赤色ポリメチルメタクリレートによる線量測定

沢村晃子, 村井郁夫, 谷田弘明, 小澤保知

北海道大学工学部原子工学科

札幌市北区北13条西8丁目

1976年2月19日 受理

市販のポリメチルメタクリレートに ^{60}Co γ 線ならびに直線型加速器からの35MeVパルス状電子線を照射し、誘起される光学的吸収の特性を調べ線量測定に使用可能かどうかについて検討された。その結果600nm～1000nmの領域に光学的吸収が誘起され、653nmのピーク値の吸光度測定により $10^5 \sim 4 \times 10^6 \text{ rads}$ の線量測定が可能であることが示され、また35MeV電子線のビームプロフィールの測定が試みられ空間分布の測定にも合理的な結果が得られた。誘起された吸収のフェージングは653nmのピーク値で24時間以内では2%以下であり、安価でかつ簡単な線量測定の手法として、本方法が有用であることが明らかになされた。

1. まえがき

電子線加速器等の照射装置で照射実験を行なう場合、簡便に線量測定が行なわれるような線量計が望まれる。また、同時に照射位置での線量空間分布の知れることが望ましい。食品照射や放射線殺菌などの大線量の放射線照射が実用化されてきているが、そのような大線量照射施設においても同様なことが要求されるであろう。

とくに電子線加速器のように瞬間線量が極端に大きいパルス状の放射線源においては、通常の線量測定で標準的に用いられる測定器である電離箱は生成イオン対の再結合が顕著に生ずるために使用に制限を受ける。

上記の目的に適するものとしてガラス・プラスチックの着色、染料の変色を利用する固体の線量計が開発されてきた。これらの線量計はすべて集積線量のみを測定するものであるが、比較的高線量率まで線量率依存性がないこと、簡単に空間分布測定が行なえること等の大きな利点を有している。

われわれは北大大型電子線加速器を線源とし、直径1～2cm程度の空間強度の様な電子ビームを炭化水素液体に照射する実験を計画中、電子ビームの空間分布の測定を要求された。そのさい、ただちに測定結果が得られて測定結果を観察しながらビーム調整が行なえること、また、検出物質としては炭化水素系液体に類似の物質であれば線量評価のさいに都合がよい等の点が考慮された。これらのことはすでに上述した一般の照射施設における線量計に望まれる特性に加味され

て試料の選択が行なわれた。すなわち、たとえばガラスを用いることは炭化水素系液体との類似性という点で問題があり、透明ポリメチルメタクリレートの場合は線量測定に利用される、照射により誘起される光学的吸収の波長領域が紫外領域であるため、照射後ただちに目視による判定ができないことに難点があった。以上の諸点から試料として赤色ポリメチルメタクリレートが選ばれた。本報では染料の変色を利用する赤色ポリメチルメタクリレート (Polymethyl methacrylate, 以下略して PMMA と記す。) を用いた線量測定について報告する。赤色 PMMA については次のような点で他の固体線量計よりも有利であると考えられる。1) 吸光度を測定する波長領域が可視部であるため測定器 (光学的) が比較的行安価に得られる。2) 空間分布を目で見ることができるのでたとえば加速器のビーム位置を知るときに便利である。3) 組織等価に近いので保健物理学上有用である。

赤色 PMMA に関しては Imperial Chemical Industries (英国) で “Red 400” として市販されているものにつき、たとえば Whittaker¹⁾により $10^5 \sim 5 \times 10^6 \text{ rads}$ 範囲で測定可能であるという報告がなされている。また、15MeV 電子線の線量測定に使用された例が Bradshaw ら²⁾により報告されている。この製品は放射線計測用に厳密に品質管理されて製作されているものである。

わが国では住友化学工業から “Red 400” と同一スペックで製造されているものがスミベックス品番 400 として市販されている。これは放射線測定用の製品ではなく、したがって “Red 400” のような放射線測定

用としての品質管理も行われていない安価に入手できるものである。われわれはこの製品を用いて ^{60}Co γ 線の線量測定ならびに北大大型加速器の高エネルギー電子線の測定——電子線線量、空間分布の測定——を試み、実用的に使用可能かどうかについて検討した。

