

放射線治療のための PVA-KI ゲル線量計の研究開発

Research and Development of PVA-KI Gel
Dosimeter for Radiotherapy

2021年

福井工業大学大学院 工学研究科博士後期課程

応用理工学専攻 原子力技術応用工学コース

(青木 祐太郎)

(Yutaro Aoki)

目 次

	頁
第一章 序論	
第一節 研究背景	1
第二節 ゲル線量計の現状	3
第三節 本研究の目的	5
第二章 PVA-KI ゲル線量計	
第一節 ゲル線量計の研究開発戦略	6
第二節 研究の独自性	7
第三節 PVA-KI ゲル線量計の作製	8
第四節 呈色原理	10
第五節 PVA-KI ゲルのゲル化の原理	12
第六節 加温による色の初期化反応	13
第三章 X線およびガンマ線照射効果	
第一節 緒言	14
第二節 X線照射およびガンマ線照射実験	15
第三節 X線照射およびガンマ線照射実験結果および考察	18
第四節 PVA の重合度依存性の確認	32
第五節 結言	34
第四章 PVA-KI ゲル線量計の初期化反応原理解明	
第一節 緒言	35
第二節 加温における PVA-KI ゲルの吸光度測定	36
第三節 加温における吸光度の時間依存性測定	38
第四節 反応の妥当性の検討	42
第五節 結言	43
第五章 陽子線照射効果	
第一節 緒言	44
第二節 陽子線照射実験内容	45
第三節 実験結果および考察	48
第四節 結言	54

第六章	PVA-KI ゲル線量計測定システムの開発および線量評価手法の検討	
第一節	緒言	55
第二節	PVA-KI ゲル測定システム	56
第三節	X 線照射における RGB 値測定および吸収線量測定	59
第四節	He イオン照射実験における線量評価手法の検討	67
第五節	結言	77
第七章	総括	78
	引用文献	80
	発表論文目録	82
	講演発表	83
	謝辞	85

第一章 序論

第一節 研究背景

放射線の歴史は、1895年に Röntgen によって X 線が発見されたことに端を発し、翌年 1896 年の Becquerel によるウランの放射線の発見、1898 年の Curie らによる放射性元素としてポロニウムとラジウムの発見へと続く。放射線の医療利用としては、X 線の発見直後から X 線透視写真が世界中で行われたが、X 線の発見の翌年 1896 年には Voigt が鼻咽頭がんに対する X 線照射によって鎮痛効果が報告されており、1899 年に Stenboeck によって皮膚がんの放射線治療がなされ、世界初のがんの放射線治療例となった。この時代は X 線の管電圧が低く、線量測定技術も未熟であったため、皮膚がんが主な対象であった。

今日において、放射線によるがん治療は、がんの標準治療として、外科治療、化学療法とともに「三大がん治療」の一つとなっている。放射線治療は、多くの場合治療のために入院する必要がなく通院で治療を受けることができる。また、照射による直接の痛み等は無く、治療照射の時間は 10 分程度である。これらの特徴から、他 2 つの治療と比べ、患者への身体的、精神的負担を軽減することができるため、外科手術や抗がん剤による強い副作用に耐えることのできない高齢者などの患者に対して特に有用である。日本において、がんは、1981 年より死因の第 1 位であり、2019 年のがんによる死亡数は 376425 人であり、同年における総死亡人数の 27.3 %を占める¹⁾。また、2017 年のデータに基づくと、生涯でがん罹患する確率は、男性 65.5%(2 人に 1 人)、女性 50.2%(2 人に 1 人)であるとされている²⁾。また、日本は人口の高齢化が進んでおり、65 歳以上を高齢者と区分するとがん患者の約 7 割が高齢者のがん患者となる。このことから、日本における放射線がん治療の関心は高い。

外部照射による放射線治療は X 線、ガンマ線を使用した治療 (Intensity Modulated Radiation Therapy: IMRT、サイバーナイフ、ガンマナイフ等) と、加速器からの陽子線、重粒子線 (炭素線) を使用した粒子・重粒子線治療、に大きく分けることができ、これらの他に、 ^{10}B 薬剤を投与、がん細胞へ集積させ、熱中性子照射による $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応を利用した治療法としてホウ素中性子補足療法 (Boron Neutron Capture Therapy: BNCT) がある。

放射線治療はがんの詳細な大きさ、位置を CT 撮影などから特定し、照射方向、範囲の決定を行う治療計画を作成する。ここで、正確な線量分布の評価のためには線量計での実測定による検証が必要不可欠である。線量測定には主に電離箱式線量計や半導体検出器、フィルム線量計が用いられ、人体組織を模擬した人体ファントムと組み合わせて線量評価が行われる。これらの線量計では点や面での線量評価がなされるが、放射線治療における品質管理、品質保証の観点から立体的、視覚的な線量分布の測定、評価手法、

が求められている。3次元的な可視化技術の一つとしてゲル線量計が注目されており、様々な研究機関、組織によって研究開発されている³⁾。ゲル線量計は基本的に人体組成もしくは水に等価な組成のゲルで構成されるため、線量計自身がファントムとしての役割を兼ねることが特徴であり、利点である。ゲル線量計は、放射線照射による様々な放射線化学反応による変化を読み取り、放射線線量へ変換ができる線量計であるため、種別的には化学線量計に属し、ゲル線量計に求められる特性は共通している。例としては、

- (1) 単位吸収線量当たりの化学的変化量が広範な線量範囲にわたって一定である。
- (2) 線量率非依存性および、エネルギー非依存性である。
- (3) 化学的変化が放射線以外の環境(光、温度、湿度など)の影響を受けにくい。
- (4) 化学的変化量の測定が簡単で、再現性が良いこと。

などである^{3),4)}。

第二節 ゲル線量計の現状

ゲル線量計は多数のグループによって研究、開発がされてきており、ゲル線量計の反応機構の種類により大きく3種類に分けることができる。本節ではゲル線量計の種類ごとの基本的反応機構、特徴、研究動向について概説する。

1. フリッケゲル線量計⁵⁾

フリッケゲル線量計は、化学線量計であるフリッケ線量計(水溶液)をゼラチンなどによってゲル化させた線量計である。ここで、フリッケ線量計は1927年にH. Frickeによって提案され、酸性水溶液中への放射線照射による鉄イオンの酸化反応($\text{Fe}^{2+} \rightarrow \text{Fe}^{3+}$)を利用し、吸光度の変化を測定するものである⁶⁾。フリッケ線量計はその測定精度の高さから、報告から100年近く経つ現在でも利用されている。ゲル線量計としての研究は、1984年にJ. C. Goreらによって、核磁気共鳴装置(Nuclear Magnetic Resonance: NMR)を用いたスピン緩和速度の変化を測定できることを示し⁷⁾、1987年にA. Applebyらによってアガロースによって固化させたフリッケゲル線量計が作製され、磁気共鳴画像(Magnetic Resonance Image: MRI)装置による測定から3次元ゲル線量計として見出された⁸⁾。フリッケ水溶液をアガロースなどでゲル化させ、拡散を抑制するための鉄イオン(Fe^{+3})と錯体を形成するXylenol Orangeを添加した系が基本の組成となる^{9), 10)}。しかし、フリッケ線量計は有機不純物の混在によって Fe^{+2} が酸化されてしまい、感度の低下につながることから、ゼラチンやアガロースなどのゲル化剤濃度に注意する必要がある。また、フリッケ水溶液の組成に濃硫酸を含むため、調整時は注意が必要である。

2. ポリマーゲル線量計¹¹⁾

ポリマーゲル線量計はビニルモノマー水溶液中への放射線照射によるラジカル重合反応を利用した線量計である。照射によって生成したポリマーは水溶液中では拡散、沈殿を起こすため、ゲル化剤で固化した状態で照射することで生成したポリマーを保持することができる。生成したポリマーは可視光を散乱させるために白濁して見えるようになる。この白濁度合いが吸収線量との相関があるためこれを評価することで線量を測定することができる。空間線量分布評価は主にMRIやX線CT、光学CTが使われ、光学スキャナによる評価方法も報告されている^{12), 13)}。使用するモノマーによって主に2種類に分けることができ、Methacrylic acidを用いたMAG系^{14), 15)}とAcrylamideとBis系架橋剤を用いたPAG系^{16), 17), 18)}が開発されている。Acrylamideは劇物であり毒性が強いいため、取り扱いに注意を要する。また、ラジカル重合反応は溶存酸素により反応が阻害されてしまうため、脱酸素剤の使用や、ゲルを封入する容器は酸素に対するガスバリア性のある材質にする必要がある。

3. ラジオクロミックゲル線量計(色素ゲル線量計)¹⁹⁾

色素ゲル線量計は水等価な材料内に界面活性剤によって色素を分散させ、主に放射線照射による水の分解生成物による色素の酸化反応を利用し、色素の色の変化、発色の反応を利用した線量計である。界面活性剤によって色素を中心にミセルを形成させて分散させる色素ゲルはミセルゲル線量計ともよばれ、色素は主に **Leuco malachite Green** や **Leuco Crystal violet** が使用され、ゼラチンによってゲル化される^{20),21),22)}。この他、ポリウレタン樹脂に色素を固定させた **PRESAGE™**²³⁾など、すでに販売されているものもある。測定方法は主に光学 CT が使用され、これは透明性の高い色素ゲルにとって大きい利点である²⁴⁾。ゼラチンでゲル化する場合熱的安定性が問題となり、照射後の色素が水溶性となるものは色の拡散対策が必要である。また、色素ゲルの専用の読み取り装置である光学 CT 装置のより広い普及が必要である。

第三節 本研究の目的

本研究では、開発した PVA-KI ゲルに対し各種放射線を照射し、PVA-KI ゲルの特性、感度、線量計としての能力について明らかにすることを全体の目的としている。本研究では、X 線照射およびガンマ線照射を行い、吸光度測定から吸収線量に対する比例的応答性の確認を行った。また、PVA-KI ゲルの感度について構成試料の濃度依存性について確認を行った。

PVA-KI ゲルの色の初期化反応について加温における吸光度の測定を行い、その変化を吸収スペクトル測定および時間分解測定から色の初期化反応メカニズムについての解明を目的とした。

PVA-KI ゲルへの陽子線照射を行い、吸光度測定から陽子線の飛程の確認を行う。また、モンテカルロシミュレーションによる計算結果との比較から、PVA-KI ゲルの陽子線に対する感度について明らかにする。

さらに、PVA-KI ゲル専用に撮像装置と解析ソフトを作製し、PVA-KI ゲルに特化した専用の PVA-KI ゲル測定システムを開発し、画像の RGB 値解析による連続した距離に対する吸収線量の測定を行った。また、測定によって得られた RGB 値から吸光度へ変換する線量評価手法を考案し、He イオン照射実験に適応させ、ブラッグ曲線およびブラッグピークの測定を行った。測定結果とモンテカルロシミュレーションの計算結果との比較を行い、PVA-KI ゲル測定システムと線量評価手法の妥当性を明らかにすることを目的とする。

第二章 PVA-KI ゲル線量計

第一節 ゲル線量計の研究開発戦略

2011年3月11日に発生した東日本大震災によって、その巨大地震動と津波の影響により東京電力福島第一原子力発電所の放射性物質の放出を伴う事故が発生した。砂川らは、放射性物質の分離・捕集技術の研究として、Arプラズマを用いたヨウ素(I_2)の分離捕集研究が行われ、その研究成果の中で、KIを使用することにより、ごく微量の I_2 を捕集する手法を確立し、その中で I_2 とKIの反応によるポリヨウ素イオン(I_3^-)の生成に伴う黄色の発色を見出した²⁵⁾。本研究はこのKIによる I_2 の捕集法を基に化学線量計およびゲル線量計としての放射線の可視化技術の開発を開始した。

材料の選定時において、放射線照射を行う前に紫外線ライトによる試料への照射を行い、試料の色の変化がみられるかどうかを前提の試験とし、紫外線による感度が観られない場合は放射線(X線)に対しても感度は得られないと判断した。そこで、 CH_3I への放射線照射によって生成される I_2 をKIが捕獲することで I_3^- が生成され、 I_3^- の波長288 nm、350 nmにピークを持つ黄色の発色の想定した系を考案した。

次に、放射線の可視化において線量計の色の変化を確認しやすくするために、透明性の高い材料が重要とした。透明性が非常に高く、水溶性のポリマーとしてポリビニルアルコール(PVA)が最適であると考え、さらに、ホウ砂を加えることでPVA水溶液とホウ砂の架橋によるゲル化を利用することでゲル線量計の開発ができると考えた。また、 CH_3I とホウ砂水溶液は無色透明な液体であり、KIは水に易溶で水溶液は無色透明であることにも注目した。

CH_3I を界面活性剤によってKI水溶液に分散させ、PVA水溶液とホウ砂によってゲル化させた系での発色の観察を試みた。しかし、この時作製したゲルは、紫外線によって発色を確認できたが、X線照射では、発色は見られなかった。ここで、ゲルに含まれる試料が、他の反応を阻害している可能性などの要因を除くために、ゲル作製に使用する材料を一つずつ除いていき、X線照射を行い、確認を行うこととした。

この時、偶然、PVA水溶液にKIのみ添加した系へのX線照射において始めて赤い呈色を確認し、PVAとKIを利用した高感度ゲル線量計の開発が可能だと考えた。なお、放射線照射においてPVAとKIによる赤の呈色はKIから生成した I_3^- とPVAとの錯体形成に伴うものであることが後の文献調査で明らかになった²⁶⁾。

以上により、本研究において、PVAとKIからなる I_3^- との赤の呈色反応を利用し、PVA水溶液をホウ砂で架橋した新規のゲル線量計、PVA-KIゲル線量計を開発した。

第二節 研究の独自性

PVA と KI を使用した線量計としては、1964 年に磯崎らがフィルム状の線量計開発を報告している⁷²⁷。また、2016 年に三好らは PVA と KI にナノ粒子状のシリカを添加した線量計を開発しており、ナノ粒子状のシリカの影響により、放射線照射後発色したゲルが時間経過と共に発色前の状態に戻ることを利用した再利用可能性を報告している²⁸⁾。

前節で述べた戦略によって開発した PVA-KI ゲルのオリジナルな点は、ゲル化において、PVA 水溶液にホウ砂とホウ砂糖液(還元性単糖類の水溶液)²⁹⁾を添加して架橋をし、非常に透明度の高いゲル線量計を開発したところにあるホウ砂糖液は pH = 約 7 に調整されており、ホウ砂水溶液単体では PVA-KI ゲルはアルカリ性となり、赤の呈色を阻害してしまう。さらに、ホウ砂糖液の使用は、照射後呈色した PVA-KI ゲルを加温することで呈色前の無色透明な状態に戻し、PVA-KI ゲルの再利用性についての反応を見出した。加温による色の初期化は他のゲル線量計では見られない性質である。

第三節 PVA-KI ゲル線量計の作製

1. 作製に使用する試料および濃度組成

本研究における PVA-KI ゲルの作製に使用した試料について、製造販売会社、製品名等とともに以下に列挙する。なお、PVA は実験の内容によって異なるものを使用している場合があるので、PVA に関してはそれらすべてをここに記す。

ポリビニルアルコール: PVA (Polyvinil alcohol), $(-\text{CH}_2\text{CH}(\text{OH})-)_n - (-\text{CH}_2\text{CH}(\text{OCOCH}_3)_m-$

- ・北国糊料工業 (PVA せんたくのり北国ノール), 平均重合度 1700 ~ 2000, ケン化度 88 mol%, (PVA 水溶液 10 wt%)
- ・三菱ケミカル (ゴーセノール™ GH-20R), 平均重合度 2000, ケン化度 87.8 mol%, (顆粒状)
- ・三菱ケミカル (ゴーセノール™ GH-17R), 平均重合度 1700, ケン化度 87.8 mol%, (顆粒状)
- ・和光純薬 平均重合度 1500, ケン化度 86.0 ~ 90.0 mol%, (顆粒状)
- ・ナカライテスク 平均重合度 500, ケン化度 86.5 ~ 89.0 mol%, (顆粒状)

ヨウ化カリウム: KI, ナカライテスク ($\geq 99.5\%$)

ホウ砂: 四ホウ酸ナトリウム, $(\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O})$, 松葉薬品

果糖: Fructose, $(\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6)$, 日新製糖 (フルーツシュガー)

蒸留水

表 2-1 に PVA-KI ゲルの組成について質量濃度(wt%)で示す。本論文において、それぞれ組成の異なる試料の呼称は KI の濃度別による。

表 2-1 PVA-KI ゲルの組成

	KI 9 wt%ゲル	KI 8 wt%ゲル	KI 5 wt%ゲル
PVA	5.45 wt%	4.62 wt%	4.74 wt%
KI	9.09 wt%	7.69 wt%	5.26 wt%
ホウ砂	3.64 wt%	3.08 wt%	3.16 wt%
果糖	4.97 wt%	4.21 wt%	4.32 wt%
蒸留水	76.85 wt%	80.40 wt%	82.52 wt%

2. 作製方法

次に PVA-KI ゲルの作製方法について記述する。作製する際、10 wt% PVA 水溶液およびホウ砂と果糖の混合水溶液(以降、ホウ砂糖液)を別途作製するため、PVA 水溶液およびホウ砂糖液の作製方法を先に記述する。

2-1. 10 wt% PVA 水溶液の作製(100 g)

- 1) ホットスターラーと 500 ml ビーカー、ビーカーの内径に合ったマグネチックスターラー用回転子を用意し、ビーカーに回転子を入れる。
- 2) 1) に蒸留水 90 g を量り入れる。この時の水温は室温もしくは室温以下が好ましい。
- 3) PVA を薬包紙上に 10 g 量りとる。
- 4) 2) のビーカーをスターラーで攪拌しながら、3) の PVA を、スパチュラを用いて少量ずつ投入する。
- 5) 全量を投入後、約 30 分間攪拌を続け、PVA を水中によく分散させ、膨潤させる。その後、ビーカーと回転子、蒸留水、PVA の質量を量り、記録しておく。
- 6) 5) のビーカーにアルミホイルを張り、ホットスターラーを用いて攪拌しながら約 80 °Cまで加熱する。
- 7) 過熱により 80 °C到達後、約 80 °Cを維持しながら、約 1 時間攪拌を続ける。
- 8) 1 時間経過後、過熱を停止し、自然放熱によって 40 °C以下になるまで冷却を行うために攪拌を続ける。
- 9) 冷却終了後、攪拌を停止し、8) のアルミホイルを取り除いた質量を量り、5) の質量との差を求め、減少した質量分の蒸留水を加えて約 10 分攪拌する。

2-2. ホウ砂糖液の作製(250 g)

- 1) ポリプロピレン(PP)製蓋付広口瓶にホウ砂 25 g、果糖 34 g をそれぞれ量り入れる。
- 2) 1) に蒸留水を 191 g 加え、全量 250 g にする。
- 3) PP 容器の蓋を閉め、良く振とうし、溶かす。

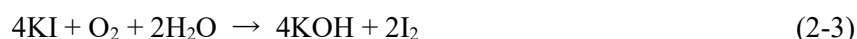
2-3. ゲル試料の作製(KI 9 wt%, 165 g)

- 1) 200 ml ビーカーにホウ砂糖液 60 g を量り入れる。
- 2) 1) KI 15 g を加え、ホウ砂糖液に溶かす。
- 3) 500 ml ビーカーに 10 wt% PVA 水溶液 90 g を量り入れ、2) のホウ砂糖液、KI 水溶液を加える。
- 4) 3) を、スパチュラを用いてよく攪拌し、ゲル化させる。
- 5) 4) をガスバリア性のある蓋付容器に封入し、約 1 日、遮光をかけて静置後、使用する測定容器等に移し入れて試料とする。この際、自然酸化による呈色が観られる場合、インキュベーターによって 50 °Cで約 6 時間加温することで透明に戻す。

第四節 呈色原理

PVA-KI ゲルの呈色原理は部分ケン化型 PVA とポリヨウ素イオン(I_3^-)との錯体形成反応によるものであり、1960 年代に林らによって部分ケン化型ポリビニルアルコールのヨード反応として研究、報告されている²⁶⁾。以下に PVA-KI ゲルにおける呈色反応の原理について述べる。

水溶液中の KI の酸化反応について以下の反応(2-1), (2-2), (2-3)に示す。反応(2-1)のように KI は水溶液中において電離されて K^+ と I^- となり、 I^- は酸化されて I_2 を生じさせる。 I_2 が生じる(反応(2-3))。



このように KI 水溶液中には KI が酸化されて生じた I_2 があるため、次の反応(2-4)のように I_3^- を生成する。



また、酸素存在下の水溶液への放射線照射により、水は分解され、水の放射線分解生成物として、ヒドロキシラジカル($\cdot OH$)、水和電子(e_{aq}^-)、水素ラジカル($H\cdot$)、過酸化水素(H_2O_2)、水素分子(H_2)が生成することが知られている。

KI 水溶液への放射線照射により生成した、 $\cdot OH$ の酸化反応について反応(2-5)に示す。 $\cdot OH$ の生成に伴い、1 回の酸化反応を起こす。



次に、 H_2O_2 の酸化反応を示す。反応(2-6)で生成された $\cdot OH$ は反応(2-5)の通りに酸化反応を起こすため、反応(2-7)に示すように 2 回の酸化反応を起こす。



次に、放射線照射により生成した e_{aq}^- と $H\cdot$ の酸化反応を示す。pH 4 ~ 9 の水溶液中では、反応(2-8)に示す平衡反応があるため、 e_{aq}^- と $H\cdot$ の両者が共存する。反応(2-9)のように $H\cdot$ は酸素と反応し、 HO_2 を生成する。



酸性水溶液中における HO_2 の酸化反応を、反応(2-10), (2-11), (2-12)に示す。反応(2-11)で発生した H_2O_2 は反応(2-7)の通りに酸化反応を起こすため、反応(2-12)に示すように3回酸化反応を起こす。



以上の反応(2-5), (2-7), (2-12)から、酸性で、酸素存在下の KI 水溶液中への放射線照射によって発生した各活性種によって、反応(2-13)に示すように KI を 6 回酸化することができる。



放射線照射によって生成した I_2 は、反応(2-4)の通りに I^- と結合し、 I_3^- を生成する。ここで、PVA の工業的な作製方法は、酢酸ビニルをラジカル重合したポリ酢酸ビニル (Polyvinyl acetate: PVAc) を原料として、ケン化反応によって酢酸基(CH_3COO)が加水分解されて水酸基(OH)に置換することで作製される。PVA が水溶性であることはこれに起因する。作製後の PVA は分子鎖中の CH_3COO と OH の比率によってケン化度(mol%)が決定され、ケン化度が約 98.0 %以上のものを完全ケン化型、約 80 mol % ~ 90 mol %のものを部分ケン化型として区別される。部分ケン化型 PVA の分子鎖中に存在する CH_3COO の分布は集団的(13~14)であり、この CH_3COO と I_3^- が結合し錯体を形成することで赤の呈色を示し、この錯体物の吸光波長は 490 nm に確認される²⁶⁾。以上から、PVA-KI ゲルの放射線照射による呈色は、水の放射線分解によって生成された I_3^- と、部分ケン化型 PVA との錯体物の生成によるものである。

第五節 PVA-KI ゲルのゲル化の原理

PVA-KI ゲルは、作製に PVA とホウ砂を使用しており、ゲル化はこの両者の架橋反応によるものである。ホウ砂は水溶液中ではホウ酸($B(OH_3)$)とボラートアニオン($B(OH)_4^-$)に乖離する。PVA 水溶液中にホウ砂水溶液を加えるとボラートアニオンの-OH 基と PVA の-OH 基が水素結合により架橋し、剛性が高い分子間の立体的な構造を形成する。ホウ酸は、ホウ酸内の-OH 基と PVA の-OH 基と水素結合し、PVA 分子間をつなぎ、ゲル状物質の流動性を生む。

ここで、ホウ砂水溶液の pH は約 9 であり、このまま PVA とのゲル化をするとゲルはアルカリ性となる。ゲルがアルカリ性の場合、放射線照射によって生成したポリヨウ素は還元させられて消失し、PVA とポリヨウ素の錯体物が増加しないことから放射線感応性を失わせてしまう。前節で述べた呈色反応を得るためには、pH6~7 に調整する必要がある。そのため、PVA-KI ゲルは還元性単糖である果糖を pH 調整材として加えることで pH 約 7 に保つようにしている。この手法は、砂川らによる発明特許におけるゲル状物質の軟らかさの調整方法としたホウ砂糖液を参考にしている²⁹⁾。

第六節 加温による色の初期化反応

前節で述べたように、PVA-KI ゲルは還元性単糖である果糖を添加しており、pH=7 に調整している。PVA-KI ゲルが pH=9 以上の場合、還元性単糖類はその還元作用によりポリヨウ素を消失させることが可能であるが、本ゲルは pH=7 以下であるため果糖がポリヨウ素を還元することは難しい。

色の初期化反応についての確認実験として、ポリヨウ素を含有するヨウ素液に果糖、ブドウ糖、マンニトールをそれぞれ添加し、50 °C で加温した場合の観察を行った。還元性単糖類である果糖とブドウ糖の溶液でポリヨウ素の消失が確認され、非還元糖であるマンニトールでは消失は見られなかった。ホウ砂と糖の溶液を添加した場合、還元性単糖類ではないマンニトールについてもポリヨウ素の消失が見られた。このことから、本ゲルの消色反応は加温による還元性単糖である果糖の作用と、ホウ砂と糖との反応生成物による 2 つの要因によって引き起こされると考えられている。

なお、pH=7 付近での糖の分解に関する研究において、速水らによって糖の分解に伴って還元性を持つ Hydroxy-2-propanone (別名 Acetol) の生成についての報告がされている²⁷⁾。Acetol の生成は、ヘキソース (ブドウ糖)、ペントース (果糖)、メチルペントースから生成されるが、テトロース、トリオースからは生成しないことが知られており、糖の構造の違いがアセトール生成機構に大きく反映されることが示唆されている。

第三章 X線およびガンマ線照射効果

第一節 緒言

X線およびガンマ線を用いた放射線治療は、今日では、線形加速器を用いた高エネルギーX線による三次元原体照射(3D-CRT: Three Dimensional Conformal Radiation Therapy)や強度変調放射線治療(IMRT)が主要な治療方法、治療装置として知られている。特にIMRTについては照射時にコリメーターを常に変化させることで、腫瘍の形に合わせた強度のX線照射ができるため、従来のX線照射による治療の中でも腫瘍周辺の正常組織への影響を低く抑えることができている、近年の照射技術の発展がみられる。

しかしながら、X線やガンマ線の性質は光子であるため、物質中においてはコンプトン散乱、光電効果などの相互作用によって放射線強度を失う。そのため物質へ照射した際の吸収線量の分布は、物質表面で最大となり物質内部になるにつれ、減少する。放射線治療においては腫瘍より浅い正常組織への影響が大きくなってしまいうため、腫瘍への照射を多方向から行うことで、周辺組織への影響を低減しつつ、腫瘍部分に集中させ、積算された吸収線量となるような照射方法がとられる。また、ガンマナイフなどの低位放射線治療(SRT: Stereotactic Radiation Therapy)についても多方向から腫瘍部分に向けた照射で目標の部分を高線量にする照射治療が行われる。

