

JAERI-M

5863

BeO:Na エクソ電子線量計・1  
BeO:Na の  $\gamma$  線に対するレスポンス

1974年10月

大谷 曉・河合 勝雄・沼宮内 強雄

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

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合せは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

BeO : Na エクソ電子線量計。1

BeO : Na の  $\gamma$  線に対するレスポンス

日本原子力研究所保健物理安全管理部

大谷 晓・河合勝雄・沼宮内弼雄

( 1 9 7 4 年 9 月 1 0 日受理 )

BeOにNaをドープした(BeO:Na)試料のエクソ電子線量計としての特性と、試作した測定装置の特性について述べた。

試料は 500°Cで1時間アニールしたのち、 $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線を照射し、ヒータで加熱昇温したとき放出されるエクソ電子をガスフロー型GM計数管で検出した。検出器は、ヒータの昇温速度が 0.4 ~ 3.0 °C/sec, 加熱温度が室温 ~ 500°Cで動作する。エクソ電子の測定は、積算値の計数、グロー曲線のアナログおよびデジタル記録などによって行った。

BeO:Na粉末試料のグロー曲線は 380°Cに主ピーク、460°Cに小ピークを示し、積算計数値の再現性は平均値の ± 3%以内であった。主ピークの積算計数値は、グロー曲線をガウス分布で近似し計数落しを補正した。その結果、試料のレスポンスは(線量)<sup>0.91</sup>に比例し、0.01mRまで測定できることが明らかになった。表面にアカダックを塗布したセラミック試料の特性についても述べた。

JAERI-M 5863

BeO:Na Exoelectron Emission Dosimeter · 1

Response of BeO:Na for  $\gamma$ -Radiation

Satoru OHTANI, Katsuo KAWAI and Takao NUMAKUNAI

Division of Health Physics and Safety, JAERI

(Received September 10, 1974)

Dosimetric characteristics of Na-doped BeO (BeO:Na) and properties of the instrument prepared for measuring the thermally stimulated exoelectron emission are described. The BeO:Na sample was irradiated by  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ -rays after annealing at 500°C for one hour. The sample was then heated electrically; the heating rate was from 0.4 to 3.0°C/sec, in the range of temperature to 500°C. Emitted exoelectrons were detected by a gas-flow GM-counter. The output of the counter was recorded as an integrated count, and analogue and digital mode of glow-curve. The BeO:Na powder sample exhibits glow-curve having a main peak at 380°C and a small peak at 460°C; reproducibility of integrated count is  $\pm 3\%$  of the mean value. The integrated count of the main peak was corrected for the counting loss of the counter, approximating the glow-curve to be the Gaussian distribution. The response of BeO:Na powder sample for  $\gamma$ -rays is then proportional to  $(\text{dose})^{0.91}$ . The lower detectable dose limit is 0.01 mR. Characteristics of the Aquadag-coated ceramic sample is also described.

## 目 次

|                    |    |
|--------------------|----|
| 1.はじめに             | 1  |
| 2.装置               | 2  |
| 2.1 検出器            | 2  |
| 2.2 温度制御装置         | 4  |
| 2.3 読取装置           | 4  |
| 2.4 照射装置           | 4  |
| 3.試料               | 6  |
| 4.実験結果             | 6  |
| 4.1 グロー曲線と再現性      | 6  |
| 4.2 線量-TSEEレスポンス   | 8  |
| 5.考察               | 10 |
| 5.1 アクチベータの効果      | 10 |
| 5.2 黒鉛添加の効果        | 10 |
| 5.3 最低検出限界線量       | 12 |
| 6.まとめ              | 13 |
| 付録 ガウス分布近似による計数値補正 | 15 |

## 1. はじめに

固体試料に機械加工、相転移、分極効果、化学反応あるいは放射線照射などの刺激を与えると、試料表面から数 eV 以下の低エネルギー電子が放射される。刺激を停止すると時間経過とともに電子放射は減衰するが、減衰後、試料に加熱または光照射などの二次刺激を与えると再び電子放射が起こる。これらの電子放射をエクソ電子放射 (exoelectron emission, EE) またはKramer効果と呼ばれ、特に二次刺激が熱の場合をTSEE (thermally stimulated exoelectron emission), 光の場合をOSEE (optically stimulated exoelectron emission) と区別している。TSEEの場合、昇温速度を一定にして試料を加熱すると、試料の特性と一次刺激の特性とに依存して、特定温度のときに電子放射の極大を示すようなTSEE グロー曲線（以下グロー曲線と略記）が得られる。

Kramer は Spitzenzahler と呼ぶ計数管を用いたTSEE検出器を考案し、はじめて、種々の金属、非金属、無機の結晶に関するEEの詳細な研究結果を報告した。<sup>1)</sup>その後、CaSO<sub>4</sub>やNaClなどの物質にX線を照射したときのTSEEの計数値が線量に依存することが報告され、<sup>2)3)4)</sup>それ以来線量計測への応用が盛んに行われるようになった。<sup>5)6)</sup> EEを線量計に応用したときの主な特徴は、試料の表面 10~100 Å のごく薄い層が有感部であることと、放射線に対する感度が極めて高いことである。<sup>5)</sup>一方、表面状態が物理的、化学的に不安定な試料は環境条件の影響を受けやすく、測定結果の再現性が乏しい場合が多い。さらに、同種類の素材を使い同じ方法で調整しても、試料の不純物成分や試料調整の僅かな差異がEEに大きく影響して同一結果を得られないことが多いなど、EEを線量計として実用化するには未だ多くの問題点が残されている。<sup>7)</sup>

本研究の目的はEEのすぐれた特性を生かして高感度で安定な特性をもつTSEE線量計素子を開発し、これにより混合放射線場で  $\gamma$  線量と中性子線量との分離測定が可能であるような小型高感度線量計素子と測定装置を開発することである。これらは個人被曝線量管理、局部被曝線量管理あるいは環境放射線の管理など低線量から高線量まで使用できる高領域線量計として実用化する予定である。

TSEE用素材としてはCaSO<sub>4</sub>のほかLiF, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, CaF<sub>2</sub>, BeO などが使用されている。これらの中でBeOは原子番号が人体軟組織に近い、高温でも物理的・化学的に安定である、放射線に対する感度が高い、グロー曲線のピーク温度が高いなどのすぐれた特性をもっている。さらに、セラミックにすることにより熱電導性が大きく、高硬度で、水や溶液に難溶であるなどの特性が加わり、素材として有望視されている。

本報告ではTSEE線量計実用化の第一段階として、試作したTSEE測定装置と、BeOにアクチベータとしてNaをドープした（以下BeO: Naと略記）試料の低線量域における実験結果について述べる。

## 2. 装 置

エクソ電子測定装置の製作にあたって特に次のことに留意した。すなわち、

- 1) 極低エネルギー電子線(EE)を高感度で再現性良く測定できる。
- 2) 試料温度が室温から500°Cまで使用できる。
- 3) 試料交換が容易で迅速にできる。
- 4) 試料加熱の際の昇温速度が一定でその設定範囲が広く、昇温開始、終了の温度を任意に設定できる。
- 5) 加熱停止後のヒータ冷却に要する時間が短い。
- 6) グロー曲線、任意温度間の計数値、総計数値が得られ、電子計算機によるデータ処理が可能である。

以上のこと考慮して、検出器としては試料内挿型で温度制御装置により任意の昇温速度で測定試料を加熱できるガスフロー型GM計数管を、読取装置としてはスケーラ、計数率計-レコーダ、variable time base counter-プリンタ/紙テープパンチャを用いた。**Fig. 1**に試作したTSEE測定装置のブロックダイヤグラムを示した。以下に装置の主な部分の概要について述べる。

### 2.1 検出器

試作したTSEE検出器の概略を**Fig. 2**に示した。計数管は市販のGM計数管(釣鐘形で管の内径が5.0mm, ループ状の陽極をもつ)<sup>\*1</sup>を試料内挿型で使用できるように入射窓のマイカを取除きガスフロー型に改造したもので、Qガス(ヘリウム:99%+イソプロタン:1%)を使用して動作させた。計数管のガス流出口に流量計を接続して流量を調節しガス流量の違いによる加熱の際の試料温度の差および計数特性の変化を抑制した。流量は試料交換後1分間は4.00ml/minで残留ガスを置換し、測定開始後は4.0ml/minとした。

試料加熱用ヒータは2.4mm×0.34mmのニクロム・リボン約1mを渦巻状にし、直径3.0mmのステンレス製の皿に耐熱材<sup>\*2</sup>を使って電気絶縁して収めたものである。このヒータで銀の熱伝導体を通して白金製の試料保持台を加熱する。この試料保持台は直径1.6mm、厚さ0.3mmで、計数管の陰極としてアース電位に保つ。試料保持台の直下と銀の熱伝導体中とにそれぞれステンレスで絶縁した外径1.6mmのクロメル-アルメル熱電対を組んだ。熱電対の出力はヒータ温度測定用と温度制御用の信号とに使用した。

昇温にともなう計数特性の変動を抑制するため計数管の周囲を水冷で使用した。また、加熱停止後のヒータ冷却用としてヒータ下部にファンを装備している。測定試料の交換は、計数管部分をハンドルによって上に持上げ、容易にできる。

ヒータ温度が25~500°Cと550°Cにおける天然ウランのβ線に対するGM計数管のプラト特性を**Fig. 3**に示した。使用電圧は1450Vで、ヒータ温度が500°Cまで計数特性的変化はないが、それ以上の温度では計数率が増加する。なお、25~500°Cにおける計数管

脚註 \*1 Aloka GM-5004 (日本無線医学研究所製)

\*2 Sauereisen セメント (日機装K.K.)

