

ガラス線量計及びESRドシメトリーを用いる γ 線照射装置の時間依存検量線作成

中島 暉¹⁾・長田 栄二²⁾・松田 恵美子¹⁾・松田 達郎³⁾

Depiction of Time-dependent Calibration Curve for γ -Ray Irradiator Using Radiophotoluminescence and ESR Dosimetry

Akira NAKAJIMA, Eiji OSADA, Emiko MATSUDA, Tatsuro MATSUDA

Abstract

Time-dependent calibration curve for the γ -ray irradiator was prepared using radiophotoluminescence (RDPL) and ESR dosimetry. In RDPL measurement, the radiation dose was linearly increased until 38 Gy. However, above 38 Gy, it deviated upward. The ESR signal intensity of γ -irradiated L- α -alanine indicated linear in the range from 0 to 500 Gy. Though ESR signal intensity of L- α -alanine was saturated with the microwave power, the linearity of the calibration curve was reserved at any microwave power (< 5 mW). Summarizing these results, the time-dependent calibration curve was obtained using γ -irradiated L- α -alanine in the range of 0 - 500 Gy after correction by RDPL for the radiation dose below 38 Gy.

Key words:

ESR dosimetry, L- α -alanine, Radiophotoluminescence, Time-dependent calibration curve, γ -ray irradiator

1. はじめに

通常、ガンマ線照射装置は、比較的高エネルギーの γ 線を出す線源として⁶⁰Co (1173 KeV, 1332 KeV, 半減期 5.26 y) 及び¹³⁷Cs (32 KeV, 662 KeV, 半減期 30 y) が用いられる。これらの装置は長期間使用されることが多く、時間経過とともに線源の放射能が減少し、被射体の吸収線量が低下する。装置、線源の更新が容易でない場合、定期的に線源の線量

を校正しながら使用する必要がある。また、照射時間ごとの吸収線量の検量線（時間依存検量線）を広い線量範囲で求めることで、ガンマ線照射装置の多様な利用に対応することができる。

専用容器に試料を入れて照射する内部照射型装置では、複数個の試料を同時照射出来ることから、線量素子を用いる計測方法が有効である。ラジオフォトルミネッセンスを利用する蛍光ガラス線量計 (radiophotoluminescence, RDPL) は、通常、10 Gy までの低線量域の γ 線線量計測に用いられるが、10~500 Gy の線量域は高線量読取マガジンを用いれば、計測可能である¹⁾。一方、ESRドシメトリー法は高線量域の計測に適していると考えられ、L- α -アラニ

¹⁾ 医学部機能制御学講座物質科学分野

²⁾ フロンティア科学実験総合センター実験支援部門 RI 分野 RI 木花分室

³⁾ 工学部材料物理学科原子核グループ

ン^{2,4)}、ギ酸リチウム^{5,7)}などが線量素子として提案されている。L- α -アラニン⁸⁾の場合は、既定の γ 線を照射した標準照射用ペレット及び未照射試料ペレットを用いて線量測定が行なわれる。ただ、市販の標準照射 α -アラニン素子は、高価であり、また、付加的な線量増加を避けるために厳重な管理・保管が必要であることから、必ずしも簡便かつ有用な方法とはいえない。これに対して、ESR ドシメトリー法を用い、低線量領域を、RDPLで校正すれば、広い線量域での吸収線量の計測が可能と考えられる。

本報では、 γ 線照射装置の照射線量を安価且つ簡便に求めることを目途とし、L- α -アラニン、蟻酸リチウム及び歯被ばく線量計測に用いられるヒドロキシアパタイト⁸⁾について、ESR ドシメトリーの適用性を検討するとともに、最も優れた特性を示したL- α -アラニンについて、RDPLで校正することにより、低線量域から高線量域(0~500 Gy)までの広い線量域での γ 線照射装置の時間依存検量線作成を行ったので報告する。

2. 実験方法

計測に用いた試薬類、ヒドロキシアパタイト、ギ酸リチウム一水和物、L- α -アラニンは、ナカライテスク製特級試薬を用いた。各粉末の粒径は、それぞれ、0.06 ~ 0.15 mm, 0.18 ~ 0.50 mm, 0.18 ~ 0.50 mm であり、ESR 計測の際の異方性の影響は無いものと考えられた。

