



Title	熱ルミネッセンス線量測定について 第1報 基礎的研究
Author(s)	田中, 敬正; 黒田, 康正; 高橋, 正治
Citation	日本医学放射線学会雑誌. 1968, 28(5), p. 536-545
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/15228">https://hdl.handle.net/11094/15228</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

特別掲載

## 熱ルミネッセンス線量測定について

## 第1報 基礎的研究

天理病院放射線科

田中 敬正 黒田 康正 高橋 正治

(昭和43年6月22日受付)

Thermoluminescence Dosimetry 1st Report: Fundamental Research

By

Yoshimasa Tanaka, Yasumasa Kuroda and Masaji Takahashi

Department of Radiology, Tenri Hospital, Tenri.

Radiation dosimeters utilizing the thermoluminescent properties of lithium fluoride phosphor (LiF phosphor), calcium fluoride ( $\text{CaF}_2$ : Mn) and lithium borate ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ : Mn) have been developed. Dose response curve, the response to radiation of different energies, fading of response and directional dependence were examined and compared each three dosimeters. Experimental results were as follows:

- 1) In routine use we have been able to reach accuracies of 3% standard deviation in LiF micro-rod, 2% in LiF teflon disc, 3% in  $\text{CaF}_2$ : Mn and 4%  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ : Mn.
- 2) Three dosimeters can be reused many times following simple reprocessing procedures.
- 3) The linearity of the response curve varies with dosimeters, method of reprocessing and radiation quality. Calcium fluoride showed best linearity in the range of 50 to 1,000 R. A slight increase of response per Rad for doses above 50 Rads were found in lithium fluoride and lithium borate.
- 4) Three dosimeters showed energy independence and constancy above 0.2 Mev energy. In low energy range, lithium borate is less energy dependent than lithium fluoride and calcium fluoride and the highest response was found in calcium fluoride.
- 5) Lithium fluoride showed directional independence in a range of  $\pm 5\%$ .
- 6) Fading of response was 7% in lithium fluoride, 1—2% in lithium borate and 10% in calcium fluoride 7 days after irradiation when the response of 2 days after irradiation was regarded as 1.
- 7) Glow curves of 3 dosimeters under several conditions were examined. Pre-irradiation annealing was found to have a definite effect upon the thermoluminescent glow curve of LiF.

## 1. 緒 言

LiF(Lithium Fluoride Phosphor)の如き Thermoluminescent Material は放射線で照射されるとエネルギーが貯えられ之を熱すると光子を発生してもとに戻る。この光の量を測定してもとの線量を知ることが出来るわけであるが、LiF は最も広く使用されており小さな結晶性を有する粉末状として又特殊の物質と混合して色々の形状に加工

したり極めて小さくすることも可能である。その上 LiF は不溶性で毒性がなく機械的にも発光を起すことがなくて数 mR～数 KR迄の線量に対して殆んど直線的に反応を起し、エネルギー依存性が他の線量計に比べて少いことが Cameron<sup>3,4,5)</sup>, Daniels<sup>7,8)</sup> や Kenney<sup>6,11)</sup> 等により報告された。熱ルミネッセンス線量計の物質としては LiF の他に  $\text{CaF}_2$ : Mn (Manganese activated Calcium

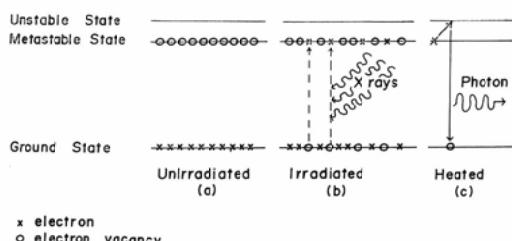
Fluoride),  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$  (Manganese activated Lithium Borate)  $\text{CaCO}_3$  (Calcite),  $\text{CaSO}_4$  等が最近来夫々に特長をもつたものとして注目されている。放射線治療の際の生体内線量測定に、又は放射線生物学にかかる solid state の線量計が必要で特に低エネルギー域での、線質依存性の少いものが望まれていた<sup>19)</sup>。

今回我々は Con Rad 型熱ルミネッセンス線量計を入手したもので  $\text{LiF}$  Phosphor,  $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ ,  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$  の線量計を用いて線量特性、線質依存性、減衰特性及び方向依存性等の基礎的研究を行つた。照射された線量計を熱する時に生ずる光の強さと温度との関係を示す曲線を Glow Curve というが、之は線量計や線量測定器の特性を知る上に極めて大切である。我々は夫々の線量計について之を描き、Annealing にあたつて生ずる Glow Curve の変化を調べ、再使用にあたつての照射前の Annealing についても検討を加えた。

## 2. メカニズムに就て

メカニズムに関してはまだ完全にわかつていないうが一応次の如く考えられている<sup>20)</sup>。模式的に示すと Fig. 1 の如く線量計の結晶に 3 つのエネルギー準位を考える。Fig. 1 (a) は照射前の状態であつて、すべての電子は、もつとも低い電位 (Ground State) にある。之を照射すると、Fig.

Fig. 1 Schematic diagram of mechanisms involved in thermoluminescent dosimeter.



