

JAERI-M
86-137

ポリスチレンを用いて成形したアラニン線量計

1986年9月

小島 拓治・田中 隆一・森田 洋右
瀬口 忠男・吉田 健三

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1986

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 日立高速印刷株式会社

ポリスチレンを用いて成形したアラニン線量計

日本原子力研究所高崎研究所開発部

小島 拓治・田中 隆一・森田 洋右・瀬口 忠男
吉田 健三

(1986年8月26日受理)

アラニン線量計は、放射線によってアラニンに生じるラジカルを電子スピニ共鳴を用いて測定し、線量測定を行う方法である。ガンマ線の広い線量範囲($2 \sim 10^5$ Gy)の高精密線量測定を行うことを目的として、ポリスチレンを用いて成形したアラニン線量計(PS-アラニン線量計)を開発した。PS-アラニン線量計は、 5×10^4 Gyまで線量に正比例し、線量応答の精度は $10^2 \sim 10^5$ Gyで±1%以内、 $5 \sim 10^2$ Gyで±2%以内であった。また、線量応答は照射中の温度にわずかに依存し、その温度係数は-40°C～+50°Cで25°Cを基準として0.29%/°Cであった。通常の保存条件下(25°C、湿度60%)では、照射後の線量応答は極めて安定しており、高温での加速試験から2%減衰する期間は4年間と推定された。

Alanine Dosimeter Molded with Polystyrene

Takuji KOJIMA, Ryūichi TANAKA, Yōsuke MORITA,
Tadao SEGUCHI and Kenzō YOSHIDA

Department of Development

Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment,
Japan Atomic Energy Research Institute
Watanuki-cho, Takasaki-shi, Gunma-ken

(Received August 26, 1986)

Alanine dosimeter is based on electron spin resonance measurement of radiation-induced free radicals in alanine. Alanine dosimeter molded with polystyrene (PS-alanine dosimeter) has been developed for precise gamma-ray dosimetry covering wide range of dose, $2\text{--}10^5$ Gy. The dose response is linear up to 5×10^4 Gy and the precision is $\pm 1\%$ for the dose range $10^2\text{--}10^5$ Gy and $\pm 2\%$ for $5\text{--}10^2$ Gy. The dose response slightly depends on temperature during irradiation and the temperature coefficient is $0.29\%/\text{°C}$ at 25°C in the range of temperature, $-40\text{°C}\sim+50\text{°C}$. Radiation-induced free radicals are very stable under the normal storage condition (25°C , relative humidity 60%) and the decay of the radicals is estimated to $2\%/4$ years by the accelerated aging at high temperature.

Keywords: Alanine Dosimeter, Gamma Radiation, Polystyrene, Precision, Temperature Coefficient, Absorbed Dose, Free Radical, Electron Spin Resonance

目 次

1. 緒 言	1
2. 実験方法	2
2.1 PS-アラニン線量計素子の製造	2
2.2 γ 線照射	2
2.3 ESR測定	2
2.4 素子の保存条件	3
3. 線量計素子の特性	4
3.1 PS-アラニン線量計素子と線量測定法	4
3.2 素子形状の均一性	5
3.3 プレドーズ	5
3.4 線量応答	6
3.5 低線量 (10^2 Gy以下)における線量応答	7
4. 線量応答に影響を与える諸因子	8
4.1 照射中の温度の影響	8
4.2 照射後の保存温度の影響	9
4.3 照射後の保存湿度の影響	9
5. 結 論	11
謝 辞	12
参考文献	12

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	2
2.1 Processing of PS-alanine Dosimeter	2
2.2 Gamma Irradiation	2
2.3 Reading by ESR	2
2.4 Storage Condition of Dosimeter	3
3. Dosimetric Characteristics	4
3.1 PS-alanine Dosimeter and Dose Reading Method	4
3.2 Size Uniformity of Dosimeter	5
3.3 Pre-dose	5
3.4 Dose Response	6
3.5 Dose Response in Lower Dose Range ($<10^2$ Gy)	7
4. Influences to Dose Response	8
4.1 Effect of Temperature During Irradiation	8
4.2 Effect of Temperature of Post-irradiation Storage	9
4.3 Effect of Humidity of Post-irradiation Storage	9
5. Conclusion	11
Acknowledgement	12
References	12

1. 緒 言

近年、放射線利用技術の進展や放射線環境下で使用される機器部品等の信頼性評価の要請にともない、線量測定技術の向上が求められている。医療用具等の放射線滅菌の工程管理では 10^4 ～ 10^5 Gy の範囲での精密で信頼性のある実用線量計が望まれており、原子炉や宇宙の放射線環境下で使用される機器部品の耐放射線性試験では、広い線量範囲にわたって安定なレスポンスをもつ線量計が望まれている。また、照射施設間の線量相互比較や郵送による線量測定サービスを目的とした高精密で安定なトランスファー線量計が求められている。

アラニンは分子量が小さいアミノ酸であるが、融点の高い結晶構造を有しており、放射線によって生成したラジカルが安定に捕捉されるので、この相対ラジカル濃度を電子スピニ共鳴（ESR）を用いて測定することによって線量測定に応用する研究が進められている。^{1~3)} 現在使用されている熱ルミネッセンス線量計やプラスチック線量計などの大線量測定用固体線量計と比較して、アラニン線量計は測定線量範囲が広いこと、照射後の線量応答の安定性が良いことなどの優れた特性をもつことが明らかにされており、また、n-γ混成場や重粒子線の線量測定への応用など幅広い放射線種に利用できる可能性が指摘されている。^{4~8)} しかし、アラニンは通常粉末状の結晶であり、そのままでは線量計として取扱いが極めて困難である。このため、これまでパラフィンやセルロースを媒体としてアラニンを成形した線量計素子が検討されてきた。^{1~8)} ところが、セルロースではセルロースに生成するラジカルや加工性等に問題があり、また、パラフィンでは高精密な線量計素子を製造することは可能であるが、素子の強度や同一の製品を大量生産することに問題があった。

本研究ではポリマーを媒体とすることによって以上の問題点を解決し、実用的なアラニン線量計素子を開発した。^{9~12)} 媒体としてのポリマーを選択すれば、ロッド状やフィルム状など種々の形態の線量計素子を均一に製造できる見通しが得られた。

本報告では、ポリマーを用いたアラニン線量計の製造および得られた線量計の特性について述べる。媒体に用いるポリマーの選択の基準は、未照射および照射後にポリマー内にはラジカルが捕捉されないこと、線量計素子の成形加工が容易であること、成形体の強度があり経時変化がないことである。十数種のゴムおよび樹脂について検討した結果、ポリエチレン、ポリスチレン、エチレン-プロピレンゴムなどが有効であったが、本報では、特に成形後の寸法精度の良いポリスチレンを媒体として用いたポリスチレン-アラニン（PS-アラニン）線量計素子の製造、低線量域から高線量域までの広い範囲にわたる線量計特性および照射後の保存条件の影響について検討した結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 PS-アラニン線量計素子の製造

アラニンは、市販の D L - α -アラニン ($H_3C \cdot CH(NH_2)COOH$) (和光純薬工業株、特級) をそのまま用いた。これをポリスチレン (PS, $+ CH(\text{CH}_2)_n$, 旭化成工業株、スタイロン 666) と重量比70:30の割合で PS の融点以上の温度で混合した後、 $3\text{ mm } \phi$ 長さ30mmのロッド状に熱プレス成形した。成形や線量計の特性の均一性を調べるため、1000素子を製造した。

2.2 γ 線照射

照射は日本原子力研究所高崎研究所コバルト照射2棟第5照射室で行い、線源には ^{60}Co 120 kCiの板状線源(大きさ $420\text{ mm} \times 300\text{ mm}$)を用いた。PS-アラニン線量計素子はアルミ製の照射台に固定して 25°C で照射した。線量率は $9.17 \times 10^2 \text{ Gy/h}$ および $9.22 \times 10^3 \text{ Gy/h}$ で照射を行った。線量は照射時間を変えることによって所定の線量を照射した。 γ 線照射における電子平衡条件を近似的に満たすように線量計素子の両側に厚さ1.5mmのガラス板を置いて照射した。

