

改良型ホウ酸リチウムTLDの特性試験

「TLDバッジ用素子の改良に関する研究」の補遺

1994年11月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

限 定 資 料

PNC ZN8410 94-401

1 9 9 4 年 1 1 月

改良型ホウ酸リチウムTLDの特性試験 「TLDバッジ用素子の改良に関する研究」の補遺

辻村憲雄*、百瀬琢磨*、野村保*、空増昇+

要旨

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所では、平成5年度にTLDバッジに用いるTLD蛍光体とその測定システムの改良に関する研究を行い、従来のTLD素子よりも約5倍感度の高いTLD素子を新たに開発した。

本報告書は、それに先駆けて実施した試験の結果であり、高感度型ホウ酸リチウム及び酸化ガドリニウム添加型ホウ酸リチウムを蛍光体に用いたTLD素子を試作し、その γ 線感度と中性子線感度を調べた結果をとりまとめた。

*安全管理部安全対策課 +松下産業機器株式会社

目次

第1章 緒言	1
第2章 試作TLD線量計の仕様	2
第3章 特性試験	4
3-1 γ 線照射試験	4
3-2 中性子線照射試験	6
第4章 まとめ	13
謝辞	14
参考文献	14

第1章 緒言

ICRP1990年勧告による放射線業務従事者の被ばく線量当量限度の引き下げや、中性子線の放射線加重係数の上昇に伴い[1]、個人被ばく線量当量評価精度のさらなる向上が望まれる。

こうした背景の中、動力炉・核燃料開発事業団東海事業所では、現行のTLDバッジに替るより高性能なTLDバッジの開発の一環として、平成5年度に TLDバッジに用いるTLD蛍光体とその測定システムの改良に関する研究を行い、従来よりも発光効率が約2倍高いホウ酸リチウム蛍光体と、それから放出される熱蛍光の検出効率が約2～3倍高い TLDリーダーシステムを新たに開発した。[2]

本研究は、それに先駆けて実施した試験の結果であり、高感度（高発光効率）型ホウ酸リチウム及び酸化ガドリニウム添加型ホウ酸リチウムを蛍光体に用いたTLD素子を試作し、その γ 線感度と中性子線感度を調べた。

第2章 試作TLD線量計の仕様

本研究で試作した中性子線用TLD線量計は以下の蛍光体を使用している。

- (1) 高感度（高発光効率）型 ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$
- (2) 高感度（高発光効率）型 ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$
- (3) 酸化ガドリニウム添加型 ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$

(1) (2) は、現行のTLDバッジで使用する $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 蛍光体に比べて発光効率が約1.5倍高い蛍光体である。蛍光体の製造工程で極くまれに生成され、通常はランク補正係数を用いて見掛けの感度を下げて使用するか、もしくは規格外品として取り扱われているものである。放射線と蛍光体の相互作用の過程で生じる2次電子が通常よりも捕獲され易い結晶構造になっているために発光効率が增大すると考えられるが、その理論的な背景などについては良く分かっていない。

また、(3) は(1)の高感度型 ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 蛍光体に酸化ガドリニウム(Gd_2O_3)を含浸させたもので、従来の ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 蛍光体が中性子線の検出に ${}^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 及び ${}^6\text{Li}(n, \alpha)$ 反応を利用していることに加えて、このTLD蛍光体では ${}^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ 反応などによって生じる γ 線を検出することによって中性子線に対する感度を増加させることを目的としている。表2-1に ${}^6\text{Li}$ 、 ${}^{10}\text{B}$ 及び Gd 同位体の熱中性子線に対する核反応断面積を示した。 ${}^{157}\text{Gd}$ は極めて大きな熱中性子吸収断面積を持っており、熱中性子の遮蔽材などに一般に用いられる ${}^{113}\text{Cd}$ の熱中性子吸収断面積 20,000.0[barn]と比べて優に一桁も大きい。

試作した2種類の中性子線用TLD線量計のTLD蛍光体の構成を表2-2に示す。現行の中性子線用TLD線量計(UD-809P)と蛍光体の配置は同様であり、エレメントN1が γ 線用、エレメントN2~N4が中性子線検出用である。中性子線の検出に用いるTLD蛍光体に高感度型 ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 、酸化ガドリニウム添加型 ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ を使用したものを本報告書ではそれぞれ高感度型UD-809P、Gd添加型UD-809Pと呼ぶことにする。*

* 松下産業機器株式会社の型式番号では共に UD-909PSである。

表2-1 中性子検出に用いる核反応とその断面積[3]

