技術論文

Li₂B₄O₇(Cu) 素子による自動読取型 個人被曝線量計の開発 (I)

— γ 線, β 線線量当量評価法—

石 黒 秀 治*¹, 武 田 伸 荘*¹

(1981年5月13日 受理)

Development of Personnel Dosimeter Using Li₂B₄O₇(Cu) Elements and Automatic TLD Reader (I)

—Dose Evaluation Method of γ ray and β ray—

Hideharu ISHIGURO*¹ and Sinso TAKEDA*¹

Characteristics of Li₂B₄O₇ TL element was studied for the design of new personnel dosimeter. According to the results, a eight-element thermoluminescent dosimeter (TLD badge) for gamma ray, beta ray and neutron has been developed using Li₂B₄O₇(Cu) and CaSO₄(Tm) elements. Each element is measured by an automatic TLD reader connected into computer system. Each dose and effective energy of beta ray are able to be evaluated by this TLD badge.

One Li₂B₄O₇ and one CaSO₄ elements for gamma ray are shielded to provide interpretation of 1,000 mg/cm² tissue depth dose and two Li₂B₄O₇ elements are used for beta absorbed dose interpretation. Three ⁶Li₂¹⁰B₄O₇ and one ⁷Li₂¹¹B₄O₇ elements are used for thermal and fast neutron.

Minimum detectable amount of this badge is 2mrem for gamma ray and 20mrem for beta ray in the mixed field.

KEY WORDS: thermoluminescent dosimeter, TLD, TLD badge, Li₂B₄O₇, CaSO₄, automatic TLD reader, tissue depth dose, neutron dose, beta absorbed dose, effective energy, personnel exposure, personnel dosimeter

I は じ め に

TLD を用いた個人被曝線量計は、現在被曝線量測定分野で広く実用化され、最近では TLD の基礎的な特性に関する論文ばかりでなく、解説やレビュー類また TLD の実用化応用化に関する報告も発表されている^{1~12)}。 γ 線 X 線についてはほぼ実用化段階に入っただが、TLD を用いた β 線と中性子線量評価技術はいまだ

開発の余地が残されている⁷⁾。

一方動力炉・核燃料開発事業団(動燃)東海事業所で現在使用している個人被曝管理用線量計バッジは、昭和49年度より再処理工場、プルトニウム燃料製造施設の従業員を対象に、従来のフィルムバッジ(原研IV型バッジ)から TLD バッジに切換え、定常管理用として使用してきた。現有の TLD バッジの有する問題点として、次の点がある¹³⁾。

(1) TLD 測定値読み取りと被曝データ処理システムがオフラインのため大量データ処理を実施する際、時間を要する。

(2) より低線量が測定評価可能な技術、特に β 線と中性子線に関する線量評価技術を確立することが望まれ

*¹ 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所安全管理部; 茨城県那珂郡東海村 (〒319-11)
Health and Safety Division, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation; Tokai-mura, Nakagun, Ibaraki-ken.

る。

上記2点を改善するため昭和53年より3カ年計画で、新しい TLD ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu}$) を用い、各種放射線の分離評価が可能でかつ自動読み取りが可能な個人被曝線量計 (TLD バッジ) を開発した¹⁴⁾。

以下 TLD バッジを開発するにあたり実施した $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{(Cu)}$ TLD 素子の照射特性試験のうち、本報では γ 線と β 線特性および最終的に決定した TLD バッジの仕様について報告する。

II TLD バッジの設計方針

新しい TLD バッジを開発するにあたり、その設計方針として下記の項目を考えた。

(1) 商品化された既製の自動式 TLD リーダ (松下電器産業 K.K. の TLD リーダ, UD-710P 型) を使用することを前提にバッジ開発を行なう¹⁵⁾。

(2) TLD リーダの測定値のデータ処理は、リーダーと電子計算機システムと接続し、オンライン処理可能なシステムを設計する。

(3) 測定対象の放射線は、 γ (X) 線、 β 線、熱中性子線、速中性子線であり、その分離測定評価が可能なこと。このため4素子入りプレートを2枚使用し、合計8 TLD 素子を用いて各放射線の分離測定評価が可能な TLD バッジを開発する。

(4) 設計の目安として、TLD バッジによる各放射線に対する検出限界値の目標は Table 1 に示す値とする。

(5) β 線の線量評価では、評価線量の精度を上げるため、 β 線のエネルギー情報が入手可能なバッジであること。これは β 線のエネルギーにより、線量算出の精度が大きく依存するためである。

(6) 速中性子線の線量評価法はアルベド方式とする。現時点では速中性子線の線量評価法としては、TLD によるアルベド方式が個人被曝管理上、最も良いと考えられる。

Table 1 Accuracy of dose evaluation on the design of TLD badge.

