

TLD 素子を用いた γ 線および中性子線量測定

研究開発室	村松	航*
	伴場	滋
	大島	真澄
	天野	光
	森本	隆夫

1. はじめに

現在筑波大学は、いばらき中性子医療研究センターにおいて、難治がんの治療法として期待されている中性子捕捉療法 (Boron Neutron Capture Therapy, BNCT) のため、小型陽子線加速器による高強度中性子発生技術の実証評価を進めているが、発生する中性子ビームの医療への適用性、安全性等を評価するにあたって、ビームに混在する γ 線及び高速中性子線を計測し、正常組織への余剰線量と照射範囲外への被ばく線量の解析評価を行う必要がある。

熱ルミネッセンス線量計 (TLD) は個人被ばく線量計や環境線量計として広く用いられており、医療用中性子照射場においても TLD を用いた放射線量測定が考えられるが (R. V. Griffith et al. (1979))、医療用中性子照射場は高エネルギー γ 線や熱中性子、熱外および速中性子線が混在する環境であるため、TLD が線量測定に適用可能であるかを検証するためにはこれらの放射線に対する TLD のレスポンスを確認する必要がある (石黒秀治、武田伸荘 (1982))。

本研究は、異なるエネルギー領域の γ 線や中性子線に対する TLD 素子のレスポンスを求め、実際の医療用中性子照射場での線量測定の基礎データとすることを目的として行った。

2. 実験

実験には、以下の TLD 素子を用いた。

Thermo Fisher Scientific 社製 TLD-100/100H/600/600H/700H

TLD 素子は図 1 に示すようにポリエチレン袋に個々に封入し、図 2 に示すように線源、サーベイメータを配置し、照射を行った。なお、線源-素子間距離はいずれの実験においても 10 cm に固定した。

*現所属：原電エンジニアリング株式会社

Cf-252 標準線源、Co-60 標準線源を用いて照射を行い、線量は中性子レムカウンタおよび NaI シンチレーション式サーベイメータにて測定した。



図1 ポリエチレン袋に詰めた TLD 素子

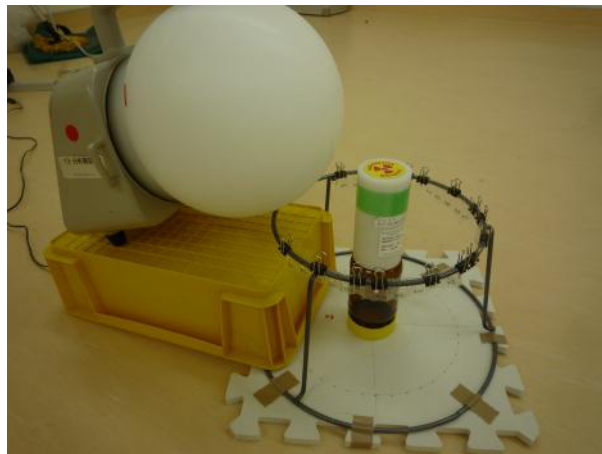


図2 照射時の線源、素子、サーベイメータの配置

(1) 5種の素子の応答性

5種の TLD に対して同条件での照射を行い、図3に示す Thermo Fisher Scientific 社製モデル 3500 手動 TLD 測定装置を用いて、そのレスポンスを調べた。照射に用いた Cf-252 線源は、2000年10月で 1MBq の表記があったことから、実験時の放射能は 0.036MBq である。また、実験に用いたレムカウンタで測定した中性子線量当量率は線源から 10 cm 離れた位置で 0.0065 mSv/h であった。



図3 モデル 3500 手動 TLD 測定装置

TLD 素子 5 種の測定によって得られたグローカーブを図 4(a)～(e)に示す。なお、横軸は時間変化、縦軸は放出光の強度、赤線は TLD 加熱温度の変化を表す。なお、この時の線量当量はレムカウンタ測定値で 1.2 mSv であった。

