



Title	熱蛍光線量計に関する基礎的研究 第1編 各種熱蛍光体のglow curveについて
Author(s)	西台, 武弘; 小野山, 靖人; 阿部, 光幸 他
Citation	日本医学放射線学会雑誌. 1973, 33(11), p. 877-888
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/17466
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

熱蛍光線量計に関する基礎的研究

第1編 各種熱蛍光体の glow curve について

京都大学医学部放射線医学教室

西台 武弘 小野山靖人 阿部 光幸
高橋 正治 陶山 純夫

(昭和48年6月7日受付)

(昭和48年9月25日最終原稿受付)

Fundamental Studies on Thermoluminescence Dosimetry

1st Report: Glow Curves of TL Phosphors

by

Takehiro Nishidai, Yasuto Onoyama, Mitsuyuki Abe, Masaji Takahashi

Sumio Suyama

Department of Radiology, Faculty of Medicine, Kyoto University

Research Code No.: 203

Key Words: TLD, Glow curves

It is convenient to be able to produce glow curves for situations when changes in the phosphor are suspected or for a research involving the TL phenomena. This investigation deals with several factors which have an influence on glow curves.

1. Glow curves were narrowed with an increase in the heating rate. The temperature of the glow peak and the peak height varied with the peak intensities, the shape of the glow curve and the heating apparatus.

2. The absolute and relative heights of the peaks were changed by pre-irradiation annealing at a given temperature. This effect was different in each TL phosphors and depended on annealing times and cooling rates.

3. Some of the phosphors have several shallow traps. It takes about two days to empty the traps at the room temperature. With the fading of response, the main peak is reduced.

4. For some TLD materials, changes in the shape of the glow curve occur at different exposure levels. The amounts of TL as a function of exposure are nonlinear at the exposure levels which produce changes of the glow curves. It was found that the change in the glow curve had a relationship with the occurrence of the supralinearity.

目 次

- I. 序 論
- II. 実験方法

III. 実験結果

- 1. 各種熱蛍光体の glow curve
- 2. 加熱速度による glow curve の変化

3. pre-irradiation annealing による glow curve の変化
4. fading による glow curve の変化
5. 照射線量による glow curve の変化

IV. 考 案

V. 要約および結論

I. 序 論

近年, TLD(Thermoluminescence Dosimetry)に関する研究が活発に行なわれるようになり, 数多くの論文が発表されている²³⁾³⁶⁾. 我国においても, 各メーカーにより独自に蛍光体, 計測器が開発され²¹⁾²²⁾³⁶⁾³⁷⁾³⁸⁾, 昭和47年8月に個人被ばく線量計としてのTLD. JIS規格が制定され, 放射線管理の分野で既に実用化されている.

TLD蛍光体を線量測定に使用する場合, 蛍光体の加熱速度, 加熱板の最高温度等を決めるために, 蛍光体の glow curve を知る必要がある. 一般に蛍光体の glow curve は個々の蛍光体の trap 分布を知るのに利用でき, glow peak は蛍光体中の trap energy level を示している.

我々は現在市販されている各種TLD蛍光体の glow curve を同じ条件で測定し, glow peak の相対的な温度を決定した. 次に各種蛍光体の glow curve が変化する要因について検討するため, 加熱速度, pre-irradiation annealing, fading, 照射線量による glow curve の変化について実験を行なつた.

Facey, R.A.⁸⁾ は $\text{CaSO}_4 : \text{Mn}$ について実験を行ない, 6 °C/min から 2400 °C/min までの加熱速度の変化で glow peak の表われる温度が約 100 °C から 160 °C まで変化する事を示し, glow curve の形は加熱速度の変化には, あまり依存しないが glow peak の現われる温度は加熱速度に依存すると報告している. 我々は他の蛍光体 powder についても実験を行ない, 上記の現象を他の蛍光体にも適用できるかどうかを検討した.

pre-irradiation annealingをいろいろな状態で行なつた場合, glow curve は著しく変化し, TLD蛍光体の感度に影響を及ぼす. Zimmerman, D.W. et al.³⁹⁾ は LiF (TLD 100) の pre-irradiation

annealing 効果に関して詳しく報告している. 我々は他の蛍光体について実験を行ない, pre-irradiation annealing の一般的な効果について考察した.

また, 低温部の glow peak は非常に不安定で, 蛍光体の fading 現象により照射後数時間で減少する. 我々は一般的な fading 現象について考察した.

最後に照射線量による glow curve の変化について実験を行なつた.

以上, glow curve が変化する要因について実験を行ない, これらの基礎実験をもとに第2編で “TLD 蛍光体の Supralinearity の原因” について考察する.

II. 実験方法

実験に使用した蛍光体を Table 1 に示す. 蛍光体は全て fresh powder を使用した. 測定器は Harshaw Model 2000AB¹²⁾¹³⁾ である.

Table 1 Characteristics of TL phosphors available from

- (1)-(5): Harshaw Chemical Company,
- (6), (7): Matsushita Electric Industrial Co. Ltd.,
- (8), (9): Dainihontoryo Co. Ltd.,

PHOSPHORS	DENSITY g/cm ³	EFFECTIVE ATOMIC NO (Z) FOR PHOTOELECTRIC ABSORPTION	EFFECTIVE ATOMIC NO (Z) FOR PAIR FORMATION	TL EMISSION SPECTRA
$\text{LiF}^{(1)}$	2.64 (POWD.) 1.3 (POWDER)	8.20	7.52	3500-6000 Å (4000 MAX)
$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_5\text{Mn}^{(2)}$	2.4 (RIBBON) 1.2 (POWDER)	7.4	6.90	5300-6300 Å (6050 MAX)
$\text{CaF}_2:\text{Mn}^{(3)}$ (TLD 200)	3.18 (POWDER)	16.3	14.8	PEAKS AT 3835 Å 5765 Å
$\text{CaF}_2:\text{Mn}^{(4)}$	3.18 (POWDER)	16.3	14.8	4400-6000 Å (5000 MAX)
$\text{CaSO}_4:\text{Mn}, \text{Na}^{(5)}$	2.61 (POWDER)	15.3	13.4	4500-6000 Å (5000 MAX)
$\text{CaSO}_4:\text{Mn}^{(6)}$	2.61 (POWDER)	15.3	13.4	4500 Å
$\text{Ba}_2\text{SiO}_4:\text{Ts}^{(7)}$	3.01 (POWDER)	7.4-7.6	6.57	3000 Å
$\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Ts}^{(8)}$			11.1	4900 Å
$\text{MgB}_2:\text{Ts}^{(9)}$				