試料の γ 線照射は、宮崎大学フロンティア科学実験総合センター実験支援部門 RI 分野 RI 木花分室所有の γ 線照射装置 (AECL 社, Gammacell 40, 線源 Cs-137) を用いた。蛍光ガラス棒状素子 (glass rod dosimeter, GRD) を用いる RDPL による計測は、株式会社千代田テクノル及び旭テクノグラス株式会社静岡工場の協力を得ておこなった。0~10Gy は標準読取マガジンで、10~500Gy は高線量読取マガジンを用いて計測した¹⁾。ESR ドシメトリーは以下の方法

で行った。ヒドロキシアパタイト、ギ酸リチウム、L- α -アラニン粉末 (各 1 グラム) をそれぞれポリ袋に封入し、15 秒~8 時間、 γ 線を照射した。照射試料は、専用容器 (内径 30.5 cm, 深さ 10.2 cm) に配置し、試料容器格納部 (内径 33.1 cm, 深さ 12.4 cm) に挿入した。

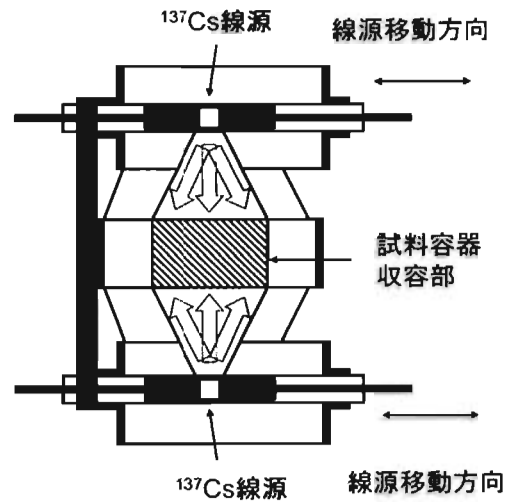


図1 γ 線照射装置 (AECL 社, Gammacell 40, 線源 Cs-137) の内部構造。

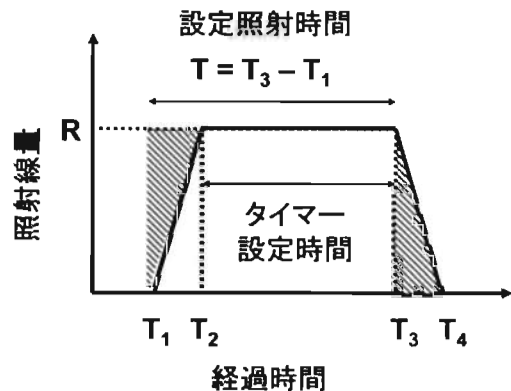


図2 タイマー設定時間と照射時間の関係。

Gammacell 40 は、図1に示すように、線源を格納部中心位置 (照射位置) まで水平移動させて照射する構造になっており、スイッチオン後の移動の間、照射線量は時間変化する⁹⁾。 γ 線照射装置のタイマーは、スイッチオン後、線源が照射位置に到達した時点でオンになり、この結果、移動中の照射線量が考慮されない。図2に示すように、移動開始後最高

値になるまでの照射線量と、スイッチオフ後0になるまでの照射線量は同じと考えられる。そこで、照射線量を正確に求めるために、ストップウォッチを用い、照射スイッチをオンにした時間を照射開始時間とし、一定時間後照射スイッチをオフにすることにより、照射時間を決定した。

