

Title	弗化リチウム熱蛍光線量計の諸特性
Author(s)	白貝, 明宏; 吉田, 吉一
Citation	日本医学放射線学会雑誌. 1969, 29(1), p. 1-6
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/14949">https://hdl.handle.net/11094/14949</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

## 特別掲載

## 弗化リチウム熱蛍光線量計の諸特性

放射線医学総合研究所 物理研究部

白貝 彰宏 吉田 吉一

(昭和44年3月11日受付)

Characteristics of LiF Thermoluminescent Dosimeter

By

Akihiro Shiragai and Yoshikazu Yoshida

Division of Physics, National Institute of Radiological Sciences, Chiba-Shi

Dose-response characteristics of LiF-TLD have been investigated using X-,  $\gamma$ -rays and high energy electrons. The results indicated the followings; (1) dependence of the response on dose and radiation quality, (2) linearity in response to dose for small dose, while supralinearity for large dose, (3) increase in response with decrease in energy in the linear region, (4) decrease in supralinearity with decrease in energy, and (5) saturation and successive decrease in response for higher dose.

A physical model was presented in order to interpret more generally the response of TLD and applied to LiF-TLD as a special case. The model assumed the fading during irradiation, the formation of thermoluminescent trap and the liberation of filled trap by irradiation, and the saturation of trap number.

The theoretical interpretation was qualitatively in good agreement with the experimental results.

## I 緒 言

近年、熱蛍光線量計 (TLD) に関する研究は著しく進み、個人被曝線量計<sup>1)2)</sup>としてだけでなく、生体内線量分布の測定<sup>3)4)</sup>や線量測定相互比較<sup>5)6)</sup>など、TLDはいろいろな目的に使用されるようになってきた。TLD用蛍光体としてこれまでに開発されてきた主なものはCaSO<sub>4</sub>, CaF<sub>2</sub>, LiF, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, BeOである。それらの中でも実効原子番号が軟組織にきわめて近いLiF, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, BeOが特に注目を集めているが、得やすいこと、感度の大きいことなどの点からLiFが最もよく利用されている。

LiF-TLDの特性は多くの研究者によつて調べられてき、エネルギー依存性が小さいために線量計としてきわめて実用性の高いことが強調されてきた<sup>7)</sup>。しかしながら、最近、その応答が線量の増加と共に著しく大きくなり(超直線性)、しかも

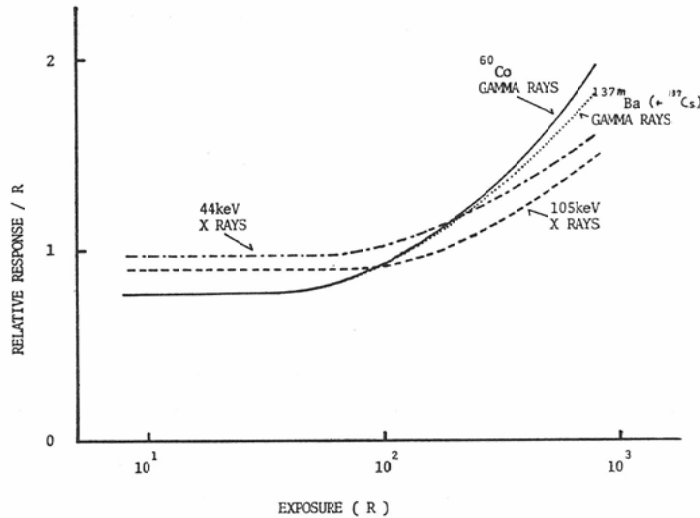
その超直線度は線質によつて異なることがわかってきた<sup>8)~10)</sup>。

そこでわれわれは、LiF-TLDの線量-応答特性をくわしく調べ、さらに、簡単なモデルを与えることによつてそれらの諸特性を理論的に説明することを試みた。照射にはX線、 $\gamma$ 線、高エネルギー電子線を使用した。TLDの特性を理論的に説明することを試みた先の報告<sup>11)</sup>では照射中のfadingと照射によるtrapの形成とを仮定したが、ここではさらにtrap数の飽和および照射による満たされたtrapの解放をも考慮に入れて、前の理論をより一層発展させることを試みた。

## II 実験と結果

LiF熱蛍光体としては、応用光研(東京)から購入したLiF単結晶を約100~150mesh(Tyler)の大きさに粉碎し、400°Cで2時間熱処理後急

Fig. 1 Relative response per R of LiF-TLD versus exposure for various radiations.



