の性能評価と解析ソフトウェア Prime Spectrum User Interface

2018 年度に導入された近畿大学原子力研究所における最新の HPGe 検出器システムを, 図 2 と図 3 に示す。図 2 は, クライオスタット冷却部のデュワー部を含めた全体像であり, 垂直型デュワータイプの構造となっている。この図より, プリアンプとデュワー容器との間のメッシュ孔の通気小口が見える装置が確認できる。これは, 電気冷却と液体窒素冷却併用式であり, ミリオンテク

ノロジーズ社の Cryo-Cycle II (クライオサイクル) と呼ばれているもので、デュワー内の気化した液体窒素を電氣的に冷却することで、液体窒素の消費を格段に抑えることができる。図3は、検出面から測定試料までの幾何学的な配置を特注スペンサーで確保している様子を見ることができ、このスペンサー上部に照射終了時の金箔試料を確実にホールドできる機能を備えている。このホールド機能は、本学保健学科放射線技術科学専攻で所有している各種放射能標準線源 (Ba-133, Co-60, Eu-152, Cs-137) の形状にも対応しており、検出面からの正確な距離 (今回は、10 cm 距離を基準としている。) を保持することができる。この検出器に装備されているゲルマニウム半導体結晶は、一般的なガンマ線エネルギー領域帯を担うことができる端窓同軸型 *p*-type 標準の構成となっている。



図2 ポップトップ型の検出部を鉛遮蔽体で覆い被した専用シールド架台 (デュワー部も化粧する囲いもある) が組み、かつ電気冷却と液体窒素冷却併用式 Cryo-Cycle II (クライオサイクル) を搭載した新しい HPGe 検出器の外観を表している。



図3 測定試料設置内の様子。垂直型クライオスタットから突出している検出面と特定の検出面と測定場所との距離 (本研究では、10 cm の距離を基準とした。) を保持する特注スペンサーが中央に見える。

この検出器の MCA 制御を実行し、かつガンマ線スペクトルデータを取得・解析することができるアドヒューテック社製 Prime Spectrum User Interface (以下、Prime と呼ぶ。) は、近年、この業界において急速に利用拡大が図られている。この Prime の構成は、測定時の統合制御ベースとなる「Prime イエターフェース」を軸に、様々な検出器タイプにおけるガンマ線測定の各用途ノード⁽⁴⁾ が、以下のように枝分かれしている。

- Prime Plus: 一般的な核種同定が可能で、主に NaI(Tl), SrI₂(Eu) のシンチレーション検出器のガンマ線スペクトル解析
- Prime Plus-G: HPGe 検出器のガンマ線スペクトル解析に特化した、Ge 検出器ガンマ線スペクトル分析プログラム
- Prime Plus-I: *In-situ* でのガンマ線スペクトル解析プログラムで、フィールド測定現場やデコミッションング調査などの現場計測によるオンラインデータ解析に特化している。主に、NaI(Tl), SrI₂(Eu) のシンチレーション検出器向けとされている。
- Prime Plus-G: 環境放射能測定での線量率評価に適しているモードで、空間線量率評価法の Ge(E)関数法を組み込んでおり、ガンマ線エネルギースペクトルデータから空間線量率に換算

して評価することができる。

- Prime Plus-IG: HPGe 検出器に特化した In-situ ガンマ線スペクトル解析プログラムである。地表面に沈着した放射性物質の面的な放射能濃度分布測定やそれらに起因する空間線量率測定、土壤汚染スクリーニングに適している。

ここに示しているノード解析群のいずれにおいても、操作性や視認性において優良で、かつシンプルで使いやすい構成で、ユーザーフレンドリーなガンマ線スペクトル解析システムである。また、ここで示したいずれのモードにおいて、Prime によるピーク解析の一連、ピーク検索、ピーク面積計算、核種同定、放射能換算、エネルギー較正、効率校正、サムピーク補正、自己吸収補正が容易に可能である。本研究では、効率校正に関して改めて前述の標準線源登録が必要であることから、Prime に付属している核データ編集プログラムに、それら核種群の登録と金箔の放射化で生成される Au-198 の核データ^(2,3)の登録を独自に構築した。図4に、Prime で解析しているディスプレイ画面の状況を例示する。