1 (b) の如く電子は、Metastable State に於て hole に trap される。之は Ground State よりも数電子ボルト上と考えられる。之等の trap は一定数があつて照射線量が一定以上になると飽和することがわかる。この Metastable State に trap された電子は直接には Ground State にはもどらないが熱を加えると Unstable State になつて

Ground State にもどる。

この時 Fig. 1 (c) に示す如くこのエネルギーの差だけの光子を放出する。充分高い温度に熱するとすべての電子は Fig. 1 (a) に示す様にもとの状態にもどるために線量計として何回も使用可能である。放出する光子の量は、Metastable State に trap された電子の量即ち線量に比例する。

Metastable State と Unstable State との間のエネルギー準位が非常に小さいと室温で測定する迄に既に電子は Ground State にもどつてしまうわけである。又逆にあまり大きすぎても結晶を白熱化する位に高温にせねばならないし測定不能である。 $\text{LiF}$  等実用化されているものはすべて 200°C ~ 300°C で光子を発生するものであつて丁度都合がよいわけである。

温度と光子の量との関係を示したのが Glow Curve であるが、之を見ると 1 コ或いは数コの Glow Peak を有しており高い温度で発生する Peak は電子の trap に結びつくエネルギーが大きいわけで Schulman<sup>20)</sup> によると “trap depth” が大であるということが出来る。

## 3. 線量計及びその測定器

### (1) 線量計の種類 (Table 1, Fig. 2)

使用した線量計としては  $\text{LiF}$ ,  $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ , 及び  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$  であり、夫々の形状及び大きさを Table 1, Fig. 2 に示した。Table 1 のものはすべて Teflon Dosimeter であつて例えば  $\text{LiF}$  では 0.07mm よりも小さい  $\text{LiF}$  の粉末状のものを Polytetrafluoroethylene と混じ圧迫加工したものである。この  $\text{LiF}$  Disc の中の  $\text{LiF}$  の量は約 25%, Micro Rod では約 8% である。その他  $\text{LiF}$  の粉末も使用し得るが (Fig. 2) この際照射の時に

Table. 1. Thermoluminescent Dosimeters

Types of Dosimeters	Shape	Size
Lithium Fluoride ( $\text{LiF}$ )	Teflon	1mm Diameter X
	Micro-Rods	6mm Long
Calcium Fluoride ( $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ )	Teflon Discs	13mm Diameter X 0.4mm Thick
Lithium Borate ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$ )	Teflon Discs	6mm Diameter X 0.4mm thick
	Teflon	1mm Diameter X
	Micro-Rods	6mm Long

Fig. 2 Thermoluminescent Dosimeters

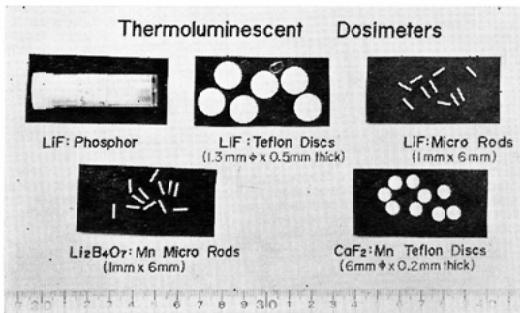


Fig. 3 Model 5100A Readout Instrument of Con-Rad Thermoluminescence Dosimetry (exterior view)

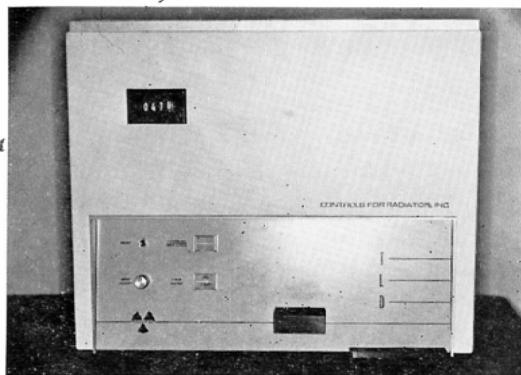
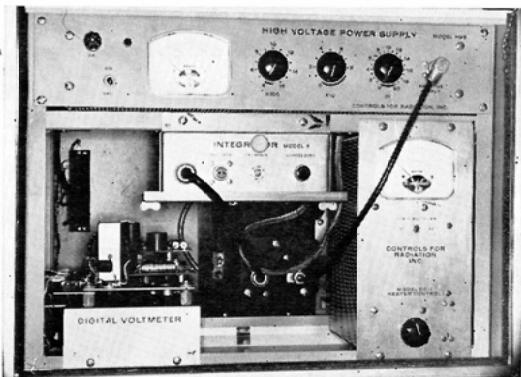


Fig. 4 Model 5100A Readout Instrument of Con-Rad Thermoluminescence Dosimetry (Top view)