2. 試料

試料は PMMA に赤色の染料を加えたもので、1300 mm $\times$ 1100 mm、厚さ 2 mm の板状に形成された製品から 12 mm $\times$ 45 mm に切ったものを用いた。(電子ビームの空間分布の測定にだけ、50 mm $\times$ 50 mm の大きさのものを用いている。) 照射前の試料について吸光度の波長特性を分光器(島津 Double 40R Wide)により、標準試料部に試料を入れずに、測定した結果を Fig. 1 に実線で示す。 $\lambda < 620\text{nm}$ で吸光度が急激に増

Fig. 1 Optical absorption vs. wavelength for Sumipex 400

加し、またそれに伴って個々の試料間での吸光度のパラッキが大きくなる。Fig. 2 に任意の試料を標準とした時の他の試料との吸光度差を示す。 $\lambda > 620\text{nm}$ では吸光度差のパラッキは ~ 0.001 以下であった。

Fig. 2 Optical density differences between one and another PMMA control samples.

3. 実験結果

3.1 ^{60}Co γ 線照射

アルミニウムカプセル中に試料を入れ γ 線照射を行

なった。照射後の吸光度の波長特性が Fig. 1 に点線で示されている。1000 $\sim$ 2000 nm までは照射前後で差は現れない。600 $\sim$ 1000 nm までの間が照射により吸光度が変化する領域である。600 nm 以下では試料自身の吸光度が大きすぎて測定不能であった。照射前と照射後の吸光度変化(すなわち標準試料部に未照射試料を入れ、被測定試料部に被照射試料を入れて、両者の吸光度の差を測定する。)の波長特性には、 $\lambda = 609\text{nm}$ および $\lambda = 653\text{nm}$ にピークが観測された。同一照射点での試料間の吸光度のパラッキは $\lambda = 653\text{nm}$ のピーク位置で、吸光度が 0.1 以上では 3% 以下であった。

つぎに照射により誘起される吸光度変化の顕著な波長領域 600 $\sim$ 900 nm において種々の波長における吸光度変化と線量との関係を調べてみると Fig. 3 のようになった。吸光度差 < 0.5 において、この波長領域では波長の如何に係わらず線量と吸光度が比例することが示されている。このことは空間分布を測定するさい単色化されていない光源を有するフォトメータの使用を可能にするものである。

Fig. 3 Relation between the dose and the change in optical absorption at different wave-length.

Fig. 4 に線量と吸光度差の最大ピーク $\lambda = 653\text{nm}$ での吸光度差との関係を示す。照射点の線量率の関係で照射時間は 1 時間 $\sim$ 8 時間にわたっているがフェージングの補正はしていない。のちに述べるようにフェージングは 24 時間後で 2% 以下である。照射点の線量率の測定はフリック線量計およびラドコン(ヴィクトリーン社 Model 575A)に依った。ラドコンの測定精度は $\sim 5\%$ である。線量は水中での吸収線量で表わされているが PMMA 中での吸収線量に換算するには質量吸収係数の比 $(\mu_a/\rho)_{\text{PMMA}}/(\mu_a/\rho)_{\text{H}_2\text{O} \sim 0.97^3)}$ をかければ

よい。 $2 \times 10^5 \sim 10^6 \text{ rads}$ の間で吸光度差では $0.1 \sim 0.5$ の領域で線量と吸光度変化との間に直線性が成立していることがわかる。吸光度差 0.1 以下では測定値のバラツキが大きくなる。線量率 $0.7 \times 10^5 \sim 4 \times 10^5 \text{ rads/h}$ の範囲で照射を行なったがこの範囲内では線量率依存性は観測されなかった。

照射前後の吸光度差 O.D. と吸収線量 $D_{\text{H}_2\text{O}}$ の関係は $\lambda = 653 \text{ nm}$ で直線部では

$$\text{O.D.} = 0.48 D_{\text{H}_2\text{O}} (\text{Mrads}) - 0.03 \quad (1)$$

あるいは PMMA 中の吸収線量で表わすと

$$\text{O.D.} = 0.49 D_{\text{PMMA}} (\text{Mrads}) - 0.03 \quad (1)$$

となる。

Fig. 4 Relation between the dose and the change in optical absorption in PMMA irradiated by ^{60}Co γ -rays.