一定量の照射試料を石英管（5 mm ϕ ）に充填し、電子スピン共鳴（ESR）装置（日本電子 KK, JEOL JES-TE100）で計測した。試料は、照射線量により、ESR 信号強度が大きく異なることから、線量に応じて、試料量を 50 及び 200 mg に変え、ESR 装置の信号出力が調整できる範囲で計測した。ヒドロキシアパタイト、ギ酸リチウム一水和物、L- α -アラニンについて、石英管内での試料の長さは、試料量 50 mg ではそれぞれ、7, 6, 5 mm, 試料量 200 mg で 25, 22, 20 mm となったが、いずれも、石英管中試料の中心がキャビティの中心に位置するように石英管を挿入し、試料全量をキャビティ内に装置させて計測した。また、50 及び 200 mg の試料量について、それぞれ 0.75, 1.0, 2.0 Gy の 3 点の照射量の試料を計測することにより信号強度を校正した。測定条件：マイクロ波出力 5 mW, 共鳴周波数 9.43 GHz, 磁場 335.7 mT, 磁場掃引幅 ± 5 mT, 磁場変調周波数 100 kHz, 磁場変調幅 0.32 mT, 時定数 0.1 sec. ESR スペクトルはラジカルリサーチ社製 WIN-RAD ESR Data Analyzer を用いて解析した。ESR 標準試料として、MgO にドーブした Mn^{2+} を用いた。低線量領域の計測は、40 回積算して求めた。

3. 実験結果

3.1 RDPL の時間依存検量線作成

使用する γ 線照射装置は、内部照射型で、照射専用容器を用いていることから、まず、照射線量の専用容器内位置依存性を調べた。専用容器内の 5 箇所に GRD を設置し（図 3）、1 時間 γ 線を照射しその

線量を求めたところ、(a) 53.4, (b) 52.9, (c) 52.5 (d) 53.0, (e) 53.7 Gy で、ケージ内平均 53.1 ± 0.6 Gy となり、専用容器内での位置依存性が小さく、後で述べる時間依存検量線の誤差範囲内であることがわかった。

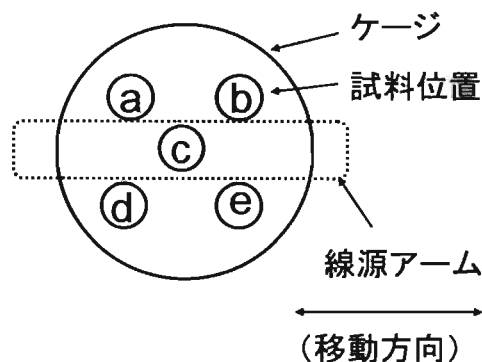


図3 専用容器の形状と試料配置

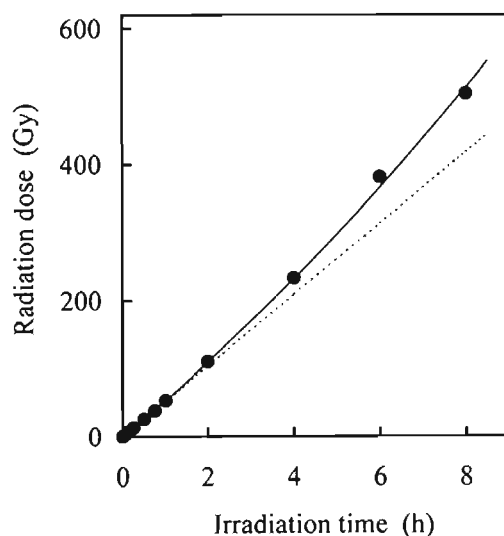


図4 蛍光ガラス線量計（RDPL）の時間依存検量線. 実線は、 $[RD] = 52.5 t \exp(0.0251 t)$ を、点線は、 $[RD] = 52.3 t$ を示す。

次に、GRD を用いた RDPL 時間依存検量線を作成した。吸収線量が 10 Gy 以下即ち照射時間 0~7.5 分の領域では、通常の読取マガジンで計測し、15 分~8 時間の領域では、高線量読取マガジンで計測した。図 4 から、照射時間 0~45 分（照射線量 0~38 Gy）の領域では、検量線は、時間に対して直線性を示し、

その勾配は 52.3 ± 0.4 Gy/h であった。荒木らは、GRD を用いた RDPL は、JARP (Japan Association of Radiation Physicist) 型線量計で校正した値に対して、30 Gy まで、直線性を示すことを報告しており¹⁰⁾、今回の結果と一致している。一方、45 分～8 時間の領域では、直線から上方にずれる傾向が認められた。これらの結果から、最も直線性の高い照射時間 0～45 分の領域のデータを用いて、ESR ドシメトリー検量線の校正を行った。