入れる Capsules を Fig. 6 に示してある。

## (2) 線量測定器 (Readout Instrument)

之は照射された線量計を熱して発生する光を測定し線量としてよみとる器械であつて Fig. 3, Fig. 4 に Con Rad 型の測定器を示す。之は大別

Fig. 5 Block diagram of thermoluminescent dosimeter reader

## BLOCK DIAGRAM

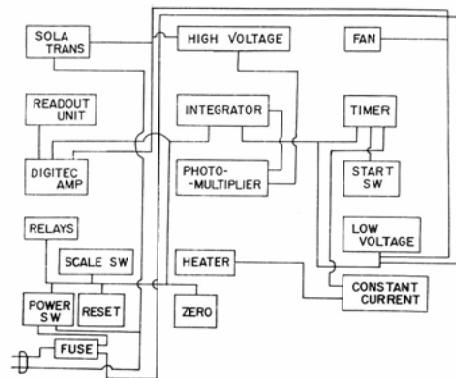


Fig. 6 Instrument accessories

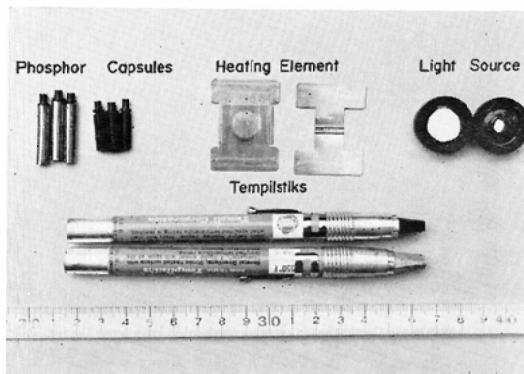
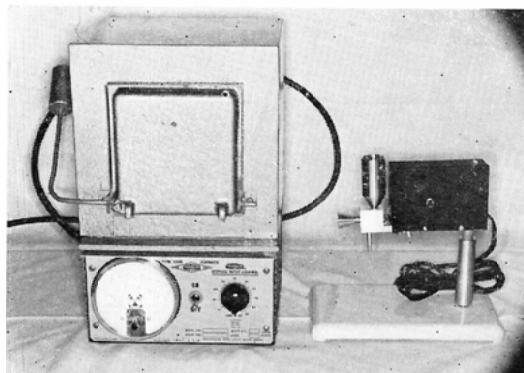


Fig. 7 Phosphor annealing oven and phosphor dispenser with automatic vibrator



して線量計を熱する部分と(Heater Current)之により生じた光を感度の高い光電子増倍管を用いて測定する部分 (Light Sensitivity) の2つよりな

る。之の Block Diagramm を Fig. 5 に示す。線量計は型に応じて特別に作られた受け皿(Heating Element) (Fig. 6) に置いて測定器内に挿入する。測定の際熱せられる時間はこの器械の場合11秒間である。この際熱せられる温度が適當か否かは Fig. 6 の如き Tempilstik を Heating Element に塗つて之のとける温度で推定しうる。

LiF の粉末を使用する時には粉末分配器 (Phosphor Dispenser Vibrator) を用いれば便利で±10%以内の誤差で再現性がある。(Fig. 7)。

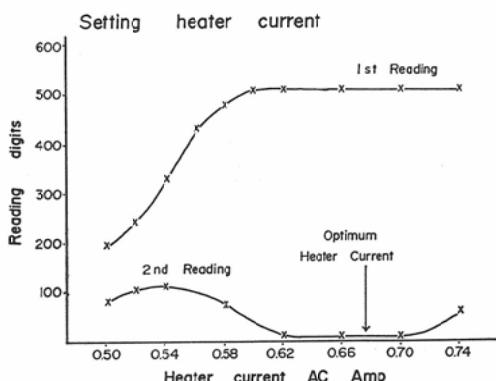
#### 4. 実験方法

(1) 線量測定に先立つて装置の a) heater current b) light sensitivity の2つの因子を調整することが大切である。

##### a) heater current の調整

之は測定時の線量計が熱せられる温度に関係するわけであるが測定には最高の精度が得られる様に設定しなければならない。之には約10本の同じ線量計に(この場合 LiF Teflon Micro-Rods を使用し50R照射す) 同線量を照射して種々の heater current のもとでのよみを調べると Fig. 8 の

Fig. 8 1st Reading and 2nd Reading versus Heater Current for LiF exposed 50R. Co-60.



1st Reading の如くなる。heater current の低い間は線量計に光が残るために之がますにつれてよみがますが、更にますと、よみは一定になり Plateau に達する。之以上に heater current をますと線量計より白熱光を発生してよみは又増していく。

次に同じ線量計で2回目のよみを夫々の heater

currentのもとで行うと下のカーブ(2nd Reading)の如くなる。以上より最も適した heater current は 1st Reading で Plateau をなした部分でしかも 2nd Reading で最低のよみを示す部分といえる。

##### b) light sensitivity の調整

之は光電増倍管に加えられた電圧により決定されるが Light Source A,B(Fig. 6) を用いる。即ち既知の線量で照射された線量計のよみを之で正しくセットすることが出来る。

この Light Source A,B は ±2%以内の誤差でいつも同じ光量を発生する様に作られており 1 目盛あたり 0.01, 0.1, 10R の感度になる様に装置の高圧をセットすることが可能である。多くの資料を一度に測定する時には時々 Light Source で装置の感度を調節する様にすればよい。Fig. 4 に測定器の上面を示すが、高電圧の調整は図の上部で、heater current の調整は図の右側で行う。

##### 2) Annealing について

之等の線量計は再使用しうるがその際には使用前に Annealing しなければならない。正しい Annealing の操作によつてもとの background と感度にもどり再使用しうる。

Annealing には Fig. 7 に示す様な Oven を使用すると便利である。LiF の Annealing には次の如く行う。まず汚れた線量計はアセトン、アルコールで清潔にし、のち水でゆすいでよく乾燥や之をガラス器又はアルミニウム、フォイルの上に置き 300°C にした Oven に 15 分間入れる。次に 80°C 2 時間置く。