本実験で用いた試料の厚さは 2 mm であったが厚さを変えることにより線量—吸光度差の関係はつぎのようになる。試料中で厚さ方向に線量の空間分布が一樣で光学的吸収も一樣に生ずる場合、試料の厚さを d とすると、単位厚さ (1 mm) あたりの吸光度変化は (1) より

$$\frac{\text{O.D.}}{d (\text{mm})} = 0.24 D_{\text{H}_2\text{O}} - 0.015$$

あるいは,

$$D_{\text{H}_2\text{O}} = 4.2 \frac{\text{O.D.}}{d (\text{mm})} + 0.063 \quad (2)$$

となり、試料を厚くすることにより光学的測定の精度を上げることができる。

試料吸光度の照射後のフェーディングは全波長領域にわたり一樣に生ずる。フェーディングの大きさは初期の吸光度に依存し、吸光度の大きな場合はどフェーディングが小さいことが明らかになった。照射後24時間では初期吸光度差 $0.1 \sim 1.0$ につきフェーディングは 2% 以下であった。Fig. 5 に1週間後のフェーディングと初期吸光度差の関係を示す。1週間後では初期吸光度差 ~ 1.0 で $\sim 10\%$, ~ 0.1 で $\sim 30\%$ のフェーディングが観測された。また、 $\lambda = 653 \text{ nm}$ ピークの方が $\lambda = 609 \text{ nm}$ のピークより少しフェーディングが大きい。

Fig. 5 Fading of the induced optical absorption in PMMA at one week after irradiation is shown as a function of the initial optical density difference.

3.2 35MeV 電子線の測定

北大大型電子線加速器を使用しつぎのようにして照射実験を行なった。入射電子線はパルス幅 $0.5 \mu\text{sec}$, パルス繰返し 100 pps である。吸光度測定時の試料の受光面は $6 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$ なので受光面上でビーム強度が均一になるよう Al 散乱体を加速器出口に置き、試料を加速器出口より約 1 m 離して設置した。照射時のビーム電流は加速器出口附近に置かれたビームモニターおよび試料後方に設置されたファラディキャップの電流でモニターした。

まず、照射中の試料入射電流密度を $3.5 \times 10^{-8} \text{ A/cm}^2$ に保ち、照射時間を $15 \text{ sec} \sim 200 \text{ sec}$ まで変化し、入射放射線線量と吸光度変化との関係について調べた。この条件で電子線エネルギーは 35 MeV になる。

試料照射点における線量はフリッケ線量計によって測定した。このとき、 $G(\text{Fe}^{3+})$ 値は 15.7 として線量を算出したが、パルス状放射線については線量率が約 10^8 rads/sec 以上で $G(\text{Fe}^{3+})$ 値が低下することが知られているので⁴⁾ ここで算出した値は過少評価になっている可能性がある。

入射電流値からつぎのようにして線量を見積ることができる。ここで対象とするような高エネルギー電子線が比較的原子番号の小さな物質に入射する場合、さらに物質のビーム進行方向に対しての厚さが電子飛程よりも十分小さい場合、制動輻射によるエネルギー損失の吸収線量への寄与は少なく、また入射電子の物質通過中のエネルギー変化も無視できるので、物質 M における吸収線量 D_M は、

$$D_M (\text{Mrads}) = 0.1 Q_0 [\mu\text{C/cm}^2] \cdot \frac{S_M \left[\frac{\text{MeV} \cdot \text{cm}^2}{\text{g}} \right]}{\rho_M} \quad (3)$$

となる。ここで S_M は入射電子の M 中での阻止能、 ρ_M は M の密度である。 M として水をとると ($S_{\text{H}_2\text{O}}/\rho_{\text{H}_2\text{O}}$)

$=2.9\text{MeV}\cdot\text{cm}^2/\text{g}^{51}$ (電子エネルギー 35MeV として),

$$D_{\text{H}_2\text{O}}(\text{Mrads})=0.29Q_0(\mu\text{C}/\text{cm}^2) \quad (3)$$

(3)によって求められる線量とフリッケ線量計によって得られた線量は誤差の範囲内で一致した。なお、線量測定は誤差は線量計における照射体積の誤差、G値の不確定さ等により、 $\sim 8\%$ 程度と見積られる。

照射前後の吸光度差の波長特性には ^{60}Co γ 線照射時との差異は認められなかった。吸光度差の波長特性を Fig. 6 に示す。つぎに入射放射線線量と照射前後の

Fig. 6 The difference of absorption between normal PMMA and PMMA irradiated by 35 MeV electron beams.