冷、さらに80°Cで30時間熱処理し徐冷したものを使用した。

#### 1. X線, $\gamma$ 線に対する応答

X,  $\gamma$ 線に対する応答特性を得るために用いた線源は次のものである。230kV X線：フィルター1.5mmCu+0.5mmAl, 半価層1.95mmCu, 実効エネルギー 105keV, exposure rate 55.9R/min. 93kV X線：フィルター5mmAl, 半価層6.28mmAl, 実効エネルギー44keV, exposure rate 66.0R/min.  $^{137m}\text{Ba}$  ( $\leftarrow^{137}\text{Cs}$ )  $\gamma$ 線：exposure rate 54.7R/min.  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ 線：exposure rate 50.4R/min. exposureはNPLで校正された Farmer Substandard Dosimeter で測定した。

結果を第1図に示す。横軸にR, 縦軸にR当りの相対的な応答をとつた。明らかに応答の様相が2つの領域にわかれることがわかる。すなわち, R当りの応答は, 小 exposure では一定であるが, exposure が大きくなると共に増加する。また小 exposure ではエネルギーの低い方が同一 exposure に対する応答は大きく, 中 exposure ではエネルギーの低い方が相対的に小さくなる。

#### 2. 蛍光体中での吸収線量に対する応答

第2図に20MeV電子線,  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ 線, 230kV X線について LiF 中での吸収線量に対する単位吸収線量当りの応答を示す。線量率はそれぞれ35.9

rad/min, 40.5rad/min, 44.2rad/min であつた。

吸収線量は次のようにして評価した。 $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ 線, 230kV X線については, Farmer Substandard Dosimeter で測定したR値にfファクター<sup>12)</sup> 0.965および0.948をかけて水中での吸収線量を求め, これに水とLiFの質量吸収係数比 ( $\mu_{\text{en}}/\rho$ )<sub>LiF</sub>/ $(\mu_{\text{en}}/\rho)$ <sub>H<sub>2</sub>O</sub> 0.833をかけてLiF中での吸収線量とした。水とLiFの質量吸収係数比0.833はCompton相互作用のみが寄与するものとしてg当りの電子数の比から求めた。20MeV電子線については, Farmer Substandard Dosimeterで水中2cmの位置の $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ 線の exposure に等価なr値を測定し, r-rad 変換係数0.860<sup>13)</sup>をかけて水中での吸収線量を求め, これに水とLiFの質量阻止能比 ( $mS$ )<sub>LiF</sub>/ $(mS)$ <sub>H<sub>2</sub>O</sub> 0.808<sup>9)</sup>をかけてLiF中での吸収線量とした。

応答は, 小線量では直線的で $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ 線に対して電子線ではわずかに小さく, X線では約20%大きい, 線量が大きくなると超直線的となりしかも電子線,  $\gamma$ 線, X線という順序に大きさが逆転する。10MeVと30MeVの電子線に対しても同様の測定を行なつた。小線量では20MeV電子線とほとんど同じ応答を示すが, 線量が大きくなるとエネルギーの大きい電子線に対して大きな応答を示す。

Fig. 2 Relative response per rad of LiF-TLD versus absorbed dose in LiF for various radiations.

