

中性子・ガンマ線混在場において 発光により検知できる検知材に関する研究 ～高線量ガンマ線に対する感度測定～

奥野功一^{*1}・三好弘一^{*2}

中性子捕捉療法 (BNCT) 等では、建屋の躯体 (壁床) のコンクリートが放射化する事が懸念される。放射化はコンクリートに到達する中性子により引き起こされるため、躯体の直前で中性子を測定する事により、放射化の程度を把握する事が出来る可能性がある。本研究では、中性子・ガンマ線混在場において発光により検知できる検知材を調製し、高線量ガンマ線に対する感度を調べるためガンマ線照射試験を行った。その結果、線量増加に対する発光量の線量依存性が確認された。

キーワード：中性子，ガンマ線，発光，高線量

1. 緒言

中性子捕捉療法 (BNCT) では、建屋の躯体 (壁床天井) のコンクリートが放射化する事が懸念される。放射化は躯体に到達する中性子により引き起こされるため、躯体直前で中性子を測定する事により、放射化の程度を把握する事が出来る可能性がある。

BNCT で用いられる中性子は高いフラックスを持つことと、躯体が放射化するまでに年オーダーの長時間を要するため、適切な測定方法が無いのが現状である。ある程度時間が経ったのち、壁のコアを抜くか、もしくは予め測定用コアを設置しておいて、適切な時期にゲルマニウム検出器で測定するという方法も考えられるが、手間がかかる。そのため、簡便な方法で中性子を測定する方法が望まれている。

中性子検出器の種類としては、コンクリートの放射化が長期間中性子に照射される事により生じるため、リアルタイム型ではなくパッシブ型の検出器を検討対象とした。パッシブ型で高線量の検出が可能な測定器として化学線量計がある。一方、共同研究者は、 Au^{3+}/SiO_2 水分散系においてガンマ線により SiO_2 が励起され生成した電子が Au^{3+} を還元して Au ナノ粒子を形成して赤色に着色する事を見出しており、また、シンチレータシリカ珪石粉末を含んだ紙でトリチウム等の β 線¹⁾²⁾ や ^{137}Cs 等のガンマ線³⁾ を受けて数十 mGy 以上で発光する事が報告されている。この方法をベースに、ガンマ線だけでなく中性子も検出できるように改良を進めている。

Au^{3+}/SiO_2 水分散系が低線量におけるガンマ線の検出に

高感度である事が既往の研究で報告されているが⁴⁾、高線量率下における感度は未だなされていない。BNCT 施設内は、中性子とガンマ線の混在場であり、中性子と共にガンマ線も高いフラックスを持つ。そのため、高線量ガンマ線下における感度を把握する事は必要である。よって今回、 Au^{3+}/SiO_2 水分散系の高線量率下での感度を調べた。

2. 測定試料の調製

測定試料の調製方法は、 SiO_2 水分散液 (LUDOX HS-40) 2ml に蒸留水 1ml と 10mM $KAuCl_4$ 水溶液を 1ml 加えて軽く攪拌した後、2-PrOH を 0.4ml 加えて攪拌して均一とした。その後、蒸留水に溶解したゼラチン (0.4g/2ml) 2 μ l を上記溶液に加えた後、80 ~ 90 $^{\circ}C$ の湯浴につけて 1 分間放置した。この溶液を石英セルに入れて流水で表面を冷やした後、水につけて冷やした。この操作を 6 本の試

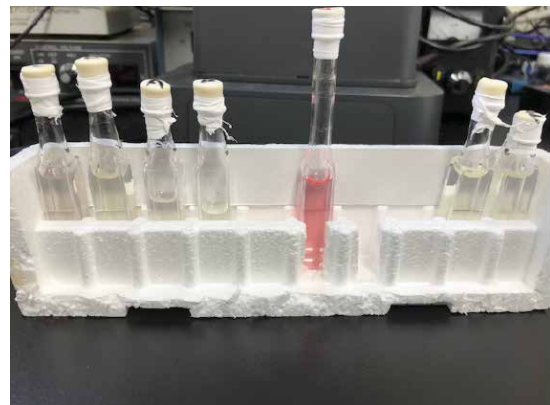


図 - 1 調製した試料 (赤色試料は標準試料)

*1 建築研究部 *2 徳島大学放射線総合センター

料（試料A, 試料B, 試料C, 試料D, 試料E, 試料F）について行った。その後、アルゴンガスをニードル針を介して6本の試料に導入し、30分間バブリングした。

図-1に調整した試料を示す。標準試料は金微粒子水分散液である。なお、試料Fについては調製時に問題が発見されたため、評価対象から外した。

2. 照射実験

実験は東京工業大学コバルト60照射施設で実施した。照射線量が大いことから、試料のガンマ線感度と照射線量の計算値を考慮して線源から60cm離れた位置に試料を設置することとした。施設側から提供された線源から60cm離れた位置での照射線量は、2020年12月時点で 0.49×10^2 (Gy/h)である。この値にコバルト60の半減期と既往の研究から予想される試料のガンマ線感度を考慮して、試料の照射時間は、6分、12分、24分とした。