Fig. 7 The optical density change in PMMA at 609 and 653 nm vs. incident electron dose.

吸光度差の関係を $\lambda=653\text{nm}$ および $\lambda=609\text{nm}$ のピークについて Fig. 7 に示す。 γ 線照射時と同様に吸光度差は入射線量が $\sim 1\text{Mrads}$ まで直線的に変化し、それ以上線量が増加すると吸光度変化はゆるやかになる。 $\lambda=653\text{nm}$ の曲線につき、 γ 線照射時と比較すると、両者は線量測定は誤差の範囲内で一致するとみなすことができ、電子線照射の線量率 $\sim 10\text{rads/sec}$ まで線量率効果は観測されない。

次に空間分布の測定例を示す。Fig. 8 は加速器出口で Al 板により電子線を散乱させたのち Al 製コリメータを通過した電子線の空間で電子ビーム進行方向に垂

直な面上の直径上の空間分布を示している。単色化されていないタングステンランプを光源に有するマイクロフォトメータ (ナルミ商会 NLM-8) によって測定された。使用したコリメータの形状が Fig. 8 中に図示されているが、空間分布はそれぞれのコリメータ形状に対応するような分布になっていることがわかる。二次電子の多重散乱のために空間分解能は試料の厚さに依存すると考えられるが、水中で 35MeV 電子の多重散乱による平均散乱角度が 2mm 通過後約 1.63° ⁶⁰ であることから $1\sim 2\text{cm}$ 程度の空間均一度の測定にはこの影響は無視できると考えてよい。微少な空間分布測定には、また入射電子エネルギーが低い場合はこの効果は無視できなくなり試料厚さを十分薄くすることが要求されるであろう。

Fig. 8 Two examples of the measured 35 MeV electron beam profiles. Collimators and spatial distributions of electron beams passing through each collimator are shown.

4. 結果の検討

市販の赤色 PMMA を用いて ^{60}Co γ 線ならびに電子線加速器からのパルス状電子線の線量測定を試みた。照射により誘起される試料の吸光度変化は $600\text{nm}\sim 1000\text{nm}$ の波長領域で観測され、 ^{60}Co γ 線照射の場合も電子線照射の場合も同じ吸収曲線を示した。吸収曲線は $\lambda=609\text{nm}$ と 653nm とにピークを有し、 653nm のピークの吸光度差 $< \sim 0.5$ では線量と吸光度差の間に直線性があり、線量測定に有用であることが明らかとなった。線量がさらに増加すると線量と吸光度差間の直線性は失われ、吸光度の変化は入射線量の変化に対し緩やかになるが校正曲線を作成しておけば $10^5\sim 4\times 10^6\text{rads}$ の線量の測定が可能であると考えられる。また、照射前後で吸光度変化が観測される波長範囲の全ての波長において吸光度変化は入射線量に比例し (吸光度差 < 0.5)、無単色化光源を有するフォトメータを用いることが可能であることが示され、実際 Al 製コリメータを通過した電子線のプロファイルの測定が行なわれ合理的な結果を得ることができた。

照射のフェージングは ^{60}Co 照射後の結果では $\lambda = 609, 653\text{nm}$ ピーク位置において24時間後で2%以下、一週間後で10~30%であり、 $\lambda = 609\text{nm}$ ピークの方がわずかに小さいフェージングを示している。実用的には試料の照射前の吸光度のバラツキが $\lambda < 620\text{nm}$ で大きいので653nmのピークを利用する方がよいであろう。I.C.I. “Red 400”の1%/周に比較するとフェージングは大きい照射後24時間以内に吸光度測定を行えばほとんど無視できる程度であり実用的には使用可能であろうと考えられる。