また、PS-アラニン線量計の低線量($>10^2 \text{ Gy}$ 以下)の線量応答を明らかにするため、同所 R I 工学試験棟第2照射室(^{60}Co 線源26 Ci, 大きさ $10\text{ mm } \phi \times 300\text{ mm}$)において0.25および1.00 Gy/hの線量率で同様な照射を行った。

線量率の校正は、基準の平行平板型電離箱(JTC-8)および円筒型電離箱(C-110, 60 cc)を用い、同一ジオメトリーで行った。この測定から線量計素子を固定した位置における線量率の均一度は±1%以内と見なされた。

PS-アラニン線量計の照射中の温度の影響を調べるために、恒温槽(ベッセル株製、特殊型、温度精度±1°C)中に線量計素子を入れ、所定の温度にした後照射を行った。

2.3 ESR測定

線量計素子の線量応答はESR装置(日本電子株、JEOL-FE3X、Xバンド)を用いて測定した。測定条件は、マイクロ波周波数9.5 GHz、マイクロ波出力(Power)4 mW、磁場変調幅(Modulation)100 kHzで1 mTを標準とし、 25°C で測定を行った。この測定条件ではESRスペクトルはマイクロ波による飽和現象および100 kHzの変調による線幅の広がりの現象を起こしているが、線量応答の再現性が最も良い測定条件であった。

2.4 素子の保存条件

照射後の保存温度に対する線量応答の安定性を調べる実験は、エチレンープロピレンゴムで成形したアラニン線量計（EP-アラニン線量計）およびアラニン粉末を試料として用い、オイルバスにより80～150℃の所定温度で行った。

照射後の保存湿度に対する線量応答の安定性を調べる実験では、温湿度試験器（ETAC-JLH-300型）を用い、温度は50℃および70℃、湿度は20%および80%とし、温度±1℃、湿度±3%で調節して行った。

3. 線量計素子の特性

P S を用いて成形したアラニン線量計について、 $10^2 \sim 10^5$ Gy の比較的高い線量域および $10^1 \sim 10^2$ Gy の低い線量域での高精密線量測定を目的として、素子の諸特性を検討した。

線量測定において、線量計素子そのものに由来する誤差要因として素子中のアラニンの量を規定する素子外径のばらつきと素子のプレドーズを測定した後、P S - アラニン線量計の線量応答曲線を作成した。また、同一の線量で10～20個の素子について測定した各線量での測定誤差を評価した。

本章では、P S - アラニン線量計による線量測定法および素子の特性について述べる。

3.1 P S - アラニン線量計素子と線量測定法

図1にP S - アラニン線量計素子の外観を示す。線量計素子の大きさは、線量測定時に素子を被照射体に貼付したりする際の取扱い易さと、ラジカル濃度の高精密測定のために、ERS装置の均一磁場の大きさ等を考慮して $3\text{ mm}\phi \times 30\text{ mm}$ とした。

アラニン ($\text{H}_3\text{C} \cdot \text{CH}(\text{NH}_2) \cdot \text{COOH}$) には、放射線照射によってアミノ基が脱離した $\text{H}_3\text{C} \cdot \text{CH} \cdot \text{COOH}$ のラジカルが捕捉される。このラジカルはアラニンの結晶内に捕捉されるので、空気中においても室温では極めて安定であることから、線量にはほぼ比例して蓄積される。この安定なラジカルは E S R 装置によって比較的容易に定量できることから、線量の測定に利用することができる。

図2に γ 線照射したアラニン線量計素子の E S R 一次微分スペクトルの代表例を示す。磁場掃引幅は 335 ± 1 mT である。放射線照射によってアラニン結晶に捕捉されたラジカルの濃度は、この一次微分スペクトルの 2 回積分値に対応するが、線量によってスペクトルの形が変わなければ一次微分スペクトルの中央ピーク高さに比例する。本研究では、線量によって E S R スペクトルの形状が不变であることが確認されたため、この中央ピーク高さを線量応答として用いた。E S R 強度は E S R キャビティ（空洞共振器）内の単位重量当たりのラジカル数とマイクロ波の分布によって決まるが、線量計素子の長さがそのキャビティの有効な大きさよりも十分大きいこと、後述するように素子外径のばらつきが極めて小さいことから、キャビティ内のアラニン重量は一定であり、また、マイクロ波の分布も同一の条件とみなされるので、線量計素子に捕捉されるラジカルの濃度に正比例して E S R の一次微分スペクトルのピーク高さが変化する。なお、30 kGy 以上の線量域において、実験に用いた E S R 装置では磁場変調幅が 1 mT の場合、E S R シグナルが過大となり、測定が困難であったため、0.2 mT に下げる測定を行った。

3.2 素子形状の均一性

線量測定時において、線量計素子の長さ（平均長さ 30 mm）は測定誤差要因とならないが、素子外径（平均外径 3 mm ϕ ）のばらつきは誤差要因となる。これは、ESR装置のキャビティ内の有効な大きさが 22 mm 程度であり、磁場中心に素子を置くと素子の長さは磁場の大きさより十分大きいため、素子の長さ方向の多少の差異によって磁場の影響は受けない。しかし、素子外径は磁場の大きさよりも小さいため、外径の差異すなわち有効な磁場内のアラニン量の多少により線量応答が変化する。したがって、高精密な線量測定を行うためには、素子外径が高い精度で均一なことが必要である。

本実験において製造した 1000 個の PS-アラニン線量計素子について外径の平均値とばらつきを測定し、表 1 および図 3 に示す。外径の読みは素子の中心位置における円周上の最大最小径の平均値を用いた。表 1 から線量計素子の外径は混練ロットや成形時期が異なってもほとんど変化せず、すべて 2.988 ± 0.02 mm の範囲にあった。また、外径の変動係数（平均値に対する標準偏差の割合）は 0.3 % であった。マイクロメーターによる外径の読み取り誤差は 0.4 % であることを考慮すると、線量計素子の外径の均一性は非常に良いことがわかる。また、素子外径の違いの最も大きかった 2 素子（最大の外径差 0.04 mm）において、同一線量 (10^4 Gy) 照射した時の線量応答の差は ± 1 % の範囲内であった。

3.3 プレドーズ

PS-アラニン線量計素子は、未照射時においてもすでに図 4 のような ESRスペクトルを示す。これは、照射する前にすでにアラニン結晶に少量のラジカルが存在すること、および後述するようにアラニン粉末と PS を加熱混合する際にこれらに少量のラジカルが生成することなどによる。この未照射時の ESRスペクトルの中央ピーク高さを線量に換算した値をプレドーズ^{9~11)}という。1000 個の PS-アラニン線量計素子について、プレドーズのばらつきを図 5 に示す。プレドーズは、ほとんどが 3.5 ± 1 Gy の範囲にあり、変動係数は 14 % であった。プレドーズのばらつきが素子外径のばらつきに比べ大きいのは、上述のラジカルによるスペクトルとスペクトルのベースラインの傾きが加算されたものがプレドーズとして観測されるためである。このベースラインの傾きは非常に幅広いスペクトル (100 mT) によるものであることから、アラニンと PS の混練過程において微量の金属不純物が混入したためであることが考えられる。^{9~11)}

PS-アラニン線量計素子においてプレドーズが生じる原因を調べるために、アラニン、 PS、 PS-アラニン線量計素子各々のプレドーズを測定した。アラニンのみのプレドーズは約 0.7 Gy、 PSのみでは ESR測定のノイズレベル (0.3 Gy) 以下であった。しかし、 PS-アラニン線量計素子では 3.5 Gy と両者のプレドーズの和より明らかに増加していることがわかった。このことから、アラニンと PS を混練・成形する過程でかかる機械的応力等でラジカルを生じ、これが PS-アラニン線量計素子のプレドーズとなっていると考えられる。^{9~11)}

以上のように、プレドーズの値は 3.5 ± 1 Gy の範囲にあり、 $10^2 \sim 10^5$ Gy の線量域ではこ

の値はそれぞれ 3.5 ~ 0.0035 % に相当し、 10^3 Gy 以上の線量域では測定誤差へのプレドーズの寄与は無視できる。 10^3 Gy 以下の線量域においても後述のように線量応答からプレドーズを差し引くことにより 5 Gy までの線量域の線量測定が可能なことが示された。