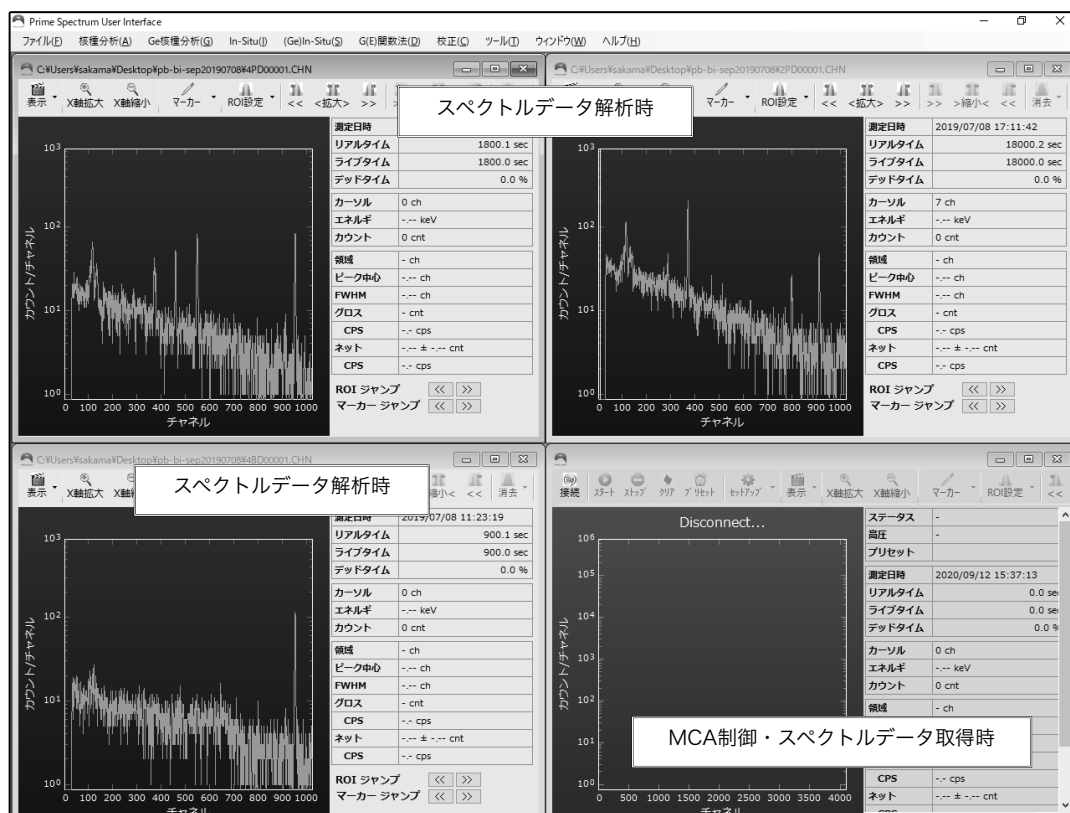


図4 Prime Spectrum User Interface の MCA 制御・スペクトルデータ取得時、及びスペクトルデータ解析画面の例

3 結果と考察

3.1 新しい高純度ゲルマニウム半導体検出器の性能評価と至適条件の確立

本学から持参した標準線源 (Ba-133, Co-60, Eu-152, Cs-137) と、今回の新しくなった HPGe 検出器システムに付属の特注スペンサー (長さが、10 cm である。) を用いて、HPGe 検出器の性能試験測