蛍光体自身の実際の加熱温度を求めることは不可能である. 我々は表示温度として加熱板の温度を使用し, 今までに一番よく報告されている LiF, main peak (peak IV, V の合成 peak, Fig. 1 参照) の温度¹⁰⁾¹⁸⁾¹⁶⁾²⁶⁾²⁷⁾²⁸⁾³⁹⁾ が加熱速度 4 °C/sec で 200 °C になり, この温度が正しいとして相対的な温度を決定した. 一方, Cameron, J.R.⁶⁾ は加熱速度

120°C/min で CaF_2 : natural の peak 温度 I. 80°C, II. 170°C, III. 260°C を使用して温度を決定すればよいと報告している。

Harshaw Model 2000の加熱システムについて, heating rate は連続可変であり, 我々が実験に使用した 4°C/sec から 18°C/sec の範囲では, 低温度 (100°C 以下) をのぞき, heat-time 関係が直線性を示す。高久²⁹も同様の結果を調べている。

線源は ^{60}Co , ^{137}Cs であり, 照射は充分な二次電子平衡が成立する深さで行なつた。照射線量の測定には我々の施設における sub-standard な線量計である Ionex 0.6cc chamber を使用した。この線量計は放医研 substandard dosimeter と較正済である。

III. 実験結果

1. 各種蛍光体の glow curve

Fig. 1 に各種 TL 蛍光体を powder 4°C/sec で加熱した時の glow curve を示す。図中の破線はスケールの切り変りを示す。これらは全て fresh powder (virgin powder) を使用し, 照射直後 (1 分後) に測定を行なつた。

a) 前処理 400°C 1 時間 + 100°C 24 時間の pre-irradiation annealing を行なつた LiF (TLD 700) powder に ^{60}Co , γ 線, 44R を照射した時の glow curve を Fig. 1-(A) に示す。peak IV, V は合成され, 他に約 80°C の peak が現われる。後述するように, 種々の pre-irradiation annealing 状態により, I. 60°C, II. 120°C, III. 160°C, IV+V.

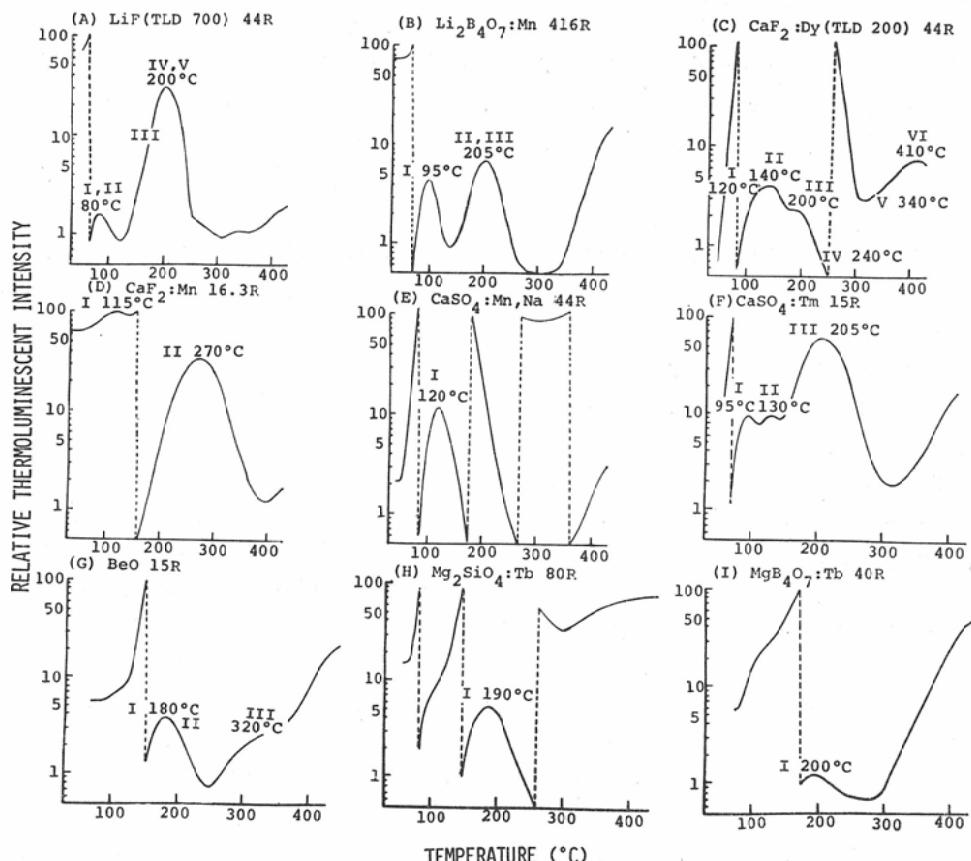


Fig. 1 Typical glow curves from TL virgin phosphors. Heating rate is 4°C/sec. The position of the main peak for LiF (TLD 700) is used to calibrate the temperatures.