なお、照射前の保存中のプレドーズの変動は、室温では 6 ヶ月以上認められなかった。

3.4 線量応答

線量応答としての中央ピーク高さに対するプレドーズの影響が相対的に低い $10^2 \sim 10^5$ Gy の線量範囲について PS - アラニン線量計の線量応答を測定した。

図 6 に PS - アラニン線量計に所定の線量を照射した時の ESR スペクトルの代表例を示す。照射は、室温で線量率 9.17×10^2 Gy / h および 9.22×10^2 Gy / h で行った。ESR 測定は通常変調幅 1 mT で行ったが、 3×10^4 Gy 以上ではスペクトルが過大となるため 0.2 mT でも測定を行った。変調幅が同一であれば、 $10^2 \sim 10^5$ Gy のいずれの線量においても ESR スペクトルは同形であり再現性が良い。PS - アラニン線量計およびアラニン粉末のみを照射した場合の ESR スペクトルを比較しても 1 mT では全くの同一となる。0.2 mT では、中央ピークの形が若干変形している。しかし、このスペクトルの変形も再現性があるので、線量測定上ほとんど問題とならない。なお、PS - アラニン線量計を照射した場合、媒体に用いた PS に生じたラジカルの影響が考えられるが、PS のみを照射して得られる ESR スペクトルのピーク高さに対し 0.1 % 以下であった。^{9~12)}このことから、素子の線量応答に対する PS の照射による影響は無視できることがわかった。

PS - アラニン線量計素子について 10^2 , 10^3 , 10^4 Gy (20 素子) および 10^5 Gy (10 素子) の各線量照射した時の線量応答とそのばらつきを表 2 および表 3 に示す。線量応答のばらつきは、いずれの線量においても変動係数で表わすと約 1 % であった。このことから、 10^2 Gy 以上の線量域では、素子外径および混練・成形時期等による線量計素子製造上の相違はほとんど問題とならず、± 1 % 以内の極めて高い精密度で線量測定が可能であることが明らかとなった。また、この結果は ESR スペクトルのピーク高さの読み取り誤差も含んでおり、将来アラニン線量計専用測定器による自動読み取り方法が確立すればさらに精密度が上げられることが期待される。

PS - アラニン線量計素子の $10^2 \sim 10^5$ Gy の線量応答の平均値を吸収線量（標準物質は水）に対してプロットした結果を図 7 に示す。 10^2 Gy の結果だけはプレドーズの値を差し引いて補正した。線量応答曲線は $10^2 \sim 10^4$ Gy の線量範囲で 45° の傾きの直線となり正比例の関係にある。しかし、厳密な測定結果では 2×10^3 Gy より線量応答は 45° の直線からずれ始め、 5×10^4 Gy 以上ではそのずれは明瞭になる。 10^5 Gy 以上で曲線の傾きは低下するので精密な線量測定は難しくなる。変調幅 1 mT と 0.2 mT では線量応答の大きさは異なるが、直線の傾きは同じであった。また、線量応答の 9.17×10^2 Gy / h と 9.22×10^2 Gy / h の線量率による違いは全く認められなかった。

以上のことから、PS - アラニン線量計を用いて $10^2 \sim 10^5$ Gy の線量範囲において ± 1 % 以内で高精密な線量測定が可能であることが明らかとなった。

3.5 低線量 (10^2 Gy 以下) における線量応答

3.3で述べたように、P S -アラニン線量計では約 3.5 Gy のプレドーズがある。このため、 10^2 Gy 以下の低線量域の線量測定では線量応答に対するプレドーズの割合が相対的に大きくなり、測定誤差が大きくなる。しかしながら、プレドーズの値がほぼ一定であることから、線量応答からプレドーズの値を差し引くことによってさらに低い線量域での測定は可能である。図 8 に $0.1 \sim 10^2$ Gy の低線量域の応答曲線(a)および線量応答から各々のプレドーズを差し引くことによって補正された曲線(b)を示す。(a)の曲線はプレドーズのため $0.1 \sim 10$ Gy の範囲において、曲線の傾きが小さい、すなわち、線量に対する ESR スペクトルの中央ピーク高さの変化が急激に小さくなるのに対し、プレドーズを差し引いた曲線(b)は 2 Gy まではほぼ 45° の傾きの直線となった。線量応答のはらつきは、 $5 \sim 10^2$ Gy の線量範囲では最大値最小値間の相対誤差で $\pm 2\%$ 以内であった。しかし、2 Gy 以下ではプレドーズを差し引いても直線関係からずれるだけでなくばらつきも大きい。

以上のことから、プレドーズの補正によって、 $5 \sim 10^2$ Gy の低線量域の線量も $\pm 2\%$ 以内の精密度で測定できることがわかった。この測定誤差は $10^2 \sim 10^5$ Gy の高線量域の線量測定で求められた値 $\pm 1\%$ と比べ大差はない。このことから、前節で述べた $10^2 \sim 10^5$ Gy の高線量域の線量測定とあわせて、P S -アラニン線量計によって $5 \sim 10^5$ Gy の 5 枝の広い線量域にわたって高精密な線量測定が可能であることが明らかとなった。

4. 線量応答に影響を与える諸因子

前章で述べたように、P S - アラニン線量計は、広い線量範囲にわたって極めて高い精密度の線量測定が可能であることが明らかとなった。しかし、実際に線量計として用いる場合、線量応答として放射線照射によって生成するラジカル濃度を測定しているので、線量計素子の照射時や照射後の保存時の環境条件によって線量応答が変化する可能性が考えられる。したがって、精密度の高い線量測定を行うには、照射前後の保存および照射中の温湿度、照射線量率など線量応答に影響を与える諸因子に対し、線量計素子の諸特性を把握しておく必要がある。

また、線量応答が照射後長時間安定である、すなわち、照射後の変動の極めて少ない線量計は、低線量率での長時間照射における積算線量測定、また線量計素子を照射後特定機関に郵送して線量評価や線量測定サービスを行う、いわゆるトランスマスター線量計などの新しい応用への可能性が考えられる。このことから、照射後の素子の線量応答の経時変化および保存温湿度の影響を調べておく必要がある。この中で、すでに前章で述べたように、照射前のプレドーズの変動はほとんどないこと、また、線量率は $10^2 \sim 10^5$ Gy/h の範囲で線量応答に影響を与えないことは明らかになったので、ここでは照射中の温度の線量応答への影響および照射後の線量応答の経時変化、並びにこの時の温湿度の影響について検討した。³⁾

4.1 照射中の温度の影響

線量計素子の照射中の温度を変化させた時の線量応答を調べた。線量率40 Gy/h、温度は-40°C ~ +75°C の範囲の温度で±1°C の精度で一定に保ちつつ、6 h (2.4×10^2 Gy) ないし17 h (6.8×10^2 Gy) の照射を行った。6 h 照射の線量応答を17 h 照射に換算し、25°C の線量応答を1.0として各温度における線量応答をプロットした結果を図9に示す。線量応答は-40°C から+50°C の範囲で温度とともに直線的に増加し、温度係数は25°C を基準として 0.29% / °C となった。しかし、50°C 以上では飽和する傾向を示した。

放射線加工処理では通常室温で照射を行っており、季節等により室温が変動する場合が多い。したがって、室温付近で安定な線量応答を示す線量計が有用である。室温付近で複雑な照射温湿度依存性を示すポリメチルメタクリレート(PMMA)などのプラスチック線量計や50°C の温度で大幅な線量応答の減衰を示す熱ルミネッセンス線量計に比べて、50°C 以下では一定の温度係数をもつP S - アラニン線量計は、照射中の温度の影響を補正しやすい利点をもつ線量計であることが明らかとなった。

照射中の湿度の影響については、4.3で述べる保存湿度の影響の結果から高温高湿下で長時間の照射を行うなどの極端な場合を除いては影響はほとんどないと推定される。

4.2 照射後の保存温度の影響^{9~11)}

照射後25°C、湿度60%の条件下に保存したアラニンの線量応答（ラジカル濃度）の減衰は極めて小さい。そこで25°Cでの長時間保存時の線量応答の減衰を推定するために、より高い温度での線量応答の減衰の加速試験を行った。

