

## アラニン線量計を用いた放射線加工レベルの線量標準及び 医療応用に関する調査研究

山口英俊\*

(2017年1月12日受理)

### A survey on standards for absorbed dose to water at radiation processing dose level and medical application by using alanine dosimeter

Hidetoshi YAMAGUCHI

#### Abstract

The radiation at the dose levels more than tens of gray is utilized for the industrial and agricultural fields. Typically, it is important to measure the absorbed dose to water in the radiation processing fields, e.g. sterilization of medical devices and food irradiation, etc, because these products irradiated to improper dose may have a risk of affecting human health. Alanine dosimeters have good characteristics such as signal stability, insensitivity to changes of external environment, wide dose range and water equivalent material, therefore the NMIJ has decided to develop an alanine dosimetry system for the measurement of the radiation at radiation processing dose levels. Since the alanine dosimetry system may also be used for the radiotherapy field, so the overviews of some techniques for the medical application are given in the last section.

#### 1. はじめに

1895年にレントゲンによってX線が発見されて以来、放射線の性質や有用性について多くの研究が行われ、医療分野を筆頭にその応用が進められてきた。2005年に行われた放射線利用の経済規模に関する調査<sup>1)</sup>では、当時の工業、農業、医療分野での放射線利用の経済規模は約4兆円であったと示されている。工業分野では半導体加工や放射線滅菌、高分子加工など、農業分野では食品照射や害虫駆除、突然変異育種など、医療分野ではX線による診断やCT (Computed Tomography) 撮影、放射線治療に放射線が用いられている。このように、放射線利用の分野や目的は多岐にわたる。

放射線が照射対象物質に与える効果は、物質の吸収線

量によって評価することができる。図1に吸収線量とその利用例の関係を示す。放射線治療などの医療分野や環境放射線の吸収線量域は、工業や農業分野における放射線利用の吸収線量域と比較して低線量領域にあることが分かる。医療分野では比較的低線量域ではあるが放射線と相互作用する対象が主に人体であるため、過剰に放射線が照射されてしまうと放射線障害を引き起こす可能性がある。とりわけ放射線治療では線量の制御が非常に重要であり、照射された線量が過少だった場合には、治療目的が達成されないという問題もある。そのため、放射線の人体への影響を評価・管理する必要がある。吸収線量の測定は必要不可欠である。このような理由から、かねてから当研究室では、放射線防護や医療分野の線量域の線量標準の開発・供給を主に行っている。照射対象である人体を構成する細胞の約70～80%程度が水であることから、放射線治療分野では単位質量当たりの水に

\* 分析計測標準研究部門放射線標準研究グループ

吸収されたエネルギー（水吸収線量）によって線量評価が行われており、当研究グループでは<sup>60</sup>Coのγ線やリニアックからの光子線に対する水吸収線量標準を確立している<sup>4),5)</sup>。

一方で、放射線の工業利用や農業利用においては、照射対象は人体ではなく農作物や工業製品であるが、線量測定が重要となる場合がある。ここでは、医療機器の滅菌と食品照射の二つの例について説明する。

医療機器の滅菌は放射線の致死効果を利用している。放射線が照射されることによりDNAが損傷し、この損傷から回復できなくなると細胞は死に至る。基本的には線量が増えると致死率も高くなり、その生存曲線は細胞によって異なる。初めに残存する菌の種類や数、そして医療機器の材質によって滅菌線量は異なるが、医療機器の滅菌に必要な最小吸収線量は、約10 kGy～30 kGyである。生物学的な試験は非常に煩雑で手間がかかるため、放射線滅菌の正当性の確認や日々の照射管理は吸収線量測定によって行われる。吸収線量測定の主要な役割は、最低線量以上が照射されていること、また、製品毎に定められた最大線量以下で照射がされていることを確認することである。例えば、製品に与えられた線量が最低線量に達していない場合は、滅菌が担保されず最終的な医療機器の使用対象となる患者へ影響を及ぼす可能性がある。一方で、最大線量以上の照射が行われた場合は、医療機器の材質に影響を与えてしまうことや不必要な照射による経済面への影響などが考えられる。このように、目的線量の範囲内で照射が行われていることを吸収線量

測定によって確認することは重要である。医療機器の滅菌について定められたISO 11137-1には、放射線滅菌のプロセスは厳格に既定された制御がなされている必要があり、国家標準にトレーサブルな線量測定と不確かさの評価・文書化が必要であると示されている<sup>6)</sup>。

日本ではばれいしょの発芽防止にのみ食品照射が許可されているが、他国では穀類や野菜、果実、肉、魚介類などに対し、殺虫や殺菌、滅菌、貯蔵期間の延長といった目的で食品照射が利用されている<sup>7)</sup>。照射目的によって線量は異なり、芽止めの場合、およそ60 Gy～150 Gy程度で芽止めが達成される。貯蔵期間の延長や病原菌・腐敗菌の殺菌の目的では約1 kGy～10 kGyの範囲、滅菌や調味料の殺菌などの目的では約10 kGy～50 kGyの線量が用いられる。国際的な食品規格委員会であるコーデックス委員会によって定められた規格では、照射食品の吸収線量は原則10 kGyを超えてはならないが、技術的必要性が認められれば10 kGy以上の照射も可能と定められている。また、日本の食品衛生法では基本的には前述のようにばれいしょのみに照射が認められており、その吸収線量の上限值として150 Gyが定められている。さらに、一度照射したばれいしょに再度照射してはならないとも規定されている。このように、国際規格または国内の法律によって線量限度が定められている。照射された食品は消費者が摂取するため、照射食品の健全性が保たれていなければならない。上記の吸収線量限度は食品の健全性も考慮したうえで定められている。食品照射をするうえで、以上のような吸収線量限度以下で照射が行われていることを確認するため、また、不必要な照射を少なくし効率よく多くの製品に照射を行うためにも、吸収線量測定は重要となる。

このように、工業・農業利用に用いられる放射線に対する吸収線量測定は重要である。現在、日本では放射線防護レベルから医療用放射線レベルの線量範囲でのみ国家線量標準が確立されており、加工レベルの線量標準は未整備である。そのため、放射線加工の照射施設は日々の線量測定に用いる線量計の校正を海外の標準研究機関に依存しており、国内で加工レベルの線量標準を整備し、国内トレーサビリティ体系を構築することが求められていた。本調査研究では、加工レベルの放射線測定方法について調査を行い、今後国内で加工レベルの放射線標準を確立する上で重要な測定技術であるアラニン線量計の原理について述べる。また、アラニン線量計の医療応用や新規ESR線量計について言及し、今後の研究の展開について述べる。

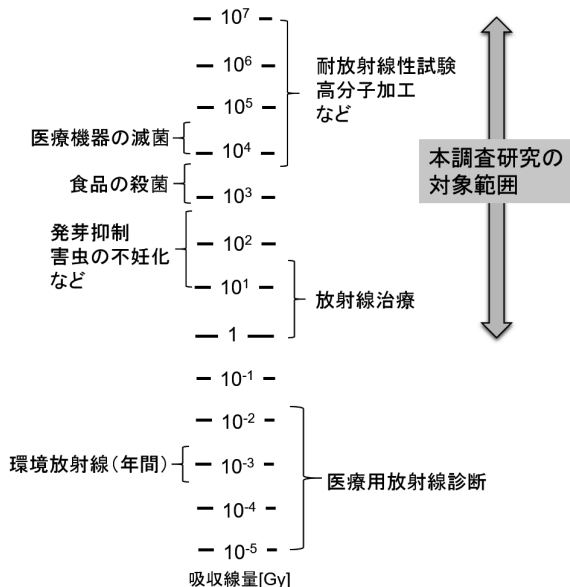


図1 各放射線利用例の吸収線量域

## 2. 電離放射線に関する基本的な量および単位<sup>8)</sup>

本章では、本研究に必要な放射線計測に関する基本的な量およびその単位について説明する。本研究の測定対象となる量は吸収線量であるが、放射線計測上重要なその他の量についても述べる。また、第3章で述べる加工レベル放射線の計測手法では化学的手法も重要であるため、放射線化学的な量や単位についても一部説明する。

### 2.1 放射線計測に関する量

ここでは、放射線計測の基礎となる放射線場に関する量として、フルエンスとエネルギーフルエンスについて説明する。また、フルエンスとエネルギーフルエンスから派生した量についても述べる。

#### 2.1.1 フルエンス, エネルギーフルエンス

フルエンス  $\Phi$  は、微小な球に入射する放射線の数  $dN$  を球の断面積  $da$  で割った値であり、次のように定義される。

$$\Phi = \frac{dN}{da} \quad (1)$$

単位は  $[m^{-2}]$  である。微小な領域として球を仮定している理由は、様々な方向から放射線が入射することを考えると、どの方向に対しても垂直方向の断面積が  $da$  で定義できる球が最も扱いやすいからである。フルエンスは放射線の数に関する量だが、これを放射線のエネルギーに関して考えたものがエネルギーフルエンスである。微小な球に入射する放射線のエネルギーの総和を  $dR$  とすると、エネルギーフルエンス  $\Psi$  は

$$\Psi = \frac{dR}{da} \quad (2)$$

で定義される。単位は  $[J m^{-2}]$  である。

フルエンスとエネルギーフルエンスについて、エネルギー毎のフルエンス、またはエネルギー毎のエネルギーフルエンスを定義することができる。エネルギーが  $E$  から  $E+dE$  の間のフルエンスとエネルギーフルエンスをそれぞれ  $d\Phi$ 、 $d\Psi$  とすると、フルエンス分布  $\Phi_E$  は

$$\Phi_E = \frac{d\Phi}{dE} \quad (3)$$

と表すことができ、エネルギーフルエンス分布  $\Psi_E$  は

$$\Psi_E = \frac{d\Psi}{dE} \quad (4)$$

で表される。単位はそれぞれ  $[J^{-1}m^{-2}]$ 、 $[m^{-2}]$  である。この二つの量の間には

$$\Psi_E = E\Phi_E \quad (5)$$

の関係がある。

#### 2.1.2 フルエンス率, エネルギーフルエンス率

フルエンスとエネルギーフルエンスの定義では、時間が増えたときのそれぞれの量の変化については考慮されていない。時間変化を考慮し、単位時間当たりのフルエンスまたはエネルギーフルエンスの変化量について定義した値がフルエンス率  $\dot{\Phi}$  とエネルギーフルエンス率  $\dot{\Psi}$  である。放射線計測の分野では、語尾に「率」が付くものは単位時間あたりの変化量を表す事が多い。微小時間  $dt$  の間のフルエンスの増加量を  $d\Phi$  とすると、フルエンス率  $\dot{\Phi}$  は

$$\dot{\Phi} = \frac{d\Phi}{dt} \quad (6)$$

で表される。単位は  $[m^{-2}s^{-1}]$  である。同様に、微小時間  $dt$  の間のエネルギーフルエンスの増加量を  $d\Psi$  とすると、エネルギーフルエンス率  $\dot{\Psi}$  は

$$\dot{\Psi} = \frac{d\Psi}{dt} \quad (7)$$

となる。単位は  $[W m^{-2}]$  である。

### 2.2 相互作用に関する係数と量

次に、放射線と物質の相互作用を考えるうえで必要な係数および量について説明する。放射線と物質の相互作用には、制動放射、光電効果、コンプトン散乱、対生成、対消滅などが挙げられる。各相互作用の詳細については、一般的な放射線物理の教科書に記載されているので、そちらを参照されたい。