200°Cに peak が現われる。また、230°C peak は main peak に含まれてしまい、高線量を照射した時ののみに現われる。その他に peak VI. 約 270 °C, VII. 約 380°Cが現われる。

現在までに LiF 蛍光体の peak 温度について、数多くの報告がなされているが、その多くは照射条件が不明であつたり、測定システムの違い等から、peak 温度が異なつてゐる。一方、Townsend, P.D.³¹⁾によれば、LiF は 20—550°K の範囲で約28個の peak をもつてゐる。

b) $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$ powder に ^{60}Co , γ 線, 416 R を照射した時の glow curve を Fig. 1—(B) に示す。peak I は 95°C に、peak II, III は分離せずに 1 つの peak となり、205°C に現われる。Schulman, J.H. et. al.²²⁾ は peak I, 90°C, II. 180 °C, III. 220°C が現わることを示してゐる。

c) $\text{CaF}_2 : \text{Dy}$ (TLD 200) powder に ^{60}Co , γ 線, 44R を照射した時の glow curve を Fig. 1—(C) に示す。peak は II. 140°C, III. 200°C, IV. 410°C に現われる。また、照射線量が変化すると、peak I. 120°C, IV. 240°C が現われる。(III—5 節、参照) Bringer, W. and Cameron, J.R.⁴⁾ はこれらの peak のほかに 340°C に peak V が現われると報告してゐる。

d) $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ powder に ^{60}Co , γ 線, 16.3R を照射した時の glow curve を Fig. 1—(D) に示す。I. 115°C, II. 270°C の 2 つの peak を得たが peak I は peak II とくらべると非常に小さい。一方、Marrone, M.J. and Attix, F.H.¹³⁾ は 250°C に、Spurny, Z.D.²⁶⁾ は 260°C に单一の peak を示すと報告してゐる。

e) $\text{CaSO}_4 : \text{Mn,Na}$ powder に ^{60}Co , γ 線, 44 R を照射した時の glow curve を Fig. 1—(E) に示す。peak 温度は 120°C である。Facey, R.A.³²⁾ は 80°C/min の加熱速度で測定すれば 129°C に peak が表われる事を示してゐる。我々は 4 °C/sec, つまり 240°C/min の加熱速度で測定を行なつた事を考慮すれば、Facey, R.A. の値と一致する。

f) $\text{CaSO}_4 : \text{Tm}$ powder に ^{60}Co , γ 線, 15 R を照射した時の glow curve を Fig. 1—(F) に示

す。peak は I. 95°C, II. 130°C, III. 205°C に現われる。また、後で示すように ^{60}Co , γ 線, 10³ ~ 10⁴ R を照射した場合、225°C に peak IV が現われる。一方、Yamashita, T. et. al.³⁵⁾³⁶⁾³⁷⁾ は ^{137}Cs , γ 線, 10 R を照射した時、peak I. 80°C, II. 120°C, III. 220°C に現わることを示し、peak IV は main peak と 300°C peak の合成 peak であると報告している。

g) BeO : Na powder に ^{60}Co , γ 線, 15R を照射した時の glow curve を Fig. 1—(G) に示す。peak I は 180°C, II. 320°C になり、他に約 500 R 以上照射した時、新しい peak II が約 210°C に現われる。Yasuno, Y. and Yamashita, T.³⁸⁾ は ^{137}Cs , γ 線, 40 R を照射し、5 °C/sec で測定した時、100°C にも小さな peak が存在すると報告している。

h) $\text{Mg}_2\text{SiO}_7 : \text{Tb}$ powder に ^{60}Co , γ 線, 80 R を照射した時の glow curve を Fig. 1—(H) に示す。peak は单一で 190°C に現われる。

i) $\text{MgB}_4\text{O}_7 : \text{Tb}$ powder に ^{60}Co , γ 線, 40 R を照射した時の glow curve を Fig. 1—(I) に示す。peak は单一で 200°C に現われる。 $\text{MgB}_4\text{O}_7 : \text{Tb}$ powder の場合、triboluminescence の起る割合が他の蛍光体とくらべて非常に高く、実際の測定において測定精度の低下の原因になつてゐる。この傾向は大量照射を行なうことにより著しくなる。

2. 加熱速度の変化による glow curve の変化

Fig. 2 に加熱速度 7 °C/sec (420°C/min), 18°C/sec (1080°C/min) の glow curve を示す。

a) LiF (TLD 700) の場合、加熱速度の変化により、peak IV, V の合成 peak の形が著しく変化している。その結果、加熱温度が速くなれば、合成 peak の温度は変化せず、peak の高さは少し高くなる程度である。一方、Attix, F.H. and his co-workers¹²⁾ は TLD 100 に関して実験を行ない、加熱速度が速くなれば、peak の温度は高温部にずれることを示してゐる。また、peak の高さは加熱速度と共に増加し、約 100°C/min で最高値に達し、それより速い加熱速度では減少する