10^4 Gy照射したアラニン粉末を80, 100, 120, 150°Cの温度で、および同線量照射したEP-アラニン線量計素子を80, 100°Cの温度で各々保存した時の線量応答の経時変化を調べた。各温度について、線量応答の初期値からの減衰の割合を保存温度に対してプロットした結果を図10に示す。この減衰曲線から線量応答が初期値の2%および5%減衰するまでの時間をそれぞれ求め、これらと絶対温度の逆数との関係を図11に示す。図の外挿から照射後アラニン線量計素子を25°Cで4年間保存すると初期値の2%，同じく30年間保存すると5%減衰すると推定された。なお、PS-アラニン線量計素子を用いて80, 100°Cで保存した時の線量応答の経時変化は、EP-アラニン線量計素子の場合と一致した。

線量応答（ラジカル濃度）の減衰速度は、ラジカルの初濃度すなわち吸収線量に依存することがRegulla³⁾らによって明らかにされているが、上述の 10^4 Gy照射した結果から25°Cにおける線量応答の減衰は極めて少なく、トランスマスター線量計や低線量率下で長時間の測定に用いられる積算線量計として有用であることが確かめられた。

4.3 照射後の保存温度の影響

アラニン等のアミノ酸は水に対する溶解度が大きい。このため、保存中の湿度により照射後のアラニン線量計素子の線量応答が影響を受けることが考えられる。25°Cでは湿度の影響は極めて小さいので、温度50°Cないし70°Cおよび湿度20%ないし80%の条件下で保存した時の線量応答の経時変化を調べた。 10^3 , 10^4 , 10^5 Gy照射したPS-アラニン線量計素子を温度50°Cで湿度20%および80%の条件下で保存した時の経時変化を図12(a)および(b)に示す。図(a)には、 10^5 Gy照射したPS-アラニン線量計素子を25°C、湿度60%の条件下で保存した時の経時変化もあわせて示す。さらに、(c)には 10^3 Gy照射したアラニン粉末およびPS-アラニン線量計素子を70°C、湿度20%および80%で保存した時の経時変化を示す。図12から、25°C、湿度60%の条件下では1000 h後も全く減衰が見られないが、高温かつ高湿度下に保存すると線量応答は照射後の時間とともに指数関数的に減衰することがわかる。この減衰速度は湿度が高くなるほど、また高線量照射した素子ほど大きい。しかし、これらの減衰はいずれも時間がたつとともにほぼ一定値に達する傾向を示す。したがって、湿度による減衰は素子表面近傍のアラニンラジカルのみが影響を受けたとも考えられる。このことは、アラニン粉末とPS-アラニン線量計素子の湿度の影響を比較することによっても支持される。すなわち、(c)にみられるように70°C、湿度20%では同一の減衰を示すが、湿度80%では明らかにPS-アラニン線量計素子の方が減衰が遅く、湿度が高い場合にはPSがアラニンを湿度から保護する役割を果たしていることがわかる。また、前節の図11から、 10^3 Gy照射後70°C、湿度60%の条件で保存すると500 hで5%減衰することが推定されるが、図12(c)から70°C、湿度80%では5%減衰に約10 hと減衰が速

く、温度と湿度の相乗効果があることがわかった。

以上のように、P S - アラニン線量計における保存中の線量応答の減衰は、25°C、湿度60%では極めて少ないが、温度や湿度が高くなるにつれて影響をうけることが明らかとなった。より実用的な線量計とするには、湿度による線量応答の減衰を少なくする改良が必要であろう。

5. 結 論

1000個のP S -アラニン線量計素子について、素子そのものに由来する測定誤差要因である素子外径のばらつき、プレドーズおよび線量応答について検討した。また、照射中の温度および照射後の保存温湿度が線量応答に与える影響を調べた。この結果、以下のことが明らかとなつた。

- (1) P S -アラニン線量計素子の外径は、 $2.988 \pm 0.02\text{ mm}$ であり、そのばらつきは0.3%である。外径の差異が最も大きい場合でも線量応答(10^4 Gy)の差は±1%以内であった。
- (2) P S -アラニン線量計素子のプレドーズは $3.5 \pm 1\text{ Gy}$ である。この値はアラニンおよびP Sのみのプレドーズの和より大きい。
- (3) 照射したP S -アラニン線量計のE S Rスペクトルは線量に依らず同形であり、その中央ピーク高さは $10^2 \sim 10^5\text{ Gy}$ の範囲で線量にほぼ比例する。線量応答のばらつきは $10^2 \sim 10^5\text{ Gy}$ の範囲で±1%であり、この線量域での高精密な線量測定が可能である。
- (4) 10^2 Gy 以下ではプレドーズのため測定誤差が大きくなるが、プレドーズを差し引くことによって $2 \sim 10^2\text{ Gy}$ の線量測定は可能である。 $5 \sim 10^2\text{ Gy}$ の範囲では±2%以内の測定誤差である。
- (5) 線量応答は照射中の温度が $-40^\circ\text{C} \sim +50^\circ\text{C}$ の範囲では、温度係数 $0.29\%/\text{ }^\circ\text{C}$ (25°C)で温度と共に直線的に増加し、 50°C 以上では飽和する傾向を示す。 50°C 以下においてこのように一定の温度係数をもつP S -アラニン線量計は、放射線加工処理等で用いられている複雑な照射温度依存性をもつプラスチック線量計や熱ルミネッセンス線量計と比べて、照射中の温度の影響を正確に補正できる利点をもっている。
- (6) 10^3 Gy 照射した時の線量応答は照射後 25°C 、湿度60%の条件下で保存すると4年で2%しか減衰せず、安定性が極めて良い。したがってP S -アラニン線量計はトランスマスター線量計として使用できる。
- (7) 照射後の保存温湿度による線量応答の減衰は、高温高湿度(50°C , 70°C , 湿度80%)になるほど、また高線量照射した線量計素子ほど大きく、かつ減衰速度が速い。
- (8) P S -アラニン線量計素子では、特に高湿度下においてP Sが湿度の影響からアラニンを保護する役割を果している。

以上のように、P S -アラニン線量計素子は線量計として優れた特性をもつことが明らかとなり、照射施設間の線量相互比較や郵送による線量測定サービスを目的としたトランスマスター線量計として、また放射線利用や機器部品等の耐放射線性試験などで用いる実用線量計として広い応用が期待される。今後は、より低線量域の高精密線量測定用素子や電子線・重粒子線の線量測定を目的としたフィルム状素子の開発とともに、より簡便なアラニン線量計専用測定器の開発を進めて行く予定である。

謝　　辞

本線量計素子の開発研究において、素子の製造を担当された日立電線株式会社電線研究所第四部柳生秀樹、柏崎茂、山本康彰氏に深く感謝の意を表します。

また、E S R 測定に関し御助言を頂いた日本原子力研究所高崎研究所技術開発課森下憲雄氏に厚くお礼申し上げます。

参考文献

1. W. W. Bradshaw, D. G. Cadena, E. W. Crawford and H. A. W. Spetzler
Radiat. Res. 17, 11 (1962)
2. F. Barmann, H. De Choudens, S. Decours
Advance in Physical and Biological Radiation Detectors STI/PUB/269 311
(International Atomic Energy Agency, Vienna, 1971)
3. D. F. Regulla and U. Daffner
Int. J. Appl. Radiat. Isot. 33, 1101 (1982)
4. 小島拓治, 田中隆一, 森下憲雄, 早川直宏
第31回応用物理学関係連合講演会予稿集 P.17 (1984)
5. 小島拓治, 田中隆一, 森下憲雄, 早川直宏, 鶴野正光
第21回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.6 (1984)
6. 勝村庸介, 田畠米穂, 瀬口忠男, 森下憲雄, 小島拓治
第26回放射線化学討論会講演要旨集 P.86 (1983)
7. J. W. Hansen
Riφ - R - 507
(Riφ National Laboratory, Denmark, Nov. 1984)
8. M. P. R. Waligórska, R. Katz, E. Byrski, T. Sorna, M. Rosenkiewicz-Gierula
and J. Knapczyk
Radiation Protection, Proc. Forth Sympos. on Neutron Dosimetry
EUR-7448 (Vol. 2) P.489
(Munich-Neuherberg, June 1981)
9. 小島拓治, 田中隆一, 森田洋右, 瀬口忠男
第46回応用物理学学会学術講演会予稿集 P.23 (1985)
10. 小島拓治, 田中隆一, 森田洋右, 瀬口忠男
放射線プロセスシンポジウム講演要旨集 P.9 (1985)
11. T. Kojima, R. Tanaka, Y. Morita, T. Seguchi
Int. J. Radiat. Instrum. Part A,
Appl. Radiat. Isot. 37, 517 (1986)
12. 小島拓治, 田中隆一, 森田洋右, 瀬口忠男
第23回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.80 (1986)
13. W. Snipes and P. K. Horan
Radiat. Res. 30, 307 (1967)

