原 著

新しく開発した蛍光ガラス線量計による 低線量測定とエネルギー依存性

横田良助, 中島三郎, 上杉泰男

(東芝中央研究所)

(昭和 36 年 7 月 17 日 受理)

緒 言

(1) 個人被曝監視用として, γ 線に対して 30 mr より 3000 mr (事故時に備えて) まで測定でき, 線量率, 方向に依存せず, fading が無視できて, 13 週間にわたって積算可能であり, 簡便に測定できるものが要望されている。

放射性同位元素を扱う人に対しては手に β 線が被曝することがあり, 同様に 100 mrad より 3000 mrad まで測定できることが要望される。

深部線量分布を細かく測定するには寸法の小さい直径 1 mm, 長さ 6 mm の蛍光ガラス棒がとくに適している。また蛍光ガラスは人体内に挿入することによって内部被曝が測定できる可能性が生じた。

われわれが開発した蛍光ガラス線量計は以上の目的にとくに適したものである。

(2) radiophotoluminescence と銀活性リン酸ガラス

固体(誘電体)が放射線に曝されると, 安定な蛍光中心が生成する。すなわち, 紫外線または可視光線の刺激で蛍光中心は蛍光を発する。この現象を radiophotoluminescence といい, 被曝量と蛍光強度とは比例関係にある。

この現象を示す物質としてよく研究されているのは Ag がわずかにはいった NaCl(Ag) である¹⁾。この物質は被曝前においては 365 m μ 刺激で蛍

光を発しないが, 被曝後は 365 m μ 刺激で黄色の蛍光を発する。この現象を線量計として利用するには NaCl(Ag) は生成条件に敏感にすぎて一定のものを作りにくい。

Weyl, Schulman ら²⁾は銀を含んだアルカリアルミノリン酸塩ガラスが radiophotoluminescence を示すことを見出し, Schulman ら³⁾が線量計として応用した。実施されたガラス組成は KPO₃ 25, Ba(PO₃)₂ 25, Al(PO₃)₃ 50(wt%) の基体ガラスに AgPO₃ 8 wt% 導入されたものである。

被曝後 365 m μ 刺激で橙色の蛍光を発する。この蛍光中心は通常いわれているような原子状銀——Ag⁰ (Ag⁺ イオンに電子が捕獲されたもの) ではなくて, Ag⁺ イオンとそれに隣る正イオン空孔に正孔が捕獲されたものであると考えられる。

また被曝前でも近紫外線刺激で弱い蛍光が生ずる。それは Ag⁺ イオンによるものと通常考えられているが, 著者らは, 不純物によるものや Ag⁺ イオンの複合したものによるものからなりたっていると考える。

Schulman らが開発したガラスおよび測定器では被曝前蛍光量が ~ 30 r 相当分あるので ~ 3 r くらいまでしか測定できない。また Ba のような原子量の大きな元素を多量に含んでいるのでエネルギー依存性が大きい欠点がある。

われわれは K, Ba を含まず, Li, B を含む銀

活性リン酸ガラスで被曝前の蛍光を著しく小さくすることに成功した⁴⁾。その組成は LiPO_3 50, $\text{Al(PO}_3)_3$ 50(wt%) の基体ガラスに B_2O_3 3%, AgPO_3 7%(wt) 導入したものである⁴⁾。

1. 線量計としての銀活性リン酸ガラス

(1) 低線量測定用蛍光線量計ガラスの性能の表現

われわれが開発したガラスを FD-1 と呼び、Schulman が開発したものを FD-2 と呼ぶことにする。

FD-1 の被曝前の吸収、被曝後の吸収および、

Fig. 1 Absorption and luminescence spectrum in silver-activated phosphate glass FD-1

