

# 蛍光ガラス線量計

## Fluoro-Glass Dosimeter

大森隆雄<sup>(1)</sup> 長田正省<sup>(1)</sup> 池上 徹<sup>(1)</sup> 西田信和<sup>(2)</sup>  
Takao Omori\* Masami Osada\* Tôru Ikegami\* Nobukazu Nishida\*\*

蛍光線量計ガラスの使用条件は、ますます多様性を帯びてきており、より過酷な条件でも使用されるに至っている。そのため、測定可能な線量上下限、感度の均一性、ビルドアップ特性、温度依存性、耐水性、耐熱性、照合ガラスなどが問題となり、調査実験を行った。

また、ポータブル形線量計として、東芝デジタル蛍光ガラス線量計 FGDP-7-I を開発した。

The fluoro-glass dosimeter, growing in diversity of conditions, are required to be used safely even under serious conditions. Naturally, the upper and lower limits of measured dosage, uniformity of sensitivity, build-up properties, temperature dependence, durability, and the reference glass have become important problems, and investigation has been made through experiments on these points.

Toshiba digital fluoro-glass dosimeter, FGDP-7-I, is a fruit of the investigation.

**Key words:** Dosimeters, Luminescent dosimeters, Phosphate glass, Silver inorganic compounds, Dose rate, Photoluminescent, Performance, Sensitivity, Accumulation, Color centers, Reproducibility

### (1) ま え が き

蛍光線量計ガラスは、当社で製品開発がなされて以来、多くの改良が行われ、それが積み重ねられてきた。しかし、同時にユーザ側の使用条件も多様性を極め、より過酷な条件でも使用されるに至っている。したがって、測定可能な線量上下限（直線性）、感度の均一性、ビルドアップ特性、温度依存性、耐水性などが重要な要素となっており、更に、線量測定値のトレーサビリティを確保するうえからも、照合ガラスの使用が必要不可欠となっている。中でも、線量計ガラスの最大の欠点とされている耐水性は、測定前のガラス素子の洗浄を省略できないものとするだけに、第一番目に改良されなければならない。

また、ユーザにおける線量計ガラスの使用法の多様化に応じて、比較的コンパクトで簡易な線量計リーダーの開発が望まれており、プロトタイプを試作機をベースにして大幅な改良を加えた結果、マイクロプロセッサを内蔵したポータブル形線量計 (FGDP-7-I) の開発に成功した。これらの線量計はキセノン・フラッシュランプによるパルス測定法を応用したものであり、原子力発電所や放射線廃棄物処理施設などにおける環境管理や事故発生時のモニタなどに広い需要が期待されている。

### (2) 線量計ガラスの特性

#### 2.1 蛍光特性

銀活性リン酸塩ガラスは、電離放射線照射により蛍光中心を生じ、紫外線の励起スペクトルにより 600nm 近辺にピークを持つ蛍光 (RPL) を発生する。これらの現象を正確に理解することは、新しい線量計の設計開発においてはもちろん、実際の応用でも非常に重要な要素となっている。図 1、図 2、図 3 および図 4 に線量計ガラス (FD-7) の  $\gamma$  線照射品、プレドーズ不良品および照合ガラス (Mn ガラスおよび Sm ガラス) の蛍光特性を示す。

初めに、励起紫外光 (365nm) を一定にして発生する蛍光を測定した後、今度は逆に蛍光のスペクトル中心を固定して励起紫外光の最大スペクトルを走査測定した。図 1 のように、1,000R の  $\gamma$  線照

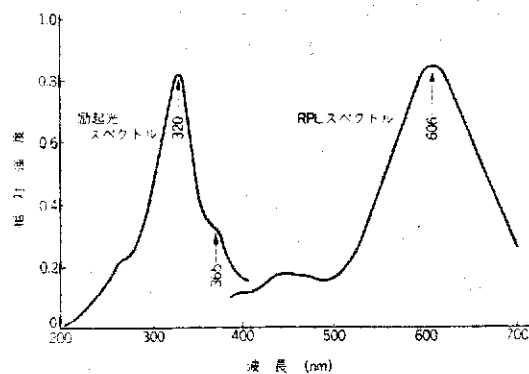


図 1 線量計ガラス (FD-7) の蛍光 (RPL) Radio photo-luminescence (RPL) of dosimeter glass FD-7