3.2 ESR ドシメトリー法による時間依存検量線作成

ESR ドシメトリー計測は、ESR 素子として利用されている L- α -アラニン²⁻⁴⁾、ESR 素子として提案されているギ酸リチウム⁵⁻⁷⁾ について行なった。また、菌 ESR ドシメトリーを視野にいれて、ヒドロキシアパタイト⁸⁾ についても計測した。

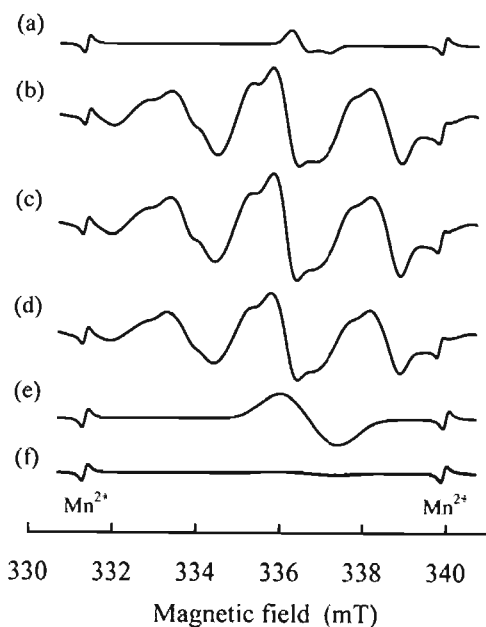


図5 γ 線照射した ESR ドシメトリー素子の ESR スペクトル. (a) ヒドロキシアパタイト, (b) L- α -アラニン, (c) D- α -アラニン, (d) DL- α -アラニン, (e) ギ酸リチウム一水和物, (f) 乾燥ギ酸リチウム.

図5に、 γ 線照射した L-, D-, DL- α -アラニン、ギ酸リチウム、ヒドロキシアパタイトの ESR スペクト

ルを示す。図5に示すように、 α -アラニンでは、L 体、D 体、DL 体で、ESR のスペクトル及び信号強度に全く差が無いことがわかった。今後の実験では、L- α -アラニンを用いた。また、ギ酸リチウムでは、乾燥させ無水物にすると、ESR の信号強度が大きく減少することがわかった。

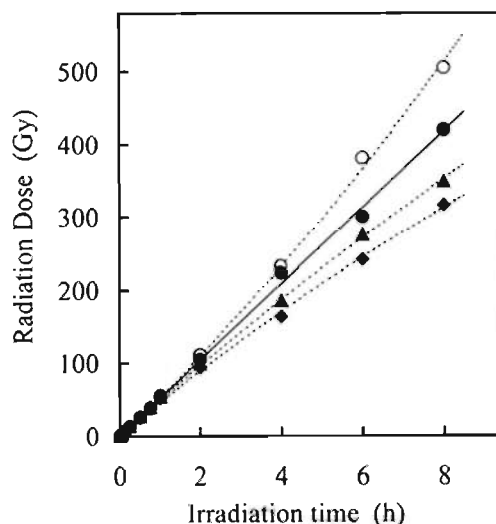


図6 ガンマ線照射 ESR ドシメトリー素子の時間依存検量線. ○ GRD, ● L- α -アラニン, ▲ ギ酸リチウム, ◆ ヒドロキシアパタイト.

ESR スペクトルの線形及び線幅について吸収線量による変化が認められなかったことから、それぞれの信号の高さから ESR 信号強度を求め、0～45 分の領域での蛍光ガラス線量計による吸収線量により校正した。校正に用いた比例定数は、一定照射線量に対する ESR 信号強度が大きいものほど小さくなり、L- α -アラニン、ギ酸リチウム、ヒドロキシアパタイトでそれぞれ、0.144, 0.325, 0.507 であった。

図6より、L- α -アラニンでは全計測時間領域で直線性がよいことがわかった。一方、ギ酸リチウム、ヒドロキシアパタイトでは、高線量領域でやや下方にずれる傾向が認められた。