Fig. 2 Characteristic diagram of fluorodosimeter glass at low dose range

365 mμ 近傍透過フィルターの透過率曲線を Fig. 1 に示す。被曝後 365 mμ で刺激したとき発生する蛍光のエネルギー分布を同図に示す。蛍光は赤フィルターを通して Ag-Bi-Cs 光電面を持つ光電子増倍管でうけて光電流として測定する。Fig. 2 に FD-1 ガラスの特性を図式的に示す。

FD-1 では低線量域 (∼10 mr) まで直線的であるが FD-2 などではかならずしもそうではない。

FD-1 が被曝 γ 線より吸収したエネルギー (吸収線量) を D_r とし、単位吸収線量に対する蛍光ガラスの蛍光量増加分を f_r とする。FD-1 は被曝前にも蛍光を発する。その蛍光量を F_{pre} とする。すると D_r 吸収後のガラスの蛍光量 F_{post} は

$$F_{post} = F_{pre} + f_r D_r \quad (1)$$

FD-1 の S/N は

$$S/N = f_r / F_{pre} \quad (2)$$

である。

predose とは F_{pre} を線量に換算したものであるから Fig. 2 の D_{pre} であるから

$$D_{pre} = F_{pre} / f_r = 1 / (S/N) \quad (3)$$

いま D_{pre} が 300 mr であればその $1/10 = 30$ mr は $\pm 10\%$ の精度で測定できる。 D_{pre} が小さければ小さいほど低線量が測定できる。

FD-1 と FD-2 とでは f_r は同一であるが F_{pre} は前者の方が小さい。

従来米国で作られている FD-2 は predose (D_{pre}) が ~ 30 r であり、また 3∼20 r 範囲では f_r が減少していたので 5 r までしか測定できない。

f_r は $\pm 2\%$ 以内で一定にできるが、 F_{pre} は種類の理由で一定でなく $\pm 15\%$ 以内で変動している。したがって測定はまず F_{pre} を測定し、つぎに F_{post} を測定し、 $F_{post} - F_{pre}$ を求めてこれをレスポンスとする。

すべての FD-1 のレスポンス対線量は 1 本の直線で表わされる。

(2) 直線性と加算可能性

前述したように FD-1 のレスポンス対線量は直線的であるが、これは自明のことではない。従来の米国の FD-2 では 3∼20 r 範囲では f_r が 20

r 以上の f_T と異なっていた。

われわれは predose を著しく小さくし, $570\text{ m}\mu$ より長い波長の蛍光のみを通すフィルターを光電子増倍管の前におくことによって, レスポンスは $\sim 10\text{ mr}$ より 3000 r までまったく直線的であることを見出した。

この直線性と後述する蛍光中心が安定であることより加算可能である。したがって週ごとの被曝線量を求めると同時に, 13 週間の累積被曝線量も求めうる。

ただし, 累積被曝線量が大きくなると predose が大きいと同じことであるから低線量測定の精度が低下し, ついには測定できなくなる。

(3) 方向依存性

FD-P8-1 および FD-P6-1 のガラスはその形状よりして裸のままでも方向依存性がほとんどない。Sn 1.0 mmt, または黄銅 1.0 mmt でガラス全面をカバーしても同様である (Table 1 参照)。黄銅 1.0 mmt カバーは指輪状のものについて行なったものである。方向依存性がほとんどないことが大きな特徴である。

Table 1

入射角	FD-P8-1 はだか 49 kV _{eff}	FD-P8-1 Sn 1.0 mmt シールド 60Co γ 線	FD-P6-1 黄銅 1.0 mmt シールド 60Co γ 線
0°	1.00	1.00	1.00
30°	1.03	1.04	0.93
45°	1.05	1.06	0.95
60°	1.06	1.08	0.98
90°	1.03	1.05	1.15