謝　　辞

本線量計素子の開発研究において、素子の製造を担当された日立電線株式会社電線研究所第四部柳生秀樹、柏崎茂、山本康彰氏に深く感謝の意を表します。

また、E S R 測定に関し御助言を頂いた日本原子力研究所高崎研究所技術開発課森下憲雄氏に厚くお礼申し上げます。

参考文献

1. W. W. Bradshaw, D. G. Cadena, E. W. Crawford and H. A. W. Spetzler
Radiat. Res. 17, 11 (1962)
2. F. Barmann, H. De Choudens, S. Decours
Advance in Physical and Biological Radiation Detectors STI/PUB/269 311
(International Atomic Energy Agency, Vienna, 1971)
3. D. F. Regulla and U. Deffner
Int. J. Appl. Radiat. Isot. 33, 1101 (1982)
4. 小島拓治, 田中隆一, 森下憲雄, 早川直宏
第31回応用物理学関係連合講演会予稿集 P.17 (1984)
5. 小島拓治, 田中隆一, 森下憲雄, 早川直宏, 鶴野正光
第21回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.6 (1984)
6. 勝村庸介, 田畠米穂, 瀬口忠男, 森下憲雄, 小島拓治
第26回放射線化学討論会講演要旨集 P.86 (1983)
7. J. W. Hansen
Riø - R - 507
(Riø National Laboratory, Denmark, Nov. 1984)
8. M. P. R. Waligórska, R. Katz, E. Byrski, T. Sorna, M. Rosenkiewicz-Gierula
and J. Knapczyk
Radiation Protection, Proc. Forth Sympos. on Neutron Dosimetry
EUR-7448 (Vol. 2) P.489
(Munich-Neuherberg, June 1981)
9. 小島拓治, 田中隆一, 森田洋右, 瀬口忠男
第46回応用物理学学会学術講演会予稿集 P.23 (1985)
10. 小島拓治, 田中隆一, 森田洋右, 瀬口忠男
放射線プロセスシンポジウム講演要旨集 P.9 (1985)
11. T. Kojima, R. Tanaka, Y. Morita, T. Seguchi
Int. J. Radiat. Instrum. Part A,
Appl. Radiat. Isot. 37, 517 (1986)
12. 小島拓治, 田中隆一, 森田洋右, 瀬口忠男
第23回理工学における同位元素研究発表会要旨集 P.80 (1986)
13. W. Snipes and P. K. Horan
Radiat. Res. 30, 307 (1967)

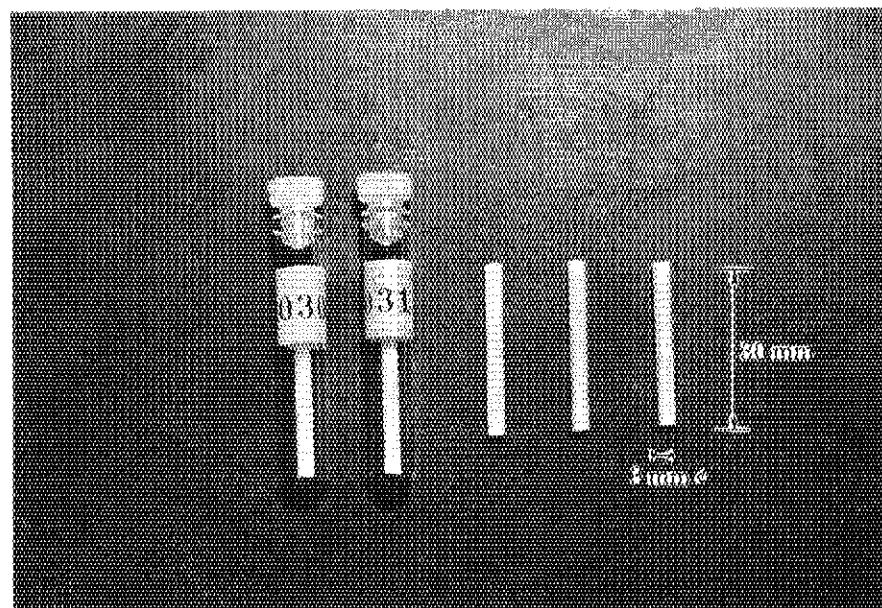


Fig. 1 Alanine dosimeter molded with polystyrene

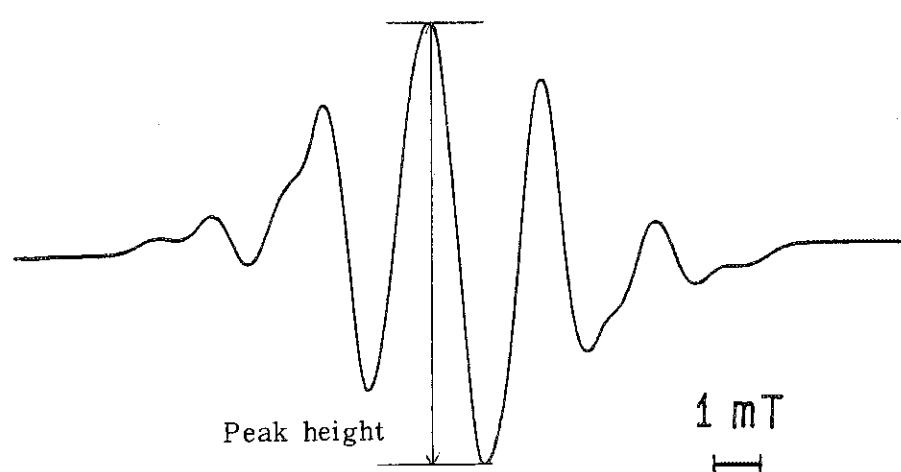


Fig. 2 Typical ESR spectrum of PS-alanine dosimeter

Dose ; 10^3 Gy
ESR measurement ;
Microwave power 4mW
Modulation 1mT (100 kHz)

Table 1 Diameter and its distribution of PS-alanine dosimeters

rot. No of mixture	Sample No	Number of Sample	Mean value of diameter (mm)	Standard deviation	Coefficients of variation
①	1 - 80	71	2,995	0.01	0.32
	81 - 160	80	2,996	0.01	0.34
	161 - 238	78	2,990	0.01	0.17
	239 - 312	73	2,991	0.01	0.33
	313 - 396	81	2,989	0.01	0.31
	397 - 490	89	2,989	0.01	0.22*
	491 - 576	80	2,987	0.01	0.22
	577 - 668	91	2,983	0.01	0.19
	669 - 744	74	2,984	0.01	0.33
	745 - 776	31	2,985	0.01	0.23
①	81 - 776	677	2,988	0.01	0.30
③	777 - 792	16	2,982	0.01	0.18
	793 - 864	72	2,985	0.01	0.22
	865 - 940	68	2,983	0.01	0.22
	941 - 1008	65	2,987	0.01	0.23
	1009 - 1041	31	2,994	0.02	0.69
③	777 - 1041	252	2,986	0.01	0.34
①, ③	1 - 1041	1000	2,988	0.01	0.32