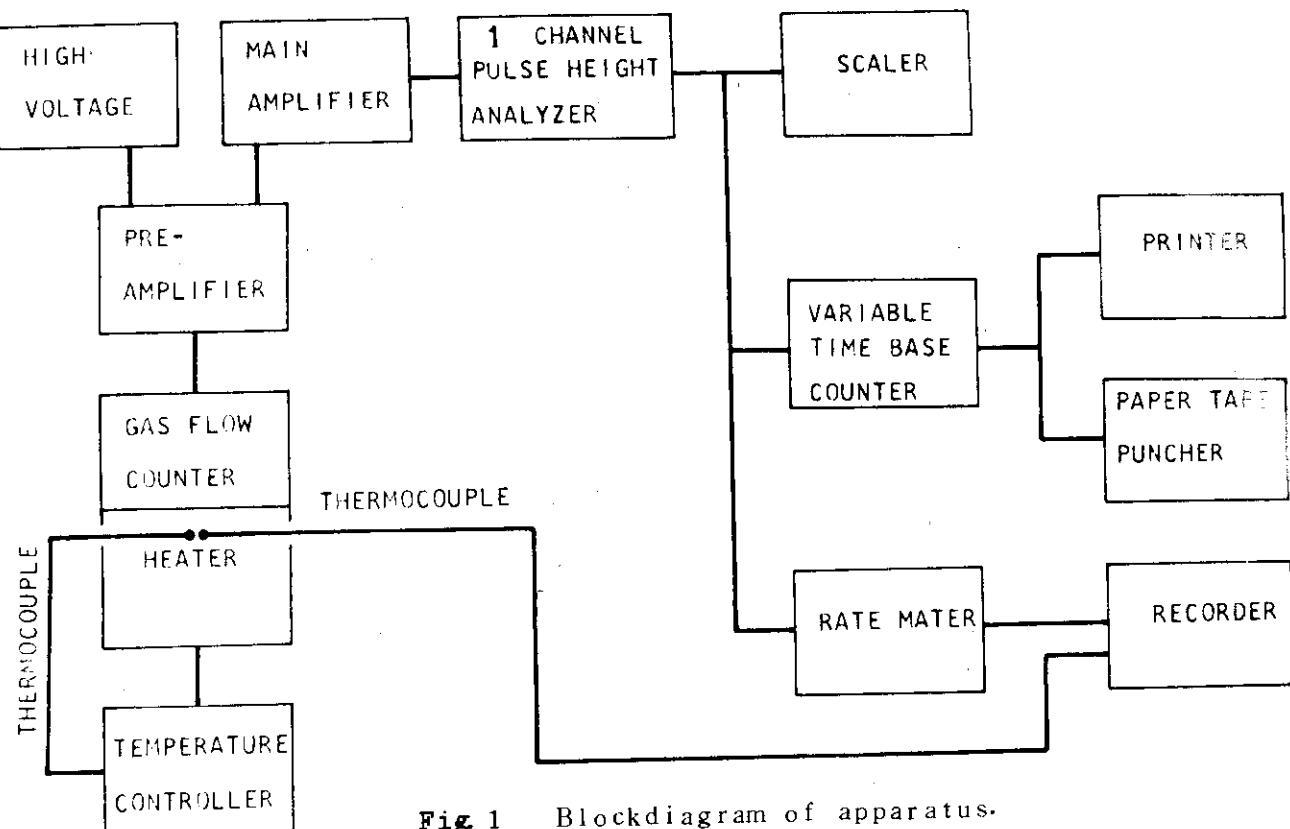


Fig. 1 Blockdiagram of apparatus.

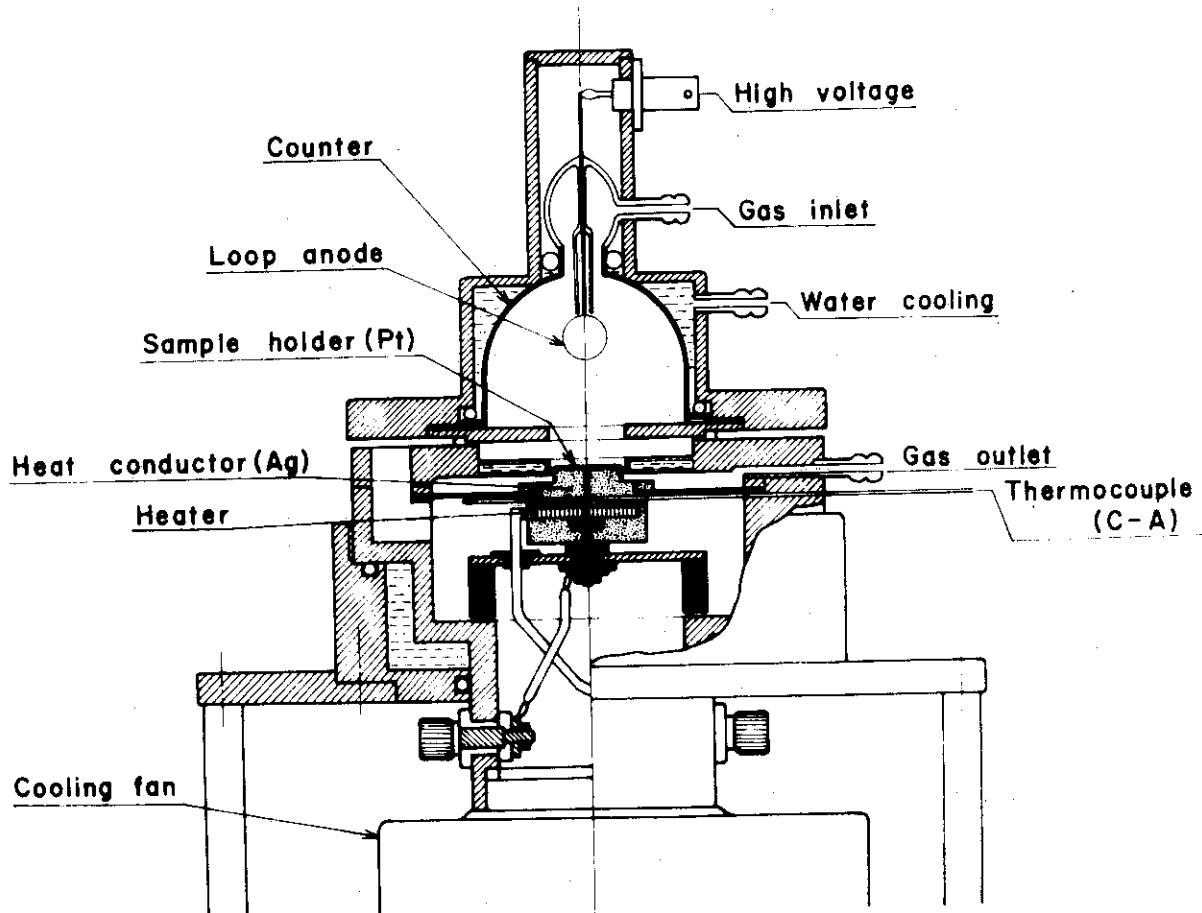


Fig. 2 Detector for TSEE measurement.

のバックグラウンド(以下BGと略記)の計数率は $1.0 \text{ c/sec}$ , 不感時間は $70 \mu\text{sec}$ である。

## 2.2 温度制御装置

再現性の良いグロー曲線を得るために試料を一定の昇温速度で加熱することが必要である。<sup>9)</sup>そのため、温度制御装置はThorngateが開発した線型昇温回路<sup>9)</sup>を改良して試作した。すなわち、一定の昇温速度で加熱する場合は、定電流回路によって充電され昇圧している蓄電器の電圧を基準電圧とし、それとヒータ温度を測定する熱電対の出力とを比較して差動増巾し、その出力によってヒータに供給する電流を制御する。また、ヒータ温度を定温に保持する場合は、基準電圧を一定値に保持することによって可能である。ヒータの昇温開始温度、終了温度および昇温速度は10回転ヘリポットによって任意に設定できる。

試作した装置の特性をFig. 4に示した。使用範囲は昇温速度が $0.4 \sim 7.5 \text{ }^{\circ}\text{C/sec}$ 、加熱温度は室温～ $700 \text{ }^{\circ}\text{C}$ である。前述のTSEE検出器に接続した場合は、ヒータの出力と熱容量により、昇温速度は $0.4 \sim 3 \text{ }^{\circ}\text{C/sec}$ まで使用可能で、高昇温率のときは高温域で昇温の直線性が低下するが、昇温の再現性は良好である。本報告の実験ではすべて、昇温速度を $2.5 \text{ }^{\circ}\text{C/sec}$ に設定して行った。

## 2.3 読取装置

TSEEの測定結果は、Fig. 1のブロックダイヤグラムに示したように、計数管の出力を増巾し、波高弁別した後、次の三種類の方法で読取ることができる。

1) 積算計数値のスケーラによる表示。これにより、線量-TSEEのレスポンスの関係がわかつていれば線量が求まる。

2) 計数率変化のレコーダによる記録。このとき、多ペンレコーダを使用してヒータ温度の変化も同時に記録する。これにより、TSEEグロー曲線が得られ、ピーク温度、ピークの広がりなどのTSEE特性が求まる。