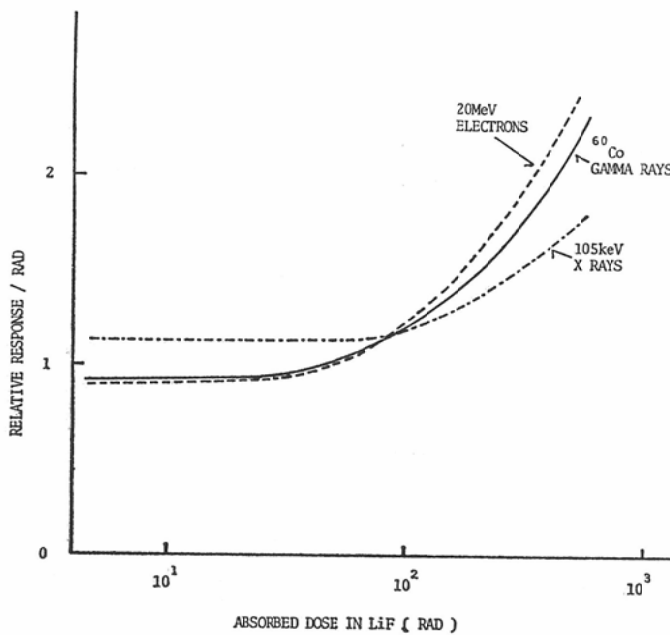
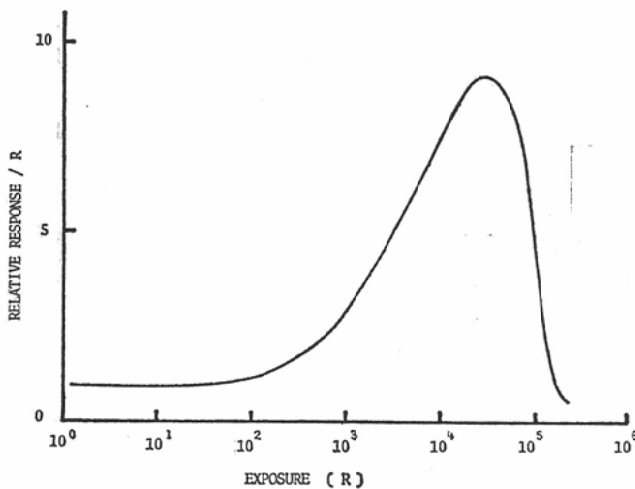


Fig. 3 Relative response per R of LiF-TLD versus exposure for  $^{60}\text{Co}$  gamma rays.



3. 大 exposure での応答

$^{60}\text{Co}$   $\gamma$ 線に対する応答を 1 R から  $10^5$  R の間で調べた。その結果を第 3 図に示す。横軸に exposure, 縦軸に R 当りの応答をとった。R 当りの応答は、小 exposure では一定であるが、exposure

が大きくなるにつれて増加し、 $3 \times 10^4$  R 位でその 9 倍にもなった。さらに exposure が大きくなると応答の飽和、つづいて著しい低下が起つた。exposure rate は  $50.4 \text{ R/min}$  である。LiF 中での吸収線量に対しても同様の応答を示した。

### III TLD の一般理論

放射線熱蛍光現象についての基礎的考察から、(1) 照射中の fading, (2) 照射による熱蛍光 trap の形成, (3) 照射による満たされた trap の解放, (4) trap 数の飽和を考慮することによって種々の TLD の諸特性を一般的に説明できるであろうことが期待される。我々は先に (1) および (2) を考慮して理論を展開した<sup>11)</sup>が、ここではさらに (3), (4) をも考慮してその理論を進展させることを試みる。先の理論では電子 trap を仮定したが、実際には空孔 trap も存在するはずで、より一般的には熱蛍光 trap と言いかえるべきであろう。