Radiation	Accuracy	
γ Ray	10 mrem	$\pm 20\%$
β Ray	100 mrem	$\pm 20\%$
	10 mrem	$\pm 100\%$
Thermal neutron	1 mrem	$\pm 20\%$
Fast neutron	10 mrem	$\pm 50\%$
	100 mrem	$\pm 20\%$

(7) γ 線の線量評価は最も重要であり、その信頼性の高いことが求められるため、2種類の方式により γ 線量が求められるバッジ設計とする。

(8) 2 プレート、8 TLD 素子を収納するバッジケースを設計する。バッジケースは耐久性だけでなく、氏名、番号等の管理も容易なものとするよう考慮する。

γ 線量当量を測定評価する TLD バッジを設計するに当たり下記の項目について事前に検討した。

その第一は、 γ 線量として何を測定するのか、すなわち自由空間の γ 線量を測るのか、それとも深部線量当量を測るのかという問題である。両者の根本的な違いは、前者が人体に入射する γ 線の照射量を測定するのに対し、後者は、人体の深部組織が吸収する線量を測定するものである。放射線によって人体がうける線量を評価するという個人被曝測定の本来の目的からすれば、深部線量当量の方が、照射線量よりも適している。このため、今回 γ 線量として深部線量当量を評価することとした。

第2の問題点は、深部線量当量として、どのような深さにおける線量当量を評価すべきかという点である。ICRP Pub 26 では、直径 30 cm の生体等価物質の球の中で最大の線量当量 (maximum dose equivalent) を与える深さで測れば良いとしているが、その深さは γ 線のエネルギーにより異なる。ICRU 25 では線量当量指標 (dose equivalent index) として、1 cm すなわち 1,000 mg/cm² の組織下の線量を提案している。皮膚表面下において 0.07 mm と 1 cm がそれぞれ表層線量当量 (shallow dose equivalent) と深部線量当量 (deep dose equivalent) を評価する実際的な値としている。このような背景から、今回全身深部線量当量を評価する深さとして 1,000 mg/cm² を採用することとした。

第3の点は、エネルギー評価の問題である。被曝した γ 線のエネルギーがわかれば異常な被曝の原因を推定する場合の有力な情報となる。特に、動燃事業団においては取り扱われる核種が、多種にわたる点を考えると、どの核種からの被曝であるかを推定するための情報として、エネルギー評価の意義は大きい。

以上の観点から、 γ 線量評価は、2素子から構成することとした。すなわち、第1素子は深部線量当量評価用として使用し、樹脂フィルター 1,000 mg/cm² と $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{(Cu)}$ 素子を組み合わせる。第2素子はエネルギー評価用として使用しエネルギー依存の大きい $\text{CaSO}_4\text{(Tm)}$ 素子を用い、第1素子との発光量の比較から γ 線エネルギーを推定する。

今回、検討の対象としている $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{(Cu)}$ 蛍光体は、

実効原子番号 $\bar{Z}$ が 7.26 で、生体組織 $\bar{Z}=7.42$ に近いものである。

β 線による被曝では、皮膚での被曝が問題となる。ICRP Pub 9 の勧告では、通常不感層厚みは皮膚に対して 7 mg/cm² および手指、足に対して 40 mg/cm² が与えられ、部位によりこの厚みが異なることを指摘されている。また、ICRP Pub 26 では、「放射線に直接さらされる大部分の皮膚では感受性層の深さを 50~100 μ m (すなわち 5~10 mg/cm²) の範囲と規定するのが適切である。実際の線量算定には、委員会は合理的の平均値として深さ 70 μ m を使用することを勧告する」と述べている。

一方、動燃再処理工場では、核分裂生成物等による β 線被曝が線量評価上重要である。この場合、 β 線最大エネルギーも約 1 MeV 以上の核種が多く、かなりエネルギーが高い。さらに、 β 線の放射線場は γ 線との混在場であることが多く、 β 線、 γ 線のそれぞれの線量を分離評価できることが必要である。

以上の考察をもとに β 線による線量評価は、皮膚下 7 mg/cm² 不感層直下の吸収線量が評価可能であり、TLD 素子の前に厚さの異なる 2 種類の樹脂フィルターを配して 2 素子の発光量の比より β 線エネルギーも評価可能な個人被曝線量計の開発を目標とした。

III 線量当量算出基本式

$\gamma(X) \cdot \beta$ 線用線量計の基本構成は、4 個の TLD を用いる。その内訳は β 線、 γ 線の両方に感度を有するフィルター厚下の TLD(TLD-1) で、できうる限り低エネルギーの β 線にも感度を持つようにする。さらに同じく β 線、 γ 線の両者に感度を持つが、 β 線エネルギー評価のため TLD-1 でのフィルターより厚いフィルター下の TLD(TLD-2)、また γ 線量評価用として β 線をカットし γ 線のみを計るようなフィルター下の TLD(TLD-3)、および γ 線のエネルギー評価用の TLD(TLD-4) となる。