#### 2.2.1 質量エネルギー転移係数

まず、 $\gamma$  線や X 線といった非荷電粒子線について考える。非荷電粒子は電荷を持たないため、クーロン力による相互作用は基本的に考えなくてよい。入射放射エネルギー  $R$  の非荷電粒子が密度  $\rho$  の物質中を距離  $dl$  だけ通過するとき、二次荷電粒子の運動エネルギーとして転移したエネルギーを  $dR_{tr}$  とすると、質量エネルギー転移係数  $\mu_{tr}/\rho$  は次のように定義される。

$$\frac{\mu_{tr}}{\rho} = \frac{1}{\rho dl} \frac{dR_{tr}}{R} \quad (8)$$

単位は  $[m^2 kg^{-1}]$  である。定義式から分かるように、質量エネルギー転移係数は非荷電粒子のエネルギーや対象物質の密度に依存する。

非荷電粒子から二次荷電粒子に転移したエネルギーのうち、二次荷電粒子が光子を放出する過程を経て失うエネルギーの割合を  $g$  とすると、質量エネルギー吸収係数  $\mu_{en}/\rho$  が次のように定義できる。

$$\frac{\mu_{en}}{\rho} = \frac{\mu_{tr}}{\rho} (1-g) \quad (9)$$

単位は  $[\text{m}^2\text{kg}^{-1}]$  である。  $g$  は、二次荷電粒子のエネルギーが物質に与えられない割合と言い換えることができ、質量エネルギー吸収係数は二次荷電粒子から物質に与えられるエネルギーについての係数と言える。また、  $g$  は物質に固有の値である。

### 2.2.2 気体中で1イオン対を生成するために必要な平均エネルギー

放射線と物質の相互作用のうち、電離という現象がある。これは、放射線が原子または分子と衝突して電子が解放される現象であり、後述する電離箱線量計などの気体を用いる線量計では、電離量を直接測定することで吸収線量を求めることができる。気体に入射した荷電粒子の初期運動エネルギー  $E$  が気体中で完全に失われたとき、生成されたイオン対の総数を  $N$  とすると、気体中で1イオン対を生成するために必要な平均エネルギー  $W$  は

$$W = \frac{E}{N} \quad (10)$$

で表される。単位は  $[\text{J}]$  または  $[\text{eV}]$  である。例えば、空気の電子に対する  $W$  値は  $33.97[\text{eV}]$  である。対象物質が固体の場合は  $W$  値に類似の概念として、一対の正孔と電子を生成するために必要な平均エネルギーとして同様に定義できる。

### 2.2.3 放射線化学収率

放射線が物質に入射した結果、物質の構成要素（原子、分子、イオン、電子など）に変化が生じる場合を考える。物質に与えられた平均エネルギー  $\bar{\varepsilon}$  によって生成、分解または変化した物質中のある要素  $x$  の物質量の平均を  $n(x)$  とすると、放射線化学収率は次式で表される。

$$G(x) = \frac{n(x)}{\bar{\varepsilon}} \quad (11)$$

単位は  $[\text{mol J}^{-1}]$  である。化学線量計について記述するとき、放射線化学収率に関連した量としてしばしば  $G$  値が用いられる。  $G$  値は、  $100 \text{ eV}$  と与えられたときに生成、分解または変化した物質中のある要素  $x$  の数として定義される。物質の変化ではなく数の変化に着目しているので、  $G$  値の単位は  $[(100 \text{ eV})^{-1}]$  である。

## 2.3 線量測定に関する量

第一章で述べたように、放射線が物質に与える効果は線量を測定することによって評価することができる。線量とはつまり、放射線のエネルギーがどの程度物質に与えられたかを表す指標であり、2.1節と2.2節で述べて

きた量を用いて表すことができる。以下に線量に関する量について説明する。

### 2.3.1 カーマ

入射放射線が物質にエネルギーを与えるとき、入射放射線のエネルギーが二次荷電粒子に転換され、二次荷電粒子がさらに物質と相互作用を起こしている。ここで、非荷電粒子が物質に入射したことを考える。質量  $dm$  の物質中で、入射した非荷電粒子によって解放された全ての荷電粒子の初期運動エネルギーの総和の平均を  $dE_{tr}$  とすると、カーマは

$$K = \frac{dE_{tr}}{dm} \quad (12)$$

と表される。単位は  $[\text{J kg}^{-1}]$  である。また、  $[\text{J kg}^{-1}]$  と同等の特別な単位として  $[\text{Gy}]$  を用いることもある。  $dE_{tr}$  には、励起原子または分子の壊変や、脱励起、分解などに伴って放出される荷電粒子の運動エネルギーも含まれている。入射非荷電粒子のエネルギーを  $E$  とすると、フルエンスと質量エネルギー転移係数を用いてカーマは次式のように記述することができる。

$$K = \frac{\Phi E \mu_{tr}}{\rho} = \frac{\Psi \mu_{tr}}{\rho} \quad (13)$$

実際は入射非荷電粒子はエネルギー分布を持っていることがほとんどであり、フルエンス分布を用いてカーマを定義すると、

$$K = \int \Phi_E E \frac{\mu_{tr}}{\rho} dE = \int \Psi_E \frac{\mu_{tr}}{\rho} dE \quad (14)$$

と表すことができる。上述のように、カーマとは非荷電粒子からエネルギーを受け取り解放された荷電粒子の初期運動エネルギーの総和の平均であるが、解放された荷電粒子の挙動について考えるとカーマを以下の二つに分類することができる。荷電粒子は電離や励起によってエネルギーを失う場合と、制動放射や電子対消滅などの光子の放出を伴いエネルギーを失う場合である。前者の場合は物質にエネルギーが与えられるが、後者の場合は荷電粒子のエネルギーは物質に吸収されない（放射損失）。前者についてのカーマを衝突カーマ  $K_{col}$ 、後者についてのカーマを放射カーマ  $K_{rad}$  とすると、  $K = K_{col} + K_{rad}$  と表すことができる。入射非荷電粒子がエネルギー分布を持っているとき、衝突カーマについて以下の式が成り立つ。

$$\begin{aligned} K_{col} &= \int \Phi_E E \frac{\mu_{en}}{\rho} dE \\ &= \int \Phi_E E \frac{\mu_{tr}}{\rho} (1-g) dE \\ &= K(1-g) \end{aligned} \quad (15)$$



$\bar{g}$  はエネルギー分布全体にわたって平均された  $g$  の値である。以上のように、カーマは物質にエネルギーが吸収されるものと吸収されないものに分けて考えることができるため、後述する吸収線量と関係付けることができる。

### 2.3.2 照射線量

これまで定義してきた量は、入射放射線の種類に制限はあったものの、対象物質は基本的に制限されていなかった。照射線量の定義では、対象物質が、電離量を測定するために広く用いられる乾燥空気に制限されている。質量  $dm$  の乾燥空気中で光子によって解放又は生成された全ての電子と陽電子が乾燥空気中で完全に停止したときの、発生した一方の電荷総量の平均の絶対値を  $dq$  とすると、照射線量は

$$X = \frac{dq}{dm} \quad (16)$$

で表される。単位は  $[C \text{ kg}^{-1}]$  である。ただし、励起原子または分子が基底状態に戻る際に生じる電子放出からの電離電荷は  $dq$  に含むが、制動放射等による電離電荷は含まない。照射線量の定義により、発生した二次荷電粒子のエネルギーは全て乾燥空気中に付与されたと考えることができるので、衝突カーマの定義を用いて次のように表すこともできる。

$$\begin{aligned} X &\approx \frac{e}{W} \int \Phi_{EE} \frac{\mu_{tr}}{\rho} (1-g) dE \\ &\approx \frac{e}{W} \int \Phi_{EE} \frac{\mu_{en}}{\rho} dE \end{aligned} \quad (17)$$

ここで、 $e$  は素電荷量、 $W$  は乾燥空気の  $W$  値である。1 MeV 以下の光子の場合には  $g$  の値が非常に小さいため、乾燥空気に対するカーマを  $K_{air}$  とすると、照射線量は  $X \approx (e/W) K_{air} (1-\bar{g}) = (e/W) K_{col, air}$  と近似することができる。ここで、 $K_{col, air}$  は乾燥空気に対する衝突カーマである。

### 2.3.3 エネルギー付与、付与エネルギー

まず、放射線が物質とただ1回の相互作用を生じた場合を考える。入射放射線のエネルギーを  $\varepsilon_{in}$ 、相互作用した荷電又は非荷電電離粒子のエネルギーの合計を  $\varepsilon_{out}$ 、相互作用した原子核又は全ての初期粒子の静止エネルギーの変化量を  $Q$  とすると、エネルギー付与は  $\varepsilon_i$

$$\varepsilon_i = \varepsilon_{in} - \varepsilon_{out} + Q \quad (18)$$

となる。単位は  $[J]$  又は  $[eV]$  である。ただし、エネルギー付与は確率的な量である。入射放射線が軌道電子と相互作用する場合、静止エネルギーの変化は生じないので、 $Q=0$  である。