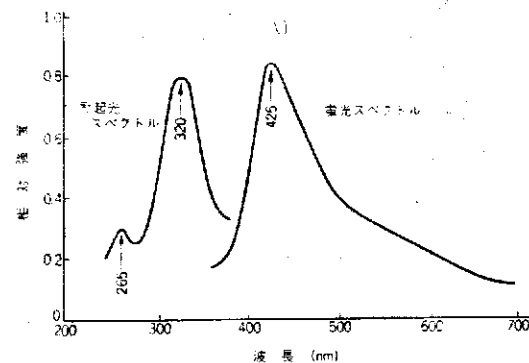


図 2 未照射線量計ガラスの蛍光 Emission spectrum of pre-dose

射品は、365nm の励起紫外光により 606nm にピークを持つ RPL を発生しており、その最大励起スペクトルは 320nm となる。一方、320nm を励起スペクトルとして測定した場合、得られる蛍光の最大ピーク波長は、365nm で励起した場合と全く同一となるが、その相対強度は約 3 倍増加した。

ガラスのプレドーズ不良品は、図 2 のように、425nm にピークを持つ幅広い蛍光スペクトルを持ち、この蛍光スペクトルのすその

(1) 東芝硝子(株) 技術部  
(2) (株) 太陽社

\* Toshiba Glass Co., Ltd.  
\*\* Taiyosha Corporation

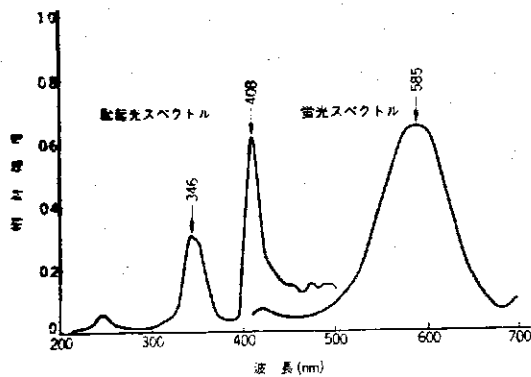


図3. Mn含有照合ガラス (FS-9) の蛍光  
Emission spectrum of Mn reference glass, FS-9

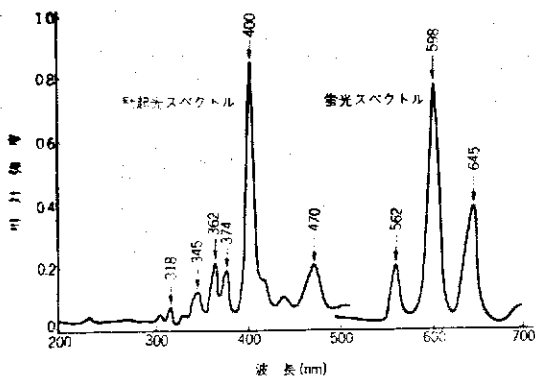


図4. Sm含有照合ガラス (FSm-2) の蛍光  
Emission spectrum of Sm reference glass, FSm-2

さらにRPLの測定値に影響を及ぼす。更に、最大励起スペクトルの位置は、RPLと同様320nmであり、紫外線励起光として320nmを採用した場合、それだけ感度はよくRPLが検出できるが、同時にフレドーズの影響も大きくなり好ましくない。

照合ガラスは線量計リーダのトレーサビリティを確立するうえで重要であり、光源、検出器、増幅器などすべてを含めた装置の感度を一定に維持し、RPLの温度係数の一部を補償する大事な役割を持つ。照合ガラスにはMn含有ガラスおよびSm含有ガラスの2種類があり、その蛍光特性は図3、図4のとおりである。

Mn含有ガラス (FS-9) の場合、365nmの紫外線によって585nmに中心を持つ安定な蛍光を発生する。最大励起スペクトルは408nmと346nmに現れ、そのいずれかが照合ガラスの励起スペクトルとして応用されている。