3) 任意に設定した時間間隔ごとの計数値の記録。時間間隔はvariable time base counterにより $10^{-8} \sim 10^4 \text{ sec}$ の範囲で設定でき、設定時間毎の計数値は逐次プリンタまたは紙テープパンチャに記録できる。プリンタによる記録はグロー曲線の中から着目した温度範囲の積算計数値を求めるのに利用する。紙テープパンチャによる記録は多数のデータの処理やグロー曲線の解析などで電子計算機を使用するときに利用する。なお、現在使用しているこれらの機器では1記録毎の不感時間は $1 \text{ msec}$ 、プリンタまたは紙テープパンチャの記録の繰返し速度は最大で毎秒3回である。

## 2.4 照射装置

試料の照射に使用した放射線源は $2 \text{ mm} \phi \times 2 \text{ mm}$ の $^{60}\text{Co}$ (~40 mCi)で、鉛製の透過検査用照射容器に納めて使用した。照射は、 $\gamma$ 線のビームの中心上 $0.25 \sim 1.00 \text{ m}$ の位置に試料を置いて行い、線量は距離と時間を変えて加減した。使用に先立ち、VictoreenのRメータによって線量を校正した。Fig. 5に線源から各距離における線量率の測定結果を示した。

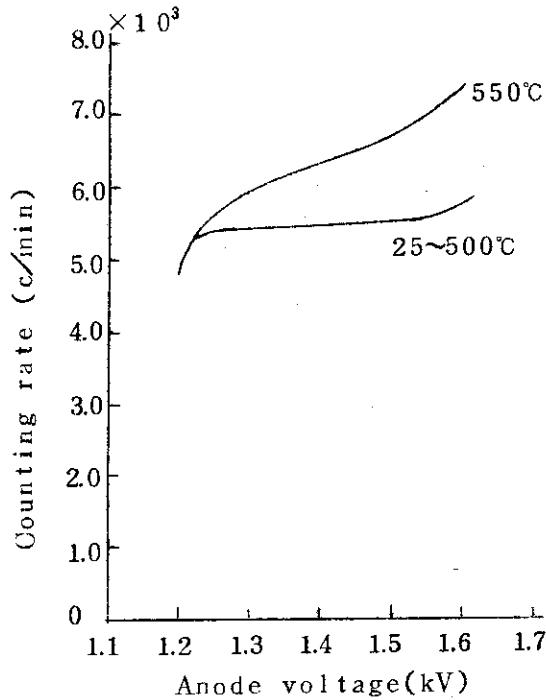


Fig. 3 Plateau characteristics of the gas-flow GM-counter to  $\beta$ -rays of natural uranium at heater temperatures of 25~500°C and 550°C

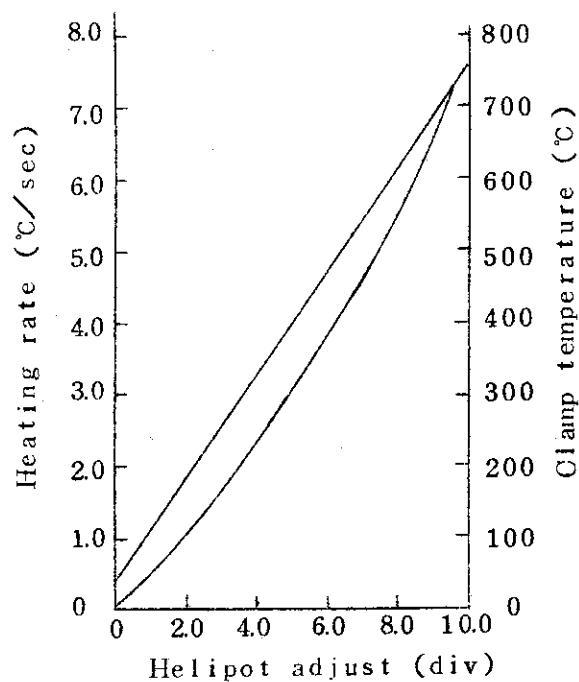


Fig. 4 Heating rate and clamp temperature characteristics of the temperature controller.

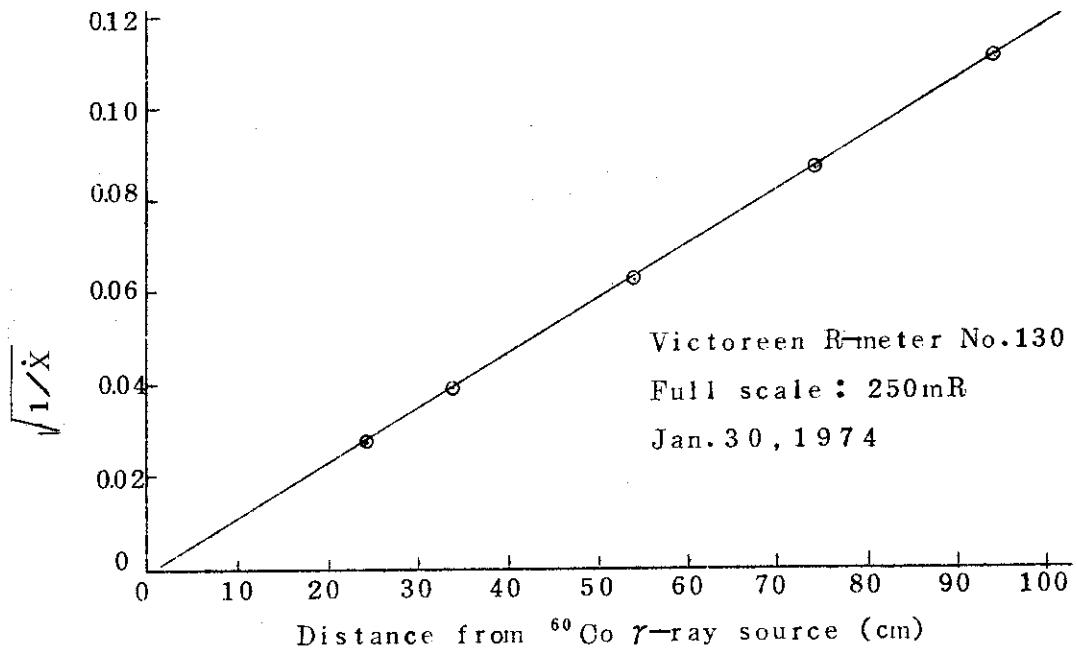


Fig. 5 Calibrated exposure rate of  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ -ray source by Victoreen R-meter at various distances.  
 $X$  : exposure rate (mR/hr)

### 3 試 料

$\text{BeO:Na}$  は、純度 99.9% の  $\text{BeO}$  粉末に  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  粉末を添加混合し、酸化性雰囲気中  $1200\sim1800^\circ\text{C}$  で焼成したもので、 $\text{Na}$  のモル分率は ~ 0.2 % である。実験に使用した試料は、これを粉碎し、粒径が  $0.1\sim0.3\text{ mm}$  の無定形の粉末試料と、細粉化して  $1400\sim1550^\circ\text{C}$  で焼成し、 $6\text{ mm} \phi \times 0.5\text{ mm}$  の円板状にしたセラミック試料の二種類である。

試料皿の寸法は外径  $15\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ 、内径  $12\text{ mm} \times 0.5\text{ mm}$  で、材質は原子炉用黒鉛である。試料取扱中の機械的刺激によって生ずる偽の E.E を防止するため、試料のアニール、照射、測定に際してはすべてこの試料皿を使用した。

試料は予め磁製ルツボに入れ、電気炉内で  $900^\circ\text{C}$ 、1 時間のアニールを行い、不安定なトラップを除去した。粉末試料の場合は試料皿に天秤で  $20\text{ mg}$  を定量し、粉末粒子が皿の底面にほぼ一層になるよう平均に分散させて使用し、セラミック試料の場合は試料皿の中央に置いて使用した。試料皿に入れた試料は使用前に  $500^\circ\text{C}$  で 1 時間のアニールを行い、試料調整の際の機械的刺激や BG 放射線の影響を除去した。

### 4 実 験 結 果

#### 4.1 グロー曲線と再現性

試料調整後、 $500^\circ\text{C}$  で 1 時間アニールした  $\text{BeO:Na}$  粉末試料の  $480^\circ\text{C}$  までのグロー曲線と、計数管自体の BG によるグロー曲線との差異は認められなかった。このことから、アニールすることによって測定した温度範囲の T.S.E.E に寄与するトラップはすべて空の状態になると推定できる。

$\gamma$  線照射した  $\text{BeO:Na}$  粉末試料のグロー曲線はヒータ温度  $380^\circ\text{C}$  に主ピークと、 $460^\circ\text{C}$  に小ピークを有する。 $380^\circ\text{C}$  のピークはガウス分布型を示し、ピークの半値巾の温度は約  $70^\circ\text{C}$  である。 $460^\circ\text{C}$  のピークの、 $380^\circ\text{C}$  のピークに対する高さの割合は、照射線量が  $50\text{ mR}$  以下の低線量域ではほぼ 0.05 で、線量がこれより増加すると高さの割合が増大し、 $1\text{ R}$  では 0.1 となる。