同位元素名	天然存在比[%]	反応	断面積 ¹⁾ [barn]
${}^6\text{Li}$	7.42 ²⁾	${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$	245
${}^{10}\text{B}$	19.78 ²⁾	${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$	3,837
${}^{152}\text{Gd}$	0.20	${}^{152}\text{Gd}(n, \gamma){}^{153}\text{Gd}$	<180
${}^{154}\text{Gd}$	2.15	${}^{154}\text{Gd}(n, \gamma){}^{155}\text{Gd}$	100.0
${}^{155}\text{Gd}$	14.73	${}^{155}\text{Gd}(n, \gamma){}^{156}\text{Gd}$	61,000.0
${}^{156}\text{Gd}$	20.47	${}^{156}\text{Gd}(n, \gamma){}^{157}\text{Gd}$	11.5
${}^{157}\text{Gd}$	15.68	${}^{157}\text{Gd}(n, \gamma){}^{158}\text{Gd}$	254,000.0
${}^{158}\text{Gd}$	24.87	${}^{158}\text{Gd}(n, \gamma){}^{159}\text{Gd}$	3.5

1) 0.0253eVの中性子に対する断面積

2) ただし、TLD素子には99.9%以上の濃縮材料を使用。

表2-2 試作線量計のTLD蛍光体構成

線量計の名称	エレメントN1	エレメントN2~N4
高感度型 UD-809P	高感度型 ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$	高感度型 ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$
Gd添加型 UD-809P	高感度型 ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$	高感度型 ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ + Gd_2O_3
UD-809P (通常型)	${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$	${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$

第3章 特性試験

3-1 γ 線照射試験*

東海事業所放射線機器校正施設において ^{137}Cs の γ 線(0.662MeV)を試作した線量計に照射し、その感度を調べた。照射線量は100mR** (空気吸収線量0.876mGy)、バッジケースは用いず線量計を厚さ5mmの亚克力樹脂板で挟んだ状態で照射を行った。

照射した線量計の個数は、高感度型UD-809Pが25個、Gd添加型UD-809Pが24個であり、それぞれ3回繰り返し照射を行った。線量計の測定に用いたTLD自動リーダー(UD-710P)は通常タイプのUD-809P用に校正されているので、試作した線量計の照射線量当たりの読取り値は、従来の線量計に対する相対感度に相当する。

高感度型UD-809P、Gd添加型UD-809Pのそれぞれのエレメントに対する各照射ごとの平均読取り値、3回の照射の平均読取り値及びそれを照射線量で除した値を表3-1、3-2にそれぞれ示す。

高感度型UD-809Pのエレメントの各エレメントの平均読取り値は照射線量の約1.6~1.7倍と、通常のものに比べて感度が高い。一方の、Gd添加型UD-809Pの場合は、エレメントN1については高感度型UD-809Pと同程度の感度であるが、酸化ガドリニウムを含ませたエレメントN2~N4の γ 線感度は通常感度に比べて約0.8倍と低く、また各TLD間の読取り値のばらつきも15~18%と不揃いである。

Gd添加型UD-809PのエレメントN2~N4の感度がやや下がった理由としては、酸化ガドリニウムの含浸によってTLD結晶体の色がやや褐色になり、TLDから放出される熱蛍光が結晶体中で吸収されたためと考えられる。また、各TLDの感度が不揃いな理由は、酸化ガドリニウムの含浸が一様ではなかったためである。

* 本実験は、1991年12月に実施した。実験担当者：榊山、伴、二之宮(安全対策課)

** TLDの読取り値の単位はレントゲン相当[mR ^{137}Cs eq.]であり、相対的な感度変化の比較を容易にするため、本報告書では照射線量の単位には旧単位であるレントゲンを用いる。

表3-1 高感度型UD-809Pの γ 線照射試験の結果 (^{137}Cs 100mR)

照射回数	N1[mR ^{137}Cs eq.]	N2[mR ^{137}Cs eq.]	N3[mR ^{137}Cs eq.]	N4[mR ^{137}Cs eq.]
1	165.5 \pm 9.7	162.8 \pm 9.4	160.9 \pm 7.5	161.2 \pm 8.0
2	176.7 \pm 12.3	172.0 \pm 11.4	167.3 \pm 10.4	171.0 \pm 8.1
3	168.3 \pm 11.6	160.5 \pm 11.7	158.1 \pm 9.7	162.5 \pm 6.5
平均	170.2 \pm 7.8	165.1 \pm 8.6	162.1 \pm 7.6	164.8 \pm 5.9
レスポンス [R eq./R]	1.70 \pm 0.08 (4.6%)	1.65 \pm 0.09 (5.2)	1.62 \pm 0.08 (4.7)	1.65 \pm 0.06 (3.6)
レスポンス [R eq./R]	-	1.64 \pm 0.08* (4.5)		