一方、Sm含有ガラス (FSm-2) は、598nmを中心ピークとし、562nm、645nmに補助ピークを持つ。また、最大励起スペクトルは400nmに鋭いピークを持ち、320~374nmの範囲内でも、一連のSm<sup>3+</sup>の4f-4f遷移として小さなピークが確認された。

## 2.2 測定の上限とガラス着色

線量計ガラスの線量測定範囲については、その下限値は10mRが限界であり、上限値は3,000R (P-8: 8×8×4.7mm<sup>3</sup>) とされ、この上限値を超える線量に対してはガラスの着色が著しくなり、測定される線量値と実際の被ばく線量との間の直線関係が次第に失われる。これらの測定限界は、使用される測定器、ガラス材質、ガラス形状に依存するが、測定器のフィルタ (光学系) を変えることにより10<sup>6</sup>Rまで測定範囲を広げることができる。

高線量のγ線照射を行った場合、照射線量に対する直線性の変化をFGD-6線量計により測定した結果を図5に示す。FD-7、FD-

8ガラスともに3,000R以上の照射線量に対しては、直線関係からのずれが生じ始め、10<sup>4</sup>R以上ではガラス着色の影響も加算され大幅な減衰を示す。ガラス形状としてはP-8 (8×8×4.7mm<sup>3</sup>) よりP-15 (15×12×3.7mm<sup>3</sup>) の方が直線性のずれが少ない。ガラスの着色は図6に示すように320nmを中心とする吸収を持ち、特に紫外線励起光の強度を減衰させ感度に影響すると考えられる。

## 2.3 感度の均一性

放射線に対する感度の均一性は、線量計ガラスの特長の一つである。FD-7、P-15のロット内変動を調査するため1ロット (400個) のサンプルから無作為に抽出し2群に分け、1群のサンプルはすべてMgF<sub>2</sub>コーティングを実施した。これらのガラスに約140Rのγ線を照射し、FGD-6により測定した結果、図7にヒストグラムとして示すようにコーティング品もともに良好な感度を示した。

次に、線量計ガラスの品質管理上重要な項目となるのが、各ロット間の感度の変動である。特に、連続生産を行う場合、バッチとバッチの間の感度の変動は単なるガラスの感度だけの問題ではなく、広くフレドーズ、直線性、エネルギー依存性など他の多くの特性と相関性を持っており、更にガラス組成、均質性、研磨性などの総合評価である点が注目される。ロットの異なるFD-7:P-8に対し130R相当のγ線照射を行い、測定した結果、ロット間の相対標準偏差として約1.6%であった。これらの値は、線量計リーダの再現性を考慮に入れば、非常に安定した特性であり、感度の変動

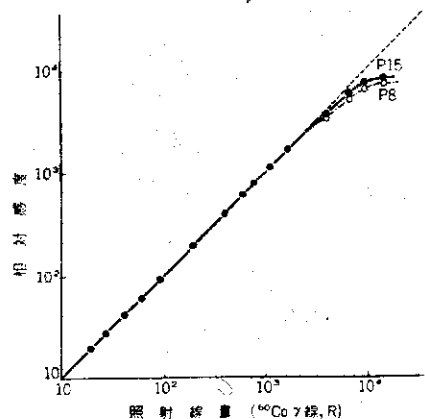


図5. 線量計ガラス (FD-7) の線量特性  
Dose characteristics of FD-7 glass

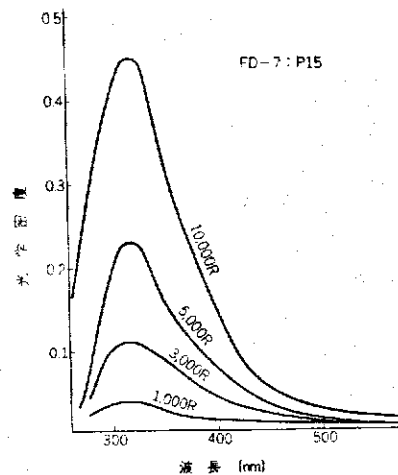


図6. 放射線 (<sup>60</sup>Coγ線) によるガラス着色  
Coloration of glass by γ-ray exposure

が少ないことが認められよう。

#### 2.4 ビルドアップ特性

蛍光中心のビルドアップ速度は主としてガラス組成中の銀含量に依存するが、測定条件としては温度の影響が非常に大きい。FD-7ガラスを1,000R相当の $\gamma$ 線で照射した場合のビルドアップの温度依存性を図8に示す。したがって、線量計ガラスが極寒地帯で適用実用化された場合、ビルドアップ速度への温度-時間の影響を考慮し、一定の補正をするか、あるいは、一定の熱処理(100°C, 10分間)をする必要が生ずる。

