Osaka University Knowledge Archive

Title	熱ルミネッセンス線量計の研究 第1報 測定に関する2,3の問題について
Author(s)	高久, 祐治
Citation	日本医学放射線学会雑誌. 1970, 30(3), p. 291-295
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/19273
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

熱ルミネッセンス線量計の研究

第1報　測定に関する2，3の問題について

福島県立医科大学がん診療部（主任　松川明教授）
高　久　祐　治

（昭和45年1月13日受付）

Some characteristics of commercially available TLD

Y. Takaku
Fukushima Medical College, Fukushima-city, JAPAN

Versatility of TLD for the clinical dosimetry and health physics has been studied for a few years at our institute. The initial stage of the study is discribed in this report. The [measuring] instruments are Harshaw 2000A and 2000B. The fading and dose dependence characteristics of ^{7}LiF micro rods were investigated. Pre- and post-irradiation annealing were omitted in this study for the reason of intending to know the performance under the simplified procedure, though the phosphors had received proper annealing before leaving the maker. The amount of fading of ^{7}LiF micro rods at room temperature in the dark, was 10% at 100 hrs after irradiation. Sensitivity increase was 28%, when increasing the exposure at the build up point in lucite phantom from 200 R to 2700 R. The standard deviation of ten ^{7}LiF micro rod readings, when exposed to Cobalt 60, 300 R, was 6.1%, which would be 2.7% by excluding one 13.3% lower reading than the average. The re-use possibility of LiF micro rods was pessimistic, but could be possible under proper annealing at the sacrifice of the precision. Detailed surface dose distributions could be measured easily with teflon disc TLD.

1. 諸　言

熱ルミネッセンス線量計（TLD）が保健物理・放射線医学・放射線物理・地質学等の分野で注目されている．その理由として，あらゆる種類の電離放射線を測定できること，線量測定可能範囲が広いこと，線量の記憶・測定精度・再現性が満足できる程度であること，小容積であること，空気に近い実効原子番号が低エネルギーX線の線質依存性を低くしていること等を挙げることができる．比較的古くからTLDの原理は研究の対象になつていたようだが，近年になつて急速に多数の報告が各方面から活発に提出されている[1)2)]．これら報告から線量依存性のように定性的には結果の一致した部分も見うけられるが，定量的にはつきり結論づけられる部分は少なく，各施設がそれぞれの方法について確かめる必要があるように思われる．われわれは放射線医学・保健物理でTLDを使用することを目的としているが，今回そのPerformanceのうち2，3問題になる点について若干の結果が得られたので報告する．

2. Phosphor について

現在市販され，比較的均一な試料を大量に使用することが可能と思われる phosphor（発光体）として Table 1 にあげたものがある．これらの phosphor を例えば70～180ミクロンの粉末状にし，ガラスのカプセルに入れ個人被曝線量計として使

Table 1. Types of TLD

phosphors	density g/cm³	effective atomic numbers for photoelectric absorption	effective atomic numbers for pair formation
LiF	2.64	8.20	7.52
CaF_2	3.18	16.5	14.8
$Li_2B_4O_7$	—	7.24	6.90
$CaSO_4$	2.61	15.2	13.4
$2MgO \cdot SiO_2$	—	11.1	10.6
BeO	3.01	7.03	6.67

用したり，粉末をテフロンのようなプラスチックで固めたり，あるいは単結晶を適当な大きさに加工したりして使用する場合と，粉末のまま使用する場合がある．粉末のままでは，よく混合すれば試料が均一になり得るという利点はあるが，同時に多数の測定を行なう場合は取扱いが面倒であり，固体試料の形にする方法を考えるべきであろう．

3. 原理について

phosphor が電離放射線に照射されると相互作用の結果，放射線のある部分が phosphor の結晶に吸収されたエネルギーに比例した数だけ自由電子，正孔，電子—正孔対等が結晶中に生じる．これらは励起された結果，それぞれのとり得るエネルギー帯中にあつて結晶中を自由に動きながら trapping centerに捕えられ準安定状態に励起されたままになる．この trapped electrons に熱の形でエネルギーを与えてやると，よりエネルギー準位の高い不安定な状態に上つてから基底状態に遷移することができる．そのときエネルギー準位のちがいだけの光量子を放出することができる．放出される光は準安定状態に trap された電子の数に比例し，従つて照射された放射線の量に関係ある．この過程をくり返し，再び放射線を測定することが可能なわけである．この現象を線量計として使うには，他の型の線量計で測定点の吸収線量あるいは照射線量とＴＬＤの発光量との関係を求めておかなければならない．不安定状態と準安定状態のエネルギー準位があまり離れていないと，trapped electrons は室温で不安定状態に励起されるだけのエネルギーを得て測定前に安定状態におちる．これは fading として観察される現象だが，その半減期は (1) 式で表わされる Randall-Wilkins の model に従うことが何人かの人々によつて確かめられている．

