令和５年度青森県量子科学センター研究開発公募（無料枠）
研究成果報告書 （２０２３年度）

2024 年　 5 月　27 日

所属：　東北大学未来科学技術研究センター
特任准教授
氏名：　黒澤　俊介

令和５年度青森県量子科学センター研究開発公募（無料枠）採択の下記の研究テーマについての、研究成果報告を次の通り記す。

記

期間	2023Year年　7Month月　1Date日 ～ 2024Year年　3Month月　31Date日（ 9total months ヵ月）
研究テーマ	非荷電粒子を検出するシンチレータの特性評価

１．研究の進捗状況ならびに成果等

研究の背景

ホウ素中性子補足療法（Boron Neutron Capture Therapy: BNCT）は、ホウ素(^{10}B)と熱中性子の核反応を利用した新しい放射線がん治療法である。^{10}B(n,α)^{7}Li 反応によって生成される α 粒子と ^{7}Li 粒子の体内中での飛程はおよそ 5-9μm(ヒトの細胞の平均的な大きさは直径 20μm 程度)であるため、正常細胞への損傷を低く抑えながら、腫瘍組織を選択的に治療することが可能である。

これまで BNCT の治療効果の評価には、中性子照射前後の血中ホウ素濃度を比較することで推定していたが、高い精度で得ることができなかった。そのため、より安心して受診できる信頼性の高い BNCT の実現が強く求められている。

そこで、治療中の患部において、^{10}B(n,α)^{7}Li 反応の過程で ^{7}Li が励起状態から基底状態に戻る際に放出される即発ガンマ線(478 keV)を計測することにより、治療効果をリアルタイムで推定する試みが注目されている。つまり、当該ガンマ線の発生位置をとらえることで、実際に ^{10}B(n,α)^{7}Li 反応、言い換えると治療部位を可視化できるため、その信頼性が大きく

向上する。ここで、空間分解能の目標値は 5 mm である。

一方で、治療場では他にも陽電子・電子消滅による 511 keV のガンマ線、その他の即発ガンマ線やそれらの散乱ガンマ線、および、熱/熱外中性子などがバックグラウンド(BG)として存在し、478 keV のみの検出は難しい。単一光子放射断層撮影 (Single Photon Emission Computed Tomography, SPECT)型検出器による、478 keV の撮像を試みている研究もあるが、患者の目の前に鉛やタングステンのコリメータを置くことや、検出器が数十 kg 以上と重く、実用的ではない。

研究の目的

そこでわれわれは、BNCT 用の新しい検出器として、リアルタイムで簡便に 478 keV のイベントを検出できる検出器の開発を行っている。その第一歩として、数 mm サイズのシンチレータ、および光電子増倍管 (PMT)と呼ばれる光検出器から構成される放射線検出器を開発している。シンチレータを患者の頭部付近に設置し、治療時のガンマ線をモニタする。SPECT 型で使用されている Ce:$LaBr_3$ シンチレータは、潮解性があり加工も難しいため、可能な限り潮解性を抑えた新規シンチレータの探索および開発した材料によるホウ素リアルタイム検出の実証が本研究の目的である。

また、本実験は、博士課程学生の博士論文作成に向けた初期段階の実験として行われ、本実験で得られた結果はシミュレーション体系の構築とその確認の実証のために使うことも目的とする。

材料選択

BG である 511 keV との弁別には、優れたエネルギー分解能(6.5 % @ 478 keV, FWHM)を示すシンチレータが要求される。一般的に、無機結晶シンチレータはバンド構造を持ち、バンドギャップ E_{gap} と発光量が反比例の関係にあることから、ハロゲン化物の中でも E_{gap} の典型値が小さいヨウ化物（E_{gap} の典型値：3-5 eV）で高い発光量が見込める。そして、一般にエネルギー分解能は発光量が高いほど統計的に優れた値になる。

ハロゲン化物シンチレータの $Cs_3Cu_2I_5$（CCI）は、発光量およびエネルギー分解能がそれぞれ 41,500 光子/MeV、および 4.4%(662keV, FWHM)であり、CsI よりも吸湿性が低いといった優れた特性を示す。さらに、CCI に Tl を添加する(Tl:CCI)ことで、エネルギー分解能（同）が 3.3 %まで向上することが報告されている。

実験方法（材料合成・準備、測定セットアップ）

Tl:CCI 結晶を垂直ブリッジマン法にて育成し、BNCT 模擬実験を行った。青森県量子科学センターの NRT 装置において、ホウ酸（H_2BO_3）試料に熱中性子を照射し、Tl:CCI シンチレータ(図 1)、PMT(H11284-100, 浜松ホトニクス社)、MCA からなる検出器を用いて、熱中性子と ^{10}B の核反応によって生成される 478 keV 即発ガンマ線の測定実験を行った。