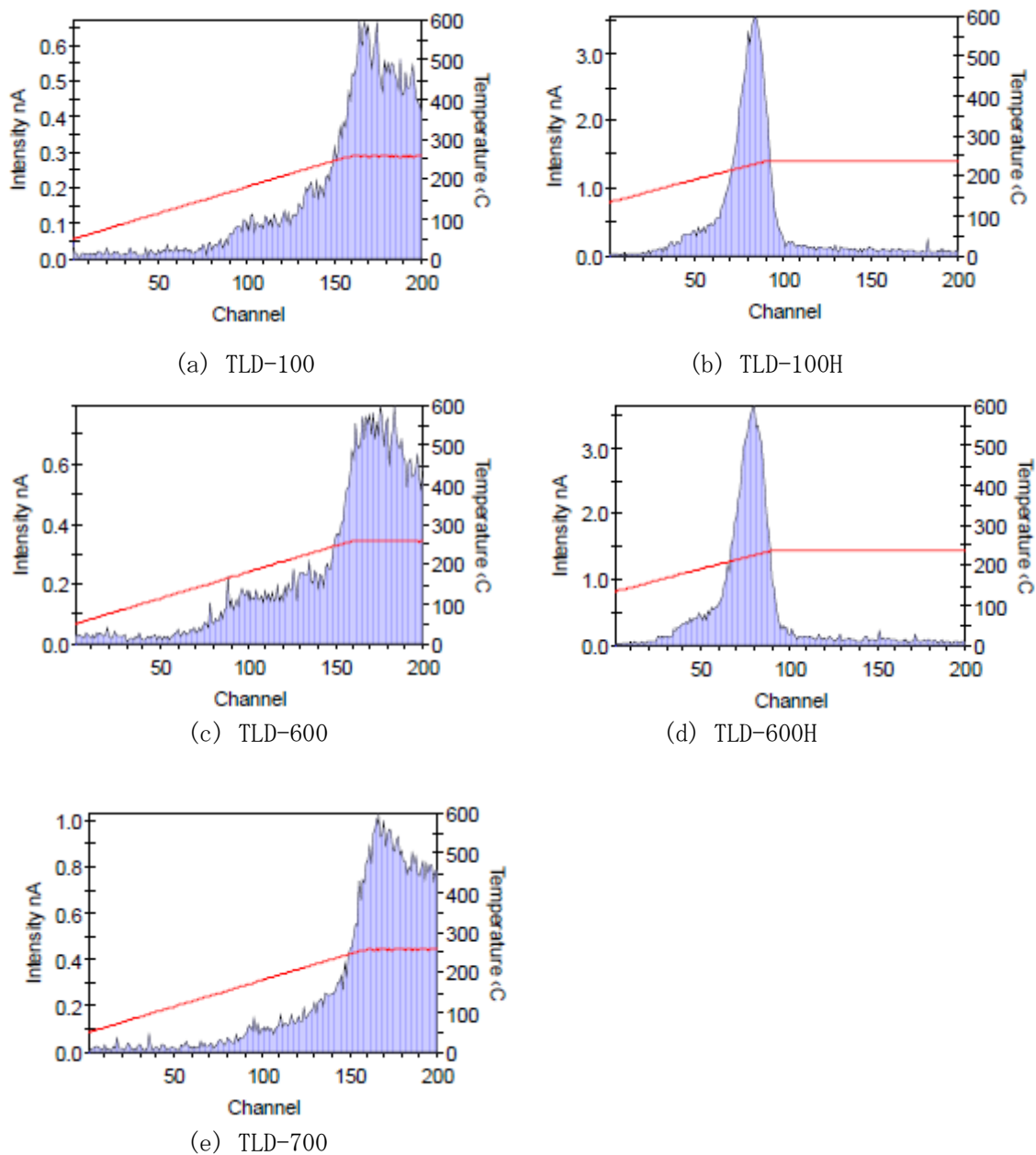


図 4(a)～(e) 5 個の TLD 素子の応答性確認結果

TLD-100H/600H では 200°C付近で有意なグローピークが確認されたが、TLD-100/600/700 については有意なグローピークは確認されなかった。これよりさらに照射時間を長くした結果、200°C付近での Intensity の増加は確認されたが、有意なピークは確認できなかった。

以上の理由により、以後の照射実験には高感度タイプである Thermo Fisher Scientific 社製 TLD-600H/700H を用いることとした。以下に素子の仕様をまとめる。

- TLD-600H ; ^6LiF : Mg, Cu, P . . . γ 線、中性子線に感度
- TLD-700H ; ^7LiF : Mg, Cu, P . . . γ 線に感度

(2) TLD-600H の線量依存性

TLD-600H について、放射線量による直線性を確認するために様々な照射時間で照射を行った。図 5 にその結果を示す。なお、横軸の線量当量については中性子レムカウンタで測定した Cf-252 由来の中性子線量当量を示しているが (BG の中性子線量は Cf-252 由来のそれと比べて、無視できるほど小さい)、グローピーク面積については、Cf-252 由来および環境放射線由来の γ 線の寄与を含む。これに関しての考察は(4)に行っている。