単色エネルギーの熱蛍光 trap をもつ蛍光体を考える。理論の展開に当つては次の記号を使用する。

- $N_0$ : 初期 trap の濃度
- $n$ : 占められた trap の濃度
- $N$ : 空位 trap の濃度
- $N_s$ : trap の飽和濃度
- $p$ : 単位時間当り空位にされる確率
- $k$ : 単位線量当り占められる trap の割合
- $f$ : 単位時間当り作られる trap の割合
- $m$ : 単位時間当り照射により解放される trap の割合
- $R$ : 線量率
- $t$ : 照射時間
- $D$ : 線量

先に展開した理論との違いは、 $N_s$  と  $m$  を新しく導入したこと、 $f$  を単位時間当り作られる trap の濃度として現わしていたがここでは単位時間当り作られる trap の割合というふう言いかえたことの2点にある。

$n$  に対する次の2つの微分方程式をうる。

$$\frac{dn}{dt} = -pn + kRN - mn$$

$$\frac{d(n+N)}{dt} = f\{N_s - (n+N)\}$$

ここで  $p = a \exp(-E/bT)$ ,  $f = F(R)$  であるが、 $p, f$  を一定に保つために照射中は温度、線量率は一定であるとする。 $a$  は振動数係数、 $E$  は trap の深さのエネルギー、 $b$  はボルツマン定数、

$T$  は絶対温度、 $F$  は函数を表わす。

$t = 0$  で  $n = 0$  とすると

$$n = \frac{kRN_0}{f - (p+m+kR)} \{e^{-(p+m+kR)t} - e^{-ft}\} + \frac{kRN_s}{\{f - (p+m+kR)\}(p+m+kR)} [f\{1 - e^{-(p+m+kR)t}\} - (p+m+kR)(1 - e^{-ft})]$$

を得る。

TLD の応答は  $n$  に比例するであろうから、この  $n$  の性質を知ることによって TLD の諸特性を知ることができる。

ここで  $d^2n/dD^2$  あるいは  $d^2n/dt^2$  (照射中は  $R$  は一定であるからこの両者は等価である。) が、正なら応答は全線量領域にわたつて超直線性を示し、0 ならある線量まで超直線性を示すがそれより大きい線量になると超直線性を示さなくなり、負ならば全線量領域にわたつて超直線性は示さない。簡単な計算によつて第1の case は  $N_s$  が有限なら存在しえないこと、第2の case は  $f(N_s - N_0) \geq (p+m+kR)N_0$  に対して得られ、第3の case は  $0 \leq f(N_s - N_0) < (p+m+kR)N_0$  に対して得られることがわかる。 $f=0$  ということは  $N_s = N_0$  ということを意味する。

これを図示すると第4, 5図の実線のようになる。共に linear scale で、第4図は線量—応答曲線、第5図は線量に対する単位線量当りの応答を

Fig. 4 Response of TLD versus absorbed dose for various cases. The dashed lines are asymptotes. (linear scale).

- (a)  $f(N_s - N_0) \geq (p+m+kR)N_0$
- (b)  $0 \leq f(N_s - N_0) < (p+m+kR)N_0$

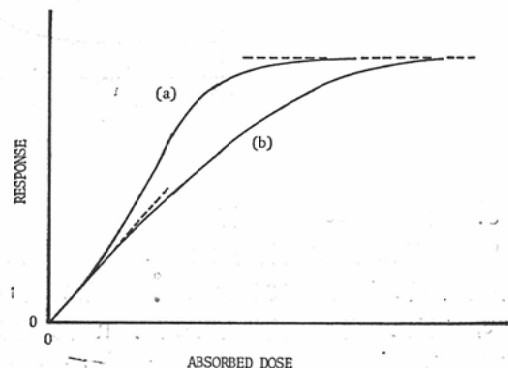
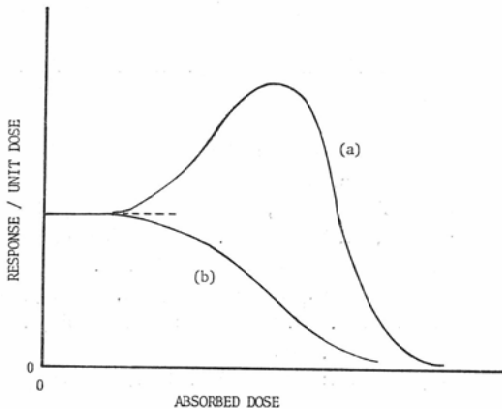