以上 4 個のうち、TLD-1~TLD-3 の 3 個の TLD により線量評価を行なう。

いま、TLD リーダーで測定した時の TLD の発光量を T で表わすと β 線と γ 線の混在場での各 TLD の発光量と γ 線量当量 (D_γ) および β 線量当量 (D_β) との関係は下記に示す式で与えられる。

$$T_1 = F_1 b_1(E_\beta) D_\beta + F_1 g_1(E_\gamma) D_\gamma + C_{BG} \quad (1)$$

$$T_2 = F_2 b_2(E_\beta) D_\beta + F_2 g_2(E_\gamma) D_\gamma + C_{BG} \quad (2)$$

$$T_3 = F_3 g_3(E_\gamma) D_\gamma + C_{BG} \quad (3)$$

ここで、

T_n : 各フィルター厚み下の TLD- n を TLD リーダー

で測定した時の発光量 (counts)

F_n : TLD- n の ^{60}Co - γ 線等価線量換算係数^{*2} の逆数 (counts/mReq⁶⁰Co- γ)

$b_n(E_\beta)$: TLD- n の β 線 (最大エネルギー E_β MeV) に対する感度 (mReq ^{60}Co - γ /mrem)

$g_n(E_\gamma)$: TLD- n の γ 線 (エネルギー E_γ MeV) に対する感度 (mReq ^{60}Co - γ /mrem)

E_β : β 線最大エネルギー (MeV)

E_γ : γ 線の実効エネルギー (MeV)

D_β : β 線線量当量 (mrem)

D_γ : γ 線線量当量 (mrem)

C_{BG} : TLD- n のバックグラウンド発光量 (counts)

$$C_{BG} = aX + C_0$$

X : 日数

C_0 : TLD アニール時の残存発光量 (counts)

(1), (2), (3)式より

$$Q_1 = b_1(E_\beta) D_\beta + g_1(E_\gamma) D_\gamma \quad (4)$$

$$Q_2 = b_2(E_\beta) D_\beta + g_2(E_\gamma) D_\gamma \quad (5)$$

$$Q_3 = g_3(E_\gamma) D_\gamma \quad (6)$$

ここで、

$$Q_n = (T_n - C_{BG}) / F_n \quad (7)$$

(6)式より、

$$D_\gamma = Q_3 / g_3(E_\gamma) \quad (8)$$

(4), (6)式より

$$D_\beta = \frac{Q_1 - g_1(E_\gamma) D_\gamma}{b_1(E_\beta)} = \frac{Q_1 - \frac{g_1(E_\gamma)}{g_3(E_\gamma)} Q_3}{b_1(E_\beta)} \quad (9)$$

また(5), (6)式より

$$D_\beta = \frac{Q_2 - g_2(E_\gamma) D_\gamma}{b_2(E_\beta)} = \frac{Q_2 - \frac{g_2(E_\gamma)}{g_3(E_\gamma)} Q_3}{b_2(E_\beta)} \quad (10)$$

以上、 γ 線量当量、 β 線量当量はそれぞれ(8)式、(9)式または(10)式より求める。したがって前もって b_n と g_n を求めておけば Q_n すなわち TLD の発光量 T_n より γ 線量当量と β 線量当量を求めることが可能である。

IV 試験方法

1. 線源

今回 TLD バッジを開発するための照射試験に使用した線源は、 γ 線源として ^{60}Co 5.9 Ci, ^{60}Co 72 mCi, ^{137}Cs 110 mCi, X線は管電流、管電圧と Al, Cu, Pb フィル

*2 ^{60}Co - γ 線等価線量換算係数: TLD の発光量をエネルギー依存および TLD リーダーの測定条件の違いを ^{60}Co の γ 線量測定時の条件へ規格化するための変換係数。変換された発光量を mReq ^{60}Co - γ と以下表わす。

ターの組合わせにより実効エネルギー 40 keV~220 keV まで使用可能な X 線発生装置を使用した。β 線源として ^{90}Sr - ^{90}Y 0.89 mCi, ^{147}Pm 0.43 mCi, ^{204}Tl 0.28 mCi の 3 核種であり、β 線源の値付けは、原研にて開発された β 線吸収線量率測定器を用いて実測した値を用いた。

TLD の人体装着時の効果(ファントム効果)を調べるために、ファントムとしてパラフィン材によるだ円柱(長径 30 cm×短径 20 cm×高さ 40 cm)の表面に線量計を置き照射した。

2. TLD 素子

照射試験で検討した蛍光体は実効原子番号が 7.26 で生体軟組織等価性な $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ と、同じく 15.3 の非生体等価性の $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ である。 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ としては ^6Li および ^{10}B の濃縮率がそれぞれ 95.33% および 94.64% である $^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$, ^7Li および ^{11}B の濃縮率がそれぞれ 99.99% および 99.65% である $^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ およびそれぞれ自然含有率の $^6\text{Li}_2^{\text{n}}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ の 3 種類を用いた。 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ の粒径は約 80 μm で、1 素子当たりの重量は約 0.7 mg である。TLD 素子はこの蛍光体を耐熱性樹脂基板(10 mg/cm²) 上約 3 mmφ に拡げ、その上を約 22 mg/cm² の透明な樹脂フィルムでカバーした構造である。