本章では、PVA-KIゲルに対してX線照射装置およびガンマ線照射施設を用いてX線、ガンマ線に対するPVA-KIゲルの感度について考察を行う。X線照射装置およびガンマ線照射施設を使用してPVA-KIゲルへ各照射を行い、紫外可視分光光度計による吸光度測定により吸収線量に対する感度の評価を行う。照射実験ではPVA-KIゲルの感度について線量率依存性の確認とKI濃度の依存性に関する結果を記述する。また、PVA-KIゲルの感度についてX線照射の結果から、KI濃度の依存性の確認、使用するPVAの重合度の依存性の確認を行った。

第二節 X線照射およびガンマ線照射実験

1. 測定方法および試料

X線およびガンマ線照射実験において、PVA-KIゲルの評価は照射前後での吸光度測定によって行った。吸光度測定は紫外可視分光光度計(Stellar Net社製 Black Comet)を使用した。図3-1に測定システムの全体を示す。光源ランプは重水素/ハロゲンランプ(190 nm ~ 2200nm)である。ゲル試料は、PVA水溶液(北国糊料工業、PVAせんたくのり北国ノール)を使用して作製した。KI濃度は9 wt%、8 wt%、5 wt%のPVA-KIゲルを用意し、吸光度測定用の光学ディスポセル(BRAND社製、光路長: 10 mm、PMMA製)に封入して試料とした。照射は2 Gyと3 Gyとなる照射を各5回行い、照射前後で測定を行った。照射後の吸光度は、測定値から照射前の測定値を差し引いたものを照射後の吸光度とした。

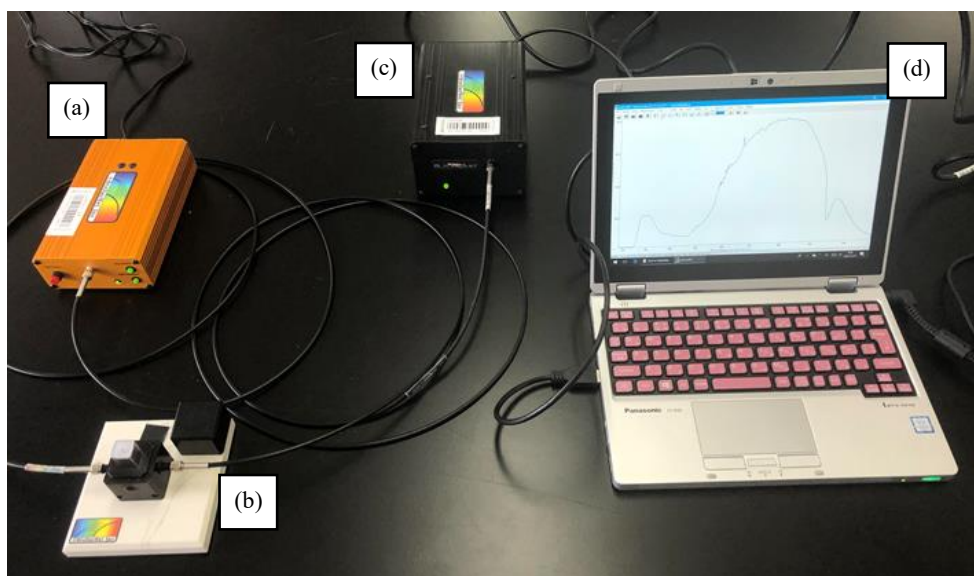


図3-1 紫外可視分光光度計(Stellar Net社製 Black Comet)測定システム

(a): 光源、(b): セルホルダー、(c): 分光器、(d): 制御用 PC

2. 照射装置および照射施設

a) X線照射

X線照射はX線照射装置(日立社製 MBR-1520R-4)を使用した。表3-1に本実験における照射条件について示す。図3-2にX線照射装置の外観および照射室内観を示す。照射条件において、線量率が0.2 Gy/minと0.3 Gy/minとなるように(焦点距離)を変更することで調整した。管電圧は150 kV、管電流は5 mAとした。フィルターはAl0.5 mmとCu 0.2 mmの複合されたフィルターを用い、軟X線領域をカットオフする。この管電圧、フィルターの条件におけるX線の実効エネルギーは約58 keVである。

なお、本論文において X 線照射実験における線量および線量率は、本照射装置に装備されている電離箱式線量計(PTW 社製 TN31013 型、容量 0.3 cm^3)による測定、装置内コンピュータによる補正計算によって出力された被照射体位置における空気カーマ(Gy)および空気カーマ率を示している。

表 3-1 X 線照射装置照射条件

管電圧	150 kV
管電流	5 mA
フィルター	Al 0.5 mm + Cu 0.2 mm
照射台位置(焦点距離)	
線量率: 0.2 Gy/min	530 mm
線量率: 0.3 Gy/min	430 mm



図 3-2 左) X 線照射装置(MBR-1520R-4)、右) 照射装置内観

b) ガンマ線照射

ガンマ線照射は、国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構(QST)、高崎量子応用研究所が所有する照射施設、食品照射棟第1照射室を使用し、 ^{60}Co 線源の1173 keV、1333 keVからなるガンマ線照射を行った。図3-3にガンマ線照射時の試料と線源の位置関係についての様子を示す。試料は線量率が0.2 Gy/minおよび0.3 Gy/minとなる位置に設置し、10分(2Gyおよび3Gy)の照射を1回の照射とした。なお、照射位置は電離箱式線量計によって測定、作成された照射室の線量率分布を参考に決定した。また、ガンマ線照射実験におけるガンマ線の線量と線量率は、電離箱式線量計で測定された空気カーマおよび空気カーマ率を示す。

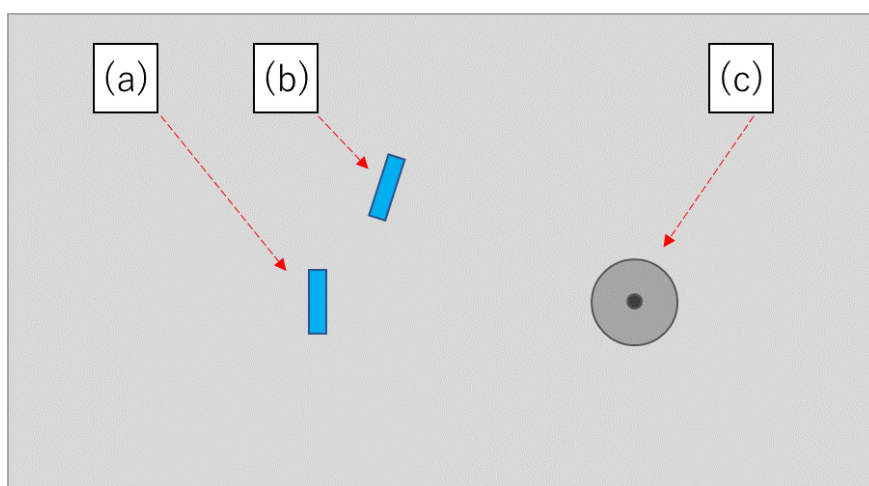


図3-3 照射時における線源とPVA-KIゲル試料位置の関係の概略図
(a): 0.2 Gy/minの試料位置、(b): 0.3 Gy/minの試料位置、(c): ^{60}Co 線源

第三節 X線照射およびガンマ線照射実験結果および考察

1. X線照射実験

図 3-4 に X 線照射後のゲル試料の呈色の様子について示す。PVA-KI ゲルの色は吸収線量の増加とともに赤色は濃くなることが確認できる。KI 濃度の差は、KI5 wt%の試料が他より薄く、KI9 wt%と KI8 wt%の試料の色の差は目視では判別が難しい。図 3-5 に KI9 wt%の試料、図 3-6 に KI8 wt%の試料、図 3-7 に KI5 wt%の試料の、吸収線量ごとの吸光度スペクトルの測定結果を示す。KI9 wt%と KI8 wt%の試料の 0.3 Gy/min 照射結果において、15 Gy 照射時の吸光度が 2.0 を超え、吸光度の測定限界を超えたため、これらの測定データは除いている。すべての測定結果において、約 490 nm に極大かつ単一の吸収ピークが確認できる。図 3-8 に各試料の 490 nm における吸収線量に対する吸光度の関係について示す。490 nm の吸光度の増大は、吸収線量に比例して増加しており、高い直線性を示していることが分かる。これは、第二章で述べたように、PVA-KI ゲル内の KI が X 線照射による酸化反応で生成された I_3^- と、部分ケン化 PVA の酢酸基との錯体形成反応によるものであり、すなわち、この錯体物が X 線照射によって増加し、490 nm に吸収を持つことによる。また、照射条件の線量率の違いについて、0.2 Gy/min と 0.3 Gy/min で変化は無く、X 線照射において線量率依存性がないことが示唆される。試料の KI 濃度の違いについては KI 濃度が高い試料が高い感度を示しており、KI 濃度依存性があることが考えられる。

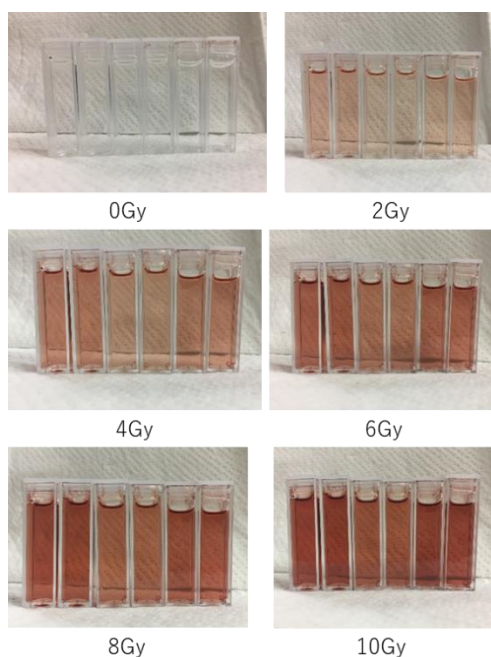


図 3-4 PVA-KI ゲルの X 線照射後(2 Gy/min)の様子
(左 2 本 : KI9 wt%、中央 2 本 : KI5 wt%、右 2 本 : KI8 wt%)

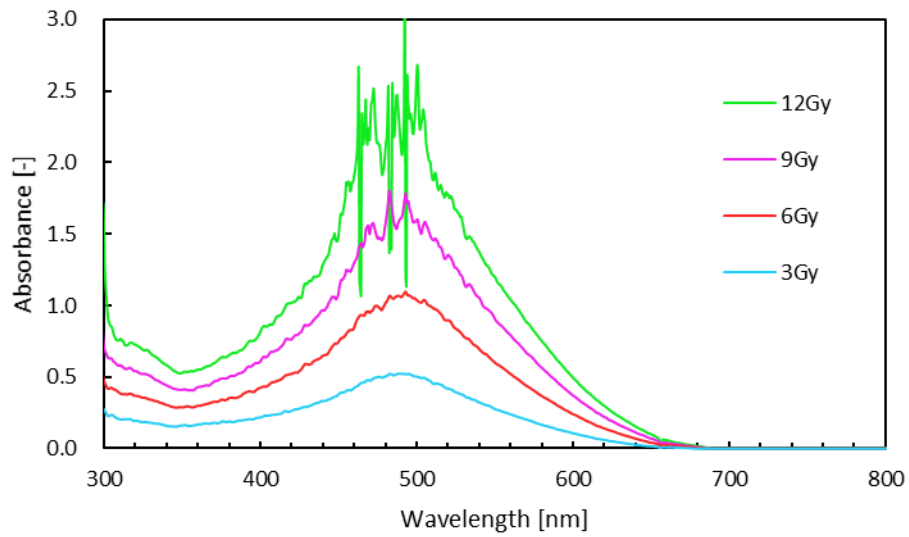
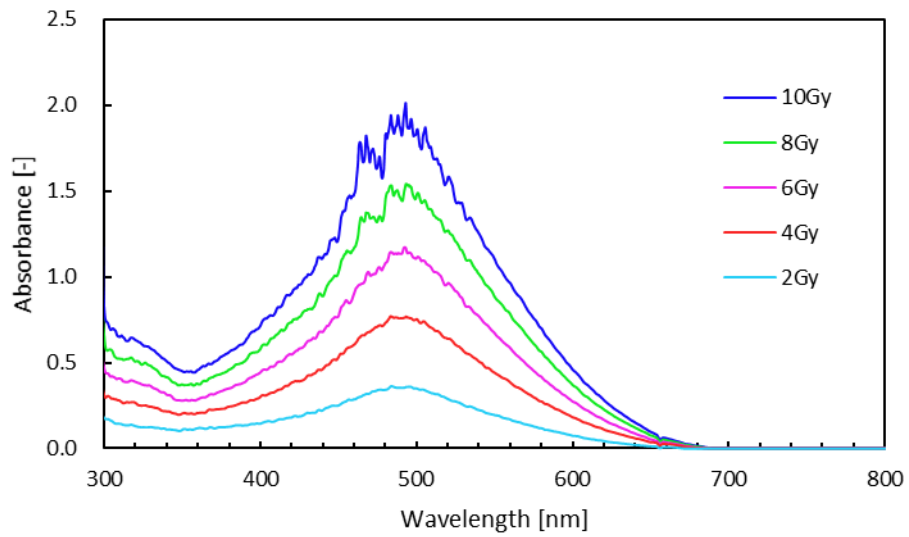


図 3-5 X線照射による KI9 wt%ゲル試料の吸光度スペクトル
(上 : 0.2 Gy/min、下 : 0.3 Gy/min)

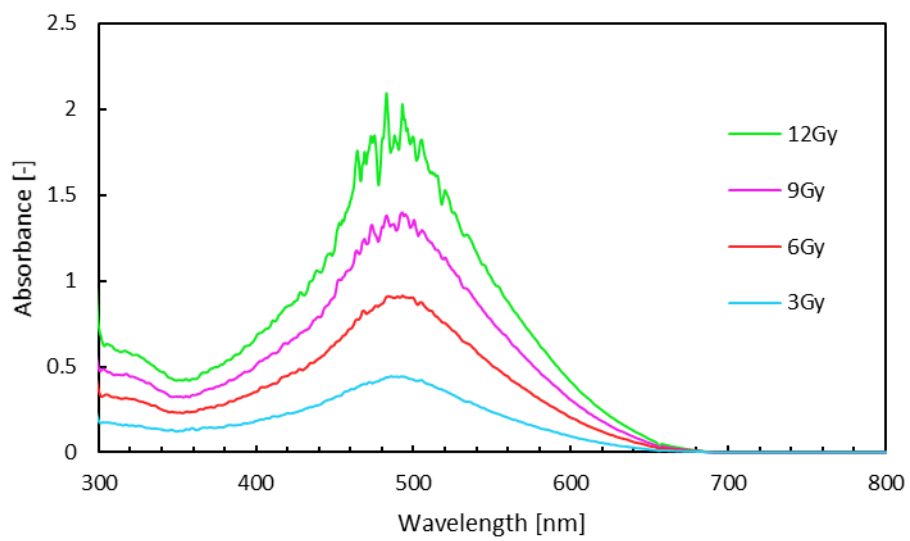
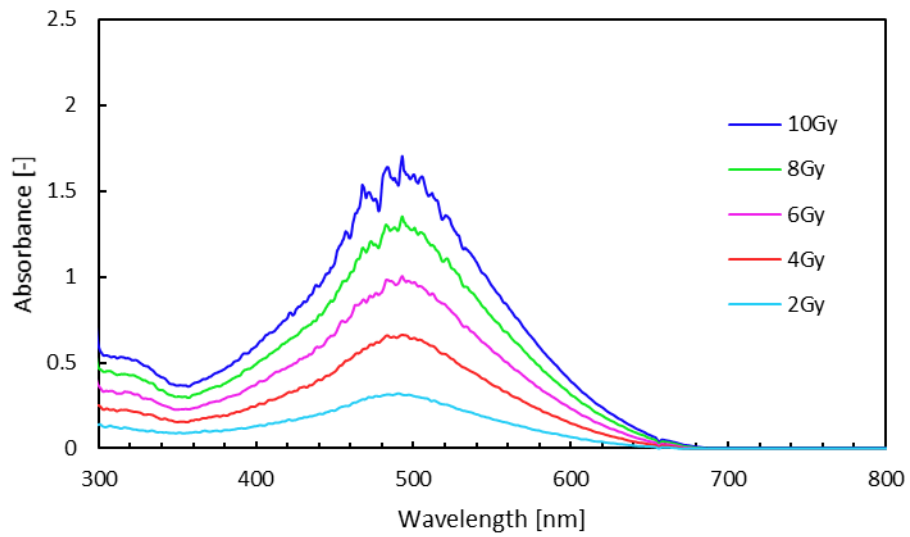


図 3-6 X線照射による KI8 wt%ゲル試料の吸光度スペクトル
(上 : 0.2 Gy/min、下 : 0.3 Gy/min)

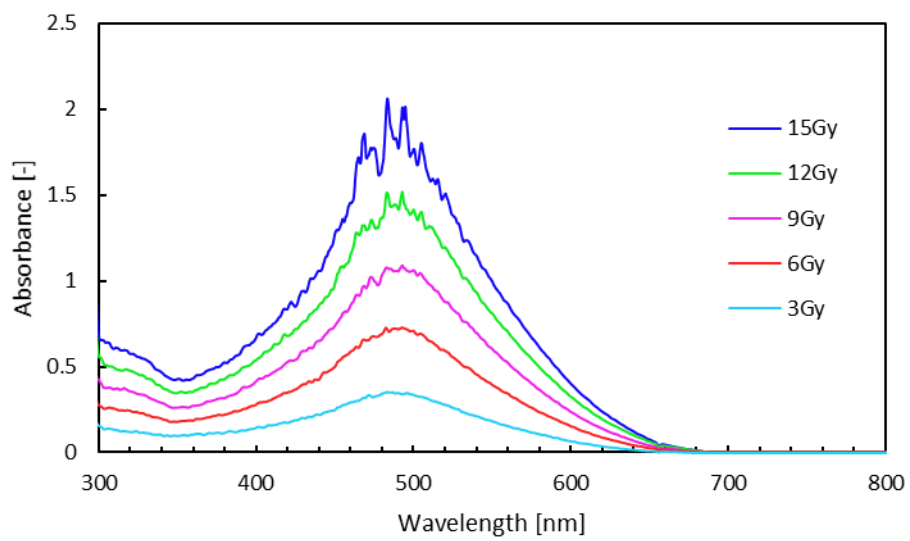
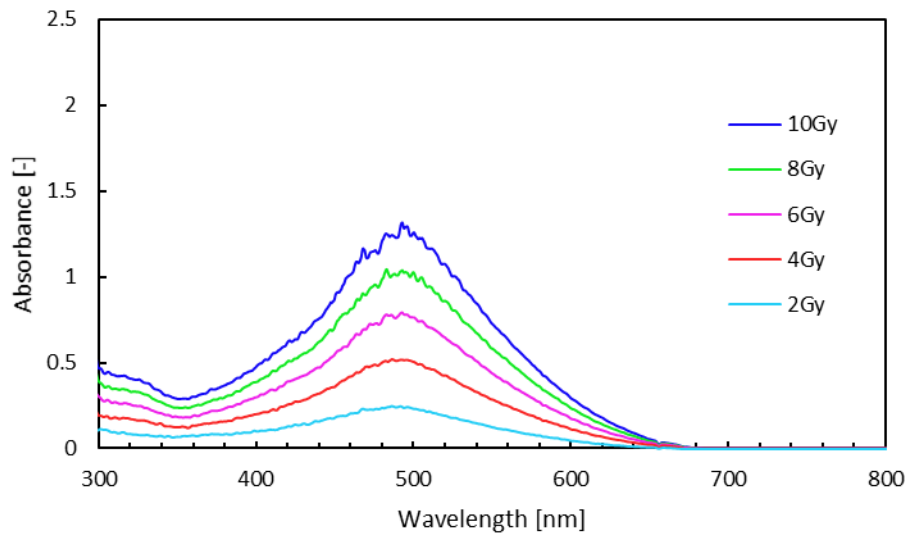


図 3-7 X線照射による KI5 wt%ゲル試料の吸光度スペクトル
(上 : 0.2 Gy/min、下 : 0.3 Gy/min)

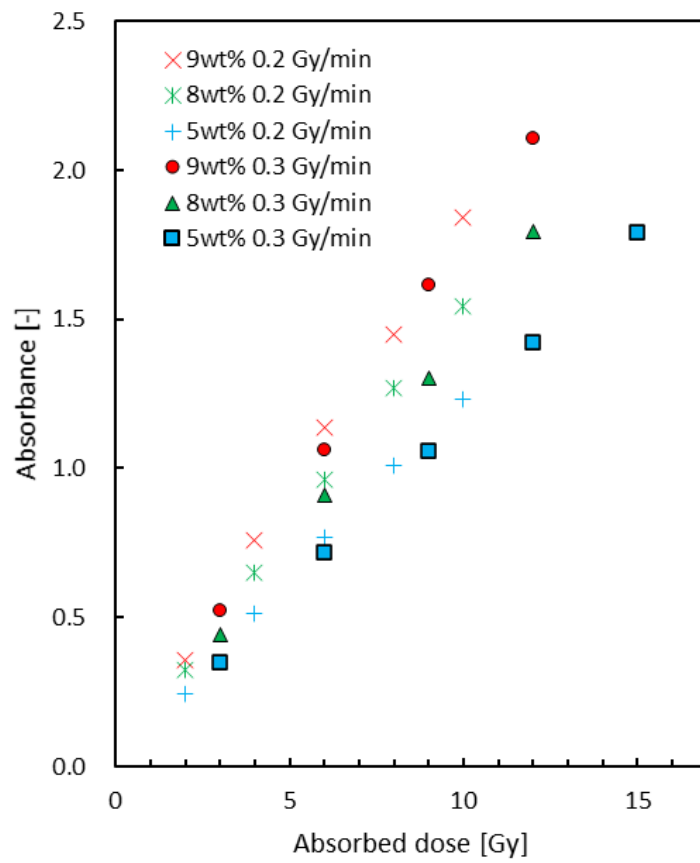


図 3-8 X線照射における吸収線量に対する 490 nm の吸光度

2. ガンマ線照射実験

図 3-9 に KI9 wt% の試料、図 3-10 に KI8 wt% の試料、図 3-11 に KI5 wt% の試料の、吸収線量ごとの吸光度スペクトルの測定結果を示す。X 線照射実験の結果と同様に、490 nm に単一の吸収ピークを確認できる。図 3-12 にガンマ線照射での各試料の吸収線量に対する 490 nm における吸光度について示す。吸光度は吸収線量に比例して増加していることが分かり、この結果は、X 線照射実験と同様の傾向であることが分かる。また、KI 濃度の高い試料が高い感度を示し KI 濃度の依存性について X 線照射実験と同傾向である。一方、線量率の違いについては 0.2 Gy/min の試料の吸光度が高い。ガンマ線照射においては低線量率に感度を持つ線量依存性があることを示唆している。

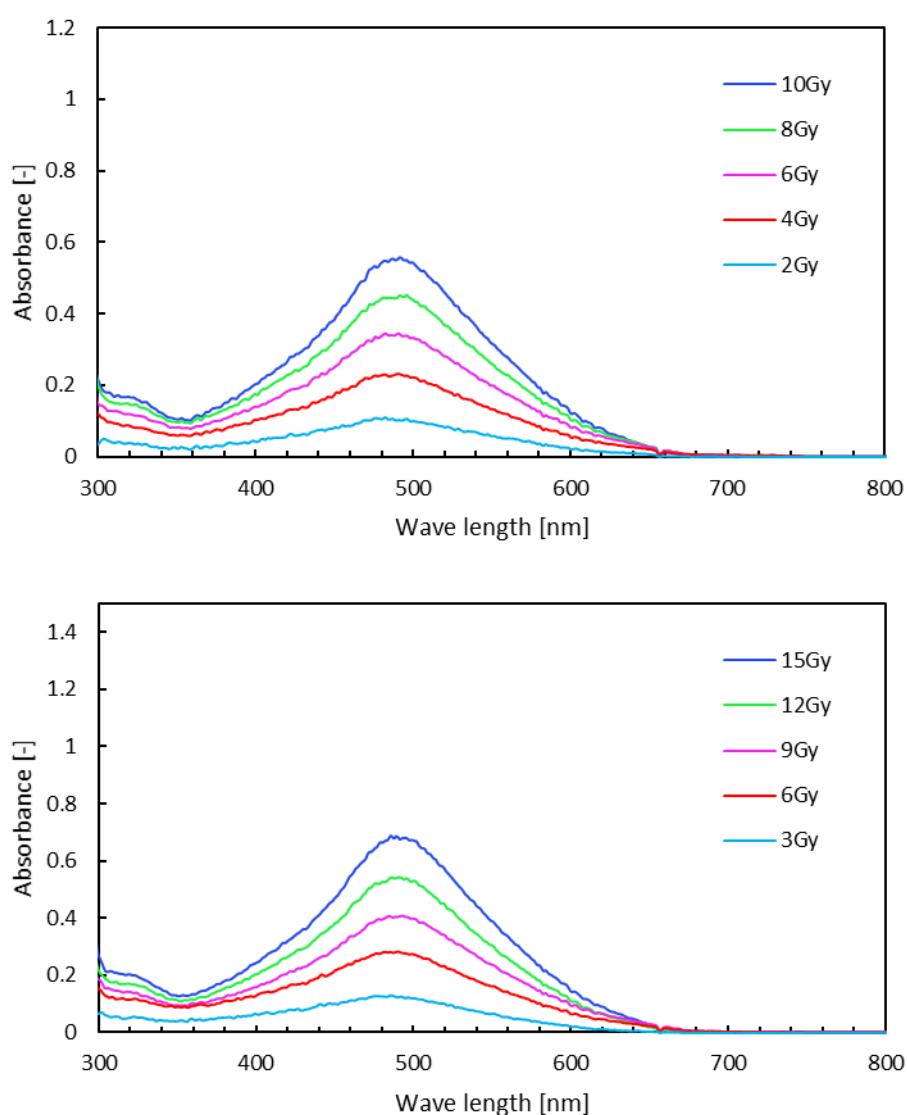


図 3-9 ガンマ線照射による KI9 wt%ゲル試料の吸光度スペクトル
(上 : 0.2 Gy/min、下 : 0.3 Gy/min)