*) Date of molding

No. 1 - 576 '85, 12

No. 576 - 1041 '86. 1

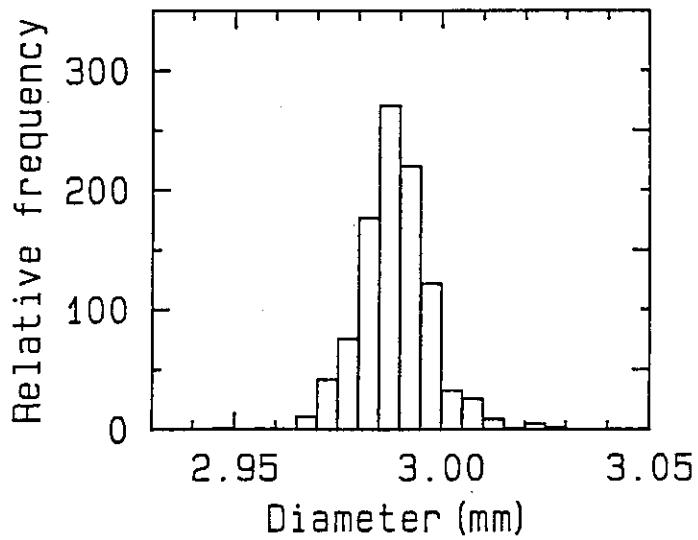


Fig. 3 Distribution of diameter of dosimeter

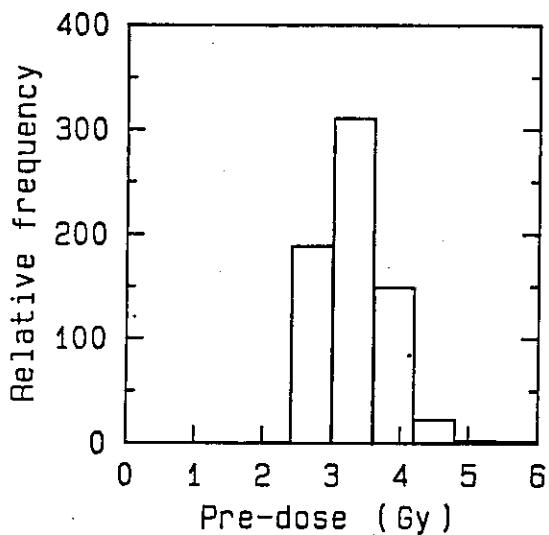


Fig. 5 Distribution of Pre-dose values
Pre-dose values are reduced from ESR readings of unirradiated dosimeters.

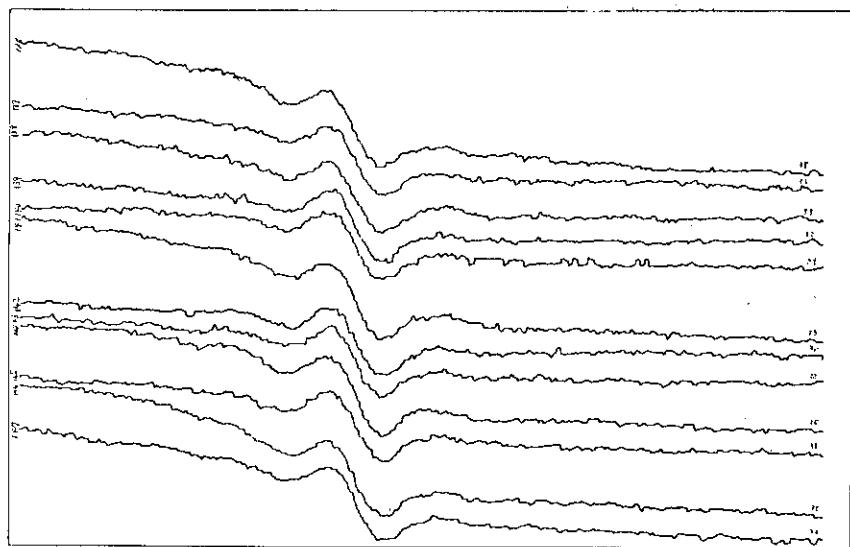


Fig. 4 ESR spectra of unirradiated P S-alanine dosimeter
Modulation 1mT (100 kHz)
 335 ± 10 mT

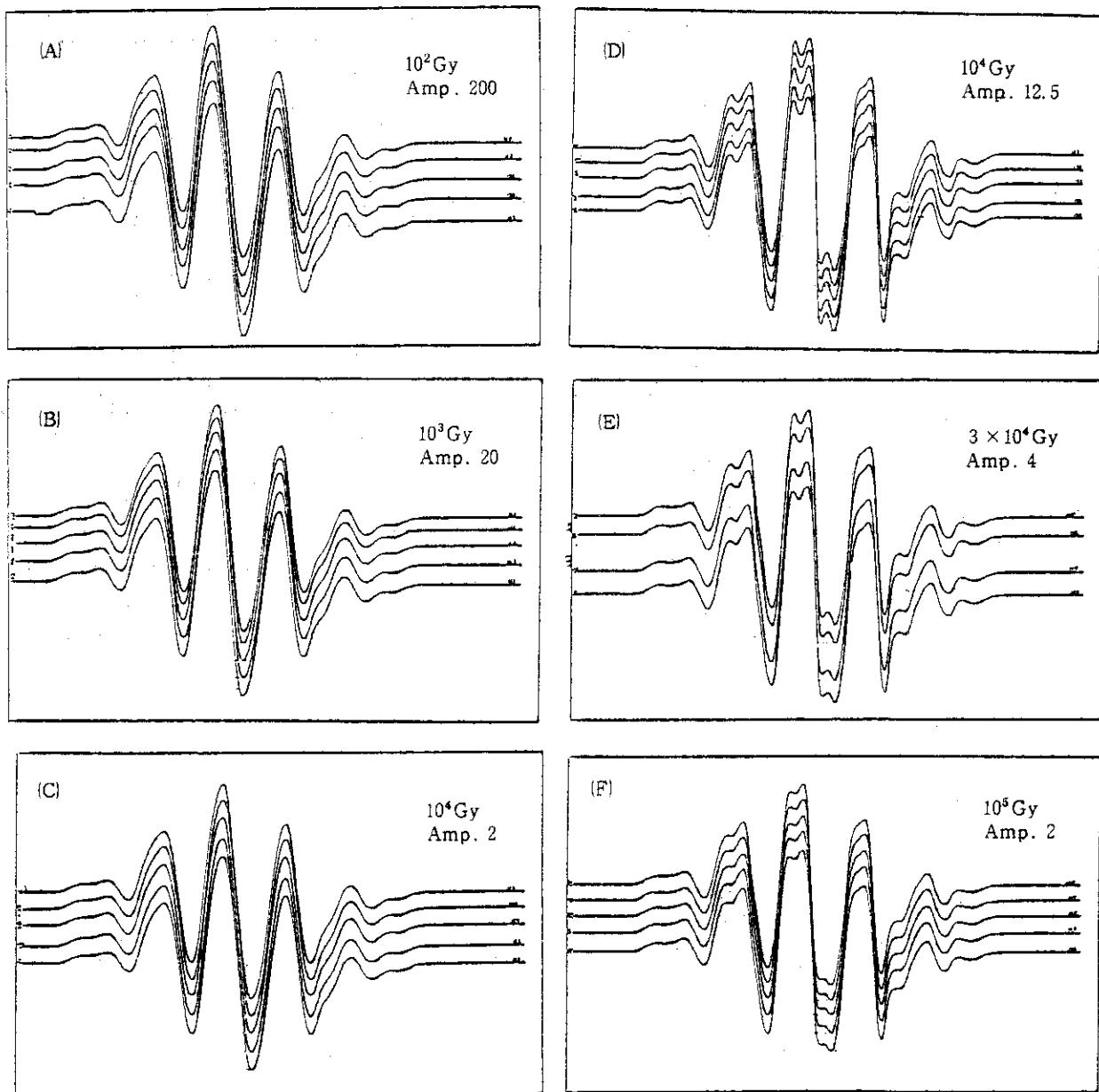


Fig. 6 ESR spectra of irradiated PS-alanine dosimeter
 (A)(B)(C) Modulation 1 mT
 (D)(E)(F) Modulation 0.2 mT

Table 2 Deviation of readings

Response Dose (Gy) Amp.	ESR peak height (mm)			
	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵
	Sample. No.	200	20	2
1	168	164	151	150**)
2	169	164	149	151
3	172	161	151	152
4	171	162	153	151
5	169	160	156	150
6	169	160	154	150
7	169	161	152	148
8	171	160	151	150
9	168	161	156	150
10	168	163	155	150
11	170	162	153	-
12	170	161	154	-
13	170	163	154	-
14	173	163	153	-
15	173	161	153	-
16	171	161	153	-
17	171	162	151	-
18	171	161	153	-
19	171	159	152	-
20	169	163	153	-
\bar{x}	170.15	161.6	152.85	150.2
σ	1.49	1.36	1.71	0.98