3.3 ESR ドシメトリー素子の信号強度に及ぼすマイクロ波出力の影響

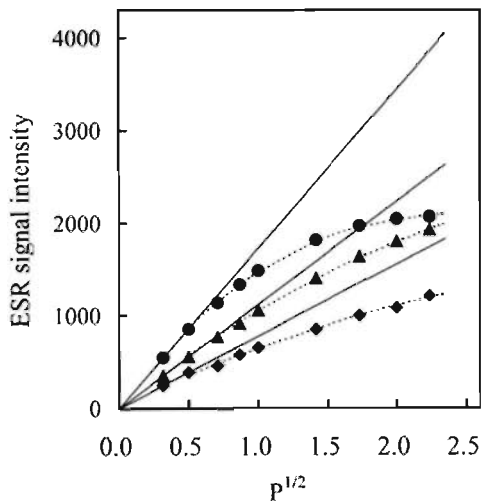


図7 γ 線照射 ESR ドシメトリー素子の ESR 信号強度に及ぼすマイクロ波出力依存性. 横軸は、マイクロ波出力 (P) の平方根を示す. ● L- α -アラニン, ▲ ギ酸リチウム, ◆ ヒドロキシアパタイト.

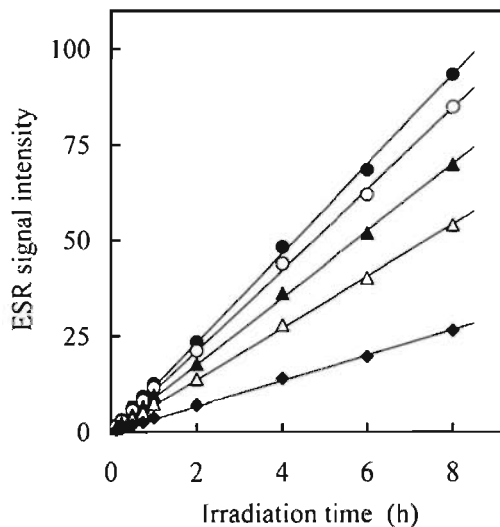


図8 ガンマ線照射 L- α -アラニンのマイクロ波出力ごとの時間依存検量線. マイクロ波出力 ● 5 mW, ○ 2 mW, ▲ 1 mW, △ 0.5 mW, ◆ 0.1 mW.

固体の ESR 計測では、溶液と異なり、マイクロ波出力を共鳴吸収した後、緩和が起こりにくいことが予想される。そこで、飽和現象を検討するために、 γ 線照射した L- α -アラニン、ギ酸リチウム、ヒドロキシアパタイトについて、マイクロ波出力を変えて

ESR 計測を行った。

L- α -アラニン、ギ酸リチウム、ヒドロキシアパタイトの ESR 信号強度は、マイクロ波出力が高くなると直線から下方にずれる。信号強度を縦軸に、マイクロ波出力の平方根を横軸にとると、図7に示すように、いずれの試料でも飽和現象を示し、L- α -アラニンが最も飽和しやすいことがわかった。飽和現象が検量線に与える影響を調べるために、各マイクロ波出力値での時間依存検量線を求めたところ、図8に示すように、いずれのマイクロ波出力値でも、時間依存検量線が直線性を示すことがわかった。

4. 考察

4.1 蛍光ガラス線量計の時間依存検量線作成

GRDを用いた時間依存検量線では、標準読取マガジンでの計測領域 (~10 Gy) つまり照射時間 0~7.5 分の領域では、直線性を示した。一方、高線量用読取マガジンでの計測値は、38 Gy (照射時間 45 分) 以上で、時間に対して指数関数的に上方にずれることがわかった。全領域にあてはまる曲線を求めたところ、 $F = A t \exp(B t)$ で表され、 $A = 52.5 \pm 1.4$ Gy/h $B = 0.0251 \pm 0.0007$ /h となった。ここで、F は吸収線量 (Gy)、t は照射時間 (h) である。標準マガジンでは、レーザー光を照射した GRD から出る蛍光を 6 mm 長で計測するが、高線量読取マガジンは蛍光読取領域をレーザー光に近い位置で 0.6 mm 長で計測する。GRD の着色によりレーザー光が光路中で減衰することから、レーザー光の減衰が小さい高線量読取マガジンでは、蛍光強度が高く出ると考えられる。

