

TLD測定値の信頼性の向上に関する検討（V）

緊急測定時における予備加熱の適用

1998年4月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒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

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, 4-33 O-aza-Muramatsu, Tokai-mura, Naka, Ibaraki-ken, 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

TLD測定値の信頼性の向上に関する検討（Ⅴ）

－ 緊急測定時における予備加熱の適用 －

辻村憲雄¹⁾、磯野矢一²⁾、高安哲也²⁾、鈴木忠²⁾
関友紀子²⁾、百瀬琢磨¹⁾、篠原邦彦¹⁾

要 旨

熱蛍光線量計（TLD）は、照射直後数時間の間に測定すると初期フェーディングの影響により、照射後1日後に測定した場合よりも10～30%程度高めの測定値を与える場合がある。そのため、通常の測定においては回収したTLDをデシケーター中に一晩放置し初期フェーディングの影響を自然に除去した後で測定しているが、万一、放射線業務従事者が過剰な被ばくを受けるなどした場合には緊急にTLDを測定する必要がある。

こうした場合に備えて、回収したTLDを主ピーク温度よりも低い温度で加熱し、初期フェーディングの影響を強制的に除去する手法とその最適条件について検討した。その結果、測定前に80℃－20分間の予備加熱（プリアニール）を行うことで、初期フェーディングの影響なしに迅速かつ正確にTLDを測定することが可能となった。

1) 安全管理部安全対策課 2) 常陽産業株式会社

目 次

第1章	緒言	1
第2章	現状把握と対策の立案	4
2-1	現状把握	4
2-2	対策立案	7
第3章	適用試験	8
3-1	プリアニール条件の設定	8
3-2	効果確認試験	8
第4章	まとめ	16
参考文献		16
付録	小型高温チャンバーの仕様	17

第1章 緒言

熱蛍光線量計(TLD)は、放射線との相互作用によって結晶内に蓄積したエネルギーを外部からの加熱によって熱蛍光として放出するという固体現象を利用した線量計である。常温から数100℃に昇温するにつれて結晶から熱蛍光が放出されるが、このときの熱蛍光の測定信号を温度や(昇温)時間の関数として表したグロー曲線はTLDの種類毎に特有であり、その形状によっては熱蛍光の安定性すなわち熱退色(フェーディング)などの特性に違いが生じる。

事業団が個人被ばく管理等に使用している2種類のTLD、ホウ酸リチウムと硫酸カルシウムのグロー曲線とその経時変化をそれぞれ図1-1、図1-2に示す[1]。熱力学的に不安定な低温側の副ピークは、照射直後の数時間の間に大きく減衰するため、個人の被ばく線量の評価には高温側の主ピークの信号を利用している。

TLDバッジの測定に使用する自動リーダー(UD-7100P型)では、これら副ピーク、主ピークを分離して測定するため、適当な間隔に制御されたパルス電圧による三段階の加熱を行っている(図1-3参照)。1回目の加熱では、主ピークよりも低温側の小さな副ピークを除くため、素子を主ピークよりも低い温度に保持し副ピークを強制的にフェーディングさせる。これは、予備加熱(pre-heat)とか読取り前アニール(pre-reading anneal)、または照射後アニール(post irradiation anneal)と呼ばれる。2回目の加熱は主ピークの読取り、三回目の加熱は高温側トラップに蓄積した電子を取り除くためであり、読取り後アニール(post reading anneal)とか照射前アニール(pre-exposure anneal)、または単にアニールと呼ばれる。

このような方法を適用することで、自動リーダーによるTLDの測定では、経時変化の大きい副ピーク部分の信号を取り除くことが理論的には可能になるわけだが、耐熱樹脂フィルム上に接着している蛍光体はフィルムの厚さや接着剤の量の違いによりそれぞれ固有の熱容量を持っているため、昇温のタイミングに個体差が生じ、現実には副ピーク部分と主ピーク部分を完全に分離できない場合がある。このような場合には、照射直後数時間の間にTLDを測定すると副ピーク側の信号が主ピーク側に漏れ込む場合があり、経時変化の大きい副ピークの影響によって主ピーク部分の信号が1日後に測定した場合よりも見掛け上10~30%程度高めの評価値を与えることになる。こうした影響を除去するため、通常個人モニタリングにおいては回収したTLDをデシケーター中に一晩放置し、初期フェーディングの影響を自然に除去した後で測定している。しかし、万一、放射線業務従事者が過剰な被ばくを受けるなどした場合には緊急にTLDを測定する必要があるため、初期フェーディングの影響なしに迅速かつ正確にTLDを測定する手法について検討した。

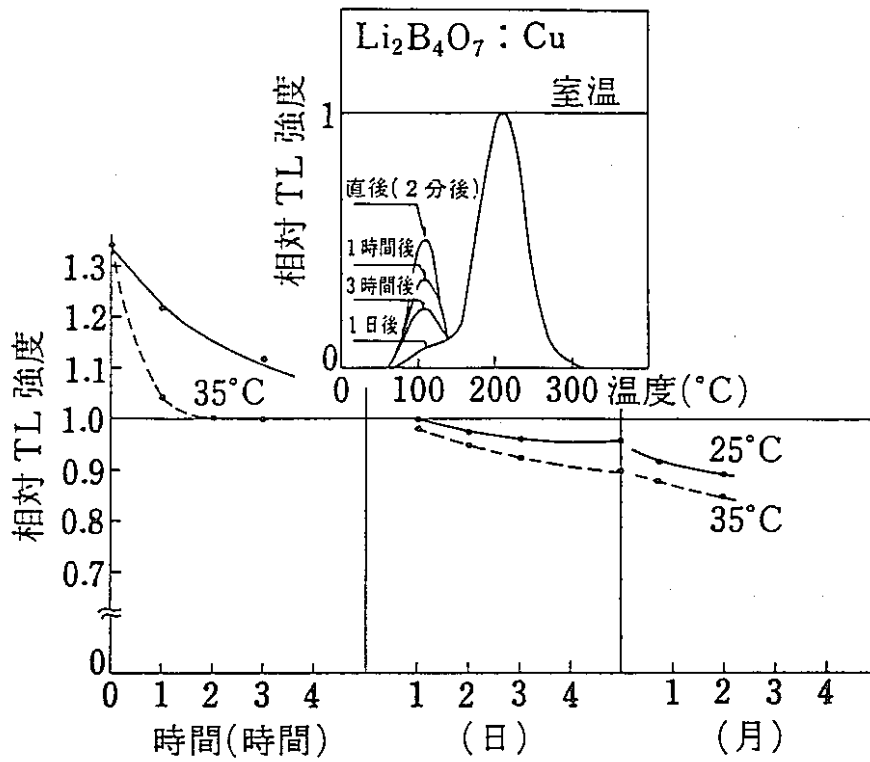


図1-1 ホウ酸リチウム ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$) のフェーディング[1]

