

熱ルミネセンス線量計の研究

第2報 弗化リチウム結晶の個人被曝線量計としての性能について

福島県立医科大学がん診療部（主任：松川 明教授）

高 久 祐 治

放射線医学総合研究所 物理研究部

中 島 敏 行 加 藤 義 雄

（昭和47年7月24日受付）

The study of characteristics of the cleaved LiF crystal
for the use of personnel monitoring

Y. Takaku

Department of Radiology, Fukushima Medical College, Fukushima-city, Japan

T. Nakajima and Y. Kato

National Institute of Radiological Sciences, Chiba-city, Japan

Research Code No.: 203

Key Words.: LiF, Personnel monitoring, Thermoluminescence

The studied characteristics of the cleaved LiF (about $10 \times 10 \times 1.5$ mm in size, available from Harshaw Chemical Co.) were; fading in the dark at room temperature; dose dependence; the standard deviation of 10 dosimeter measurements from a batch of 100 pieces at the exposure level of 10, 100 and 1,000 mR; potentialities for repeated use; energy dependence; angular dependence of the sensitivity for 29 keV effective energy. Acrylite holders were made for this experiment, the schematic of which is in Fig. 1. The reader used was Harshaw model 2000 analyzer. The annealing procedure was 400°C for 1 hour followed by 2 hours at 100°C for pre-irradiation, and 100°C for 10 minutes for post-irradiation and pre-read. At the beginning of the experiment, the standard deviation in sensitivity for a batch of 100 pieces was observed to be about 30%, so the calibration of the dosimeters and the corrections for readings with their sensitivities had to be practiced. The estimated lower detectable limit for the combination of the dosimeter and reader was 30 mR with the standard error of $\pm 50\%$. With this sensitivity and good energy dependence this system is suitable for the measurement of high exposure level expected in some clinical X-ray examinations. The crystal is brittle and shows undurability for repeated use.

I 緒 言

日ごろ放射線を取扱っている者にとつては、熱ルミネセンス線量計(TLD)が個人被曝線量計としてフィルムバッジ、ガラス線量計やポケット線量計より優れているか、あるいは将来、これらに取って代るか関心のある所である。Attix はこ

れに関し興味ある統計を発表している¹⁾。現在市販されている素子を概観してみると、大きく分けて、高感度であるが実効原子番号の高いものと、低い実効原子番号のためその反応が空気や軟組織と同程度のエネルギー依存性を示すが、感度が従来の個人被曝線量計に比して劣るものがあるよう

に思われる。今回取上げた弗化リチウム (LiF) 結晶は後者に属するもので、比較的低いエネルギーのX線が大部分を占める医療上の被曝測定に、その良好なエネルギー依存性があるいは感度の悪さを補って偉力を発揮するのではなかろうかという若干の期待のもとにその特性を検討した。試験した項目はX線または γ 線を照射した場合の経時変化 (fading), 線量依存性, ばらつき再現性, エネルギー依存性, 方向依存性等である。熱処理法, 測定法としては原則として素子メーカーが推奨している方法に従い, ここでは方法の妥当性についての検討を特に行わなかつた。この素子には専用のホルダーが用意されてないので, 本研究のためアクリル製のホルダーを製作した。そして fading の場合を除いて, このホルダーに入れ空中で照射を行った。

II 材料および測定法

素子 (LiF Cleaved Crystal, Harshaw Chemical Co. 製) は LiF 単結晶をへき開面で割り, ほぼ $10 \times 10 \times 1.5$ mm の大きさにしたもの 100個で, 素子としての感度をかせぐためか他の市販 TLD 素子よりかなり大き目になっている。熱処理としてはマニュアルに従って照射前 ($400^\circ\text{C} \times 1$ hr) + ($100^\circ\text{C} \times 2$ hr), 照射後測定前 $100^\circ\text{C} \times 10$ min 行つた。使用した測定装置は前報と同様²⁾ Harshaw 製 TLD-2000 A, 2000 B である。測定条件は; 光電子増倍管印加電圧が 800 V, 素子加熱法は素子の熱容量が大きいので60秒かけて 250°C まで温度上昇させる, 積分方式で測定する, 等である。装置自身の暗電流を 5.0×10^{-12} Amp. に調整したが, zero current suppression でもつと減らすことは可能である。今までの所, 本装置は良い安定性を示しているが, 測定が長期にわたるので一応測定の度に装置内に組み込まれている Standard Light Source による測定値 (SL値とする) を求め, この値で TLD 素子の測定値を割ることにした。background 測定用としては6個の素子を充て, 素子を照射のため郵送する場合もこれ等を同封した。そして本実験では, 照射試料測定値から background 測定用試料6個の測定値平均を差引い