セットアップとデータ収集システムを図２と図３に示す。

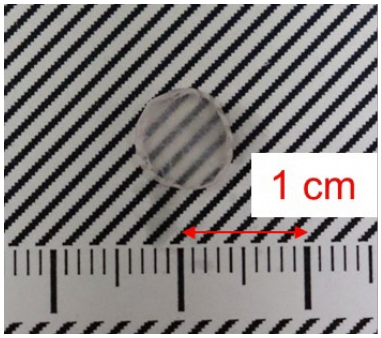

図１. BNCT 模擬実験で使用した結晶

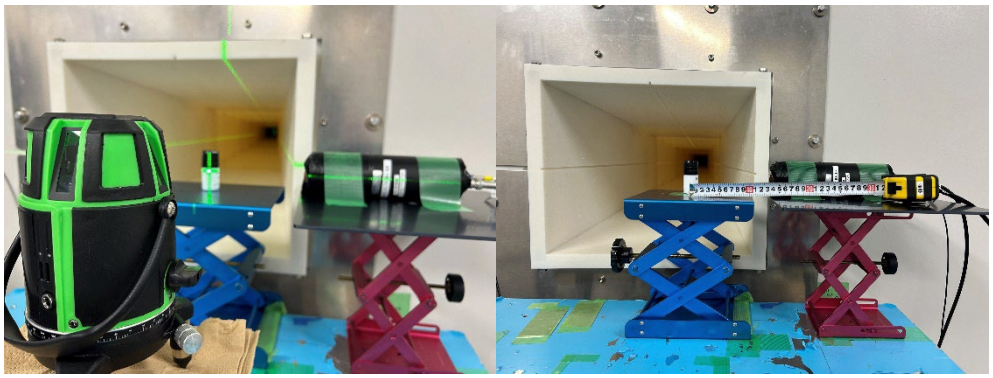

図２．ホウ酸試料(左)とセットアップの様子(右)

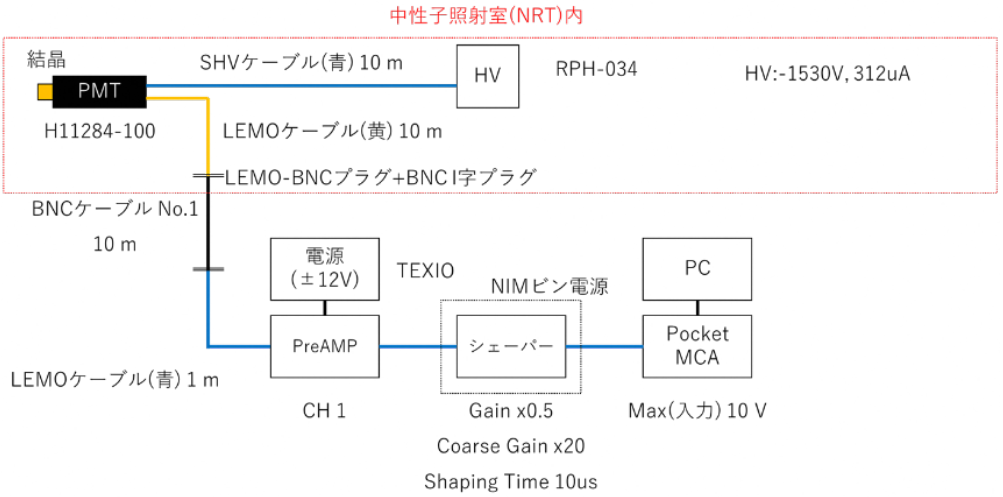

図３．データ収集システム

実験結果

図 4 は Tl:CCI で得られた波高値スペクトルの結果である。$^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ 反応によって生じる 478 keV 即発ガンマ線の測定に成功し、一連のシステムの動作を確認することができたが、BG イベントが支配的であった。加えて、^{10}B 濃度と計数率の相関は確認できなかった。同じセットアップを用いて、Ce:$LaBr_3$ 結晶による波高値スペクトルの結果を図 5 に示す。Ce:LaBr3 では、478 keV と 511 keV のイベントを確認することができたが、Tl:CCI 同様に BG が支配的であることが分った。