以上の操作をいつも同様に行なうことが大切で Annealing の時間、温度の違いで Glow Curve や感度の相違を来すことが報告されている<sup>23)</sup>。

Marrone, Attix<sup>14)</sup> よると高線量照射 ( $10^4$ R 以上) した場合、Annealing をしても永久に感度の変化を来すことを示している。之等のものは感度を再び測定すれば再使用し得るが、新しいものと混合しない様に注意すべきである。

$\text{CaF}_2 : \text{Mn}$  の Annealing は 300°C 2 時間 (80°C は不要) がよいといわれている。

##### (3) Glow Curve の作製: Con Rad 測定器

の中程にある (Fig. 4) Test Jack の部分に X,Y Recorder を接続して, Recorder の速度を適当にして描かせればよい。

(4) 照射には  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線を主として用い, 測定する標準線量計としては Siemens Universal Dosimeter を用いた。

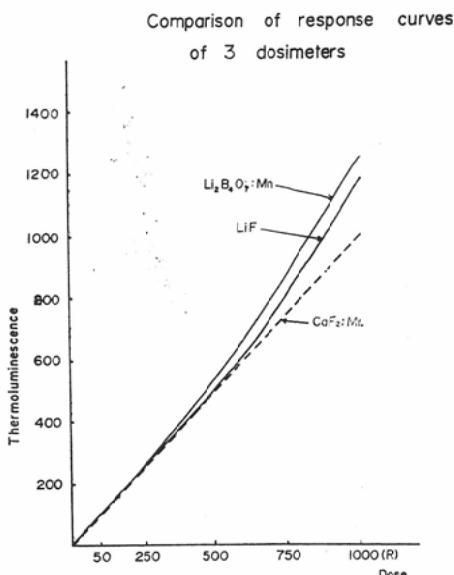
### 5. 実験結果

3つの違った材質の線量計を用いて線量特性, 線質特性, 方向依存性, 減弱特性を調べ比較検討した。各々の線量計間の測定誤差は 10~1,000 R の間に於て  $\pm 5\%$  以下であつた。

#### (1) 線量特性

之には普通一般に臨床的に用いられる線量域として 10~1,000 R の範囲を選び 3つの線量計間の直線性を調べた。Fig.9 に見る如く  $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$  が

Fig. 9 Comparison of response curves of three dosimeters



最も直線性を示すが  $\text{LiF}$ ,  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$  は 400 R 位よりカーブが上方に傾き, 1 Rあたりの Response が大となる。

次に  $\text{LiF}$  を用いてこの線量域で  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線, 6.0 MeV X線 (Linac) 及び 250kVp X線 (H.V.L. 2.2mmCu) での夫々の直線性を調べ Fig.10 の如き結果を得た。250kVp X線が最も直線性を示しエネルギーが高まるにつれて 1 Rあたりの

Fig. 10 Comparison of response curves of  $\text{LiF}$  teflon dosimeters at three radiation energies.

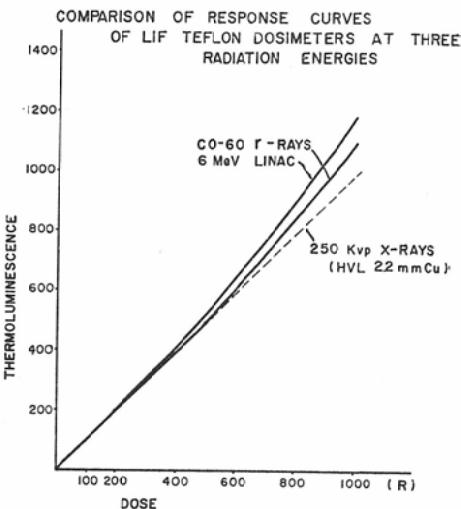
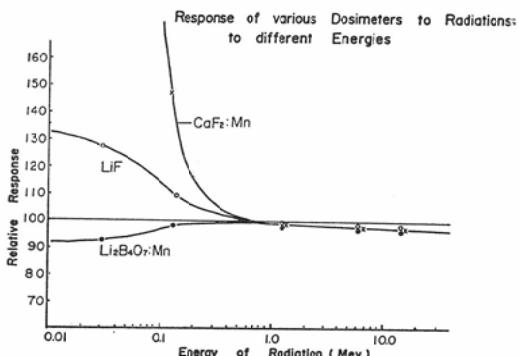


Fig. 11 Comparison of response curves of various dosimeters to radiations to different energies.



Response が大となる。

#### (2) 線質特性

夫々の線量計について 30KeV ~ 18MeV 迄の色々のエネルギー範囲に於ける relative Response を求めた。エネルギーはすべて effective energy として半価層より換算した。Fig.11 に 3つの線量計について各エネルギーに対する 1 Rあたりの Response を  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線を 1 としてあらわしている。Fig.11 に見る如く 0.2MeV 以上では 3つの線量計共殆んどエネルギー依存性がないが<sup>15)</sup> 低エネルギーでは  $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$  が最もエネルギー依存性が大で低エネルギーになる程 1 Rあたりの

Responseが大となる。LiFは低エネルギー域に於てやや大きなResponseを示すが(30KVで+30%) Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Mnが最もエネルギー依存性が少く(30KVで-10%)この場合は標準値よりも少くなる。之はSchulman<sup>20)</sup>の値とよく一致している。