3. 試験用線量計

照射試験に用いた TLD 線量計サンプルの外観図を Fig. 1 に示す。TLD 素子 4 個を 12×48×1.8 mm の樹脂プレートに収め、これをホルダーに挿入する。ホルダー部には種々のフィルター材料が 4 個の素子の両側に個別に配置される構造になっている。 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ と $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ の 4 素子(蛍光体)を収めた樹脂プレートとして Table 2 に示す 5 種類を使用した。

γ 線および β 線照射試験で種々のフィルター下での各素子の応答特性を調べるために、ホルダーに開孔部を設けたり、種々の厚さのフィルム材や金属フィルターを貼付した。さらに厚いフィルター構造を検討する際にはホルダーの外部に、付加ケースを用いフィルター材を付加して照射した。

4. TLD リーダ

本試験に使用した TLD リーダは熱蛍光検出手段として光電子増倍管による光子計測法を用いた手動式リーダ(松下電器製 UD-702P 型)である。本リーダはランプを用いた赤外線加熱方式で低線量測定時は光子計数法で高線量では電流積分法で測定する。

V 結果および考察

1. γ 線感度

今回、検討の対象とした全種類の蛍光体(中性子用も含む)の γ 線感度を照射試験より求めた。ホルダーは 4 素子の前に樹脂フィルターを貼りつけたものを使用し、さらに外部ケース(ハンガー)に入れて電子平衡厚を 300 mg/cm² にとった。これらの試験用線量計を ^{60}Co

Fig. 1 Construction of TL dosimeter for experiment.

Table 2 Composition of dosimeter plate for experiment.

Kind of plate	Thermoluminescence material			
	# 1	# 2	# 3	# 4
P1	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$
P2	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$
P3	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$
P4	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	CaSO_4
P5	$^{\text{n}}\text{Li}_2^{\text{n}}\text{B}_4\text{O}_7$	$^{\text{n}}\text{Li}_2^{\text{n}}\text{B}_4\text{O}_7$	$^{\text{n}}\text{Li}_2^{\text{n}}\text{B}_4\text{O}_7$	CaSO_4

線源で約 86 mR を照射し、測定した。これを 3 回くりかえし、一種類の線量計 (4 素子) を 30 個照射し、試験用線量計の各素子ごとに、その平均した結果を **Table 3** に示す。また、これらの結果を蛍光体ごとにまとめて平均した結果を **Table 4** に示す。

以上の結果、各 TLD 素子の γ 線感度限界を非照射時アニール後の TLD の光子計測数の平均値と標準偏差の 2 倍の和と定義した。今回の場合、その値は 30 カウントになった。この値は Li₂B₄O₇(Cu) 系素子では約 2 mR であり、この値は個人被曝線量計として応用可能な値である。一方 CaSO₄(Tm) 素子では約 0.1 mR であった。

2. 再現性

再現性を γ 線感度を検討する際に実施したものと同一仕様の試験用樹脂プレートを用い、3 回のくりかえし照射データに基づき、プレート内素子ごとの変動係数 ($\sigma/\bar{x}$ %) と、ここでは定義した。この変動係数について、30 個のプレートの平均値を求め再現性を調べた。**Table 2** に示す P1~P4 プレートについて求めその結果を **Table 5** に示した。

上記結果より約 86 mR の γ 線照射した場合各素子の γ 線応答くりかえし測定時の変動係数は、⁶Li₂¹⁰B₄O₇ 素子の場合は 3.3~4.3%、平均で 3.5% であり、⁷Li₂-¹¹B₄O₇(Cu) 素子の場合は 2.3~3.4% であり、平均 2.9% であった。また CaSO₄(Tm) 素子では 1.5% であった。

3. 各種フィルター厚下での γ 線エネルギー特性

ⁿLi₂ⁿB₄O₇(Cu) および CaSO₄(Tm) 素子に各種フィルターを組み合わせた場合のエネルギー特性を調べた。フィルターは、アクリル樹脂または ABS 樹脂を用いた。厚いものについては、ホルダーの外部ケース (ハンガー) に樹脂材を貼付した。

Fig. 2 は、ⁿLi₂ⁿB₄O₇(Cu) 素子に 300, 1,000, 1,200 mg/cm² 厚の樹脂フィルターを組み合わせた場合のエネルギー特性である。ファントム装着と自由空間の条件下では、明らかな違いを示している。自由空間の条件下では、200 keV 以下で、感度は約 20% 下がるが、逆にファントム装着条件下では、40 keV~200 keV で感度は上る特性を示し、その最大値はおおよそ 80 keV で +30%

Table 3 γ -Ray sensitivity of Li₂B₄O₇ and CaSO₄ TL elements.