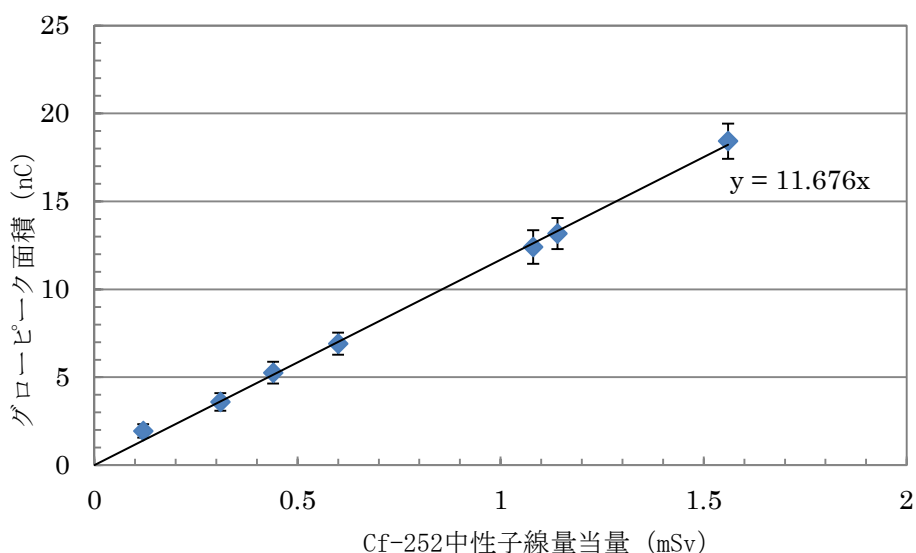


図 5 TLD-600H グローカーブ面積と Cf-252 中性子線量当量の関係

図 5 に示す通り、0.3~1.5 mSv の間で線量と TLD レスポンスの間で比例関係があることを確認できた。

(3) TLD 素子ごとのレスポンスのばらつき

(2) に示したのは 24 個の TLD-600H に対しての照射結果の平均値であるが、素子ごとのばらつきを確認するため、素子ごとの比例係数をそれぞれのグラフより読み取った。結果を表 1 に示す。なお、平均値の比例係数は図 4 に示した通り 11.676 である。

表に示した通り、比例係数には平均値と比べて最大 14.6% の違いがあった。実際に素子を線量測定に使用する場合には、素子ごとにこれらの係数をあらかじめ求めておき、TL ピ

表1 素子ごとの Cf-252 中性子線量当量ーグローピーク面積間の比例係数

素子 No.	比例係数 (nC/mSv)	素子 No.	比例係数 (nC/mSv)	素子 No.	比例係数 (nC/mSv)
600H002	11.854	600H010	11.140	600H018	11.760
600H003	11.947	600H011	10.583	600H019	12.008
600H004	12.146	600H012	11.275	600H020	11.833
600H005	11.411	600H013	9.974	600H021	11.766
600H006	11.330	600H014	11.336	600H022	12.114
600H007	11.410	600H015	11.043	600H023	12.651
600H008	12.116	600H016	11.097	600H024	12.747
600H009	11.519	600H017	11.418	600H025	11.761

ーク測定値を算出することになる。しかし、現在行っている実験では全体的な傾向を見るために、複数個の素子の平均値を考察対象としている。そのため、今後の実験においては、この中で平均値からのズレの小さいもの 10~15 個程度を用いることとした。

(4) TLD-600H の γ 線応答性

これまでの実験については線源として Cf-252 を用いていたが、この核種は中性子線のみならず γ 線も放出しているため、それぞれの TLD レスポンスへの寄与はわからない。そこで、 γ 線源である Co-60 線源を用いた照射を行い、TLD レスポンスに対する γ 線の寄与を確認した。実験に用いた NaI シンチレーション式サーベイメータで測定した線量当量率は線源から 10 cm 離れた位置で 0.00056 mSv/h であった。

図 6 に実験から得られた γ 線線量当量とグローピーク面積の関係を示す。

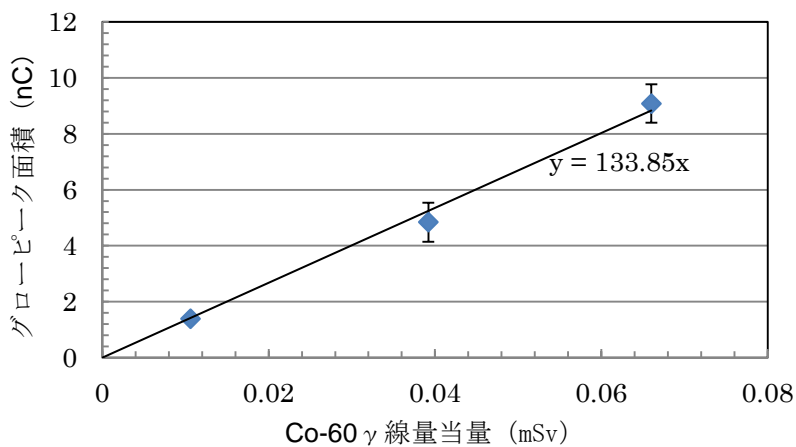


図 6 TLD-600H グローカーブ面積と Co-60 γ 線量当量の関係

Co-60 線源強度の都合上、Cf-252 中性子線量と同じオーダーでの実測比較はできなかつたが、その比例係数は 10 倍以上となった。

Cf-252 と Co-60 の γ 線エネルギーは異なるが (Co-60 ; 1MeV、Cf-252 ; 0. 1MeV)、TLD-600H の γ 線レスポンスは 0. 1~1MeV は大きく変わらないと期待されるため、この比例係数と Cf-252 照射実験の結果から TLD-600H への Cf-252 照射から得られたグローカーブについて、中性子線と γ 線それぞれの寄与分を求めた。