* N2~N4の平均値

表3-2 Gd添加型UD-809Pの γ 線照射試験の結果 (^{137}Cs 100mR)

照射回数	N1[mR ^{137}Cs eq.]	N2[mR ^{137}Cs eq.]	N3[mR ^{137}Cs eq.]	N4[mR ^{137}Cs eq.]
1	158.5 \pm 13.3	81.3 \pm 14.3	80.0 \pm 14.4	80.2 \pm 12.9
2	176.3 \pm 15.0	89.7 \pm 15.9	86.2 \pm 16.8	90.2 \pm 13.9
3	164.4 \pm 13.0	80.0 \pm 15.3	78.9 \pm 12.2	81.2 \pm 13.3
平均	166.4 \pm 11.6	83.7 \pm 14.7	81.7 \pm 13.9	83.9 \pm 12.6
レスポンス [R eq./R]	1.66 \pm 0.12 (7.0%)	0.84 \pm 0.15 (17.6)	0.82 \pm 0.14 (17.1)	0.84 \pm 0.13 (15.1)
レスポンス [R eq./R]	-	0.83 \pm 0.14* (16.4)		

* N2~N4の平均値

3-2 中性子線照射試験*

東北大学工学部高速中性子実験室 (FNL) のダイナミトロン加速器を用いて 0.2~15 MeVの単色中性子の照射試験を行い、試作線量計の中性子線に対する感度特性を調べた。中性子生成に利用した反応は、 $p-^7\text{Li}$ (中性子エネルギー 0.218、0.580MeV)、 $p-T$ (1.02、2.0MeV)、 $d-D$ (5.11MeV)、 $d-T$ (15MeV) である。中性子エネルギーの決定は飛行時間法、中性子フルエンスの導出は ^{235}U 核分裂計数管を用いた。[4]

一照射につき4個の線量計を使用し、バジケースに入れた状態で楕円柱水ファントム上に設置した。このとき、中性子発生ターゲット-線量計間距離は約 30~40cm、ファントム表面と線量計の間には厚さ10mmの発砲スチロールを挟んだ。実験配置を図 3-1 に示す。

中性子線の検出に用いるエレメントN2~N4は、 γ 線に対しても感度を有するため、中性子線に対する正味の感度を求めるには、ターゲット部分で発生した γ 線及びファントム中での $H(n, \gamma)D$ 反応による γ 線の寄与を補償しなければならない。このとき、通常は γ 線のみ感度を有するエレメントN1の読取り値をその寄与分の補償に用いるわけであるが、Gd添加型UD-809P線量計の場合エレメントN2~N4よりもエレメントN1の方が γ 線感度が高いため、単純な差し引き計算ができない。また、一回の照射に用いる線量計の個数が4個であるため、個々のTLDの感度のばらつきなどによって実験値が大きな誤差を持つ可能性がある。

そこで、本実験では感度補正係数を用いて感度のばらつきの低減とGd添加型UD-809P線量計のエレメントN1とN2~N4の γ 線感度の不一致を補正した。この係数は、個々のTLDの感度の相違をある代表的な感度を持つTLDに規格化する係数であり、ここでは表 3-1、3-2 に示したエレメントN2~N4全体の平均読取り値をそれぞれの種類のTLDの感度の代表点とした。したがって、例えばGd添加型UD-809P線量計のエレメントN1の読取り値には、約 0.5の係数が乗じられることになる。

表 3-3、3-4 にそれぞれ高感度型UD-809P、Gd添加型UD-809Pの γ 線寄与分を補償した後のエレメントN2~N4の読取り値、及びそれらを直接入射中性子フルエンスで割った値を示す。また、図 3-2 ~ 3-4 に、それぞれエレメントN2~N4の中性子フルエンス当たりの読取り値を中性子エネルギーの関数として示した。参考のため、百瀬が以前にFNLで実施した通常タイプのUD-809Pの感度[5]も同図に示した。

高感度型UD-809P、Gd添加型UD-809Pの中性子線に対する感度は、通常タイプのUD-809Pの感度のそれぞれ約 1.6倍、約 0.8倍であり、 γ 線に対する相対的な感度変化と良く一致した。