ここで $8 \times 8\text{ mm}^2$, $6 \times 6\text{ mm}^2$ の面への垂直入射の場合を 0° とする。

(4) fading

放射線によって生じた蛍光中心はきわめて安定である。 γ 線を 300 mr 被曝したのち室温に保持しておいた場合, 13 週間後における fading (蛍光中心の数の減少) は FD-P8-1 では 3%, Sch-

ulman ガラスでは 6% であった。保存状態はとくに暗所に保存したわけではなく, 紫外線に曝されない状態である。蛍光測定時には測定器光源の紫外線に曝されるが短時間であるので影響はない。

ただし以上は自然放射線による影響は無視した。

(5) 線量率依存性

$0.1\text{ mr/min} \sim 100\text{ r/min}$ の広い範囲の線量率の変化に対して全積算線量は線量率に依存しない。

(6) 温度効果

蛍光測定時の温度係数は $-0.7\%/^\circ\text{C}$ であるが, ほとんど温度係数の等しい Mn または Sm ガラス (蛍光の色は赤) を標準に用いることによって相殺することができる。

被曝後保存時の温度が $4 \sim 35^\circ\text{C}$ ならば保存温度の影響は無視できる。

被曝時の温度効果は 55°C 以下では $+0.2\%/^\circ\text{C}$ である。身体装着時の温度は $5 \sim 35^\circ\text{C}$ であるから, この温度範囲で被曝するときはほとんど無視できる。

蛍光線量計ガラス FD-1 は被曝直後の蛍光量は終局値の約 70% であって 30°C の場合に 3 時間で終局値の 98% に達する。Fig. 3 に 30°C に保存したときの蛍光量の build up を示す。4 時間で飽和値に達する。被曝後 100°C または 120°C で 8 分間加熱し, のち 30°C に保存した場合を Fig. 3 に示す。この熱処理により 30°C における

Fig. 3 Variation of luminescence response of exposed FD-1 glass with storage time in the dark

飽和値の111%に達し、以後一定である。したがって補正をすれば、被曝後ガラスを100°Cの蒸留水で洗うこともできる。

2. エネルギー依存性

蛍光ガラスのレスポンスはガラスが放射線より吸収したエネルギーに比例する。narrow beam geometryの下では単位照射線量あたりのガラスの吸収エネルギー D_g は電子平衡が成立する条件の下では

$$D_g = 0.877 (\mu\mu)_g / (\mu\mu)_{air} \text{ rads} \quad (4)$$

ここで $(\mu\mu)_g$, $(\mu\mu)_{air}$ はそれぞれガラスおよび空気の実質量吸収係数である。 $(\mu\mu)_g$ は計算によって求める。1.0 MeV の γ 線での値を1としたときの計算値を Fig. 4 に示す。

Fig. 4 Energy dependence of FD-1 and FD-2

FD-1 ガラスは原子量の大きな元素を含まない(これを low Z-glass という)から、エネルギー依存性が小さい。1 mmφ×6 mm 棒での実測値を同時に同図に示す。FD-2 ガラスよりもエネルギー依存性が著しく減少している。

FD-P 8-1 ではその寸法のためにエネルギー依存性は単純に (4) 式で表わされるものとはならないが、Fig. 5 に表わされるものとなり、フィルムバッジ用フィルムの約1/4にエネルギー依存性が減少している。

Fig. 5 に Sn: 0.5, 1.0, 1.2, 1.5 mmt カバーの場合のエネルギー依存性を示す*。Cd カバーの

* 照射は電気試験所大村技官によって行なわれた。

Fig. 5 Energy dependence of FD-P 8-1 (bare, Sn 0.5, 1.0, 1.2, 1.5 mmt cover)

場合は Sn と同一の値を与える。120 kV_{eff} より ⁶⁰Co γ 線までのエネルギー範囲では Sn 1.2 mmt をカバーすることにより ±5% の範囲でエネルギーに依存しない。なお裸のときと Sn カバーのときと γ 線における感度は同一である。