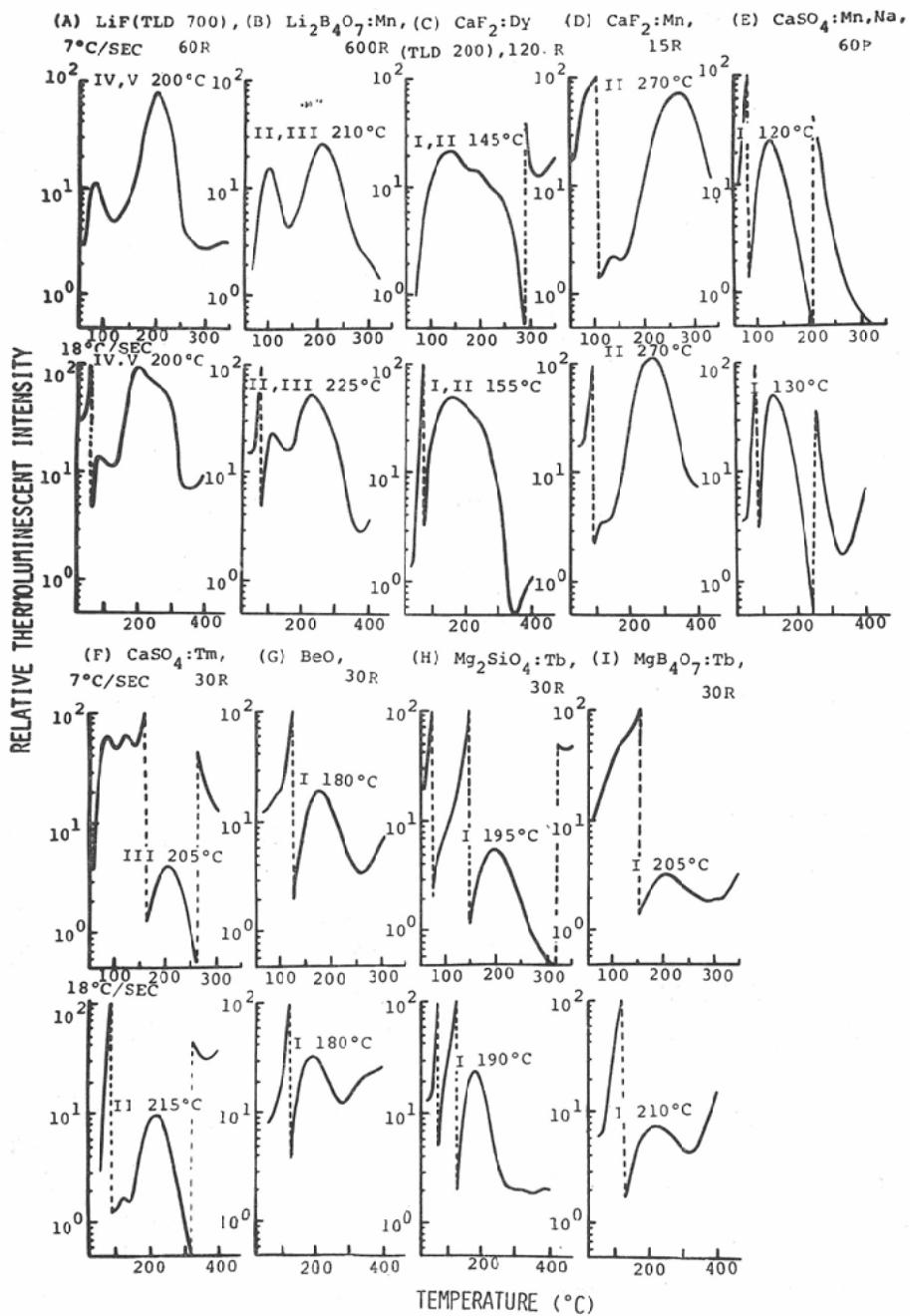


Fig. 2 Effect of heating rate on the glow curves.

と、我々と異なる結果を報告している。

b) $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ powder の場合、合成 peak II, III の温度変化は peak I の影響で、実験に用

いた powder のうちで一番よく変化している。

c) $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ (TLD 200) では peak I, II, III は加熱速度が速くなるに従い合成され、1つの

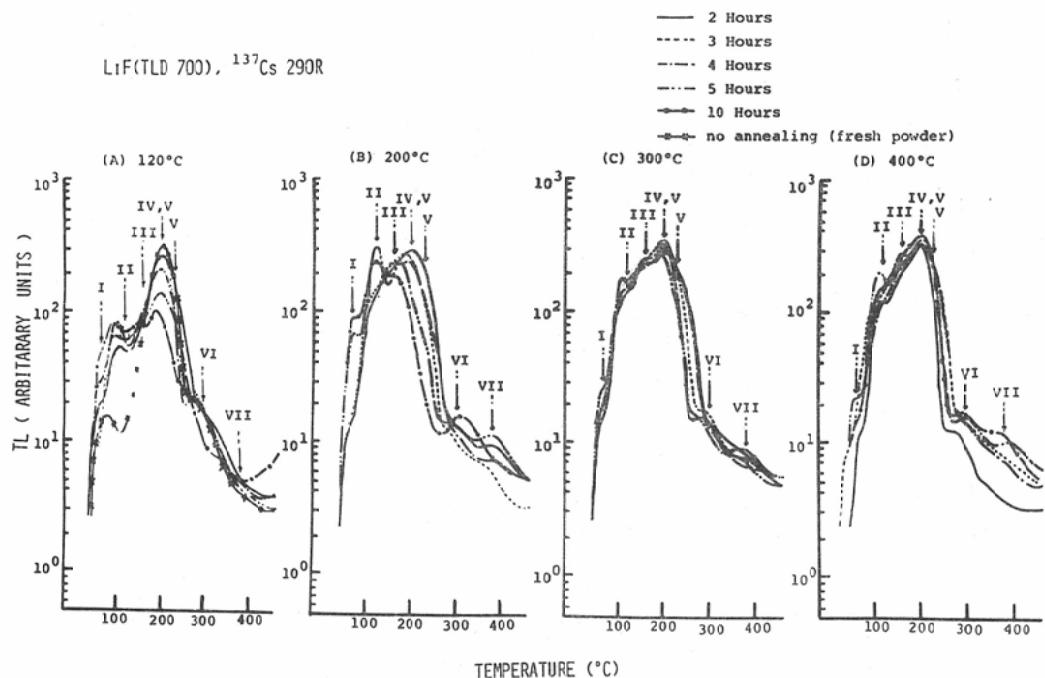


Fig. 3 Effect of pre-irradiation annealing on the glow curves of LiF (TLD 700).

peak になり、peak 温度は高温部に移動する。また、peak の高さは高くなる。

d) $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ では加熱速度が速くなるに従い、peak I が peak II に含まれてしまい、その結果、main peak の温度は変化しない。peak の高さは高くなるが、その割合は他の蛍光体とくらべて比較的小さい。一方、Attix, F.H. and his co-workers¹³ は、peak の高さは約 0.5°C/sec までは加熱速度に依存せずに一定で、それ以上の加熱速度では減少すると我々と異なる結果を報告している。

e) $\text{CaSO}_4 : \text{Mn}, \text{Na}$ は単一の narrow peak を示すために、加熱速度が速くなるに従い、peak 温度は高温部にずれ、peak の形はあまり変化しない。また、peak の高さは高くなっている。この結果は Facey, R.A.⁸⁾ の報告とよく一致している。

f) $\text{CaSO}_4 : \text{Tm}, \text{BeO}, \text{MgB}_4\text{O}_7 : \text{Tb}$ の温度は高温部に移動し、peak の高さは高くなる。

g) $\text{Mg}_2\text{SiO}_4 : \text{Tb}$ の peak 温度はあまり変化し

ないが、peak の高さは実験した蛍光体のうちで一番変化が大きい。

3. pre-irradiation annealing による glow curve の変化

a) Fig. 3 に LiF (TLD 700) powder に関して (A). 120°C , (B). 200°C , (C). 300°C , (D). 400°C で pre-irradiation annealing を行なつた場合の glow curve を示す。annealing 時間はそれぞれ 2 時間、3 時間、4 時間、5 時間、10 時間である。annealing 終了後は Al-foil 上で約 1 分程度で室温に落している^{25, 26)}。 ^{137}Cs , γ 線、290 R を照射し、5 分後に加熱速度 7°C/sec で測定を行なつてある。fresh powder (約 2 年前、 $400^\circ\text{C} + 80^\circ\text{C}$ または 100°C の pre-irradiation annealing を行なつてある。) の glow curve を Fig. 3—(A) に示す。