実際には、放射線と物質の相互作用は複数生じる。あ

る体積を持つ物質への付与エネルギー  $\varepsilon$  は、その体積中のエネルギー付与の合計となり、次式で与えられる。

$$\varepsilon = \sum_i \varepsilon_i \quad (19)$$

単位は  $[J]$  又は  $[eV]$  である。

また、ある体積への平均付与エネルギー  $\bar{\varepsilon}$  は、その体積中に入射した全ての荷電電離粒子又は非荷電電離粒子の放射エネルギーの平均値を  $R_{in}$ 、その体積中から抜け出した荷電又は非荷電電離粒子のエネルギーの平均を  $R_{out}$ 、その体積中で生じた原子核や初期粒子の静止エネルギーの全変化量の和を  $\sum Q$  とすると、

$$\bar{\varepsilon} = R_{in} - R_{out} + \sum Q \quad (20)$$

で表される。

### 2.3.4 吸収線量

前述の平均付与エネルギーを用いて、物質に吸収された放射線のエネルギーの量として、吸収線量が定義される。質量  $dm$  の物質への平均付与エネルギーを  $d\varepsilon$  とすると、吸収線量は

$$D = \frac{d\varepsilon}{dm} \quad (21)$$

で表される。単位は  $[J \text{ kg}^{-1}]$  または  $[Gy]$  である。本研究の対象としているのは水についての吸収線量（水吸収線量）である。また、ある時間変化  $dt$  での吸収線量の増加分を  $dD$  とすると、吸収線量率  $\dot{D}$  が以下のように定義される。

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \quad (22)$$

単位は  $[J \text{ kg}^{-1} \text{ s}^{-1}]$  または  $[Gy \text{ s}^{-1}]$  である。

2.3.1 節で説明したカーマは、二次荷電粒子の初期運動エネルギーについて定義されたものであったが、吸収線量と結びつけることができる。ここで、微小領域中に放射線が入射することを考える。微小領域中で発生した二次荷電粒子のエネルギーが全て微小領域内に吸収され、かつ、放射損失が無視できるほど小さいとき、吸収線量と衝突カーマは等しくなり、

$$D \approx K_{col} \quad (23)$$

と表すことができる。入射放射線のエネルギーが非常に低い場合であれば、微小領域内に全ての二次荷電粒子のエネルギーが付与され上式が成り立つ。しかし、高エネルギーの放射線に対しては、二次荷電粒子の飛程が微小領域よりも大きくなる等の原因により上式は成立しない。高エネルギーの放射線に対しても上式を成立させるためには、微小領域に入射する荷電粒子のエネルギーと

微小領域から領域外へ持ち出されるエネルギーの量を等しくする必要があり、これを荷電粒子平衡と呼び、電離箱線量計による水吸収線量測定では、この条件の下で照射を行う<sup>9)</sup>。

### 3. 加工レベル放射線の測定方法

この章では、まず、加工レベル放射線のトレーサビリティ体系について説明し、今後立ち上げる加工レベル線量標準の体系について言及する。次に、具体的な測定方法について説明する。ここでは、最初に標準を立ち上げる予定である加工レベル $\gamma$ 線の測定方法について主に説明する。加工レベル放射線の測定方法としては化学的な手法が一般的であるが、加工レベル線量標準を立ち上げる上でも関係のある、医療用放射線レベルの線量標準に用いられる物理的な測定手法についても述べる。

#### 3.1 加工レベル線量測定のトレーサビリティ体系

加工レベル線量のトレーサビリティ体系は、医療分野で用いられる線量計のトレーサビリティ体系と異なるものになると考えられる。医療分野では、産総研が校正機関の線量計を校正し、校正機関がユーザーの線量計を校正する。それぞれの校正において不確かさが明記された校正証明書が発行されることで、国家標準までトレーサブルな計測が成立していることが証明できる<sup>10)</sup>。このような体系での校正が可能な理由として、ユーザーの照射環境と校正機関の照射環境が類似で、かつ、照射環境が安定しているといったことが挙げられる。校正機関の

照射場が安定であることは当然であるが、医療分野のユーザーである病院の照射場も基本的に室温に保たれており、照射環境の違いをそれほど考慮する必要がない。しかし、加工レベル照射施設の場合、ユーザーの照射環境や照射装置は校正機関のものとは大きく異なっている。一般に、加工レベル照射施設の照射室は校正機関の照射室に比べ非常に大型である。この大型の照射室の中で、コンベア上に載せられた、またはハンガー状のラックに吊るされた梱包製品が、線源の周りを移動しながら照射する。特に $\gamma$ 線を照射する施設の場合、線源からの $\gamma$ 線を最大限有効利用するために、線源の周りを360度移動できるような構造になっていることが多い。また、遮蔽や照射製品の移動のために照射施設の構造が複雑になっていることもある。そのため、照射室の温度制御が難しく、常に室温に保たれているとは限らない。

このように、加工レベル照射施設は校正機関の環境とは異なっているため、照射施設での環境を考慮して校正を行わなければならない。加工レベル照射施設のルーチン線量計の校正の実施について定められているISO/ASTM 51261<sup>11)</sup>では、国家標準機関で照射を実施してルーチン線量計の校正を行う方法と、ユーザー施設で照射を実施してルーチン線量計の校正を行う方法について述べられている。これらの方法の概要を図2に示す。以下の3.1.1節と3.1.2節で、これら2種類の校正方法についてそれぞれ説明する。

#### 3.1.1 国家標準機関で照射を実施してルーチン線量計の校正を行う方法

まず、図2左側の国家標準機関で照射を実施してルー

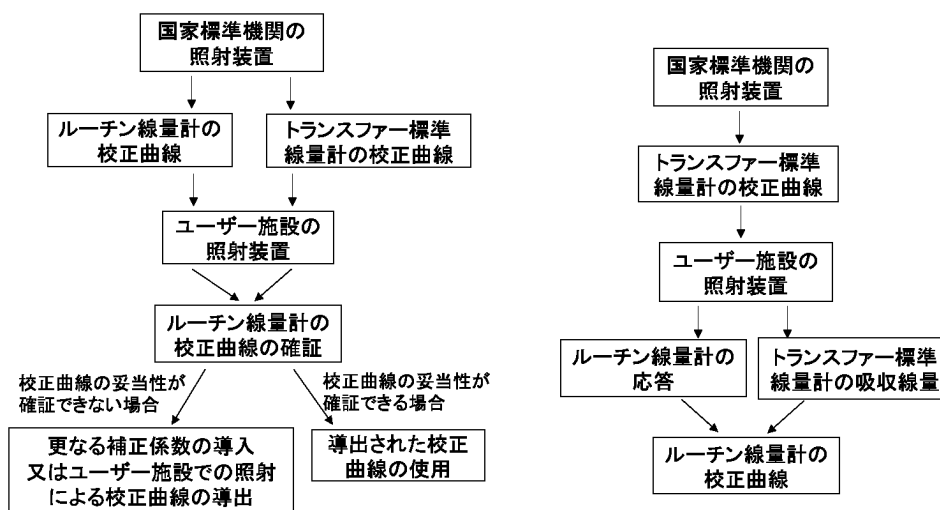


図2 加工レベル放射線のトレーサビリティ体系。左図が国家標準機関で照射を実施してルーチン線量計の校正を行う方法。右図がユーザー施設で照射を実施してルーチン線量計の校正を行う方法。

チン線量計の校正を行う方法について説明する。トレーサビリティ体系の最上位である一次標準による吸収線量の確立は、どの国家標準研究機関でも基本的には医療レベルの比較的低い線量率の照射装置を用いて、低い線量範囲で行われる。しかし、工業レベルの照射を行う施設で用いられる線量率はより大きく、線量範囲も高線量側に広いため、より高線量率の別の加工レベル照射場で吸収線量測定を行う必要がある。そのため、まず、加工レベル照射場に対し線量率を決めなければならない。このように、医療レベルの線量率、線量範囲でも、工業レベルの線量率、線量範囲でも使用できるような線量計（トランスファー標準線量計）を用いて加工レベル照射場の線量率を決定し、その測定場を標準照射場とする。この標準照射場を用いて、ユーザー施設の日常管理などに使用しているルーチン線量計に照射を行う。照射前に、ユーザーは国家標準機関にルーチン線量計を郵送する。式(22)から分かるように、線量率が既知であれば、照射時間を変えることで線量を変えることができるので、照射時間を変えて複数の線量点で照射を行う。照射後に国家標準機関からルーチン線量計を返送し、ユーザーが値を読み取る。国家標準機関の既知の線量率を用いて照射が行われたため、照射を行った国家標準機関から報告される吸収線量を参考に校正曲線を得る。しかし、前述したように、ルーチン線量計が日常的に使用される本来の場所はユーザーの施設であり、国家標準機関の照射環境とユーザーの照射環境は異なっている。そのため、国家標準機関での照射によって得られたルーチン線量計の校正曲線が妥当かどうか、実際のユーザー施設でルーチン線量計とトランスファー線量計に何点か照射を行い確認する必要がある。ユーザー施設で照射を行った結果、ルーチンシステムとトランスファー標準の吸収線量測定値が不確かさの範囲内で一致していれば、さらなる補正は必要ではない。もし不確かさの範囲外であったならば、ルーチン線量計の測定値に対し更なる補正係数を導入し、トランスファー標準の測定値と一致するようにしなければならない。広い線量範囲にわたって二つの線量計の測定値が異なっている場合、国家標準機関とユーザー施設の環境が大きく異なることが原因と考えられ、校正関数を補正することが難しいため、ユーザー施設での校正方法を導入する必要がある<sup>6), 11)</sup>。

### 3.1.2 ユーザー施設で照射を実施してルーチン線量計の校正を行う方法

次に、図2右側のユーザー施設で照射を実施してルーチン線量計の校正を行う方法について説明する。加工レベルの標準照射場の線量率を決定するまでの過程に関し

ては、国家標準機関での照射による校正方法と同様である。まず、国家標準機関が加工レベルの標準照射場に対し線量率を決定する。国家標準機関は照射時間を変えて複数の線量点でトランスファー標準線量計に照射を行い、線量計の応答を測定し、校正曲線を導出する。その後、ルーチン線量計の校正のためにルーチン線量計とトランスファー線量計に照射を行う必要があるが、図2右側に示されている方法では、ユーザー施設の照射装置を用いてユーザーが照射を行う。照射前に国家標準機関がユーザー施設にトランスファー標準線量計を郵送し、ユーザーが自身の照射装置を用いて照射を行う。照射後、ユーザー施設からトランスファー線量計が返送され、国家標準機関がトランスファー線量計の応答を測定し応答曲線から吸収線量を求める。導出された吸収線量とユーザーが読み取ったルーチン線量計の応答を結びつけることによりルーチン線量計の校正曲線を得る。この方法では、ユーザー施設の実際の照射環境を用いてルーチン線量計を校正できるので、照射環境の影響量を加味したルーチン線量計の校正曲線を導出することができる<sup>6)</sup>。

## 3.2 物理的な測定方法

トレーサビリティ体系の最も上位にある吸収線量の確立は一次標準線量計によって行われる。この一次標準線量計は、SI基本単位や基礎物理定数のみによって吸収線量の絶対測定が可能なものではない<sup>6)</sup>。また、前述したように医療レベルの放射線に対しての水吸収線量がまず最初に確立されることが一般的である。このような水吸収線量の絶対測定が可能なものとしてはカロリメータや電離箱線量計、フリッケ線量計がある<sup>12)</sup>。ここでは、前者二つの物理的な線量計の概要について、本研究の対象である<sup>60</sup>Coの $\gamma$ 線に対する水吸収線量測定を中心に述べる。