* 本実験は、1992年1月に実施した。実験担当者：榊山、伴、二之宮 (安全対策課)

表 3-3 高感度型UD-809Pの中性子照射試験結果

NEUTRON ENERGY[MeV]	NEUTRON FLUENCE[n/cm ²]	NUMBER OF TLD	READING[mR ¹³⁷ Cs eq.]			RESPONSE[×10 ⁻⁶ mR ¹³⁷ Cs eq./ (n/cm ²)]		
			N2	N3	N4	N2	N3	N4
0.218	9.95×10 ⁶	4	64.1± 8.3 (13.0%)	68.4± 7.2 (10.5)	222±16.8 (7.6)	6.44±0.84 (13.0)	6.87±0.72 (10.5)	22.4±1.69 (7.6)
0.580	9.63×10 ⁶	4	55.3± 5.4 (9.8)	59.8± 12.9 (21.6)	208±10.6 (5.1)	5.74±0.56 (9.8)	6.21±1.34 (21.6)	21.6±1.10 (5.1)
1.02	5.06×10 ⁶	4	19.5± 2.1 (11.0)	19.1± 3.1 (16.2)	79.3± 6.8 (8.6)	3.86±0.42 (11.0)	3.77±0.61 (16.2)	15.7±1.34 (8.6)
2.00	6.53×10 ⁶	4	19.3± 4.3 (22.4)	18.5± 2.7 (14.7)	78.4± 5.6 (7.1)	2.96±0.66 (22.4)	2.83±0.42 (14.7)	12.0±0.85 (7.1)
5.11	1.37×10 ⁷	4	17.1± 3.3 (19.4)	17.2± 3.1 (18.2)	67.4± 8.9 (13.2)	1.24±0.24 (19.4)	1.26±0.23 (18.2)	4.91±0.65 (13.2)
15.0	8.10×10 ⁷	4	36.0±20.1 (55.9)	57.7±16.8 (29.0)	248±26.0 (10.5)	0.44±0.25 (55.9)	0.53±0.39 (29.0)	3.06±0.32 (10.5)

表3-4 Gd添加型UD-809Pの中性子照射試験結果

NEUTRON ENERGY [MeV]	NEUTRON FLUENCE [n/cm^2]	NUMBER OF TLD	READING [mR ^{137}Cs eq.]			RESPONSE [$\times 10^{-6}$ mR ^{137}Cs eq. / (n/cm^2)]		
			N2	N3	N4	N2	N3	N4
0.218	1.43×10^7	4	49.9 ± 1.4 (2.9%)	53.3 ± 6.5 (12.2)	184 ± 19.9 (10.8)	3.49 ± 0.10 (2.9)	3.73 ± 0.45 (12.2)	12.9 ± 1.39 (10.8)
0.580	1.43×10^7	4	35.0 ± 9.7 (27.8)	38.7 ± 3.2 (8.3)	147 ± 12.2 (8.3)	2.45 ± 0.68 (27.8)	2.71 ± 0.22 (8.3)	10.3 ± 0.85 (8.3)
1.02	5.07×10^6	4	9.6 ± 0.8 (8.6)	9.7 ± 1.8 (18.4)	39.8 ± 4.9 (12.3)	1.88 ± 0.16 (8.6)	1.92 ± 0.35 (18.4)	7.84 ± 0.97 (12.3)
2.00	6.53×10^6	4	10.8 ± 3.9 (36.1)	10.8 ± 4.2 (38.6)	38.5 ± 3.5 (9.1)	1.66 ± 0.60 (36.1)	1.65 ± 0.64 (38.6)	5.89 ± 0.54 (9.1)
5.11	1.39×10^7	4	7.7 ± 0.6 (7.5)	8.5 ± 1.7 (20.2)	34.6 ± 3.7 (10.7)	0.55 ± 0.04 (7.5)	0.61 ± 0.12 (20.2)	2.50 ± 0.27 (10.7)
15.0	8.08×10^7	4	13.1 ± 10.0 (76.0)	22.9 ± 19.8 (86.6)	127 ± 20.8 (16.4)	0.16 ± 0.12 (76.3)	0.28 ± 0.25 (86.6)	1.58 ± 0.26 (16.4)