Kind of plate	γ -Ray sensitivity (c/mR*)			
	# 1	# 2	# 3	# 4
P1	⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇ 11.56(c/mR) ± 6.0(%)	⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇ 11.36(c/mR) ± 5.0(%)	⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇ 11.43(c/mR) ± 7.0(%)	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ 15.13(c/mR) ± 3.4(%)
P2	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ 15.23(c/mR) ± 4.9(%)	⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇ 13.06(c/mR) ± 5.7(%)	⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇ 12.90(c/mR) ± 5.8(%)	⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇ 13.24(c/mR) ± 5.9(%)
P3	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ 15.74(c/mR) ± 8.1(%)	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ 15.02(c/mR) ± 7.9(%)	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ 15.13(c/mR) ± 8.2(%)	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ 15.21(c/mR) ± 7.8(%)
P4	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ 12.42(c/mR) ± 6.4(%)	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ 12.00(c/mR) ± 5.0(%)	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ 11.83(c/mR) ± 4.8(%)	CaSO ₄ 319.6(c/mR) ± 6.6(%)
P5	ⁿ Li ₂ ⁿ B ₄ O ₇ 14.98(c/mR) ± 4.8(%)	ⁿ Li ₂ ⁿ B ₄ O ₇ 15.26(c/mR) ± 5.2(%)	ⁿ Li ₂ ⁿ B ₄ O ₇ 15.12(c/mR) ± 5.4(%)	CaSO ₄ 243.6(c/mR) ± 4.4(%)

* c/mR: Thermoluminescence yields per unit exposure (counts per mR).

Table 4 γ -Ray sensitivity and minimum detectable amount of TL elements.

	⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇	ⁿ Li ₂ ⁿ B ₄ O ₇	CaSO ₄
Sensitivity (counts/mR)	12.26	14.19	15.12	281.6
Minimum detectable amount* (mR)	2.4	2.1	2.0	0.11

* MDA = $(\bar{x} + 2\sigma) \times f$, where $\bar{x}$ = average of photon counting of nonirradiated TL element, σ = standard deviation, f = conversion factor to mR from counts.

MDA corresponds to 30 counts.

Table 5 Reproducibility of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ and CaSO_4 TL elements.

Kind of plate	Reproducibility (coefficient of variant %)			
P1	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$
	4.3	3.9	3.9	4.5
P2	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$	$^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7$
	2.9	3.0	2.6	3.3
P3	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$
	3.0	2.9	2.3	2.5
P4	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	$^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$	CaSO_4
	3.2	2.9	2.7	1.5

Fig. 2 Relative γ -ray energy response of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ element with plastic filter.

であった。

Fig. 3 は樹脂フィルター下の $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ 素子のエネルギー特性を示したもので 200 keV 以下のエネルギーで大きな過大応答を示し、ファントム装着条件下では、40 keV で 16 倍に達する。しかし樹脂の厚さによる違いは認められなかった。

4. γ 線エネルギー評価法¹⁶⁾

複数個の TLD 素子を用いてその感度比よりエネルギーを評価するエネルギー評価法の基本的な考え方は、エネルギー依存性の大きい素子 (第 2 素子) と深部線量当量評価用素子 (第 1 素子) の発光量の比より評価するというものである。第 2 素子としては、樹脂下の $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ 素子と銅フィルター下の $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子の 2 つの候補が考えられた。しかし、 $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ 素子は、

発光量が増大する方向のエネルギー依存性であるのに対し、銅フィルター下の $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子は、発光量が減少する方向である。このことを考慮すると、第 2 素子としては、発光量の大きくなる $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ 素子の方が精度の高いエネルギー評価ができると考えられる。したがって第 2 素子としては、 $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ を採用することとした。そこで、第 1 素子 ($^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7$, フィルター厚 1,000 mg/cm²) と第 2 素子 (CaSO_4 , フィルター厚 1,000 mg/cm²) の応答比率をエネルギーの関数として求め、その結果を Fig. 4 に示す。200 keV 以下では大きなエネルギー依存性を持ち、したがって Pu および ²⁴¹Am からの γ 線エネルギー評価に利用可能である。

5. β 線感度および β 線エネルギー特性¹⁷⁾

$^n\text{Li}_2^n\text{B}_4\text{O}_7$ TLD 素子の前に樹脂フィルターを配置し

Fig. 3 Relative γ -ray energy response of $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ element with plastic filter.

Fig. 4 Ratio of thermoluminescence between $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ and $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ elements as a function of γ -ray effective energy.

て、 ^{90}Sr - ^{90}Y β 線源による β 線感度を求めた。使用したフィルターの厚みは 13, 62, 167, 327 mg/cm^2 の 4 種類で β 線量として 20 mrem から 500 mrem までの間 6 点の線量を照射した。Table 6 に $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ 素子に対する単位線量当たりの発光量と感度限界の線量を示す。以上の結果より今回開発した TLD バッジの β 線用素子(フィルター厚 17 mg/cm^2 と 64 mg/cm^2) の ^{90}Sr - ^{90}Y

(^{90}Y の最大エネルギー 2.27 MeV) に対する感度限界は 1.3 mrem であった。

次に β 線エネルギー特性について検討した。 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ TLD 素子と厚み 13.4 mg/cm^2 から 650 mg/cm^2 までの樹脂フィルターを組み合わせ、 ^{90}Sr - ^{90}Y , ^{204}Tl および ^{147}Pm の β 線に対する感度とフィルター厚さとの関係を求めた。その結果を Fig. 5 に示す。Fig. 5 が

Table 6 β -Ray response of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ elements to ^{90}Sr - ^{90}Y source.