Fig. 3 より、main peak が感度増加を起すのに 300°C 以上が必要である。 300°C annealing の場合、main peak の高さは 3 時間の annealing が一番高く、その以上の annealing 時間では逆に main

peak の高さは低くなる。400°C annealing の場合は annealing 時間に比例して main peak の高さは高くなる。しかし、その増加率は小さく、線量測定に使用する場合の前処理としては、Cameron, J.R.⁵⁾⁶⁾ の standard pre-irradiation annealing(400°C, 2時間あるいは1時間+80°C, 24時間)で充分であり、また 300°C, 3時間の annealing でもよい。500°Cの annealing は 400°C の annealing とほぼ同じであり、特に 500°Cで annealing を行なう必要性は認めない。一方、より高温、長時間の pre-irradiation annealing は逆に感度の低下をきたすと報告されている¹⁴⁾²⁵⁾³⁹⁾。

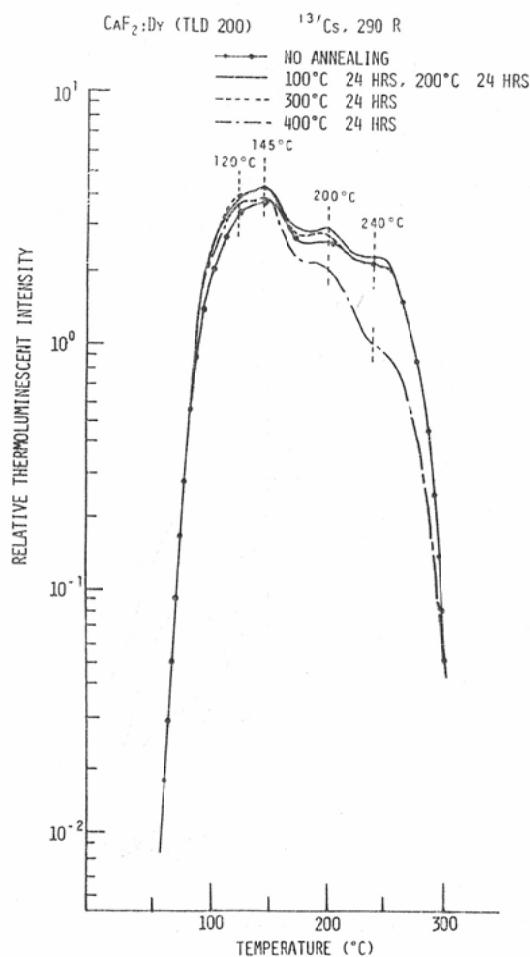


Fig. 4 Effect of pre-irradiation annealing on the glow curves of $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ (TLD 200).

Fig. 3—(B), (D) における 200°C 5時間、400°C 5時間の冷却は約30秒で 0°Cまで急冷している。この場合、120°Cの glow peak は他の場合より高く、各 peak は比較的よく分離している。これは LiF の glow curve は冷却速度により著しく変化することを示している²⁵⁾³⁹⁾。

b) $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ を 100°C～400°C、48時間 pre-irradiation annealing を行なつてもほとんど変化しない。

c) $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ (TLD 200) の pre-irradiation annealing 効果を Fig. 4 に示す。annealing 時間は 24時間で annealing 温度は 100°C, 200°C, 300°C, 400°Cである。測定は ^{137}Cs , γ 線, 290R の照射 5 分後に行ない。加熱速度は 7°C/sec である。冷却は Al-foil 上、約 1 分で室温に落している。

Fig. 4 より、100°C, 200°C, 300°C, 24時間の annealing では各 glow peak はわずかに増加する。400°C24時間の annealing では、no annealing と比べて 200°C, 240°Cの peak が減少し、120°C, 145°Cの peak は増加する。また、500°Cの annealing ではこの現象が著しくなる。

4. fading による glow curve の変化

Fig. 5 に LiF (TLD 100), $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ にそれぞれ、 ^{60}Co , γ 線, 55R, 415Rを照射した時の fading 現象、あるいは store 効果による glow

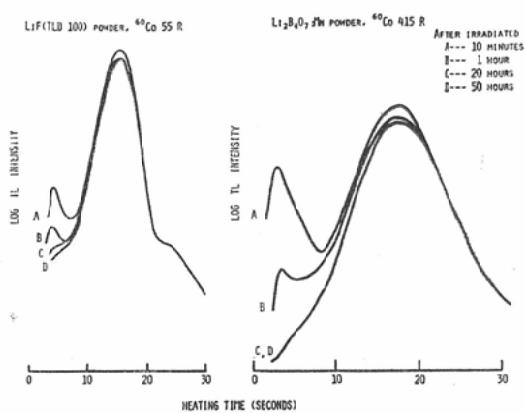


Fig. 5 Dose storing property of LiF (TLD 700) and $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ as represented by glow curves taken after different periods of elapse after exposure.