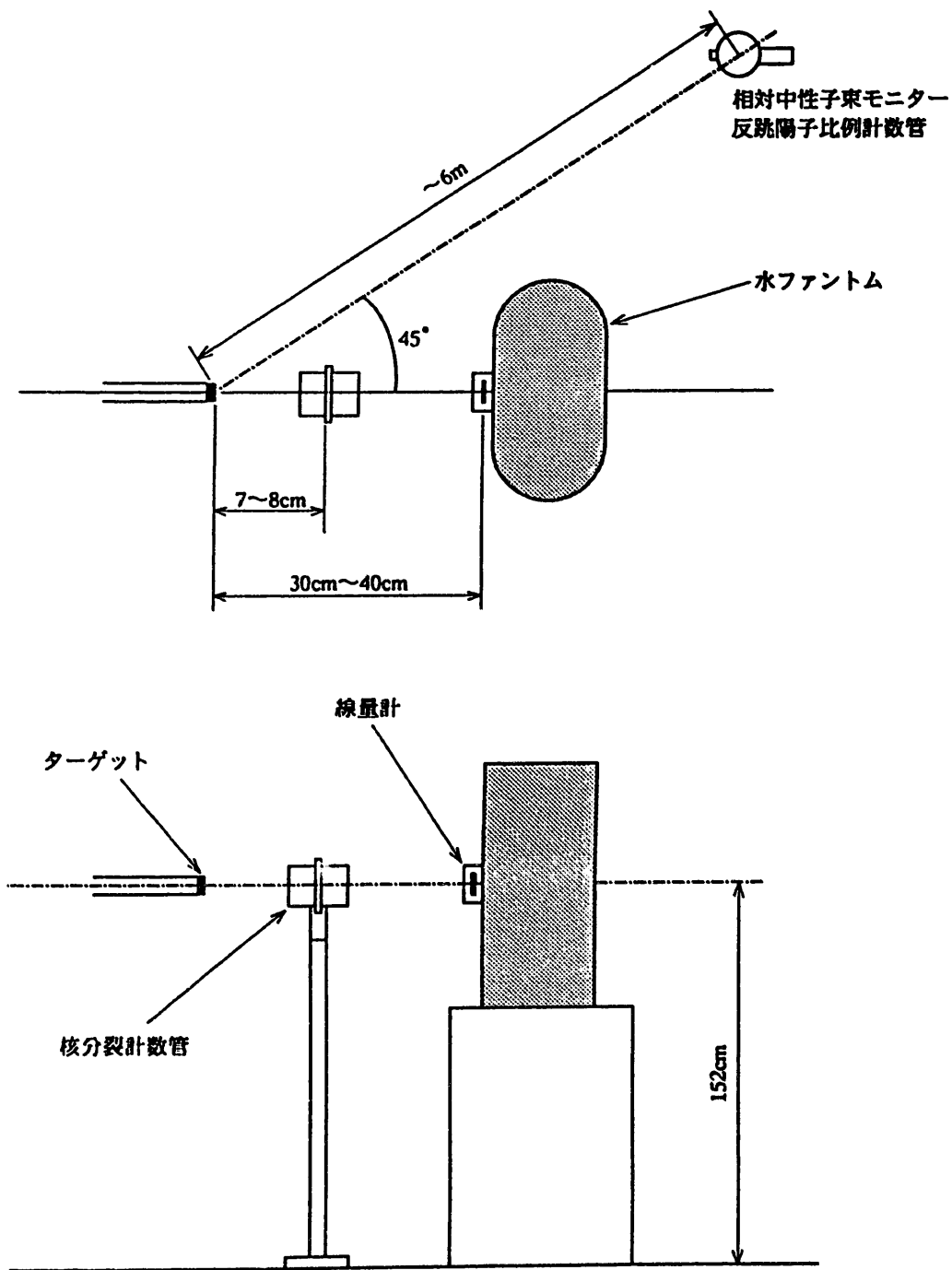


図 3-1 高速中性子実験室での実験配置

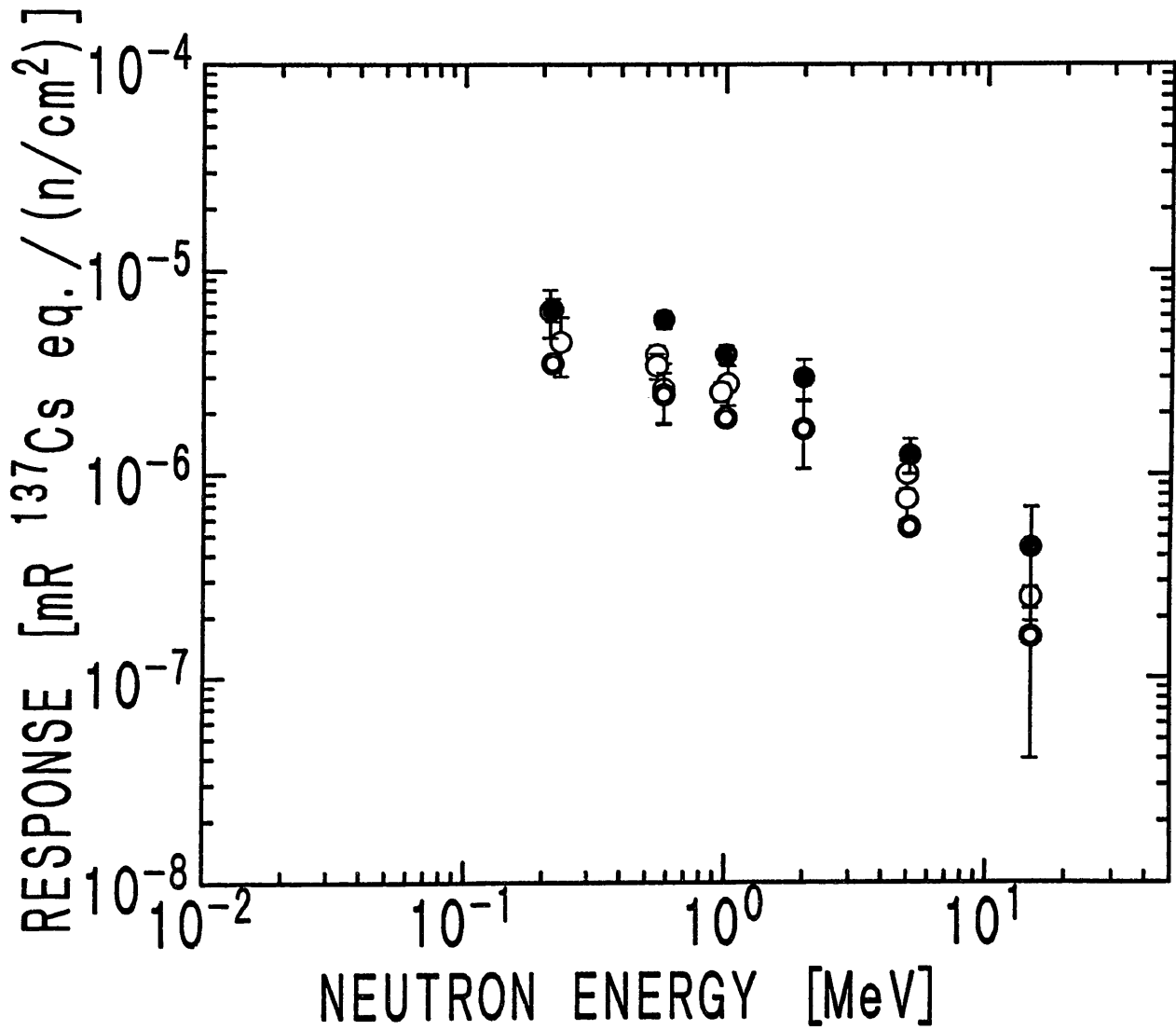


図3-2 改良型UD-809Pの元素N2の中性子応答特性
 (○ 通常型UD-809P[5]、● 高感度型UD-809P、◎ Gd添加型UD-809P)