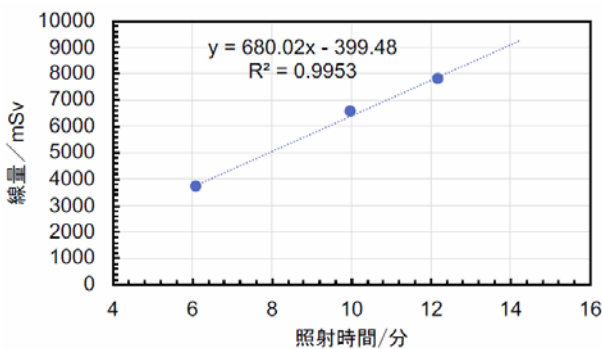


図-2 照射時間と照射線量の関係

実験中に実際に照射された照射線量は、試料設置台にOSL線量計を貼り付けて試料と共に照射して測定した。ただし、OSL線量計の測定上限値が10,000mSvであるため、照射時間24分ではOSL線量計の測定上限値を超えてしまう。

そのため、別途照射時間10分で照射線量を測定し、照射時間と照射線量の関係を導いた。図-2に、60cm離れた位置での照射時間と照射線量の関係を示す。照射実験において、24分照射における線量は、図-2に示す近似式より求めた。

表-1 各試料の照射時間

照射順序	試料	照射時間	OSL線量計
1	無し	10分	有
2	A, B	6分6秒	有
3	C, D	6分6秒	無
4	E	6分6秒	無
5	A, B	12分12秒	有
6	C, D	12分12秒	無
7	E	12分12秒	無
8	A, B	24分30秒	有
9	C, D	24分30秒	無
10	E	24分30秒	無
11	無し	10分	有

表-2 照射時間とOSL線量計による測定結果

照射ケース	照射時間	OSL線量計による照射線量
1	6分6秒	3689.2 mSv
2	12分12秒	7791.4 mSv
3	24分30秒	16261.01 mSv
合計	42分48秒	27741.61 mSv

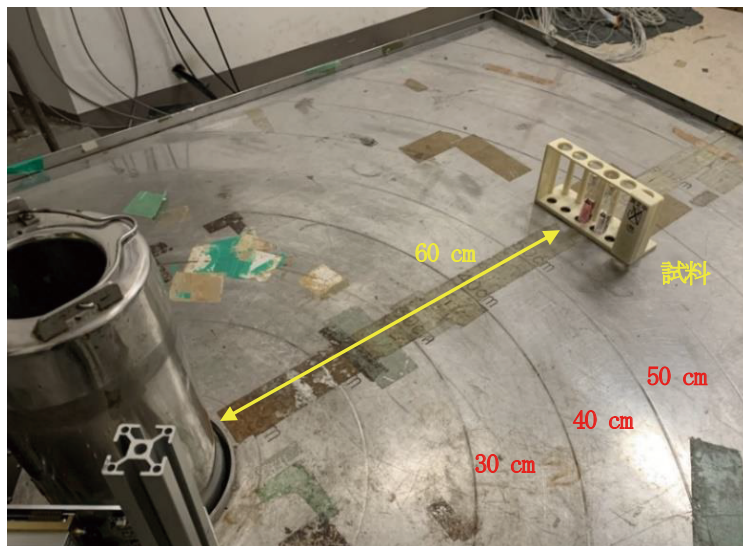


図-3 照射時の様子

照射時の様子を図-3に示す。試料設置台には、一般的なプラスチック製試験管立てを使用した。各照射時間における試料へ照射した照射時間と照射線量の実測値を、線源駆動装置のタイムラグを含めて表-1、表-2に示す。

試料は、各照射時間毎に6本の試料を2本ずつ組みにして照射した。試料A, B, C, D, Eとも同じ線量を照射し、各照射時間毎に試料と標準試料をスマートフォンのカメラ (iPhone XR) で2回ずつ撮影し、写真を (A, A2), (B, B2), (C, C2), (D, D2), (E, E2) として記録した。

各試料に照射された照射時間の合計は42分48秒で、照射線量の合計は27741.61mSvである。

3. 実験結果

撮影した各試料の写真のうち、1回目に撮影した写真を図-4に示す。図-4で左側の試料は標準試料である。

撮影した画像データを画像処理ソフトウェア ImageJ を用いて、標準試料とガンマ線照射試料の着色部位5カ所の画像強度を読み取って平均値を算出した。さらに標準試料と測定試料の画像強度の平均値の比を算出し、予め実測で求めた画像強度の比と520nmにおける吸光度との関係 (図-5) よりガンマ線照射による吸光度を評価した。