て net 測定値とした。初めの段階で素子同志の感度に30%程度のばらつきがあることが判明した。これに対しては, 厚さ・大きさにかんがりのばらつきが出来てしまうことと, 原料単結晶内での活性化物質の分布を均一にできないことによるものと思われるというメーカーの説明があつた。ここでは, 素子に番号を刻み, ^{60}Co γ 線照射線量に対する個々の感度を求め, この値で個々の感度補正を行なつた。従つて, 以下の実験によつて得ている個々の素子の測定値は次のようになっている;

$$\begin{aligned} & \frac{(\text{net 測定値})}{(\text{測定時 SL 値})} \\ & \div \frac{(\text{較正用 } ^{60}\text{Co 照射に対する net 測定値})}{(\text{較正時 SL 値}) \times (\text{較正時照射線量})} \\ & = (^{60}\text{Co 照射線量に換算した測定照射線量}) \end{aligned}$$

ホルダーとしては濃スモーク状着色アクリルをその材料に選び, 若干の予備的な計算と実験のうち Fig. 1 に示すものを設計製作した。アクリルの厚さを20mmにするとエネルギー依存性が更に良

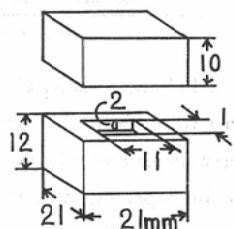


Fig. 1. The schematic diagram of dosimeter holder made of darkly smoked acrylic resin and used in the experiment for cleaved LiF.

くなるという結果であつたが³⁾, 非実用的なので前後面各10mm, 側面5mmとした。素子の保管には室温・暗所を心がけた。当測定系から得られる本素子の応答値は約7 nano Coulomb/Rであつた。測定結果は特に断らない限り5個の平均となつており, これに誤差として 1σ が表示されている。

III 測定結果

1) fading

照射1回当たり素子5個を5mm厚アクリル板中にはさみ, ^{60}Co 廻転照射装置で, SSD=75cm, 照射野=10×10cm, 1分間照射, 照射線量約50R

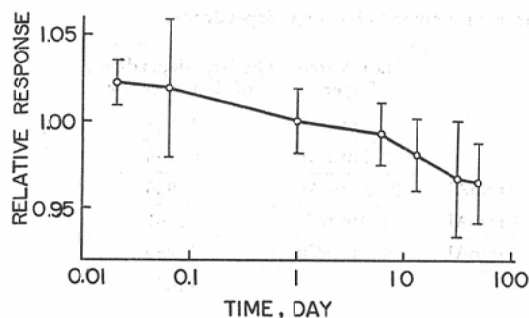


Fig. 2. Fading of the cleaved LiF, as a function of storage time in the dark at room temperature. Normalized to the result of 24 hrs case.

を次々に所定の期間において照射し、室温・暗所に保存した。そして、測定を最後の照射から30分後に始めて全部一度に済ませた。結果は；1日後の測定値と比較して、30分後が+2.2%，90分後が+1.9%，6日後が-0.7%，13日後が-1.9%，31日後が-3.3%，48日後が-3.5%のレスポンスであつた。これ等が図として Fig. 2 に示してある。以後の試験項目では測定が照射後2日から4日の間に行われているので fading の影響はないものと考え無視した。

2) 線量依存性

照射は ^{137}Cs 線源で行なわれた。結果は；100 R照射の場合が $94.7 \pm 1.8\text{R}$ ，10 Rが $9.58 \pm 0.18\text{R}$ ，1 Rが $0.906 \pm 0.032\text{R}$ ，100mR が $72 \pm 16\text{mR}$ ，10mR が $-15 \pm 14\text{mR}$ であつた。図にして Fig. 3 にまとめている。10mR照射の場合が background 値を引いた結果負になつて log スケール上に表示できなかった。仮に 1σ の2倍を検出限界と考えると30mR となり、精度 $\pm 10\%$ を測定可能範囲と考えると低い方ではそれが 150～200mR あたりになると思われる。