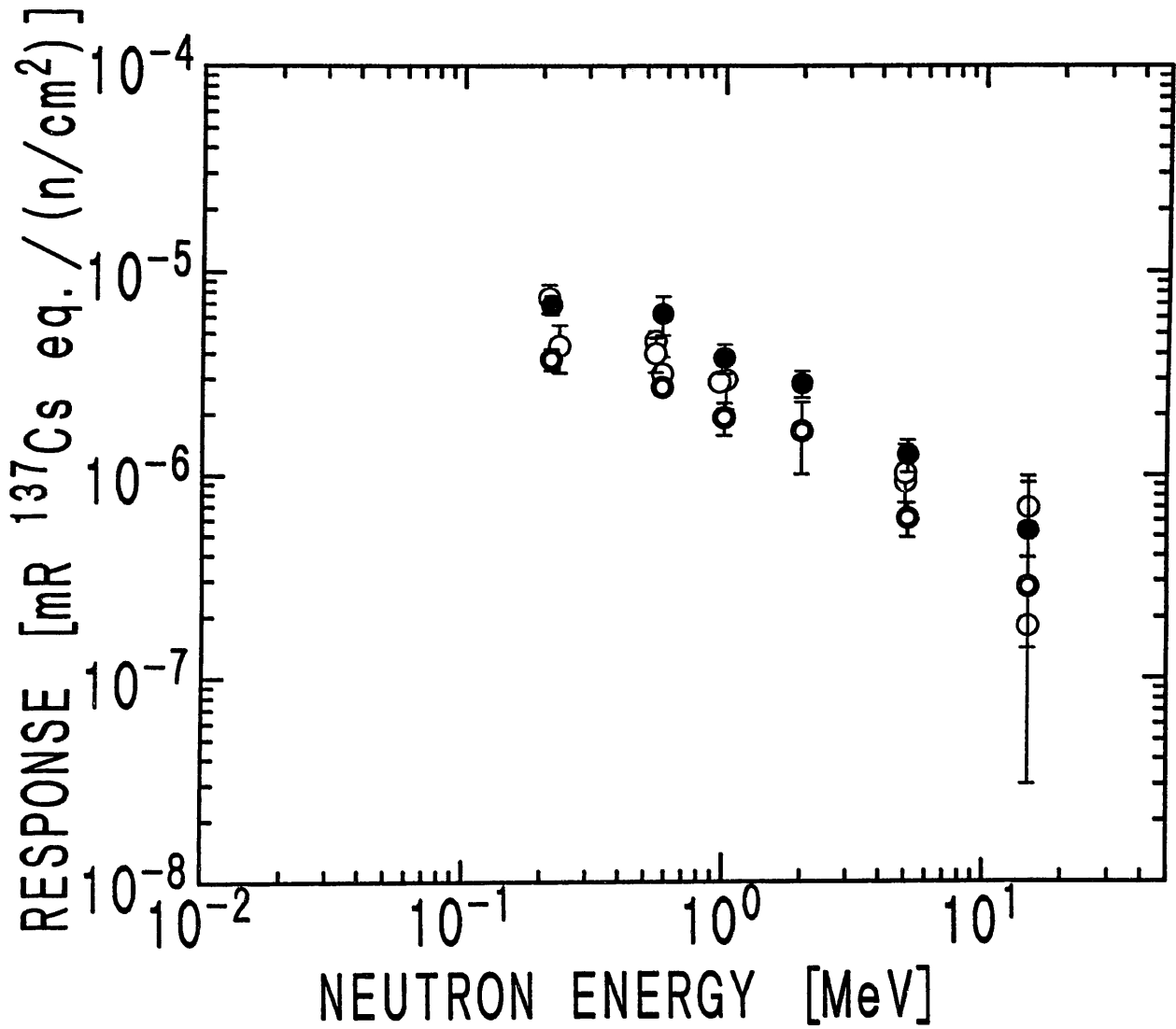


図 3-3 改良型UD-809Pの元素N3の中性子応答特性:
 (○ 通常型UD-809P[5]、● 高感度型UD-809P、◎ Gd添加型UD-809P)