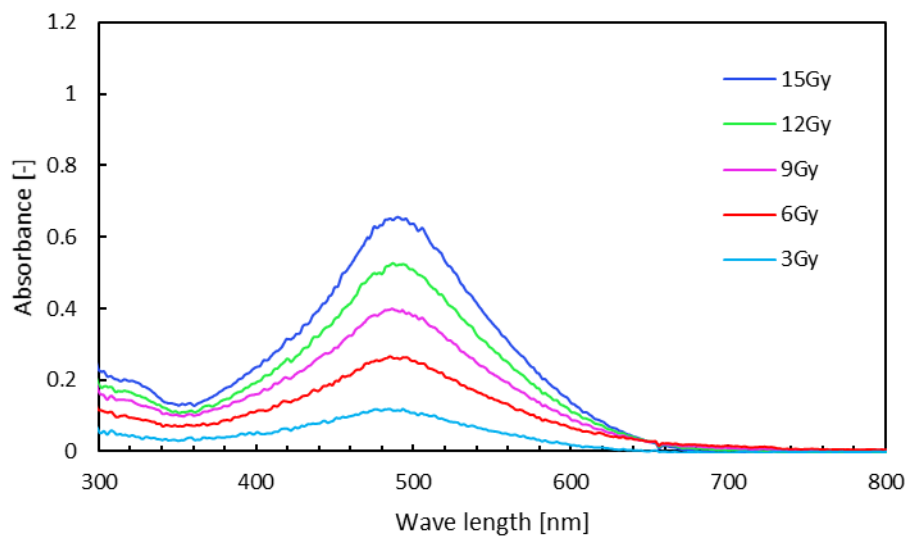
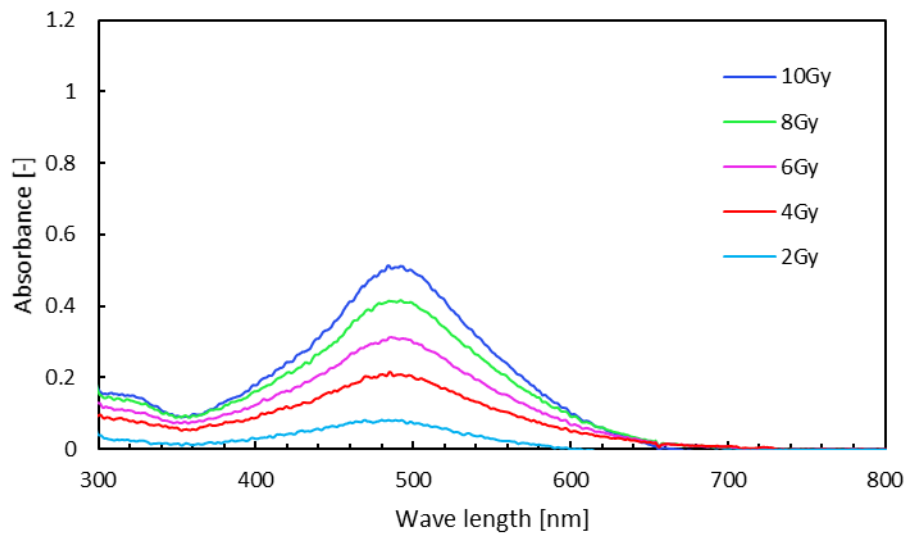


図 3-10 ガンマ線照射による KI8 wt%ゲル試料の吸光度スペクトル
(上 : 0.2 Gy/min、下 : 0.3 Gy/min)

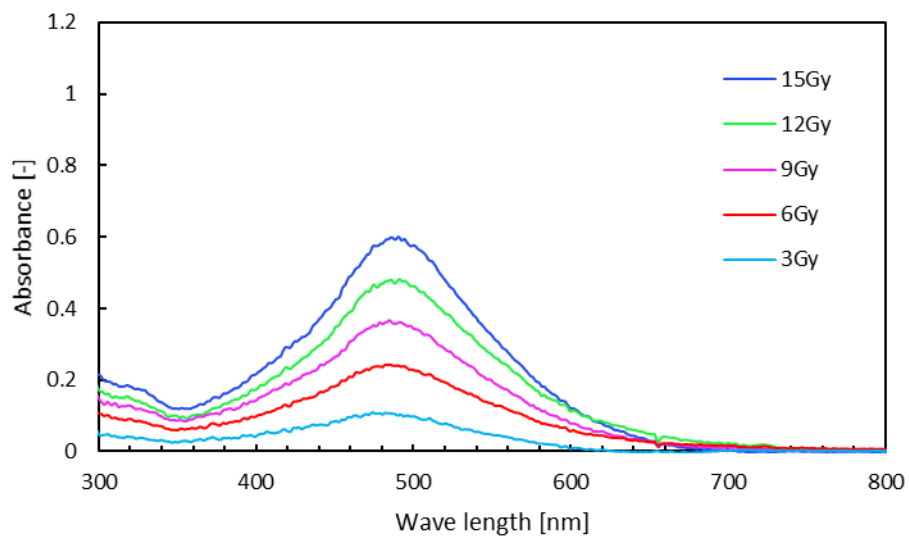
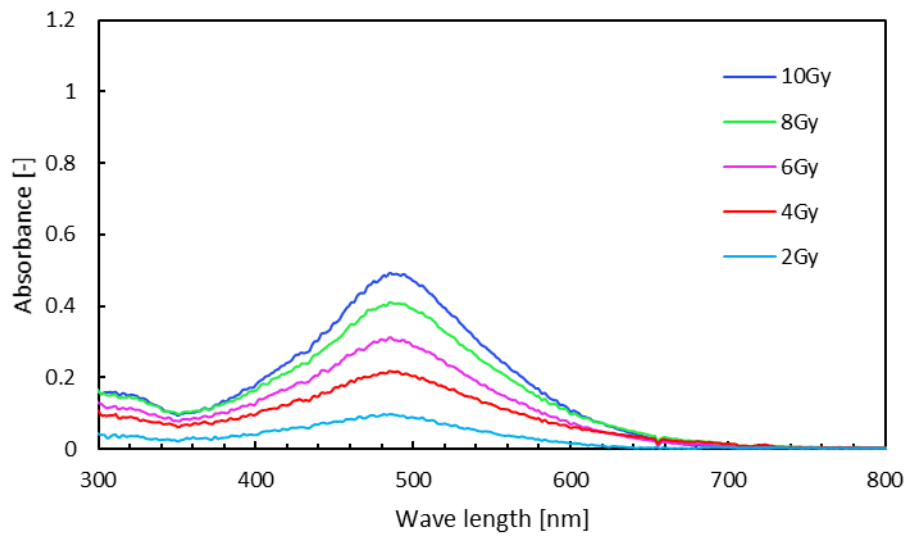


図 3-11 ガンマ線照射による KI5 wt%ゲル試料の吸光度スペクトル
(上 : 0.2 Gy/min、下 : 0.3 Gy/min)

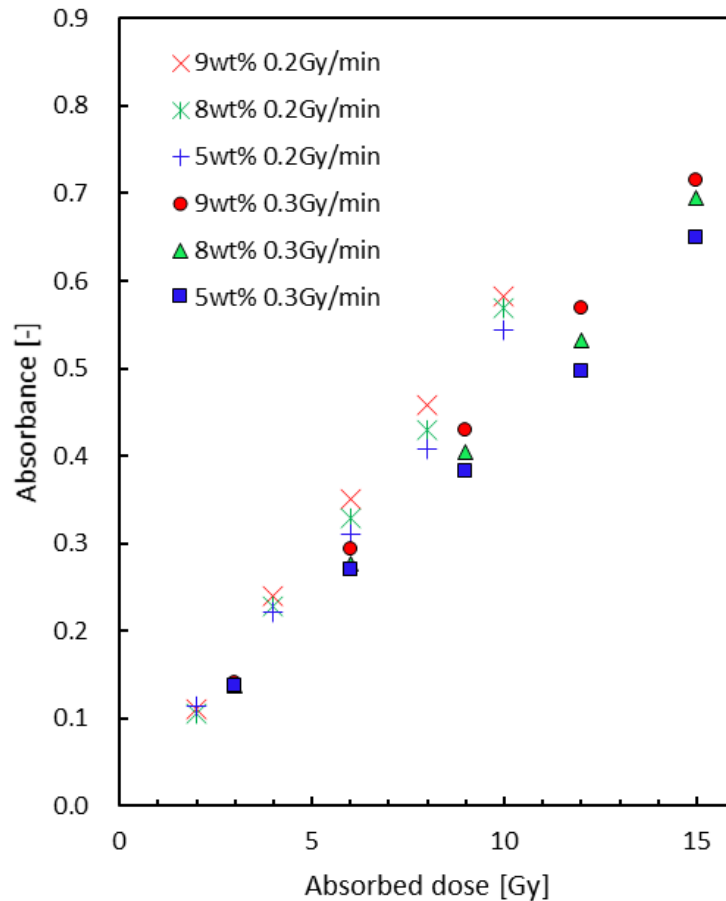


図 3-12 ガンマ線照射における吸収線量に対する 490 nm の吸光度

次に、図 3-13 に KI9wt%試料の吸収線量に対する 490 nm の吸光度について、X 線照射の結果とガンマ線照射の結果についての比較を示す。X 線照射の結果の方が全体的に吸光度は大きく、吸収線量に対する吸光度の傾きも大きい。X 線とガンマ線ともに光子の放射線であるため、照射による物質との相互作用および PVA-KI ゲルの反応メカニズムは基本的に同じであると考えるが、X 線とガンマ線ではエネルギー領域が異なる。本実験において、ガンマ線は ^{60}Co の 1173 keV と 1333 keV のエネルギー領域であるのに対し、X 線の照射条件(管電圧 150 kV、Al 0.5 mm + Cu 0.2 mm フィルター)での実効エネルギーは約 58 keV である。このエネルギーの差が X 線とガンマ線との感度の差であると考えられる。ここで、PVA-KI ゲルに含まれるヨウ素は、約 33 keV に K 吸収端を持つ。このため、今回の X 線照射の条件ではヨウ素の K 吸収端に近いエネルギー領域での X 線照射であったため、ガンマ線照射の結果よりも高い結果となったと示唆される。より高エネルギーの X 線照射装置での照射や、低エネルギーガンマ線源を使用した照射を行うことで、より正確な感度について明らかにできると考える。

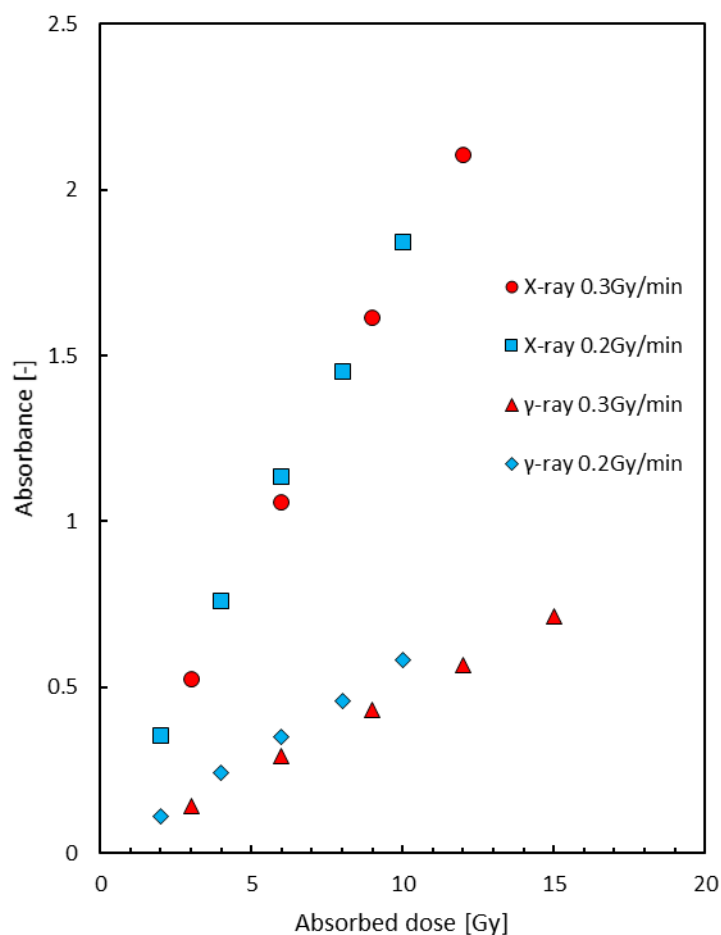


図 3-13 X 線照射およびガンマ線照射での 490nm における 9wt%ゲル試料の吸光度の測定結果

4. KI 濃度依存性についての考察

図 3-8 および図 3-12 の X 線照射とガンマ線照射の吸収線量に対する吸光度の結果から、PVA-KI ゲルの感度について KI 濃度に依存することが示唆された。図 3-14、図 3-15、図 3-16、図 3-17 に X 線照射およびガンマ線照射での試料の KI 濃度に対する吸光度について示す。吸光度は KI 濃度に伴って変化しており、吸収線量の増加と共に傾きは比例的に増大する傾向が見られる。これは、PVA-KI ゲルへ放射線照射された時の生成される I_3^- の量に影響を与えているものだと示唆される。ガンマ線照射での結果は、X 線照射の結果に比べ、KI 濃度に対する吸光度の変化量は少ない。これは、先に述べたように、X 線照射条件における実効エネルギーとヨウ素の K 吸収端エネルギーが近いことによる増感が要因であると考えられる。

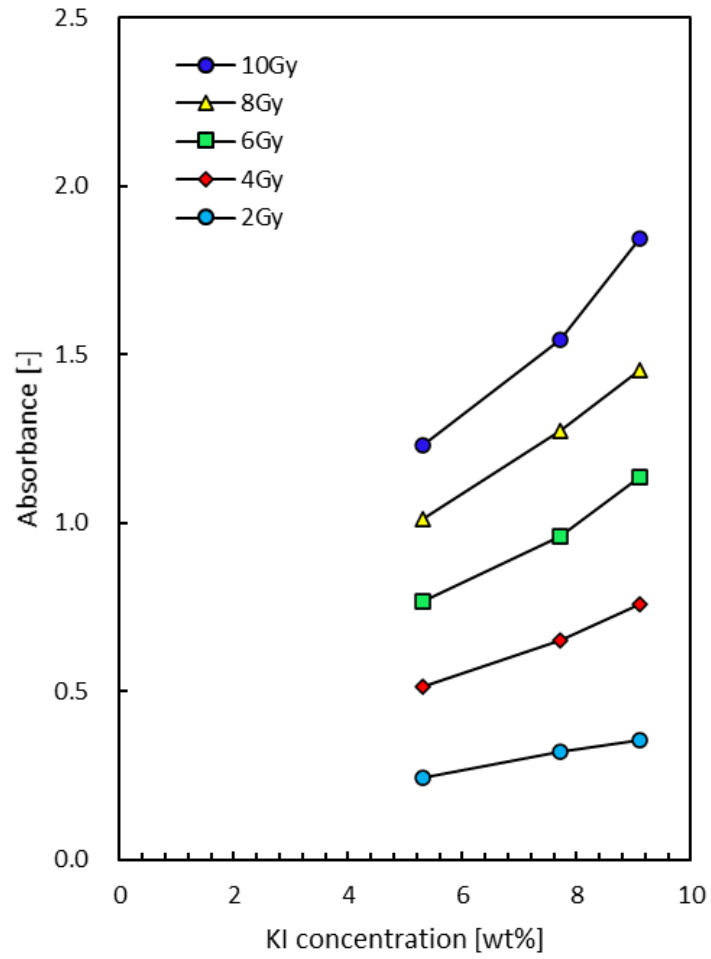


図 3-14 KI 濃度に対する吸光度の変化(X 線照射、0.2 Gy/min)

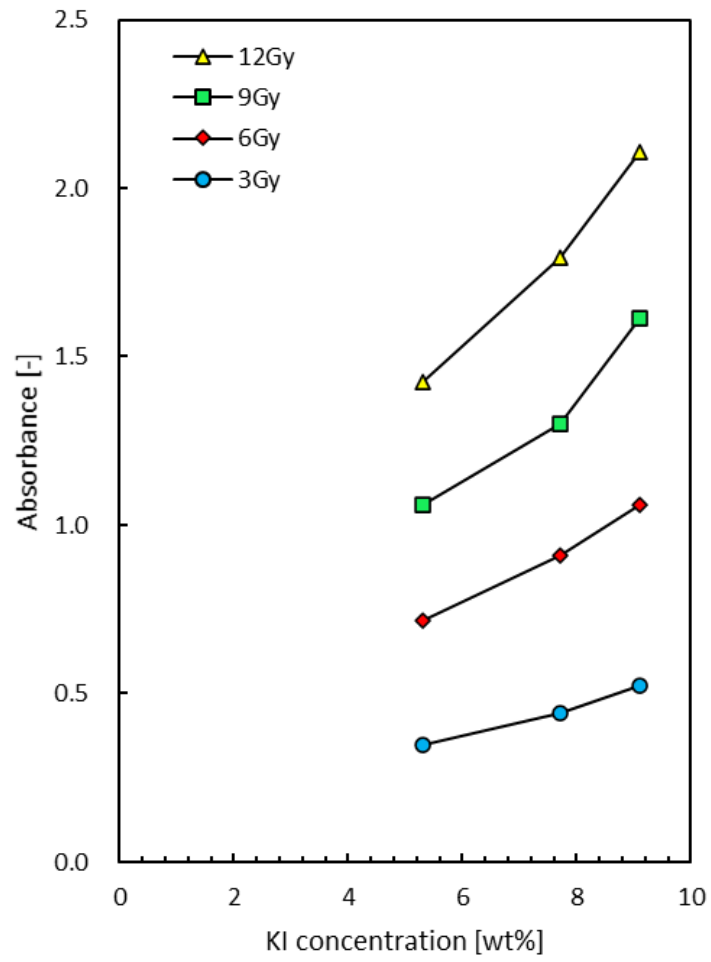


図 3-15 KI 濃度に対する吸光度の変化(X 線照射、0.3 Gy/min)

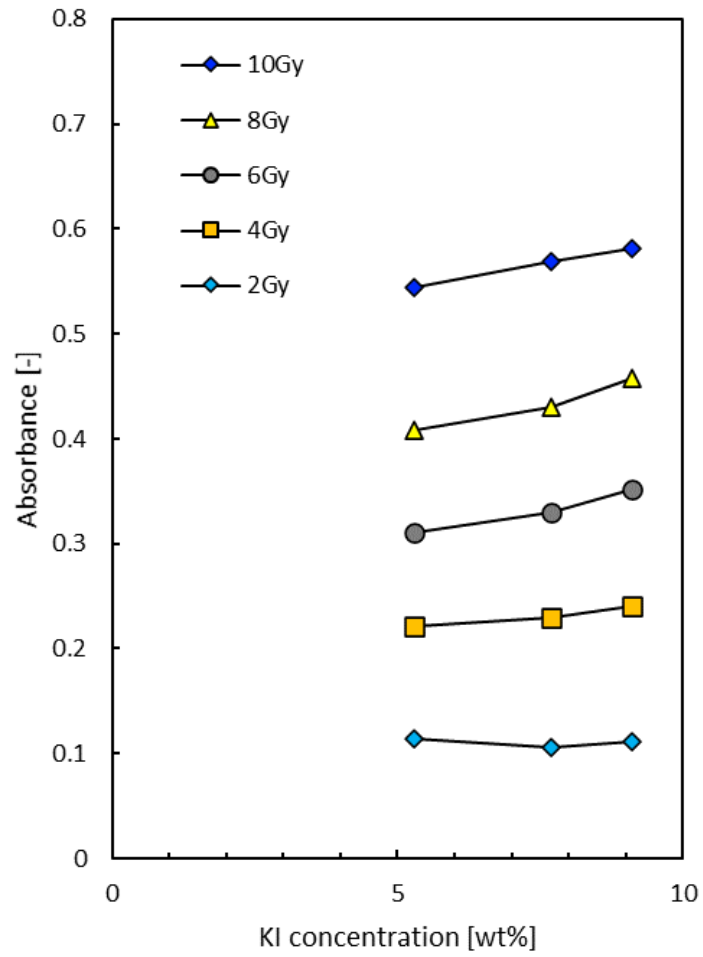


図 3-16 KI 濃度に対する吸光度の変化(ガンマ線照射、0.2 Gy/min)

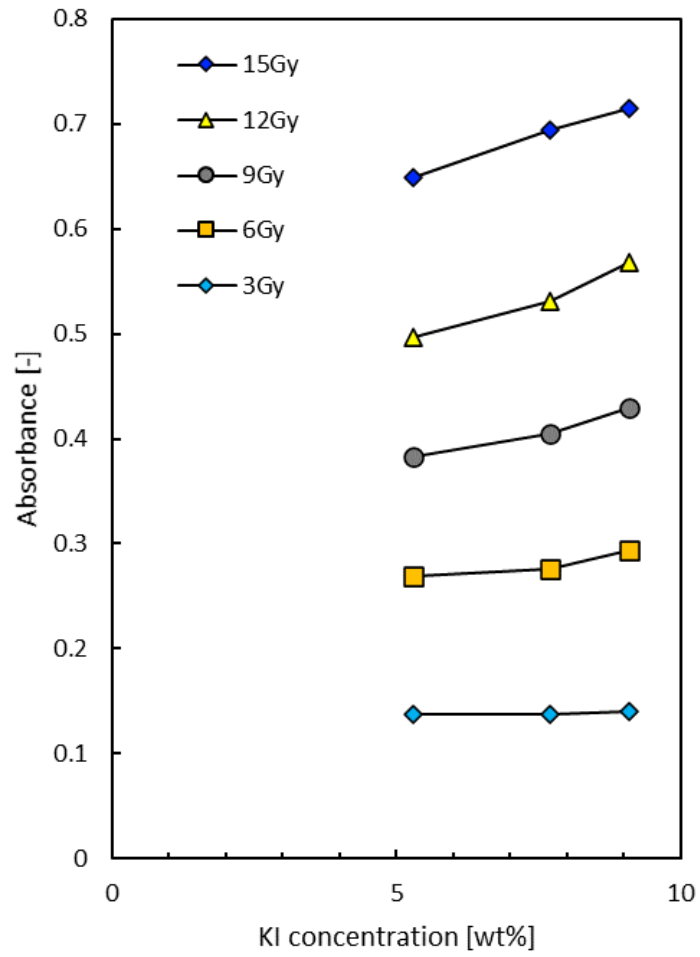


図 3-17 KI 濃度に対する吸光度の変化(ガンマ線照射、0.3 Gy/min)

第四節 PVA の重合度依存性の確認

PVA-KI ゲルの放射線に対する感度の評価は、部分ケン化 PVA と I_3^- との錯体形成による呈色反応を紫外可視分光光度計による吸光度測定で行われる。呈色反応の主要因である部分ケン化 PVA について、重合度が吸光度へ及ぼす影響について確認を行った。

1. 実験

PVA-KI ゲル試料は、重合度 500(ナカライテスク, ケン化度 86.5~89.0 mol%)、1500(和光純薬, ケン化度 86.0~90.0 mol%)、1700(三菱ケミカル ゴーセノール™ GH-17R, ケン化度 87.8 mol%)、2000(三菱ケミカル ゴーセノール™ GH-20R, ケン化度 87.8 mol%)の部分ケン化 PVA を使用し、KI9 wt%ゲル試料を作製した。照射は、X 線照射装置(日立 MBR-1520R-4)による X 線照射を 4 Gy~13 Gy の吸収線量で行った。表 3-2 に X 線の照射条件について示す。吸光度測定は紫外可視分光光度計 (Thermo Scientific EVOLUTION 200)を用いて各照射前後で測定を行った。

表 3-2 重合度依存性実験における X 線照条件

管電圧	150 kV
管電流	20 mA
フィルター	Al 0.5 mm + Cu 0.1 mm
照射台位置(焦点距離)	400 mm

2. 実験結果

図 3-18 に重合度 500~2000 の部分ケン化 PVA を用いた PVA-KI ゲルの吸収線量に対する 490 nm の吸光度の測定結果を示す。4 Gy では重合度の違いによる吸光度にほとんど差はないが、吸収線量が増加すると、重合度が低い試料の方が僅かだが、吸光度は高くなる傾向がみられた。ここで、図 3-19 に重合度の違いによる PVA の水酸基(OH)と酢酸基(CH₃COO)について PVA-KI ゲルに含有する量について示す。縦軸の濃度[mol/g]とは、PVA-KI ゲル 1 g に含まれる OH と CH₃COO の物質量のことを示す。PVA の OH と CH₃COO の量の算出方法について式(3-1)、式(3-2)に示す。PVA の化学式を(-CH₂CH(OH)-)_m-(-CH₂CH(OCOCH₃))_n-と表す。

$$\text{Polymerization degree} = m + n \quad (3-1)$$

$$\text{Saponification} = \left(\frac{m}{m+n} \right) \quad (3-2)$$

m は OH、n は CH₃COO の個数を示す。この結果から、PVA のケン化度が同じとき、重合度が低いと PVA-KI ゲル内の CH₃COO の割合が多いことが分かる。以上のことから、重合度の低い PVA を使用した PVA-KI ゲルは、呈色反応の要因である CH₃COO の数が多いことによることが示唆される。