β -Ray response of TL elements (counts/mrem)				
Position ID of element (Filter thickness) (mg/cm ²)	# 1 (13 mg/cm ²)	# 2 (62 mg/cm ²)	# 3 (167 mg/cm ²)	# 4 (327 mg/cm ²)
Dose given (mrem)	20	23	20	12
	49	22	17	10
	101	24	19	9
	200	22	18	9
	298	23	17	9
	498	23	17	10
Average	26	23	18	10
Minimum detectable amount (mrem)	1.2	1.3	1.7	3.0

Fig. 5 β -Ray relative sensitivity of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ element as a function of thickness of filter.

示すようにフィルターの厚さが増すにつれ β 線の相対感度が減少することが得られた。次に特定のフィルター厚さにおける β 線エネルギーと感度の関係を求めた。その結果を Fig. 6 に示した。Fig. 6 は β 線の実効最大エネルギーを横軸にとり、フィルターの厚さをパラメータにした場合の β 線の感度を示している。このグラフは(9)

Fig. 6 β -Ray relative sensitivity of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ element as a function of effective maximum energy.

式および(10)式を用いて β 線量当量算出の際に使用するものである。

6. β 線エネルギー算出法

(9)式と(10)式は等しいことより、

$$\frac{b_2(E_\beta)}{b_1(E_\beta)} = \frac{g_3(E_\gamma)Q_2 - g_2(E_\gamma)Q_3}{g_3(E_\gamma)Q_1 - g_1(E_\gamma)Q_3} (=EI_\beta) \quad (11)$$

(11)式において右辺は各 TLD 素子の発光量 Q_n と γ 線感度 $g_n(E_\gamma)$ のみの関数で示されており、左辺は β 線に対する各 TLD 素子の感度 $b_n(E_\beta)$ のみの比で表現されている。すなわち、いま右辺について γ 線エネルギーが得られれば各 TLD 素子の γ 線感度 $g_n(E_\gamma)$ は定数として取扱うことができ、かつ Q_n は各 TLD 素子の実測値であるから g_n と Q_n より右辺の値を求めることが可能である。この値は左辺より β 線最大エネルギー E_β の関数として与えられることになる。したがってあらかじめこの比 (b_2/b_1) と E_β との関係を示すグラフを求めておけば、各 TLD 素子の実測値 Q_n から β 線最大エネルギーを推定し得る。このように (11) 式は β 線のエネルギー情報を示す指標と考え β 線最大エネルギー指標 (EI_β) と定義する。

いま、 b_1 として樹脂フィルター厚 13.4 mg/cm² での β 線感度、また b_2 としてフィルター厚 24.2 mg/cm² から 116.4 mg/cm² までの 6 種類のフィルター厚条件下での β 線感度を求め、その両者の比、すなわちエネルギー指標と実効 β 線最大エネルギーとの関係を Fig. 7 に示す。Fig. 7 よりフィルター厚が 100 mg/cm² 以上では曲線の傾きが大きく、また 40 mg/cm² 以下では傾きがゆるやかであり、エネルギー算出の点から 60 mg/cm² 前後が最も適当であることがわかる。したがって今回開発した TLD バッジの最終仕様では β 線エネルギー評価用の素子の前に 64 mg/cm² 厚の樹脂フィルターを配置する設計とした。

Fig. 7 を用いて、TLD 素子の発光量よりエネルギー指標を求めることにより、被曝した β 線実効最大エネルギー情報を入手することが可能である。このエネルギー情報は再処理工場のように多数の β 線放出核種を取り扱う施設では被曝した核種の予想に有力な情報となり得る。

7. γ 線、 β 線混在場での分離評価試験

実際の放射線下作業現場での β 線による被曝は、 β 線および γ 線の混在場である場合が多い。 β 線、 γ 線混在場での各線量当量の分離評価性能試験を実施した。 β 線源による照射は単一核種による照射と ⁹⁰Sr-⁹⁰Y と ²⁰⁴Tl の 2 核種による照射を考えた。 γ 線源は ⁶⁰Co と X 線である。 β 線量/ γ 線量比は最大 10 までの条件で照射した。 β 線量当量評価用 ⁷Li₂¹¹B₄O₇(Cu) 素子の前には 13 mg/cm² と 64 mg/cm² のフィルターを、また γ 線用素子の前には 1,000 mg/cm² の樹脂フィルターを配置した。

Fig. 7 Energy index (b_2/b_1) as a function of effective maximum energy of β -ray.