本試料について得られた結果と、本試料と同一スペックの製品といわれる“Red 400”の場合と比較すると、照射により誘起される吸光度変化の波長領域、線量測定可能範囲等においては似ているが、吸収スペクトルの形、フェージングの波長特性——“Red 400”では $6300\text{\AA} \sim 6400\text{\AA}$ に最もフェージングが小なる点²⁾が在り²⁾その値より λ が小さい方では吸光度が増加し、 λ が大きい方では減少すると報告⁷⁾されているが本試料では λ の全領域で減少する——等の点では異なっていることが示された。また、透明PMMAの場合と比べると、透明PMMAでは280~400nmの紫外領域に照射により誘起される光学的吸収のあることが知られているが⁸⁾本試料の光学的吸収の波長領域がそれとまったく違うことから、本試料の光学的吸収は赤色の染料に特有のものと考えられる。

今回の実験では厚さ2mmの試料を用いたが、試料の厚さを変えることによりもっと高精度の測定が期待される。

本報では明らかにされなかったが本試料が実用に供されるためには、さらに応答の線量率依存性、入射放射線の線質に対する依存性、また製品のバッチ間のバ

ラツキ等につき明確にされなければならないであろう。

おわりに吸光度測定のための分光器を使用させていただいた北大工学部原子工学科放射体応用講座片山明石教授ならびに田中正子氏、またマイクロフォトメータを使用させていただいた同応用電気研究所電子機器分析部門木村克美教授並びに阿知波洋次氏に感謝する。本試料に関し有益な御教示をいただいた住友化学工業富田氏に感謝する。

文 献

- 1) Whittaker, B.: *Brit. J. Radiol.*, **36**, 778 (1963)
- 2) Bradshaw, A.L. and Maysent, A.M.: *Brit. J. Radiol.*, **37**, 219 (1964)
- 3) R.D. Evans: “Radiation Dosimetry, (2nd ed.)”, vol. 1, chap. 3 H.F. Attix and W.C. Roesh (ed.), Academic Press (1968)
- 4) Thomas, J.K. and Hast, E.J.: *Rad. Res.*, **17**, 408 (1962)
- 5) H. Bichel: “Radiation Dosimetry(2nd ed.)”, vol. 1, chap. 4 H.F. Attix and W.C. Roesh (ed.), Academic Press (1968)
- 6) Birkhoff, R.D.: “Handbuch der physik (S. Flugge ed.)”, vol. 34, 92, Springer Berlin (1958)
- 7) J.F. Fowler and F.H. Attix: “Radiation Dosimetry (2nd ed.)”, vol. II, chap. 13, (F. H. Attix and W.C. Roesh ed.), 256, Academic Press (1968)
- 8) Boag, J.W., et al.: *Rad. Res.*, **9**, 589(1958)

Abstract**Radiation Dosimetry by Dyed Polymethyl Methacrylate**

Teruko SAWAMURA, Ikuo MURAI, Hiroaki TANIDA and Yasutomo OZAWA

Department of Nuclear Engineering and Science, Hokkaido University, Sapporo

A dyed polymethyl methacrylate (PMMA) called 'Sumipex 400', which is commercially available, has been irradiated by ^{60}Co γ rays and 35 MeV pulsed electron beams from a linear accelerator and the radiation-induced optical absorption has been investigated. In the irradiated dyed PMMA, increased absorption was observed in the region of 600 nm to 1000 nm. The difference between an absorption curve of normal PMMA and that of irradiated PMMA has two peaks at 609 nm and 653 nm. However absorption curves obtained by both ^{60}Co γ rays and electron beams exhibit the similar shape.

The change in optical density at 653 nm is a linear function of the dose, up to about 1 Mrads. The linearity of change in optical density for the dose is lost when the dose exceeds about 1 Mrads. But if the calibration curve is available, this technique is useful for measuring irradiation doses between 10^5 and 4×10^6 rads within 2% fading during less than 24 hours after irradiation.

This method has been also applied for measuring spatial distributions of electron beams from the linac, and reasonable results have been obtained. As a conclusion, it was experimentally shown that the radiation-induced optical absorption in the dyed PMMA had been found to be a convenient and inexpensive method of radiation dosimetry.

(Received February 19, 1976)