### 3.2.1 カロリメータ

式(21)の吸収線量の定義から、吸収線量を直接測定するためには放射線から物質に吸収されたエネルギーを直接測定しなければならない。カロリメータは、放射線照射によって生じた物質の温度上昇を測定することによって、物質が吸収したエネルギーを求めるという原理である。入射放射線によって物質に熱として現れるエネルギーを $dE_h$ 、熱として現れないような熱欠損を $dE_s$ とすると、式(21)を利用してカロリメータの吸収体の吸収線量 $D$ は次のように変形できる。

$$D = \frac{d\dot{E}}{dm} = \frac{dE_h + dE_s}{dm} \quad (24)$$

ここで、物質の比熱容量を $c_p$ [J kg<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup>]、入射放射線に

よって生じた物質の温度上昇を  $\Delta T$  [K] とすると、 $dE_h/dm$  は次のように表される。

$$\frac{dE_h}{dm} = c_p \Delta T \quad (25)$$

式 (24) と式 (25) より、式 (24) の右辺は以下のように変形できる。

$$\begin{aligned} \frac{dE_h + dE_s}{dm} &= c_p \Delta T + \frac{dE_s}{dm} \\ &= c_p \Delta T \left( 1 + \frac{dE_s}{dm} \frac{dm}{dE_h} \right) \\ &= c_p \Delta T \left( \frac{dE_h + dE_s}{dE_h} \right) \\ &= c_p \Delta T \frac{d\bar{e}}{dE_h} \end{aligned} \quad (26)$$

ここで、熱欠損補正係数を  $k_h = d\bar{e}/dE_h$  と定義すると、式 (24) は

$$D = c_p \Delta T k_h \quad (27)$$

と表すことができる<sup>12)</sup>。医療レベルの一次標準線量計としては、吸収体にグラファイトを用いたグラファイトカロリメータが広く使用されている。吸収体にグラファイトを採用する利点としては、比熱容量と熱欠損が比較的小さく、吸収線量当たりの温度上昇が大きい点である。例えば、医療レベルの数 Gy の吸収線量では温度上昇は 1 K にも満たないため、温度上昇が大きい物質の方が温度変化の測定が容易である。式 (26) はカロリメータの吸収体の吸収線量であるため、最終的に水吸収線量を導出するためには式 (26) に幾つかの補正係数をかける必要がある。

加工レベル領域では、 $\text{Co}^{60}$  の  $\gamma$  線を測定するために、球状のグラファイトカロリメータ<sup>13)</sup> や円筒状のポリスチレンカロリメータ<sup>14)</sup> などが開発されてきた。しかし、ユーザー施設の特徴として、線源が基本的にコリメートされていないこと、コンベアなどで複雑に移動しながら照射を行うといった事が挙げられる。そのため、ユーザー施設での測定にはカロリメータのような電気的な接続が必要な測定方法は不向きであり、治療レベル  $\gamma$  線用のカロリメータは国家標準機関での使用に限られていることが殆どである。

### 3.2.2 電離箱線量計

電離箱線量計はその取り扱いの簡便さ、精度の高さ、応答の速さなど種々の利点があり、放射線治療の吸収線量測定や放射線防護の分野で広く用いられている線量計である。電離箱線量計は、その名の通り電離量を測定することによって線量を求めるものである。第2章でも少

し触れたように、電離箱線量計によって吸収線量を計測する場合、荷電粒子平衡が成立している条件の下で使用しなければならない。このような条件の下では、式 (15)、(17)、(23) から、電離箱線量計内の空気の吸収線量  $D_{\text{air}}$  は以下の式によって求めることができる。

$$D_{\text{air}} = \frac{W}{e} X \quad (28)$$

つまり、電離箱線量計による測定で得られた照射線量に  $W/e$  という定数をかけることで空気中の吸収線量が得られる。実際は、電離箱線量計の測定値から照射線量を求めるために、幾つもの補正係数や校正定数をかける必要がある。また、空気中の吸収線量から水吸収線量へ変換するために、空気に対する水の平均制限質量衝突阻止能比をかけなければならない<sup>9)</sup>。

加工レベルの  $\gamma$  線の測定を考えると、放射線治療レベルの線量で用いられるような電離箱線量計は感度が高すぎるという欠点がある。これを克服するには電離箱の有感体積を小さくすればよく、加工レベルの  $\gamma$  線用の平行平板型電離箱が開発されてきた<sup>15)</sup>。しかし、カロリメータと同様に測定に電気的な接続が必要なため、ユーザー施設での測定には不向きであるということも欠点の一つに挙げられる。

### 3.3 化学的な測定方法<sup>6)</sup>

次に、化学線量計と呼ばれる、吸収線量の化学的な測定手法について述べる。ここで述べる化学的な測定手法とは、放射線照射によって物質内で起こる励起、ラジカル生成、化学反応による物質生成等の濃度を測定する手法である。個人被曝線量管理に用いられるガラスバッジなどの測定可能線量は、最大でも数 Gy ~ 数十 Gy であり、放射線加工レベルの線量に使用することはできない。ここでは、一次線量計として用いられることもあるフリッケ線量計、ユーザー施設のルーチン線量計として広く使用されている PMMA (Polymethyl methacrylate) 線量計、そして、本調査研究の主題であるアラニン線量計について述べる。これらの化学的な測定法は、物理的な測定手法と異なり照射中のリアルタイムな信号測定が不可能であり、照射後に専用の測定装置によって信号を計測する必要がある。

#### 3.3.1 フリッケ線量計

フリッケ線量計は、照射された溶液中の  $\text{Fe}^{2+}$  が  $\text{Fe}^{3+}$  に変化した量を測定することによって吸収線量を求める線量計である。典型的なフリッケ線量計は  $1.0 \text{ mmol dm}^{-3}$  の硫酸アンモニウム鉄、 $0.4 \text{ mmol dm}^{-3}$  の硫酸、 $1.0 \text{ mmol dm}^{-3}$  の食塩の水溶液から成る。フリッケ線量



計の溶液の大部分が水であるため、線量計に放射線照射したときの化学反応の多くは水の放射線分解によって生じたラジカルから始まる。これらのラジカルが互いに化学反応したり、鉄イオンや硫酸水素イオンなどと化学反応を起こすことによって  $\text{Fe}^{3+}$  が生じる。最終的に生じた  $\text{Fe}^{3+}$  の濃度の測定方法として、電気滴定を用いたものなど複数の方法が開発されたが、ここでは現在最も一般的な測定法である吸光光度計による測定法について述べる。フリッケ線量計溶液の吸光度のピークは 302 nm から 305 nm にあり、この範囲内の波長の光を用いて測定を行う。224 nm の波長付近にも吸光度のピークが存在するが、前述の波長領域に比べ不純物の影響などが大きいという欠点がある。フリッケ線量計の溶液はガラス又は石英の容器に入れられた状態で保存・照射・測定を行う。

フリッケ線量計溶液への吸収線量  $D_F$  は、放射線照射による吸光度の増加量を  $\Delta A$  を用いて以下のように求められる。

$$D_F = \frac{\Delta A}{\varepsilon G(\text{Fe}^{3+}) \rho l} \quad (29)$$

ここで、 $\varepsilon$  は測定波長の光に対する ( $\text{Fe}^{3+}$ ) の分子吸光係数 [ $\text{m}^2 \text{mol}^{-1}$ ]、 $G(\text{Fe}^{3+})$  は溶液中の  $\text{Fe}^{3+}$  の  $G$  値、 $\rho$  はフリッケ線量計の溶液の密度、 $l$  は吸光度を測定する光の経路長である。25 °C の条件下での 304 nm の波長の光に対する分子吸光係数は、ICRU Report 34 では  $216.4 \text{ m}^2 \text{mol}^{-1}$  という値が推奨されたが、その後の研究によって  $217.34 \text{ m}^2 \text{mol}^{-1}$  という値が報告された。分子吸光係数は 25 °C を基準に  $0.69 \% \text{C}^{-1}$  変化する<sup>6)</sup>。  $G(\text{Fe}^{3+})$  の値については ICRU Report 34 において、 $^{60}\text{Co}$  の  $\gamma$  線に対して  $1.61 \times 10^{-6} \text{ mol J}^{-1}$  という値が記されている<sup>16)</sup>。上式によって求められる吸収線量を最終的に水吸収線量に変換するためには、さらに変換係数  $f$  をかける必要がある。

フリッケ線量計の特徴として、正確度、精度が高いことが挙げられる。不純物を慎重に排除し、厳格な管理の下測定された場合、0.2 % の不確かさ ( $k=2$ ) で測定することも可能であると報告されている。そのため、2006 年の加工レベル  $^{60}\text{Co}$  の  $\gamma$  線の国際比較の際には、医療レベルの吸収線量から加工レベル放射線線量へ拡張するためのトランスファー標準線量計として ENEA-INMRI (Istituto Nazionale di Metrologia delle Radiazioni Ionizzanti), NPL (National Physical Laboratory), PTB (Physikalisch-Technische Bundesanstalt) といった標準研究機関がフリッケ線量計を採用していた<sup>17)</sup>。また、中国の標準研究機関である NIM (National Institute of Metrology) では一次標準としてフリッケ線量計を使用

している。水吸収線量への変換係数  $f$  が  $^{60}\text{Co}$  の  $\gamma$  線に対しては 1.0032 であり、放射線に対する特性が水に近いこともフリッケ線量計の利点の一つとして挙げられる。一方、フリッケ線量計の欠点として、測定可能な線量範囲が約 1 Gy から 200 Gy と狭いことが挙げられる。 $\text{Fe}^{3+}$  の濃度を増やし線量範囲を広げたスーパーフリッケ線量計というものも開発されたが、測定可能な線量は最大で約 2000 Gy 程度であり、実際の照射施設で求められる 100 kGy 程度の測定は難しい。また、純度の高い溶液が必要で溶液の作製に手間がかかること、市販の線量計としては売られていないことなども欠点として挙げられる。フリッケ線量計と同様に、液体中のイオン量の変化を吸光光度計によって測定する線量計として、セリウムイオンの変化量を測定するセリウム線量計、クロムイオンの変化量を測定する重クロム酸線量計などがある。これらの線量計はトランスファー標準線量計として使用可能な精度を持つ。