FD-P 6-1 ガラスはフィルムリングに代るガラ

Fig. 6 Energy dependence of FD-P 6-1

Fig. 7 Response of low dose range in FD-P 8-1 (Sn 1.2 mmt cover) and FD-P 6-1 (brass 1.0 mm cover)

スリングとして開発されたものである。1.0 mm^t 黄銅がケース兼フィルターとして作用しており (Fig. 6) エネルギー依存性を減少している。

さらに Pb 0.3 mm^t をガラスにカバーすることにより ⁶⁰Co γ 線より 120 kV_{eff} までの X 線に対してエネルギー依存性はまったくなくなると思われる。

3. 蛍光量測定器および測定法⁵⁾

紫外線光源としては東芝製 100 Watt 超高压水銀灯 SHL-100-UV-2 を用いる。これは放電灯でありながら十分安定なものである。東芝製光電式定電圧装置によって安定電圧 100 $\pm$ 0.1 V で点灯させる。東芝製フィルターを組み合わせ 365 m μ 近傍の紫外線のみを取り出す。紫外線は 8 $\times$ 8 mm² の面, または 6 $\times$ 6 mm² の面, または棒の長さの面に対して垂直に入射させ, 発生する蛍光を紫外線と垂直方向から赤に感度の大きい Ag-Bi-Cs 光陰極の 10 段の光電子増倍管 (東芝製 PM-50) で測定する。PM-50 の前に散乱紫外線を遮断すると同時に紫外線で蛍光の出ないフィルター 2 枚を組み合わせ 蛍光中の赤部分のみを通過させる。PM-50 よりの陽極電流は直流増幅器で増幅する。増幅器はグリッド電流の小さい電位計管 5886 を用い, さらに増幅したのち 100% 近く入力にフィードバックして安定化したものである。入力高抵抗はとくに吟味したものを用いて安定になっている。入力高抵抗の切換えにより 10 倍ずつ, またメーター回路と直列にはいった抵抗の切換えにより 10 倍に変化できる。

PM-50 は 600 $\sim$ 650 volt_i を印加して測定するときもっとも安定である。PM-50 は感度がわずかであるが時間とともに変化する。これは fatigue が大部分の原因である。翌日には回復する。fatigue は測定開始直後がもっともはげしいが 3 分くらいでおち着く。

そこで標準蛍光ガラスよりの蛍光を測定して出力メーターの振れがある一定値を示すように PM-50 に印加する電圧を微細に変化させる。また点

灯中の紫外線光源の蛍光量減少も同じ方法で補う。以上の方法で総合感度一定の状態 で測定することができる。

FD-P8-1 と FD-P6-1 では側面が一面砂目研磨面になっていて黒鉛筆で番号, 矢印などを付記することができる。これによってガラスの identification ができ, また測定器に対してガラスの関係位置が定まり, 1 回の測定でよい。FD-R1 の場合にはひっくり返して 2 回測定して平均をとる。

ガラスの汚れはとくに十分に注意してのぞかねばならない。まず特級のアセトンにひたし, つぎに蒸留水にひたし, 最後に特級のエチルアルコールまたはメチルアルコールにひたす。ひたす時間は汚れにもよるが通常 0.5 $\sim$ 1 分でよい。ソックスレー抽出装置を用いて洗浄するのもよい方法である。ついで乾燥する。乾燥はたんに放置しておいてもよいが東芝ヘアードライヤーで迅速に乾燥するのがもっともよい。

手のあぶらなどはつけないようにする。汚れがついたら, アセトンをしませた脱脂綿でこすりとり, つぎに前述した方法で洗浄する。かくすればガラスを直接セロテープではりつけて被曝させることができる。

4. γ 線, X 線に対する測定

FD-P8-1 で低線量を測定するには光電子増倍管に約 610 V 印加し, 被曝前蛍光が 100 目盛の出力メーターで 60 $\sim$ 70 目盛ふれるようにする。この状態で ⁶⁰Co γ 線 30 mr 被曝分で 4 目盛ふれる。FD-P6-1 では同じ状態で 50 mr が 4 目盛に相当する。線量測定は Victoreen の ion chamber (condenser γ -meter) によった。これは電気試験所大村技師によって検定された。