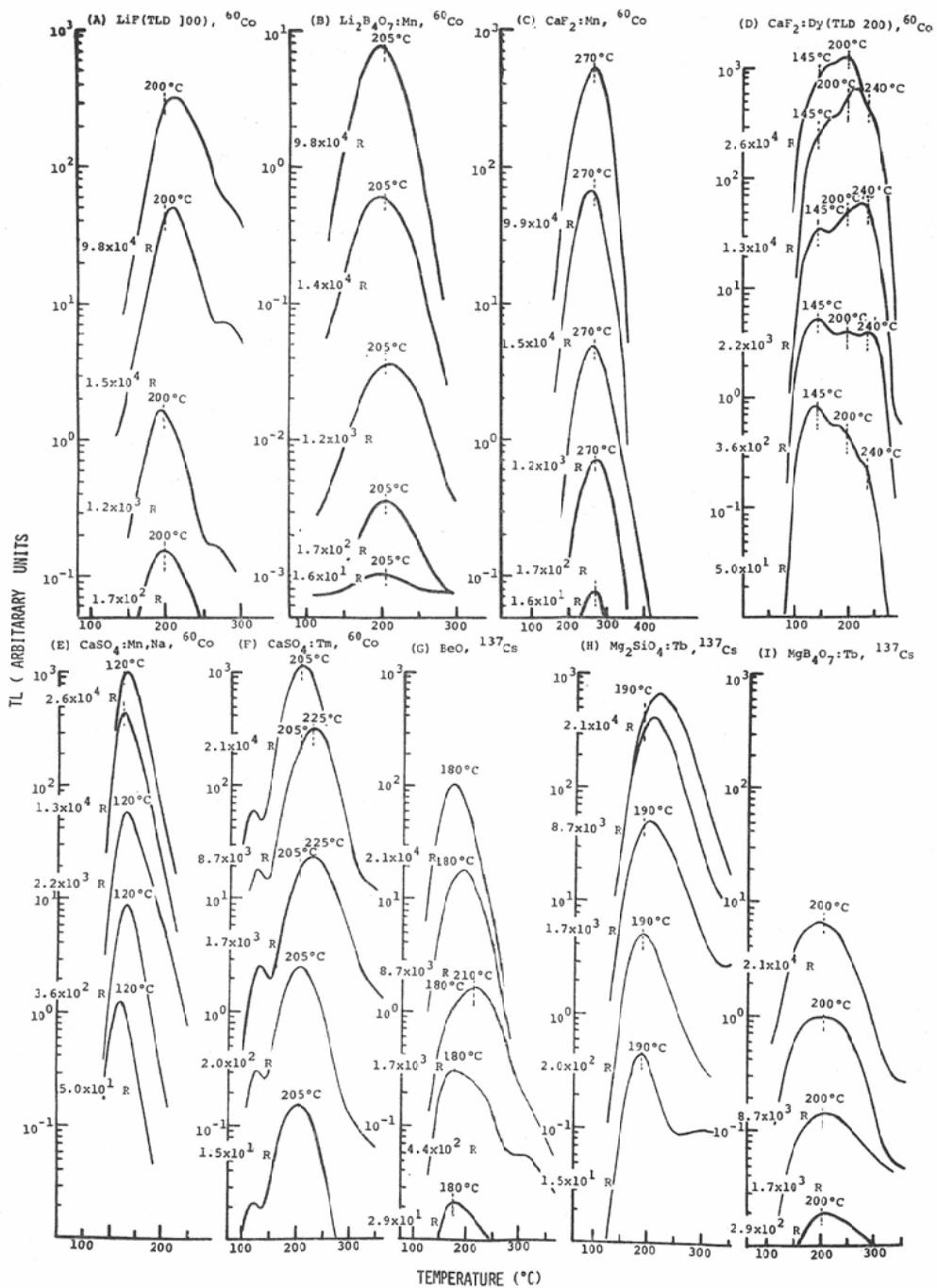


Fig. 6 Changes in the glow curves of TL phosphors at different exposure levels.

curve の変化を示す。測定は照射終了10分後：A, 1時間後：B, 20時間後：C, 50時間後：Dに5秒間で約100°Cまで加熱し、100°C以上は6.6°C/secで加熱している。Hawshow Model 2000 A Bはlight sourceで読み値を較正しているために光電管電圧の変化には影響されない²⁰⁾²⁸⁾。また蛍光体は室温、暗所で保管した。

a) LiF (TLD 100), fresh power (前処理済)の低温部のglow peakは20時間後には消滅し、main peakも少し減少する。50時間後にはmain peakの低温部の肩が全体的に減少する程度で安定する。光電量の積算値は10分後では50時間後の約1.1倍、1時間後では約1.05倍、20時間後では約1.01倍である。20時間以後はほとんど変化を認めない⁶⁾³²⁾³³⁾³⁴⁾⁸⁹⁾。

b) $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$ は LiF と同様に低温部のglow peakは時間と共に減少する。光電量の積算値は10分後では50時間後の約1.4倍、1時間後は1.18倍である。急激な減少は約4時間で安定し、20時間後ではほとんど変化しない。

5. 照射線量による glow curve の変化

Fig. 6に各種蛍光体に10¹Rから10⁵Rを照射した時のglow curveを示す。照射2日後に測定を行なつた。

Fig. 6において、単一のglow peakを持つと思われる蛍光体 $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ に関しては glow curve の変化はあまり認められないが、他の蛍光体、つまり複数のglow peakを持つと思われる蛍光体については線量の変化による glow curve の変化が明らかに認められる。特に、 $\text{CaF}_2 : \text{Dy}$ (TLD 200)の場合、約10Rの照射ではpeak II (145°C)が一番高く、peak IV (240°C)はほとんど現われない。約10²R照射でpeak III (200°C)、IVが照射線量の増加と共に大きくなる。約10³R照射ではpeak IVが一番高くなり、peak IIIはpeak IVに含まれてしまう。しかし、10⁴R照射でpeak IIIが高くなり、peak IVを含んでしまう。つまり、peak IVのtrapが飽和に達した為であると考えられる。Binder, W and Cameron, J.R.⁴⁾ は10⁵Rになるとpeak IIが増加し始め、peak III, IVを含ん

でしまうと報告している。この極端なglow curveの変化がTL/R値の増加(supralinearity)の原因になつていて。

LiF (TLD 100) は supralinearity が起こるとpeakの位置が高温部へずれる。これは230°Cのpeakが増加する為と考えられる。Cameron, J.R. et.al.⁶⁾ も同様の結果を報告している。またGoldstein, N. et al.⁹⁾ は10⁴Rから2×10⁹Rの⁶⁰Co、γ線を照射した場合の450°Cのpeak変化を線量測定に利用している。