照射結果を Table 7 に示す。(11)式よりエネルギー指標値 (EI_β) を β 線用素子の各発光量より求め、Fig. 7 より求めた β 線最大エネルギーでの β 線感度を Fig. 6 より求め、(9)式または(10)式より β 線量当量を求めたものである。実際に照射した線量と TLD 素子の発光量より求めた線量は、今回実施した β 線と γ 線の混在場で、 β 線線量当量評価で No. 11 のデータを除き $\pm 15\%$ の精度で比較的良く一致した。したがって β 線と γ 線の混在場での β 線量当量評価は、100mrem $\pm 20\%$ 、20mrem $\pm 100\%$ で評価可能である。

VI TLD バッジの構造

以上の照射特性試験の結果に基づき 8 TLD 素子構成で、 γ 線、 β 線、熱中性子線、速中性子線の被曝線量が測定評価可能な TLD バッジの構造が決定された。

Fig. 8 に TLD バッジの全体構造を示す。この TLD バッジは、2つの線量計 (γ 線用線量計および中性子用線量計) と、バッジケースから構成される。バッジケースは、これら 2つの線量計が縦に並んで収納できるようにした。1つの線量計には 4 TLD 素子が収納される。

Table 7 Beta and gamma mixed dose comparisons.

No.	β -Dose given (mrad)		γ -Dose given (mR)		Total β -Dose given (mrad)	β/γ Ratio	Energy index (EI)	Effective β -ray maximum energy by EI (MeV)	β -Dose evaluated	β -Dose given
	^{90}Sr - ^{90}Y	^{204}Tl	^{60}Co or X-Ray							
1	456	—	^{60}Co	191	456	2.4	0.80	2.0	466	1.02
2	—	525	^{60}Co	191	525	2.7	0.35	0.8	582	1.11
3	482	—	X-ray 60 keV	170	482	2.8	0.84	2.3	541	1.12
4	—	484	X-ray 60 keV	170	484	2.8	0.41	0.8	504	1.04
5	456	484		—	940	—	0.63	1.4	810	0.86
6	253	494		—	747	—	0.59	1.3	634	0.85
7	455	154		—	609	—	0.75	1.8	612	1.00
8	456	567	^{60}Co	192	1,022	5.3	0.60	1.3	887	0.87
9	379	452	^{60}Co	80	831	10.4	0.65	1.4	806	0.97
10	455	141	^{60}Co	80	596	7.5	0.77	1.8	635	1.06
11	10	—	^{60}Co	59	10	0.17	0.64	1.4	22	2.20
12	50	—	^{60}Co	59	50	0.85	0.81	2.0	47	0.93

Fig. 8 Construction of new personnel dosimeter (TLD badge).

バッジケースは下部の蝶番で開閉する構造であり、蓋を閉めるとロックで固定され、治具を用いないと容易に開けられないようにした。また、内部にゴム製のパッキ

ングを用い、水や湿気の入るのを防止している。2つの線量計を収納する際には、その入れ方を間違わないように、構造的な工夫がなされている。

各々の線量計は、ホルダー部に 40 ビットの光学読取用さん孔コードを設け、7 桁の個人番号、線量計の種別コード等を、TLD リーダで読み取れるようになっている。

Table 8 に 2 つの線量計に収納される 8 TLD 素子の仕様を示す。また Fig. 9 に 2 つの線量計の構造を示す。バッジケースを含めた断面図を示す。素子 1 と 2 が β 線量評価用であり、素子 3 と 4 が γ 線量評価用である。 β 線量評価での γ 線量差引用としては、 γ 線用の素子 4 を

利用する。各蛍光体に対するフィルター厚さは、素子ホルダー、バッジケースの全部を含めたものである。たとえば、素子 4 に対しては、基板の 10 mg/cm² とホルダーの 160 mg/cm² とバッジケースの 840 mg/cm² の合計として約 1,000 mg/cm² を構成している。

β 線用の 2 つの素子に対する窓厚は、それぞれ、17 mg/cm², 64 mg/cm² とした。

Table 8 Specification of new personnel dosimeter.

Radiation	Number of element	Thermoluminescence material and filter	Purpose	Element No. in Fig. 9
γ -Ray	2	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ (Cu) + Plastic	1,000 mg/cm ² γ -Ray depth dose equivalent	# 4
		CaSO ₄ (Tm) + Plastic	1,000 mg/cm ² Evaluation of γ -ray energy	# 3
β -Ray	2 + (1)	⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ (Cu) + Plastic	17 mg/cm ² β -Dose equivalent	# 1
		⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ (Cu) + Plastic	64 mg/cm ² Evaluation of β -ray energy	# 2
		⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ (Cu) + Plastic	1,000 mg/cm ² γ -Dose subtraction	(# 4)
		(Front) Cd/ ⁷ Li ₂ ¹¹ B ₄ O ₇ (Cu)/Cd (Back)	γ -Dose subtraction	# 5
Neutron	4	Sn/ ⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇ (Cu)/Cd		# 6
		Cd/ ⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇ (Cu)/Cd	Neutron dose equivalent	# 7
		Cd/ ⁶ Li ₂ ¹⁰ B ₄ O ₇ (Cu)/Sn		# 8

Neutron dosimeter

γ ray and β ray dosimeter

Fig. 9 Section of new personnel dosimeter (TLD badge).