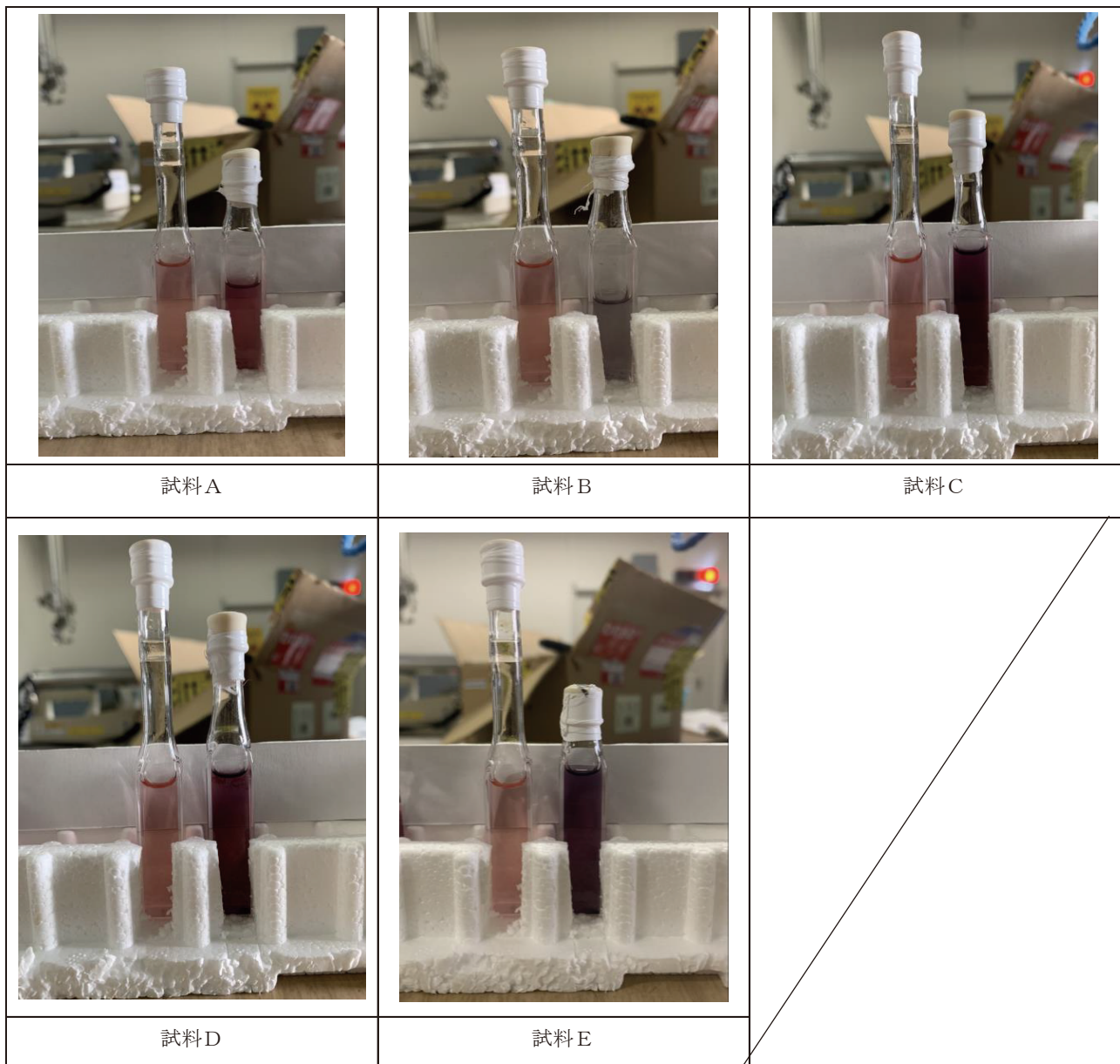


図-4 照射後の各試料

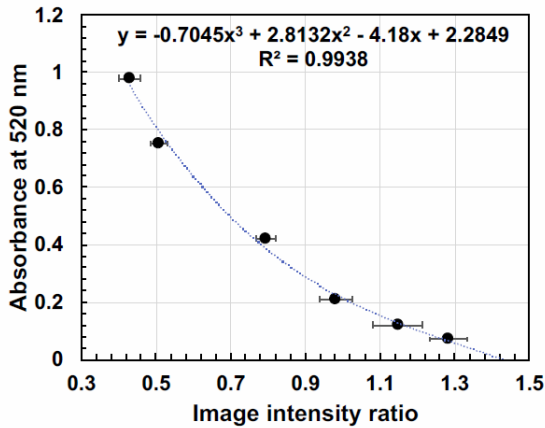


図-5 画像強度の比と 520nm における吸光度との関係

評価した各試料のガンマ線照射線量に対する吸光度を
図-6 に示す。

4. まとめと考察

図-6 に示すとおり、ガンマ線の照射線量とともに各試料の吸光度は増加した。よって、試料のガンマ線線量依存性が確認できたと考えられる。近似直線の傾きを比べると試料Eの傾きが大きい。これは、試料の金微粒子のサーフェスプラズモンバンドの吸光度が1前後であり、ガンマ線に対する感度が高くなるためと考えられる。