#### 2.5 測定時の温度依存性

線量計ガラスの蛍光(RPL)は測定時の温度による影響を受け、その温度係数は図9に示すように、FD-7: -0.55%, 照合ガラスFS-9: -0.04%, FSm-2: +0.02%となる。したがって照合ガラスは、測定時の温度によって温度係数の差異に相当する照合値の補正をする必要がある。通常、これらの補正は、線量計リーダ内に組み込まれた温度補正回路により自動的に行うことができる。

#### 2.6 耐 候 性

線量計ガラスの欠点の一つとして、空気中の湿分によりガラス表面が劣化しやすく、いわゆるウェザリングを生ずる現象が挙げられる。これらの短所によって、線量計ガラスは、測定前に必ず洗浄操作が必要となる。一方、これらの欠点を改良するために、線量計ガラスの表面コーティング(MgF<sub>2</sub>, SnO<sub>2</sub>, In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub>, など)が考案されている。図10にMgF<sub>2</sub>(膜厚3/4 $\lambda$ )のコーティング効果を示す。すなわち、50°C, 90%RHの恒温恒湿槽内に30日間保持した場合、コーティング品の読値は洗浄なしで測定した場合でもほとんど変化しないが、無コーティング品は約10Rの読値の増加となり、顕著な表面変質が観察された。

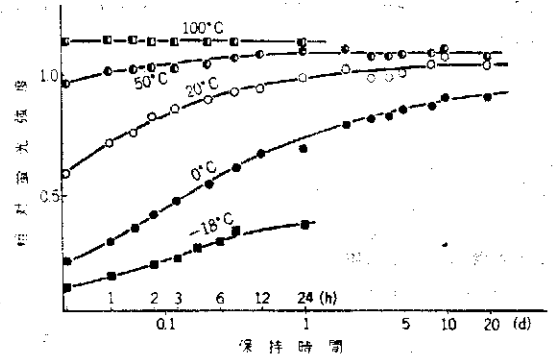
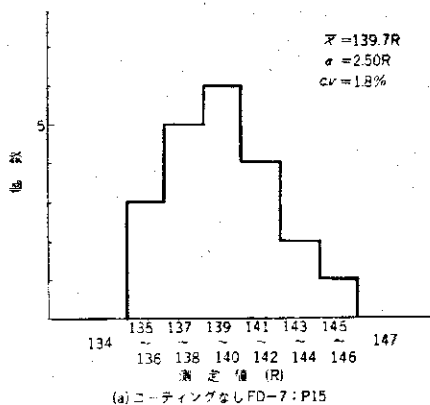


図8. ビルドアップの温度依存性  
Dependence of build-up on temperature

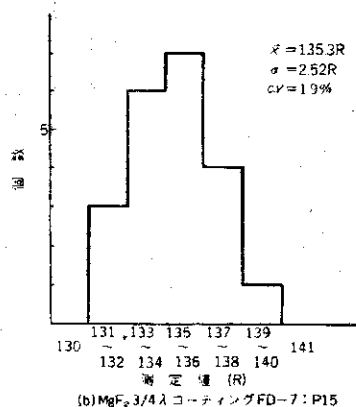
### (3) 簡易形デジタル蛍光ガラス線量計(FGDP-7-1)

新しく開発した簡易形線量計FGDP-7-1は、従来の精密測定用線量計FGD-6形に比べて、次のような特長を持つ(図11)。

- (1) 軽量、小形であり、所要電源容量も小さく、バッテリーで使えるので、携帯用にもなる。
- (2) 紫外励起光源としてキセノンフラッシュランプを使用し、パルス的にガラスの蛍光を測定する。
- (3) 測定演算部はマイクロプロセッサを内蔵し、測定結果を線量単位(R)でデジタル表示すると同時に、プリンタで自動記録する。
- (4) 測定範囲は0.2~2,000Rで比較的高線量側の測定を目標としているが、測定精度、再現性は良好である。