同じ状態で測定して FD-P8-1 は γ 線に対して 3000 r まで, FD-P6-1 は 5000 r まで直線的である。

FD-R1-1 を 1 つには電子平衡を成立させるために 3 mm^t のアクリルケースに入れて ⁶⁰Co γ

Fig. 8 Response of FD-R1-1

線で照射する。ガラス棒は小さいのでこの影響は無視できて、ガラス棒のよみはアクリルの吸収線量を表わす。アクリルは人体軟組織にほぼ相当する。照射線量を $R(r)$ とすれば $0.12 \sim 3.0 \text{ MeV}$ 範囲では吸収線量は $0.966R \text{ rad}$ となる。Fig. 8 は横軸に $0.966R \text{ rad}$ をとり縦軸にレスポンスをとっている。1 rad から 10^4 rad まで測定できる。

FD-R 1-1 をファントムや人体中に埋めこんで実験した場合のガラス棒のよみはただちにファントムや人体軟組織における吸収線量 (rad) を与える。

5. β 線の測定

8.43 mc の ^{32}P 水溶液 100 cc をポリエチレン製ビーカーにとり、そのほぼ中央にごく細い絹糸で FD-P 8-1, FD-P 6-1 および FD-R 1-1 をひたした。一定時間後とり出し、流水で 1 時間洗った。

ガラス面に ^{32}P が残存していないことをガイガー計数管で確かめた。照射時間と蛍光量増加とはまったく直線関係にある。

β 線の照射線量 R_β は

$$R_\beta = 0.0355 \bar{E}_\beta c \text{ rad/min} \quad (\bar{E}_\beta \text{ 0.69 MeV}) \\ = 2.14 \text{ rads/min} \quad c = \text{濃度}$$

FD-P 8-1 などのガラスの ^{60}Co γ 線に対する既知のレスポンスからこれらのガラスの ^{32}P β 線に対するレスポンスがつぎのように求められた。

FD-P 8-1	0.049 r/rad
FD-P 6-1	0.086 r/rad
FD-R 1-1	0.262 r/rad

β 線に対する質量吸収係数は一般に物質にあまりよらない。ゆえにガラスの場合でもガラスの寸法(厚さ)が小になるほどガラスの吸収エネルギーに近づく⁶⁾。そして ^{32}P β 線の飛程が短いので寸法(厚さ)が小さいほど厚さあたりの能率はよくなる。上の結果はこのことを示している。

上の結果を用いれば未知の ^{32}P 溶液の濃度を求めることができる。

6. 蛍光ガラス線量計によるファントム内の線量分布測定

(a) 200 kVp X線照射の場合*

$390 \times 350 \times 350 \text{ mm}^3$ の水ファントムの中心軸にアクリル板をおき、アクリル板にセロテープで FD-R 1-1 をはりつけた。東芝製 200 kVp, 20 mA, H. V. L. = 2.0 mm Cu, 照射野 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ である。Fig. 9 に中心軸の深部線量率特性を示

Fig. 9 Depth-dose curve of water-phantom by FD-R1-1, 200 kVp X-rays

* 玉川工場医療放射線技術課と共同で行なったもの。

す。同時に電離槽(東芝製深部線量計)による測定を行なった。その結果は比較的よい一致を示したが、わずかの差が認められた。これはガラスの支持板による散乱およびガラスの線質依存性によるものが原因であると考えられる。しかし簡単な補正を行なうことにより実用上差支えないと考えられる。FD-R1-1 は外形が微小なるため組織内に挿入することが可能であり、電離槽では測定できないことが可能となる。たとえばこれによって表面より 1 cm までの深部線量がはじめて求められたのである。