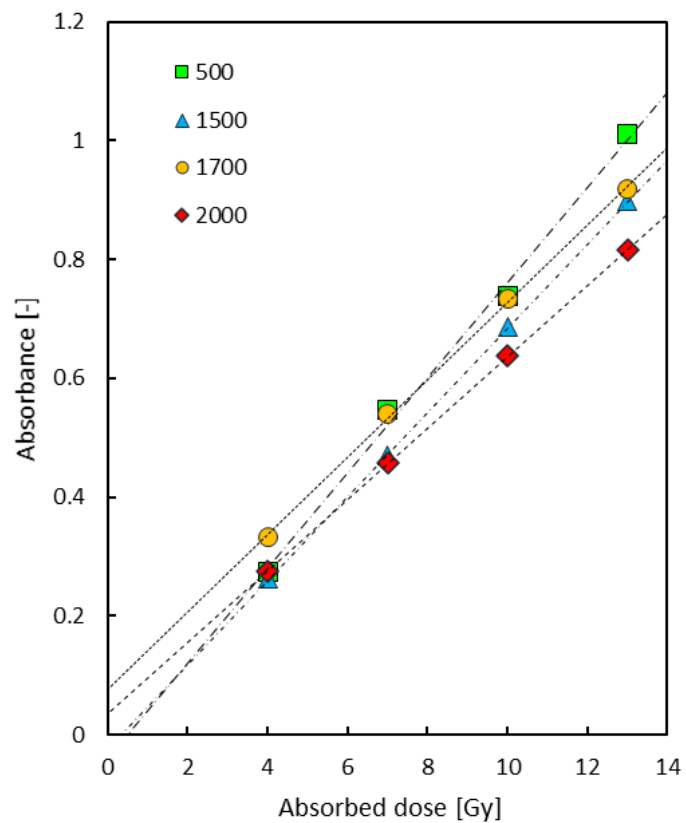


図 3-18 重合度の違いによる PVA-KI ゲルの吸収線量に対する吸光度

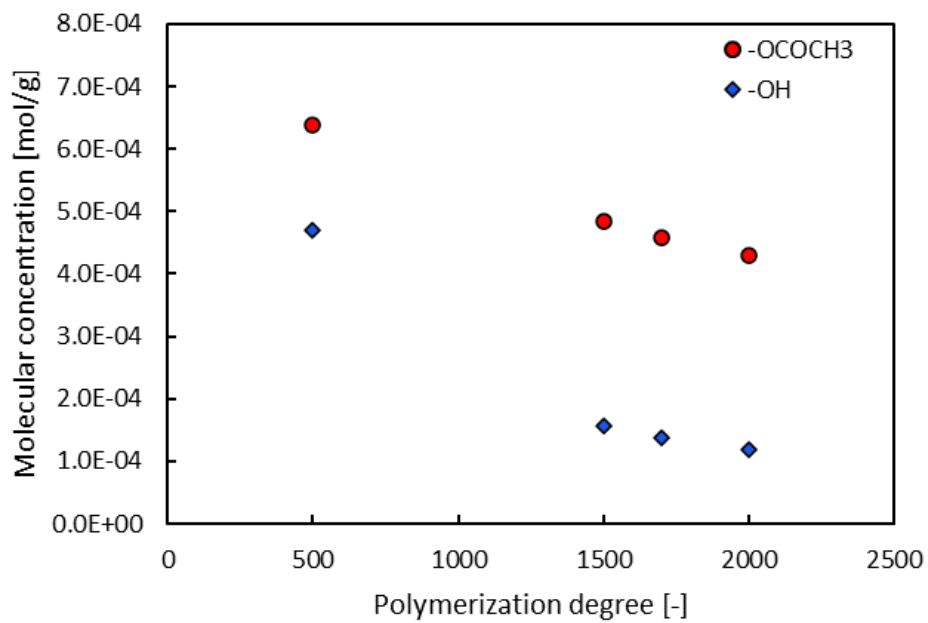


図 3-19 PVA の重合度に対する PVA-KI ゲルに含まれる OH および CH_3COO

第五節 結言

1. まとめ

PVA-KI ゲルに対し、X 線照射とガンマ線照射を行い、紫外可視分光光度計による吸光度測定から、部分ケン化 PVA と I_3^- との錯体形成による 490 nm の吸収スペクトルを確認し、その吸光度は吸収線量に対して比例関係にあることを確認した。また、PVA-KI ゲルの KI 濃度の異なる試料の吸光度測定結果から、PVA-KI ゲルの感度は KI 濃度に依存することが分かった。

重合度の異なる部分ケン化 PVA を使用して PVA-KI ゲル作製し、X 線照射を行い、吸光度測定を行った結果、重合度の低いとき PVA-KI ゲル内の CH_3COO の量が最も多くなり、吸光度が増大することが示唆された。

2. 今後の展望と課題

今回の照射条件における X 線とガンマ線の線質の違いから、ヨウ素の K 吸収端のエネルギーと X 線の実効エネルギーが近くなり、X 線照射での増感が見られた。今後、放射線治療装置の LINAC などの、より管電圧の高い X 線照射装置を使用することでより正確な感度を得られると考えられる。

第四章 PVA-KI ゲル線量計の初期化反応原理解明³¹⁾

第一節 緒言

第二章において述べたように、PVA-KI ゲルは、放射線照射によって呈色した後、加温することで透明に戻すことが可能である。さらに透明に戻った PVA-KI ゲルに放射線照射をすることで再び呈色する。これは再利用性があることを示しており、放射線線量計において蛍光ガラス線量計などアニール処理による初期化が可能なものは多数存在するが、水を基本材料とする化学線量計の中では、繰り返し使用することができる化学線量計は実用化されておらず、本研究における PVA-KI ゲルの色の初期化の特性は他のゲル線量計には無い、オリジナルな特徴である。

本章では、PVA-KI ゲルへ X 線照射を行い、照射後の PVA-KI ゲルの吸光度が加温によって変化することを確認し、色の初期化に寄与する反応について考察する。また、加温による吸光度の時間分解測定を行い、PVA-KI ゲルの初期化反応のメカニズムについて検討する。

第二節 加温における PVA-KI ゲルの吸光度測定

1. 実験方法

試料は重合度 500 の PVA(ナカライテスク, ケン化度 86.5 ~ 89.0 mol%)の水溶液を使用して、KI9 wt%の PVA-KI ゲルを作製し、吸光度測定用の PMMA 製のディスポセルに封入して試料とした。ここで、重合度 500 の PVA で作製したゲルは、他の重合度の PVA を用いて作製した PVA-KI ゲルに比べ最も粘性が低く、液状に近い。外部からの加温において、試料の対流による伝熱が見込まれ、試料を素早く均一に加温することが可能であると考えたためである。照射は X 線照射装置(日立 MBR-1520R-4)を使用して、20 Gy の照射を行った。表 4-1 に X 線の照射条件について示す。測定は紫外可視分光光度計 (Thermo Scientific EVOLUTION 200)に接続した分光光度計用のペルチェ温調システム (Thermo Scientific TUV699-131100)を用いて試料を 50 °Cに加温し、照射前、照射直後、照射後 6 分ごとに吸光度を測定した。図 4-1 に使用した紫外可視分光光度計と温調システムについて示す。

表 4-1 X 線照条件

管電圧	150 kV
管電流	20 mA
フィルター	Al 0.5 mm + Cu 0.1 mm
照射台位置(焦点距離)	400 mm



図 4-1 右：紫外可視分光光度計(Thermo Scientific EVOLUTION 200)
左：ペルチェ温調システム(Thermo Scientific TUV699-131100)

2. 実験結果及び考察

図 4-2 に照射後の PVA-KI ゲルの吸光度および加温後の吸光度の測定結果について示す。X 線照射直後では、図 4-2 から 490 nm に吸収のピークが確認できる。なお照射直後の試料は赤に呈色した。このことから、490 nm の吸収の極大は PVA と I_3^- との錯体形成(PVA $\cdots I_3^-$)によるものであることが分かる。加温 6 分後、試料は透明になり、吸収スペクトルからは 490 nm の吸収ピークは消失し、290 nm と 350 nm に新たな吸収ピークが表れた。290 nm と 350 nm の吸収ピークは I_3^- の生成に伴う吸収であることが知られている²⁵⁾。この結果は PVA と I_3^- の錯体が熱の影響によって PVA と I_3^- に分離していると考えられる。加温 12 分、18 分の時間が経過すると 290 nm と 350 nm の吸収は減少する傾向がみられた。これは、 I_3^- が消失する新たな反応が起きていることが示唆される。

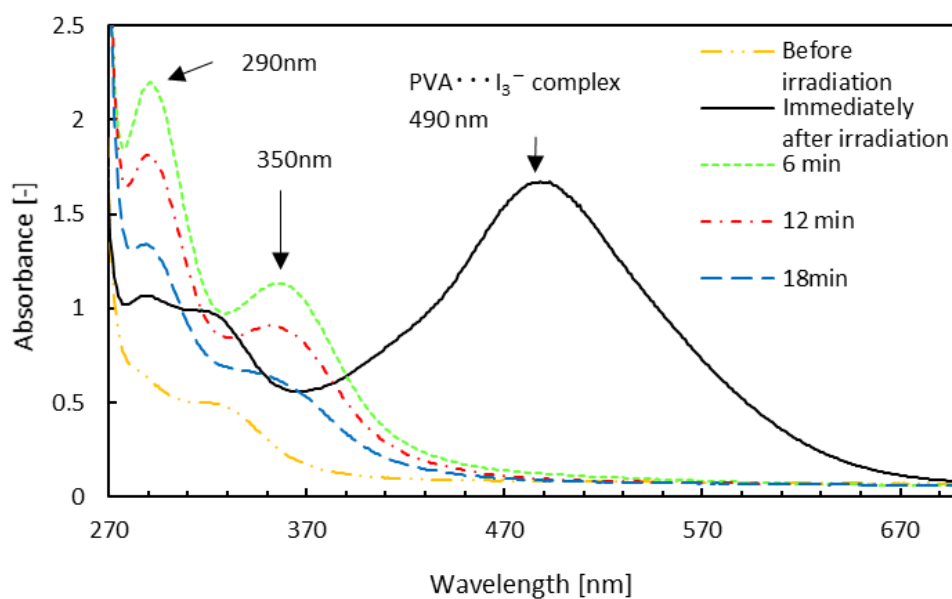


図 4-2 50 °C に加温した PVA-KI ゲルの吸光度測定結果

第三節 加温における吸光度の時間依存性測定

1. 実験方法

試料は、前節と同様に重合度 500 の PVA を使用して作製した KI9 wt% の PVA-KI ゲルを用いた。X 線照射の条件は表 4-1 の前節の条件と同様で、8 Gy の X 線照射を行った。紫外可視分光光度計のペルチェ温調システムによって照射後の試料を 36 °C で加温し、吸光度の時間分解測定を行った。測定波長は、PVA と I_3^- との錯体物の吸収に相当する 490 nm と I_3^- の吸収に相当する 350 nm を選択した。

2. 実験結果及び考察

図 4-3 に X 線照射後の PVA-KI ゲルを加温し、490 nm と 350 nm における時間分解測定結果について示す。横軸の時間は X 線照射後から吸光度測定の開始までにかかった時間 150 秒を加えている。

490 nm の吸光度の変化は 0 秒 ~ 約 600 秒の領域において急激に減少していき、その後減少は緩やかになり、約 4000 秒で吸光度は 0 になった。この時間変化の曲線に対して反応 4-1 に示す A の平衡反応と、反応 4-2 に示す A の減少からなるこれら 2 つの反応を反映する曲線であるであると予想した。なお、X 線照射による I_3^- の生成および PVA との錯体形成のは十分に早い反応であり、吸光度測定を行うまでに終了していると仮定している。式 4-1 に反応 4-1 と反応 4-2 における A の反応速度式を示す。ここで、反応 2 の C は A を消失させる物質であり、 $[A] \ll [C]$ の条件下において $k_3' = k_3 [C]$ より、擬一次反応であると仮定している。式 4-2 に式 4-1 の微分方程式の解を示す。ここで、 $[A]_0$ は $t=0$ における $[A]$ の初期濃度である。



$$\frac{d[A]}{dt} = -k_1[A] + k_2[B] - k_3[A][C] \quad (\text{式 4-1})$$

$$[A] = \frac{k_2[A]_0}{k_1+k_2} \{e^{-k_2' t} - e^{-(k_1+k_2k_3')t}\} + [A]_0 e^{-(k_1+k_2k_3')t} \quad (\text{式 4-2})$$

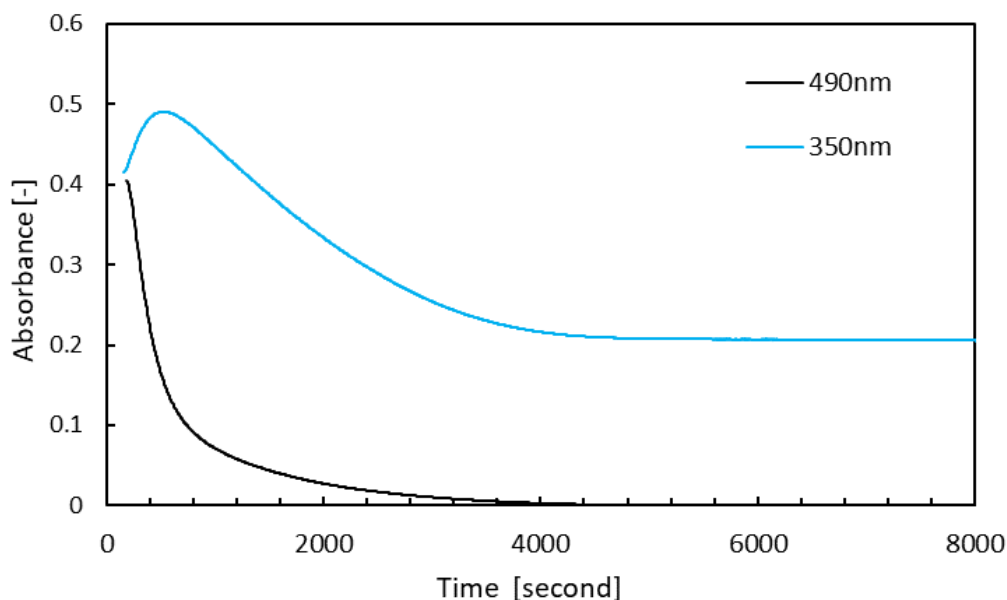
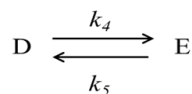


図 4-3 X線照射後 36 °Cに加熱した PVA-KI ゲルの時間分解測定結果

次に、350nm の吸光度の変化について、約 600 秒において極大となり、約 4000 秒まで緩やかに減少していき約 4000 秒以降の吸光度は一定となった。この曲線に対して、反応 4-1 と反応 4-2 において A の減少に対して増大する生成物として D の減少に相当する反応があると考えた。また、この曲線は約 4000 秒以上の領域では吸光度は 0 にはならず、0.2 程度で一定となっているため、D の減少は単純な逐次反応ではなく、次の反応 4-3 に示す D と E の平衡反応であると考えた。



反応(4-3)

式 4-3 に反応 4-1 と反応 4-3 における D の反応速度式を示す。ここで、同様に、 $[A] \ll [C]$ の条件下において $k_3' = k_3 [C]$ より、擬一次反応であると仮定している。式 4-4 に式 4-3 の微分方程式の解を示す。ここで、 $[A]_0$ は $t = 0$ における $[A]$ の初期濃度である。また、 $[A]_0 = [D] + [E]$ と仮定した。

$$\frac{d[D]}{dt} = k_3[A][C] - k_4[D] + k_5[E] \quad \text{式(4-3)}$$

$$\begin{aligned} [D] &= \frac{k_2 k_3' [A]_0}{(k_1 + k_2)(k_3' - k_4 - k_5)} \{e^{-(k_4 + k_5)t} - e^{-k_3' t}\} \\ &+ \frac{k_2 k_3' [A]_0}{(k_1 + k_2)(k_1 + k_2 + k_3' - k_4 - k_5)} \{e^{-(k_1 + k_2 + k_3')t} - e^{-(k_4 + k_5)t}\} \\ &+ \frac{k_3' [A]_0}{k_1 + k_2 + k_3' - k_4 - k_5} \{e^{-(k_4 + k_5)t} - e^{-(k_1 + k_2 + k_3')t}\} \\ &+ \frac{k_5 [A]_0}{k_4 + k_5} \{1 - e^{-(k_4 + k_5)t}\} \end{aligned} \quad \text{式(4-4)}$$

図 4-4 に測定結果と、式(4-2)と式(4-4)の fitting の結果を示す。測定結果との fitting において、縦軸の吸光度は、Lambert-Beer の法則、 $A = \epsilon Cl$ (A : 吸光度、 ϵ : 吸光係数、 C : モル濃度、 l : 光路長)に従うため、 $l = 1 \text{ cm}$ の時、式(4-2)、式(4-4)は A と D のそれぞれの吸光係数 ϵ_A と ϵ_D を乗じなければならない。

式(4-2)の fitting において、最初に $\epsilon_A [A]_0$ を 1.30 と仮定し、 k_1 、 k_2 、 k_3' を決定した。これらの定数を式(4-4)に代入し、 k_4 、 k_5 、 $\epsilon_D [D]_0$ を決定した。表 4-2 に今回の fitting において決定した各定数の値について示す。以上の結果から測定結果をよく再現できており、推定された反応機構は十分妥当であると考えられる。

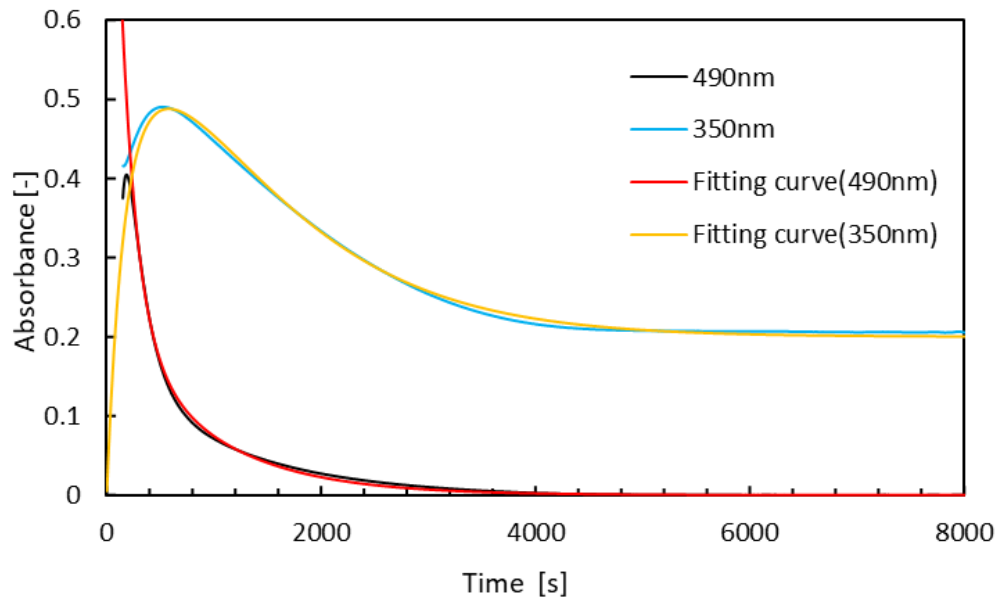


図 4-4 測定結果とカーブフィッティング結果の比較

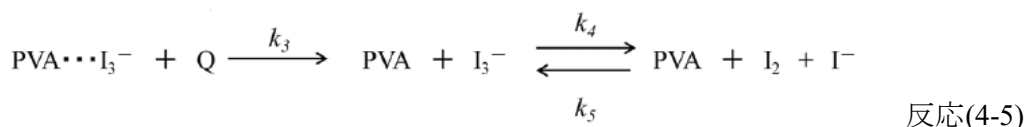
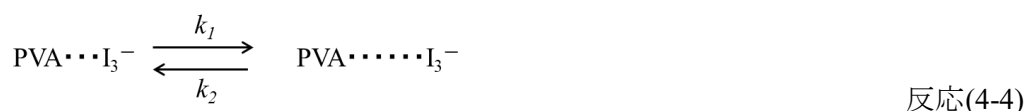
表 4-2 カーブフィッティングによる測定結果

定数	
$\varepsilon_A[A]_0$	1.30
$\varepsilon_D[A]_0$	2.65

定数	反応速度 (秒 ⁻¹)
k_1	4.50×10^{-3}
k_2	1.00×10^{-3}
k_3'	1.17×10^{-3}
k_4	1.09×10^{-3}
k_5	8.90×10^{-5}

第四節 反応の妥当性の検討

反応 4-1、反応 4-2、反応 4-3 について、A ~ E に対して、実際の PVA-KI ゲルにおける実際の化合物を適用し、検討した。反応 4-4、反応 4-5 に実際の化合物を適用させた反応式を示す。



反応(4-1)の A は、490 nm に吸収ピークを持つ PVA と I_3^- との錯体 $\text{PVA}\cdots\text{I}_3^-$ であり、B は PVA と I_3^- の距離が A の錯体に比べて離れた距離で結合した化合物 $\text{PVA}\cdots\cdots\text{I}_3^-$ を想定している。これは、図 4-2 の照射直後の吸光度のスペクトルにおける 300 nm ~ 320 nm の間に吸収ピークを持つ化合物が相当すると考える。反応(4-2)における C は PVA 水溶液に KI を添加した系において、加温しても 490 nm の吸収ピークの減少がみられないことから、PVA-KI ゲルに含まれる果糖もしくはホウ砂と果糖の反応生成物であると考え、仮に化合物 Q と置いた。D は $\text{PVA} + \text{I}_3^-$ の二次反応であるが、 $[\text{PVA}] \gg [\text{I}_3^-]$ であるため擬一次反応として扱えるため、350 nm に吸収ピークを持つ I_3^- と考えることができる。E は $\text{PVA} + \text{I}_2 + \text{I}^-$ であるが、 $[\text{PVA}] \gg [\text{I}_2]$ 、 $[\text{I}^-] \gg [\text{I}_2]$ であるため、擬一次反応として扱うことができる。ここで、E の I は KI 水溶液中の I に含まれる。本来、 $\text{A} \rightarrow \text{D}$ の反応は、 $\text{D} \rightarrow \text{A}$ の反応と平衡反応であると考えるが、C、すなわち化合物 Q の存在によって、 $\text{A} + \text{Q} \rightarrow \text{D}$ の速度が $\text{D} \rightarrow \text{A}$ の反応速度に比べて非常に早いことを示唆している。

第五節 結言

1. まとめ

X線照射した PVA-KI ゲルを加熱した状態での吸光度測定を行い、時間経過による吸収スペクトルの変化の測定と、PVA \cdots I₃ と I₃ に相当する 490 nm と 350 nm における吸光度の時間分解測定を行った。得られた結果より、反応動学的解析を行い、PVA-KI ゲルの色の初期化反応メカニズムに関してある程度明らかにすることができた。

2. 今後の展望と課題

反応 4-5 より果糖もしくはホウ砂と果糖の反応生成物であると予想した化合物 Q については第二章で述べたように糖の分解によって還元剤である Hydroxy-2-propanone (Acetol) の生成が予想される。また、Acetol が反応 4-5 の最終生成物である I₂ を還元し、2I⁻ とすることで I₃ の生成を阻害することで、加熱によって初期化された PVA-KI ゲルを透明の状態に維持させることに寄与していることも予想できる。今後、化合物 Q について明らかにすることと、PVA-KI ゲルの系での Acetol の生成について検討することで、より詳細な PVA-KI ゲルの初期化反応メカニズムの解明が期待できる。

第五章 陽子線照射効果

第一節 緒言

粒子線・重粒子線治療は、イオン源は線形加速器などによって予備加速され、主にシンクロトロンによって設定したエネルギーに加速されビーム照射される。粒子線・重粒子線治療で使用される陽子線、炭素線等は、物質へ照射された際の吸収線量分布は物質中で停止する直前で最大となるブラッグ曲線およびブラッグピークを示す性質がある。この為、体表面や患部周辺の正常組織への照射の影響を低くすることができ、X線治療と比較して高い治療効果と、副作用の軽減を図ることができる。

本研究では、PVA-KI ゲルへ陽子線照射を行い、紫外可視分光光度計による吸光度測定を行った。本章では吸光度測定結果から PVA-KI ゲル中での陽子線の飛程の確認結果を示す。また、モンテカルロシミュレーションによる計算から、本照射の体系における飛程およびブラッグピークの確認をし、吸光度解析結果との比較から PVA-KI ゲルの陽子線に対する感度について考察を行う。

第二節 陽子線照射実験内容

1. 陽子線照射実験方法

照射実験は若狭湾エネルギー研究センターの所有する多目的シンクロトロン・タンデム加速器(W-MAST)を用いて陽子線ビームの照射を行った。イオン源はタンデム型静電加速器によって加速、シンクロトロン加速器に入射、さらに加速されて出射される。表 5-1 に W-MAST のシンクロトロンの主要スペックについて示す¹⁾。本照射実験における陽子線エネルギーは 200 MeV である。

PVA-KI ゲル試料は KI9wt%ゲルを使用した。試料は第三章 第二節における測定方法と同様に、紫外可視分光光度計(Stellar Net 社製 Black Comet)を用いて吸光度測定を行った。図 5-1 に試料の設置方法についての様子を示す。吸光度測定用のディスプレイセルに封入したゲル試料を 22 本用意し、木製の治具上にビームラインに沿って一列に並べて設置した。陽子線照射は 4 Gy の照射を 5 回、積算で 20 Gy となるように行い、照射ごとに吸光度測定を行った。なお、吸収線量は電離箱式線量計で測定された、先頭試料のビーム入射面位置での空気カーマを示している。

表 5-1 シンクロトロンの主要スペック¹⁾

入射エネルギー	H ⁺ : 10 MeV (Bρ = 0.46 Tm) He ²⁺ , C ⁶⁺ : 2.08 MeV (Bρ = 0.42 Tm)
出射エネルギー	H ⁺ : 10 ~ 200 MeV/u (Bρ = 2.15 Tm) He ²⁺ , C ⁶⁺ : 2.08 ~ 55 MeV/u (Bρ = 2.15 Tm)
運転繰り返し周波数	0.5 Hz
形式	機能分離型
ビーム入射法	多重回転入射法
高周波加速空洞	ファインメットコア使用のマルチフィード非同調型加速空洞
ビーム取り出し法	電磁石強度一定で、高周波を加える共鳴取り出し法 (拡散共鳴法)



図 5-1 陽子線照射前の試料の設置の様子 (図左方向がビーム上流側)

2. モンテカルロシミュレーションによる計算

計算には粒子・重イオン輸送計算コード Particle and Heavy Ion Transport code System : (PHITS)を使用した³²⁾。Ver. = 3.160、輸送計算には EGS5 を用いた。200 MeV の陽子線ビームの照射を行い、体系の入射位置からの距離に対するエネルギー付与分布についてシミュレートし、PVA-KI ゲル中の陽子線の飛程について確認を行った。ここで、シミュレーションでの試料の体系については、より正確な陽子線の飛程およびブラッグピークの位置を計算するために試料の形状を変更して計算を行っている。図 5-2 に本計算における試料の体系を示す。WERC での陽子線照射実験では、試料は光路長 10 mm、壁厚 1.2 mm、高さ約 45 mm のデイスポセルを使用したのに対し、ビームの進行方向におけるゲルの充填間隔(光路長)、セルの壁の厚さは一切変更せずに、ビームの入射面を 100 mm × 100 mm に変更した。また入射する陽子線のビーム径は、試料体系のビーム入射面より小さくなるように設定した。このことによって、エネルギー付与分布の計算においてゲル試料体系の中心部の線束密度を上げることができ、試料の深い位置においてもより正確な陽子線のみ飛程、ブラッグピークの位置を確認することができると考えた。また、実際の照射実験と比較し、試料体系外へのビームの散乱、相互作用による二次粒子、放射線の発生が減少するなどの実験との相違が計算結果に影響を与える可能性はあるが、本研究の計算目的であるゲル試料中での陽子線の正確な飛程とブラッグピークの位置の確認に関しては影響はほとんど無視できると考える。

表 5-2 に PHITS での[MATERIAL]セクションで設定した KI9wt%の PVA-KI ゲルの組成の元素ごとの mol 数について示す。PVA-KI ゲルの密度は体積と質量の測定から計算し求め、1.118 g/cm³であった。