$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$ のpeak位置はほとんど変化しないが10⁴R以上になると他の蛍光体と異なり、低温部へずれる傾向を示す。この原因として、Fig. 6におけるpeak (205°C)はpeak II, IIIの合成peakであり、peakの肩の変化を考慮すればpeak IIIが飽和に達する為であると考えられる。一方、peak Iのtrap電子が照射後、室温で急速に減少し、この一部がpeak IIに移動する為とも考えられる。 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$ のTL/R値の増加はこのglow curveの変化が原因である。

$\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ のglow curveは照射線量の変化により、ほとんど変化せず、TL/R値の増加率は他の蛍光体より小さい。しかし、10⁴R照射のglow peakが低温部に移動していること、TL/Rカーブが実験誤差範囲であるが変化していることにより¹⁷⁾、 $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ も完全な単一のglow peak (trap)を持つとは言えないかもしない。

$\text{CaSO}_4 : \text{Mn,Na}$ のglow peakの位置は3.6×10²Rで高温部にずれ、TL/R値が増加し始める線量と一致する。 $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ と同様に完全に単一のpeakであるとは言えない。

$\text{CaSO}_4 : \text{Tm}$ は約10³Rから急激に225°Cの新しいpeakが現われる。Yamashita, T.³⁵⁾によれば、この新しいpeakはpeak IIIとpeak IVの合成peakの結果であると報告されている。他の蛍光体と比べて、TL/Rカーブが著しく増加するが、約10⁴Rでこの新しいpeakは飽和し始め、TL/R値の増加率も小さくなる。

$\text{BeO} : \text{Na}$ は約10²R附近から新しいpeak II (約210°C)が現われ、約10³R照射でpeak IIがpeak

Iを含んでしまう。しかし、より高い照射線量になると peak I, IIが合成されたような peak を示しながら、peak Iが peak IIを含む。Yasuno, Y. and Yamashita, T.³⁸⁾ も同様の結果を報告している。

$Mg_2SiO_4 : Tb$ も約 10^8R 以上で新しい peak が現われる。 $Mg_4B_4O_7 : Tb$ は特に main peak の移動を認めない。

IV. 考 案

各種熱蛍光体の glow curve については、すでに多くの報告がみられるが、その形およびpeak温度についてはかならずしも一致していない。peak 温度が報告者により異なるのは、温度決定が困難であること、照射および測定の状態により glow curve が変化することが上げられる。一方、我々は照射状態を明らかにし、同一の測定状態、つまり全蛍光体が fresh powder であり、同一の測定システムで測定を行なつた為にそれぞれの蛍光体の相対的な peak 温度を決定できたといえる。

理想的な蛍光体、つまり単一の glow peak をもつ場合は Randall, Wilkins の式¹⁹⁾に従い、加熱速度に比例して、peak 温度は高温部へ移動し、glow peakの高さは高くなるが²⁴⁾、一般に使用されている蛍光体は単一の peak ではなく複数の peak をもつ。その為に glow curve の形は加熱速度に依存し、速い加熱速度ほど narrow peak になる傾向を示すが、peak 温度、高さはそれぞれの peak の強さ、peak 間の幅等に依存している。また加熱システムにも依存する。

LiF 蛍光体で得られる pre-irradiation annealing 効果、つまり annealing 温度より低温部に存在する trap を増加し、annealing 温度と等しい温度に存在する trap を減少さす効果は、他の蛍光体には適用できない。一般に pre-irradiation annealing 効果は個々の蛍光体により異なり、annealing 温度と trap の energy level とは直接には関係しない。しかし、pre-irradiation annealing 効果は annealing 時間に比例するといえる。

熱蛍光体を線量計として使用する場合、单一の glow peak を持つ方が解析が簡単であり、実際的

である。特に LiF 蛍光体では、低温部の peak を消去するために低温度での pre-irradiation annealing が行なわれている。Harris, A.M. and Jackson, J. H.¹⁰⁾ は $30^\circ C \sim 120^\circ C$ の温度で、種々の pre-irradiation annealing 時間が適用されるが、実際に使用する場合は $80 \pm 5^\circ C$ 、16時間が一番適して居ると報告している。しかし Johnson, T.L. et. al.¹¹⁾ は $22^\circ C$ あるいは $100^\circ C$ の pre-あるいは post-irradiation annealing は $195^\circ C$ と $210^\circ C$ の glow peak の高さを約40%も高くすると報告し、ある energy level の trap が一定の pre-irradiation annealing により高い energy level に移行する為と考えている。Fig. 3において $120^\circ C$ の pre-irradiation annealing の場合、peak VI ($\sim 300^\circ C$) が現われ、 $200^\circ C$ の pre-irradiation annealing の場合、peak VI ($\sim 300^\circ C$), peak VII ($\sim 400^\circ C$) が現われる。この現象は上記の“trap 間の移行”で説明できるだろう。また、 $300^\circ C$ pre-irradiation annealing の場合の peak VII も同様に考えられる。

fadingについて考えてみると、一般に各種 TLD 蛍光体の測定は低温部の安定する照射 2 日後に測定するのが一番望ましいといえる。一方、数多くの研究者により post-irradiation annealing によつても低温部の glow peak を消去する事が可能である事が報告されている。しかし、那波ら¹⁵⁾は LiF : Mg, TLD 35 を用いた場合、 $100^\circ C$ 5 分間の post-irradiation annealing では main peak に影響が現われる事を報告している。Fig. 5においても main peak が減少している。Yamashita, T. et. al.³⁶⁾ は $CaSO_4 : Tm$ について、Yasuno, Y. and Yamashita, T.³⁸⁾ は BeO について同様の変化を報告している。fading や post-irradiation annealing により main peak が影響をうけることは避けられないようである。

次に照射線量と glow curve の関係をみると、一般に蛍光体の glow curve の形は照射線量に大きく依存しており、蛍光体の supralinearity は glow peak(trap) が单一でなく、複数である為に起つているように思われる。TLD として使用される蛍光体としては、单一の trap を持ち、trap