### 3.3.2 PMMA 線量計

PMMA 線量計はその名の通り、ポリメタクリル酸メチル樹脂から成る線量計である。数 mm 厚の板状の形状をしており、湿度と光の影響をできるだけ避けるために薄いアルミの小袋に封入されていることが多い。無色透明のものや赤色などに着色されたものが市販されており、放射線照射によって生じた色の变化を吸光光度計によって測定することで線量を求める。市販されている線量計の種類によって照射前、照射後の吸光度の特性は異なっており、使用する線量計に合わせて測定波長を選択する必要がある。使用される波長範囲は、無色透明の PMMA 線量計を測定するための約 315 nm から、着色されたものを測定するための約 650 nm までの広い範囲にわたる。PMMA 線量計の厚さは個々によってわずかに異なっており、測定される吸光度は線量計の厚さに依存するため、通常は吸光度を線量計の厚さで除することで補正を行う。また、吸光度は線量計の照射中、照射後の温度や線量率に依存するが、これらの要素はお互いに複雑に関係しているため、単純な補正値を導入することは難しい。

PMMA 線量計の長所として、安価で大量生産が容易であり、使用方法、測定方法が簡便であることから、ルーチン線量計として適している点が挙げられる。また、一般的な PMMA 線量計の線量範囲は約 100 Gy から約 50 kGy の範囲にわたり、比較的広範囲の線量を測定できる。近年発売されている PMMA 線量計では、最大で 150 kGy まで測定できる PMMA 線量計も市販されている<sup>18)</sup>。一方で PMMA 線量計の欠点としては、前項で述

べたフリッケ線量計のような液体化学線量計に比べると、測定の不確かさが大きいことである（約5%から7% ( $k=2$ )）。PMMA線量計のように、板状の形状であり放射線照射によって着色した量を吸光光度計によって測定する線量計として、三酢酸セルロース線量計、ラジオクロミックフィルム線量計などがある。これらの線量計はPMMA線量計と同様にルーチン線量計の使用に適している。

### 3.3.3 アラニン線量計

フリッケ線量計やPMMA線量計は吸光光度計によって測定された吸光度の変化量から線量を導き出すものであったが、本項で述べるアラニン線量計は吸光光度計による測定システムとは全く異なるものである。

アミノ酸の一種であるアラニンの構造異性体の一つである $\alpha$ -アラニン ( $\text{CH}_3\text{CH}(\text{NH}_2)\text{COOH}$ ) に放射線を照射すると、複数の安定なラジカルが発生する。純粋なアラニンは粉末状であるので、ポリスチレンやポリエチレンなどの母材と混合させて、固形化、成形し、取り扱いを容易にしたペレットが一般的である。ここで、アラニンペレットの外観図を3に示す。この図のように高さ約3 mm、直径5 mm程度の錠剤型のものとしたペレットが一般的ではあるが、そのほかにも円筒状のアラニンやフィルムの形状をしたものなども開発されている<sup>21)</sup>、<sup>22)</sup>。アラニンの吸収線量が増えると発生するラジカルの数が増加するため、つまり、発生する不対電子の数が増加するため、この不対電子の数に対応する信号を測定できれば線量測定が可能となる。この信号を得るために、アラニン線量計ではESR (Electron Spin Resonance: 電子スピン共鳴) 装置を用いる。ESR装置の原理は主に磁場とマイクロ波に基づいている。電子スピン共鳴の詳

細な理論については他の文献<sup>19)</sup>、<sup>20)</sup>に書かれているため、ここでは概要を記すのみとする。電子のスピン角運動量を $S$ とすると、電子の磁気モーメント $\mu$ は以下のように表される。

$$\mu = -g_e \mu_B S \quad (30)$$

ここで $g_e$ は電子スピンの $g$ 値、 $\mu_B$ はボーア磁子であり、それぞれ $g_e = 2.0023$ 、 $\mu_B = 9.27 \times 10^{-24} \text{JT}^{-1}$ という値を持つ。電子のスピン量子数は $1/2$ であり、電子のスピン磁気量子数 $m_s$ は $+1/2$ または $-1/2$ の値をとる。 $m_s = +1/2$ の場合を $\alpha$ スピン、 $m_s = -1/2$ の場合を $\beta$ スピンとも呼ぶ。ここで、外部磁場中（磁束密度 $B[\text{T}]$ ）に置かれた電子を考える。このとき、電子の磁気モーメントと外部磁場の相互作用のエネルギーは、 $-\mu \cdot B$ となる。いま外部磁場の向きが $z$ 軸方向であったとすると、磁場中の電子スピンのエネルギー準位 $E_{m_s}$ は、以下の式によって表される。

$$E_{m_s} = g_e \mu_B B m_s \quad (31)$$

前述の通り、 $m_s$ は二つの値を取ることで、磁場中の電子スピンは二つのエネルギー準位に分かれることになる（ゼーマン分裂）。上式より、 $\alpha$ スピンと $\beta$ スピンのエネルギー準位差 $\Delta E$ は以下のようなになる。

$$\Delta E = E_\alpha - E_\beta = g_e \mu_B B \quad (32)$$

このように、磁場中に置かれた電子のエネルギー準位差は $g_e \mu_B B$ となる。このとき、周波数 $\nu$ の電磁波を照射すると、電磁波のエネルギーが $\Delta E$ に等しいとき、つまり、以下のような条件のときに磁気共鳴現象が生じる。

$$h\nu = g_e \mu_B B \quad (33)$$

実際は、電子単独で磁場中に存在するのではなく、ラジカル分子やラジカル原子という状態で存在する。そのため、電子の磁気モーメントと外部磁場の相互作用によるゼーマン分裂だけでなく、電子と原子核間のそれぞれのスピンによる相互作用（超微細相互作用という）も生じる。これにより、実際観測されるESRスペクトルは、ゼーマン分裂によるエネルギー準位がさらに分裂した準位間でのマイクロ波エネルギーの吸収を表したものである。ある原子核のスピン量子数を $I$ とすると、原子核の磁気量子数 $M$ は $M = -I, (-I+1), \dots, (I+1), I$ の $2I+1$ 個の値をとるため、観測されるスペクトルは $2I+1$ 本に分裂したスペクトルとなる。現在主流となっているESR装置では、マイクロ波のエネルギー $h\nu$ を一定にして磁場の大きさ $B$ を変化させるような仕組みになっており、こ

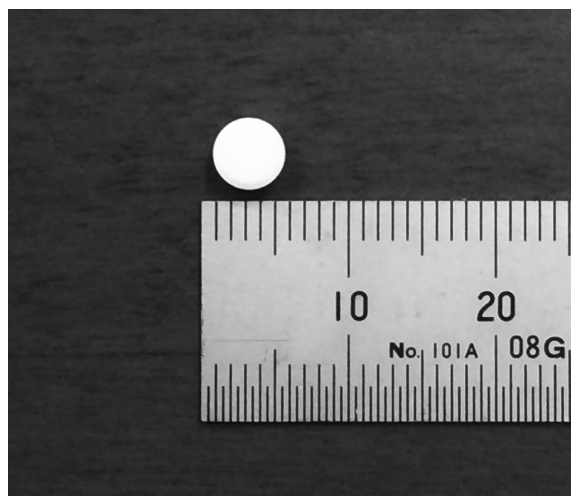


図3 アラニンペレットの外観

のような装置を磁場掃引型 ESR 装置とも言う。市販の ESR 装置に広く採用されているのは X バンドのクライストロンであり、マイクロ波の周波数は約 9 ~ 10 GHz である。これに対応する磁束密度は上式から約 0.32 ~ 0.36 T (3200 ~ 3600 G) となる。

アラニンラジカルによって吸収されたマイクロ波を観測しなければならないが、吸収されたマイクロ波の量は非常に微小であるため、直接検出することは難しい。そのため、ESR 装置ではこの微弱な信号を得るために様々な工夫がなされている。ここで、ESR 装置の概略図を図 4 に示す。マイクロ波源によって発生したマイクロ波は、同軸ケーブルまたは導波管を伝ってキャビティに供給される。このキャビティは、キャビティ内でマイクロ波を共振させるための共振器の役割を持つ。ここで、共振周波数を  $\nu$ 、キャビティ内に蓄えられたマイクロ波のエネルギーを  $\epsilon$ 、単位時間当たりのエネルギー損失を  $P$  として、キャビティの性能指標である  $Q$  値が次のように定義されている。

$$Q = \frac{2\pi\nu\epsilon}{P} \quad (34)$$

この  $Q$  値が高いほど感度の良い測定が可能になる。試料を測定する際は、測定試料をキャビティ内に挿入し固定した状態で、導波管とキャビティのインピーダンス整合を最初に行う。インピーダンス整合は導波管とキャビティの境界にあるアイリスという穴の大きさを調整することによって行われる。この調節によって、マイクロ波の反射が起らない状態にしている（カップリング）。磁場の掃引によって試料との磁気共鳴が起りマイクロ波の吸収が生じると、キャビティのインピーダンスの変化とともにキャビティ内のエネルギー損失が増加するた

め  $Q$  値が減少する。このときキャビティと導波管のカップリングがとれていない状態となり、マイクロ波の反射が生じるため、マイクロ波の反射量を検出することによって信号を得ることができる。サーキュレータを使用することで、発振器からのマイクロ波はキャビティのみに、反射マイクロ波は検出器にのみに伝達するようになっている。

また、より高感度に信号を検出するための仕組みとして、磁場変調とロックインアンプを用いた位相検波方式が通常の ESR 装置には組み込まれている。掃引磁場が変調磁場の周波数で変化するとき、磁気共鳴によって吸収されたマイクロ波の信号も変調磁場の周波数で振動する。吸収波形は変調磁場の周波数で変調され交流波形になるため、図 4 に示した検出器に入る信号は、このような交流信号である。ロックインアンプによる位相敏感検出により、交流波形のうち変調磁場と同位相、同周波数の信号のみを検出することにより ESR スペクトルを得る。このように、観測される ESR スペクトルは吸収波形の一次微分型となる<sup>20)</sup>。