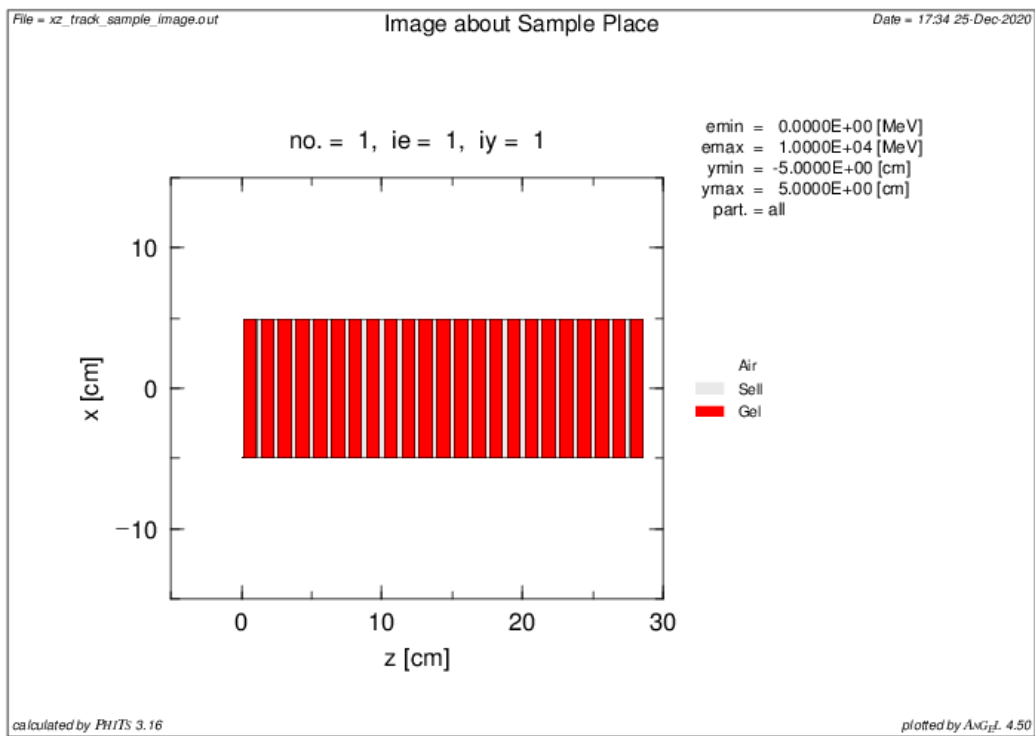


図 5-2 陽子線照射実験の PHITS の試料体系

図 5-2 KI9wt%ゲルの元素別 mol 濃度

Element	Amount of material (mol)
K	9.036E-02
I	9.036E-02
Na	3.148E-02
B	6.296E-02
C	6.838E-01
H	1.571E+01
O	7.784E+00

第三節 実験結果および考察

1. 陽子線照射実験結果

図 5-3 に 20 Gy 照射後の試料の様子および後方試料の拡大した様子について示す。図の右側がビームラインの上流である。20 番目の試料(No.20)の前方で呈色の切れ目が確認でき、以降の試料ではほぼ透明なままである。これはブラッグピークの特徴から陽子線が停止し、それを反映していると言える。

図 5-4 に No.19 の試料の吸光度スペクトルを、図 5-5 に試料 No.19 の吸収線量に対する 490 nm の吸光度を示す。陽子線照射についても X 線照射およびガンマ線照射によるスペクトルと同様に 490 nm に吸収ピークが確認できる。また、490 nm における吸光度も吸収線量に比例して増大することが確認できる。

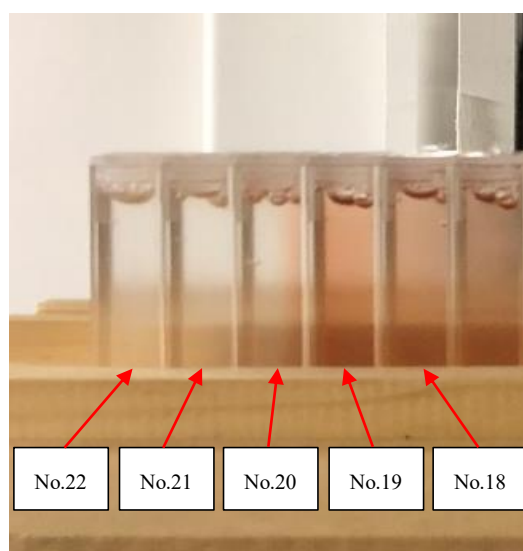
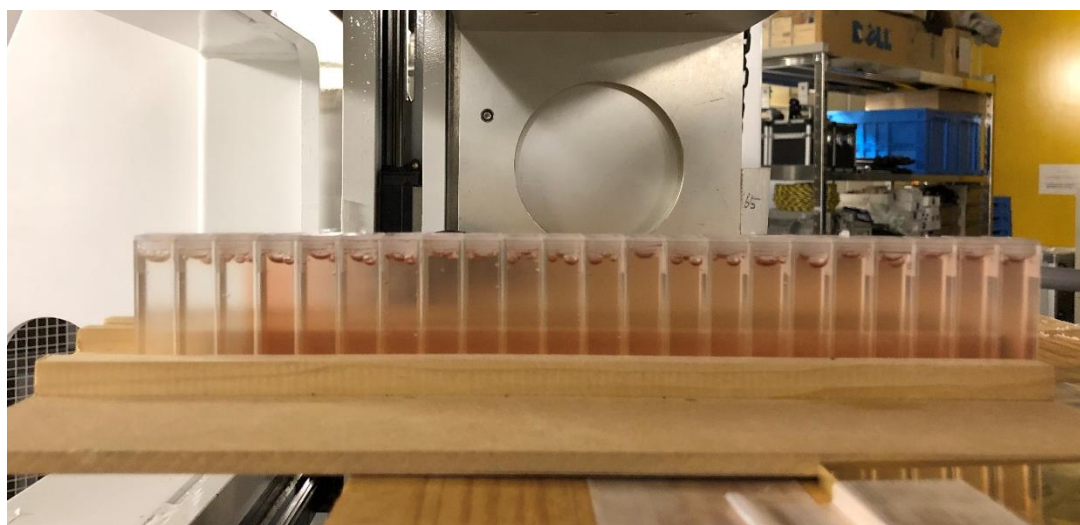


図 5-3 20 Gy 照射後の試料の様子

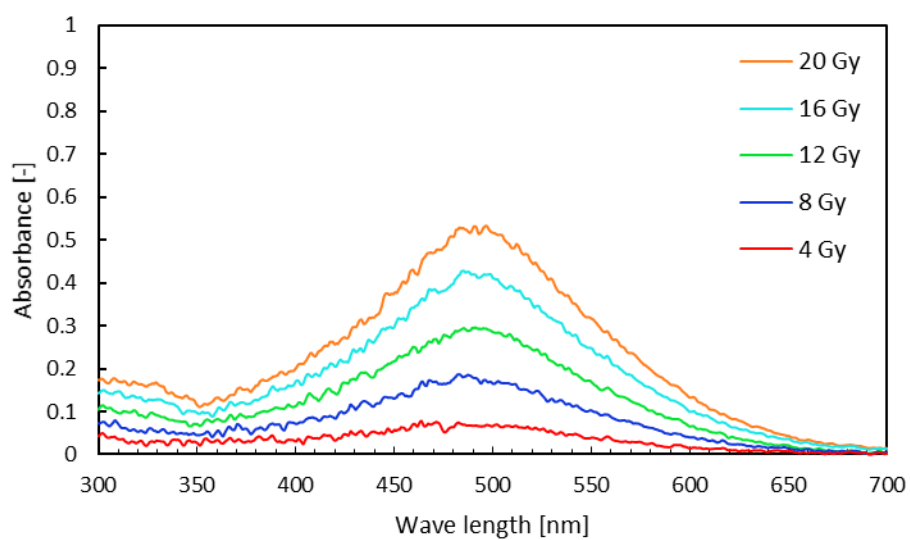


図 5-4 試料 No.19 の吸光度スペクトル

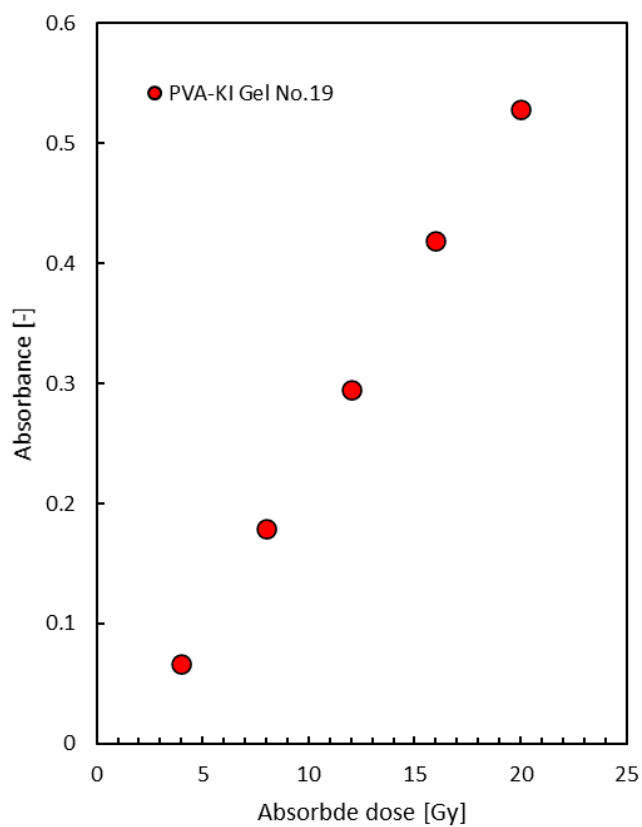


図 5-5 試料 No.19 の吸収線量に対する 490 nm における吸光度

図 5-6 に先頭試料のビーム入射面を 0 mm とした試料の距離に対する吸光度の推移について示す。ここで、試料のセル 1 つ分の幅は、12.5 mm としている。約 230 mm の位置、試料 No.19 で吸光度は最大となっている。ここで、吸光度測定は光路長 10 mm の光学セルを用いているが、本実験での紫外可視分光光度計による測定光の入出射方向をビームの進行方向と同方向で測定したため、ここでの吸光度は光路長 10 mm を平均化されて測定結果とされる。よって、図 5-6 では約 230 mm の位置の吸光度が最大であるが、図 5-3 の呈色の様子からもわかるように、陽子線のブラッグピークは約 230 ~ 約 250 mm の間に位置すると考えられる。

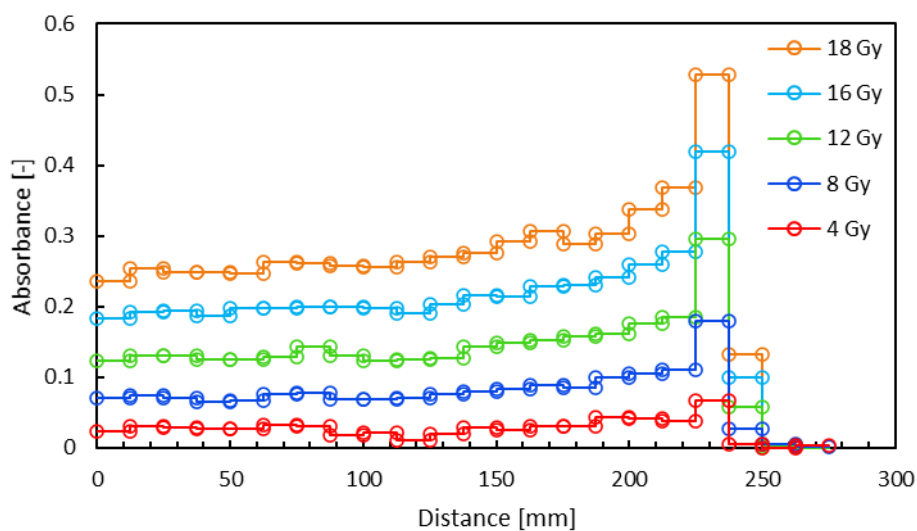


図 5-6 距離に対する 490 nm における吸光度

2. モンテカルロシミュレーションによる計算

図 5-7 に PHITS による計算の粒子輸送のトラックイメージを示す。また、図 5-8 に距離に対する吸収線量の計算結果を示す。図 5-7 から陽子線は 19 番目と 20 番目の間で停止しているように確認でき、図 5-8 から 233.26 mm 付近の位置にブラッグピークが確認できる。図 5-9 に PHITS による計算結果の距離に対する吸収線量分布と陽子線照射実験における距離に対する吸光度について比較した図を示す。吸光度は 20 Gy 照射時のデータを用いた。PHITS の計算結果は出力されたデータを定数倍している。

ブラッグピークの位置について、PHITS の計算結果からは、240 mm 以前で陽子線のエネルギーはほぼ全て失っているが、図 5-3 の拡大図の様子からは試料 No.20 の前方まで呈色しており、PHITS によるブラッグピークの位置よりもわずかに遠い位置で陽子線が停止しているように見える。この原因として、実際の陽子線照射実験において、例えば、光学セルの個体差によって生じる幅の誤差や、幅の 1 回の照射ごとの吸光度測定で試料を動かさなければならないことなど、多数の光学セルを一行に並べて設置していることで生じるわずかな隙間や位置のずれが影響していると考えられる。よってブラッグピークの位置は PHITS の計算結果と実験結果はほぼ一致しているといえる。

陽子線の入射位置 0 mm からブラッグピークの手前の位置までの吸収線量とゲル試料の吸光度の推移、高さはよく一致しているが、ブラッグピーク付近での吸収線量と照射実験で測定した吸光度は大きく離れている。これは、前項で記したように測定される吸光度は光路長間で平均化された値が吸光度となる。実際のブラッグピークは PHITS の結果からもわかるように非常に狭い範囲であるため、吸光度の測定結果は見かけ上低く見えるためだと思われる。そこで、PHITS 吸収線量分布の出力方法についてメッシュ間隔を照射実験で用いたセルの幅と同じ 12.5 mm に設定して計算を行った。図 5-10 にメッシュ間隔を変更した PHITS によるブラッグ曲線の計算結果と吸光度測定結果の比較を示す。PHITS の計算結果のブラッグピークの箇所は距離 225 ~ 237.5 mm の位置で平均化され、吸収線量は低下した。この比較から PHITS によるブラッグピーク計算結果はメッシュ幅の変更によって吸光度測定実験結果とより近づくことが分かった。実験での試料設置における距離の誤差などの影響を踏まえると、計算結果は実験結果を再現できていると考えることができ、PVA-KI ゲルによって陽子線の相対線量の測定が可能であることが示唆される。

また、陽子線照射実験において、紫外可視分光光度計による吸光度の測定光の入出射方向をビームの進行方向と同方向で測定していた。測定光をビーム進行方向の垂直方向で測定することで、距離に対する試料の吸光度が光路長で平均化されることなく、光学セルの測定光の入出射位置で位置を評価することができる。今後、より正確に PHITS の計算結果との比較と評価を可能とすると考える。

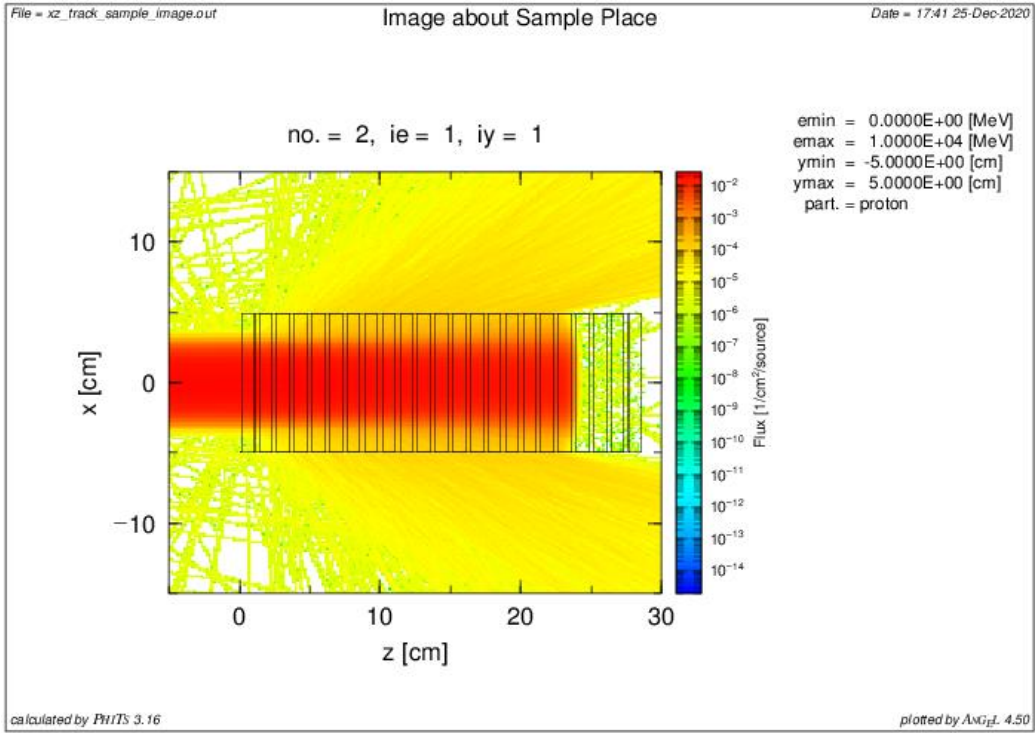


図 5-7 計算結果[T-TRACK]出力

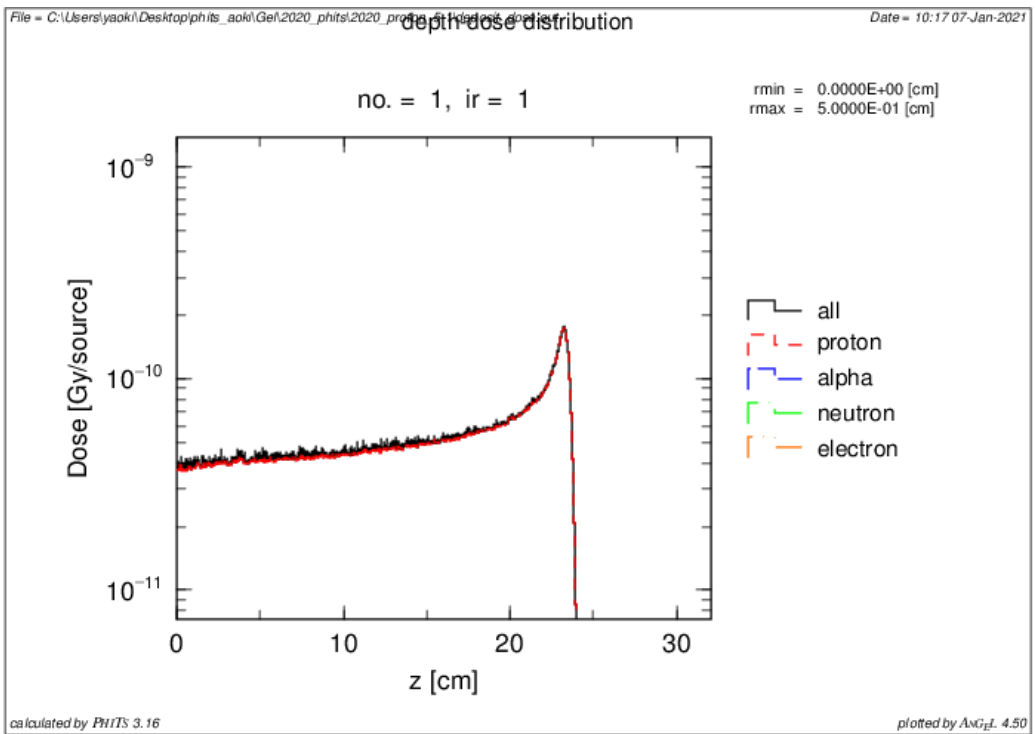


図 5-8 計算結果[T-DEPOSIT]出力

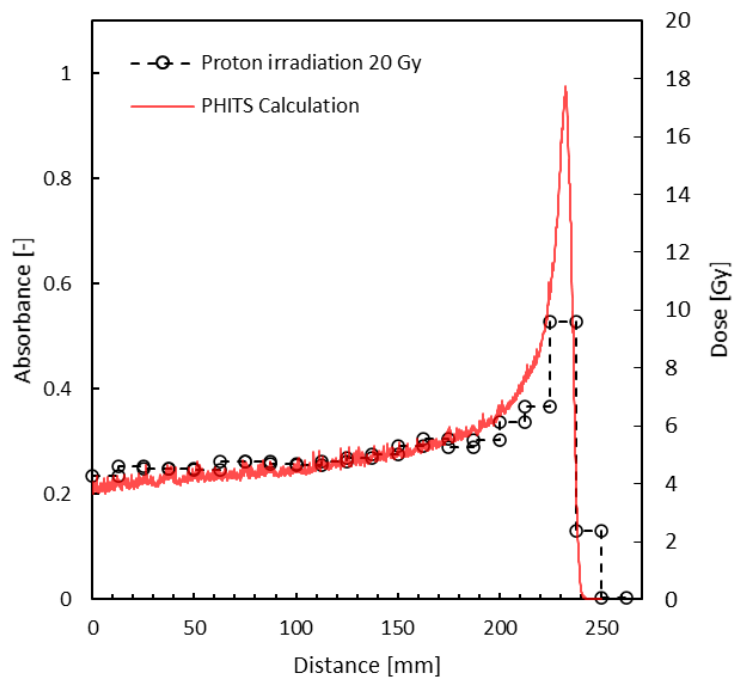


図 5-9 PHITS によるブラッグ曲線の計算結果と、陽子線 20 Gy 照射結果の距離に対する吸光度の比較

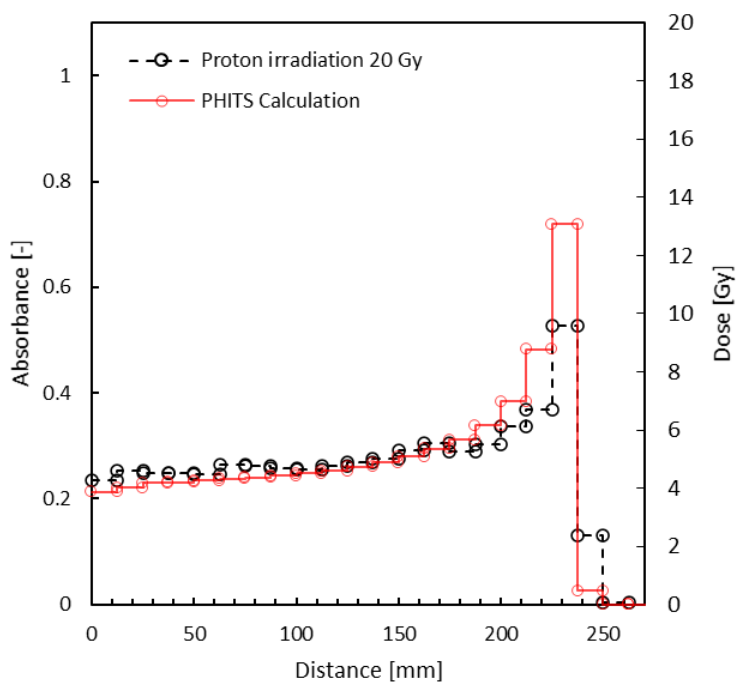


図 5-10 メッシュ幅を変更した PHITS による計算結果と、陽子線 20 Gy 照射実験の吸光度測定結果との比較

第四節 結言

陽子線照射実験を行い、吸光度測定の結果から PVA-KI ゲル内の陽子線の飛程を確認し、ブラッグピークの特徴をよく反映していることが確認できた。また、PHITS によるシミュレーション結果からブラッグピーク的位置について正確に確認することができ、照射実験と一致することが分かった。さらに、PHITS によるブラッグ曲線のシミュレーションにおいて、出力結果のメッシュ幅を照射実験で使用した光学セルの幅と合わせることで、ブラッグピーク位置の吸光度と吸収線量がより近づくことが判明し、計算結果と実験結果はよく一致することが考察でき、PVA-KI ゲルによる陽子線の相対線量測定を見出した。また、今後、照射実験においてより精密な試料の設置、測定方法をとることで更に正確な陽子線による感度の評価を得ることができると示唆された。

第六章 PVA-KI ゲル線量計測定システムの開発および線量評価手法の検討

第一節 緒言

本論文の第三章の X 線照射、ガンマ線照射実験や第五章の陽子線照射実験でも記述してきたように、PVA-KI ゲルの測定および評価には紫外可視分光光度計を使用した吸光度測定を行ってきた。しかしながら、紫外可視分光光度計による吸光度測定は、使用する光学セルの光路長の範囲でしか測定ができない。PVA-KI ゲルの場合、呈色箇所と非呈色箇所の境界は明確に分かれ、容易に色の拡散はしない。そのため、光路長内で呈色濃度が一定でない場合、測定値はそのセルの光路長分の平均された値として出力される。このことは、例えば高 LET 粒子線の照射においてブラッグピーク付近の急激な線量分布の変化やブラッグピーク位置の線量及び吸光度を、光学セルを用いて測定、評価するのは困難となる。もう一つの問題点として、距離に対する吸光度を測定しようとした場合、測定光の光学セルへのスポット位置に依存し、さらにスポットの面積によって吸光度情報は平均化される。連続した距離に対する吸光度を測定するには専用の長幅のセルと走査型の吸光度測定装置を用意する必要がある。

本研究では、連続した範囲で PVA-KI ゲルの測定を行う目的とした、PVA-KI ゲル撮像装置と画像解析ソフトを作製し、画像測定を行い、呈色度合いを RGB 値で解析する PVA-KI ゲル測定システムを開発した。本章ではまず、PVA-KI ゲル測定システムの作製について述べる。そして、PVA-KI ゲルに X 線照射を行い、本測定システムによる吸収線量の測定を試みた。また、紫外可視分光光度計による吸光度測定を組み合わせ、RGB 値を吸光度へ変換する線量評価手法を考案し、He イオン照射した PVA-KI ゲルのブラッグ曲線およびブラッグピークの測定を行った。さらにモンテカルロシミュレーションの計算結果との比較から本線量評価手法の検討と PVA-KI ゲルへの粒子線の照射効果について検討を行った。

第二節 PVA-KI ゲル測定システム³³⁾

1. PVA-KI ゲル測定システムの概要

PVA-KI ゲルの吸光度は 490 nm に単一の極大の吸収ピークを示し、吸光度は吸収線量に比例する。このことから、PVA-KI ゲル測定システムは、490 nm に極大を持つ光源を用いて、放射線照射による PVA-KI ゲルの色を 490 nm の光吸収に伴う色の変化をデジタルカメラで撮影し、画像を RGB 値に数値化することで、RGB 値と吸収線量との関係を明らかにし、線量測定・評価をする測定システムである。

光源は距離による光量の減衰を防ぐために、できる限り試料に近接する必要があるため、また、広い範囲を測定する場合、均一に光を照射する必要があるため、面光源を使用が望ましい。本研究では有機 EL パネルを使用する。白色、青色、緑色、赤色の 4 種類の有機 EL パネルを入手し、ファイバーマルチチャンネル分光器を用いて光スペクトル測定を行った。図 6-1 に各有機 EL パネルの発光スペクトルを示す。グラフ内の縦点線は PVA-KI ゲルの吸収波長である 490 nm を示す。各有機 EL の発光スペクトルは白色が 490 nm 及び 570 nm、青色が 490 nm、緑色が 520 nm、赤色が 620 nm にピークを示した。この結果から、490 nm にピークを持つ白色もしくは青色の有機 EL パネルが適応であると考えられる。ここで、青色の有機 EL パネルの使用は、PVA-KI ゲルの 490nm における吸光度の増大によって青色の波長が吸収されることで透過光が減少するため、カメラでの撮影時に暗くなり、吸収線量が増大するにつれて色の正確な識別が困難となる。このことから、570 nm の発光スペクトルを併せ持つ白色の有機 EL パネルが使用に最も適していると考えた。