$$n = n_0 \exp\left[-s\exp\left(-E/kT\right)\right] \qquad (1)$$

n＝時間 t における trapped electron の数．

n_0＝みたされた trap の初期値．

E＝activation energy

s＝frequency factor

k＝ボルツマン定数

放射線に照射された結晶の温度を上げていくと，発光量の変化として glow curve が得られるが，LiF の場合，いくつかの温度点で発光が強くなり，様々の C-center が関係していることを示している．どのような C-center がそれぞれの glow peak に関係しているかは，glow curve と，結晶の光吸収バンドの解析から研究されているが[3]，一部をのぞいては現在のところ不明な点が多い．

4. 測定装置

実験に使われた測定装置は Harshaw 製 Model 2000-A，2000-B である．2000-A の方には熱ルミネッセンス検出装置が組込まれており，その断面見取図を Fig. 1 に示す．その概要は1) planchet 上で測定すべき試料が加熱される．加熱温度の上昇速度と加熱最高温度は，それぞれ 2～30℃/sec と50～ 400℃の任意の値に予め決定できる．従つて，試料の種類によつてきまる最適の加熱速度，最高温度を選ぶことができる．2)光電子増倍管はＳ—11型の 2 インチ直径が使われており，その暗電流を一定の低い値に保つため電子冷却で10℃±0.6℃に保たれている．測定した暗電流は H.V.＝1000Ｖでほぼ 3×10^{-11} Amp. であつた．3)高温度まで熱して測定しなければならない場合，結晶表面でおこる spurious luminescence が問題になるが，ある種のガス雰囲気中で測定することによつて，この効果を減弱させる可能性を調べるた

め，測定箱にガスを流せるようになつている．さらに，4)前面には vibrated powder dispenser が付いていて30mg±1％の粉末試料を planchet にのせることができる．

2000-B は picoammeter になつており，1)測定可能範囲は電流 10^{-13}～10^{-4} Amp.，電荷10^{-12}～10^{-2}クーロンで，2 decades ずつの4段階自動レンジ切換にすることができる．2)測定時間は10，30，60，100秒，手動の5種類選べる．3)入力電流を測定時間中積分した integral reading を与えるデジタル表示がついている．4)planchet 温度と測定電流のレコーダー用出力があり，differential reading をしやすくしている．5) PM用 500～1500V高圧電源はこの中にくみ込まれている．

測定条件としては，25秒間に LiF の場合最高 250℃，CaF-Teflon の場合 300℃まで planchet 温度上昇させ，5秒間最高温度でプラトー状態を保たせた．時間一温度上昇カーブの再現性は満足すべきものであつた．

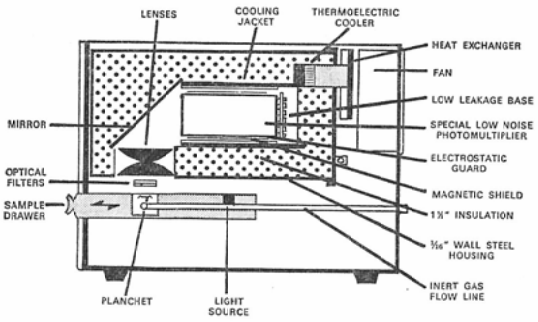


Fig. 1 Sectional view of TLD-2000A

5. 測定値について

本測定装置から得られる differential reading または，integral reading そのままを gross reading とすると，gross reading は (2)式で表わされる．

gross reading＝
net reading＋blank＋back ground　　(2)

blank＝PM dark current＋black body emission＋spurious luminescence　　(3)

b.g. は測定の対象になつてない放射線による寄与であり，blank には (3)式に示す通り planchet が空になつても存在する暗電流，黒体輻射の外に試料自体からの黒体輻射と spurious luminescence が含まれる．われわれは b.g. と blank を同一条件にある未照射試料を測定し，差引くことによつて取り除いた．