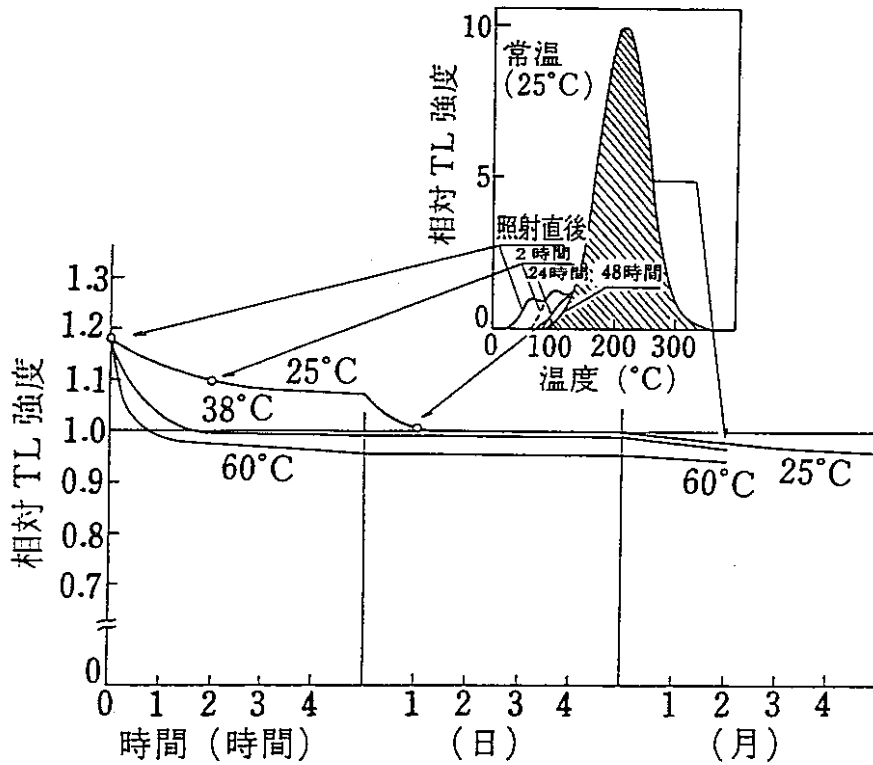


図1-2 硫酸カルシウム ($\text{CaSO}_4(\text{Tm})$) のフェーディング[1]

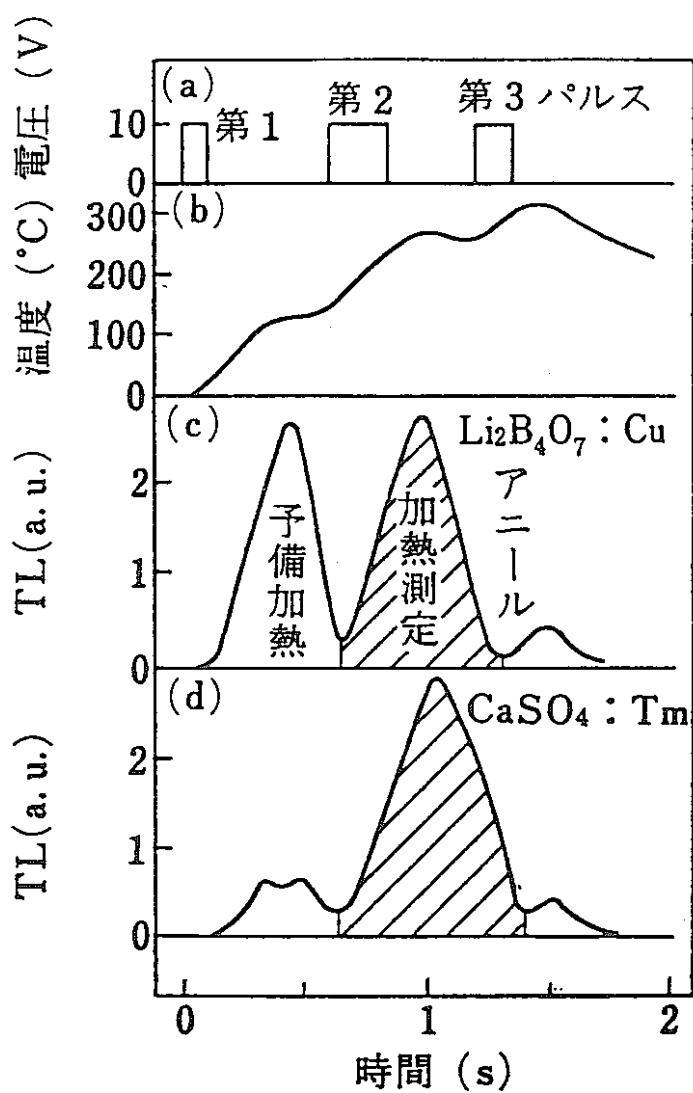


図1-3 3段階加熱の概念図

((a) 印加電圧、(b)温度、(c)及び(d)グロー曲線)

第2章 現状把握と対策の立案

2-1 現状把握

過去に実施した初期フェーディング試験の結果[2]を図2-1に示す。図2-1(a)は、二回目の加熱で得られる主ピーク領域の熱蛍光信号（メインドーズ）の経時変化を表したもの、図(b)(c)はそれぞれホウ酸リチウムと硫酸カルシウムについてのメインドーズに対するプリドーズ（一回目の加熱で得られる主に副ピーク領域の熱蛍光信号）とポストドーズ（3回目の加熱で得られる信号であり、主ピークの一部と熱輻射雑音成分から成る）の比の経時変化である。この試験結果では、ホウ酸リチウムTLDの場合、照射直後1時間程度の間測定すると一晩放置した後に測定した場合に比べて約30%程度高めの値を示すことが分かる。一方、硫酸カルシウムTLDについては、照射直後と1時間後でほとんど違いが無く、初期フェーディングによる影響が極めて小さい。

そこで、初期フェーディングの影響を再確認するため次のような試験を行った。

照射	約160mR（安全管理別棟設置のTLD自動照射装置(¹³⁷ Cs)）
測定時間	照射後30分、1時間、2時間、3時間、4時間、1日後 （測定は同時に実施）
個数	UD-808P線量計 10個（照射当たり）
リーダー	自動リーダー2号機