定及び至適条件の確立に向けた解析を、金箔試料の照射時間帯に行った。図 5(a) と (b) は、その性能試験測定の結果をもとに、Prime の解析機能機序より導出された (a) エネルギー校正及び半値幅校正に関するグラフ、(b) 効率校正による効率曲線グラフを、それぞれガンマ線エネルギーの関数で表した結果である。Prime の解析機序に従うと、自己吸収補正とサム効果補正、減衰補正の順に行うことが必要となるが、自己吸収補正については、本実験における水晶体レベルの微小サイズを模擬した金箔が放射化測定の測定対象であるので、試料自体の自己吸収が Au-198 のガンマ線エネルギー (411 keV) に影響を与えることは少ない。次に、サム効果補正については、HPGe 検出器の検出面と放射化測定試料が配置される特注スペンサーのホールド位置との距離が、10 cm と距離を保っているので無視できる。減衰補正については、Au-198 の半減期が 2.7 日であり、今回、原子炉照射終了時より炉心から取り出すまでの時間、金箔試料の取り出しから測定開始まで約 1 時間程度と短いので、考慮する必要がないといえる。これら全ての補正に関する Prime の解析機能を踏まえた上で、Au-198 のガンマ線エネルギーに関して、新しい HPGe 検出器の検出効率は、10 cm の距離位置のもと 0.469% の値を決定し評価することができた。

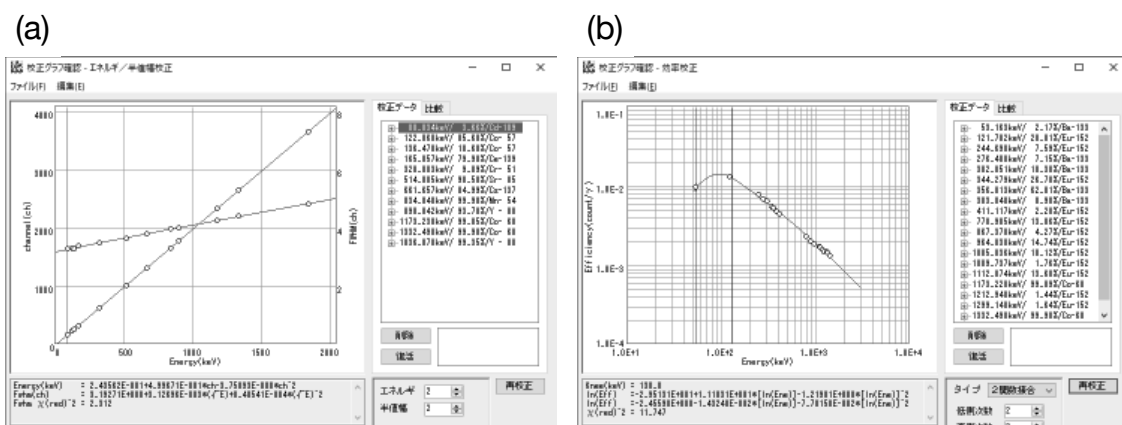
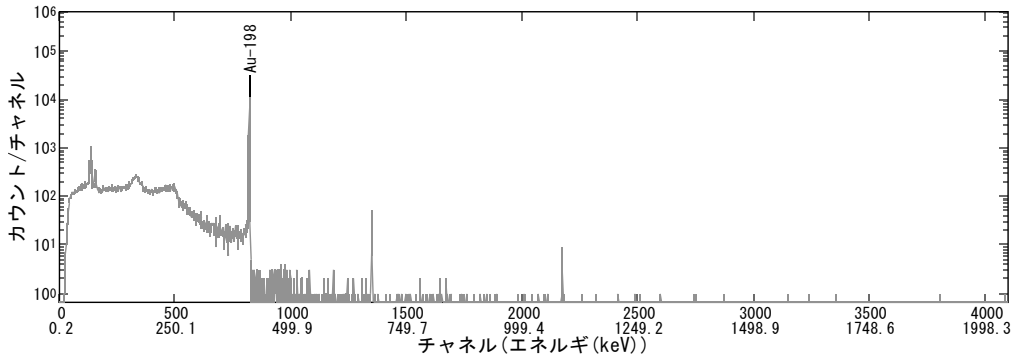


図 5 (a) Prime 解析機能のエネルギー校正及び半値幅校正の出力結果、(b) 同機能の 2 関数結合による効率校正の効率曲線グラフ出力結果をそれぞれ表している。