の energy level のばらつきが小さい sharp な glow curve を示すものが理想的であるといえる。

V. 要約および結論

各種 TLD 蛍光体の glow curve について実験を行なつた。

1. 測定器の加熱板の温度と TLD 温度とが同一であるとはいえないため、TLD 蛍光体の glow peak の正確な温度決定は困難であるが、同一の測定器を同一条件で使用することにより、各種 TLD 蛍光体の相対的な peak 温度を測定した。

2. 一般に使用されている蛍光体の glow curve の形は加熱速度に依存する。速い加熱速度ほど narrow peak になり、peak の温度、高さは各 TLD 蛍光体の対応する trap の濃度、peak 間の幅、加熱システムに依存する。

3. pre-irradiation annealing 効果は個々の蛍光体により異なる。annealing 温度と trap の energy level は直接には関係せず、annealing 効果は annealing 時間、冷却速度に依存する。

4. 各種 TLD 蛍光体の測定は低温部の安定する照射 2 日後に行なうのが一番望ましい。fading、post-irradiation annealing は main peak に影響を及ぼす。

5. 照射線量の違いにより、TLD 蛍光体の glow curve も異なる。その glow curve の変化は個々の TLD 蛍光体に依存し、 $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ の場合をのぞき、その感度増加の原因になつてゐる。

一般に蛍光体の glow curve は測定時の加熱速度、照射前後の annealing、加熱装置等、蛍光体の熱伝導の状態に依存する。一方、照射線量、線質等¹⁷⁾、照射の状態にも依存する。glow curve に関する実験はこれらの状態を明らかにする事が重要になる。Carter, J.G. et. al.⁷⁾ は加熱システムに関して考慮し、真空中で測定する事を報告している。また、加熱板等による直接加熱方式以外に間接加熱方式⁶⁾が考えられる。Oonishi, H. et. al.¹⁸⁾ はこの一方方法として、熱風加熱方式を開発している。そのほかに超音波加熱、誘電加熱、赤外線加熱が考えられ、今後の検討が必要である。

本研究の要旨は第31回日本医放学会総会において発

表した。

この研究を遂行するに当り、一部の TLD 蛍光体を powder 状で提供して下さった松下電器産業株式会社、山下氏、大日本塗料株式会社、坂本氏に感謝いたします。

文 献

- 1) Attix, F.H. and his co-workers: "Thermoluminescent Dosimetry" by Cameron, J.R., The University of Wisconsin Press, (1968), p. 81.
- 2) Bibliography of TLD: Health Physics, 14 (1968), 495—514.
- 3) Bibliography of TLD: Health Physics, 17 (1969), 349—354.
- 4) Bringer, W. and Cameron, J.R.: Dosimetric Properties of $\text{CaF}_2 : \text{Dy}$ TLD Progress Report for June 1968-August 1969, University of Wisconsin, USAEC AT-(11-1)—1105.
- 5) Cameron, J.R. et al.: Health Physics, 10 (1964), 25—29.
- 6) Cameron, J.R. et al.: Thermoluminescent Dosimetry, The University Wisconsin Press, (1968).
- 7) Carter, J.R. et al.: Health Physics, 10 (1964), 539—542.
- 8) Facey, R.A.: Health Physics, 12 (1966), 717—720.
- 9) Goldstein, N. et al.: Health Physics, 14 (1968), 159—162.
- 10) Harris, A.M. and Jackson, J.H.: Health Physics, 18 (1970), 162—164.
- 11) Johnson, T.L. et al.: Sixteenth anneal meeting of the health physics society, (abstract) (1971), 22.
- 12) Lancaster, D.E.: Electronics World, March (1969).
- 13) Marrone, M.J. and Attix, F.H.: Health Physics, 10 (1964), 431—436.
- 14) 中島敏行: 第9回日本アイソトープ会議報文集, (1969), 134—136.
- 15) 那波克己他: 第9回日本アイソトープ会議報文集, (1969), 129—131.
- 16) Nalor, G.P.: Br. J. Radiol., 40 (1967), 170—176.
- 17) 西台武弘他: 第21回日本医放学会物理部会において発表。
- 18) Oonishi, H. et al.: Proceeding of Third International Conference on Luminescence Dosimetry, (1971), 237—248.
- 19) Randall, J.T. and Wilkins, M.H.F.: Proc. Roy. Soc., A184 (1945), 366—389.

- 20) Robertson, M.K.: Health Physics, 18 (1970), 440—441.
- 21) Sakamoto, H. et al.: Proceeding of Second International Conference on Luminescence Dosimetry, (1968), 27—42.
- 22) Sakamoto, H. et al.: Presented at 12th International Congress of Radiology, 11 to 14 (1971).
- 23) Schulman, J.H. et al.: Progress in Radiology, vol. 2, Symposia and invited Papers of the XIth International Congress of Radiology, 1797.
- 24) Schulman, J.H.: "Thermoluminescent Dosimetry" by Cameron, J.R., The University Wisconsin Press, (1968), p. 80.
- 25) Shiragai, A.: Health Physics, 13 (1967), 1040—1042.
- 26) Spurny, Z.D.: Phys. Med. Biol., 13 (1968), 465—466.
- 27) Spurny, Z.D.: Phys. Med. Biol., 16 (1971), 295—301.
- 28) Suntharalingam, N. et al.: Phys. Med. Biol., 13 (1968), 97—104.
- 29) 高久祐治：私信。
- 30) 高久祐治：日本医放会誌, 30 (1970), 291—295.
- 31) Townsend, P.D.: Physical Review, 155 (1967), 908—917.
- 32) Webb, G.A.M.: Br. J. Appl. Phys., 18 (1967), 7—11.
- 33) Webb, G.A.M.: Br. J. Appl. Phys., 18 (1967), 1567—1571.
- 34) Webb, G.A.M.: Health Physics, 13 (1967), 814—816.
- 35) Yamashita, T. et al.: Technical Report.
- 36) Yamashita, T. et al.: Proceedings of Second International Conference on Luminescence Dosimetry, (1968), 4—17.
- 37) Yamashita, T. et al.: Health Physics, 21 (1971), 295—300.
- 38) Yasuno, Y. and Yamashita, T.: Proceeding of Third International Conference on Luminescence dosimetry, (1971), 290—304.
- 39) Zimmerman, D.W. et al.: Health Physics, 12 (1966), 525—531.