Fig. 5 Response per unit dose of TLD versus absorbed dose for various cases. The dashed line is asymptote. (linear scale).  
 (a)  $f(N_s - N_0) \geq (p+m+kR)N_0$   
 (b)  $0 \leq f(N_s - N_0) < (p+m+kR)N_0$



示す。曲線 (a) は  $f(N_s - N_0) \geq (p+m+kR)N_0$  の場合、(b) は  $0 \leq f(N_s - N_0) < (p+m+kR)N_0$  の場合である。点線は漸近線である。

IV LiF-TLD への理論の適用

実験に使用した LiF 熱蛍光体は熱処理によって深い trap しか含まない<sup>14)</sup> ために  $p=0$  とおける。また簡単にするために  $m=0$  とすると

$$n = \frac{kRN_0}{f-kR} (e^{-kRt} - e^{-ft}) + \frac{N_s}{f-kR} \times \{f(1 - e^{-kRt}) - kR(1 - e^{-ft})\}$$

となる。

小線量, 短時間照射では

$$\exp(-kRt) \approx 1 - kRt, \exp(-ft) \approx 1 - ft$$

とおけるから

$$n = kN_0D \quad n/D = kN_0$$

となる。線量に対する応答は直線的である。

大線量, 長時間照射では

$$\exp(-kRt) \approx 0, \exp(-ft) \approx 0$$

とおけるから

$$n = N_s \quad \lim_{D \rightarrow \infty} (n/D) = 0$$

となる。応答の飽和が起る。

また  $f(N_s - N_0) \geq kRN_0$  なら超直線性を示し,  $0 \leq f(N_s - N_0) < kRN_0$  なら超直線性を示さない。

これは実験結果と定性的によく一致し, また実験結果は  $f(N_s - N_0) \geq kRN_0$  であつたことを示

している。

V 議 論

1. LiF-TLD の応答は小線量では直線的であるが線量が大きくなると超直線的となる。

2. 線量によつて LiF-TLD のエネルギー依存性は異なる。従つてそのエネルギー依存性に関する報告では照射された線量が示されるべきである。

3. X線, γ線に対しては, 小線量では光电吸収断面積の増加のために, エネルギーの低い方が同一線量に対する応答は大きい, 中線量ではまた別の機構が重要となつてきてエネルギーの低い方が同一線量に対する応答は相対的に小さくなる。このあとの点についてはのちに論議する。

4. 大線量になると killer 効果による trap 数の飽和や照射損傷により応答の飽和につづいて低下が起る。

5. LiF 中での吸収線量に対する応答には小線量領域ではエネルギー依存性がないものと予測したが, 実際にはエネルギー依存性を観測した。このことは, 1つには照射放射線が単色エネルギーでないために R-rad 変換係数に正確さが欠けていること, 今1つには現在の照射条件が空洞原理を完全には満たしていないことに起因すると考えられる。しかしながら, 一方では, LET 依存性があることを示しているのかもしれないとも考えられる。この点についてはさらに厳密な検討を必要とする。

6. LiF の粒度を変えて別に熱処理を行なつたものについて同様の測定を行なつた。その結果, 同じ傾向の応答を示したが超直線度がかかなり違つていた。このことは同じ蛍光体であつてもその準備の仕方によつて応答が異なることを示している。従つて Almond<sup>15)</sup> とわれわれの別の報告<sup>16)</sup> や現在の結果との超直線度の違いは当然のことである。

7. 照射中の fading, 照射による熱蛍光 trap の形成, 照射による満たされた trap の解放, trap の飽和を仮定して TLD の応答特性に対する一般的理論を展開したが, 2番目の仮定を考慮に入れることによつて実験結果にみられる応答の超