また線量分布の測定も多数の点を同時に測定しうる。とくに運動照射の場合も 1 回の照射で全分布を測定することができる。

(b) ベータトロンによる X 線および電子線照射の場合*

200×200×200 mm³ のゼラチン・ファントムの中心軸の深部線量率を FD-R1-1 で測定した。照射視野 100×100 mm², ターゲットとファントム表面までの距離は 70 cm である。ゼラチン・ファントムからとり出したガラスはただちに 60°~70°C の蒸留水でよく洗ってゼラチンをよくおとさなければならない。

東芝製ベータトロン X 線 15 MeV および 12 MeV による深部線量率を Fig. 10 に示す。

Fig. 10 Depth-dose of gelatin phantom by FD-R1-1; Betatron X-rays

またベータトロンによる 15, 10, 6 MeV の電子線の場合の深部線量率を Fig. 11 に示す。

X 線および電子線の場合ともとくに表面近くの

Fig. 11 Depth-dose of gelatin phantom by FD-R1-1; Betatron β -rays

線量がくわしく求められたことが特徴的である。

7. 結 言

以上のべたようにエネルギー依存性が小さく、fading が無視できて被曝前蛍光が著しく小さく、加工性のよい銀活性ガラスの組成および製造法を見出すことに成功した。また測定器においても著しく進歩させて、低線量域までまったくレスポンスを直線的にすることに成功した。

8×8×4.7 mm³ の大きさのガラスでは Sn 1.2 mm² をシールドに用いると ⁶⁰Co γ 線より硬 X 線 (120 kV_{eff}) までのエネルギー依存性も方向性も無視できて、30 mr が $\pm 10\%$ の精度で測定できるようになり、フィルムバッジの欠点を取り除いたものとして将来性が大きい。また 6×6×3.3 mm³ のガラスでは 50 mr が測定できてフィルムリングに代るガラスリングとして用いられる。

また 1 mm ϕ ×6 mm の棒は深部線量や細かい線量分布を測定するのにとくに適している。

以上の研究は昭和 35 年度原子力平和利用補助金によって研究したことを付記し、関係各位のご協力に感謝する次第である。

文 献

- 1) H. W. Etzel and J. H. Schulman: *J. Chem. Phys.*, 22, 1549 (1954)
- 2) Weyl, Schulman and Evans: *J. Electrochem. Soc.*, 95, 70 (1949)
- 3) J. H. Schulman, R. J. Ginther and C. C. Klick: *J.*

* 大阪市大藤野教授と共同で行なった。

- Appl. Phys.*, 22, 1479 (1951); J. H. Schulman, W. Shuscliff, R. J. Ginther and F. H. Attix: *Nucleonics*, 11, (10) 52 (1953)
- 4) 横田, 中島: 特許
- 5) 横田良助, 中島三郎, 上杉泰男: 第2回原子カシンポジウムで講演 (昭 36)
- 6) S. Kondo: *Health Physics*, 4, 21 (1961)

Low-level Dose Measurement with Newly Developed Fluoro Glass Dosimeter and the Energy Dependence

By

Ryosuke YOKOTA, Saburo NAKAJIMA and Yasuo UESUGI

(Central Research Laboratory, Tokyo Shibaura Electric Co.)

(Received July 17, 1961)

New silver-activated phosphate glass which contains large amount of Li and small amount of B has been developed.

This glass is less energy dependent, and the fading is negligibly small. It can be prepared to be very low predose.

The fluorometer has been developed with many new ideas and the response has become linear from 10 mr up to 3000 r for γ -rays by the use of low predose glass.

By using the glass of $8 \times 8 \times 4.7$ mm³, the integrated dose 30 mr for γ -rays can be measured with the accuracy of $\pm 10\%$. This glass is practically independent with the direction of the incident radiation.

By using the glass of 1 mm $\phi \times 6$ mm length rod, the depth dose measurement and field mapping can be accomplished very conveniently.