Cf-252 線源の γ 線量を Co-60 の測定に用いたのと同じ NaI シンチレーション式サーベイメータで測定した結果、0. 00056 mSv/h であった。これと (2) の照射時間から算出した γ 線量当量およびグローカーブへの寄与分を表 2 に、その関係を図 7 に示す。

表 2 ; Cf-252 照射時の中性子線および γ 線線量当量とグローカーブへの寄与

照射時間 hr	中性子線量当 量 (実測) mSv	γ 線線量当量 (算出) mSv	全グローカー ブ面積 (実測) nC	グローカーブ γ 線寄与分 (算出) nC	グローカーブ中 性子線寄与分 nC
23	0. 12	0. 008	1. 95	1. 02	0. 93
46	0. 31	0. 016	3. 59	2. 09	1. 50
69	0. 44	0. 024	5. 26	3. 14	2. 12
93	0. 60	0. 032	6. 91	4. 23	2. 68
166	1. 08	0. 056	12. 41	7. 55	4. 86
166	1. 14	0. 056	13. 17	7. 55	5. 62
240	1. 56	0. 082	18. 42	10. 92	7. 50

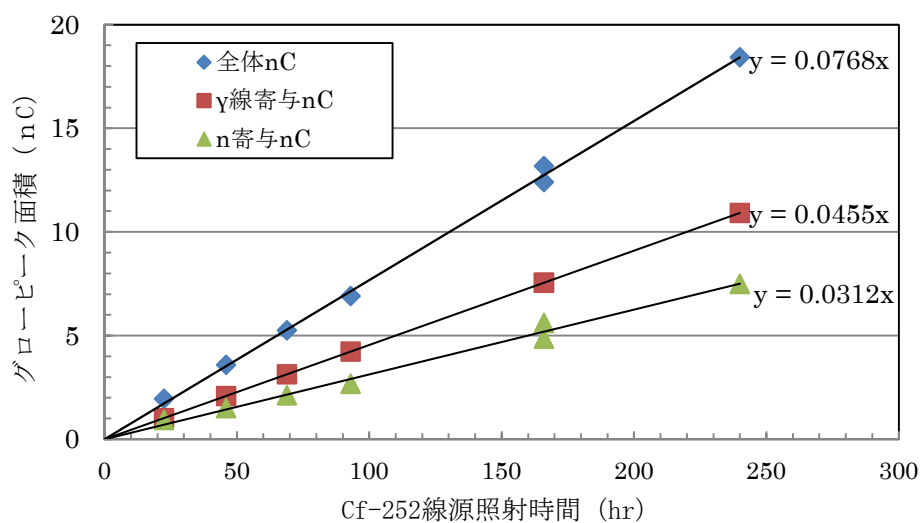


図 7 Cf-252 照射時間とグローカーブ面積の関係

図7の傾きより算出した Cf-252 中性子線及び γ 線についての線量からグローカーブへの換算係数はそれぞれ 4.80 nC/mSv、134 nC/mSv であった。

3. γ 線照射試験

保有している TLD 素子 (TLD-600H および TLD-700H) のガンマ線に対する応答を調べた。素子による違いを補正するために、2種類の素子に対し、それぞれ 15 個ずつを使用した。TLD-600H と TLD-700H 素子それぞれ 15 個ずつをアニーリング後、ポリエチレン袋に封入した。

原電事業(株)東海支社の γ 線校正場にて、Cs-137 661keV の γ 線による照射を行い、応答を調べた。照射1日後、Thermo Fisher Scientific 製モデル 3500 手動 TLD 測定装置にて測定を行った。この実験の具体的な目的は以下の通りである。

- (1) 保有している TLD 素子に対する γ 線応答の確認 (直線性、測定上限)
- (2) TLD-600H と TLD-700H の応答性の差異の確認、補正
- (3) 各 TLD 素子の応答性のばらつきの確認、補正

実験は、平成 26 年 1 月 14 日から 1 月 30 日にわたって、計 5 回行った。

表 3 原電事業(株)東海支社 γ 線校正場におけるガンマ線照射試験

	照射線量率	照射時間	照射線量
1 回目	0.50 mSv/h	6 min.	0.050 mSv
2 回目	5.0 mSv/h	6 min.	0.50 mSv
3 回目	10.0 mSv/h	6 min.	1.0 mSv
4 回目	25.0 mSv/h	12 min.	5.0 mSv
5 回目	25.0 mSv/h	24 min.	10.0 mSv

照射1日後、Thermo Fisher Scientific 社製モデル 3500 手動 TLD 測定装置にて測定を行った。例として、照射線量 1.0, 10.0 mSv の TLD レスポンスの結果を、それぞれ図 8, 9 に示す。青線はそれぞれのレスポンスを表し、赤線はそれらの平均値を表す。測定結果を図 10 にまとめた。

直線性の確認に関しては、図 10 に見られる通り、600H, 700H とともに 0.050mSv~10.0mSv の間で直線性を確認できた。同線量に対して 700H は 600H の 1.2 倍の値が得られた。