図2-2(a)にメインドーズの経時変化を、図(b)(c)にメインドーズに対するプリドーズとポストドーズの値の比の経時変化を示す。この試験では、ホウ酸リチウムTLDのメインドーズの経時変化はほとんど見られず、照射直後（30分）でも一日後に比べて僅かに4%高い程度であった。また、ホウ酸リチウムTLDのプリドーズは、照射直後ではメインドーズと同等の発光量であるが、時間経過と共に次第に減少し一日後ではほとんど観測されない程度になることが分かった。

過去に実施した試験の結果と今回の再試験の結果とでは、初期フェーディングの影響に大きな相違が見られるが、この理由はTLD自動リーダーの加熱状態の違いによるものと考えられる。過去の試験結果では、今回の試験結果に比べて照射直後のプリドーズ/メインドーズ比がやや小さく、ポストメインドーズ比が大きい傾向にある。特に、硫酸カルシウムTLDについては、一日後でもポスト/メインドーズ比が約30%以上であり、TLD自動リーダーの加熱条件の適正範囲の目安であるポストドーズ/メインドーズ比15~25%を超えている。これは、当時の加熱状態が適正な状態に比べてやや弱かったことを意味し、副ピークの一部が主ピーク領域へ、主ピークの一部がポストドーズ領域へそれぞれ僅かにシフトされた条件下で測定されたためであろう。一方、再試験を実施したときの自動リーダーの加熱状態は、副ピークと主ピークを適切に分

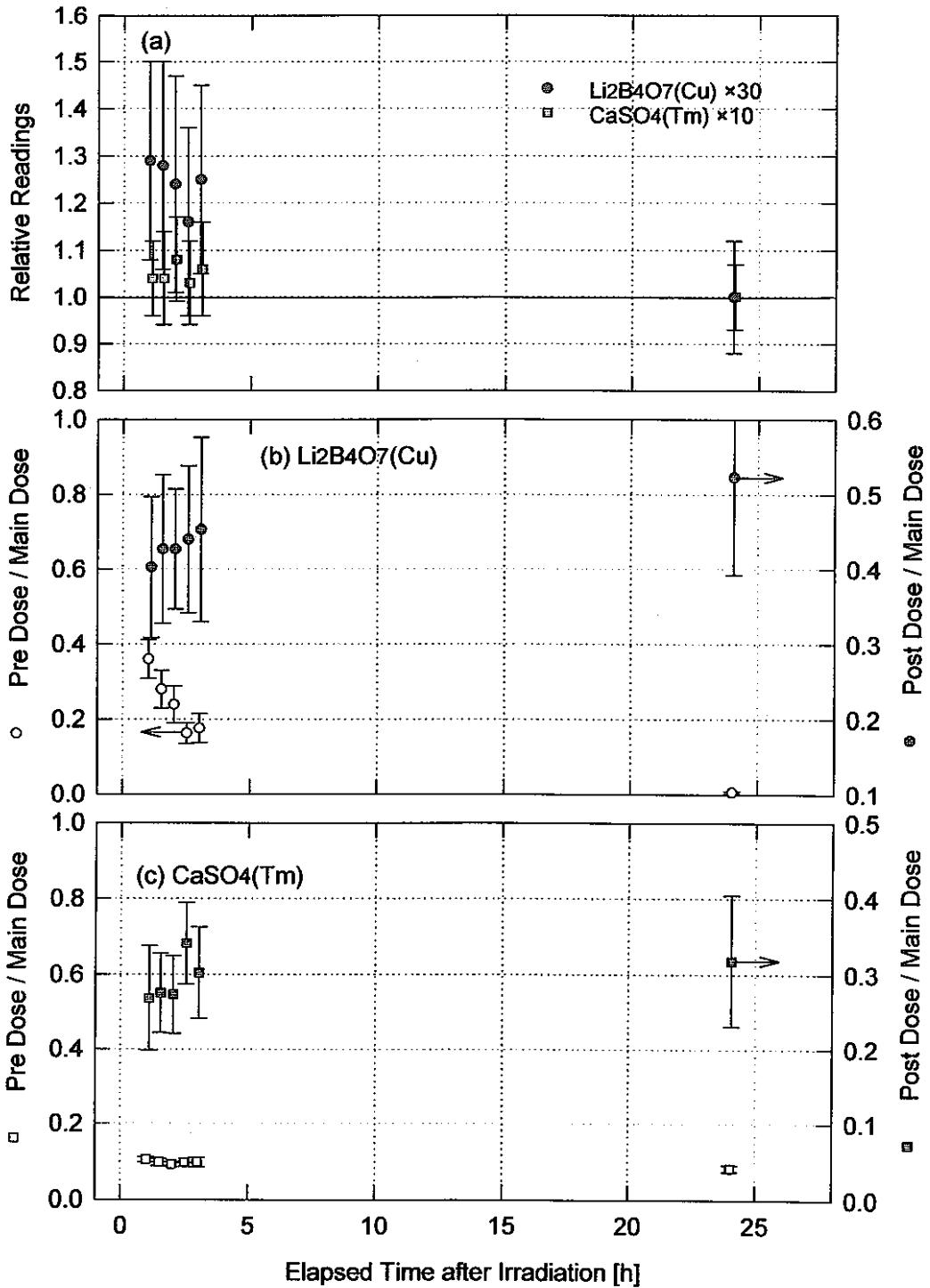


図 2-1 初期フェーディング確認試験の結果[2]