 \bar{x} : Mean value of readings σ : Standard deviation

*) : Modulation 0.2 mT

**) : calculated value from the data at Amp. 1.25

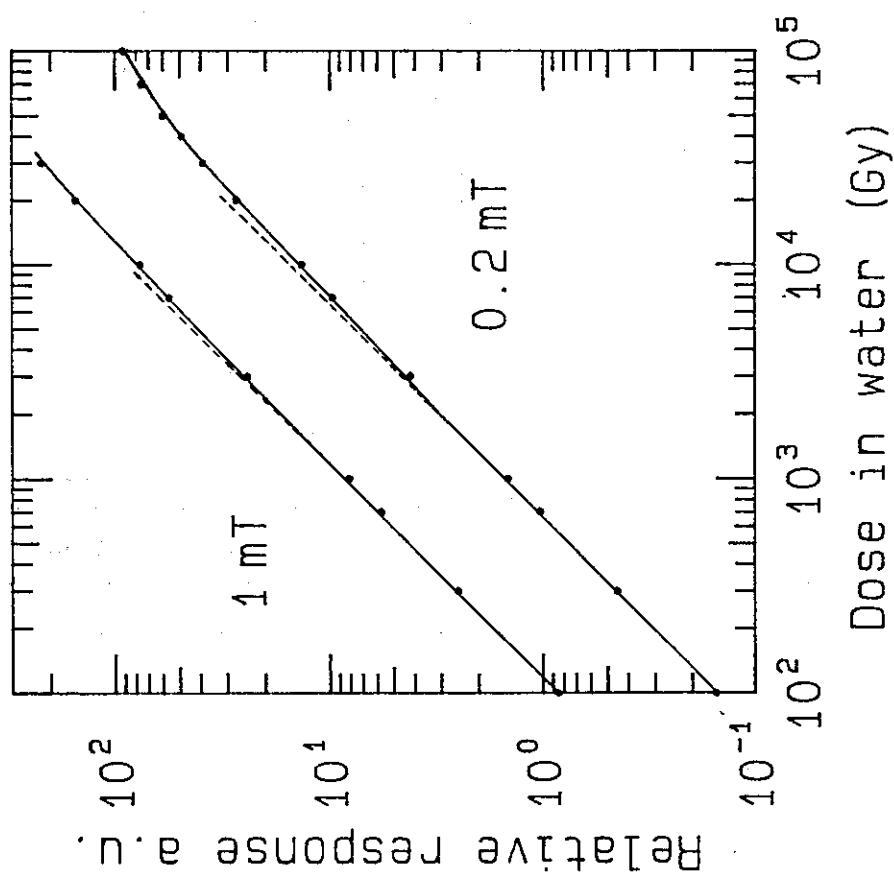


Fig. 7 The relationship between peak height of ESR spectrum and dose in water; 25°C, relative humidity 60%,
Modulation 0.2 mT
Modulation 1 mT
Dotted lines are 45° lines based on the response at 10^3 Gy.

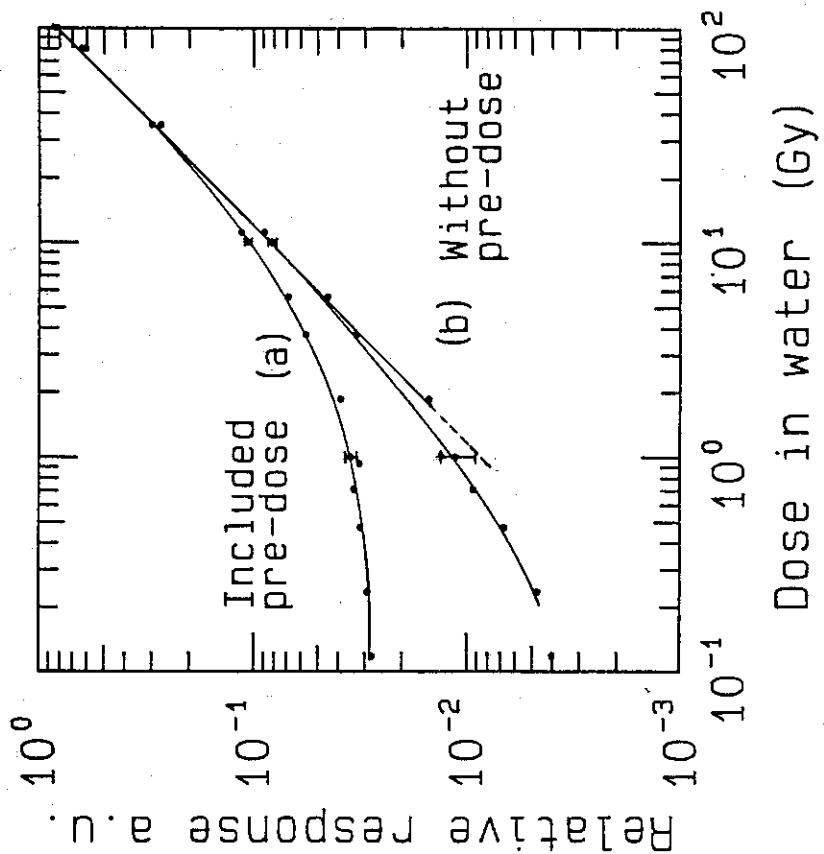


Fig. 8 The relationship between peak height of ESR spectrum and dose in water at the range of 10^{-1} to 10^2 Gy; 25°C, relative humidity 60%,
Modulation 1 mT

Table 3 Coefficients of dose-response variation

Dose (Gy)	Sample	$\sigma/\bar{X} \times 100 (\%)$
10^2	20	0.88
10^3	20	0.84
10^4	20	1.12
10^5	10	0.70*

 \bar{X} ; mean value (Modulation 1mT) σ ; standard deviation

* ; Modulation 0.2 mT

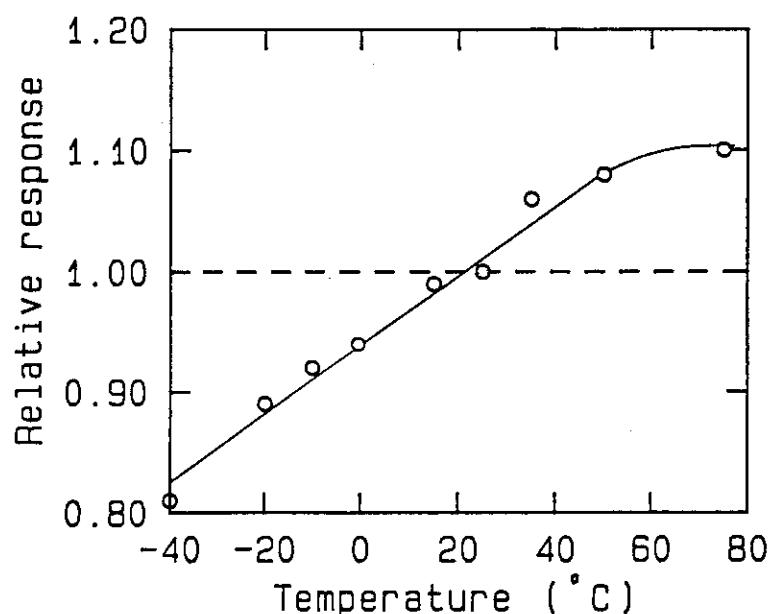


Fig. 9 Relative response at various irradiation temperature
Dose ; 680 Gy, Dose rate; 40 Gy/h