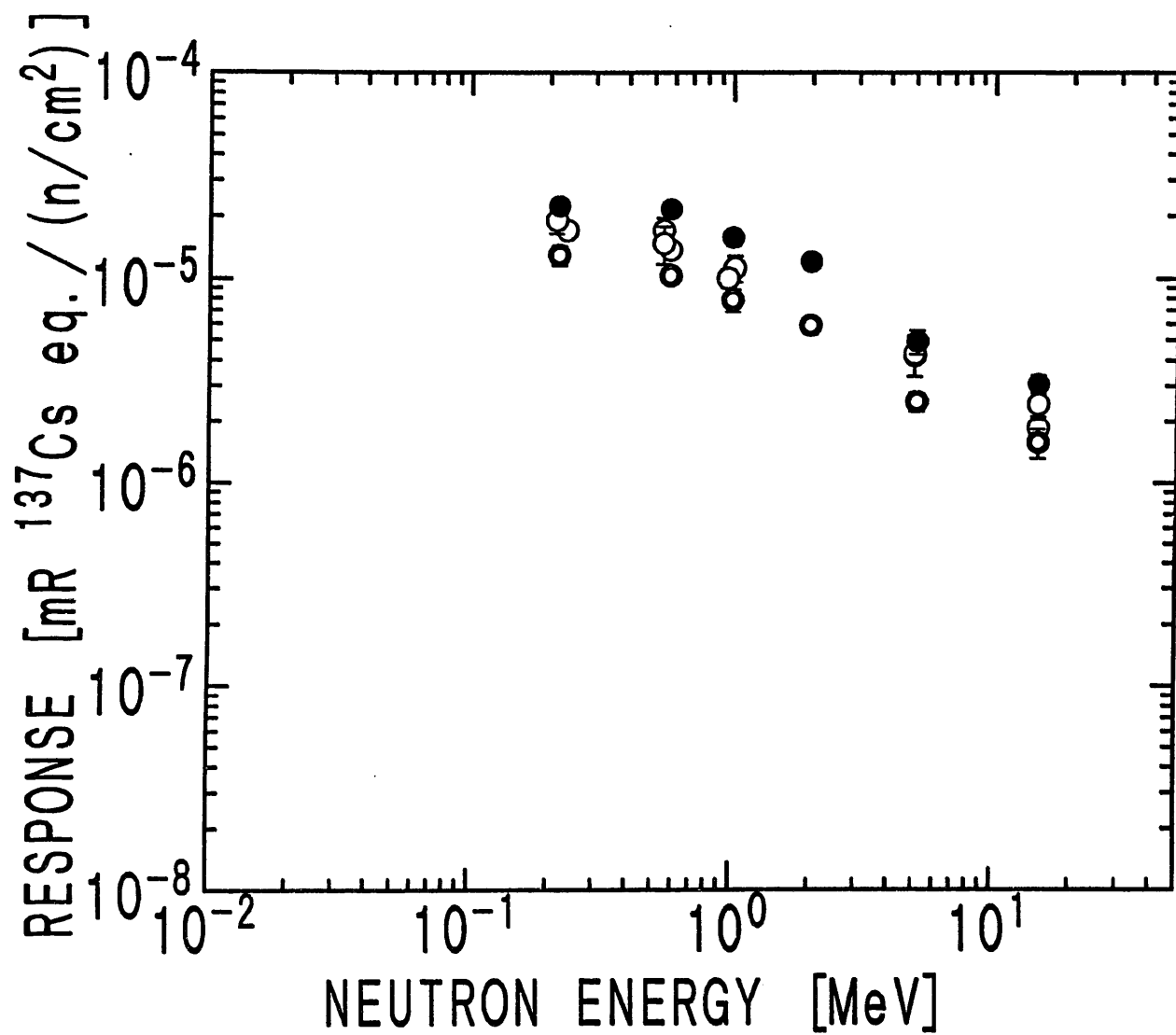


図3-4 改良型UD-809Pの元素N4の中性子応答特性
 (○ 通常型UD-809P[5]、● 高感度型UD-809P、◐ Gd添加型UD-809P)

第4章 まとめ

高感度型 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 及び酸化ガドリニウムを含浸した $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ を蛍光体に用いたTLD線量計を試作し、それらの γ 線及び中性子線に対する感度を調べた。その結果、通常の $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ を蛍光体に用いた線量計に比べて、放射線の線質に関係なく前者が約1.6倍、後者が約0.8倍の感度を持っていることが分かった。酸化ガドリニウムを含浸した $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 蛍光体の感度低下の原因は、結晶体の変色にあると考えられ、また $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ 反応などによる感度の増大については実験的には確認できなかった。

なお、平成5年度に実施した研究の成果から、高感度型 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ を用いたTLD線量計の実用化の準備がほぼ完了しており、またリーダー測定系の最適化などとも合わせると従来よりも約5倍感度の高い線量計の目安がたっている。[2]

これらの改良によって個人被ばく線量当量評価値の信頼性、精度の向上等が期待できる。

謝辞

東北大学工学部高速中性子実験室の実験の際、お忙しい中、加速器の運転など御協力を頂きました馬場護助教授、岩崎智彦助手、松山成男助手に深く感謝します。

参考文献

- [1] ICRP Publication 60, 1990
- [2] 野村保、辻村憲雄、二之宮和重、空増昇
TLDバッジ用素子の改良に関する研究、PNC ZN8410 94-247、1994年
- [3] ニコラス・ツルファニディス著、阪井英次訳
放射線計測の理論と演習 下巻：応用編、現代工学社、1986年
- [4] 中村尚司他、広汎なスペクトル場における中性子線量計の標準較正法の確立
平成4、5年科学研究費補助金一般研究(B)研究成果報告書、1994年
- [5] 百瀬琢磨、伴信彦、二之宮和重、石黒秀治、中村尚司
校正用ファントムにおけるTLDアルベドレスポンスの測定、動燃技報、81、46-49、1992年