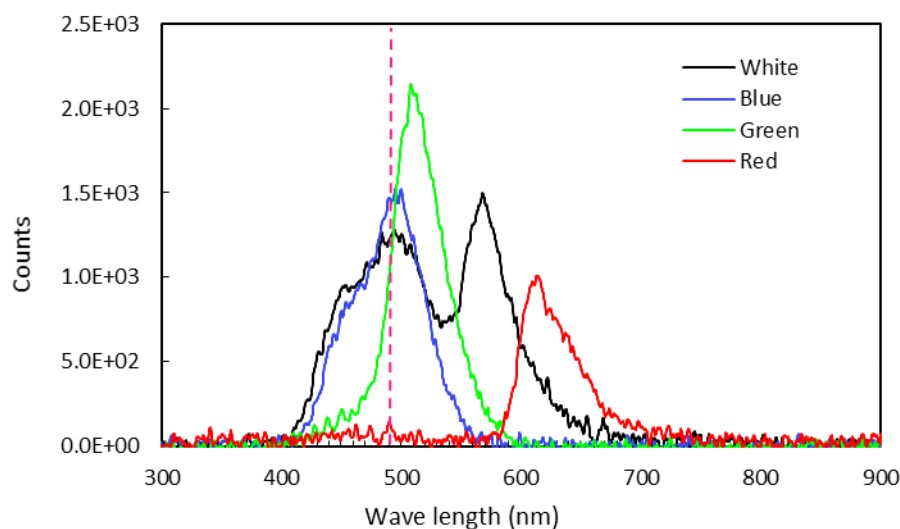


図 6-1 有機 EL の発光スペクトル

2. PVA-KI ゲル撮像装置の作製

装置の作製に用いた器具、材料について以下に列挙する。

使用器具：

白色有機 EL パネル(G-take 社 パネルサイズ 10 mm×10 mm)

デジタル一眼レフカメラ(Canon EOS Kiss X5)

レンズ(Canon EF-S 18-15mm F3.5-5.6)

リモートスイッチ(Canon RS-60E3)

アイピースカバー(Canon EW-100DBIII)

三脚(LPL WALKIE POD mini mini)

カメラ用水準器

外部電源(Canon AC アダプターキット ACK-E8)

使用材料：

筒状ケース・筒状ケース固定用底板(CD ケース)

アクリル製角柱(10 mm×10 mm)

アクリル製板(厚さ 1 mm)

段ボール製箱

定規

厚紙

図 6-1 に作製した撮像装置の概略図を示す。また、図 6-2 に撮像装置の写真を示す。測定装置は段ボール製の蓋で遮光されている。カメラの設定について、カメラレンズを 18 mm に設定し、カメラ本体の設定は、ISO 感度を 100、ホワイトバランスは RGB 値を精度よく測定するために、白色有機 EL を撮影したときの B 値が最大 250 付近になるように設定した。シャッタースピードは、有機 EL の光のちらつきを撮影してしまうことを防ぐために、シャッタースピードは通常の 1/6 とし、記録画素数は 179000 万画素とした。また、撮影時の手振れをなくすためにリモートスイッチを使用し、カメラ本体のファインダー接眼窓から光が入ることを防ぐためにアイピースカバーを取り付けた。

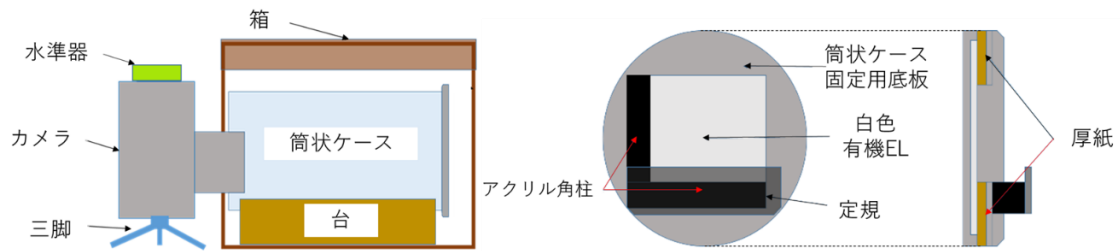


図 6-2 PVA-KI ゲル撮像装置の概略図



図 6-3 PVA-KI ゲル撮像装置 (左：全体像、右：試料設置箇所)

3. PVA-KI ゲル画像解析ソフトの作製

PVA-KI ゲル撮像装置で撮影した画像を解析し、RGB 値を求めるソフトウェアを Visual Basic 2012 により作成した。本ソフトは bmp、jpg、gif の拡張子画像に対応し、画面上マウスの位置座標を示す事により、同一地点のデータの取得を可能としている。測定したデータはクリップボードを介して、Microsoft Excel のワークシートに R, G, B の値を個別に直接貼り付けることを可能とする。

第三節 X線照射における RGB 値測定および吸収線量測定³³⁾

3.1 RGB 値測定

1. 実験方法

試料は KI9 wt% の PVA-KI ゲルを特製した矩形セル (PMMA 製 ゲル充填部 : 50 mm × 50 mm × 10 mm) に封入し、実験試料とした。図 6-4 に矩形セルに封入した PVAKI ゲル試料について示す。X 線照射は X 線照射装置 (日立 MBR-1520R-4) を使用し、吸収線量 2 Gy の照射を積算で 14 Gy になるよう照射した。照射条件は管電圧 : 150 kV、管電流 : 20 mA、フィルター : Al 0.5 mm + Cu 0.1 mm、焦点距離 : 400 mm である。図 6-5 に X 線照射時の様子を示す。PVA-KI ゲルの撮像は照射前と各 2 Gy の照射後に行った。なお、吸収線量は X 線照射装置に装備されている電離箱式線量計で測定された空気カーマを示す。

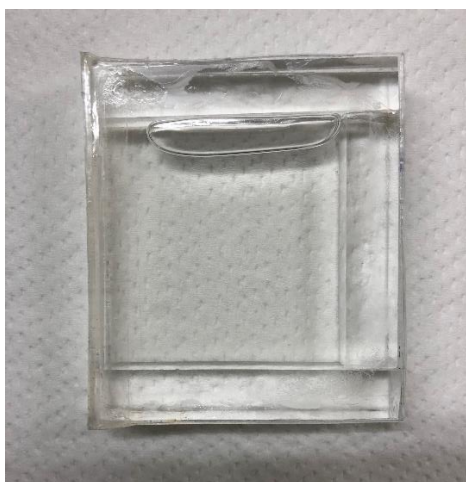


図 6-4 PVA-KI ゲル撮像用矩形セル

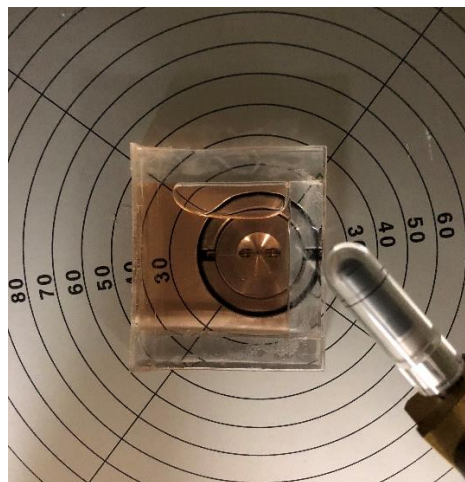


図 6-5 X 線照射時の様子

2. 実験結果

図 6-6 に 2 Gy ~ 14 Gy 照射後の試料および照射前の PVA-KI ゲルを撮像装置で撮影した PVA-KI ゲルの画像データを示す。2 Gy から赤に呈色し、吸収線量の増大と共に色は濃くなるのが分かる。10 Gy 以上では目視においては色の変化の確認はできない。

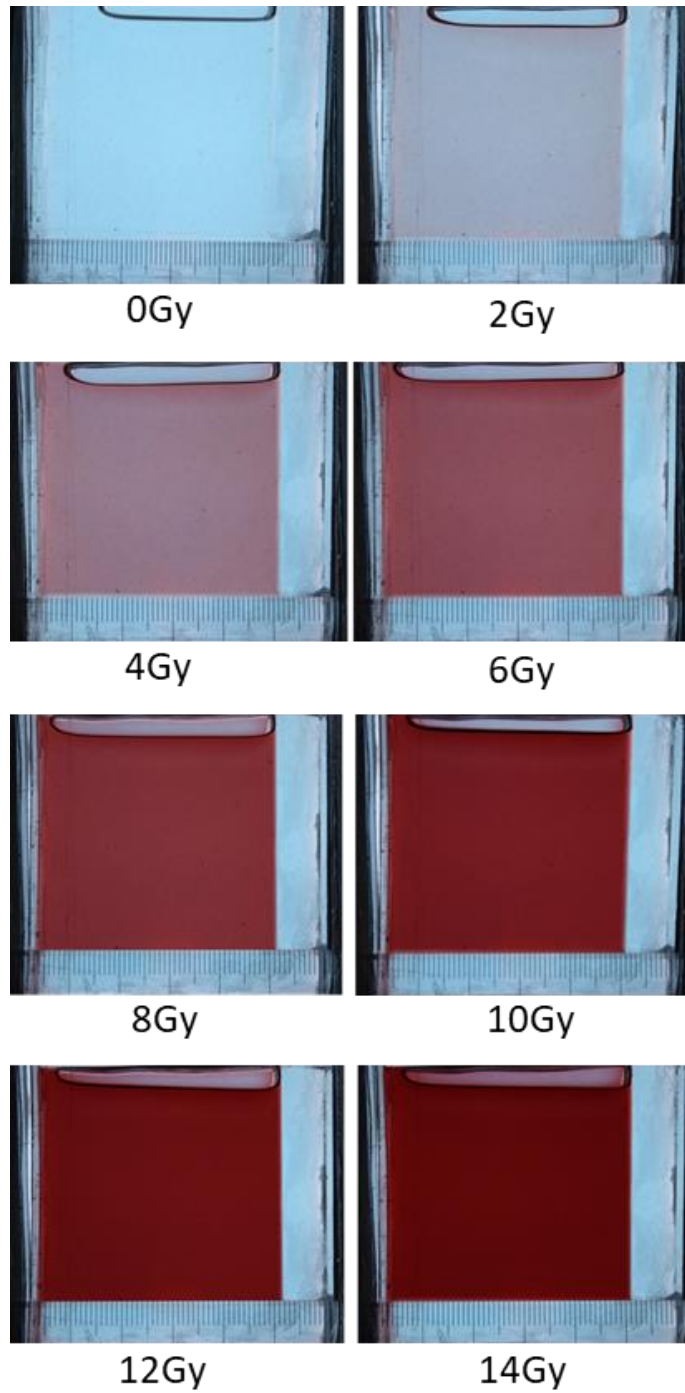


図 6-6 X線照射前後の PVA-KI ゲルの画像

図 6-7 に PVA-KI ゲル画像解析ソフトにより図 6-6 の画像を RGB 値に変換した結果を示す。RGB 値は吸収線量の増加とともに減少する傾向にある。R 値は傾きが小さく、G 値は 6Gy まで、B 値は 8Gy まで線形性があった。このことから B 値は吸収線量との比例関係が R 値と G 値に比べて優位であることが分かった。この結果から、PVA-KI ゲルの RGB 値は吸収線量に対して比例して減少することを見出した。

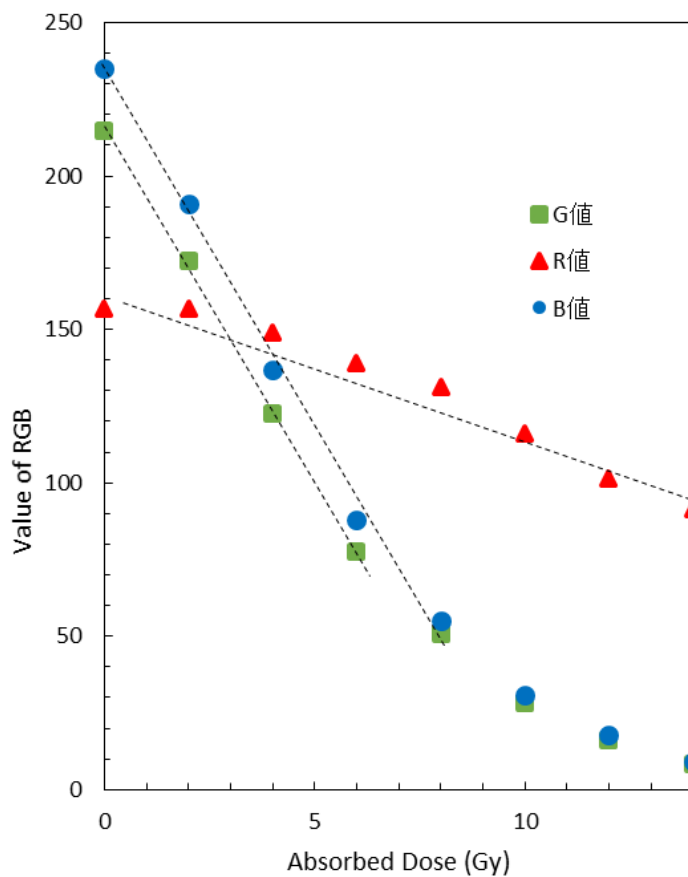


図 6-7 吸収線量に対する PVA-KI ゲルの RGB 値

3.2 吸収線量測定

1. 実験方法

図 6-7 の結果を用いて、図 6-4 の矩形セルの試料を立てた状態で上方から X 線照射を行い、距離の変化による吸収線量の測定を行った。図 6-8 に照射時の様子について示す。X 線照射における照射条件は 3.1 の RGB 値測定実験と同じである。X 線照射装置に装備されている電離箱式線量計のプローブをゲルの液面の高さに合わせ、電離箱のプローブの位置での吸収線量が 8 Gy になるように X 線照射を行った。照射後 PVA-KI ゲル撮像装置で撮影し、PVA-KI ゲルの液面から下方に向けて PVA-KI ゲル画像解析ソフトで RGB 値測定を行った。

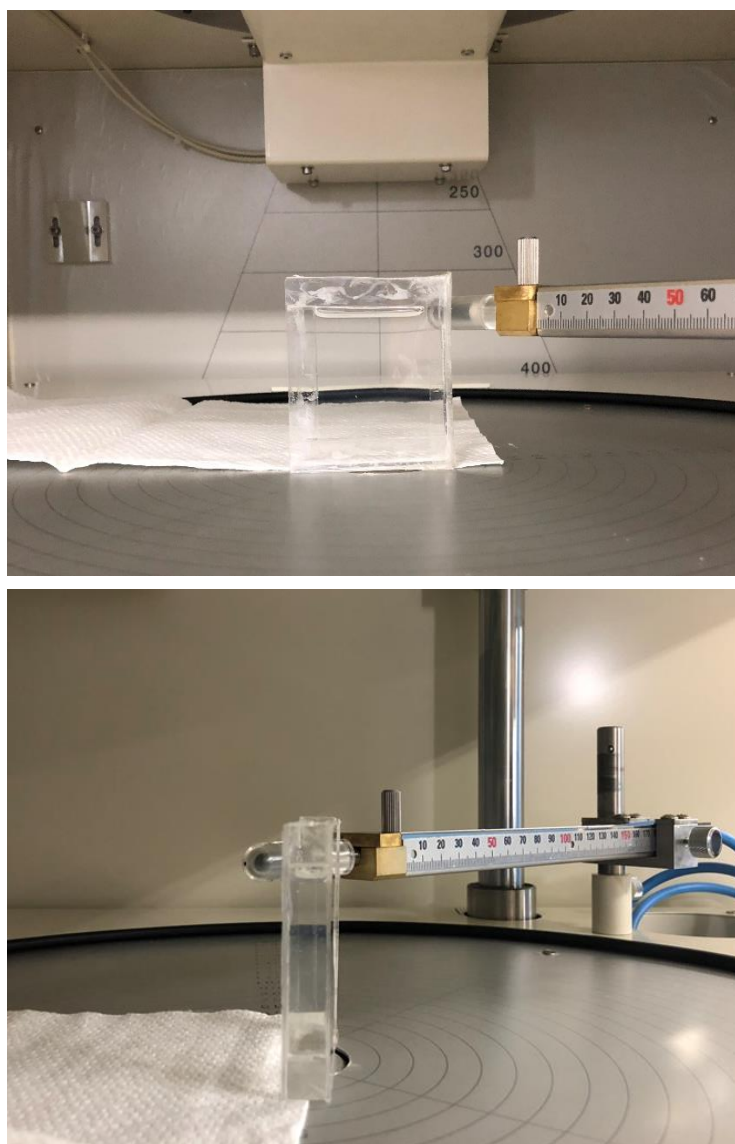


図 6-8 矩形セルを縦置きにした状態での X 線照射の様子

2. 実験結果

図 6-9 に PVA-KI ゲル撮像装置にて撮影した照射後の PVA-KI ゲルの画像を示す。セルの上部には空気層があり、ゲルの液面から下方にかけて赤色が薄くなっている。図 6-10 に図 6-9 の画像を PVA-KI ゲル解析ソフトを用いて画像上方から下方へ垂直に RGB 値に変換した結果を示す。距離は画像内定規から測定し、 $1\text{ cm} = 638\text{ pixel}$ であった。R 値は距離に対してほとんど変化はなく、B 値は G 値に比べ距離に対して変化量が大きいことが確認できる。これは PVA-KI ゲルの 490 nm における吸光度が増加することにより図 6-1 に示した白色有機 EL の 490 nm 付近の光の強度が減少しそれに伴い G 値と B 値も減少することを示唆している。しかし、白色有機 EL の 570 nm 付近の光は、呈色した PVA-KI ゲルに吸収されず強度は減少しないため、R 値の変化がほとんどないことが考えられる。

次に B 値の結果を用いて、吸収線量に変換することを試みた。図 6-11 に、図 6-7 の B 値の結果について x 軸と y 軸を反転させ、吸収線量と比例関係を示している $0\text{ Gy} \sim 8\text{ Gy}$ の領域を多項式で近似した結果を示す。図 6-12 に、図 6-10 の B 値の結果と図 6-11 の B 値の近似直線が重なるように、それぞれの結果を重ね合わせた図を示す。なお右縦軸の距離は pixel から cm に変換している。両結果を重ね合わせると、吸収線量は $8\text{ Gy} \sim 3\text{ Gy}$ の範囲で、距離は $0 \sim 1.2\text{ cm}$ の範囲で一致を示した。図 6-13 に、図 6-12 の結果を図 6-9 の画像に距離をもとに重ね合わせた結果を示す。図 6-8 で示したように電離箱式線量計のプロープの位置が 8 Gy であることから、本実験結果と良い一致を示すことが確認でき、距離によって減衰する吸収線量の分布を連続して測定することを可能とした。

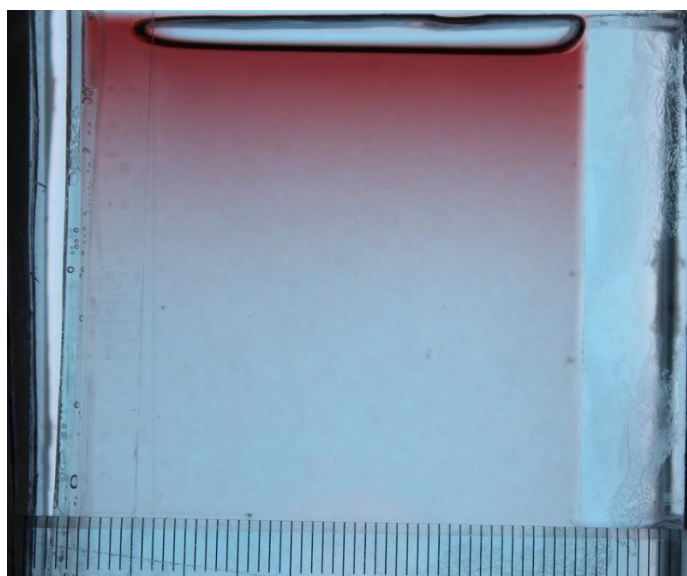


図 6-9 上方から X 線照射した PVA-KI ゲルの画像

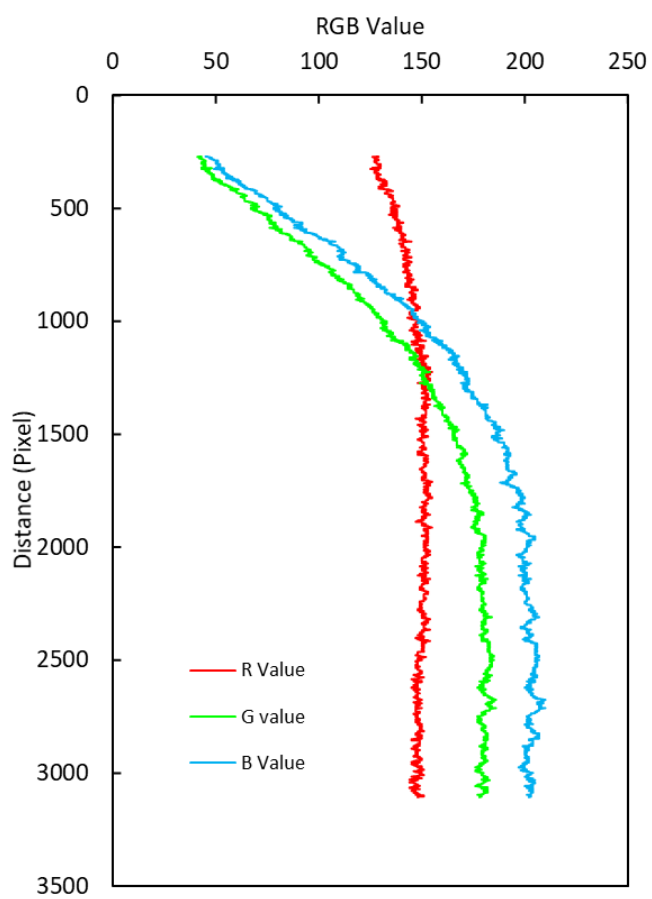


図 6-10 PVA-KI ゲル内の距離に対する RGB 値

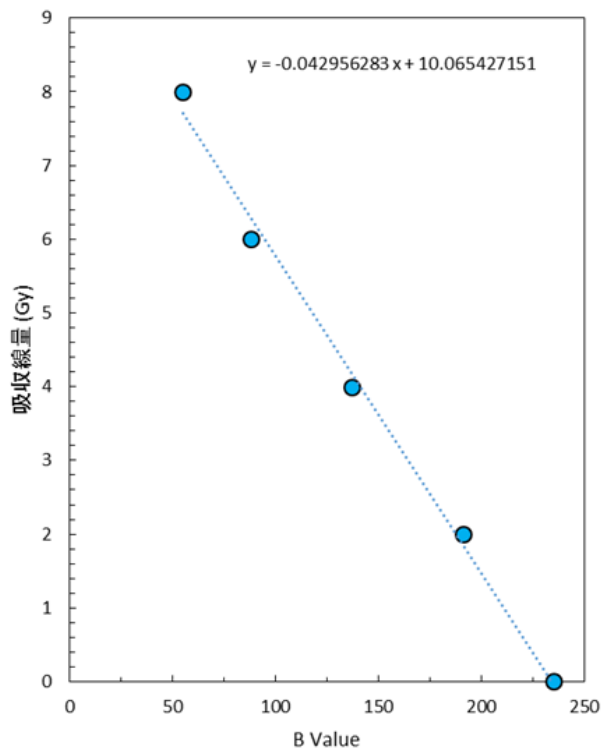


図 6-11 吸収線量に対する B 値

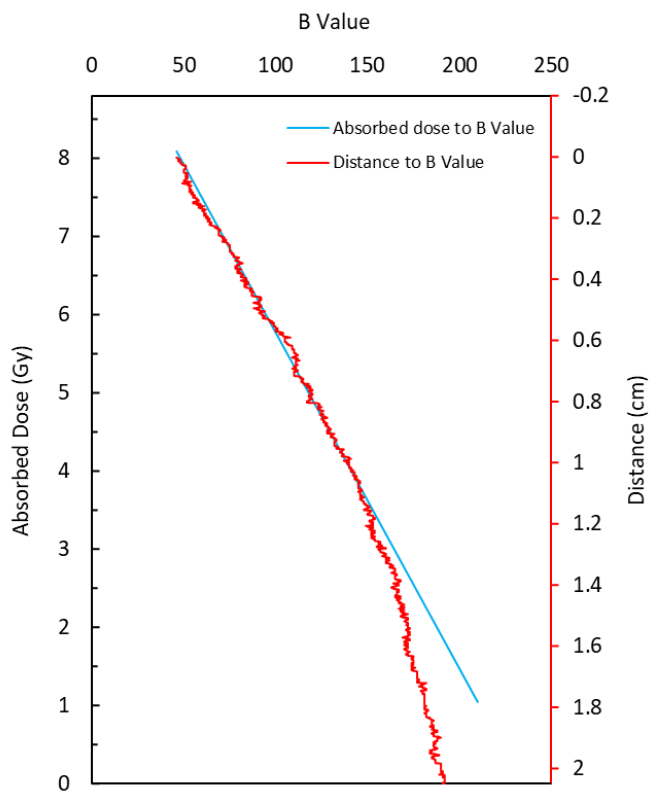


図 6-12 B 値と吸収線量と距離の関係

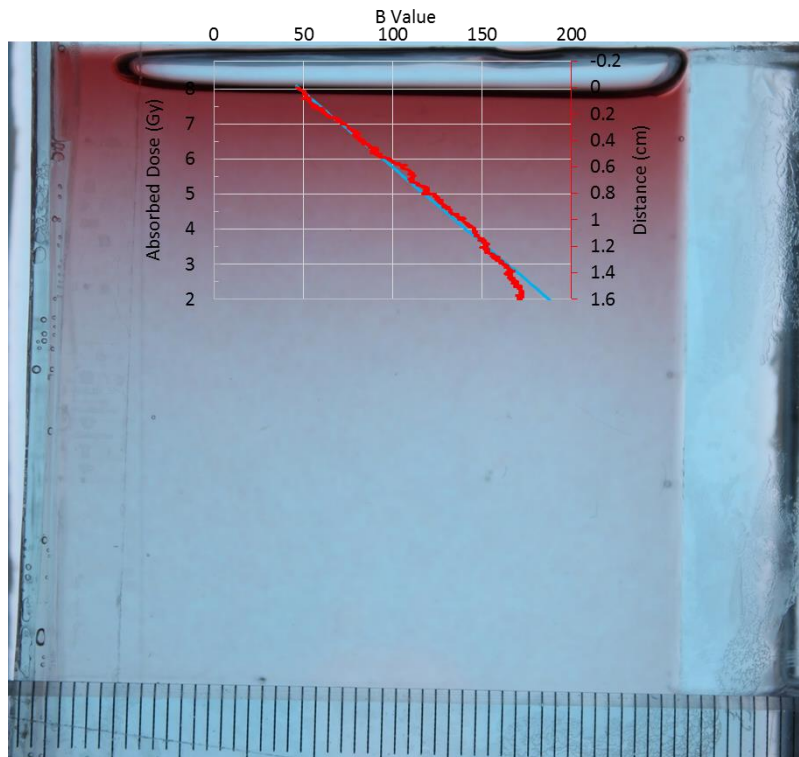


図 6-13 吸収線量と距離の関係

第四節 He イオン照射実験における線量評価手法の検討³⁴⁾

前節で PVA-KI ゲル測定システムによって、RGB 値の G 値と B 値が吸収線量に対して比例関係にあることが見いだされ、その結果によって線量測定、連続測定が可能とされた。しかし、RGB 値は色の指標であって、物理的な意味を持たない。そのため、紫外可視分光光度計による測定可能な試料の吸光度測定結果と組み合わせる評価手法について考えた。