試料の導電性を高めるために  $\text{BeO:Na}$  粉末に黒鉛粉末を添加混入した試料のグロー曲線を Fig. 6 に示した。試料は  $\text{BeO:Na}$  粉末  $20\text{ mg}$  に黒鉛粉末をそれぞれ 1)  $0\text{ mg}$ 、2)  $1\text{ mg}$ 、3)  $2\text{ mg}$ 、4)  $5\text{ mg}$ 、5)  $10\text{ mg}$  添加したものである。照射線量は  $20\text{ mR}$  で、ヒータ温度  $150^\circ\text{C}$  から  $480^\circ\text{C}$  まで 4 分間で昇温し測定した。グロー曲線の主ピークの高さは黒鉛添加量の増加にともない低下し、黒鉛添加量  $0\text{ mg}$  のときのピークの高さを 1 とすると、それぞれ  $0.85$ 、 $0.65$ 、 $0.35$ 、 $0.10$  となっている。また、黒鉛添加量が多いときはグロー曲線の再現性が悪くなることが観測された。

$\text{BeO:Na}$  セラミック試料の場合も粉末試料の場合と同様に  $500^\circ\text{C}$  で 1 時間アニールした直後の試料自体の T.S.E.E の BG は無視できる。 $\gamma$  線照射した試料のグロー曲線はヒータ温度  $200^\circ\text{C}$  以上で計数率の増加を示すが、特定の温度にピークを示さない。照射線量を  $10\text{ R}$  まで

### 3 試 料

$\text{BeO:Na}$  は、純度 99.9% の  $\text{BeO}$  粉末に  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  粉末を添加混合し、酸化性雰囲気中  $1200\sim1800^\circ\text{C}$  で焼成したもので、 $\text{Na}$  のモル分率は ~0.2% である。実験に使用した試料は、これを粉碎し、粒径が  $0.1\sim0.3\text{ mm}$  の無定形の粉末試料と、細粉化して  $1400\sim1550^\circ\text{C}$  で焼成し、 $6\text{ mm} \phi \times 0.5\text{ mm}$  の円板状にしたセラミック試料の二種類である。

試料皿の寸法は外径  $15\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ 、内径  $12\text{ mm} \times 0.5\text{ mm}$  で、材質は原子炉用黒鉛である。試料取扱中の機械的刺激によって生ずる偽の E.E を防止するため、試料のアニール、照射、測定に際してはすべてこの試料皿を使用した。

試料は予め磁製ルツボに入れ、電気炉内で  $900^\circ\text{C}$ 、1 時間のアニールを行い、不安定なトラップを除去した。粉末試料の場合は試料皿に天秤で  $20\text{ mg}$  を定量し、粉末粒子が皿の底面にほぼ一層になるよう平均に分散させて使用し、セラミック試料の場合は試料皿の中央に置いて使用した。試料皿に入れた試料は使用前に  $500^\circ\text{C}$  で 1 時間のアニールを行い、試料調整の際の機械的刺激や BG 放射線の影響を除去した。

### 4 実 験 結 果

#### 4.1 グロー曲線と再現性

試料調整後、 $500^\circ\text{C}$  で 1 時間アニールした  $\text{BeO:Na}$  粉末試料の  $480^\circ\text{C}$  までのグロー曲線と、計数管自体の BG によるグロー曲線との差異は認められなかった。このことから、アニールすることによって測定した温度範囲の T.S.E.E に寄与するトラップはすべて空の状態になると推定できる。

$\gamma$  線照射した  $\text{BeO:Na}$  粉末試料のグロー曲線はヒータ温度  $380^\circ\text{C}$  に主ピークと、 $460^\circ\text{C}$  に小ピークを有する。 $380^\circ\text{C}$  のピークはガウス分布型を示し、ピークの半値巾の温度は約  $70^\circ\text{C}$  である。 $460^\circ\text{C}$  のピークの、 $380^\circ\text{C}$  のピークに対する高さの割合は、照射線量が  $50\text{ mR}$  以下の低線量域ではほぼ 0.05 で、線量がこれより増加すると高さの割合が増大し、 $1\text{ R}$  では 0.1 となる。

試料の導電性を高めるために  $\text{BeO:Na}$  粉末に黒鉛粉末を添加混入した試料のグロー曲線を Fig. 6 に示した。試料は  $\text{BeO:Na}$  粉末  $20\text{ mg}$  に黒鉛粉末をそれぞれ 1)  $0\text{ mg}$ 、2)  $1\text{ mg}$ 、3)  $2\text{ mg}$ 、4)  $5\text{ mg}$ 、5)  $10\text{ mg}$  添加したものである。照射線量は  $20\text{ mR}$  で、ヒータ温度  $150^\circ\text{C}$  から  $480^\circ\text{C}$  まで 4 分間で昇温し測定した。グロー曲線の主ピークの高さは黒鉛添加量の増加にともない低下し、黒鉛添加量  $0\text{ mg}$  のときのピークの高さを 1 とすると、それぞれ  $0.85$ 、 $0.65$ 、 $0.35$ 、 $0.10$  となっている。また、黒鉛添加量が多いときはグロー曲線の再現性が悪くなることが観測された。

$\text{BeO:Na}$  セラミック試料の場合も粉末試料の場合と同様に  $500^\circ\text{C}$  で 1 時間アニールした直後の試料自体の T.S.E.E の BG は無視できる。 $\gamma$  線照射した試料のグロー曲線はヒータ温度  $200^\circ\text{C}$  以上で計数率の増加を示すが、特定の温度にピークを示さない。照射線量を  $10\text{ R}$  まで

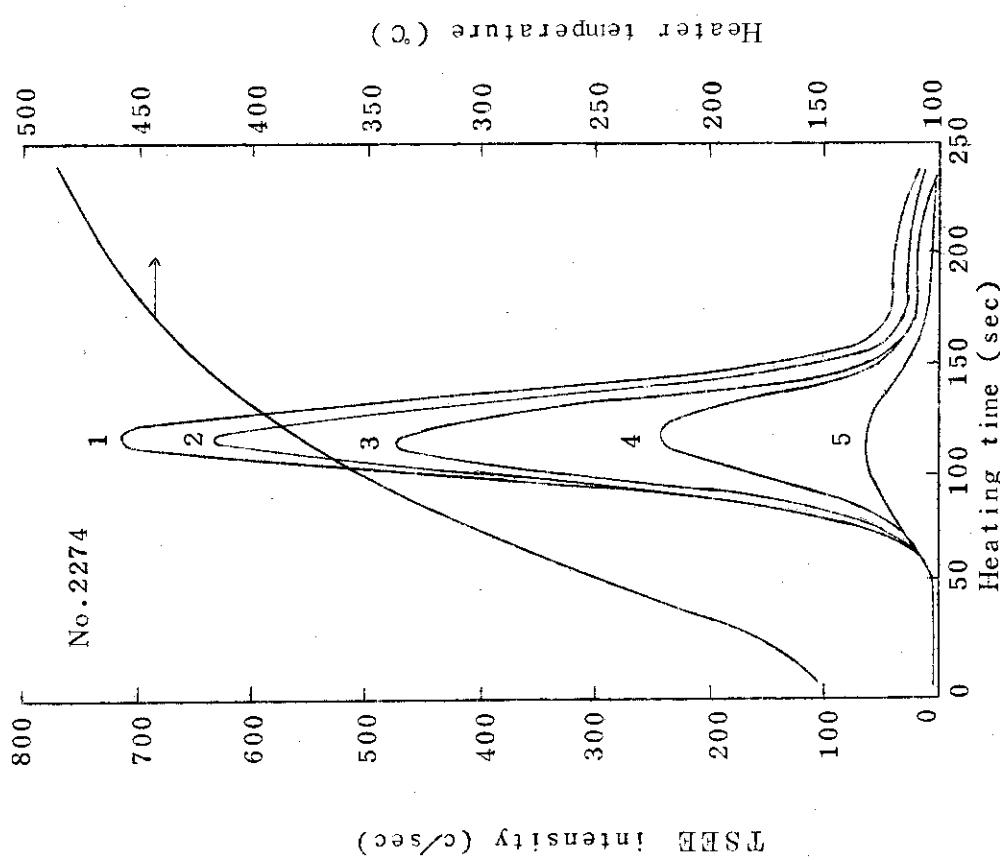


Fig. 6 TSEE glow-curves of BeO:Na powder and mixed with graphite powder after exposed to 20 mR of  $\gamma$ -rays.