ESR 装置にはマイクロ波の大きさ、変調磁場の大きさ、時定数、ゲインなど可変なパラメータがあり、これらを適切な値に設定したうえで測定を行わなければならない。日々 ESR 装置を使う上で、同じパラメータで測定した際の応答の安定性を確認するため、外部環境に左右されにくく安定した ESR 信号を示す参照物質を測定する。このような参照物質には  $Mn^{2+}$  を含む  $MgO$  や  $CaO$ 、 $Cr^{3+}$  を含む  $Al_2O_3$  などが用いられる。また、アラニンの信号を測定するとき、これらの参照物質と同時に測定を行い、アラニンの信号を参照物質の信号で規格化することで、ESR の感度変化や測定時の湿度の影響などを補正することができる<sup>23)</sup>。ここで、200 Gy 照射したアラニンペレットを、 $Mn^{2+}$  の信号と同時に測定した例を図 5 に示す。図 5 の左右に鋭く現れているスペクトルが  $Mn^{2+}$  からのスペクトル、その他は全てアラニンのスペクトルである。 $Mn$  核のスピン量子数は  $I=5/2$  であるため、本来は 6 本のスペクトルが観測されるが、図 5 に示したスペクトルはアラニンの信号付近の磁場範囲のみ表しているため、 $Mn$  の 6 本のスペクトルのうち低磁場側から 3 本目と 4 本目に現れるスペクトルのみ観測されている。信号として測定する値は、図 5 中に矢印で示した上下のピークの高さである。アラニンの信号値として測定するのは中心部分のピークの高さであり、吸収線量が増えればピークの高さが大きくなる。

吸収線量が増えればアラニン中に発生するラジカル量が変化し、つまり、アラニン線量計の応答は吸収線

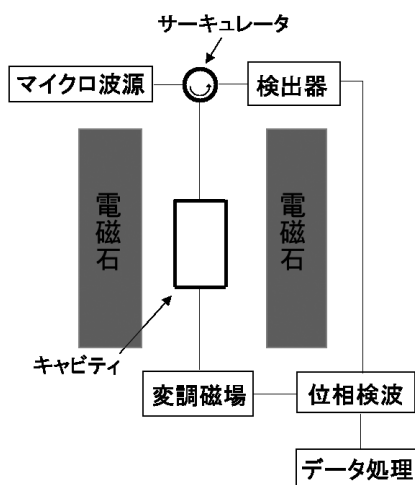


図 4 ESR 装置の概略図



量によって変化する。アラニン中に発生するラジカル濃度と吸収線量の関係は指数関数的であるため、アラニンの信号値と吸収線量を関数によって関係づけることができる。アラニンの ESR スペクトルに寄与するラジカルのうち、アラニンが脱アミノ化したラジカル・CH(CH<sub>3</sub>)COOH が半分以上を占めると言われているが、照射アラニンのスペクトルは複雑であり、完全な解明には至っていない<sup>6)</sup>。

アラニンペレットに照射を行う際には、アラニンを樹脂などでできた容器に封入して照射を行う。これは、照射中の湿度の影響などをできるだけ防ぐためである。同様に、照射前後に防水の容器に封入しておくことで、湿度の影響は減らすことができる。通常の使用用途でアラニン線量計に最も影響する要因として考えられているのは照射中の温度である。照射中の温度に対する補正係数は、基準温度(22℃)からの温度変化量あたりの ESR 信号の増加率として表され、その典型的な値は +0.10 から +0.25 %/℃ 程度である<sup>6)</sup>。実際には照射中にも温度変化が生じており、NPL では以下のような式で照射中の実効温度を計算している<sup>25)</sup>。

$$T_{eff} = T_{min} + \frac{2}{3} (T_{max} - T_{min}) \quad (35)$$

ここで  $T_{eff}$  は実効温度、 $T_{min}$  は照射中の最低温度、 $T_{max}$  は照射中の最大温度である。最終的にアラニン線量計によって測定される吸収線量  $D$  は、以下のような式で表すことができる。

$$D = N \frac{R_{ala}}{m_{ala} R_{ref}} \prod_i k_i \quad (36)$$

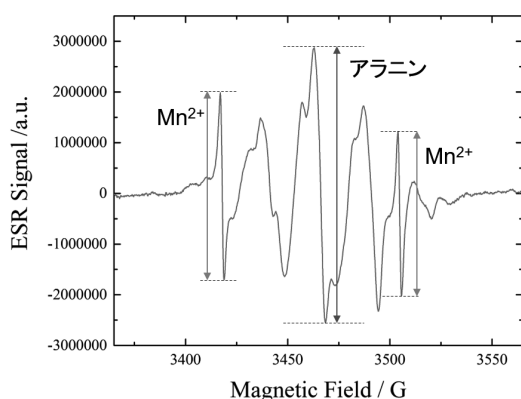


図5 200 Gy 照射したアラニンを Mn<sup>2+</sup> と同時に測定したときのスペクトル。(Center Field:3465 G, Sweep Width:200 G, Microwave Power:2 mW, Modulation Amplitude:1.5 G, Time Constant:163.8 msec, Conversion Time:163.8 msec, Resolution in X:1024, Number of Scan:1)

ここで  $R_{ala}$  はアラニンの ESR 信号値、 $R_{ref}$  は Mn<sup>2+</sup> などの参照物質の ESR 信号値、 $m_{ala}$  は測定するアラニンペレットの質量、 $k_i$  は各種補正係数、 $N$  は校正定数(関数で表すことができる)である。アラニンの信号値をアラニンペレットの質量で除している理由は、ペレットごとに質量は異なっており、ペレット中に生成されるラジカルの量はペレットの質量に比例するので、質量差による信号値の変化を除くためである。

前述したように、ESR 信号を測定する際の可変パラメータによって信号の大きさは変化する。アラニンと Mn<sup>2+</sup> の信号値が可変パラメータによってどのように変化するか図6に示す。図6(a)はマイクロ波の大きさを変えた時のそれぞれの信号値の変化、図6(b)は変調磁場の大きさを変えた時の信号値の変化である。マイクロ波が大きくなるにつれ信号値も大きくなるが、1 mW 以上の領域ではどの信号もほぼ飽和に達していることが分かる。変調磁場の大きさを変化させた場合は、変調磁場

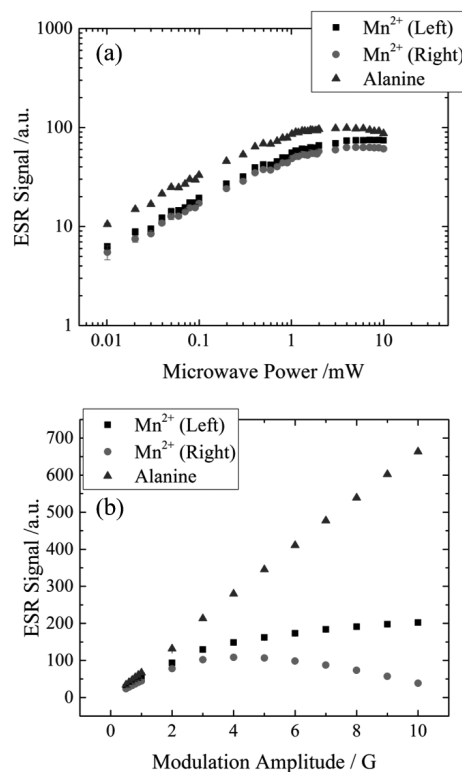


図6 ESR パラメータによる信号値の変化。四角が図4の低磁場側の Mn<sup>2+</sup> の信号、丸が高磁場側の Mn<sup>2+</sup> の信号、三角がアラニンの信号を表す。(a): マイクロ波の大きさを変えた時の信号値の変化。(パラメータは図4と同じ) (b) 変調磁場の大きさを変えた時の信号値の変化。(Microwave Power:4 mW. その他のパラメータは図4と同じ)



の大きさが 10 G までの範囲でアラニンの信号は線形に増加しているが、 $Mn^{2+}$  の信号は既に飽和に達するか、飽和に近付いているような傾向を示している。

アラニン線量計の特徴としては、測定可能な線量範囲が広いこと、不確かさの小さい測定が可能でありトランスファー標準線量計として適していること、アラニンの組成が水に近いこと等が挙げられる。アラニン線量計の一般的な測定可能範囲は 1 Gy から 100 kGy であるが、アラニンと母材の物質の混合比などによって測定可能な範囲は変わってくる。諸外国のアラニン線量計による加工レベルの水吸収線量の不確かさは、約 1% から 2% が達成されており ( $k=2$ )、2011 年に行われた加工レベルの水吸収線量の国際比較の際には、医療レベルから加工レベルの線量への拡張に LNE-LNHB, NIST, NPL, Risø-HDR1 の 4 つの研究機関がアラニン線量計を採用している<sup>24)</sup>。一方、アラニン線量計の欠点としては、吸光光度計などに比べて ESR 装置が高額なため、ルーチン線量計として導入するにはやや適さないことが挙げられる。また、アラニン線量計は照射前後の保存環境、照射から測定までの時間、ESR 信号の測定時の温湿度などによって若干信号が変化するが、前述したように適切な環境下で保存・測定を行えば、これらの影響を避けることができる。影響が無視できないものに関しては、補正係数を導入する必要がある。

フリック線量計は物理定数と測定値、補正係数のみを使用して吸収線量を求めることもできるため、校正曲線を得ずに吸収線量を導出することも可能であるが、アラニン線量計は校正曲線を導出しないうえ、アラニンの応答のみから吸収線量を導き出すことはできない。そのため、アラニン線量計の校正曲線を得る際に不確かさの小さい測定を実施することが、最終的なアラニン線量計の不確かさを小さくすることに繋がる。

#### 4. アラニン線量計を用いた加工レベル標準確立に向けて

加工レベル標準を確立した後、ユーザー施設のルーチン線量計を校正しなければならないが、この章で後述するように当研究室の照射装置は線量率が低いためキログレイレベルの照射が難しい。また、ユーザー施設的环境を考慮した校正を行うためにも、第 3 章で述べたユーザー施設での校正方法を採用する予定である。ユーザー施設での校正方法によってルーチン線量計の校正サービスを行っている他の標準研究機関では、第 3 章で述べたように、トランスファー標準線量計をユーザー施設に郵送し、ユーザーが照射を行った後に線量計を返送し、標

準研究機関で値を読み取るという方法で標準供給を行っている。標準確立後に実施する校正サービスは、このような郵送による供給を行う予定である。このため、物理的な測定方法（カロリメータ及び電離箱線量計）はユーザー施設の照射環境を考えると適当ではない。また、液体化学線量計を用いて最大で 100 kGy 程度まで範囲を広げる場合、濃度を変えた線量計が複数必要となること、また、溶液の精製に手間がかかることなどが考えられる。以上の事から、測定可能範囲が広く扱いが容易であるアラニン線量計がトランスファー標準線量計として最も適していると考え、アラニン線量計を用いて加工レベルの線量標準を確立する。この章では、アラニン線量計を用いた加工レベル線量標準確立に向けた課題や研究方針などを述べる。