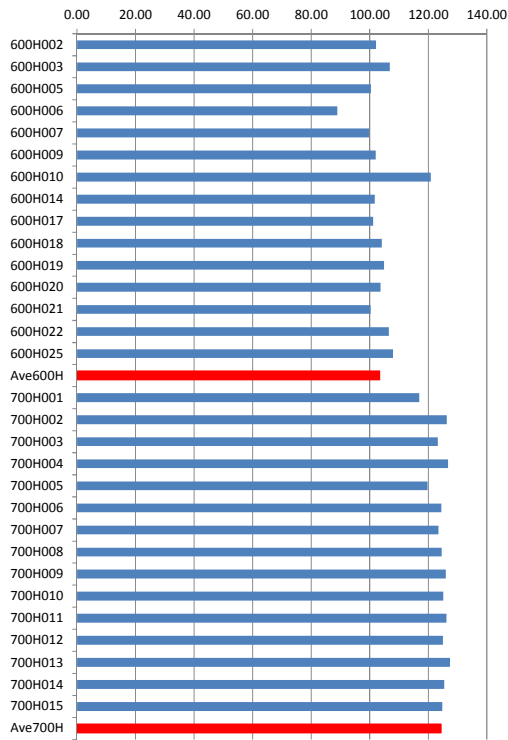


図 8 Cs-137 γ 線に対する TLD 応答の例
(照射線量 1.0 mSv)

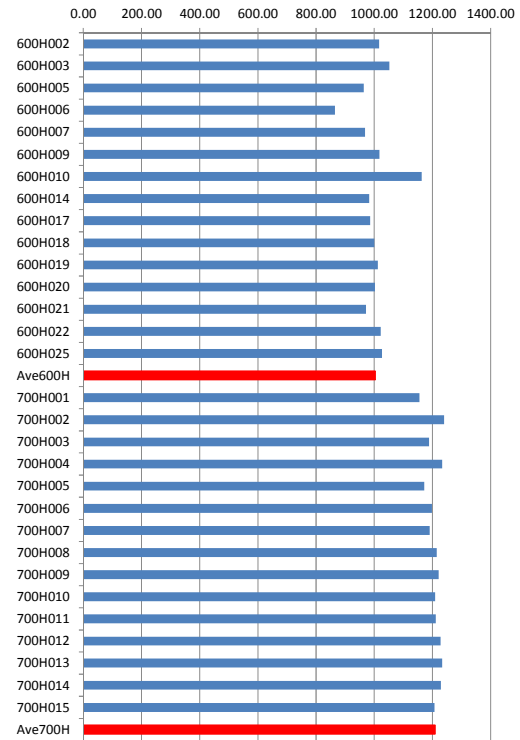


図 9 Cs-137 γ 線に対する TLD 応答の例
(照射線量 10.0 mSv)

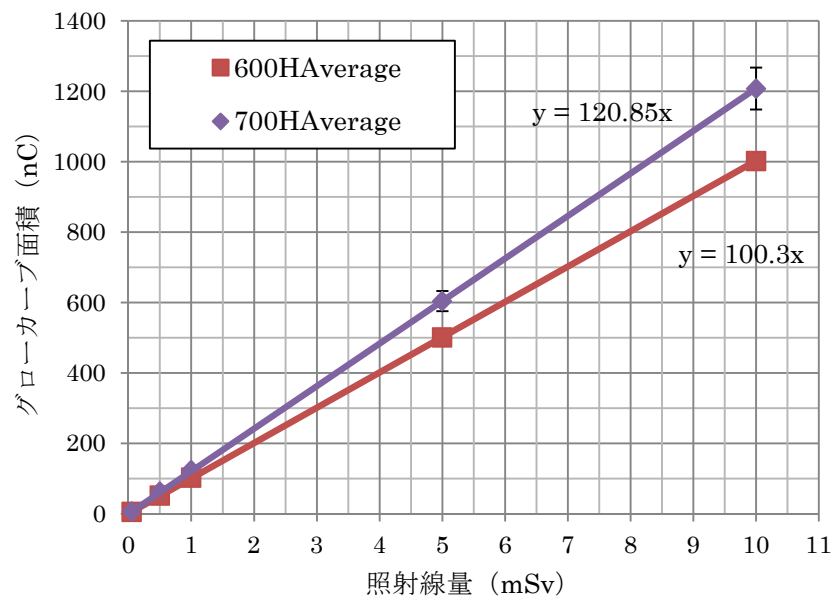


図 10 照射線量とグローカーブ面積

素子ごとのばらつきに関しては、素子ごとの照射線量とグローカーブ面積についての比例係数として、

- TLD-600H； 86.77～116.47 平均 100 nC/mSv
- TLD-700H； 115.36～124.01 平均 121 nC/mSv

が得られ、素子毎のばらつきは TLD-700H の方が TLD-600H と比較し小さかった。異なる素子で測定したとしても、補正係数を用いることで、比較が可能である。