- 1 BeO:Na(20mg)
- 2 BeO:Na(20mg) + graphite(1mg)
- 3 BeO:Na(20mg) + graphite(2mg)
- 4 BeO:Na(20mg) + graphite(5mg)
- 5 BeO:Na(20mg) + graphite(10mg)

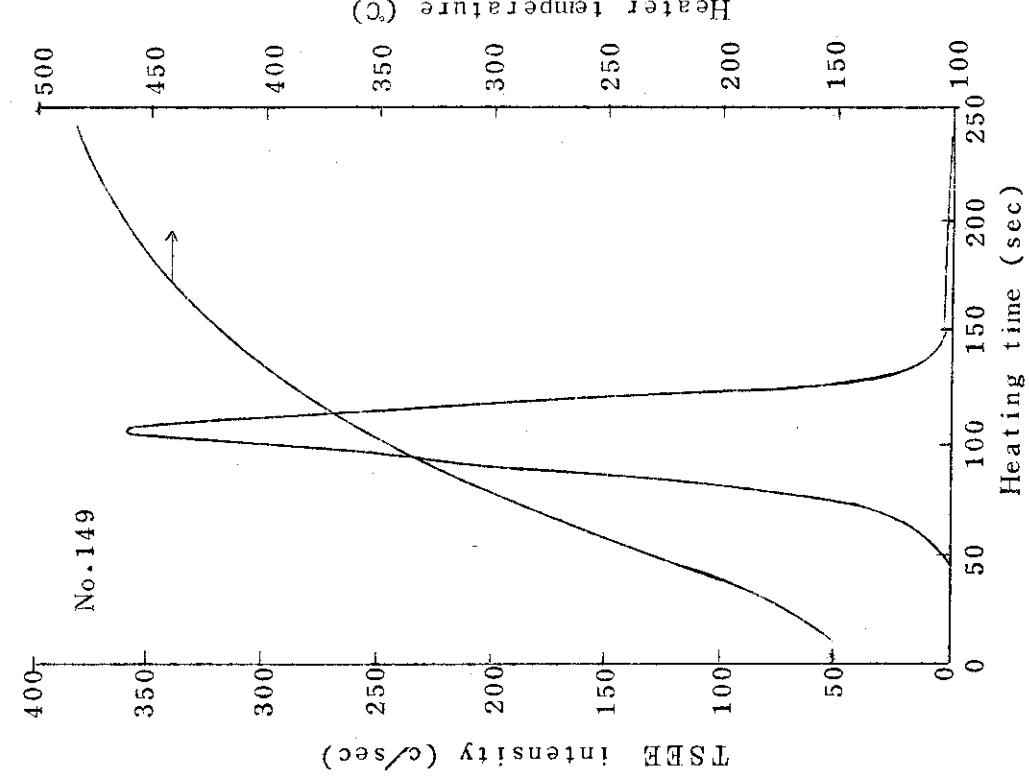


Fig. 7 TSEE glow-curve of Aquadag coated BeO:Na ceramic after exposed to 20 mR of  $\gamma$ -rays.

増加してもピークの高さの明らかな増大がみられず、再現性に乏しい。しかし、セラミックの表面に導電性をもたせた試料は再現性の良いグロー曲線を示す。Fig. 7 に、市販のアカダックを20倍に稀釀してセラミックの表面に塗布した試料に20mR照射したときのグロー曲線を示した。測定条件はFig. 6 の粉末試料の場合と同じである。このグロー曲線はピークの温度が350°Cで、ピークの半値巾の温度は約60°Cのガウス分布型である。

粉末試料とセラミック試料のグロー曲線の再現性をチェックするため、それぞれの同一試料に20mR照射し、380°Cまたは350°Cのピークの積算計数値の測定を10回繰返した。その結果、測定値のはらつきは平均値の±3%以下であった。試料相互間のはらつきをチェックするため、10個の粉末試料にそれぞれ20mR照射し、380°Cのピークの積算計数値を求めた。その結果は平均値の±20%以下であった。高温におけるフェーディングをチェックするため、粉末試料の同一試料に20mR照射し、計数管内で150°Cに5分、10分、30分、60分放置後のTSEEを測定した。その結果、グロー曲線の形の変化は認められず、380°Cのピークの積算計数値は照射直後の測定値の97~100%であった。また、使用の履歴などの条件の違いによるグロー曲線の差違は認められなかった。

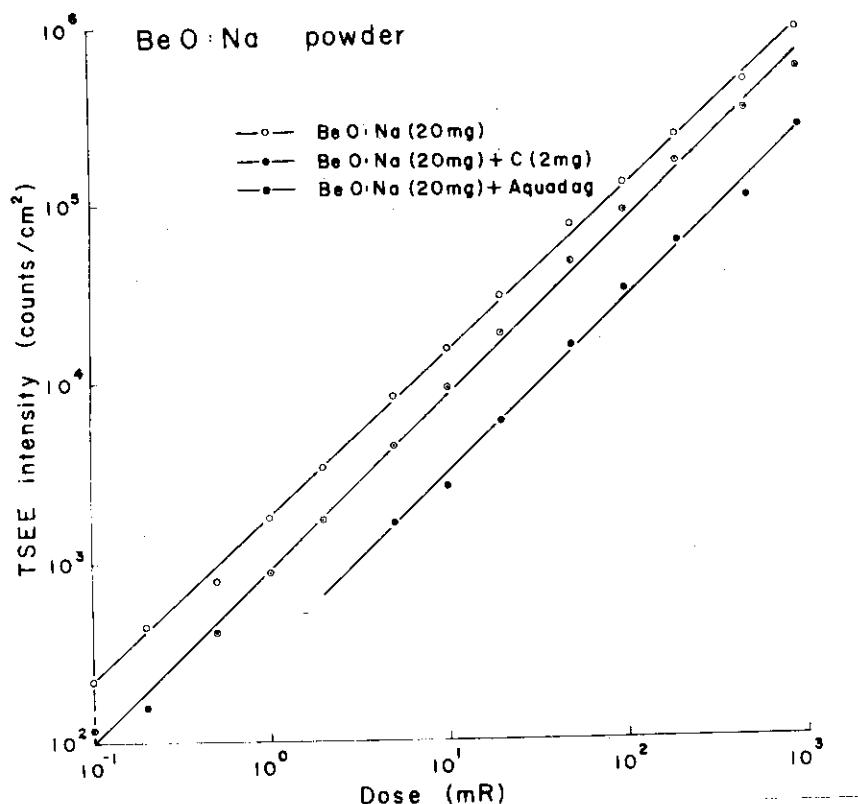
#### 4.2 線量-TSEEレスポンス

TSEEは熱ルミネッセンスと異なり、試料の有感部分はほとんどその表面層に限られている。そのため、線量に対する試料の検出感度を試料の単位有効表面積当り、単位線量当りの計数値と定義し、これを求めた。BeO:Na粉末試料の場合は380°Cのグローピークについて270°Cから450°Cまで昇温したときの120secのTSEEの計数値を、セラミック試料の場合は350°Cのグローピークについて220°Cから420°Cまで100secの計数値を求めた。<sup>\*1</sup>その結果検出感度は粉末試料の場合は最大 $3.0 \times 10^3$ c/mR·cm<sup>2</sup>、セラミック試料の場合は最大 $1.5 \times 10^3$ c/mR·cm<sup>2</sup>であった。

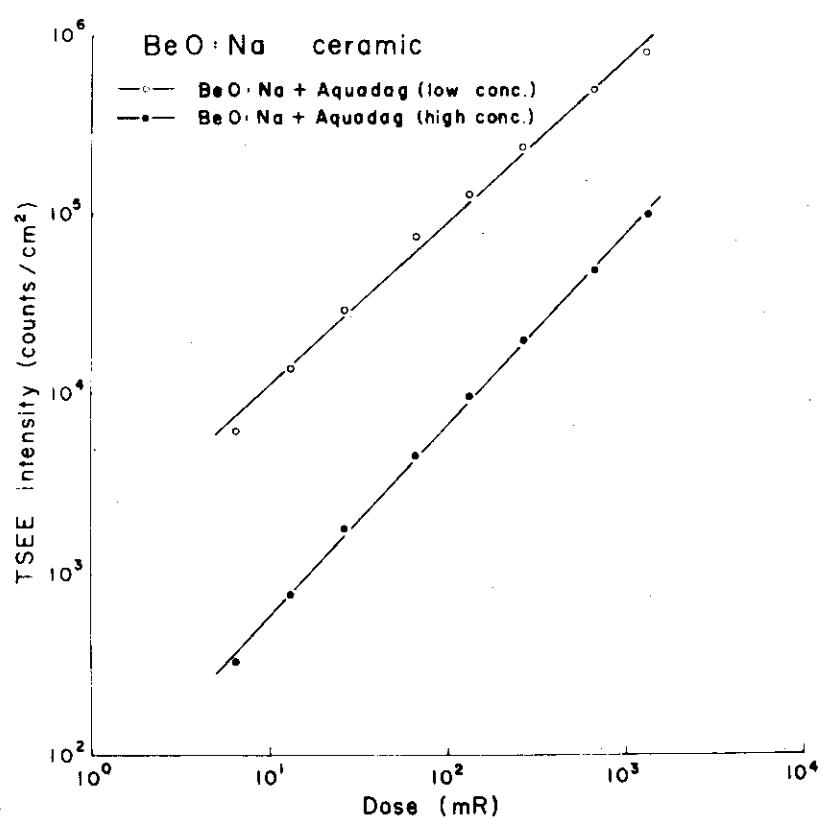
BeO:Na粉末試料と、それに2mgの黒鉛粉末を添加した試料および20倍に稀釀したアカダックを0.05mℓ添加して乾燥した試料の線量-TSEEレスポンスの関係をFig. 8に示した。両対数目盛のグラフ上に計数落しを補正した測定値と、最小自乗近似による直線とを示してある。黒鉛粉末やアカダックを添加しない試料のTSEEレスポンスは(線量)<sup>0.91</sup>に比例し、黒鉛等を添加した試料では(線量)<sup>0.96</sup>に比例する。黒鉛等を添加して導電性を与えた試料は検出感度が低下し、線量に対するTSEEレスポンスの直線性が改善された。

Fig. 9に、BeO:Naセラミックの表面にアカダックを塗布した試料の線量-TSEEレスポンスの関係を示した。セラミックの表面に、20倍に稀釀したアカダックをそれぞれ1回塗布した試料、5回塗布した試料によるもので、TSEEレスポンスはそれぞれ(線量)<sup>0.91</sup>、(線量)<sup>1.06</sup>に比例する。試料表面のアカダック層が厚い場合は粉末試料の場合と同様に検出感度が低下し、線量に対するTSEEレスポンスの直線性が改善された。

脚注 \*1 計数管の不感時間による計数落しの補正については付録を参照。



**Fig. 8** TSEE responses as a function of  $\gamma$ -ray exposure in samples of BeO:Na powder, mixed with graphite powder, and with Aquadag.