3) ばらつきと再現性

TLDの長所の一つとして同じ素子を繰り返し使用できる点が多くの人々によつて指摘されているが、実際の報告はあまりないようである。ここではまず、ある照射線量に対して本測定法による素子一団の測定値がどの程度ばらつくかを調べる目的で素子10個ずつを10，100，1000mR 照射し

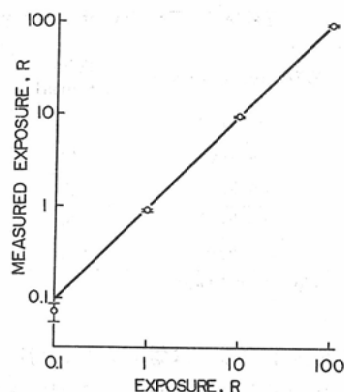


Fig. 3. Dose dependence of the cleaved LiF dosimeter and model 2000 AB measuring system, irradiated with ^{137}Cs γ -rays. The value for 10 mR irradiation was resulted to be negative after background reduction, so it is not shown here.

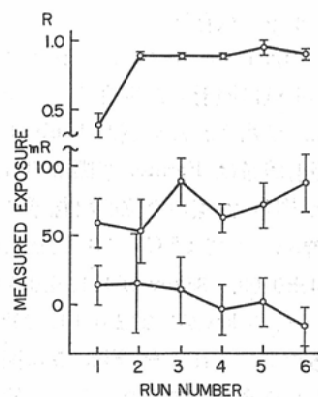


Fig. 4. Change of the sensitivity of the cleaved LiF with repeated use for ^{137}Cs gamma rays of 10, 100 and 1,000 mR irradiations. The average value of 5 elements are plotted with the standard deviation.

た場合に得られた測定値の相対標準偏差を求めた。結果は10mR が $\pm 100\%$ ，100mR が $\pm 22\%$ ，1000mR が $\pm 2.8\%$ であつた。前述の通り、素子個々の感度差を補正してあるので高線量になるに従つて急速にばらつきが少なくなっている。

次に、同一素子に照射・測定を繰り返した場合の測定値の再現性について調べた。その結果を Fig. 4 に示す。素子個々の再現性が調べてある

Table 1 The list of x-ray qualities used in the measurement of energy dependence.

Effective energy	Tube potential	Filter	Half Value Layer	Quality dependence of Ionex 0.6cc
29 keV	75	1.5 mmAl	2.3 mmAl	1.048
38 keV	80	2.0 mmAl	3.7 mmAl	0.995
68 keV	120	0.5 mmCu+ 0.5 mmAl	0.48 mmAl	0.956
85 keV	150	1.0 mmCu+ 0.5 mmAl	1.2 mmCu	0.861
118 keV	200	1.5 mmCu+ 0.5 mmAl	2.0 mmCu	0.980
^{60}Co (1.25 MeV)	—	—	—	1.00

が、悉くを図示するのは難しいし、特に変わった変化を示した素子もなかったので5個の平均として図示した。全部で6回繰り返しを行ったが、第1回目は素子を入手のままの状態では照射したので pre annealing が省かれた結果になっている。1 R照射の場合の第1回目とそれ以後の変化から annealing の重要性を知ることができる。

4) エネルギー依存性

本素子を Fig. 1 のホルダーに入れアクリル21×21mmの面へ垂直に照射した場合のエネルギー依存性を求めた。使用された線質が Table 1 にまとめられている。照射線量は Farmer 標準線量計で求めた。結果は ^{60}Co γ 線の単位照射線量に対する測定値を規準にとつて、 ^{60}Co が 1.00 ± 0.01 、118 keV が 1.04 ± 0.03 、85 keV が 1.15 ± 0.10 、64 keV が 1.18 ± 0.05 、38 keV が 1.20 ± 0.10 、29 keV が 1.22 ± 0.11 であつた。これらを Fig. 5 に図示してある。比較のため高感度 TLD として市販されている CaSO_4 の場合を図に加えた⁴⁾。これは粉末状 CaSO_4 がガラスアンプルに封入され、これがエネルギー依存性を改善するための鉛とすずのすだれ状フィルターに入れられたものである⁵⁾。 CaSO_4 の場合は、金属フィルターのため低エネルギーで感度が急速に下がり、29 keV では ^{60}Co の35%減となつている。診断用 X 線の照射線量を測定の対象とするときは 100 keV 附近の感度を落すだけでなく、より低いエネルギーに対する感度が下がらないようにするための工夫が必要である。