### (3) 方向依存性

LiF(Teflon Disc)を用い、0.5cmのアクリライト板にはさみ<sup>60</sup>Co γ線で0°, 10°, 30°, 90°の各方向より照射して方向依存性を調べた。

Fig.12に示す如くなりその差は±5%以内であり真上より照射した時に最も大きな値を得た。

### (4) 減弱特性

照射2日後のResponseを1として3つの線量計間で照射後のよみの減弱曲線を調べ比較した。

(Fig.13) 図に見る如くLiFは照射直後は1.22

Fig. 12 Directional dependence of thermoluminescent dosimeters

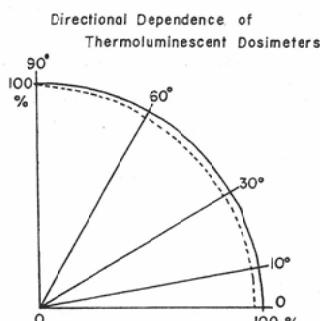
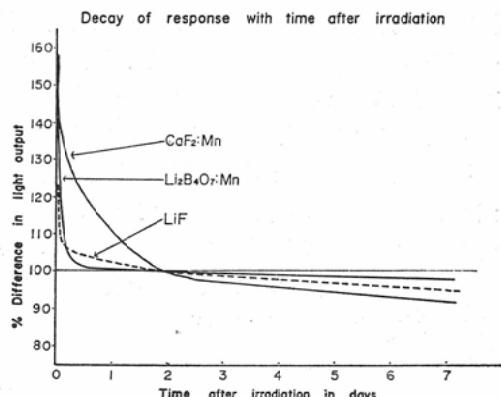


Fig. 13 Decay of response with time after irradiation. Readings are plotted as percentage of the 2 day read-out figure.



であり、7日後で5%減弱を示した。

Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Mnは照射直後は1.58で2日迄に急速に減弱し、2日以後の減弱は少く7日後で1~2%である。CaF<sub>2</sub>:Mnは前2者に比べ2日迄は減弱がゆるやかであるが7日後は10%近く減弱し3つの線量計のうちで最大であつた。7日以後は減弱は更にゆるやかであることが報告されている<sup>16)</sup>。このことは次に述べるGlow Curveによりその状態を詳細に知ることが出来る。

### (5) Glow Curve

前述の如くGlow Curveといるのはcrystalを熱する時に生ずる光の強さと温度との関係を示す曲線であるが、温度の上昇は、測定の際に熱する時間と比例するので、Glow Curveの横軸には測定の時に熱せられる時間を示している。

(a) LiF: これのGlow CurveはFig.14に示す如く照射直後には5つのPeakを有している。

図の2.5は、はつきりしているが、その他は明瞭でなく、2日後では低温部の1, 2のPeakが

Fig. 14 Glow curves for LiF at immediately and 2 days after irradiation.

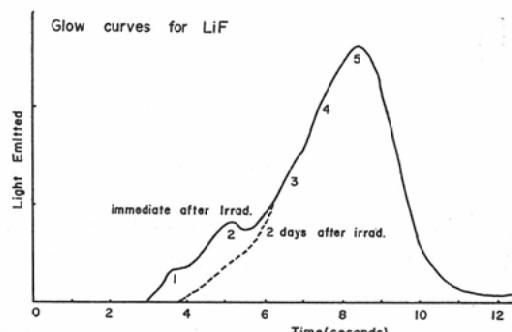


Fig. 15 Glow curves for CaF<sub>2</sub>:Mn at immediately and 2 days after irradiation.

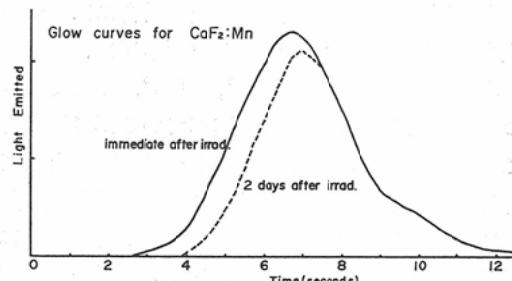


Fig. 16 Glow curves  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$  at immediately and 2 days after irradiation.

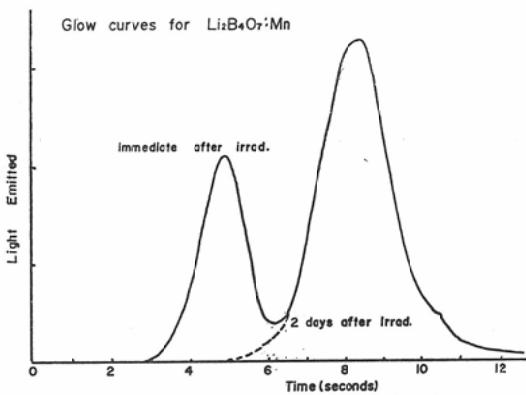
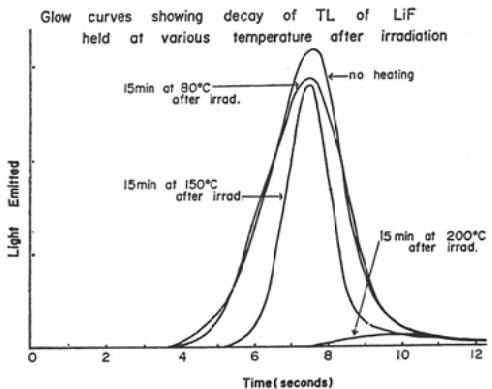


Fig. 17 Glow curves showing decay of thermoluminescence of LiF held at various temperature after irradiation.