1. He イオン照射実験

He イオン照射は若狭湾エネルギー研究センター(WERC)の所有する加速器 W-MAST を使用した。本照射実験での He イオンのエネルギーは 220 MeV (55 MeV/u)である。

PVA-KI ゲルは KI9 wt%ゲルを使用した。ゲルは PMMA 製の吸光度測定用のディスクセルに封入して実験試料とした。試料は 4 本用意し、治具上にビームラインに沿って一列に並べて設置した。図 6-14 に試料の設置の様子を示す。先頭試料のビーム入射面の位置を 0 mm とし、この位置での吸収線量が 4 Gy となる照射を 5 回行った。なお、本 He イオン照射における吸収線量は電離箱式線量計によって測定された空気カーマを示している。

試料は紫外可視分光光度計(Stellar Net 社製 Black Comet)を用いて吸光度測定を行った。PVA-KI ゲル中の He イオンの飛程は短いため、測定可能な試料のみ吸光度測定を行った。また、併せて、PVA-KI ゲル撮像装置による撮像を行い、画像から RGB 値測定を行った。両測定は照射前と 4 Gy の照射ごとに行った。

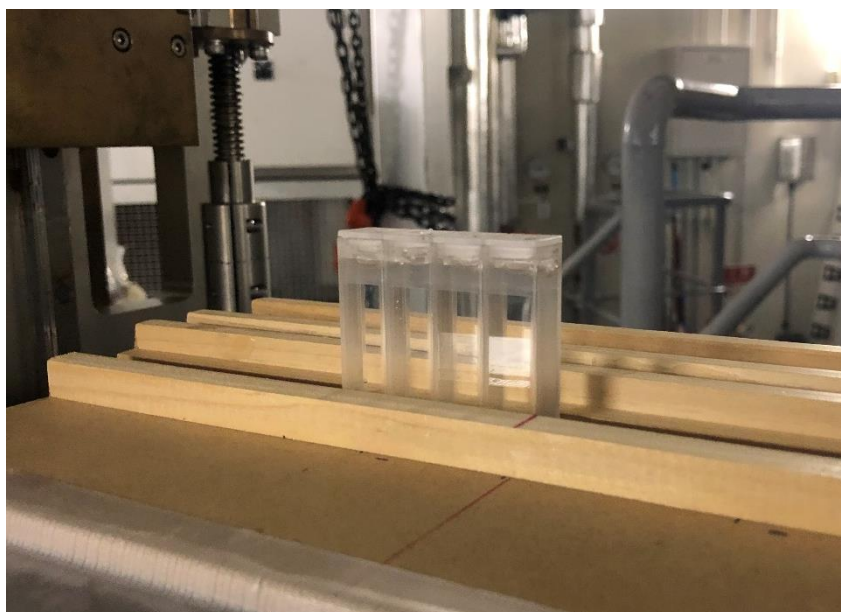


図 6-14 He イオン照射における試料設置の様子(図右方向がビーム上流側)

2. He イオン照射実験結果及び考察

図 6-15 に、20 Gy 照射後の試料の様子を、図 6-16 に PVA-KI ゲル撮像装置による撮影した画像を示す。2 本目の試料の中間で呈色は切れており、以降には色の拡散等の呈色は確認されない。これは He イオンの飛程を反映しており、ブラッグピークの位置を示していることを意味する。

図 6-17 に紫外可視分光光度計による吸光度測定結果を、図 6-18 に吸収線量に対する 490 nm における吸光度を示す。本照射において、図 6-15、6-16 から、2 本目の試料はセル内の呈色度合いが不均一であるため、正確に測定可能な先頭の試料のみ吸光度測定を行った。図 6-17 から、第三章、第五章で示した X 線、ガンマ線、陽子線照射での吸光度スペクトルと同様に 490 nm に極大を持つことが確認できる。また、図 6-18 から吸光度は吸収線量に対して比例関係にあることも確認できた。



図 6-15 20 Gy 照射後の試料の様子

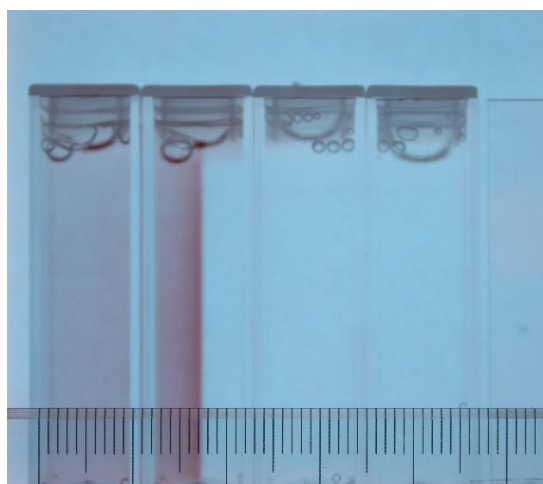


図 6-16 PVA-KI ゲル撮像装置による画像

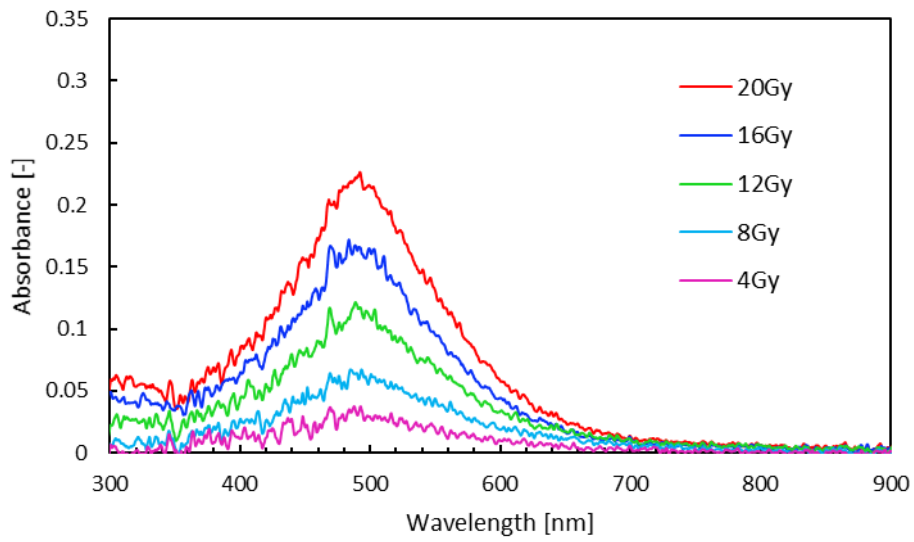


図 6-17 He イオン照射における先頭試料の吸光度スペクトル

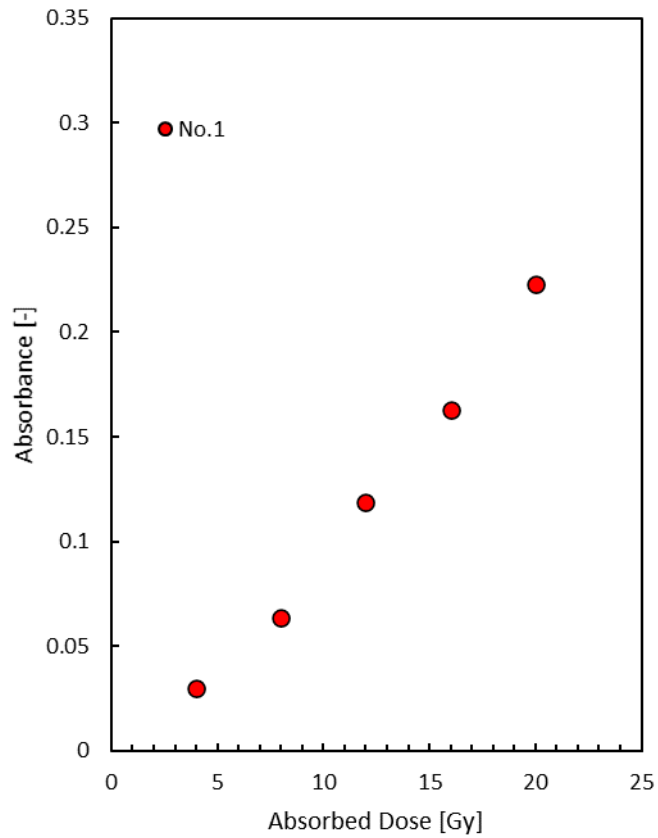


図 6-18 先頭試料の吸収線量に対する 490 nm における吸光度

次に、図 6-19 に各吸収線量の照射における PVA-KI ゲル撮像装置による画像と RGB 値測定結果を重ね合わせた図を示す。また、図 6-20 に吸収線量に対する、各 RGB 値について示す。ゲルの呈色は吸収線量とともに濃くなっており、それに伴い RGB 値の G 値と B 値は減少している。G 値と B 値はブラッグピークの位置に相当すると見られる位置約 1.8 cm で急激に減少し最小となる。ブラッグピークにおける吸光度の増大によって、490 nm の光が吸収されたため G 値と B 値が減少し、一方 R 値は PVA-KI ゲルの吸光度が変化しても R 値に相当する光の吸収に影響がないため、吸収線量が増加しても変化が見られない。この結果から G 値と B 値はブラッグピークの特徴を再現できていると考える。なお、1.1~1.4 cm における吸光度の急増減は、2 本のディスポセルの壁の部分に反映していることによる。

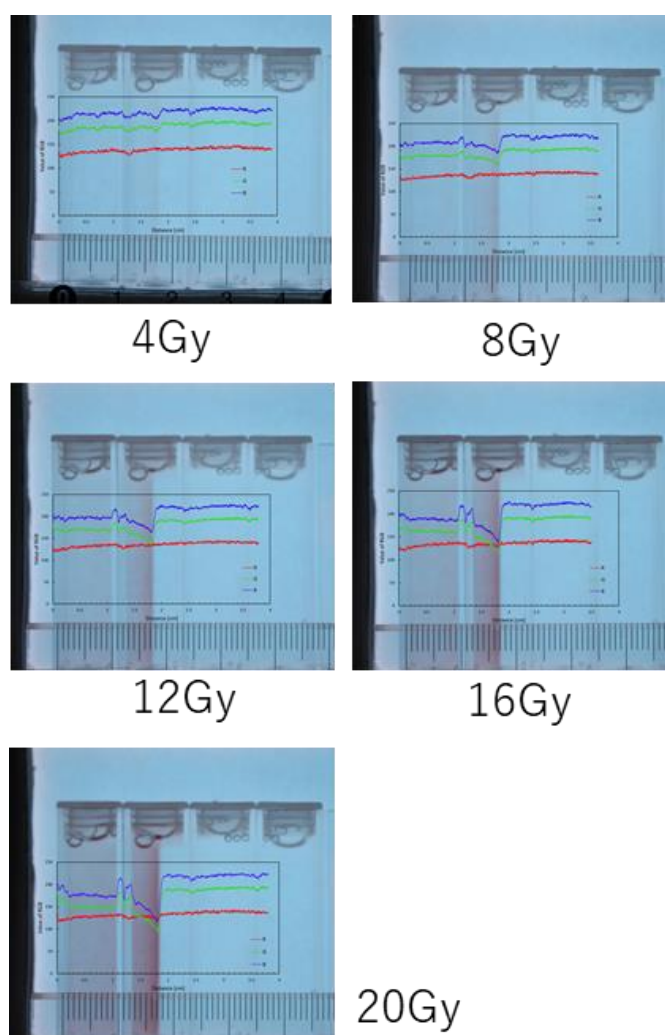


図 6-19 各照射後の PVA-KI ゲルの画像と RGB 値測定結果

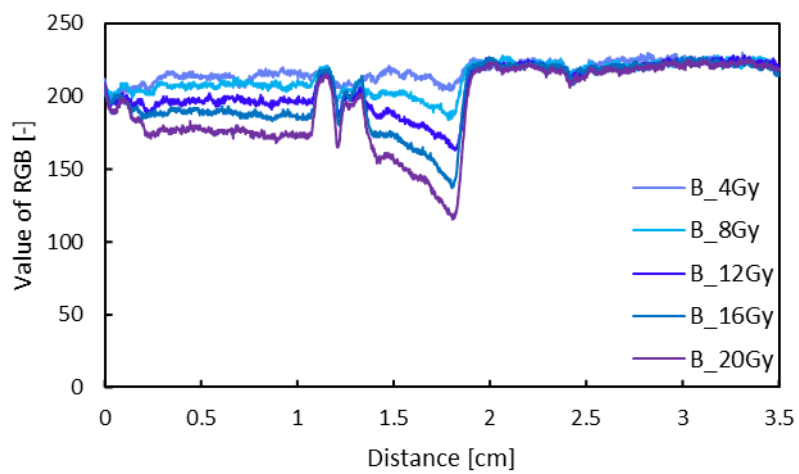
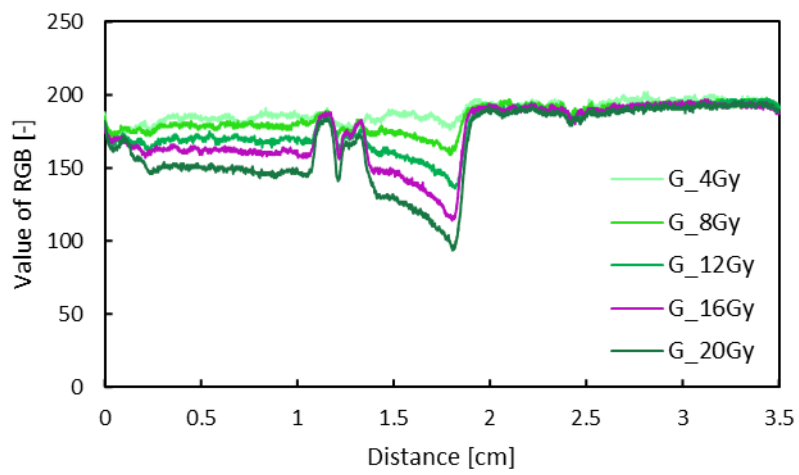
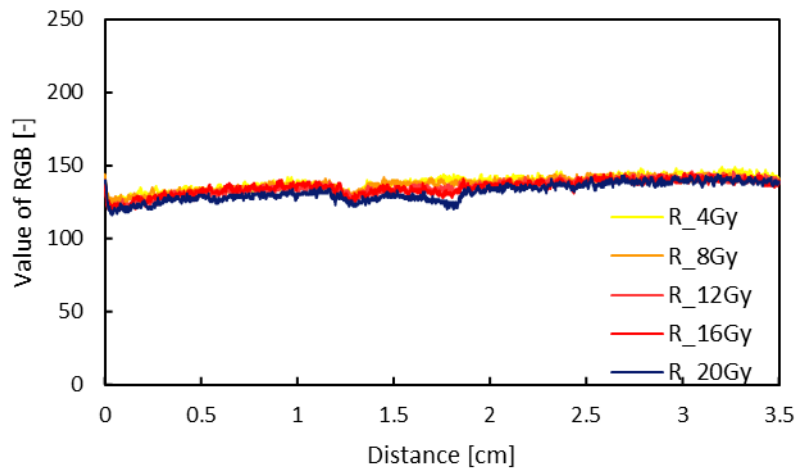


図 6-20 吸収線量に対する RGB 値

図 6-21 にブラッグピーク位置(18 mm)の RGB 値について示す。吸収線量に対して RGB 値は比例的に変化しており、線形性を示す。この傾向は、図 6-7 の X 線照射による結果と同様の傾向である。特に G、B 値の傾きは大きいことから、PVA-KI ゲルの評価には G 値と B 値を用いることが妥当であると考ええる。

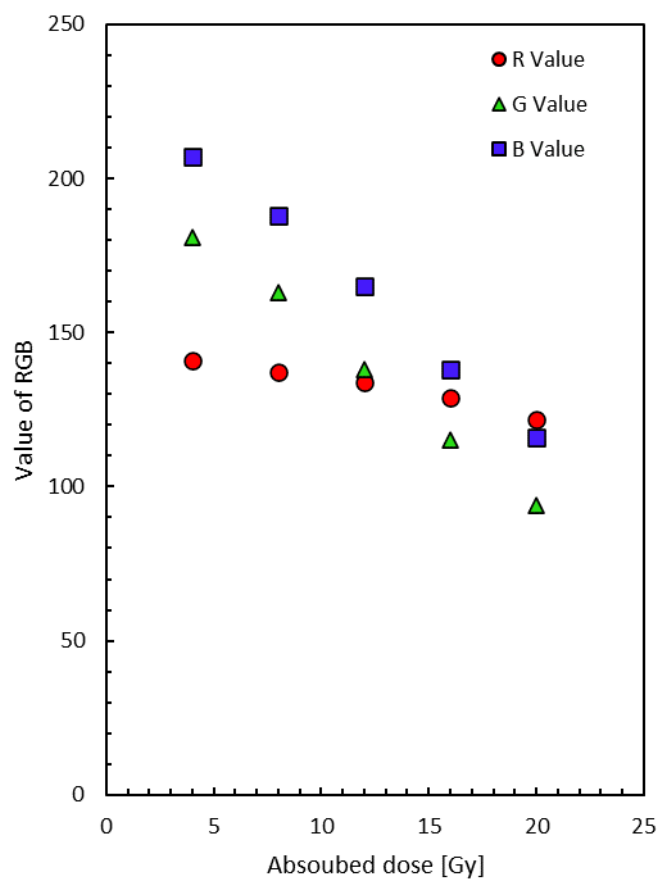


図 6-21 He イオン照射によるブラッグピーク位置の吸収線量に対する RGB 値

3. RGB 値の吸光度変換による線量評価手法の検討

第三章での結果および、図 6-18 の結果から、PVA-KI ゲルの紫外可視分光光度計によって測定した吸光度は吸収線量と比例関係にある。また、図 6-7、図 6-21 の結果から PVA-KI ゲルの RGB 値測定結果は吸収線量と比例関係があることが分かった。これらの事から、PVA-KI ゲルの吸光度と RGB 値も比例関係にあるということである。そこで、測定した RGB 値を吸光度へ変換することが可能であることを見出した。以下の式(6-1)、(6-2)を用いて測定した RGB 値を吸光度への変換を試みた。

$$\text{RGB}_{\text{Abs.}} = (\text{照射前の RGB 値} - \text{照射後の RGB 値}) \quad (6-1)$$

$$\text{変換した吸光度} = \text{RGB}_{\text{Abs.}} \times \frac{\text{先頭約 10 mm 間隔の吸光度}}{\text{先頭約 10 mm 間隔の RGB}_{\text{Abs.}}} \quad (6-2)$$

ここで、 $\text{RGB}_{\text{Abs.}}$ の Abs. は吸光度を意味する。図 6-19 と図 6-20 の結果から先頭試料内の RGB 値の G 値と B 値はほぼ平坦であることから、先頭試料範囲での吸光度および吸収線量分布は一定であると仮定した。また、「先頭約 10 mm 間隔」とは先頭試料のことを示し、「先頭約 10 mm 間隔の吸光度」は紫外可視分光光度計によって測定された吸光度を意味する。図 6-22 に先頭から 10 mm 間隔における RGB 値の $\text{RGB}_{\text{Abs.}}$ を示す。値は約 1cm の平均値である。 $\text{RGB}_{\text{Abs.}}$ は吸収線量に対する比例的関係を保っていることが確認できる。図 6-23 に RGB 値の G 値と B 値について吸光度へ変換した結果を示す。試料の深さ距離に対する吸光度の変化はブランク曲線を呈しており、G 値、B 値のどちらもほぼ同じ結果となった。

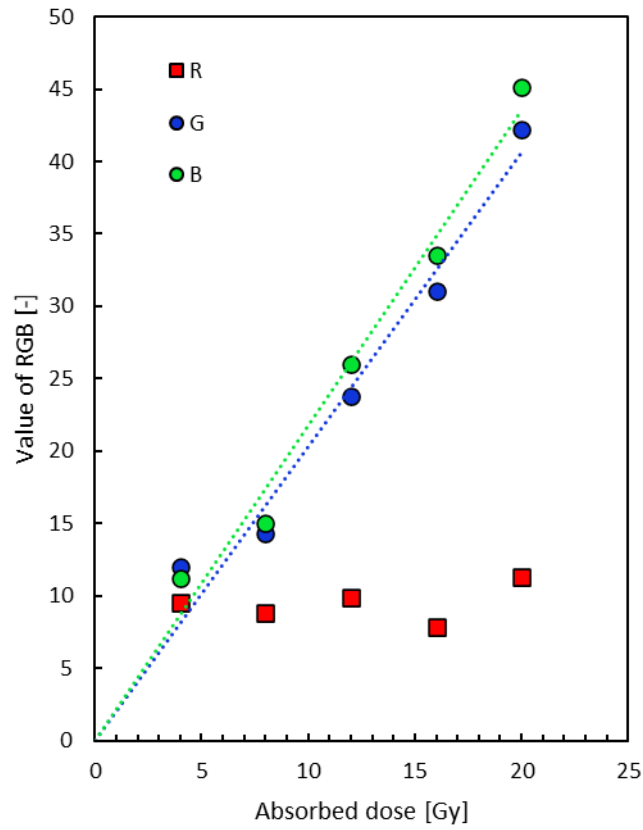


図 6-22 先頭約 1 cm 間隔の RGB_{Abs}.

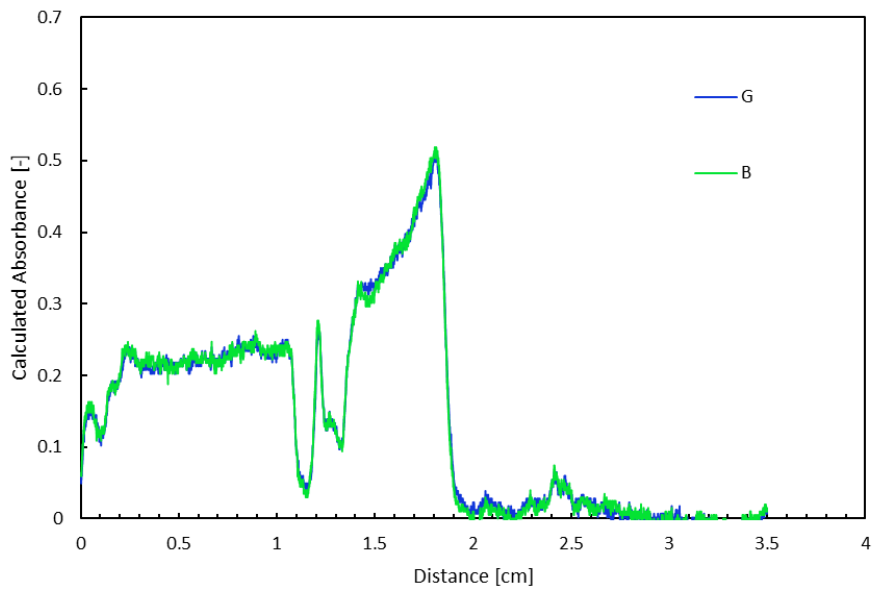


図 6-23 G 値と B 値について変換後の吸光度

4. RGB 値の吸光度変換による線量評価手法の結果と PHITS との比較

次に、RGB 値を変換し算出した吸光度の結果の妥当性を確認するため、モンテカルロシミュレーションとの比較を行った。シミュレーション計算には、PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System)を使用した。Ver. = 3.160、輸送計算には EGS5 を用いた。220 MeV の He イオンビームによる照射実験の体系におけるブラッグピークの計算を行った。図 6-24 に、PHITS による計算結果を示す。計算結果によるブラッグピークの位置は 18.57 mm であった。

図 6-25 に、図 6-23 の算出した吸光度と図 6-24 の PHITS によるブラッグピークの計算結果について示す。PHITS のブラッグピークの位置と、図 6-20 および図 6-23 で示した実験結果から得られたブラッグピークの位置約 18 mm とを比較するとほぼ一致を示した。次に PHITS の計算結果の出力のメッシュ幅を変更して図 6-23 との比較を行った。メッシュ幅が大きくなるにつれ、PHITS の計算結果のブラッグピークの情報鈍化し、ブラッグピーク付近の吸収線量は実験測定結果から算出した吸光度に近づくことが分かり、メッシュ幅が 3 mm のとき算出した吸光度の結果を再現することができた。

以上のことから PVA-KI ゲル測定システムによる RGB 値の測定と、その RGB 値の測定結果から吸光度へ変換する線量評価手法は実際の線量測定を十分可能とすることが示唆され、PVA-KI ゲルが He イオン照射によるブラッグピークの特徴をよく反映し、連続した距離に対する線量評価を行うことができた。