(a) コーティングなしFD-7: P15



(b) MgF<sub>2</sub> 3/4 $\lambda$  コーティングFD-7: P15

図7. 感度の均一性 (1ロット内)

Uniformity of sensitivity (Within a lot)

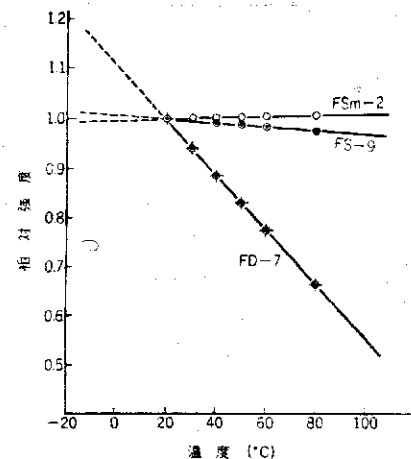


図9. 線量計ガラスの蛍光の温度依存性  
Temperature dependence of fluoro-glass dosimeter

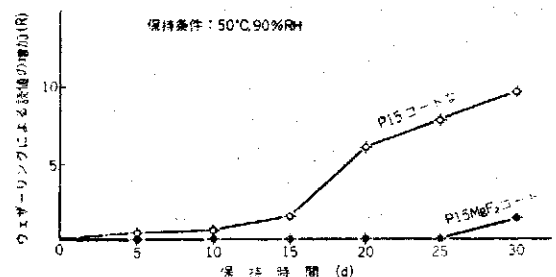


図10. ウェザリングによる読値の増加 (洗浄なし品)  
Increase of measured values due to weathering  
(Measurements before washing)

### 3.1 パルス式測定法

新しく開発した線量計リーダは、図12に示すように、キセノン・フラッシュランプからパルスの発生した紫外線を、測定しようとしているガラス素子に照射し、ガラスが二次的に発生する蛍光 (R PL) をシリコン・フォトダイオードと集積回路の組み合わせにより測定するものである。

キセノンランプ発光のトリガは、内蔵されたマイクロコンピュータにより制御され、それによって発生する蛍光パルスは、積分されアナログ電圧として出力し、2進8ビットのダイナミックレンジで続けて10回AD変換し、その合計値が使用される。更に、センサ回路のドリフトの影響を少なくするため測定に際しては常にフラッシュ前後の出力差を比較し、演算がなされた。また、キセノンランプの毎回の発光量の変動は、当然測定値の誤差要因となることが推定され、したがってレファレンス系と測定系の比を求め“読み”の値とし、ランプの光量が変わっても一定の値となるようにした。

測定に際しては、既知の照合ガラス A, B を用意し、A はフルレンジ付近の高線量相当、B は零レンジ付近の低線量相当品とする。A, B の照合ガラスを測定し、読値  $A_M$  とともに照合値  $A_S, B_M$  と

ともに  $B_S$  を入力する。 $A_S, B_S$  はキーボードからプログラムで制御される所定の手順で入力される。これによって、検量線が作成されたことになり、未知試料の読値  $X_M$  が得られると、次式によって未知試料の被ばく線量  $X$  が算出される (図13)。

$$X = B_S + (A_S - B_S) \frac{X_M - B_M}{A_M - B_M} \quad (1)$$

### 3.2 測定精度、再現性

FD-7ガラスに対し $^{60}\text{Co}$ 7線源を使用して標準照射を行い、その照射線量に対するFGDP-7-1の測定値の標準偏差をプロットしたものを図14に示す。1回の測定は1~9回の平均値をとることができ、繰返し回数は前面キーボードにより入力する。FGDP-7-1は、光電子増倍管の代わりに、ホトダイオードを使用しており、測定値の偏差はやや大きくなるが、実際の使用上問題とはならない。

1回の測定は、繰返し回数にもよるが、2~15秒で完了し、測定値はLEDの表示器に指示されると同時に、自動的にプリンタで記録される。ガラス素子は、 $\text{MgF}_2$ を $3/4\lambda$ の厚さでコーティングしたFD-7ガラスを使用し、測定時の洗浄は一切行わなかったが、測定値の再現性に及ぼす表面汚染の影響はほとんど認められなかった。