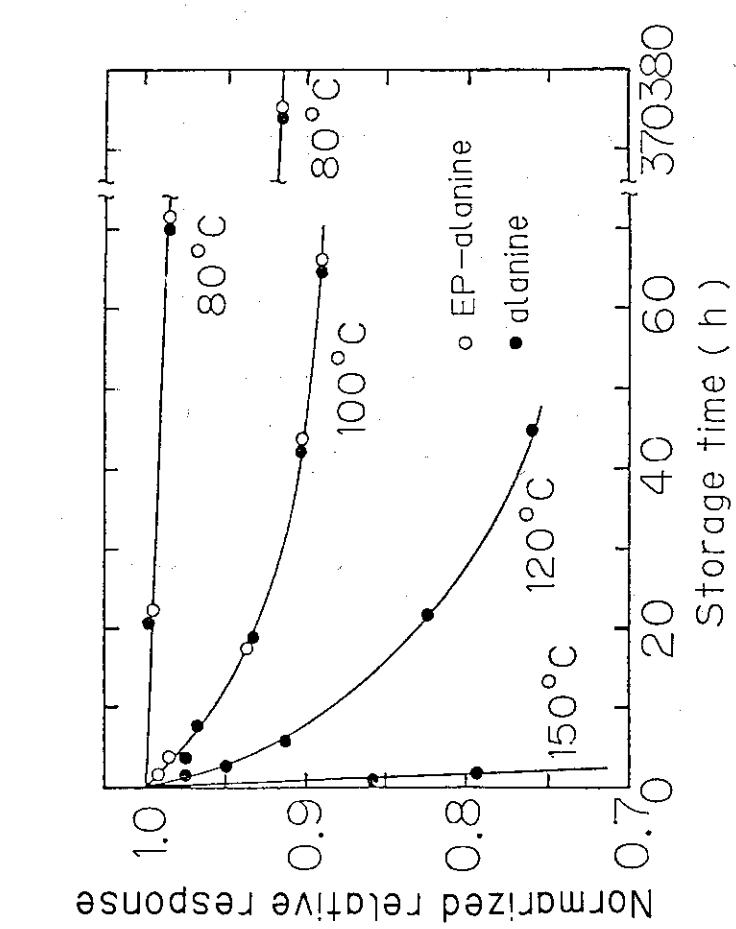


Fig. 10 Decay curves of ESR spectral peak height of irradiated EP-alanine and alanine up to 10^3 Gy
ESR measurement at 25°C

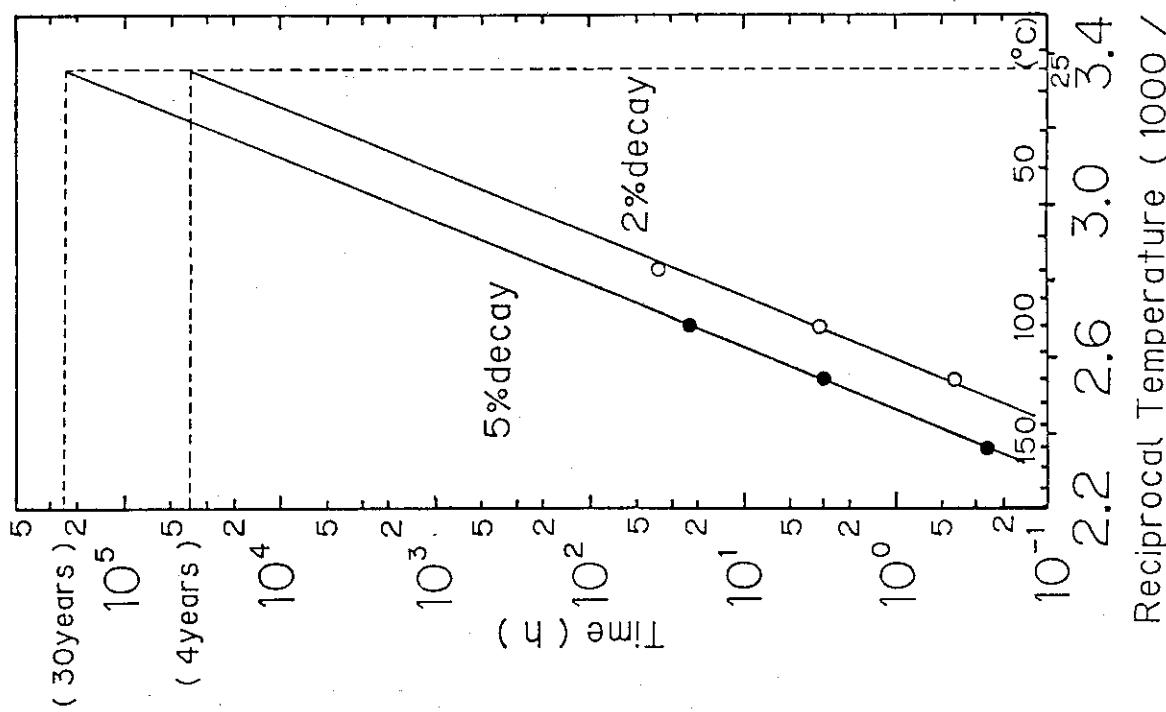


Fig. 11 Arrhenius plots of radical decay in the alanine dosimeter of Fig. 10 for two degrees of decay
Dose : 10^3 Gy

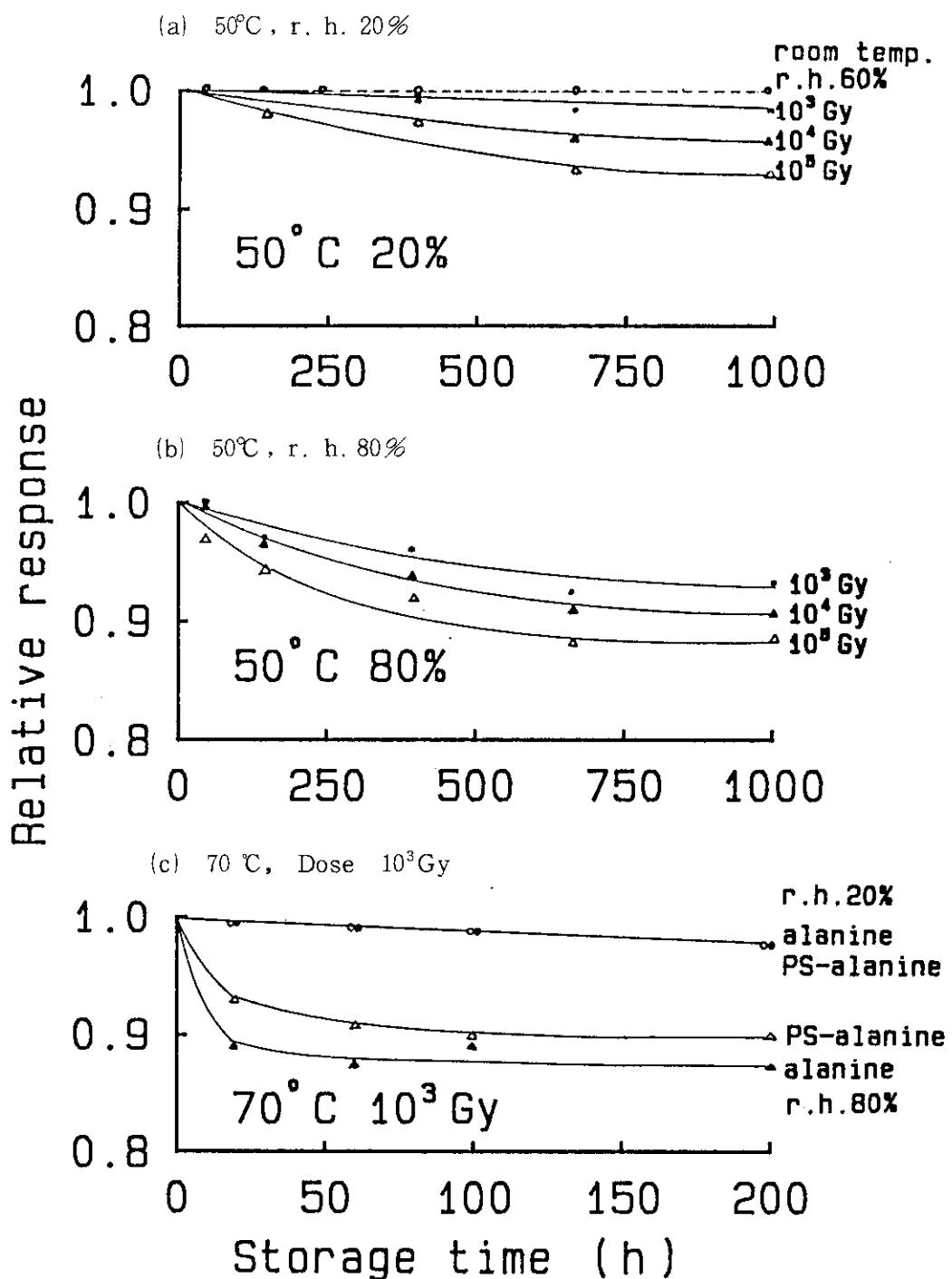


Fig. 12 Relative decrease of ESR spectral peak height irradiated up to various dose by the storage in various condition