#### 4.1 標準確立に向けた問題点

##### 4.1.1 照射装置について

加工レベル線量標準を確立するにあたり、まずは医療機器の滅菌などに広く用いられている  $^{60}Co$  の  $\gamma$  線の加工レベル線量標準を確立する。第 1 章で述べたように、これまで当研究室では医療レベルや防護レベルの放射線に対しての吸収線量標準を確立してきた。医療・防護レベルが主な対象であったため、当研究室で所有する最も放射能の大きい  $^{60}Co$  の  $\gamma$  線照射装置の線量率は、2016 年 12 月 15 日の時点で、線源から 1 m の基準点の位置で約 16.7 Gy/h 程度である。医療機器の滅菌で使用される線量が 25 kGy 程度であることやアラニン線量計の測定可能範囲などを考慮して、加工レベル線量標準は約 100 kGy 程度までの範囲で整備する予定であるが、当研究室の照射装置を用いてそのようなキログレイレベルの線量を照射すると、数か月かかることとなり現実的ではない。そのため、加工レベル照射施設と同様の、数 kGy/h の加工レベル線量率である外部研究機関の照射装置を利用して線量を拡大する予定である。

##### 4.1.2 加工レベルの線源の線量率の測定)

加工レベル線量率の線源は、医療レベル線量率の線源とは照射装置そのものの仕組みや形状が異なっている。加工レベル線量標準の  $\gamma$  線源として主に使用されているガンマセルという照射装置は、装置の特性上、装置内に水槽を置いて水吸収線量率を絶対測定することが難しい。例えば NIST では、アラニン線量計そのものを介して加工レベルの照射場に値付けを行っている。彼らは、既知の線量率の医療レベル  $\gamma$  線源と未知の線量率の加工レベル  $\gamma$  線源に対して、アラニン線量計の応答を照射時間で割った値を比較し、加工レベルの線量率を求めている。

る<sup>26)</sup>。しかし、加工レベルの線源においても水吸収線量率を絶対測定することが、アラニン線量計の検量線の横軸である水吸収線量を正確に決定するために必要となる。そのため、水槽を置いた測定が可能な加工レベル線量率の照射場において、カロリーメータなどによる測定を行い、水吸収線量率を正確に決定する予定である。

#### 4.2 今後の研究計画

加工レベル線量標準確立に向けた今後の研究計画を図7に示す。まず、アラニンペレットを封入するホルダー(容器)の設計を行う。アラニンペレットはこのホルダーに入れた状態で照射を行う。水吸収線量は一次標準器による水中での測定値に基づいて定義されているため、アラニン線量計も水中での照射を行い、測定値を確認する必要がある。水吸収線量の定義は吸収体がすべて水である場合の吸収線量であるが、水中でアラニン線量計を照射する場合、ホルダーや防水鞘の影響が考えられる。そのため、水吸収線量を求めるためにはこれらの影響を考慮した補正係数  $k_{water}$  が必要となる。また、アラニン線量計は基本的に空気中で照射を行うので、空気中照射での吸収線量を水中での吸収線量に変換するための係数  $k_{air}$  も必要である。これら2つの補正係数を、モンテカルロシミュレーションによる計算と実験による測定値を比較し、導出する(図8)。ESR測定に関しては、第3章で述べたようにマイクロ波の大きさや変調磁場の大きさなど可変なパラメータが複数あり、これらのパラメータによって測定値は変化する。そのため、ESR測定のパラメータの最適化を行う。産総研での照射は約0.01 kGy から0.2 kGy までの吸収線量範囲で行う。この範囲中の複数の線量点で照射を行い、アラニン線量計のESR信号を測定する。線量率、照射中の温度、ESR測

定時の温度などを変化させて測定し、ESR信号がどのように変化するか調べる。前述した線量範囲での照射が終わったら、外部機関にて照射を行う。前項で説明したように、まずは線量率の決定を行う。その後、最大100 kGy までの吸収線量範囲で照射を行う。加工レベル領域でも同様に、線量率、照射中の温度、ESR測定時の温度などを変化させてESR信号を測定する。

上記と並行して、アラニン線量計の信号値を得るにあたり、どのような基準物質を用いるか、バックグラウンドの信号をどのように差し引くかなど、ESR信号の解析方法の検討を行う。また、線量を拡大していく中で、適宜ESRパラメータの最適化を再度行う。アラニン線量計の信号は時間と共に減衰していくので、減衰率の評価を行う。

線量の拡張が完了したら、吸収線量とアラニン線量計の信号を対応付けた校正曲線を導出する。上記の実験から校正定数や補正係数、最終的な水吸収線量測定の不確かさを導出する。拡張不確かさ ( $k=2$ ) が2%以下になることが目標である。この目標が達成でき次第、校正サービスを開始する。諸外国の研究機関と国際比較を行い、アラニン線量計による水吸収線量測定値に同

- アラニンホルダーの設計
- モンテカルロシミュレーションによる計算
- ESRパラメータの最適化
- 産総研での照射、測定
- 線量率依存性、照射温度依存性、測定温度依存性などの検討
- 外部機関での照射
- 線量率依存性、照射温度依存性、測定温度依存性などの検討
- ESR信号の解析方法の検討
- 長期的な応答の減衰率の評価
- 校正定数、補正係数、不確かさの導出
- 校正サービスの開始
- 諸外国の研究所と国際比較
- BIPMのCMCsへの登録

図7 加工レベル線量標準確立に向けた研究計画

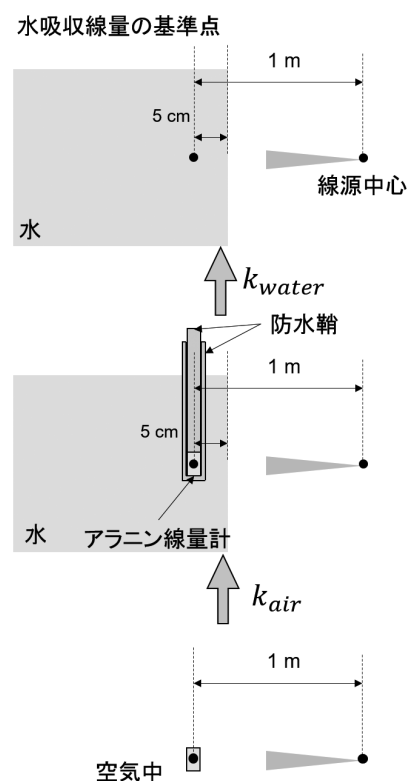


図8 空気中の照射から水吸収線量への変換に必要な補正係数

等性が認められたら、BIPMのCMCs (Calibration and Measurement Capabilities) への登録を行う。また、加工レベル $\gamma$ 線の線量標準の確立と平行して、加工レベルの電子線についても同様の手順で線量標準確立を目指す。

## 5. アラニン線量計の医療応用

前章まで、加工レベル線量標準確立に向けたアラニン線量計による線量測定について述べてきた。アラニン線量計はキログレイレベルの線量を小さい不確かさで測定するのに優れた線量計であるが、より低線量領域である放射線治療領域にアラニン線量計を応用する研究も行われている。主に放射線治療のQA (Quality Assurance: 品質保証) のための線量計として研究がされており、NPLなどではQAのための郵送線量計サービスを行っている。アラニン線量計が放射線治療の線量計として有効な理由として、線量計が小さく局所領域の線量が測定できること、アラニンが水等価に近い物質であること、信号の読み出しによって信号が消滅しないことなどが挙げられる。また、電離箱などの物理的な測定手法と異なり、施設間で線量計を郵送し照射を行い、返却した後に線量測定を行えることは、施設間の直接比較という点で優れている。この章では、アラニン線量計による放射線治療領域の研究例について、簡単に紹介する。

### 5.1 放射線の線質の違いについて

放射線治療で用いられている放射線にはX線、電子線、 $\gamma$ 線、重粒子線(陽子線、炭素線)など様々な種類がある。最も広く普及している放射線治療は小型線形加速器(リニアック)によるX線治療である。これは、線形加速器によって高速に加速された電子をタングステンなどの金属ターゲットに衝突させ、高速電子と金属の相互作用により発生したX線を利用して治療を行うものである。第1章で述べたように、放射線治療では人体が対象であり、水吸収線量の測定によって品質管理がなされている。水吸収線量の標準は $^{60}\text{Co}$ の $\gamma$ 線に対して確立されている場合が多いが、 $^{60}\text{Co}$ の $\gamma$ 線とX線や電子線、重粒子線ではそれぞれ放射線の種類やエネルギー(線質)が異なっている。そのため、線量計の物質、線量計に与えられた線量が同じであっても、線量計の応答が異なる場合がある。電離箱線量計による水吸収線量測定ではこれを補正するために、線質変換係数 $k_Q$ を導入している。アラニン線量計による吸収線量測定では、線質の違いによるアラニン線量計の応答の変化について研究されており、ここではX線と電子線を例に紹介する。

Zengら<sup>27)</sup>やAntonら<sup>28)</sup>の研究によると、 $^{60}\text{Co}$ の $\gamma$ 線に対する応答を基準としたとき、6~25MVの治療用X線に対するアラニン線量計の応答は1%前後低くなっていることが明らかにされている。このように治療用X線に対する応答の方が低くなった理由としては、治療用X線は $^{60}\text{Co}$ の $\gamma$ 線よりも高エネルギーであり、二次電子のエネルギーは $^{60}\text{Co}$ の $\gamma$ 線によって生成されるものより高いため、二次電子に対する阻止能が低くなっていることが挙げられている。また、X線のエネルギーが高くなるほどアラニン線量計の応答が低くなる傾向があることも示されている。

電子線に対しても $^{60}\text{Co}$ の $\gamma$ 線と比較したとき、アラニン線量計の応答は低くなることが示されている<sup>29)</sup>。また、アラニン線量計を郵送しNRC (National Research Council)、NPL、METAS (Federal Institute of Metrology)の3機関の間での電子線照射を実施した結果では、 $^{60}\text{Co}$  $\gamma$ 線を基準としたときの12~22MeVの電子線に対するアラニン線量計の応答が、過去の研究によって示されている値の範囲内で一致していることが確認されている。

### 5.2 高感度な測定について

アラニン線量計をキログレイレベルの線量を測定するために使用する場合、測定される信号はバックグラウンドの信号に比べて非常に大きい。一方、放射線治療レベルの線量をアラニン線量計で測定する場合、バックグラウンドの信号の影響が大きくなるため、S/N比 (Signal-to-Noise Ratio) が低下する。このため、数Gy程度の線量の領域では測定の不確かさが大きくなることが示されている<sup>30)</sup>。低線量でも信号量が大きい測定、つまり、高感度な測定が可能になれば不確かさを小さくすることが期待できる。高感度な測定のためには、信号の測定や解析を工夫する方法とアラニンよりも高感度なESR線量計を開発することの2種類の方法がある。