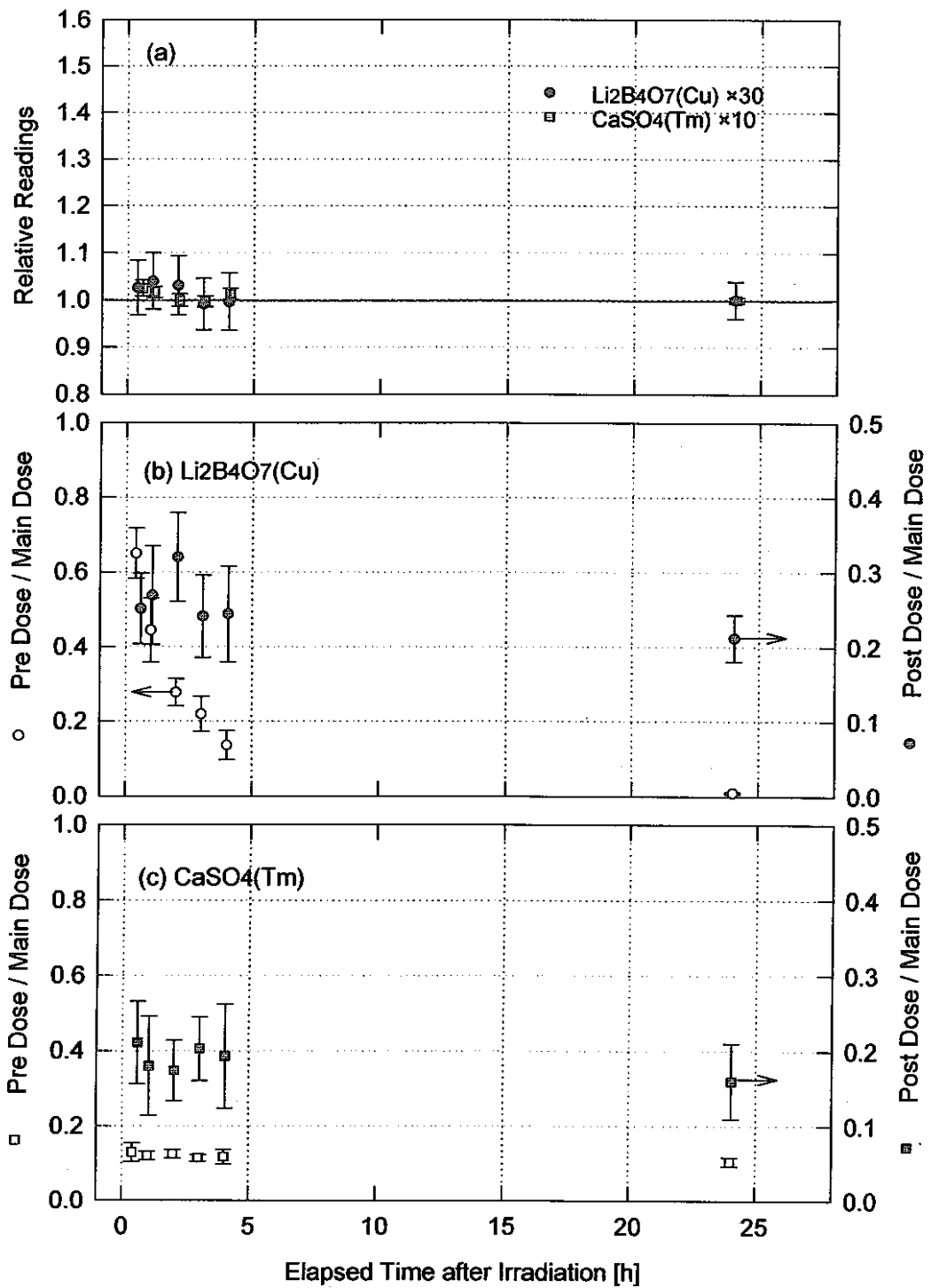


図2-2 初期フェーディング確認試験の結果 (再試験)

離できる条件であったため、初期フェーディングの影響が無視できる程度まで低減されたと考えられる。

2-2 対策の立案

初期フェーディングによる影響の再確認試験の結果から、現時点でのTLD自動リーダー1号機の加熱状態は、一回目の加熱で十分に副ピークを除去できる状態にあり、副ピークの初期フェーディングは主ピークの読取りにほとんど影響しない程度であることが分かった。

ただし、

- (1) TLD素子は製造年度により僅かに熱容量に差があり昇温しにくいものがある。そのようなTLD素子は初期フェーディングの影響を受けやすい可能性があること。
- (2) 自動TLDリーダーの加熱状態の設定は、かなり微妙な調整を必要とし、現時点での状態をそのまま維持し続けることが難しいこと。
- (3) ホウ酸リチウムTLDは、一日間放置した条件下では、副ピーク領域の信号は原理的に観測されないため、副ピーク領域に信号が出ているかどうかで、リーダーの機械的な故障によるノイズかどうかを識別してこと[2]。

などの点を考慮に入れると、TLD素子の熱容量の個体差や照射後の時間やリーダーの加熱状態の設定に影響を受けることなく副ピークを除去できるような測定手法の確立が望まれる。

そこで、測定の前に副ピークだけを選択的に除去するため、主ピークよりも低い温度でTLDを加熱し副ピークを強制的にフェーディングさせる方法を検討した。このような方法は、「予備加熱」あるいは「プリアニール」と呼ばれる。松下産業機器㈱によると同社がTLDを出荷する際に実施する感度試験におけるプリアニール条件は次の通りである[3]。

- ① 60°C - 60分
- ② 100°C - 5分

前者の条件は、緊急時の測定というには時間がかかりすぎるという問題がある。また、後者は耐熱樹脂フィルム上に接着したTLD素子（プレート部）だけであれば何ら問題もないが、TLDの個体番号等を印字しているホルダー部は100°Cの高温には耐えることができない可能性がある。またホルダー部からプレート部を抜き取ってプリアニールする場合、TLDと着用者の識別ができなくなる恐れがあるためリスクが大きい。そのため、①と②の条件を基本に、個人被ばく管理業務で適用可能なプリアニールの条件を検討することとした。

第3章 適用試験

3-1 プリアニール条件の設定

プリアニールを行うため小型高温チャンバーを購入した。この装置は、熱風加熱により200℃まで加熱することができる。なお、小型高温チャンバーの仕様については付録に示した。

次に、この小型高温チャンバーを用いて、加熱時間と温度を変えた幾つかの加熱試験を行いTLD素子の耐熱性を調べた。結果を表3-1に示す。

表3-1 TLD素子の耐熱性試験の結果

条件	温度	加熱時間	ホルダー有無	結果
I	100℃	10分	有り	ホルダー変形
			無し	影響無し
II	80℃	20分	有り	影響無し
			無し	影響無し
III	60℃	60分	有り	影響無し
			無し	影響無し

ホルダー無しの状態のTLDプレートについては、元来、耐熱性素材で作られていることもあり、何れの加熱条件もプレートの形状に何ら影響も無かった。ただし、加熱条件Iでは、TLDプレートを格納するホルダーが僅かに変形した。変形したホルダーは、リーダーによる自動測定時に“つかえる”などの障害を引き起こす可能性があるためプリアニール時の条件としては適切でない。

前述したように、プリアニールの際には、着用者の識別にはホルダーにラベル印刷している個体番号が必要であること、できるだけ加熱時間が短いことが望ましいこと、などの理由により、加熱条件IIをプリアニールの条件として選定した。

3-2 効果確認試験

前節で選定した条件でプリアニールを行った場合の効果を確認するため、個人被ばく管理業務に使用しているTLDの中から無作為に抽出した計40個のUD-808P線量計を10個ずつ4グループに分類し、下表に示す条件で照射・測定を実施した。