**Fig. 9** Difference of TSEE response between BeO:Na ceramics coated Aquadag of low and high concentration.

## 5. 考 察

### 5.1 アクチベータの効果

$\text{BeO}$  にアクチベータとして  $\text{Na}$  のほかに  $\text{Si}$  および  $\text{Li}$  をドープした試料の TSEE 特性の変化を調べた。 $\text{BeO}$  は純度 99.9% の粉末で種々のアクチベータをドープする素材である。 $\text{BeO:Si}$  は  $\text{Si}$  のモル分率が ~0.2% で、焼成後乳鉢で細粉化した試料である。 $\text{BeO}$  および  $\text{BeO:Si}$  の粉末はそれぞれ磁製ルツボに入れ、900°C で 1 時間アニールした後、試料皿に 10 mg 定量し、アセトンを注入することにより試料皿に粉末を平均に分散させ自然乾燥した。 $\text{BeO:Li}$  は  $\text{Li}$  のモル分率が ~0.2%，粒径が 0.1 ~ 0.3 mm の無定形の粉末で、試料調整方法は  $\text{BeO:Na}$  粉末試料の場合と同じである。

これら三種類の試料を 500°C で 1 時間アニールした後  $\gamma$  線を照射したときのグロー曲線の例を Fig.10 に示した。 $\text{BeO}$  のグロー曲線は 260°C と 300°C とにピークを有する。 $\text{BeO:Si}$  のグロー曲線は 320°C にガウス分布型の単一のピークを有する。 $\text{BeO:Li}$  のグロー曲線は  $\text{BeO:Na}$  粉末試料の場合と同様に 380°C と 460°C とにピークを有するが、 $\text{BeO:Na}$  の場合より 460°C のピークの 380°C のピークに対する高さの割合が大きく ~0.4 で、480°C まで連続した巾広いグロー曲線を示す。

次に、放射線に対する検出感度の差異を試料の単位有効表面積当り、単位線量当りの 150°C から 480°C までのグロー曲線の積算計数値の比で表わすと、 $\text{BeO}$  を 1 としたとき  $\text{BeO:Na}$ 、 $\text{BeO:Si}$ 、 $\text{BeO:Li}$  はそれぞれ  $2 \times 10^3$ 、 $10^2$ 、 $4 \times 10^3$  である。

これらのことから、 $\text{BeO}$  に  $\text{Na}$ 、 $\text{Si}$ 、 $\text{Li}$  などのアクチベータをドープすることによって新しいトラップが生成され、 $\text{BeO}$  のグローピークの温度より高温側にあらたなピークが現われたものと考えられる。TSEE 線量計の特徴の一つは熱ルミネッセンス線量計と比較して、より高温のグローピークを利用でき、温度に起因するフェーディングの影響を小さくすることができることである。したがって、これらアクチベータのドープによって  $\gamma$  線に対する高感度化が達成されたばかりでなく、フェーディングの面からも有利となる。

$\text{BeO:Li}$  は検出感度が高いという特性をもっている。しかし、充分アニールした試料のグロー曲線でも、250°C 以上の温度で BG の計数率の増加を示すこと、グロー曲線の形が簡単な関数で表わせないため計数管の不感時間による計数落しの補正が困難であること、および Li の親水性により湿度の影響を受けやすく特性が不安定であることなどの欠点を持つ。一方、 $\text{BeO:Si}$  は検出感度が  $\text{BeO:Na}$  の  $1/20$  で高感度線量計用としては感度が不充分である。以上のことから、 $\text{BeO:Na}$  試料はグロー曲線の形、グローピークの温度、検出感度、特性の安定性などから高感度線量計用 TSEE 素子としてすぐれていることが明らかになった。

### 5.2 黒鉛添加の効果

黒鉛は導電性物質として試料に添加するもので、放射線照射に対する TSEE に関しては不活性である。試料が高絶縁体の場合は試料から電子が放出されたとき表面電荷が蓄積し電子放射の変動を生ずる。また、EE の測定に試料内挿型の計数管を使用したとき、計数管内の陽イオンが試料表面に蓄積して計数特性の変動を生ずる。試料表面の帶電を防止するために黒鉛を添

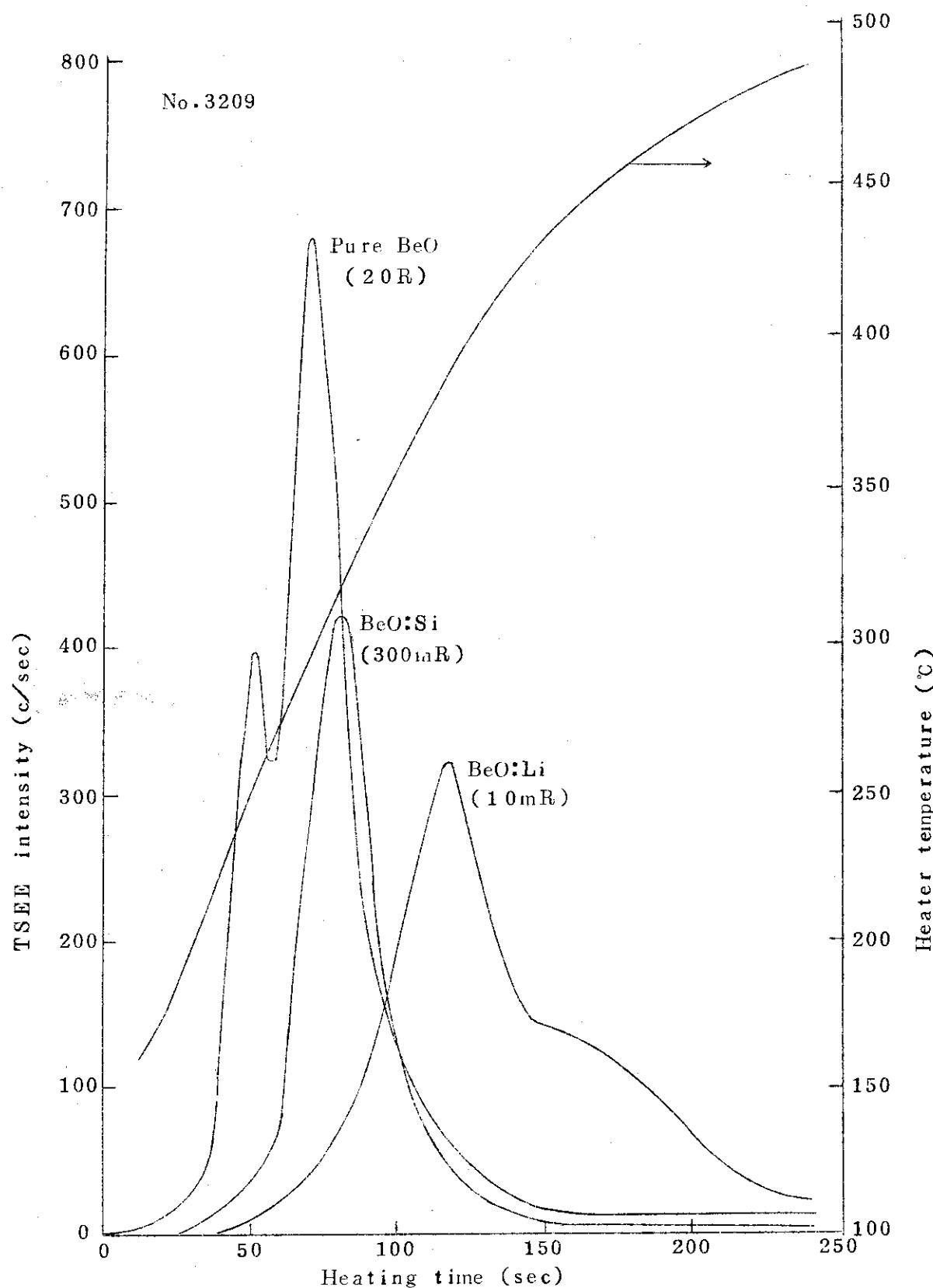


Fig.10 TSEE glow-curves of pure BeO powder, BeO:Si powder and BeO:Li powder after exposed to  $\gamma$ -rays.