信号の測定や解析を工夫する方法では、Ruckerbauerら<sup>31)</sup>が、アラニン線量計の信号に含まれるノイズやバックグラウンドをフィルタリングするために高速フーリエ変換 (FFT) を利用してESRスペクトルの解析を行っている。この結果によると、0.2 Gyから5 Gyの範囲でアラニン線量計の応答の線形性が確認されている。全く異なる手法として、Haskellら<sup>32)</sup>はキャビティ内に $\text{Mn}^{2+}$ の標準サンプルを固定し、照射したアラニンと空のホルダーのスペクトルに対して $\text{Mn}^{2+}$ のピーク位置を基準にいくつかの処理を施すことで、高感度な測定を実現している。また、照射したアラニンに現れる3つのピー



クの積算値をアラニンの応答として利用している。これにより、1 Gy 以下の 22 mGy から 230 mGy 程度の範囲での測定を可能にしている。

高感度な線量計の開発としては、乳酸リチウムやクエン酸マグネシウムなど、人体等価な線量計のために有機酸と軽金属を用いた線量計が主に開発されてきた<sup>33)</sup>、<sup>34)</sup>。また、有機酸と結合している軽金属イオンと異なる価数の金属イオンを含ませることで、発生ラジカルを捕獲しやすくし、より高感度な線量計の開発例もある。これらの線量計はアラニン線量計よりも約5～8倍程度の感度を有していることが明らかにされている。その他にも、ジオチン酸カリウムを用いた線量計<sup>35)</sup>や、ジオチン酸アンモニウムを用いた線量計<sup>36)</sup>なども開発されており、どちらの線量計でもアラニン線量計よりも高い感度が得られる。

## 6. まとめ

本調査研究では、現在日本国内で整備されていない加工レベルの水吸収線量の確立に向けて、加工レベル線量のトレーサビリティ体系や測定手法など標準確立の基礎となる部分についてまとめた。加工レベル照射施設に特有な照射条件や、測定可能な線量範囲を考慮して、アラニン線量計がトランスファー標準線量計として有用であると考えられるため、今後、アラニン線量計を用いて加工レベル線量標準を確立する予定である。産総研ではキログレイレベルの照射を行うのに十分な線量率の線源がないため、外部機関の加工レベルの線源を用いてキログレイレベルの照射を行うことを計画している。工業利用などの加工レベルの線量領域だけでなく、放射線治療におけるQAのための水吸収線量測定にもアラニン線量計を応用していく。しかし、アラニン線量計は放射線治療領域の線量ではバックグラウンドの影響が大きくなってしまいうため、信号の解析方法やアラニン以外の高感度な線量計の開発などに取り組みたいと考えている。

## 謝辞

本調査研究をまとめるにあたり、計量標準総合センター研究戦略部 齋藤総括企画主幹、分析計測標準研究部門放射線標準研究グループの諸先輩方に貴重なご指導をいただきました。ここに厚く御礼申し上げます。また、分析計測標準研究部門 鈴木首席研究員には本論文を完成させる際に多くの助言をいただきました。心より感謝いたします。

## 参考文献

- 1) 放射線利用の経済規模に関する調査報告書, 独立行政法人原子力研究開発機構 (2005)
- 2) McLaughlin, W.L., Boyd, A. W., Chadwick, K. H., McDonald, J. C., and Miller, A. *Dosimetry for Radiation Processing*, Taylor and Francis, London, U.K., (1989)
- 3) 小嶋拓治, 清藤一, 大線量域の放射線計測とその応用, 計測標準と計量管理, 57, (2007), 23-28.
- 4) Morishita, Y., Kato, M., Takata, N., Kurosawa, T., Tanaka, T. and Saito, N. *A standard for absorbed dose rate to water in a <sup>60</sup>Co field using a graphite calorimeter at the national metrology institute of japan*. Radiat. Prot. Dosim. 154, (2013), 331-339.
- 5) Shimizu, M., Morishita, Y., Kato, M., Tanaka, T., Kurosawa, T., Takata, N., Saito, N., Ramanathan, G., Harty, P.D., Oliver, C., Eright, T. and Butler, D.J. *Comparison of the NMIJ and the ARPANSA standards for absorbed dose to water in high-energy photon beams*. Radiat. Prot. Dosim. 164, (2014), 181-186.
- 6) *Dosimetry systems for use in radiation processing*, ICRU report No.80
- 7) 食品への放射線照射についての科学的知見のとりまとめ業務報告書, 株式会社三菱総合研究所 (2008)
- 8) *Fundamental quantities and units for ionizing radiation*, ICRU report No.85
- 9) 清水森人, 医療用リニアックからの高エネルギー光子線の水吸収線量標準に関する調査研究, 産総研計量標準報告 Vol.8 (2013), 465-481
- 10) 齋藤則生, 黒澤忠弘, 森下雄一郎, 加藤昌弘, 放射線標準の現状と展望, 計測標準と計量管理, 57, (2007), 2-13.
- 11) ISO 51261:2013, *Practice for calibration of routine dosimetry systems for radiation processing*.
- 12) *Dosimetry of high-energy photon beams based on standards of absorbed dose to water*, ICRU report No.64
- 13) Petree, B., and Lamperti, P. *A comparison of absorbed dose determinations in graphite by cavity ionization measurements and by calorimetry*. J. Res. NBS C 71, (1967), 19-27.
- 14) Domen, S.R., and Ba, W. *A polystyrene absorbed-dose-rate calorimeter*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 24, (1987), 1054-1057.
- 15) Tanaka, R., Kaneko, H., Tamura, N., Katoh, A., and



- Moriuchi, Y. *Standard measurement of processing level gamma ray dose rates with a parallel-plate ionization chamber*. In Proceedings of the International Symposium on High-dose Dosimetry for Radiation Processing. STI/PUB/617, IAEA, Vienna, (1984), 203-220.
- 16) *The Dosimetry of Pulsed Radiation*, ICRU report No.34
- 17) Burns, D. T., Allisy-Roberts, P. J., Desrosiers, M. F., Nagy, V. Y., Sharpe, P. H. G., Laitano, R. F., Mehta, K., Schneider, M.K.H., and Zhang, Y. L. *CCRI supplementary comparison of standards for absorbed dose to water in <sup>60</sup>Co gamma radiation at radiation processing dose levels*. Radiation Physics and Chemistry, **75**, (2006), 1087-1092.
- 18) Takehisa, M., Sato, Y., Sasuga, T., Haneda, N., Haruyama, Y. and Sunaga, H. *Gamma-ray response of a clear, crosslinked PMMA dosimeter, Radix W*. Radiation Physics and Chemistry, **76**, (2007), 1619-1623.
- 19) 伊達宗行, 新物理学シリーズ 20 電子スピン共鳴, 培風館, 東京, 1978
- 20) 電子スピンサイエンス学会 監修, 入門電子スピンサイエンス & スピントテクノロジー, 米田出版, 千葉, 2010
- 21) Kojima, T., and Tanaka, R. *Polymer-alanine dosimeter and compact reader*. International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes, **40**, (1989), 851-857.
- 22) Janovský, I., Hansen, J. W., and Černoch, P. *A polymer-alanine film for measurements of radiation dose distributions*. International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes, **39**, (1988), 651-657.
- 23) ISO 51607:2013, *Practice for use of an alanine-EPR dosimetry system*.
- 24) Burns, D. T., Allisy-Roberts, P. J., Desrosiers, M. F., Sharpe, P. H. G., Pimpinella, M., Lourenço, V., Zhang, Y.L., Miller, A., Generalova, V. and Sochor, V. *Supplementary comparison CCRI (I)-S2 of standards for absorbed dose to water in <sup>60</sup>Co gamma radiation at radiation processing dose levels*. Metrologia, **48**, (2011), 1-18.
- 25) Sharpe, P., and Miller, A. *Guidelines for the calibration of routine dosimetry systems for use in radiation processing*. NPL Report CIRM 29 (2009).
- 26) Desrosiers, M. F., J. M. Puhl, and S. L. Cooper. *An absorbed-dose/dose-rate dependence for the alanine-EPR dosimetry system and its implications in high-dose ionizing radiation metrology*. Journal of research of the National Institute of Standards and Technology 113.2 (2008), 79.
- 27) Zeng, G. G., McEwen, M. R., Rogers, D. W. O., and Klassen, N. V. *An experimental and Monte Carlo investigation of the energy dependence of alanine/EPR dosimetry: I. Clinical x-ray beams*. Physics in medicine and biology **49** (2004), 257.
- 28) Anton, M., Kapsch, R. P., Krauss, A., von Voigts-Rhetz, P., Zink, K., and McEwen, M. *Difference in the relative response of the alanine dosimeter to megavoltage x-ray and electron beams*. Physics in medicine and biology **58** (2013), 3259.
- 29) Zeng, G. G., McEwen, M. R., Rogers, D. W. O., and Klassen, N. V. *An experimental and Monte Carlo investigation of the energy dependence of alanine/EPR dosimetry: II. Clinical electron beams*. Physics in medicine and biology **50** (2005), 1119.
- 30) Nagy, V., Sholom, S. V., Chumak, V. V., and Desrosiers, M. F. *Uncertainties in alanine dosimetry in the therapeutic dose range*. Applied Radiation and Isotopes **56** (2002), 917-929.
- 31) Ruckerbauer, F., M. Sprunck, and D. F. Regulla. *Numerical signal treatment for optimized alanine/ESR dosimetry in the therapy-level dose range*. Applied radiation and isotopes **47** (1996), 1263-1268.
- 32) Haskell, E. H., R. B. Hayes, and G. H. Kenner. *A high sensitivity EPR technique for alanine dosimetry*. Radiation protection dosimetry **77** (1998), 43-49.
- 33) Hassan, Gamal M., Motoji Ikeya, and Shin Toyoda. *Lithium lactate as an ESR dosimeter*. Applied radiation and isotopes **49** (1998), 823-828.
- 34) 田丸浩太郎, 手島豊志, 岡俊英, HASSAN, G. M., 池谷元何. 有機酸塩による生体組織等価な高感度 ESR 放射線量計素子. Radioisotopes **50** (2001), 317-325.
- 35) Lund, A., Olsson, S., Bonora, M., Lund, E., and Gustafsson, H. *New materials for ESR dosimetry*. Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy **58** (2002), 1301-1311.
- 36) Danilczuk, M., Gustafsson, H., Sastry, M. D., Lund, E., and Lund, A. *Ammonium dithionate—A new material for highly sensitive EPR dosimetry*. Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy **69** (2008), 18-21.