これらの結果から、GRD では、低線量領域 (0~38 Gy) つまり短時間照射 (0~45 分) については、時間依存検量線が有効であるが、高線量領域において 38 Gy 以上つまり長時間照射 (45 分以上) では、検量線は直線性を持たないことから、照射時間ごと

の照射線量の算出が容易でないことがわかった。

4.2 ESRドシメトリー法による時間依存検量線作成

図5のESRスペクトルから、 γ 線照射したギ酸リチウム、ヒドロキシアパタイトでは、ESR信号が、マンガン標準試料スペクトルの中央の2本の間に出現するが、 γ 線照射した α -アラニンでは、マンガン標準試料の信号と重なることから、標準試料による標定が行えない。しかし、現在市販されているESR装置及びデータ処理システムの性能が向上しており、長時間の測定にも非常に安定であること、マンガン標準試料による標定は測定誤差を増大させることから、むしろ、マンガン標準試料による標定を行わないほうがより精度の高い計測が行なえるものと考えられる¹¹⁾。

ギ酸リチウムでは、乾燥することでESR信号が小さくなることから、結晶水が生成ラジカルの生成或いは安定性に関与していることがわかった。ESRドシメトリー素子として利用する場合には、試料の保管・管理に注意を払う必要がある。また、Vestadらが示しているように、実験ごとに再結晶した試料を用いる方法もある⁶⁾。

Ganchevaらは、L- α -アラニンのd置換体についてESRスペクトルを解析し、 γ 線照射したL- α -アラニンには、3種類のラジカル種 $\text{CH}_3\text{C}^\bullet(\text{H})\text{COOH}$ (R1)、 $\text{H}_3\text{N}^+-\text{C}^\bullet(\text{CH}_3)\text{COO}^-$ (R2)、 $\text{H}_2\text{N}-\text{C}^\bullet(\text{CH}_3)\text{COOH}$ (R3)が生成すること、主要な2種の存在比は、R1 : R2 = 0.6 : 0.4であることを示した¹²⁾。これらは、いずれも炭素中心ラジカルであり、不対電子がカルボキシル基の π 電子と共鳴安定化することから、結晶構造や立体異性構造の影響を受けにくい。これらのことから、 α -アラニンでは、L体、D体、DL体で、ESRのスペクトル及び信号強度に差が現れないものと考えられる。

L- α -アラニンの時間依存検量線は、0から8時間の全計測時間領域(0~500Gy)で直線性がよいことがわかった。一方、ギ酸リチウム、ヒドロキシアパ

タイトでは、高線量領域でやや下方にずれる傾向が認められた。この原因として、ESR信号強度がアラニンに比して相対的に小さく、0~45分の領域での蛍光ガラス線量計による較正で系統誤差が生じたものと考えられる。

全計測時間領域で直線性がよい α -アラニンを用い、低線量領域(~38 Gy)つまり照射時間0~45分の領域で、蛍光ガラス線量計素子により得られた線量で較正することにより、有効な時間依存検量線を作成できることがわかった。

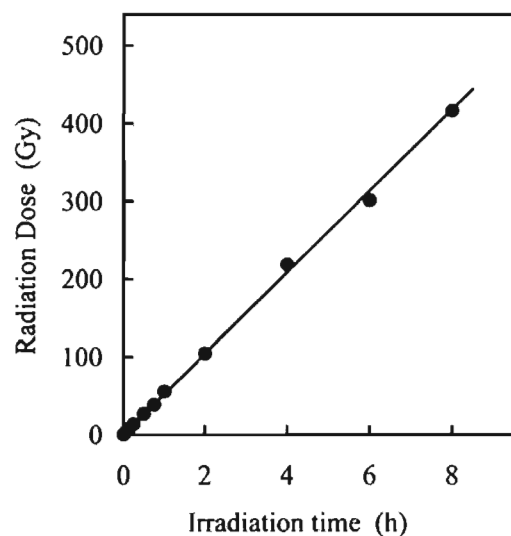


図9 GRDの計測値で較正したL- α -アラニンを用いるESRドシメトリーで作成した時間依存検量線。実線は、 $[\text{RD}] = 52.3 \text{ t}$ を示す。