加することは有効である。

$\text{BeO:Na}$  粉末試料に黒鉛粉末を添加混入すると放射線に対する検出感度は低下するが、線量に対する TSEE レスポンスの直線性が改善された。(Fig. 8 参照) また、黒鉛添加の割合を大きくすると再現性が悪くなる。これは実験に使用した  $\text{BeO:Na}$  粉末の粒径が比較的大きいので、繰返し使用することによって  $\text{BeO:Na}$  粉末と黒鉛粉末との分布状態が変化するためである。 $\text{BeO:Na}$  と黒鉛の両者を細粉化し、均質に混合すればこの不安定性は避けられるものと考えられる。

試料取扱上の便利さから粉末試料より固形試料の方が有利である。 $\text{BeO}$  セラミックは体積固有抵抗が  $10^{13} \sim 10^{15} \Omega \cdot \text{cm}$  と大きく、表面の電荷蓄積のため安定な TSEE 特性は得られない。試料表面に Pd, Pt, Au などの金属蒸着<sup>10)</sup> か、表面にアカダックを塗布して導電性を与えることによって安定な TSEE 特性をもつようになる。特にグロー曲線の再現性は極めて良い。しかし、Fig. 9 からもわかるように、検出感度と線量 - TSEE レスポンスの直線性は表面の導電性物質の厚さによって異なる。EE が表面層の現象であることから導電性物質の厚さは検出感度に影響する。したがって、同一特性をもつ多数個の固形状試料を調製するためには、細粉化した  $\text{BeO:Na}$  と黒鉛とを線量に対する TSEE のレスポンスの直線性と検出感度に関して最適の割合で均質に混合したものを利用するのが適当である。

### 5.3 最低検出限界線量

測定値の最低検出限界は試料の計数値と計数管の BG の計数値との統計的変動に依存する。いま、試料の測定時間  $t$  で、正味の計数値を  $N$ 、計数管の BG の計数率が  $n_B$  で測定時間中一定であると仮定すると、 $N$  の標準偏差  $\sigma_N$  は次式で与えられる。

$$\sigma_N = \sqrt{(N + n_B t) + n_B t} \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

$\sigma_N$  の  $K$  倍の有意差を最低検出限界の正味の計数値  $N_m$  とすると、 $N_m$  は次式で表わされる。

$$N_m = K \sqrt{N_m + 2 n_B t} \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

最低検出限界線量を  $D_m$ 、試料の有効表面積を  $S$ 、単位有効表面積当たり、単位線量当たりの TSEE の計数値、すなわち検出感度を  $A$  とすると、 $N_m = A \cdot S \cdot D_m$  であるから(2)式より、

$$D_m = \frac{K^2}{2AS} \left( 1 + \sqrt{1 + \frac{8n_B t}{K^2}} \right) \dots \dots \dots \quad (3)$$

と表わされ、 $D_m$  は  $A$  と  $S$  とに逆比例し、 $n_B$  と  $t$  の平方根にほぼ比例する。ここで  $K$  を 3 とすると  $D_m$  は 99.7 % の信頼度を有する。

$\text{BeO:Na}$  粉末試料の最低検出限界線量は、 $A$  が  $3 \times 10^3 \text{ c/mR} \cdot \text{cm}^2$ 、 $n_B$  が  $1 \text{ c/sec}$ 、 $t$  が  $120 \text{ sec}$  であるから、(3) 式より  $S$  が  $1.7 \text{ cm}^2$ 、すなわち  $1.5 \text{ cm} \phi$  の試料の場合は

0.01 mR となる。この値は、市販の高感度熱ルミネッセンス線量計  $\text{Ca SO}_4 : \text{Tm}^{*1}$  や  $\text{Mg}_2 \text{SiO}_4 : \text{Tb}^{*2}$  の最低検出限界線量 0.1 mR の  $1/10$  である。計数管を遮蔽したり、ヒータの昇温速度を大きくして TSEE の計数時間を短縮するなどの改良で計数管の BG の寄与を低減することにより、最低検出限界線量をさらに小さくすることが可能である。

## 6. ま と め

試作した TSEE 測定装置による実験結果から、 $\gamma$  線照射した  $\text{BeO : Na}$  試料は次のような TSEE 特性を示すことがわかった。

- 1) 充分アニールした試料自身の BG は無視することができる。
- 2) グローピークの温度は粉末試料の場合  $380^{\circ}\text{C}$  と  $460^{\circ}\text{C}$ 、セラミック試料の場合  $350^{\circ}\text{C}$  である。
- 3) 粉末試料の検出感度は  $3000 \text{ c}/\text{mR} \cdot \text{cm}^2$  であり、最低検出限界線量は  $1.5 \text{ cm} \phi$  の試料で  $0.01 \text{ mR}$  である。
- 4) 粉末試料の TSEE レスポンスは (線量) $^{0.91}$  に比例する。粉末試料に黒鉛を添加混入すると線量 - レスポンスの直線性が改善される。セラミック試料の場合は、表面にアカダックを塗布することによって線量 - レスポンスの直線性が改善される。
- 5) 同一試料による TSEE レスポンスの再現性は平均値に対し  $\pm 3\%$  である。 $\gamma$  線照射後、温度  $150^{\circ}\text{C}$  で 1 時間保存してもフェーディングは認められない。

以上のように  $\text{BeO : Na}$  試料はグローピークの温度、検出感度、特性の安定さの点ですぐれた TSEE 線量計用素子であることがわかった。今後は線量計として実用化するため、取扱い便利な固形状試料を開発する。固形状試料は、 $\text{BeO : Na}$  と黒鉛との粉末を均質に混合し、セラミック状にしたものが適している。 $\text{BeO : Na}$  と黒鉛とは検出感度と線量 - TSEE レスポンスの直線性のすぐれた割合で混合する。このセラミック試料に関して、さらに、フェーディング、エネルギー依存性、繰返し使用によるレスポンスの変化など線量計としての特性を検討する。これにより実用的な小型高感度線量計を開発する予定である。また、本報告では触れなかったが、高感度であることと有感部分が表面層であることをを利用して中性子線量の測定法も開発する予定である。

TSEE 線量計は開発途上にあり、丁度熱ルミネッセンス線量計開発の初期段階に相当し、実用化にはまだ数年の期間を要するものと思われる。EE 機構の基礎的な研究の進展と相俟って、より高性能で信頼性の高い TSEE 線量計用素材と測定器の開発がまたれる。

脚註 \*1 ナショナル TLD : UD-200S, UD-110S

\*2 極光 TLD : MSO-L, MSO-S

0.01 mR となる。この値は、市販の高感度熱ルミネッセンス線量計  $\text{Ca SO}_4 : \text{Tm}^{*1}$  や  $\text{Mg}_2 \text{SiO}_4 : \text{Tb}^{*2}$  の最低検出限界線量 0.1 mR の  $1/10$  である。計数管を遮蔽したり、ヒータの昇温速度を大きくして TSEE の計数時間を短縮するなどの改良で計数管の BG の寄与を低減することにより、最低検出限界線量をさらに小さくすることが可能である。

## 6. まとめ

試作した TSEE 測定装置による実験結果から、 $\gamma$  線照射した  $\text{BeO} : \text{Na}$  試料は次のような TSEE 特性を示すことがわかった。

- 1) 充分アニールした試料自身の BG は無視することができる。
- 2) グローピークの温度は粉末試料の場合  $380^{\circ}\text{C}$  と  $460^{\circ}\text{C}$ 、セラミック試料の場合  $350^{\circ}\text{C}$  である。
- 3) 粉末試料の検出感度は  $3000 \text{ c}/\text{mR} \cdot \text{cm}^2$  であり、最低検出限界線量は  $1.5 \text{ cm} \phi$  の試料で  $0.01 \text{ mR}$  である。
- 4) 粉末試料の TSEE レスポンスは (線量) $^{0.91}$  に比例する。粉末試料に黒鉛を添加混入すると線量 - レスポンスの直線性が改善される。セラミック試料の場合は、表面にアカダックを塗布することによって線量 - レスポンスの直線性が改善される。
- 5) 同一試料による TSEE レスポンスの再現性は平均値に対し  $\pm 3\%$  である。 $\gamma$  線照射後、温度  $150^{\circ}\text{C}$  で 1 時間保存してもフェーディングは認められない。

以上のように  $\text{BeO} : \text{Na}$  試料はグローピークの温度、検出感度、特性の安定さの点ですぐれた TSEE 線量計用素子であることがわかった。今後は線量計として実用化するため、取扱い便利な固形状試料を開発する。固形状試料は、 $\text{BeO} : \text{Na}$  と黒鉛との粉末を均質に混合し、セラミック状にしたものが適している。 $\text{BeO} : \text{Na}$  と黒鉛とは検出感度と線量 - TSEE レスポンスの直線性のすぐれた割合で混合する。このセラミック試料に関して、さらに、フェーディング、エネルギー依存性、繰返し使用によるレスポンスの変化など線量計としての特性を検討する。これにより実用的な小型高感度線量計を開発する予定である。また、本報告では触れなかったが、高感度であることと有感部分が表面層であることをを利用して中性子線量の測定法も開発する予定である。

TSEE 線量計は開発途上にあり、丁度熱ルミネッセンス線量計開発の初期段階に相当し、実用化にはまだ数年の期間を要するものと思われる。EE 機構の基礎的な研究の進展と相俟って、より高性能で信頼性の高い TSEE 線量計用素材と測定器の開発がまたれる。

脚註 \*1 ナショナル TLD : UD-200S, UD-110S

\*2 極光 TLD : MSO-L, MSO-S

本研究を進めるにあたり、松下電器産業 K.K. 中央研究所材料第六開発室の山下忠興室長、安野傳剛氏より Na その他のアクチベータをドープした BeO の試料を作成、提供して頂きましたことに深謝の意を表します。また、TSEE の測定および実験結果の検討に際し終始御指導と助言を頂いた当研究所線量計測課の立田初巳課長、備後一義氏、龍福廣氏に感謝致します。

### 参 考 文 献

- 1) Kramer J. : Z. Phys. 125, 739 (1949); 128, 538 (1950); 129, 34 (1951); 133, 629 (1952).
- 2) Kramer J. : Acta phys. Austriaca 10, 392 (1957); Z. angew. Phys. 15, 20 (1963).
- 3) Gourgué G. : Z. Phys. 153, -186 (1958).
- 4) Hanle W., Scharmann A., Seibert G. and Seibert J. : Nukleonik 8, 129 (1966).
- 5) Kramer J. : Z. angew. Phys. 20, 411 (1966); Proc. 2nd Int. Conf. on Luminescence Dosimetry (USAEC Report, CONF-680920), p. 180 (1968).
- 6) Becker K. : CONF-680920, p. 200 (1968).
- 7) Holzapfel G. : Phys. stat. sol. 33, 235 (1969).
- 8) Robinson E. M. and Oberhofer M. : Health Phys. 18, 434 (1970).
- 9) Thorngate T. H. : ORNL-TM-2687 (1969).
- 10) Becker K. Cheka J. S. and Gammage R. B. : Proc. 3rd Int. Symp. on Exoelectrons (PTB-Mitteilungen 80, Nr. 5), p. 318 (1970).