3.2 水中に含浸させた金箔の放射化計算による熱中性子束密度の評価

原子炉照射後、水中に含浸させた金箔を取り出し、前述の HPGe 検出器によるガンマ線スペクトロメトリ解析を行った。照射後の試料は、放射化生成の Au-198 の壊変に伴うガンマ線強度から、HPGe 検出器の応答処理速度を超えないよう、すなわちデットタイム時間などを見通しながら、特注スペンサー上部の 10 センチ距離に配置して計測した。測定までに要した時間は、試料の移動時間やそのデットタイム時間の確認などを含めて、照射終了後の約 60 分後（照射当日の 18 時 01 分）に開始した。図 6 は、測定時間（ライブタイム）136.1 秒で取得したガンマ線スペクトルと Prime によるピーク解析結果出力結果を示している。

Ge核種分析結果



[核種分析結果]

No.	核種	エネルギー (keV)	ピーク面積 (counts)	検出限界 (counts)	効率 (count/γ)	自己吸収補正	サム効果補正	減衰補正	放射能 (Bq/g)	検出限界 (Bq/g)
1	Au-196	355.68	-23.4 ± 19.9 (s)	66.0	5.380E-3	1.000E+0	1.000E+0	1.000E+00	-----±-----	4.894E+02
* 2	Au-198	411.80	31095.9 ± 177.2 (s)	56.6	4.688E-3	1.000E+0	1.000E+0	1.000E+00	2.404E+05 ± 1.370E+03	4.374E+02

(s) : 全計数積算法でピーク面積を計算 (g) : ピーク関数適合でピーク面積を計算 *表示 : 放射能 ≥ 3σ
 (!) : オーバーフロー回避のため減衰補正打ち切り
 備考 1 : 自己吸収補正やサム効果補正を実行する場合、効率は補正済みの値 備考 2 : 否検出核種は減衰補正しない

[核種分析結果(面積計算)]

No.	核種	エネルギー (keV)	ピーク面積 (counts)	計数積算法での領域設定 低側/ピーク/高側	グロス (count)	バックグラウンド (counts)	妨害カウント (counts)	BGピーク (counts)
1	Au-196	355.68	-23.4 ± 19.9 (s)	699- 705 706- 717 718- 724	202	225.4 ± 13.9	0.0 ± 0.0	0.0 ± 0.0
* 2	Au-198	411.80	31095.9 ± 177.2 (s)	810- 816 817- 829 830- 836	31251	155.1 ± 12.0	0.0 ± 0.0	0.0 ± 0.0

(s) : 全計数積算法でピーク面積を計算 (g) : ピーク関数適合でピーク面積を計算 *表示 : ピーク面積 ≥ 3σ

図6 水中含浸させた金箔試料に対するガンマ線スペクトロメトリー解析 (Prime による解析) 出力結果シート。この結果シートには、ガンマ線スペクトルも同時に出力されている。

表1 核種分析結果 (面積計算)。表中の (s) は全計数積算法でのピーク面積計算結果であることを示す。これは、図6の出力結果における核種分析結果 (面積計算) の項である。

核種	ガンマ線エネルギー (keV)	ピーク面積 (counts)	グロス (counts)	バックグラウンド (counts)
Au-196	355.68	-23.4 ± 19.9(s)	202	225.4 ± 13.9
Au-198	411.8	31095.9 ± 177.2(s)	31251	155.1 ± 12.0

表2 最終的な核種分析結果（測定試料の比放射能に関する出力結果）。表中の(s)は全計数積算法でのピーク面積計算結果であることを示す。これは、図6の出力結果における核種分析結果の項である。ここで、N.D.は検出限界のことである。

核種	検出限界 (counts)	効率 (counts/γ)	放射能（比放射能） (Bq/g)	検出限界 (Bq/g)
Au-196	66.0	5.380E-3	N.D.	4.894E+02
Au-198	56.6	4.688E-3	2.404(14)E+05	4.374E+02