グループ	照射	照射-測定時間	プリアニール
A	γ線約156mR*	24時間40分	なし
B	γ線約156mR*	24時間40分	80℃-20分加熱、20分自然冷却
C	γ線約156mR*	1時間	80℃-20分加熱、20分自然冷却
D	γ線約156mR*	1時間	なし

* 平成9年4月現在

グループAは、照射後1日間放置することで自然に副ピークを消去させるもので、個人被ばく管理で使用したTLDを測定する場合の方法と同じである。一方、グループB、Cは、プリアニールを適用した場合の試験、さらにグループDは照射後に何ら処理も行わなかった場合の試験である。

測定には自動リーダー2号機を使用し、グループAとBについては照射を前日に行うことで、グループC、Dと同じタイミングで測定するようスケジュールを調整した。また、あらかじめグループA～DのTLDに ^{137}Cs γ 線の標準照射を行い、感度の個体差を補正する係数を決定した。

(1) 実験結果

ホウ酸リチウムTLD、硫酸カルシウムTLDの測定結果をそれぞれ表3-2、表3-3に示す。

照射後、1日間放置し副ピークを自然に除去したグループAについてはホウ酸リチウムTLDのメインドーズ平均値は照射した線量(156mR)に一致した。また、80°C-20分間のプリアニールを行ったグループCについては、副ピークは完全に消去され、メインドーズ平均値は照射した線量(156mR)に一致した。一方、照射1時間後に、プリアニールせずに測定したグループDについては、メインドーズは照射した線量よりも平均して約10%高い結果となった。

硫酸カルシウムTLDについては、プリアニールの有無、照射後の放置時間に関係なく、メインドーズは照射した線量に一致した。ただし、プリアニールを行ったグループBとCの場合、プリアニールを行わない場合に比べてプリドーズの値が僅かに小さくなることが分かった。

(2) グロー曲線

グループA～DのTLDを測定したときのグロー曲線をグループ別にそれぞれ図3-1から図3-4に示す。なお、ここで示したグロー曲線は、TLDの感度の個体差を補正していない、10素子についての平均グロー曲線であるので、同じグループ内の同じ種類のTLDについてでもピークの高さ等が異なる。

副ピークを自然に、あるいは強制的に除去したグループA、B及びCについては、ホウ酸リチウムTLDの副ピークは観測されていない。一方、照射後1時間でプリアニールをせずに測定したグループD(図3-4)については、副ピークが観測されている。ただし、同じホウ酸リチウムTLDでも、同図の(b)の元素G1と図(c)(d)の元素G2、G4とではその形状並びにメインドーズの過大評価の傾向に相違がある。前者の元素G1については、副ピークと主ピークが良く分離しており、メインドーズは照射した線量とほぼ一致している。一方、後者の元素G2、G4については、副ピークと主ピークが分離できておらず、さらに主ピークの立ち上がりの途中の70チャ

ンネル近傍に“肩”が見られる。これは、本来プリドーズの領域で観測されるべき副ピークが1回目の加熱（ランプ点灯）で完全に発光しきれず、2回目の加熱の初期段階で発光した“副ピークの一部”と考えられ、これによって見掛け上メインドーズが照射した線量に比べて大きくなってしまふ。

こうした現象が生じた理由は、エレメントG1とエレメントG2、G4の熱容量の違い、すなわちエレメントG2、G4の方が昇温しにくいためであり注)、こうしたTLD素子の場合は初期フェーディングの影響が見掛け上大きく見えることになる。

(3) まとめ

80°C-20分間の予備加熱で副ピークを完全に除去でき、かつ主ピークには何ら影響も与えないことが確認された。

注) 本試験結果について松下産業機器株式会社の技術者に確認したところ、同一の工程で製造されているTLDの場合、エレメント間で熱容量に差が出ることは考えにくいとの解答であった。さらに、リーダーの加熱ランプに常時通電しているブリーダー電流の大小によっては、同時に測定した場合であっても、エレメント間で加熱の強弱に違いが生じる可能性があるとの指摘を受けた。

表3-2 プリアニール効果確認試験結果 (ホウ酸リチウムTLD)

Gr.	素子数	読取り値 [mR ¹³⁷ Cs eq.]			プリ/メイン	ポスト/メイン
		プリトース	メイントース	ポストトース		
A	30 (全エレメント)	0.6±0.5	156.3±5.6 (1.00*)	40.9±5.6	0.00±0.00	0.26±0.05
B	30 (全エレメント)	0.4±0.5	160.8±6.2 (1.03)	47.2±11.1	0.00±0.00	0.29±0.07
C	30 (全エレメント)	0.9±0.7	160.6±9.0 (1.03)	52.4±14.4	0.01±0.00	0.33±0.09
D	30 (全エレメント)	54.8±10.9	172.3±10.1 (1.10)	54.6±14.1	0.32±0.08	0.32±0.07
	10** (エレメントG1)	66.6±7.8	161.7±4.3 (1.04)	47.1±10.8	0.41±0.05	0.29±0.06
	10** (エレメントG2)	49.3±6.2	181.1±7.7 (1.16)	57.6±16.6	0.27±0.04	0.32±0.08
	10** (エレメントG4)	48.4±7.3	174.3±6.1 (1.12)	59.2±12.6	0.28±0.05	0.34±0.07

* 照射した線量(156mR)に対する比

** グループDのエレメント別の結果

表3-3 プリアニール効果確認試験結果 (硫酸カルシウムTLD)

Gr.	素子数	読取り値 [mR ¹³⁷ Cs eq.]			プリ/メイン	ポスト/メイン
		プリトース	メイントース	ポストトース		
A	10	11.6±1.2	155.1±1.4 (0.99)	25.9±6.6	0.07±0.01	0.17±0.04
B	10	5.4±0.9	155.7±1.5 (1.00)	30.1±10.0	0.03±0.01	0.19±0.06
C	10	6.0±0.6	158.2±1.6 (1.01)	35.8±6.7	0.04±0.00	0.23±0.04
D	10	15.9±1.0	159.6±1.6 (1.02)	31.1±4.8	0.10±0.01	0.20±0.03