γ 線及び中性子線に感度のある 600H の値から γ 線にのみ感度のある 700H の補正後の値を差し引くことで、中性子線量が評価可能である。

4. 中性子照射試験

保有している TLD 素子（TLD-600H および TLD-700H）の異なる中性子エネルギーに対する応答を調べた。

素子による違いを補正するために、2種類の素子に対し、それぞれ 15 個ずつを使用した。日本原子力研究開発機構放射線標準施設（FRS）において、144keV 中性子線、及び熱中性子線による照射を行い、異なる 2つの中性子エネルギーに対する応答を調べた。

4.1 144keV 中性子線照射

TLD-600H 素子につき 002-025 まで番号付けした試料 15 個、TLD-700H 素子については 001-015 まで番号付けした試料 15 個、計 30 個の試料を用いた。試料をアニーリング後、ポリエチレン袋に封入した。日本原子力研究開発機構放射線標準施設（FRS）において、144keV 中性子線による照射を行った。144keV 中性子線照射場においては、144keV 中性子線以外に、バックグラウンドとして、散乱中性子線、ビーム混在 γ 線、および散乱 γ 線が存在する。散乱中性子線、散乱 γ 線、およびビーム混在 γ 線（の一部）の影響を調べるために、Shadow Cone 有り・無しでの照射を行った。また、 γ 線の影響を調べるために、TLD-600H と TLD-700H の照射を行った。（照射条件を表 4 に示す。）

表 4 日本原子力研究開発機構放射線標準施設における照射条件

照射放射線	照射時間	線量	条件
144keV 中性子線	3800 sec	510 μ Sv	Shadow Cone 無し
144keV 中性子線	3100 sec	484 μ Sv	Shadow Cone 有り

照射 1 日後、Thermo Fisher Scientific 社製モデル 3500 手動 TLD 測定装置にて測定を行った。Shadow cone 無し、有りの条件での TLD レスポンスの結果を、それぞれ図 11, 12 に示す。青線はそれぞれのレスポンスを表し、赤線はそれらの平均値を表す。測定結果を表 5 にまとめた。

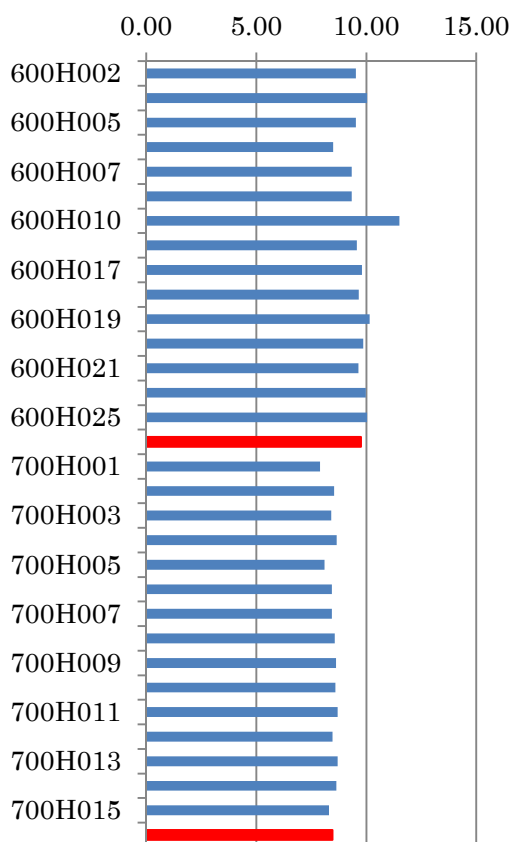


図 11 144keV 中性子線に対する TLD 応答
(Shadow Cone 無し)

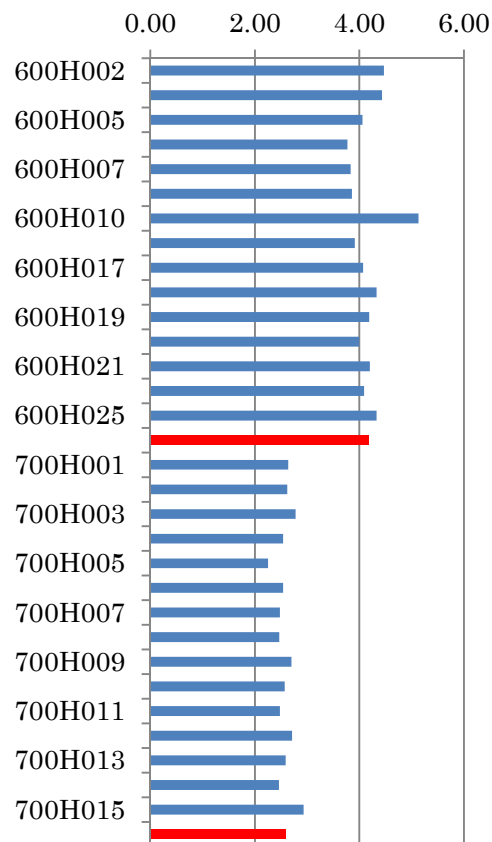


図 12 144keV 中性子線に対する TLD 応答
(Shadow Cone 有り)