4.3 信号強度飽和現象の時間依存検量線作成に及ぼす影響

L- α -アラニン、ギ酸リチウム、ヒドロキシアパタイトのESR信号強度は、マイクロ波出力に対して飽和現象を示し、L- α -アラニンが最も飽和しやすいことがわかった。ESRドシメトリーは、固体中に生じた格子欠陥(電子又は正孔)、フリーラジカルを計測するものであるが、これらは、固体結晶の特定部位に固定され、安定に存在することから、スピン緩和が起こりにくく、マイクロ波出力に対して飽和現象を示す。 γ 線照射L- α -アラニン及びギ酸リチウムの

飽和現象は、既に報告されている^{4,6)}。しかし、飽和現象が起こっていても、時間依存検量線の直線性は、損なわれないことから、ESR信号の高い条件、すなわち高いマイクロ波出力条件での計測が可能になる。

これらの結果から、ESR信号強度が最も大きいL- α -アラニンが最も有効なESR素子であることが示され、38 GyまでをGRDの計測値で校正したL- α -アラニンを用いるESRドシメトリーで、時間依存検量線を作成することにより、0~500 Gyの γ 線線量を安価で簡便に計測できることがわかった。図9に、得られた時間依存検量線([RD]=52.3 t)を示す。この検量線により、短時間照射(0~30分)では、10%以内、長時間照射(30分~8時間)では、3%以内の誤差範囲で照射線量を求めることができた。

謝辞

RDPLによる計測に際して、ご協力いただいた株式会社千代田テクノル及び旭テクノグラス株式会社静岡工場に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 蛍光ガラス線量計・小型素子システム Dose Ace 説明資料, 旭テクノグラス株式会社 (2005).
- 2) Regulla, D. F., Deffner, U., Dosimetry by ESR Spectroscopy of Alanine, *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 33, 1101-1114 (1982).
- 3) Ahlers, F. J.; Schneider, C. C. J., Alanine ESR Dosimetry : An Assessment of Peak-to-peak Evaluation, *Radiation Protection Dosimetry*, 37, 117-122 (1991).
- 4) Ciesielski, B., Wielopolski, L., The Effects of Dose and Radiation Quality on the Shape and Power Saturation of the EPR Signal in Alanine, *Radiation Research*, 140, 105-111 (1994).
- 5) Lund, A., Olsson, S., Bonora, M., Lund, E., Gustafsson, H., New materials for ESR dosimetry, *Spectrochimica Acta, A* 58, 1301-1311 (2002).
- 6) Vestad, T. A., Malinen, E., Lund, A., Hole, E. O., Sagstuen, E., EPR dosimetric properties of formates., *Applied Radiation and Isotopes*, 59, 181-188 (2003).
- 7) Lund, E., Gustafsson, H., Danilczuk, M., Sastry, M. D., Lund, A., Vestad, T. A., Malinen, E., Hole, E. O., Sagstuen, E., Formates and dithionates : sensitive EPR-dosimeter materials for radiation therapy., *Applied Radiation and Isotopes*, 62, 317-324 (2005).
- 8) Schramm, D. U., Rossi, A. M., Electron spin resonance (ESR) studies of CO₂⁻ radicals in irradiated A and B-type carbonate-containing apatites., *Applied Radiation and Isotopes*, 52, 1085-1091 (2000).
- 9) 阿部利明, 山本久夫, 法村俊之, ¹³⁷Cs ガンマ線照射装置の試料容器内線量の精密測定, *J UOEH (産業医科大学雑誌)* Vol. 21, 323-329 (1999).
- 10) 荒木不次男, 守部伸幸, 下之坊俊明, 吉浦隆雄, 池上 徹, 石戸谷達世, 学術調査研究班報告「蛍光ガラス線量計を用いたナロービームにおける線量の高度評価に関する研究班報告」, *日本放射線技術学会雑誌*, Vol. 60, No. 7, 939-947 (2004).
- 11) 中島 暉, ESRにおける標準試料, 第2回物理・化学が不得手な臨床家のためのESRセミナー, 日本酸化ストレス学会関東支部, 2007年4月21日, 川崎.
- 12) Gancheva, V., Sagstuen, E., Yordanov, N. D., Study on the EPR/dosimetric properties of some substituted alanines. *Radiation Physics and Chemistry*, 75, 329-335 (2006).