* 照射した線量(156mR)に対する比

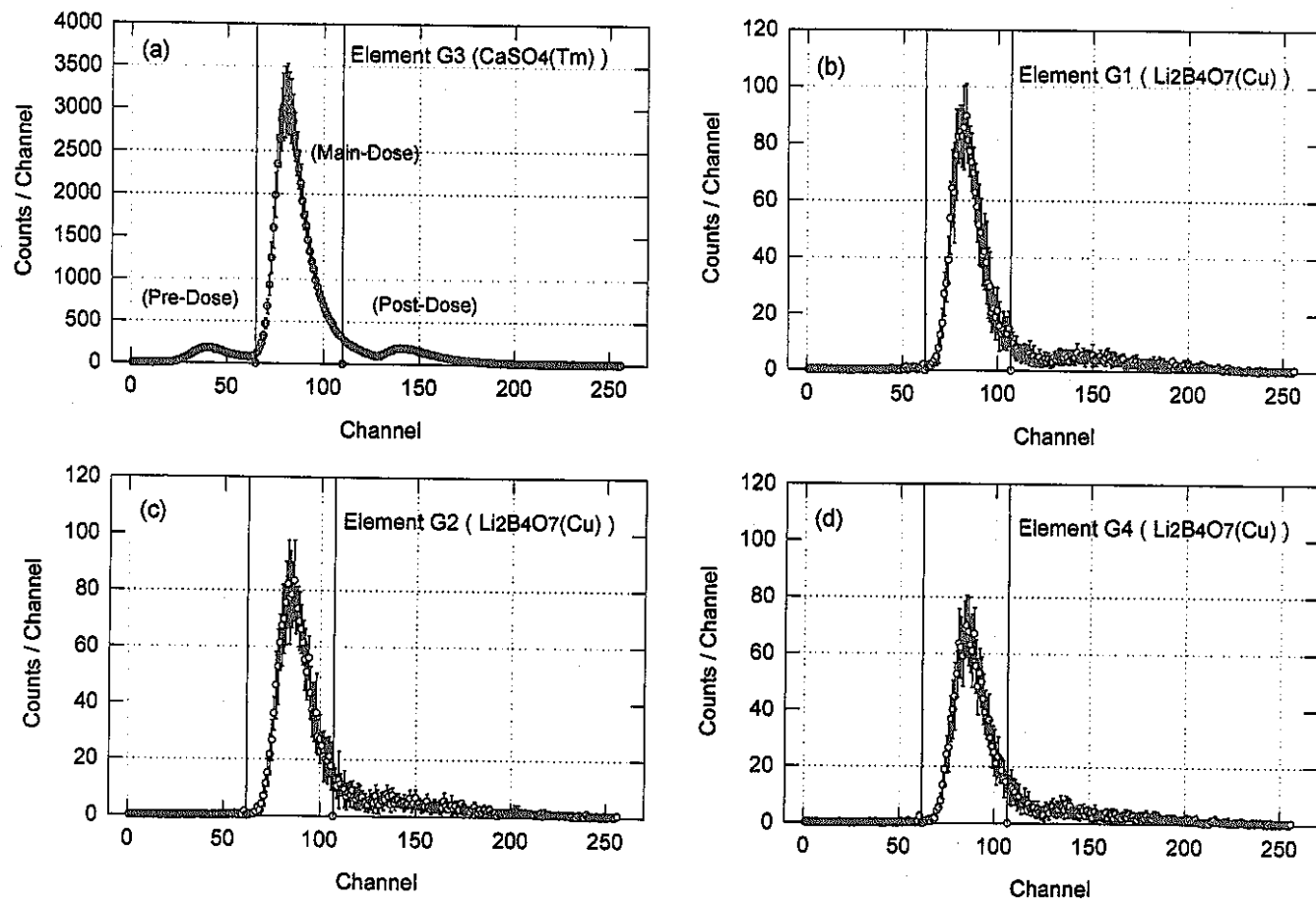


図3-1 グループA (照射-測定時間 24時間40分、プリアニールなし) のTLDのグロー曲線

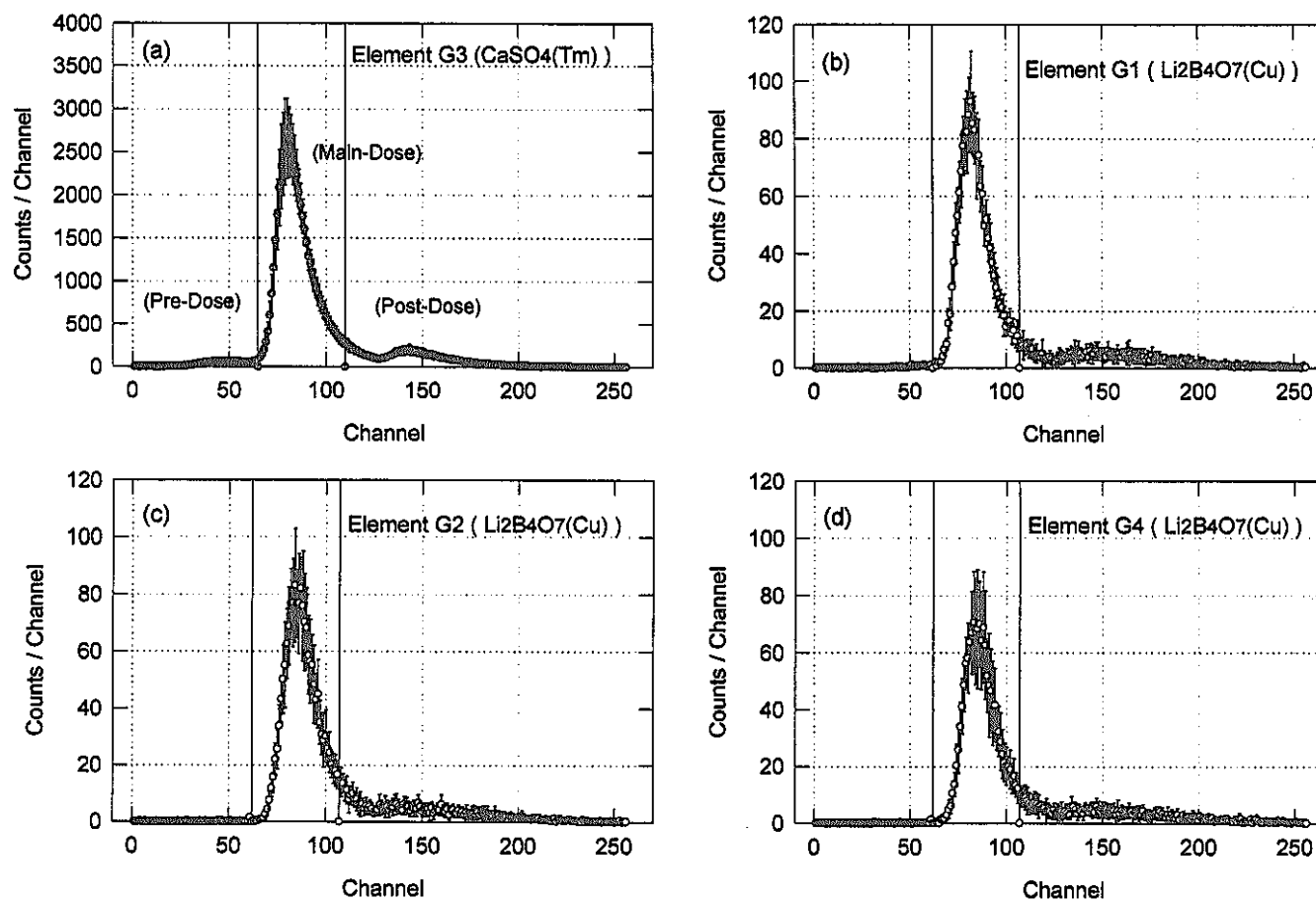


図3-2 グループB (照射-測定時間 24時間40分、プリアニールあり) のTLDのグロー曲線

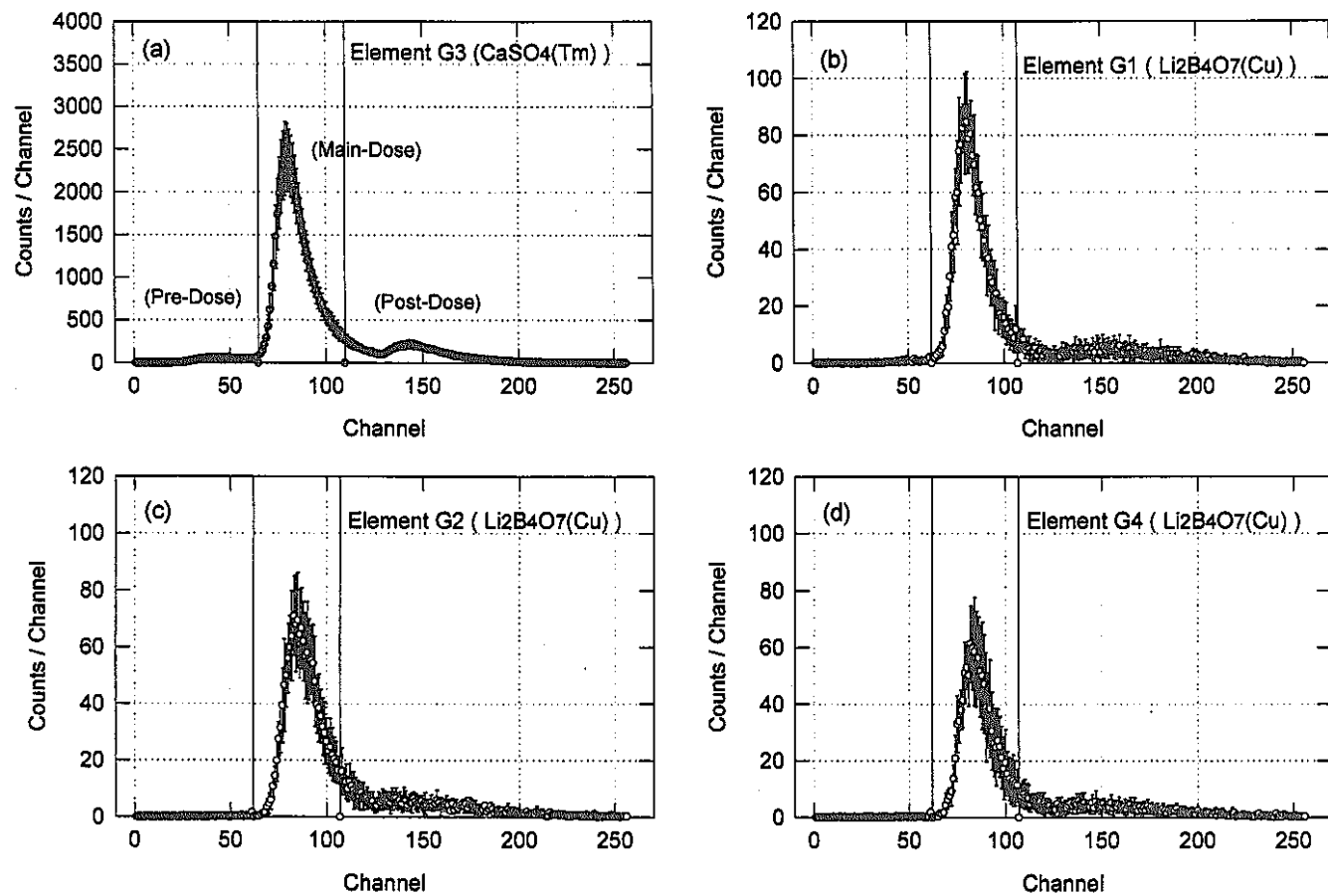


図 3-3 グループC (照射-測定時間 1 時間、プリアニールあり) のTLDのグロー曲線

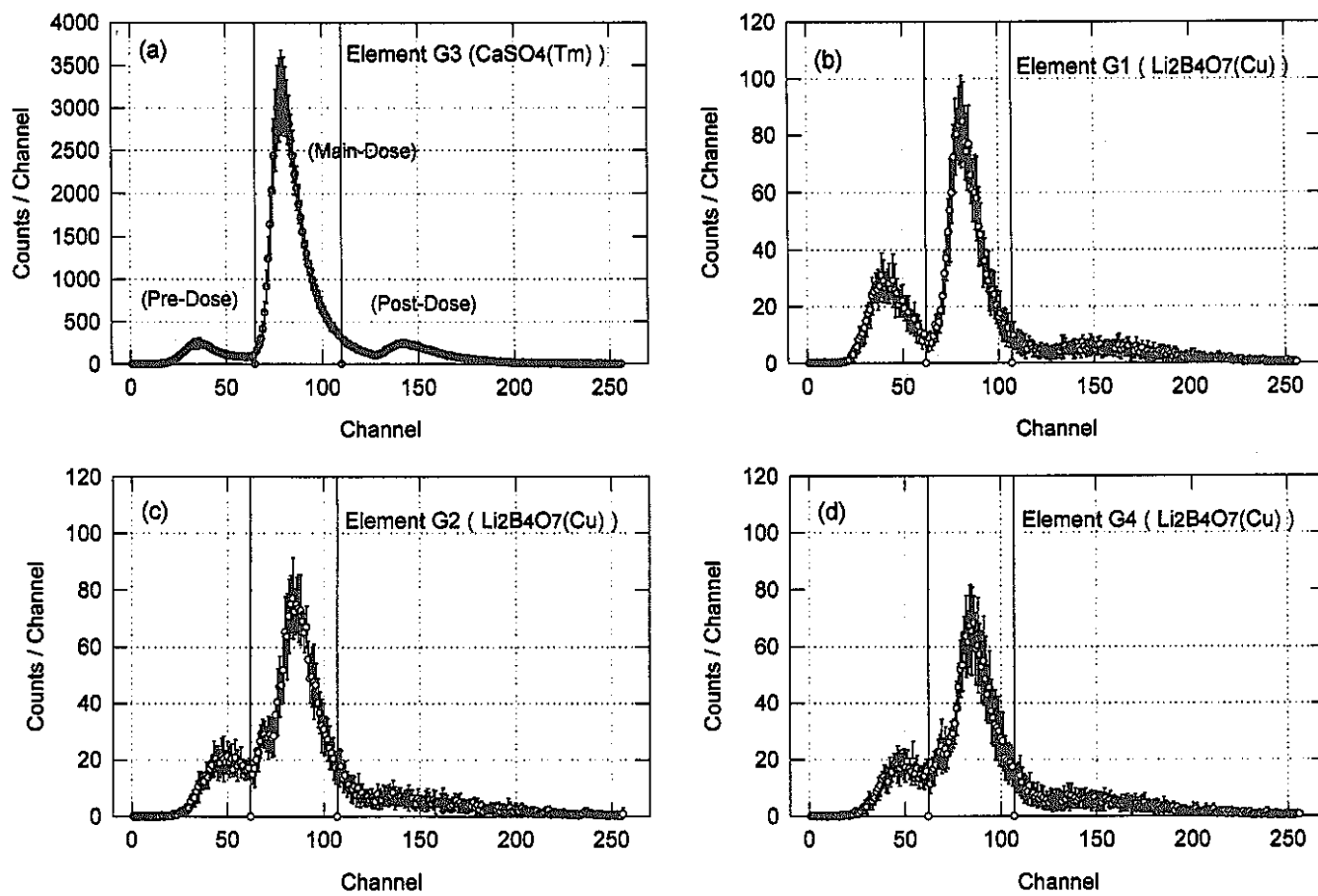


図3-4 グループD (照射-測定時間 1時間、プリアニールなし) のTLDのグロー曲線

第4章 まとめ