この Prime によるガンマ線スペクトロメトリ解析から、熱及び熱外中性子に起因する中性子束密度⁽⁵⁾を評価したところ、 $1.312(8) \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ の値が導出することができた。本年度の照射実験において、材料の確保と照射用アルミ支持台への配置の都合により、熱外中性子線の寄与を評価するためのカドミウム板で覆い被せた金箔照射試料を準備することができなかつた。そのため正確な熱外中性子を取り除いた熱中性子成分のみの中性子束密度を正確に求めることができず、カドミウム比⁽⁶⁾を求めることができなかった。しかし、今回のカドミウム板で覆われていない放射化した金箔試料で、かつそれが水中に含浸された状況での中性子束密度の値は、これまでの空気雰囲気下でのそれと同条件でカドミウム板で覆われていないデータを比較すると、約30%程度と高い値を示した。これは、人体の水晶体サイズを模擬する2 mL容量マイクロPPチューブ程度では、原子炉炉心全体に分布する中性子線が遮蔽されることなく、上手くその微小空間内で熱化が促進し、熱中性子の束密度状態が増したことを推察される。今後、この推察が実験的に正しいかを見極めていくことが重要であり、カドミウム板で覆われた金箔試料を、微小空間内へ上手く配置することができるように検討していくことが必要である。原子炉炉心内と同レベルの中性子束密度状況にある医療用リニアック施設でのリニアックガントリーのもとで、臥床安静している患者の頭頸部に位置する水晶体サイズの微小空間領域では、本実験のような模擬的な微小空間での水ファントムセル空間と同じといえる。このような空間内での熱中性子成分の増加は、放射線感受性の高い水晶体に大きな影響を及ぼし、白内障などの疾病につながる可能性が、本実験により示唆されることが明らかになった。

4 結論

今回の共同利用研究では、箔放射化法でのガンマ線スペクトロメトリ解析で重要な因子となる高純度ゲルマニウム半導体検出器の性能評価及び、新規のガンマ線スペクトロメトリ解析プログラムである Prime の解析に関する至適条件を確立することができ、従来よりも高確度でかつ統合的な解析システムを構築することができた。さらに、このシステムを実践させることで、医療用リニアック施設と同レベルの中性子束密度環境下での水中に含浸させた金箔試料の照射条件に関する最適化を図り、空気存在下と異なり、人体の水晶体と同じような条件であるファントムとして再現し、中性子照射を行うことができた。その結果、暫定的であるが熱及び熱外中性子の全体を見通す中性子束密度の値と従前の結果の比較から、微量の水空間が周辺の中性子線の熱化を促進させ、熱中性子束密度の値が約30%程度上昇する可能性を示唆する結果を導くことができた。

謝辞

本共同研究利用研究におかれまして、長時間の原子炉運転や新しくかつ高確度な核種同定が可能な高純度ゲルマニウム半導体検出器の整備など、多大なるご協力における近畿大学原子力研究所のスタッフの皆様、またこの共同利用研究における運営管理における大阪大学工学系研究科担当事務の皆様に厚く御礼を申し上げます。

参考文献

1. ICRP Publication 118 ICRP Statement on Tissue Reactions and Early and Late Effects of Radiation in Normal Tissues and Organs —Threshold Doses for Tissue Reactions in a Radiation Protection Context, Publication 118. Annals of the ICRP, Vol. 41, Nos.1 – 2 (2012).
2. M.B. Chadwick, M. Herman, *et al.*, ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data, NUCLEAR DATA SHEETS, 112(12) 2887-2996 (2011).
3. R. B. Firestone and V. S. Shirley, *Table of Isotopes*, 8th ed. (John Wiley & Sons, New York, 1996).
4. 株式会社アドフューテック, MCA エミュレーションプログラム Prime オプション Ge 検出器による γ 線核種分析プログラム/PrimePLUS-G 仕様説明書 改訂番号 1.7 (2018).
5. 近畿大学原子炉実習テキスト.
6. Hughes, D.J. and Harvey, J.A., Neutron Cross Sections , U.S. ATOMIC ENERGY COMMISSION DOCUMENT, MCGRAW-HILL BOOK COMPANY, Inc., New York, (1955).