6. Phosphor performance について

線量計として問題になる要素は測定可能範囲，線量依存性，線量率依存性，fading,線質依存性，精度および再現性等であろう．TLD-100 (LiF) の線量率依存性については Karzmark[4] が 5×10^{2}～2×10^{8} rad/sec で依存しないことを確かめている．また TLD-100の熱処理と fading 特性の関係が研究され LiF では 400℃1時間＋80℃24時間が好ましいという結果が得られている[5]．実験に使われた ^{7}LiF Teflon micro rod は1㎜直径×6㎜長さのテフロン中，99.993％に ^{7}Li 濃縮の LiF 粉末を4％含むものである．一つにはできるだけ手数のかからない線量計を，一つにはテフロンを使つているので 330℃以上加熱できないという理由で，今回は測定前後の熱処理を考慮しなかつた．なお本製品は 300℃18時間，80℃24時間熱処理ずみとなつている．

1) fading について

Fowler 他[6]は 400℃，1時間＋80℃，24時間熱処理した LiF (TLD-100, Con Rad N) に15 Mev 電子線，5Mv X 線，^{60}Co 1000 rad 与え，暗所・室温保存したものについて fading を求め，3週間で第1日目の10～20％，6～8週間で回復していく結果を得ている．Cameron[7] は同様に熱処理した．TLD-100 を ^{60}Co 1000R照射後，12週間で 200℃の peak が照射1時間後の5％になるという値を得ている．さらに Webb[8] は同様に熱処理した LiF (TLD-700, Con-Rad 7, Con-Rad N) を ^{60}Co 10，1000R照射し，単調に 100日でほぼ7％ fading していく結果を得ている．Fig. 2は micro rod を ^{60}Co 60R照射，室温保存の結果である．約 100時間後では1時間後の値の90％であつた．線量分布のような相対的な測定の場合でも3時間程度経過後測定すべきこと

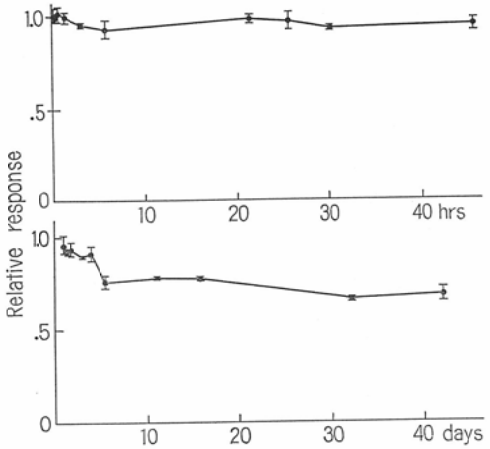


Fig. 2 Fading characteristics of ^{7}LiF micro rods, irradiated with Cobalt 60, 60R, stored at room temperature, normalized to 1hr reading.

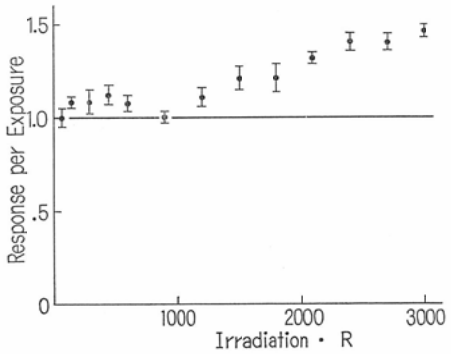


Fig. 3 Dose dependence curve for ^{7}LiF micro rods for Cobalt 60 gamma ray.

を示している．fading 特性は各施設が使用する phosphor と熱処理，測定法について求めておかなければならないものの一つであろう．

2)　線量依存性について

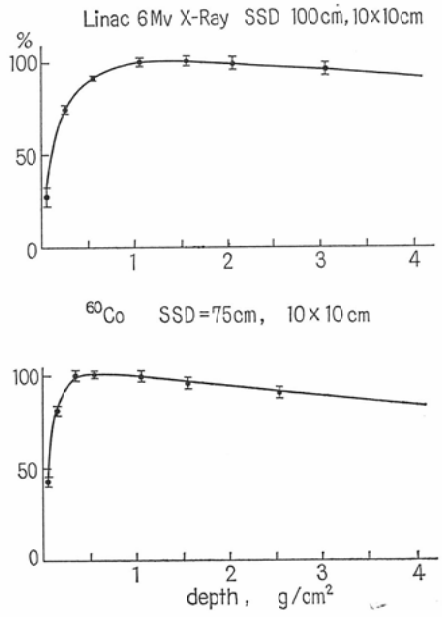
ＴＬＤに線量依存性のあることが多くの人々によつて確かめられている．大概の LiF は10^5R照射でほぼ飽和する．結晶内で発光に寄与し得る traps や recombination center の数が限られているのであるから高線量で飽和するのは当然であるが，飽和に達する手前10^3〜10^5Rで感度増加が観察されている[9)10)]．Almond[11)] は^{60}Co と15MeV電子線について TLD-700 が1000rad では 200rad 与えられたときの17％感度増加することを得ている．