初期フェーディングの影響を受けることなく、照射直後のTLDを迅速に測定する手法について検討した。その結果、測定前に80°C— 20分の予備加熱を行い、主ピークよりも低い温度で副ピークの信号を強制的に除去することによって、初期フェーディングの影響なし、またTLD素子の熱容量の個体差に関係なく、迅速かつ正確にTLDを測定することが可能となった。

本手法は、管理基準を超えるような高線量の被ばくが予想され、かつ被ばく直後の1時間以内でTLDを緊急に測定しなければならないケースでの適用が考えられるが、短期間内に連続した照射・測定を行う等の実験においても有用である。

なお、本報告書の試験結果は平成8年度上半期の安全管理部小集団活動の一環として行った活動の成果をまとめたものである。

参考文献

- [1] 藤村亮一郎、山下忠興
「放射線による固体现象と線量測定」、養賢堂、1985
- [2] 辻村憲雄、江尻明、百瀬琢磨、篠原邦彦
「TLD測定値の信頼性の向上に関する検討（I） — TLDの異常測定値例とそのパターン解析 —」、PNC ZN8410 95-378、1995
- [3] 私信、空増昇

付録 小型高温チャンバーの仕様

ダビエスペック株式会社製の小型高温チャンバー（型式 ST-110-B1）の外観写真を図1に、仕様を表1に示す。

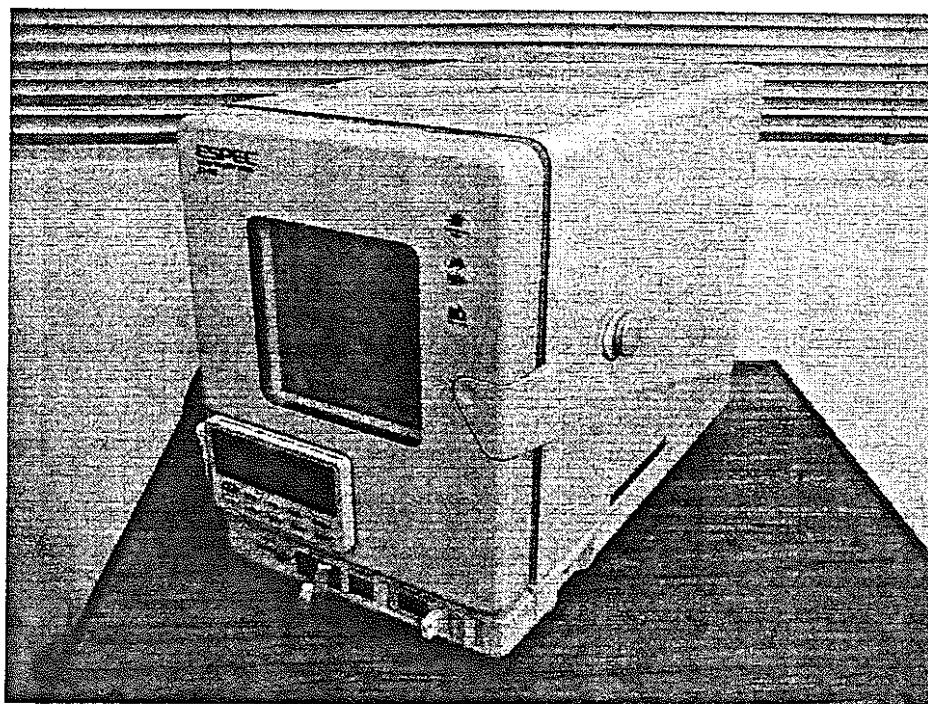


図1 小型高温チャンバーの外観

表1 小型高温チャンバーの仕様

型 式		ST-110-B1
電源電圧/全負荷電流		AC100V / 9A
方 式		強制熱風循環・換気方式
運転可能周囲温度範囲		5~35°C
性 能	温度範囲	(室温20°C) ~200°C
	温度調節幅	±0.3°C
	温度分布	±0.5°C (at 100°C)、±1.5°C (at 200°C)
	温度上昇時間	室温から200°Cまで30分以内
付属機能		観測窓、独立温度過昇防止器、風速可変装置、温度検出用端子、試料電源制御端子、リセット付き積算時間計、外部警報端子、外部出力端子
内 容 量		15リットル
内法 / 外法		W220 × H280 × D350mm / W300 × H435 × D540mm
重 量		約25kg