直線性を説明しうることがわかつた。

8. 理論の展開において導入したパラメーター  $k, f, p, m, N_0, N_s$  は蛍光体によつて異なるから、各々の事例について実験的に決められなければならない。

9.  $f$  はまた放射線の種類、エネルギー、線量率によつても当然異なる。従つて、このことが実験結果にみられる応答の超直線領域での線質依存性を説明する。

10. ここで与えた理論は LiF-TLD について実験結果と定性的によく一致した。

11. Bjärngard<sup>17)</sup>, Facey<sup>18)</sup> は照射中の fading のみを考慮に入れて  $\text{CaSO}_4$ -TLD に対する理論を与えたが、これはわれわれの理論において  $f=0$  とした場合に相当する。Cameron ら<sup>19)</sup> は LiF-TLD に対して照射による trap の形成を考慮に入れて理論を与えたが、これはわれわれの理論において  $p=0, f=cR$  ( $c$  は定数) とした場合に相当する。

12. LiF-TLD に対して実験と定性的によく一致したこと、Bjärngard, Facey や Cameron らの理論をその特例として含んでいることは、われわれの与えた物理的モデルが種々の TLD の諸特性をより一般的に説明するものであることを示しているのかもしれない。しかしながら TLD として使用される蛍光体の大部分はいくつかの trap 準位を含んでおり、また 1 次の kinetics だけとはかぎらないので、ここに展開した理論を実用されている TLD に直接あてはめることは出来ず、その場合は、取扱いをもつと複雑になる。

本研究を遂行するに当つて有益な議論をして下さつ

た放医研物理研究部の諸兄氏に深く感謝いたします。

#### 文 献

- 1) Becker, K.: Health Phys. 12 (1966), 955.
- 2) Suntharalingam, N. and Cameron, J.R.: Health Phys. 12 (1966), 1595.
- 3) Rösler, B. Nicht, M. und Reichel, G.: Strahlentherapie, 134 (1967), 545.
- 4) Boone, M.L.M., Jardine, J.H., Wright, A.E. and Tapley, N.D.: Radiology, 88 (1967), 1136.
- 5) Pfalzner, P.M. and Alvarez, S.M.: Acta Radiologica, 7 (1968), 379.
- 6) Kato, Y., Shiragai, A., Kumamoto, Y., Maruyama, T., Yoshida, Y. and Hashizume, T.: Nippon Acta Radiol., 29 (1969), 80.
- 7) Cameron, J.R., Zimmerman, D., Kenney, G., Buch, R. and Grant, R.: Health Phys. 10 (1964), 25. etc.
- 8) Naylor, G.P.: Phys. Med. Biol., 10 (1965), 564.
- 9) Worton, R.G. and Holloway, A.F.: Radiology, 87 (1966), 938.
- 10) Hendee, W.R., Ibbott, G.S. and Gilbert, D.B.: Int. J. appl. Radiat. Isotopes, 19 (1968), 431.
- 11) Shiragai, A.: Japan. J. appl. Phys., 7 (1968), 1101.
- 12) NBS Handbook 85, ICRU Report 10b, 1962.
- 13) Matsuzawa, H.: Private Communication.
- 14) Zimmerman, D.W., Rhyner, C.R. and Cameron, J.R.: Health Phys. 12 (1966), 525.
- 15) Almond, P.R., Wright, A. and Lontz, II, J.F.: Phys. Med. Biol. 12 (1967), 389.
- 16) Shiragai, A., Noda, H. and Kato, Y.: Nippon Acta Radiol. 28 (1968).
- 17) Bjärngard, B.: Report Actibolaget Atomeenergi, Stockholm, Rpt. AE 109 (1963).
- 18) Facey, R.A.: Health Phys 12 (1966), 715.
- 19) Cameron, J.R., Zimmerman, D.W. and Bland, R.W.: USAEC CONF-65037 (1965) 47