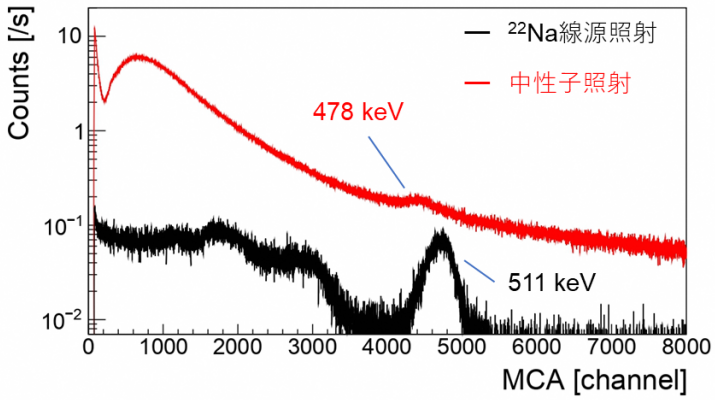

図 4 . Tl:CCI による BNCT 模擬実験で得られた波高値スペクトルの結果

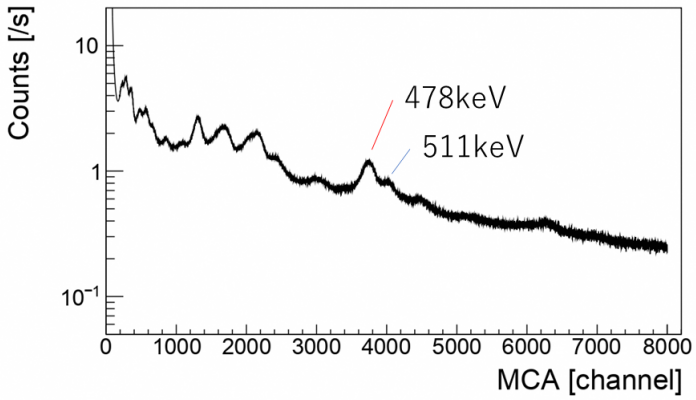

図 5 . Ce:$LaBr_3$ による BNCT 模擬実験で得られた波高値スペクトルの結果

考察・得られた知見

BG について、相当量があることが改めて認識でき、これらのノイズを落とす方法、言い換えれば信号ノイズ比（SN）の向上の手段についても議論ができた。SN 向上のため、鉛ブロックで遮蔽する方法が最も簡単であるが、装置が大がかりになってしまう。また、患者さんの目の前に鉛ブロックで囲った検出器を置くことが、鉛による中性子散乱や中性子で誘起された新たなガンマ線の発生、スペースの干渉、そして、患者さんへの心的な負担など

のデメリットが多い。さらに、今回、実際に鉛で囲んで測定も行ってみたが、中性子自体の鉛による遮蔽効果は、ガンマ線と比べて低いため、鉛遮蔽による SN の低減効果も小さいことが分かった。そこで、光ファイバーを介して読み出す方法を検討するに至った。

今後の予定

今後は、光ファイバー型検出器の開発を進めるとともに、S/N 比の改善が必要であるため、Geant4 によるシミュレーションと実験値の比較を行い、BG イベントのさらなる低減を図っていく予定である。また、検出器の高精度化に向けて、シンチレータのエネルギー分解能の改善が必要であり、新規シンチレータ開発を進めていく。

まとめ

本実験は、**博士課程学生の博士論文作成に向けた初期段階の実験として行われ、BG や機械的なノイズの量の定量的な評価、シミュレーション体系構築に向けた基礎データを得ることができた。また、開発した新しいシンチレータにおいて、世界で初めてのビーム試験を行うことができた。今回得られたデータは、BNCT の照射位置モニタ開発に向けて、非常に貴重なデータとなった**ほか、博士論文執筆を大きく前進させるものであった。

これらのデータは本設備でないと得られないものであり、関係各位に厚く御礼申し上げます。

２．学会発表（〇は筆頭演者）：全著者名、題目、発表学会名、開催日時、場所

① 〇浦野雄介， 黒澤俊介，山路晃広，吉川彰，Yuntao Wu，BNCT 治療のための即発ガンマ線モニタ検出器の開発，第 38 回研究会「放射線検出器とその応用」，2024 年 1 月 23 日，高エネルギー加速器研究機構（KEK） 研究本館 小林ホール.

② 〇浦野雄介，黒澤俊介，山路晃広，吉川彰，Yuntao Wu，BNCT のための Tl 添加 $Cs_3Cu_2I_5$ シンチレータの育成およびガンマ線検出器の開発，第 71 回 応用物理学会 春季学術講演会，2024 年 3 月 22 日，東京都市大学世田谷キャンパス＆オンライン.

以上