表 5 144keV 中性子線に対する測定結果

	600H	700H
Shadow Cone 無し (510 μ Sv 照射)	9.76 \pm 0.61 nC \dots A 144keV 中性子線 散乱中性子線 ビーム混在 γ 線 散乱 γ 線	8.47 \pm 0.22 nC \dots B ビーム混在 γ 線 散乱 γ 線
Shadow Cone 有り (484 μ Sv 照射)	4.18 \pm 0.33 nC \dots C 散乱中性子線 ビーム混在 γ 線 (※) 散乱 γ 線	2.58 \pm 0.15 nC \dots D ビーム混在 γ 線 (※) 散乱 γ 線

(※) Shadow Cone により一部は遮蔽されている。

以上の結果から、144keV 中性子 500 μ Sv による TLD 発光値は

$$\{(A-B/1.2) \times (500/510)\} - \{(C-D/1.2) \times (500/484)\} = 0.55 \text{ nC}$$

である。よって、144keV 中性子線に対する TLD-600H の応答性定数は $0.0011 \text{ nC}/\mu\text{Sv} = 1.1 \text{ nC/mSv}$ という結果が得られた。

4.2 熱中性子線照射

144keV 中性子照射と同様に、TLD-600H 素子につき 002-025 まで番号付けした試料 15 個、TLD-700H 素子については 001-015 まで番号付けした試料 15 個、計 30 個の試料を用いた。試料をアニーリング後、ポリエチレン袋に封入した。日本原子力研究開発機構放射線標準施設 (FRS) において、熱中性子線による照射を行った。熱中性子線照射場においては、熱中性子線以外に、バックグラウンドとして、減速されていない熱外中性子線、ビーム混在 γ 線が存在する。熱外中性子線の影響を知るためには、Cd カバーが有効であるが、同時に発生する Cd と熱中性子の反応 γ 線を除去する必要がある。よって、Cd カバー有り・無し
の条件で、TLD-600H と TLD-700H の照射を行った。(照射条件を表 6 に示す。)

表 6 日本原子力研究開発機構放射線標準施設における照射条件

照射放射線	照射時間	線量	条件
熱中性子線	3.0 h	41 μ Sv	Cd カバー有り
熱中性子線	3.0 h	41 μ Sv	Cd カバー無し

照射 1 日後、Thermo Fisher Scientific 社製モデル 3500 手動 TLD 測定装置にて測定を行った。Cd カバー有り・無しの結果を、それぞれ図 13, 14 に示す。青線はそれぞれのレスポンスを表し、赤線はそれらの平均値を表す。測定結果を表 7 にまとめた。

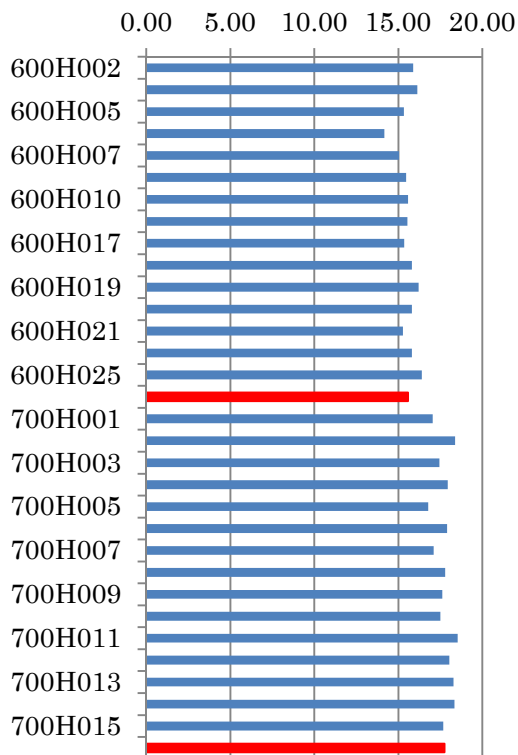


図 13 熱中性子線に対する TLD 応答
(Cd カバー有り)

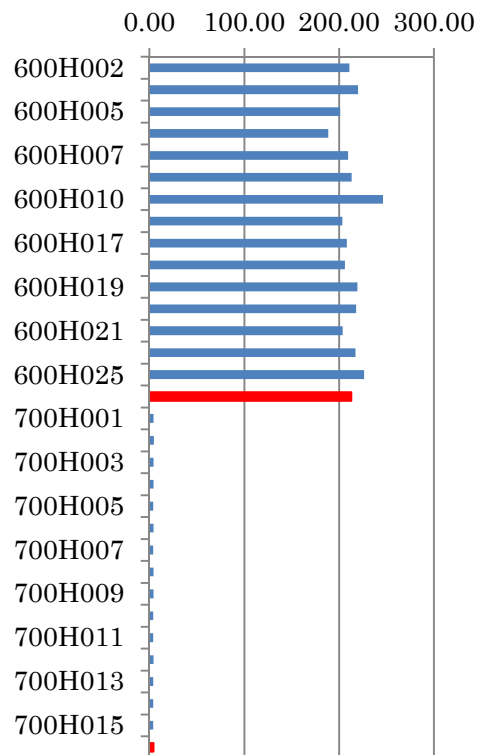


図 14 熱中性子線に対する TLD 応答
(Cd カバー無し)