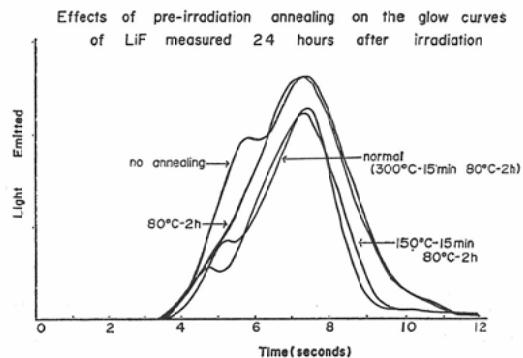
消失している。Zimmerman<sup>23)</sup>によれば Peak (2)は 105°Cで Peak (5)は、190°Cで生ずるといつて いる。

(b)  $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ : これの Glow Curve は一つ の Peak のみで 2 日後には低温部の高さがやや低くなる (Fig. 15)。

(c)  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$ : 照射直後の場合には 2 つの大きな Peak として現われる (Fig. 16)。

Schulman<sup>20)</sup>によれば 90°, 180°, 220°Cの 3 つの Peak よりなつていると述べているが 180°Cと 220°Cの Peak は分離せずに 1 つの Peak として 現われるわけである。低温部の Peak が室温で急速に消失することがこれの特徴であつて Fig. に 見る如く 2 日後には全く見られない。以上より測

Fig. 18 Effects of pre-irradiation annealing on the glow curves of LiF measured 24 hours after irradiation.



定には照射後少くとも 6 時間以上待たねばならぬ。

(d) 照射後色々の温度におかれた LiF の減衰状態を Fig. 17 に示す。150°C, 15 分後の Glow Curve は常温に比べて全般的に低い山を示すがまだ存在している。しかし 200°C, 15 分では大きな Peak が殆ど消失し温度の高い部分にわずかの高さを示すにすぎない。以上より照射された LiF を照射前に Annealing する場合には少くとも 200°C以上 15 分間が必要であると考えられる。

(e) Annealing を色々の温度の条件で行つた後に照射を行い、24時間後に LiF の Glow Curve を描いたものを Fig. 18 に示す。この図より Glow Curve が照射前の Annealing により如何に変化するかがわかるのであつて、例えば、Annealing をしないと、普通行つている Annealing の場合 ( $300^\circ\text{C} 15\text{分後に } 80^\circ\text{C } 2\text{時間}$ ) に比べてとくに低い温度の Peak が高いことがわかる。以上より見ても再使用にあたり照射前には必ず一定の Annealing をすることが大切である。かかる Glow Curve の変化は、trap からの電子の放出の変化でなくして、trap の数の変化を現わしている。Grant<sup>21)</sup> や Zimmerman<sup>23)</sup> も照射前の Annealing により Glow Curve の変化すること、ひいては感度に影響を及ぼすことを強調している。

## 6. 考 案

10~1,000R迄の線量特性曲線の非直線性は線

量計の種類、Annealing の状態、線質等により異なることが報告されている<sup>22)</sup>。之等の非直線性を来す原因是2つあると考えられる<sup>16)</sup>。第1は照射により crystal の中に新しい trap を形成するためで小線量照射の時に生ずるものである。この場合照射線量を横軸に Response を縦軸にとると Superlinear Curve となりカーブは上向きに上昇する。この傾向は Fig.10 に見る如く高エネルギー放射線の方がこの傾向がつよい。之は Naylor<sup>16)</sup>によると 50R 位よりこの傾向が出てくることを報じているが、我々は 100~200R 位より認めている。

第2には大線量照射の時に生ずるもので、之は trap が飽和されるためと思われる。この効果では 1 Radあたりの Response の減少を来す。

之が起るのは線量計により異なるが第1の場合より高い線量域 ( $10^3$ ~ $10^4$ R 以上) の時に起りカーブが逆に下向きとなる。Marrone<sup>14)</sup>によると LiF は 0.3R~300R 迄は直線性を示し、之以上  $5 \times 10^4$ R 迄は約 1.2 倍に比例し (Superlinearity) 之以上になると飽和はじめるといつている。

数 R~10mR の微量線量測定にはこのままでは使用出来ない。空気中での測定では非照射の場合でも光を発生 (Triboluminescence) し、之が線量測定の background になる。そこで測定中に線量計の周囲に不活性ガス (例ば N<sub>2</sub>) を注入することによつて background を減少する事が出来以上の微量線量測定が可能である。

又大量照射の時には線量計に損傷を来す。

LiF Phosphor では  $10^4$ R 以上の照射で永久的損傷を与える、CaF<sub>2</sub>: Mn では之よりも大きな線量 ( $4 \times 10^5$ R) で見られるといわれている<sup>14)</sup>。このことは再使用にあたつて充分注意しなければならない。LiF では  $10^4$ R 位迄は使用後 400°C 15 分間位の Annealing で充分照射前の感度にもどし得るが、之以上の線量では trap を飽和するのみならず crystal に永久的な損傷を与えるわけである。

LiF, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>: Mn は、とくに低エネルギー域 (40KeV~100KeV) に於てエネルギー依存性が非常に小さいことがわかつた<sup>20)</sup>。Cameron<sup>8)</sup>の報