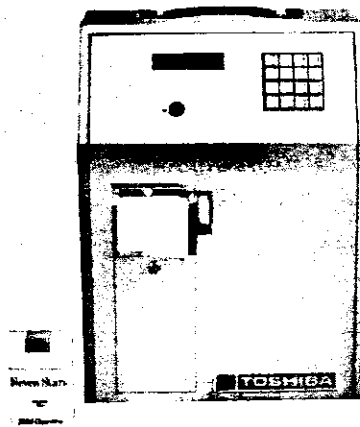


図11. 東芝デジタル蛍光ガラス線量計 (FGDP-7-1形)

Toshiba digital fluoro-glass dosimeter, Model FGDP-7-1

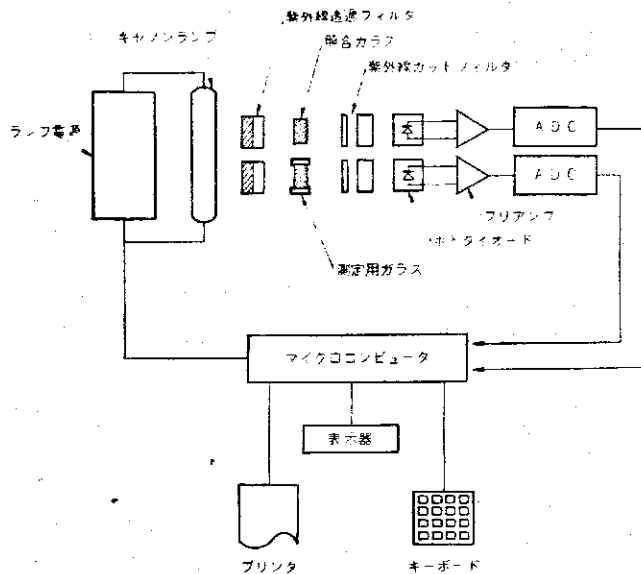


図12. 東芝デジタル蛍光ガラス線量計 (FGDP-7-1) の概念図

Schematic of FGDP-7-1

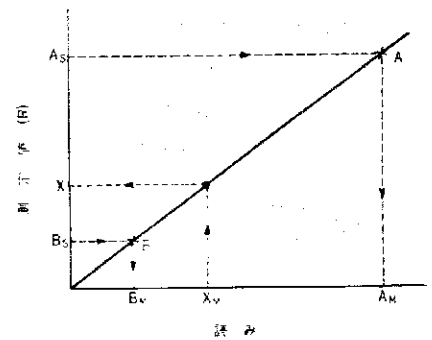


図13. 測定における校正方法

Calibration method on measurements

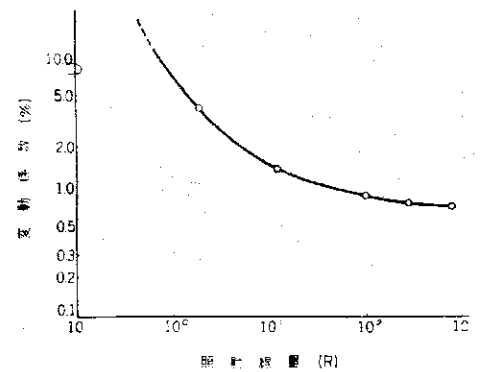


図14. 標準照射におけるFGDP-7-1の再現性

Reproducibility of FGDP-7-1 in dose reading

### (4) あとがき

蛍光線量計ガラスは、他の固体線量計素子にない特有の長所を持っている。すなわち、読取り操作によって影響されず、何回でも再測定ができ、記録としても保存できる。また、ガラスの感度が均一であり、寸法精度も優れており、品質特性の安定した素子を大量に供給することができる。ガラスの短所であった、測定時のガラス洗浄の問題は、素子表面を $\text{MgF}_2$ 膜で保護することにより改良された。これらのガラスを使用する簡易形デジタル蛍光ガラス線量計 (FGDP-7-1) は、ますます多様化する放射線被ばく管理の分野で、その需要が期待される。