表 7 熱中性子線に対する測定結果

	600H	700H
Cd カバー無 (41 μSv 照射)	212.7 ± 12.7 nC · · · E 熱中性子線 減速されていない中性子線 ビーム混在 γ 線	4.26 ± 0.20 nC · · · F ビーム混在 γ 線
Cd カバー有 (41 μSv 照射)	15.59 ± 0.52 nC · · · G 減速されていない中性子線 ビーム混在 γ 線 Cd と熱中性子の反応 γ 線	17.76 ± 0.50 nC · · · H ビーム混在 γ 線 Cd と熱中性子の反応 γ 線

以上の結果から、熱中性子 41 μSv による TLD 発光値は

$$(E - F / 1.2) - (G - H / 1.2) = 208 \text{ nC}$$

である。よって、熱中性子に対する TLD-600H の応答性定数は 5080 nC/mSv である。

5. 考 察

γ 線及び中性子線に感度のある TLD-600H の値から γ 線にのみ感度のある TLD-700H の補正後の値を差し引くことで、 γ 線量および中性子線量を独立に評価した。

TLD-600H 素子の γ 線および中性子に対する応答を調べた。Cs-137 の 661 keV γ 線、Co-60 の 1332 keV γ 線、Cf-252 の中性子線、熱中性子線、144 keV 速中性子線の応答は、各々 100, 134, 4.80, 5080, 1.1 nC/mSv であることがわかった。

TLD-600H 素子に対して、Cf-252 の中性子線、 γ 線、Co-60 の γ 線および Cs-137 の γ 線を用いた実験結果より、 γ 線に関し 0.050~10.0 mSv の線量当量範囲、また Cf-252 中性子に対して 0.3~1.5 mSv の線量当量範囲でのレスポンスの直線性が確認された。

144keV 中性子線及び熱中性子線の照射結果より、TLD-600H 素子の発光量を求め、中性子線量当たりの発光量は 144keV 中性子線において 0.0011 nC/ μ Sv、熱中性子線において 5.08 nC/ μ Sv であり、その比は約 1/4600 であることが分かった。これと直接比較できる応答関数の計算はないが、K. G. Veinot and N. E. Hertel (2005) は TLD-600 に対する応答関数をモンテカルロ輸送コード MCNP-4C を用いて計算しており、熱中性子線に対する 144keV 中性子線の応答は、約 1/90 倍であるという結果を得ている。今回の比はこれに対して、144keV 中性子線においてさらに約 1/51 となっている。この原因としては、素子の違い (TLD-600 と TLD-600H)、あるいはシミュレーション計算の精度が考えられる。

6. 結論

γ 線及び中性子線に感度のある TLD-600H の値から γ 線にのみ感度のある TLD-700H を用いることで、 γ 線量および中性子線量を独立に求めることができる。

線量率のわかっている中性子・ γ 線標準線源を用い、また原電事業(株)東海支社 γ 線校正場、日本原子力研究開発機構放射線標準施設 (FRS) を利用して、TLD-600H および TLD-700H 素子の γ 線および中性子に対する応答を調べた。Cs-137 の 661 keV γ 線、Co-60 の 1332 keV γ 線、Cf-252 の中性子線、熱中性子線、144 keV 速中性子線に対する TLD-600H の応答は、各々 100, 134, 4.80, 5080, 1.1 nC/mSv であることがわかった。

実際の BNCT 照射場では、 γ 線、熱—熱外中性子が混在しているが、TLD-600H と TLD-700H を組み合わせることで、 γ 線と中性子線量を独立に求められることが TLD の最大の特徴である。またアニールすることで、繰り返し使用できる利点もある。中性子エネルギーに関しては熱から熱外にかけて感度があることから、単独では照射場の特性評価は困難である。一方、Au などの金属箔を用いる放射化法では中性子エネルギー依存性が異なることから、両者を組み合わせることで、照射場の特性評価に資することが期待できる。今回の実験データは、そのための基礎データとして有用である。

謝辞：

本実験の γ 線および中性子照射試験の一部は、原電事業株式会社（現原電エンジニアリング株式会社）東海支社の γ 線校正場を用いて、また日本原子力研究開発機構の施設供用制度により、放射線標準施設（FRS）を用いて行われた。ご関係の皆様には深く感謝致します。

参考文献

R. V. Griffith et al., Recent developments in personnel neutron dosimeter - A review. Health Phys. 36, 235 (1979).

石黒秀治、武田伸荘「Li₂B₄O₇(Cu)素子による自動読取型個人被曝線量計の開発(II)」、保健物理 17, 27 (1982).

K. G. Veinot and N. E. Hertel, Response of Harshaw Neutron Thermoluminescence Dosimeters in Terms of the Revised ICRP/ICRU Recommendations, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 113 (2005) pp. 442-448.