5) 方向依存性

高エネルギーより低エネルギー X 線で方向依存性が問題になるのではなかろうかという考えから、

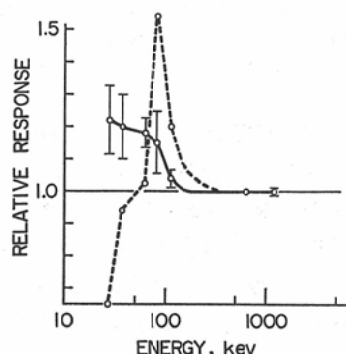


Fig. 5. Energy dependence of the cleaved LiF in the holder described in Fig. 1, irradiated vertically to 21×21 mm plane. The qualities of x-rays are described in Table 1. The results for CaSO_4 TLD capsuled in glass and shielded with lead and tin filter is shown as a dotted line for comparison. 3), 4),

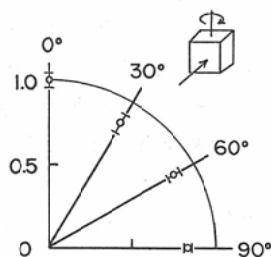


Fig. 6. The directional dependence of the sensitivity of the cleaved LiF in the holder described in Fig. 1.

ここでは実効エネルギー29 keV の X 線を用いて、やはり Fig. 1 のホルダーに入れた状態の方向依存性を求めた。結果は Fig. 6 の通りである。

IV 検討および結論

本素子の個人被曝線量計としての特性試験研究

を一通り行ってみて得られた結論、改良しなければならぬと思われる問題点等を以下にまとめた。

本素子は大変かけやすかつた。単結晶なるが故、へき開面に沿つて端から少しずつかけていく。これはくり返し使用が期待される線量計としては致命的な欠点である。測定のために減つた分を考慮しなければならないのでは実用にほど遠いので本実験では無視した。検出限界が30mRでは感度が不十分である。ここでは本素子程度のエネルギー依存性をもつた高感度TLDの開発を期待したい。本素子の良好なエネルギー依存性と測定可能範囲を考えると、高線量レベル、低エネルギーX線の測定には有利であり、個人被曝線量計としてより一部の診断で問題となるような高レベルの被曝線量測定に適していると言えよう。素子個々の感度差は校正によつて補正できるので問題なかつたが、これは素子が比較的大きく番号を刻み込めたため容易にできたことである。しかし、本素子の大きさと熱容量は2000 A, B測定器で測定できるぎりぎりの大きさである。fadingについては他の線量計と比べても大きい方でなく問題にならない。繰り返し再現性については、得られた結果のうちで測定値として十分信頼できる1 R照射の場合について結論づければ、10回程度は十分に再現性が保障されていると言える。線量依存

性も1 Rから100 Rまでは問題ないことが判明した。

本素子に限らず、TLDが個人被曝線量計として使われるか否かは、今後の性能向上、コストダウンまたは繰り返し使用可能による実質的なコストダウン、測定技術の一般化によろう。TLDは1度測定すると素子に貯えられた被曝の情報源が消失してしまうという欠点があり、測定上の失敗が許されないが、1年程度の長期間の被曝測定用としてフィルムあるいはガラス線量計を、短期間用として高感度TLDを同じホルダーに入れ使うのも一方法でなかろうか。

(本研究は昭和45年度科学技術庁委託研究費によつた、またその要旨は第42回日本医学放射線学会北日本地方会で発表した。本研究に関し御世話になった科学技術庁安全課と原子力安全研究協会の方々に深謝する)

文 献

- 1) Attix, F.H.: Health Physics, 22 (1972), 287—291.
- 2) 高久祐治: 日医放誌, 第30巻 (1970), 291—295.
- 3) 高久祐治: TLDによる低線量の測定, 第21回医学放射線学会物理部会 (1970年10月, 草津).
- 4) 中島 他: 日本原子力学会誌, 14 (1972), 214—221.
- 5) Yamashita, T. et al.: Health Physics, 21 (1971), 295—300.