^{60}Co 照射した ^{7}LiF micro rod についての結果を Fig. 3に示す．照射はアクリルファントム build-up point で行なつたときの値である．測定は照射45時間後に行ない，５本の平均をとつてある．これによると2700Rでは 200Rの28％感度増加があつた．super linearity 部分の原因については，放射線損傷が関係するとする考え[9)12)]，あるいはTL traps と deep traps の存在から説明しようという試み[13)]がなされているが，まだはつきりした結論は得られてない．

3)　精度について

10本の micro rod を ^{60}Co 300R照射したときの標準偏差は 6.1％であつた．このうちの１本にその gross reading が平均より13.3％低いものがあつた．これを除くと 2.7％になる．再使用の可能性を調べる意味で，vargin rod とあらかじめ1000R，3000R照射されたものとの感度を比較したが，熱処理を行なわずそのまま使用すると，それぞれ17％，70％ vargin rod より感度が高い．

Fig. 4 Surface dose distributions measured with CaF_2 Teflon discs 6mmφ×0.4mmt.



300℃4時間熱処理を行なつても3000R照射されたものは21%感度が高かつた．数 rad 与えた範囲では 300℃15分＋80℃24時間熱処理で完全に glow curveが元にもどるという報告があるが[14]，1000rad 程度以上与えられた場合は，長時間の熱処理と較正によつて試料を選り分ければ再使用できそうだという程度である．

4) 表面線量分布

TLDは小容積にできるので微小部分の測定が可能である．6㎜直経×0.4㎜厚の CaF_2：Mn Teflon disc 線量計で，当施設にある Linac 6 Mv X 線と ^{60}Co 治療装置による表面線量を測定した結果が Fig. 4である．本 disc にはテフロン中 CaF_2 が25%含まれている．軟組織表面から1.0㎜までの平均線量は 6 Mv X 線では28%，^{60}Co では43%と言うことができよう．

7. 結　語

小容積TLDは線量分布測定に適している．測定にあたつては fading と線量依存性に注意しなければならない．1000R以上照射された ^{7}LiF micro rod の再使用は悲観的である．様々の実効原子番号をもつた phosphor がすでに開発され，これが放射線医学や保健物理への応用の大きな可能性を与えている．

本報告の要旨は第19回日本医学放射線学会物理部会（昭和43年8月）において発表した．

御指導，御校閲をいただいた松川明教授に深謝いたします．

文　献

1) Health Physics, Bibliography of TLD, 14 (1968), 495—514.
2) Health Physics, 17 (1969), 349—351.
3) Townsend, P.D. et al.: Phys. Rev., 155 (1967), 908—917.
4) Karzmark, C.J., White, J. and Fowler, J.F.: Phys. Med. Biol., 9 (1964), 273—286.
5) Zimmerman, D.W. et al.: Health Physics, 12 (1966), 525—531.
6) Karzmark, C.J., Fowler, J.F. and White, J.T.: Int. J. of Applied Rad. and Isotopes, 17 (1966), 161—173.
7) Cameron, J.R. et al.: Phys. Med. Biol., 13 (1968), 97—104.
8) Webb, G.A.M.: Brit. J. Appl. Phys., 18 (1967), 1567—1571.
9) Cameron, J.R. et al.: "Solid State and Chemical Radiation Dosimetry in Med. and Biol." IAEA '67, 77—89.
10) 田中敬正他：日医放誌，第28巻（1968），536—545.
11) Almond, P.R. et al.: Physl Med. Biol., 12 (1967), 389—394.
12) 白貝彰宏他：日医放誌，第29巻（1969），1—6.
13) Suntharalingam, N. and Cameron, J.R.: Phys. Med. Biol., 14 (1969). 397—410.
14) Webb, G.A.M.: Health Physics, 13 (1967), 814—816.