試料A, B, C, D, Eとも同じ試料であるが、吸光度が異なっている。試料調製時の溶液の吸光度も0.5～2と同じではなかった。これは、特にゼラチンを加える際に調製の最後に加えていたことが主な原因と考えられる。最初から蒸留水にゼラチンを溶解させ、溶液中に均一にゼラチンが存在するようにすることにより改善できると考えられる。

5. 今後の計画

前述のとおり、実際の施設内は中性子とガンマ線の混在場であるため、中性子の検出も可能とする必要がある。

そのメカニズムとして、水素は中性子の散乱断面積が大きいことが知られており、水素原子に高速中性子が衝突して反跳陽子が生成する。水溶媒中では、反跳陽子の電離作用でシリカナノ粒子中または近傍に生成した電子によるAu³⁺の還元と2-プロパノールによる正孔の捕捉が起こり、金微粒子が生成する機構が考えられる。さら

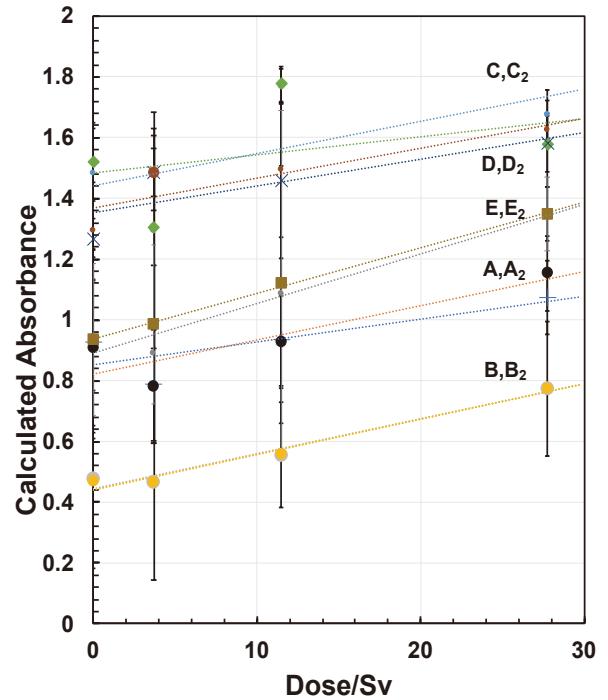


図-6 照射線量と波長 520nm での吸光度の関係

に、熱中性子の吸収断面積が大きいホウ素を利用する事により、熱中性子と高速中性子を選択的に検出できる可能性がある。

今回、Au³⁺/SiO₂水分散系の高線量ガンマ線に対する線量依存性が確認出来たため、上記機構による試料を別途調製し、中性子に対する吸光度等を評価した。その結果については別途発表する計画である。

参 考 文 献

- 1) H.Miyoshi, et al., Preparation of new scintillation imaging material composed of scintillator-silica fine powders and its imaging of tritium, Radiation Protection Dosimetry, 174, No.4, 478-484, 2017.
- 2) H.Miyoshi, et al., Enhancement of counting efficiency for tritium using light-excited scintillator-silica pellets, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 311, No.3, 1991-1999, 2017.
- 3) H.Miyoshi, et al., Development of Noble Scintillation Paper Functionalized for Detecting β -Particles, 19TH INTERNATIONAL CONFERENCE ON SOLID STATE DOSIMETRY, Hiroshima, Sep. 2019.
- 4) 株式会社テクノネットワーク四国, 四国電力株式会社, 三好弘一, シリカ粒子を含有する放射線感光性色素組成物の10 Gy以下の低線量の放射線の測定への使用, 特許第4586191号, 2010-09-17

Research on detection materials that can detect neutron and gamma by light emission
- Sensitivity measurement for high-dose gamma rays -

Koichi OKUNO, Hirokazu MIYOSHI

In BNCT, etc., activation of the concrete of a building wall or floor is a concern.

Since a large amount of activation is caused by the thermal neutrons which reach the concrete, it may be possible to measure the amount of activation by measuring the neutrons just before the wall etc. In this study, detection material was prepared that could detect the light emission in the neutron and gamma-ray mixed field, and the gamma-ray irradiation test was conducted in order to examine the sensitivity for high-dose gamma-rays.

As a result, it was confirmed that dose increase depended on the quantity of light emission.