VII 結 論

$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ TLD 素子を用いた γ 線および β 線の照射試験の結果次のことが明らかになった。

(1) $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ TLD 素子の γ 線感度限界は 2.4 mrem, β 線は 1.3 mrem であり, 個人被曝管理上十分な感度を有する。

(2) $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ TLD 素子の γ 線エネルギー特性が求まり, 1,000 mg/cm² フィルター下およびファントム装着条件下で, 80 keV での照射線量に対し最大 1.30 の過大応答が認められた。86 mR 照射時の再現性は $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ で変動係数が 3.5%, CaSO_4 で 1.5% であった。

(3) β 線量当量および β 線実効エネルギーの算出のための 2 つの TLD 素子のフィルター厚さは 13 mg/cm² および 60 mg/cm² 前後が適当であることが実験的に求められた。

(4) γ 線と β 線の混在場で β 線量が 100 mrem 以上また β/γ 線量比が 0.2~10 の照射条件下で, 約 $\pm 15\%$ の精度で β 線量当量が評価された。

(5) $^7\text{Li}_2^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ TLD 素子が 3 個および $\text{CaSO}_4(\text{Tm})$ TLD 素子 1 個を用いて γ 線と β 線による線量当量が分離評価可能で, かつそれぞれの被曝実効エネルギーが評価可能な TLD バッジの構造および線量評価式が求められた。 γ 線量当量として深さ 1,000 mg/cm² での深部線量当量を測定評価する構造とした。

(6) γ 線量当量の検出限界値は, 2 mrem $\pm 100\%$ (10 mrem $\pm 20\%$), 一方 β 線量当量については β 線のみの単一放射線に対しては 2 mrem $\pm 100\%$ (10 mrem $\pm 20\%$) また γ 線と β 線の混合場では 20 mrem $\pm 100\%$ (100 mrem $\pm 20\%$) である。

最後に本報告を作成するにあたり線量計の製作およびデータ解析において適切な助言をいただいた松下産業機器 K.K. 電子機器事業部の安野信剛氏および TLD の照射測定に協力いただいた動燃東海事業所安全管理部の野村幸広氏に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) L.F. KOCHER *et al.*; The Hanford thermoluminescent multipurpose dosimeter, *Health Phys.*, **25**, 567 (1973).
- 2) J.P. CUSIMANO *et al.*; Applied thermoluminescence dosimetry program at the NRTS, Proceedings of Second International Conference on Luminescence Dosimetry, CONF-680920, 722 (1968).
- 3) R.B. FALK; A personnel neutron dosimeter using lithium fluoride thermoluminescent dosimeter, RFP-1581 (1971).
- 4) 射場大造他; 原子力発電所の放射線管理システム, 日立評論, **60**, 125 (1978).
- 5) J.A. DENNIS *et al.*; The NRPB automated thermoluminescent radiation dosimeter and dose record keeping system, NRPB-R32 (1975).
- 6) F.H. ATTIX; A current look at TLD in personnel monitoring, *Health Phys.*, **22**, 287 (1972).
- 7) K. BECKER; The future of personnel dosimetry, *Health Phys.*, **23**, 729 (1972).
- 8) R.V. GRIFFITH *et al.*; Recent development in personnel neutron dosimeter—A review, *Health Phys.*, **36**, 235 (1979).
- 9) 立田初巳; 熱ルミネッセンス線量計の開発・応用状況について, 保健物理, **8**, 173 (1973).
- 10) 中島敏行; 国産 TLD の性能, *Radioisotopes*, **27**, 676 (1978).
- 11) 古田 悠, 田中俊一; 原子力分野における熱蛍光線量計の利用, 原子力誌, **20**, 559 (1978).
- 12) 山下忠興; 熱ルミネッセンス線量計開発の現状と問題点, 保健物理, **8**, 237 (1973).
- 13) H. ISHIGURO and S. FUKUDA; Personnel dosimetry system based on TLD at PNC Tokai Works, Proceedings of the fifth International Congress of IRPA Radiation Protection (1980).
- 14) M. TAKENAGA *et al.*; Preparation and characteristics of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$: Cu phosphor, *Nucl. Instrum. Methods.*, **175**, 77 (1980).
- 15) Y. YASUNO *et al.*; A new type TLD and automatic reader for personnel dosimetry, Proceedings of Technical Meeting NUCLEX 78 (1978).
- 16) 中島敏行; Troika 方式の TLD 環境モニター, 日本保健物理学会第 15 回研究発表会要旨集, p. 59 (1980).
- 17) G. UCHRIN; A new type of extremity dosimeter, *Nucl. Instrum. Methods*, **175**, 173 (1980).