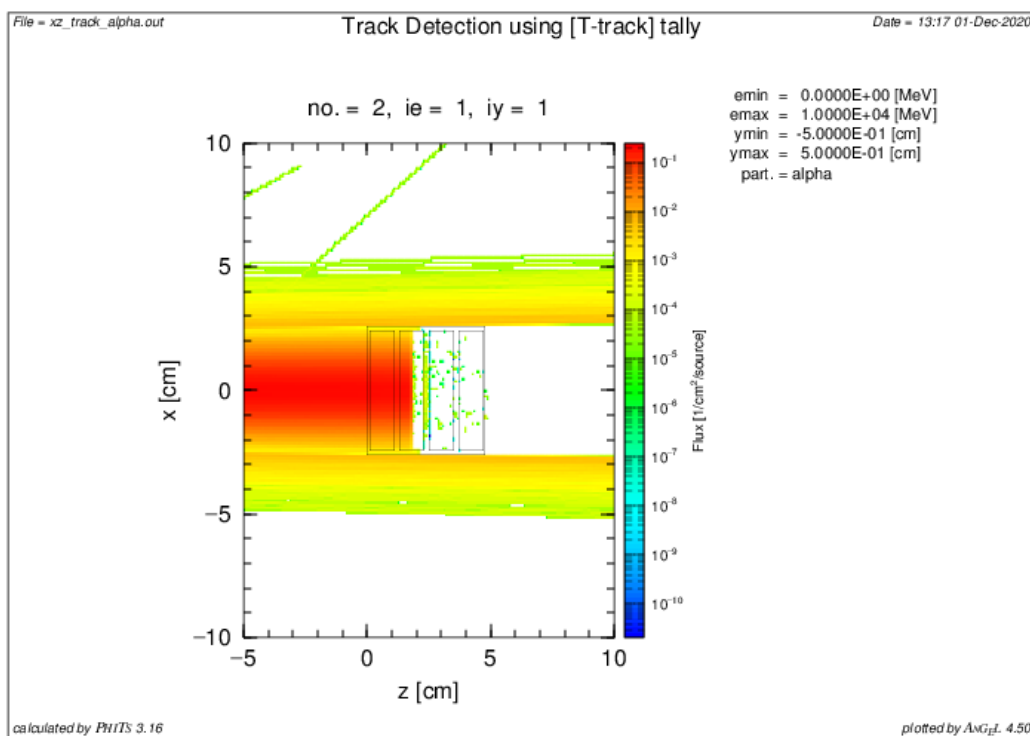


図 6-24 PHITS による計算結果[T-TRACK]出力

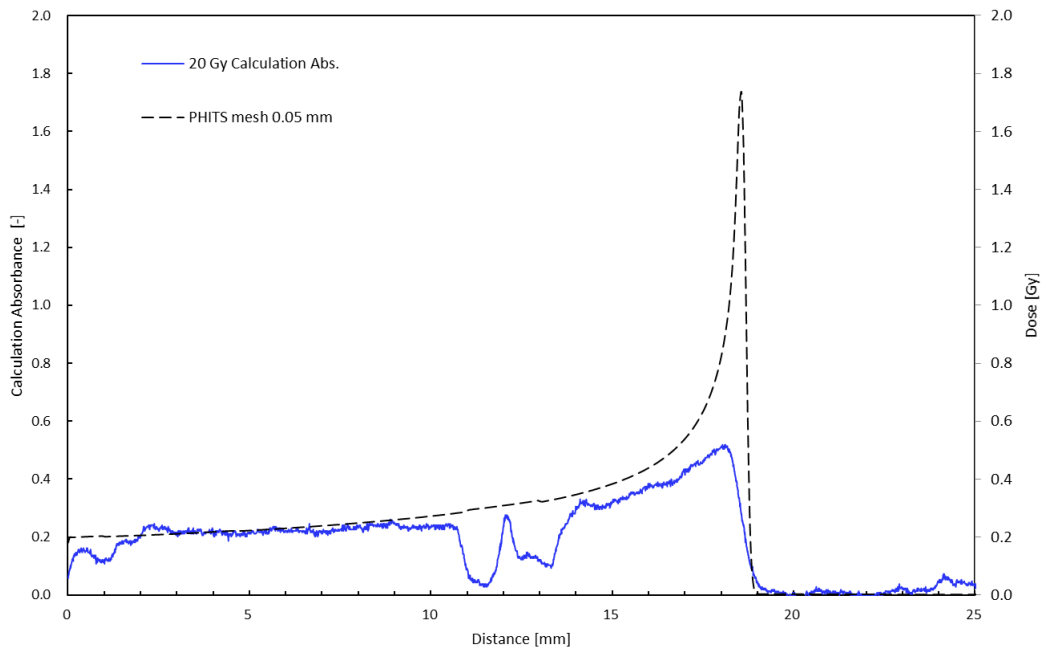


図 6-25 測定結果から算出した吸光度と PHITS の計算結果

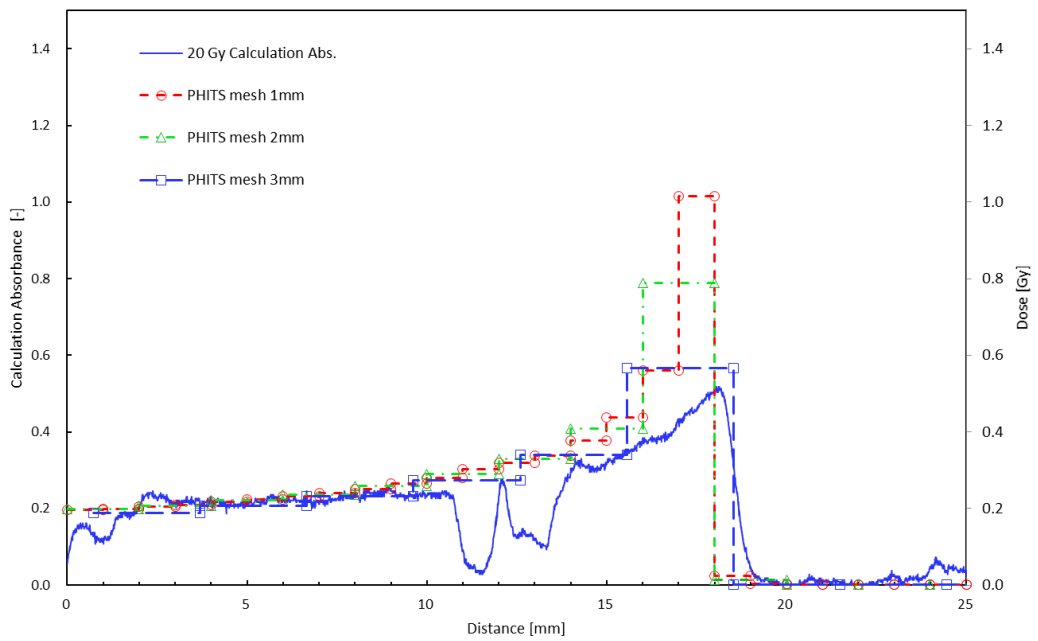


図 6-26 メッシュ幅の違いによる PHITS の計算結果と実験測定結果

第五節 結言

1. まとめ

本研究において PVA-KI ゲルに特化したゲル撮像装置と解析ソフトを組み合わせた PVA-KI ゲル測定システムを開発した。X 線照射の測定実験においては PVA-KI ゲルの RGB 値測定から X 線の距離によって吸収線量が減衰する特性を再現した。RGB 値が吸収線量に対し比例して変化する関係性を見出すことができ、本測定システムによる線量測定をすることができた。

また、He イオン照射の測定実験から、粒子線の特性であるブラッグ曲線およびブラッグピークの特性を反映することが確認できた。さらに本測定システムの測定結果の RGB 値に物理的意味を持たせるために、RGB 値を吸光度へ変換する手法を確立させた。PHITS によるブラッグピークの計算結果との高い一致を確認でき、PHITS のメッシュ幅を変更することで、実験測定より得られた吸光度と PHITS の吸収線量は接近し、本研究での RGB 値の吸光度変換手法によって算出した結果を再現することができた。

以上の一連の結果より PVA-KI ゲル測定システムによる測定は、放射線および粒子線の特性をよく反映し、RGB 値から吸光度へ変換することによる線量評価手法を確立させ、連続した距離に対する線量測定を行うことができた。

2. 今後の展望と課題

今後、PVA-KI ゲル撮像装置におけるカメラの撮影画素数の向上やレンズの変更することなどによる PVA-KI ゲル測定システムの改良によって、より、高分解能での RGB 値測定を可能とし、更に正確な線量測定、評価をすることが展望される。

第七章 総括

本研究では、放射線治療における正確な線量分布の評価を行うことなどを目標とした放射線可視化技術として、新規のゲル線量計である PVA-KI ゲル線量計の研究開発を行った。PVA-KI ゲルは部分ケン化 PVA と I_3^- との錯体形成による赤の呈色反応を利用しており、PVA-KI ゲルのオリジナルな特徴として加温による色の初期化反応から再利用性を持つ。本論文では、各種放射線の照射から、PVA-KI ゲルの特性や反応メカニズムの解明、吸収線量の測定と線量評価の結果について記述を行った。まず第二章では PVA-KI ゲルの作製と特徴、呈色反応原理について記述した。第三章以降の各章で得られた結果を以下にまとめる。

第三章では、PVA-KI ゲルに対し、X 線照射およびガンマ線照射を行い、紫外可視分光光度計による吸光度測定から部分ケン化 PVA と I_3^- との錯体形成による 490 nm の吸収スペクトルを確認し、その吸光度は吸収線量に対して比例して増大することを確認した。本実験において X 線照射とガンマ線照射とでは X 線照射の方がより高い感度を示し、この要因は PVA-KI ゲルに含まれるヨウ素の K 吸収端エネルギーと本照射実験で使用了 X 線の実効エネルギーの領域が近いことによる増感によるものであると分かった。

また、PVA-KI ゲルの感度は KI 濃度に依存することが分かり、PVA と I_3^- の錯体形成において、放射線照射によって生成される I_3^- の絶対量に影響を与えていることが示唆された。さらに、部分ケン化 PVA の重合度の変化に対する PVA-KI ゲルの感度の変化は、吸収線量が 10 Gy を超える領域では、重合度の低い PVA を使用した PVA-KI ゲルの感度が高くなる傾向が確認でき、PVA と I_3^- の錯体形成における部分ケン化 PVA の残存酢酸基の含有量の影響が示された。

第四章では、PVA-KI ゲルの特徴である、加温による色の初期化反応の原理について検討を行った。紫外可視分光光度計にペルチェ温調システムを接続し、加温した状態での吸光度測定を行い、PVA-KI ゲルの加温時間による吸収スペクトルの変化と、PVA と I_3^- の錯体および I_3^- に相当する吸光度の時間分解測定を行った。加温による吸収スペクトルの変化から PVA と I_3^- の錯体が分離し、さらに I_3^- を消失させるような反応を見出した。また、吸光度の時間分解測定と得られた結果のカーブフィッティングによる反応動学的解析を行い、その推定した反応式より PVA-KI ゲルの色の初期化反応メカニズムについて明らかにすることができた。

第五章では、より高い治療効果と副作用の軽減が図られる粒子線治療として、主に使用される陽子線について、陽子線に対する感度、粒子線照射によるブラッグピークの特長について確認を行った。陽子線の照射による呈色から、PVA-KI ゲル内における陽子線の飛程とブラッグピークに相当する呈色の切れ目を確認できた。吸光度の測定の結果からも同様に陽子線の飛程およびブラッグピークの測定を試みた。紫外可視分光光度計

による吸光度測定の結果から、ブラッグピークのおおよその位置について確認できた。

さらに、モンテカルロシミュレーションの PHITS による計算結果との比較から、ブラッグピークの正確な位置を確認し、照射実験の結果とよく一致することが分かった。また、PHITS による計算において、出力結果のメッシュ幅を照射実験で使用した吸光度測定用の光学ディスコセルの幅に合わせて計算したところ、ブラッグピーク付近の測定による吸光度と計算による吸収線量が接近することが判明し、吸光度測定結果は陽子線照射によるブラッグ曲線をよく再現することができ、PVA-KI ゲルによる陽子線の相対線量の測定が可能であることを見出した。

第六章では、連続した距離に対する線量測定を可能とし、かつ、PVA-KI ゲルに特化した測定装置と解析ソフトからなる PVA-KI ゲル測定システムを開発した。本システムは、PVA-KI ゲルの 490 nm の光吸収に伴う色の変化を測定するために、白色の有機 EL パネルを光源に使用した PVA-KI ゲルの撮像装置によって PVA-KI ゲルの画像を撮影する。撮影された画像を Visual Basic 2012 によって作製したソフトウェアによって RGB 値として数値化することで、RGB 値と吸収線量の関係を明らかにし、線量測定・評価を目的とした PVA-KI ゲル専用の測定システムである。

PVA-KI ゲル測定システム用に作製した特性の矩形セルを用いて X 線照射を行い、RGB 値の測定結果は吸収線量と比例の関係にあることが判明し、特に B 値は 2 Gy から 8 Gy にかけて線形性を持つことが分かった。さらに、X 線の吸収線量の距離による減衰の測定を行った。PVA-KI ゲルは X 線の照射窓からの距離に応じて赤色が薄くなる様子が確認でき、PVA-KI ゲル測定システムによる測定結果と、先の吸収線量に対する B 値の測定結果と組み合わせることで、距離によって減衰する吸収線量の分布を連続して測定することを可能とした。

さらに、He イオン照射において PVA-KI ゲル測定システムによる測定を行った。測定結果は粒子線の特性であるブラッグ曲線およびブラッグピークの特性を反映しており、正確なブラッグピークの位置の確認をすることができた。

PVA-KI ゲルの吸光度は吸収線量に対して比例して増加することと、RGB 値が吸収線量に対して比例して変化することが判明したことで、PVA-KI ゲルの RGB 値と吸光度も同様に比例関係であることを見出し、PVA-KI ゲルによって測定した RGB 値を紫外可視分光光度計によって測定した吸光度で換算することで RGB 値を吸光度へ変換する線量評価手法を考案し、He イオン照射の結果について本線量評価手法を適応させた。PHITS によるブラッグピークの計算結果との高い一致を確認でき、PHITS のメッシュ幅を変更することで、実験測定より得られた吸光度と PHITS の吸収線量は接近し、本研究での RGB 値の吸光度変換手法によって算出した結果を再現することができた。この結果から線量評価手法を確立させ、連続した距離に対する線量測定を行うことができた。

以上が本研究において得られた結果である。今後より詳しい反応メカニズムの解明と詳細な環境特性の調査によって、実用化へ近づくことができると考える。

引用文献

- 1) 厚生労働省, 令和元年(2019)人口動態統計(確定数)の概況, 第6表 (2020).
- 2) 国立がん研究センターがん情報サービス「がん登録・統計」(全国がん登録).
- 3) 林 慎一郎, 放射線化学, 100, 83-85 (2015).
- 4) J. W. T. Spinks, R. J. Woods, 堀田 寛, 放射線化学入門, 産業図書 (1967).
- 5) 前山 拓哉, 医学物理 37, 2, 99-106 (2017).
- 6) H. Fricke, S. Morse, *Am. J. Roentgenology and Radium Ther.* 18, 430-432 (1927).
- 7) J. C. Gore and Y. S. Kang, *Phys. Med. Biol.* 29, 1189-1197 (1984).
- 8) A. Appleby, E. A. Christman, A. Leghrouz *Med. Phys.* 14 382-384 (1987).
- 9) J. B. Davies, C. Baldock, *Radiat. Phys. Chem.* 77, 690-696 (2008).
- 10) J. B. Davies, C. Baldock, *Radiat. Phys. Chem.* 79, 660-662 (2010).
- 11) 林 慎一郎, 医学物理 37, 2, 89-94 (2017).
- 12) Murry P and Baldock C 2000 *Australas. Phys. Eng. Sci. Med.* 23 44-51
- 13) A. Hiroki, S. Yamashita, A. Kimura, N. Nagasawa and M. Taguchi, *Nucl. Inst. Meth. B* 365, 583-586 (2015)
- 14) Y. De Deene, C. Hurley, A. Venning, K. Vergote, M. Mather, B. J. Healy and C. Baldock, *Phys. Med. Biol.* 47, 3441-3463 (2002).
- 15) P. M. Fong, D.C. Keil, M. D. Does and J. C. Gore, *Phys. Med. Biol.* 46, 3105-3113 (2001).
- 16) A. J. Venning, B. Hill, S. Brindha, B.J. Healy and et al.: Investigation of the PAGAT polymer gel dosimeter using magnetic resonance imaging. C. Baldock, *Phys. Med. Biol.* 50, 3875-3888 (2005).
- 17) R. J. Senden, P. De Jean, K. B. McAuley and L. J. Schreiner, *Phys. Med. Biol.* 51, 3301-3314 (2006).
- 18) K. Ono, S. Fujimoto, S. Hayashi, K. Hioki, M. Miyazawa, Y. Akagi and Y. Hirokawa, *Med. Phys.* 43, 3634-3635 (2016).
- 19) 笛吹 修二, 医学物理 37, 2, 95-98 (2017).
- 20) S. Babic, J. Battista, K. Jordan *J. Phys.:* Conf. Ser. 164, 012044 (2009).
- 21) K. Jordan, N. Avvakumov, *Phys. Med. Biol.* 54, 6773 (2009).
- 22) S. Babic, J. Battista, K. Jordan, *Phys. Med. Biol.* 54, 6791 (2009).
- 23) J. Adamovics, M. J. Maryanski, *Med. Phys.* 30, 1349 (2003).
- 24) T. Olding, O. Holmes, L. J. Schreiner, *Phys. Med. Biol.* 55, 2819-2840 (2010).
- 25) 砂川武義, Glenn Harvel, 山本香帆, 福井工業大学研究紀要 第46号 160-168 (2012).
- 26) 林 貞夫, 中野 千世子, 本山 卓彦, 高分子化学 20, 217, 303-311 (1963).
- 27) 磯崎 真夫, 石川 昇, 簗島 美雄, 東京工業試験所報告第59回 第8号 359-364 (1964).

- 28) H. Miyoshi, Y. Mashiko, S. Maeda, K. Yamada and J. Mastumura, *J. Rad. Nucl. Chem.* 308, 469-475 (2016).
- 29) 砂川 武義, 速水 醇一, 江藤浩一, 金井 兼, “ゲル状玩具製作キット”特願 2012-138763(2012. 6. 20), 特許第 6068015 号(2017. 1. 6)
- 30) 速水醇一, “糖分解の研究”, 京都大学 博士論文 (1961).
- 31) 砂川 武義, Glenn Harvel, 青木 祐太郎, 福井工業大学研究紀要 第 50 号, 97-102 (2020).
- 32) T. Sato, Y. Iwamoto, S. Hashimoto, T. Ogawa, T. Furuta, S. Abe, T. Kai, Pi-En. Tsai, N. Matsuda, H. Iwase, N. Shigyo, L. Sihver and K. Niita, *J. Nucl. Sci. Technol.* 55(5-6), 684-690 (2018).
- 33) 砂川 武義, Glenn Harvel, 青木 祐太郎, 畑下 昌範, 久米 恭, 佐倉 俊治, 福井工業大学, 文部科学省 私立大学研究ブランディング事業 研究成果報告書, 115-121 (2020).
- 34) 砂川 武義, Glenn Harvel, 青木 祐太郎, 畑下 昌範, 久米 恭, 佐倉 俊治, 若狭湾エネルギー研究センター研究年報, Vol. 22, 31-32 (2019).

発表論文目録

1. Y. AOKI, G. HARVEL, T. SAKURA, and T. SUNAGAWA, “Development of a Gel Type Dosimeter for X-ray Fields,” Proc. of the 2017 25th International Conference on Nuclear Engineering, Vol.9, ICONE25-67618, pp. V009T15A052, ISBN: 978-0-7918-5787-8, ASME (2017)
2. Y. AOKI, G. HARVEL, M. TAGUCHI, N. NAGASAWA, T. SAKURA, T. SUNAGAWA, “Research and Development of PVA-KI Gel Dosimeter” Proc. of the 2018 Pacific Basin Nuclear Conference, p.326-330 (2018)
3. 青木、田口、長澤、砂川、「新規メカニズムによる医療用高感度ゲル線量計の開発」, 放射線と産業, No. 146, p.50-54 (2019)
4. 「放射線感応性ゲルインジケータ、及びその調製方法、及びその使用方法、及びその処理方法」砂川、青木、ハーヴェル、速水、吉橋、佐倉、榊原、五東、蛭名、田口、長澤、畑下、久米、特許第 6714231 号
5. 「PVA-KI 系ゲルインジケータの開発」砂川、青木、梅田、HARVEL、速水、榊原、五東、蛭名、田口、長澤、吉橋、畑下、久米、佐倉、福井工業大学研究紀要, 第 47 号, p.105-110 (2017)
6. 「PVA-KI ゲル線量計を用いた線量評価技術開発」砂川、HARVEL、青木、柴岡、速水、田口、長澤、畑下、久米、佐倉、福井工業大学研究紀要, 第 49 号, p.93-98 (2019)

講演発表

2016 年度

1. 「新規メカニズムによる放射線医療用高感度ゲル線量計開発」青木、HARVEL、佐倉、砂川、日本原子力学会, 2016 年秋の大会, 講演番号 1J21, 福岡, 2016 年 9 月 7～9 日
2. 「PVA-KI 系におけるゲルインジケータの開発」砂川、青木、梅田、HARVEL、速水、榊原、五東、蛭名、田口、長澤、吉橋、畑下、久米、佐倉、日本放射線化学会, 第 59 回放射線化学討論会, 講演番号 1O07, 群馬, 2016 年 9 月 20～22 日
3. 「PVA-KI ゲルインジケータに対する陽子線効果」青木、梅田、HARVEL、畑下、久米、佐倉、砂川、日本原子力学会, 2017 年春の年会, 講演番号 2B17, 神奈川, 2017 年 3 月 27～29 日

2017 年度

4. “Development of a Gel Type Dosimeter for X-ray Fields,” Y. AOKI, G. HARVEL, T. SAKURA, and T. SUNAGAWA, 2017 25th International Conference on Nuclear Engineering, Shanghai, China, July 2-6, 2017
5. 「PVA-KI 系ゲルインジケータの陽子線照射効果に関する研究」砂川、HARVEL、青木、梅田、速水、田口、長澤、畑下、久米、佐倉、日本放射線化学会, 第 60 回放射線化学討論会, 講演番号 3-O-01, 茨城, 2017 年 9 月 27～29 日
6. 「PVA-KI ゲルインジケータの陽子線照射効果の研究」青木、梅田、HARVEL、畑下、久米、佐倉、砂川、第 6 回 3D ゲル線量計研究会, 栃木, 2017 年 11 月 11～12 日
7. 「PVA-KI ゲルインジケータにおける放射線効果」青木、梅田、HARVEL、田口、長澤、久米、畑下、佐倉、砂川、日本原子力学会, 2018 年春の年会, 講演番号 1E11, 大阪, 2018 年 3 月 26～28 日
8. 「PVA-KI ゲル線量計の開発及び放射線効果の研究」青木、砂川、関西原子力懇談会、原子力関係科学技術の基礎的研究の動向調査委員会, 大阪, 2018 年 1 月 25 日, 最優秀研究発表賞受賞

2018 年度

9. 「PVA-KI ゲル線量計を用いた線量評価技術研究」柴岡、青木、井野、HARVEL、佐倉、砂川、日本原子力学会, 2018 年秋の大会, 講演番号 3K01, 岡山, 2018 年 9 月 5～7 日
10. 「PVA-KI ゲル線量計の研究開発」青木、ハーヴェル、田口、長澤、佐倉、砂川、日本放射線化学会, 第 61 回放射線化学討論会, 講演番号 1-P-01, 大阪, 2018 年 9 月 26～28 日
11. “Research and Development of PVA-KI Gel Dosimeter” Y. AOKI, G. HARVEL, M. TAGUCHI, N. NAGASAWA, T. SAKURA, T. SUNAGAWA, 2018 Pacific Basin Nuclear Conference, San Francisco, CA, Sep. 30 – Oct. 5, (ポスター発表)

12. 「PVA-KI ゲル線量計を用いた線量評価技術研究」柴岡、青木、井野、HARVEL、佐倉、砂川、第7回3Dゲル線量計研究会、金沢、2018年11月24～25日、
13. 「PVA-KI ゲル線量計を用いた線量評価技術研究②」柴岡、青木、HARVEL、田口、長澤、畑下、久米、佐倉、砂川、日本原子力学会、2019年春の年会、講演番号1H02、茨城、2019年3月20～22日

2019年度

14. 「PVA-KI ゲル線量計を用いた線量評価技術研究③」柴岡、青木、HARVEL、田口、長澤、久米、畑下、佐倉、砂川、日本原子力学会、2019年秋の大会、講演番号3D06、富山、2019年9月11～13日
15. 「PVA-KI ゲル線量計を用いた線量評価技術開発」青木、HARVEL、柴岡、速水、田口、長澤、畑下、久米、佐倉、砂川、日本放射線化学会、第62回放射線化学討論会、講演番号1-O 02、福井、2019年9月23～25日
16. 「PVA-KI ゲル線量計を用いた線量評価技術開発」青木、HARVEL、柴岡、田口、長澤、畑下、久米、佐倉、砂川、第8回3Dゲル線量計研究会、東京、2019年11月9～10日
17. 「PVA-KI ゲル線量計の反応メカニズムについて(1)」青木、HARVEL、田口、長澤、久米、畑下、佐倉、砂川、日本原子力学会、2020年春の年会、講演番号3F08、福島、2020年3月16～18日

2020年度

18. 「PVA-KI ゲル線量計による中性子線量測定」青木、HARVEL、吉井、吉橋、濱野、須田、伊豆本、砂川、日本原子力学会、2020年春の年会、講演番号1A07、福島、2020年3月16～18日
19. 「PVA-KI ゲル線量計の反応メカニズム研究」砂川、HARVEL、青木、日本原子力学会、2020年秋の大会、講演番号1A08、九州、2020年9月16～18日、
20. 「PVA-KI ゲル線量計を用いた熱中性子束測定」青木、HARVEL、吉井、吉橋、濱野、須田、伊豆本、砂川、第9回3Dゲル線量計研究会、2020年11月28日
21. 「PVA-KI ゲル線量計による中性子測定」青木、HARVEL、吉井、吉橋、濱野、須田、伊豆本、砂川、日本放射線化学会、第63回放射線化学討論会、2019年12月12～14日、(予定)

「PVA-KI ゲル線量計の反応メカニズムの解明」砂川、HARVEL、青木、日本放射線化学会、第63回放射線化学討論会、2019年12月12～14日

謝辞

本研究は福井工業大学大学院 砂川研究室において行われたものです。

本研究を行うにあたり、終始心温まる指導、ご鞭撻頂きました福井工業大学工学部教授 砂川 武義先生に心から感謝の意を表します。また、本研究において多くの貴重なご助言を頂きました福井工業大学工学部教授 西嶋 茂宏先生、尾崎 禎彦先生に深く感謝いたします。

本研究において、実験にご協力頂き、多くのご助言、ご指導、ご鞭撻頂きましたカナダ オンタリオ工科大学教授 Glenn Harvel 先生に深く感謝いたします。

本研究を行うにあたり、「放射線の見える化」膜の研究開発として実験環境等多くの面でご支援、ご助力して頂きました株式会社ニュークリアテクノロジー 社長 佐倉 俊治氏に深く感謝いたします。

ゲル線量計の研究開発を行うにあたり、多くの貴重なご助言、ご指導いただきました量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所 田口 光正先生、長澤 直胤先生に心より深く感謝いたします。

陽子線照射 He イオン照射の実験にご協力いただき、シミュレーション体系に関し、多くのご助言、ご指導いただきました若狭湾エネルギー研究センター 久米 恭先生、畑下 昌範先生に感謝いたします。

また、ゲル線量計について多くの知見を頂きました広島国際大学准教授 林 慎一郎先生に深く感謝いたします。

最後に、研究のみならずあらゆる面で協力とサポートして頂いたすべての人に深く感謝します。

令和3年1月
青木 祐太郎