告に於ても LiF は Film badge, Silver activated phosphate glass, manganese activated Calcium Fluoride に比べて非常にエネルギー依存性が少ないと述べている。Becker<sup>11</sup>も LiF は 10KeV~数 MeV にわたつて完全に energy independent であると報じている。又 Schulman<sup>20)</sup>は Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>: Mn は LiF よりも更にエネルギー依存性が小さく線量計としてすぐれていることを報告しているが我々の値とよく一致している。この点が蛍光ガラス線量計及びフィルム法による線量測定に比べて優れた点であると考えられる<sup>11</sup>。CaF<sub>2</sub>: Mn は LiF, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>: Mn に比べて低エネルギー域に於て Response が大になることは Cameron<sup>8)</sup> 等によつても報じられているが之が一つの欠点と思われる。又 LiF, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>: Mn は熱中性子線量測定に有効であると云われている。

方向依存性が少いことは LiF の一つの特長であつて Becker<sup>11, 19)</sup> 等もそのことを指摘し、(±10~20%以内) 之がフィルム法よりも更に優れた点として、将来フィルムバッヂの代りをすると述べている。

照射 2 日以後の減衰の少いことは諸家により報ぜられている。Naylor<sup>16)</sup>によると LiF は 7 日後で 1% 減であり、Becker<sup>11</sup>は気候条件の悪い所でも 1 年以内その減衰は無視しうるといつている。この状態は Glow Curve を見ればその関係がよくわかり、前述の如く、照射後室温で早期に減衰する部分は、Glow Curve で低温部の Peak である。

Glow Curve は 1 コ或いは数コの Glow Peak を有し trap の種類により異つた Peak となる。Glow Peak の数とか之の生ずる温度はその線量計に特有のものであつて、電子の trap に結びつくエネルギーが大である程、高温になつて初めて電子を放出する、即ち高温部の Glow Peak となつて現われるわけである。

典型的な LiF の Glow Curve は Fig.14 の如くなり、5つの Peak を有する。Zimmerman<sup>23)</sup>によると之等の Peak には各々の半減期を有し Peak 1 は約 5 分、2 は 10 時間、3 は半年、4 は 7 年、5 は 80 年であるといつている。

Randall, Wilkins<sup>17)</sup> は trap された電子が熱することにより離れて光を出し Ground State にものる Kinetics Model を考えた。彼等は照射後一定の温度に於て残っている trap された電子の数 (n) を時間 (t) の函数で現わすと

$$n = n_0 \exp\{-st \exp(-E/RT)\}$$

$n_0$  : 初めの trap された電子の数

E : 深さ (Depth)

S : trap の frequency factor

T : 絶対温度

となるといつている。

熱ルミネッセンス線量計として良好な材料となるものは、理論的に考えて次の如きものが考えられる。

(1) 電子を trap する場所 (hole) の濃度が高いものであること。

(2) trap された電子が室温で長く貯蔵されているもの。理論的には Schulman 等は “trap depth” が大きいものと考えられる。

(3) 熱により電子が放出される時に、之等の結合の能率がよいもの。

(4) trapping center, luminescent center 等が放射線により傷けられることがないこと。

即ち放射線は trap を電子でうめるだけで作つたり破壊したりするものであつてはならない。

(5) 発生する光のスペクトルが Photodetector のスペクトル感度とよく一致すること。

(6) trap の型が一様であること。このことは Glow Curve で 1 チの Peak を作ることになる。将来以上の条件にかなつた高感度の材料が発見されることは充分考えられる。

熱ルミネッセンス線量計の利点は次の如く考えられる。主として LiF で述べると

(1) 結晶粉末約 10mm<sup>3</sup>で線量測定が可能で小型に出来る。水に不溶で無害、不活性、使用に便利であり実際的応用に適した形状にし得、消毒可能である。

(2) 照射された全線量は長期間貯えられる。之により遠方での線量測定又は 2 カ所の線量の比較が容易に行いうる。

(3) 数 Rads～100K Rads の非常に広い範

囲に反応する。そこで線量のオーダーの不明の大線量の測定に有用である。

(4) 方向依存性がないこと。之により例えばアイソトープを与えた時の体内での線量測定が正確に行いうる。

(5) 応いエネルギー域に正確に反応すること

(6) 線量率に依存しないこと<sup>10)</sup>。Karzmark は  $2 \times 10^8$  Rads/sec. 迂線量率の影響がないことを見ている。そこで例えば、リニアック、サイクロotron からの Pulsed Beam に有用である。

この不利の点としては、次の如きものが考えられる。

(1) 照射前の Annealing の条件により再使用の際に感度が異なること。

(2) 照射により破壊を受けやすいうこと。とくに  $10^4$  R 以上の照射をうけると永久的に障害をうけること。

(3) 数 100 R 以上では線量特性に於て Super-linearity があること。

(4) 微量線量 (数 R～数 mR) 測定には、空気中で triboluminescence と酸素効果のために Background がますために N<sub>2</sub> 中で測定しなければならない等である。

以上の我々の実験結果より 3 つの線量計間の比較をしてみると LiF, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub> : Mn は、低エネルギー域での依存性が少いこと及び 2 日後の減衰率が少いことより CaF<sub>2</sub> : Mn より優つていると考えられる。とくに Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub> : Mn は最近来 Schulman<sup>20)</sup> 等により、開発されたものであるが、LiF に比べ遜色なく将来更に利用されるであろう。しかし CaF<sub>2</sub> : Mn の利点は前述の如く大線量照射に適しており、 $3 \times 10^5$  R 位迄は Crystal に損傷を与えることなく使用しうる。LiF 等の低エネルギー域での線質依存性が少いこと、再使用しうること等は蛍光ガラス線量計に比し利点と考えられる。

熱ルミネッセンス線量計は、子宮癌のラジウム治療の直腸線量測定や、皮膚線量測定等臨床面への応用はかなり広く有望である<sup>12)18)19)21)</sup>。

又容易に郵送し得るため国内のみならず国際間でも線量計の較正、線源の線量測定に大切な役割

をはたすことであらう<sup>16)</sup>.