## 付録 ガウス分布近似による計数値補正

計数管の不感時間を $\tau$ 、計数率を $\sigma$ としたとき、 $n\tau < 1$ の条件が満されないほど計数率が高い場合は、計数落しの補正を行う必要がある。TSEEグロー曲線測定のように計数率が時刻とともに大きく変化するような場合、ある時間内における積算計数値の計数落し補正是複雑なものとなる。しかし、グロー曲線が特定の関数形で近似できるときは、予め解析的方法で補正係数を求めておくことにより計数落しの補正が容易に可能となる。

BeO:Na粉末試料に $\gamma$ 線照射した時のグロー曲線を2 sec毎の計数値として測定し、それの値に計数管の不感時間による計数落しの補正を行った値と、380°Cのグローピークを中心ガウス分布をfitさせた曲線とをFig. A1に示した。図からわかるように、BeO:Na粉末試料のグローピークはガウス分布が良い近似を示している。セラミック試料のグローピークに関しても同様のことが云える。以下に、グローピークにガウス分布を仮定して、計数管によって測定された単一ピークの積算計数値に対する計数落し補正法について述べる。

いま、計数落しのない状態で、着目するグローピークの積算計数値をN、分散を $\sigma$ とし、ヒータ温度または昇温時間がtにおけるTSEEの計数率n(t)をガウス分布で表わすと次の様になる。

$$N = \int_{-\infty}^{\infty} n(t) dt \quad \dots \quad (A1)$$

$$n(t) = \frac{N}{\sigma \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{t}{\sigma}\right)^2} \quad \dots \quad (A2)$$

計数管の不感時間を $\tau$ とすると実測されるTSEEの計数率 $n_0(t)$ とグローピークの積算計数値 $N_0$ は、

$$n_0(t) = \frac{n(t)\tau}{1 + n(t)\tau} \quad \dots \quad (A3)$$

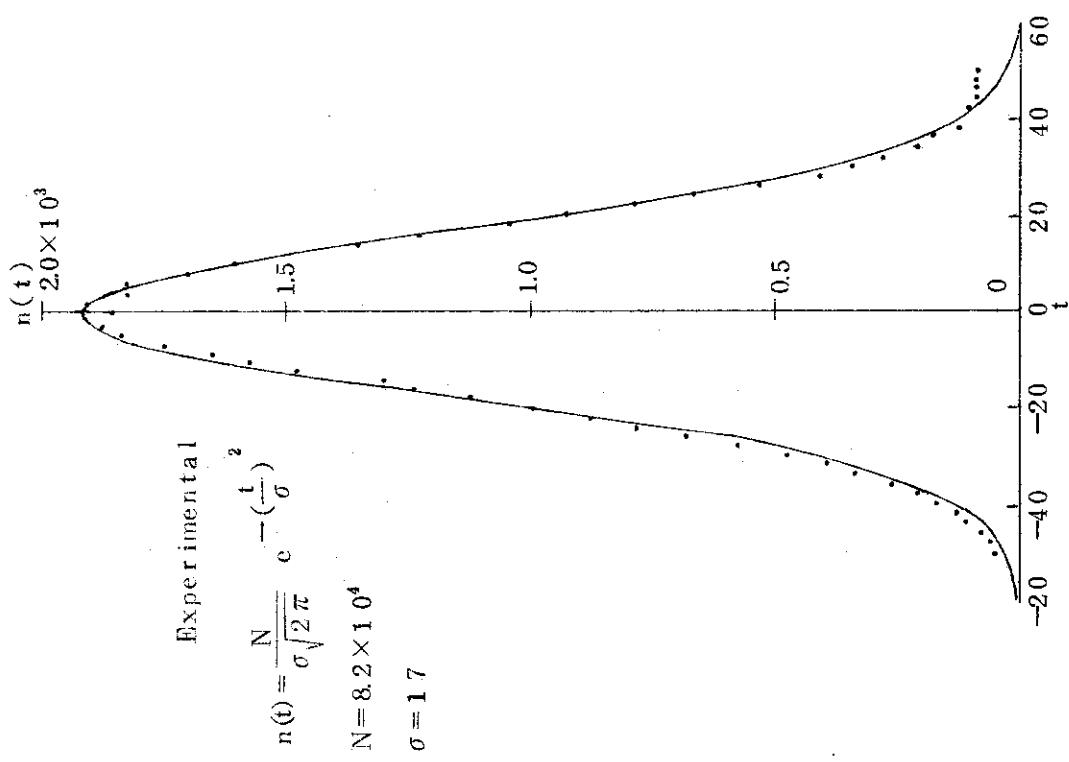
$$N_0 = \int_{-\infty}^{\infty} n_0(t) dt \quad \dots \quad (A4)$$

となる。ここで、計数落しに関する補正係数Kを次の様に定義する。

$$K = \frac{N - N_0}{N_0} \quad \dots \quad (A5)$$

すなわち、Kを計数落しの部分( $N - N_0$ )と実測される積算計数値( $N_0$ )との比で表わす。したがって、グローピークの $\sigma$ をパラメータとして(45)式の $N_0$ とKとの関係を予め計算で求めて図表化しておけば、グローピークの積算計数値から直ちに計数落しの補正された計数値Nが求まる。

一例として、昇温速度を2.5°C/secに設定してBeO:Naの粉末試料の380°Cのグローピークの積算計数値と、セラミック試料の350°Cのグローピークの積算計算値に対する計数落しの補正係数Kの計算結果をFig.A2に示した。ここで $\tau$ は7.0 μsecで、 $\sigma$ が17 secの曲線は粉末試料に適用され、 $\sigma$ が13 secの曲線はセラミック試料に適用される。この図を使ってグローピークの積算計数値を補正した値と、2 sec毎の計数値にそれぞれ補正を施して積算した値との差は、 $N_0$ が $10^6$ カウント以下では5%以内である。



- 16 -

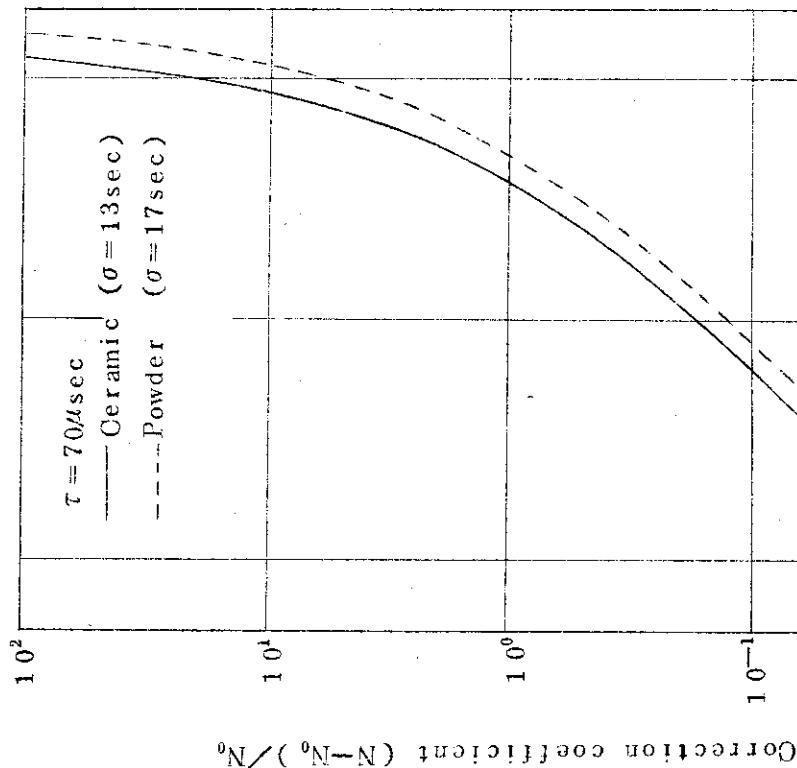


Fig.A1 The plots of TSEE counts for BeO:Na powder after exposed to 50 mR of  $\gamma$ -rays.  
Points: corrected for counting loss of each 2 seconds.  
Curve: fitted with Gaussian distribution.

Fig.A2 Correction factors for counting loss of GM-counter of BeO:Na powder and ceramic as a function of observed integrated glow-peak counts.  
N: corrected glow-peak counts.