## 7. 結 語

$\text{LiF}$ ,  $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ ,  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$  の熱ルミネッセンス線量計を用いて各々についての線量特性, 線質依存性, 方向依存性, 減衰特性を調べて比較検討を行つた.

1) 線量特性: 50~1,000Rでは  $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$  が最も直線性を示し,  $\text{LiF}$ ,  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$  の順に線量の増加について 1 Rあたりの Response がわづか増す.

2) 線質特性: 0.2MeV 以上では 3 つの線量計共依存性なくよく一致するが, 低エネルギーの部では  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$  が最も依存性が少く, 次に  $\text{LiF}$  である.  $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$  が最も依存性が大で 1 Rあたりの Response が大となる.

3) 方向依存性:  $\text{LiF}$  で 0~90° の範囲で 5 % 以内である.

4) 減衰特性: 照射 2 日後を 1 とすると  $\text{LiF}$  は 7 日後で 5 % 減弱,  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  は 1~2 % 減弱,  $\text{CaF}_2$  は 10 % 減弱である.

(5) 50R 照射量に於て線量計間の精度は  $\text{LiF}$  Micro Rod にて ±3 %, Teflon Disc で ±2 %  $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$  で ±3 %,  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$  で ±4 % の標準誤差を得た.

(6) 50~1,000R の照射範囲では何回も使用しうる.

(7) 各々の線量計について Glow Curve を色々の条件下にて求め考察を加えた.

## 文 献

- 1) Becker, K.: Health Physics 12 (1966), 955~964.
- 2) Cameron, J.R.: Progress in Radiology Vol. 2. Symposia and invited Papers of the XIth International Congress of Radiology p. 1784~1790.
- 3) Cameron, J.R., Daniels, F., Johnson, N., and Kenney, G.: Science 134 (1961), 333~334.
- 4) Cameron, J.R. and Kenney, G.: Rad. Res. 19 (1963), 199.
- 5) Cameron, J.R., Zimmerman, D., Kenney, G., Buch, R., Bland, R., and Grant, R.: Health Physics 10 (1964), 25~29.
- 6) Cameron, J.R., Zimmerman, D., and Kenney, G.: Rad. Res. 19 (1963), 199.
- 7) Daniels, F., Boyd, C., and Saunders, D.F.: Science 117 (1953), 343.
- 8) Daniels, F., and Riemann, W.P.: The thermoluminescent Dosimeter, Final Report, Chemical Procurement Agency Contract Number DA 18-108-CML 3069, Project Number 4-12-80-001, University of Wisconsin, Feb, 16, (1954).
- 9) Grant, R.M., and Cameron, J.R.: International Conference on Luminescence Dosimetry, Palo Alto, California, U.S.A, June 1965.
- 10) Karzmark, C.J.: Phys. Med. Biol.: 9 (1964), 273~286.
- 11) Kenney, G., Cameron, J.R., and Zimmerman, D.: Rev. Scient. Instruments 34 (1963), 769~771.
- 12) Malsky, S.J., and Bernard, R.: Radiology 90 (1968), 518~524.
- 13) Meilin, F., and Cameron, J.R.: Am. J. Roentgenol. 100 (1967), 863~869.
- 14) Marrone, M.J., and Attix, F.H.: Health Physics 10 (1954), 431.
- 15) Nakajima, T., Hiraoka, T., and Habu, T.: Health Physics 14 (1968), 266~267.
- 16) Naylor, G.P.: Brit. J. Radiol. 40 (1967), 170~176.
- 17) Randall, J.T., and Wilkins, M.H.F.: Proc. R. Soc. A184 (1945), 365.
- 18) Roswit, B., Malsky, S.J., Reid, C.B., Amato, C.G., and Maddalone, L.: Progress in Radiology Vol. 2. Symposia and invited Papers of the XIth International Congress of Radiology p. 1763~1771.
- 19) Roswitt, B., B., Malsky, S.J., and Amato, C.G.: In Vivo Radiation Dosimetry for clinical and Experimental Radiotherapy. p. 96~126.
- 20) Schulman, J.H., Kirk, R.D., and West, E.J.: Progress in Radiology Vol. 2. Symposia and invited Papers of the XIth International Congress of Radiology p. 1797~1801.
- 21) Svärcer, V., Fiz, D., Fowler, J.F., and Deeley, T.J.: Brit. J. Radiol. 38 (1965), 785~790.
- 22) Worton, R.G., and Holloway, A.F.: Radiology 87 (1966), 938~943.
- 23) Zimmerman, D.W., Rhyner, C.R., and Cameron, J.R.: Health Physics 12 (1966), 525~531.