トリチウム β 線の刺激による硫化亜鉛蛍光体の励起発光

池田正道*, 小沢隆二**, 波多和人***, 篠崎善治*, 飯塚義助*

*東京都立アイソトープ総合研究所, **大日本塗料株式会社

***大日本シンロイヒ株式会社

1964 年 1 月 8 日 受理

トリチウムガス刺激による蛍光体の励起発光について, 2 種の蛍光体の発光強度特性を測定し, トリチウム量と発光強度の関係を検討した。ガラス管球内壁に蛍光体結晶を 1 層になるよう塗布し, この中にトリチウムガス 2 キュリーを導入して, トリチウムガス圧に対する発光強度を測定した。トリチウムガス圧に対する発光効率, ガス圧が上がると次第に減少する。これは, トリチウムガス自体による β 線の自己吸収として説明され, 実験結果とよく一致する関係を導き出した。この自発光光源は, 標示用光源のほかに, 比較標準光源としても利用できると期待される。

1. 緒 言

ラジウムによる蛍光体の励起発光は, 従来から夜光塗料として, 一般に用いられている方法である。ラジウムは, γ 線をだすので, 塗料が多量の場合には, 放射線被曝の点で問題があり, さらに α 線は, 蛍光体結晶自体に放射線損傷を与え, 発光強度の経時劣化の原因となるなどの欠点がある。近来, β 線放射核種による自発光体の研究¹⁾²⁾ がなされており, 著者らは, 蛍光体の刺激源として, 低エネルギーの β 線を放射するトリチウムを用い, 以上の欠点のない夜光塗料の研究をおこなっている。この報告では, トリチウムガス刺激による蛍光体の励起発光について, 2 種の蛍光体を選び, この発光強度特性を測定し, トリチウム量と発光強度の関係を検討した。

2. 実 験

蛍光体としては, cathode-ray luminescence における蛍光体の発光スペクトル分布が, 標準視感度分布にもっとも近く, かつ, 発光強度のもっとも高い蛍光体を選んだ。すなわち, 暗視感度分布 (5100 Å) に相当し, 緑色光を発する蛍光体として, cubic-ZnS:Cu:Cl ($\phi=8\mu$) を選び, 明視感度分布 (5500 Å) に近い黄色の蛍光体として, hex-5 ZnS·5 CdS:Ag:Cl ($\phi=6\mu$) を選んだ。Fig. 1 には, 用いた蛍光体の発光スペクトル分布を示す。図の発光強度は, オシロスコープに用いられている, Zn₂SiO₄:Mn 蛍光体の peak energy を 100 として表わしてある。

蛍光体は, 内径 9 mm のガラス球および内径 5 mm のガラス管内壁に塗布した。塗布方法³⁾ は, 蛍光体を硝化綿溶液中に懸濁させて, ガラス管球中に入れた

Fig. 1 Emission spectra of various phosphors.

0.05%酢酸バリウム溶液中に注入し, 約 30 分後, 上澄液を抜き取り, ガラス管球内壁にできた蛍光体膜を 70°C で, 30 分間乾燥した。この方法で作った蛍光体膜の厚さは, 約 3 mg/cm² であり, 蛍光体結晶が 1 層に塗布されている状態にある。このガラス管球を真空系に接続し, 十分に排気したのち, テプラーポンプにより, トリチウムガス (RCC>96%) 2 キュリーを導入し, ガラス管球中のトリチウムガス圧を徐々に 1.55 気圧まであげて, このときの発光強度を, RCA 931A 光電子増倍管により, 電流として測定した。

3. 結果および考察

トリチウムガス圧と発光強度の関係は, Fig. 2 に示すとおりである。トリチウムガス圧が 0.3 気圧を越え, トリチウムガス圧に対する発光効率が次第に減少する。この現象は, トリチウムガス自体による β 線

Fig. 2 Emission intensity of phosphors excited by β -rays at various pressures.

の自己吸収によってつぎのように説明される。

トリチウムの β 線の自己吸収は、自己散乱を含めて次式で表わされる。

$$N = N_{\infty}(1 - e^{-\mu x}) \quad (1)$$

N : 見掛けの放射能強度

N_{∞} : 無限厚さの見掛けの放射能強度

μ : 自己吸収係数

x : トリチウムガスの厚さ

一方、見掛け上の発光強度(L)は、放射能強度に比例する。それゆえ(1)式は、(2)式として表わされる。

$$L = L_{\infty}(1 - e^{-\mu x}) \quad (2)$$

また、自己吸収係数(μ)は、試料の密度によって決められるから、トリチウムガス圧(P)の関数として表わすことができる。さらに、実験条件では、容器の大きさは、限定されているから、トリチウムガスの厚さ(x)は、一定とみなされる。したがって、(2)式はつぎのように表わされる。

$$L = L_{\infty}(1 - e^{-kP}) \quad (3)$$

$$K = kx \quad k = \frac{\mu}{P}$$

実験結果から、 L_{∞} と K を計算すると、Table 1の

ごとくになる。これらの値を用い、(3)式により計算した理論曲線は、Fig. 2の実線に示すとおりであって、実験値ときわめてよい一致を示している。Table 1からわかるように、 L_{∞} は蛍光体の種類および容器の形状に関係した定数であり、 K は、容器の形状のみにより決められる。一方、発光強度の絶対測定をおこなった結果、ガラス球の場合、トリチウムガス圧0.28気圧で44.3 μ -Lambertであった。この値を(3)式に入れ、最大発光強度(L_{∞})を求めると、約160 μ -Lambertとなる。

Table 1 Calculated values of L_{∞} and K at various conditions

Phosphor	Shape	L_{∞}	K
hex-5 ZnS·5 CdS: Ag:Cl	5 mmφ cylinder	5.01	0.87
cubic-ZnS:Cu:Cl	5 mmφ cylinder	3.96	0.87
cubic-ZnS:Cu:Cl	9 mmφ globe	2.52	1.15

さらに、発光強度の経時変化の測定をおこなったが、現在まで約3箇月間には、輝度の減少は認められない。これは、蛍光体結晶が、トリチウム β 線では、ほとんど損傷を受けず、発光強度の経時変化は、トリチウムの崩壊に伴うものと考えられる。

以上の結果から、トリチウムガス刺激による発光光源は、標示用光源のほかに、安定な照度計、露出計の標準光源として利用できるものと期待される。

文 献

- 1) C.W. Wallhausen: Proc. Int. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, **15**, 307 (1955)
- 2) H. Heusinger: *Kerntechnik*, **3**, 67 (1961)
- 3) 小沢隆二. 電気学会雑誌: **82**, 1581 (1962)

Abstract

Emission Characteristics of ZnS-phosphors Excited by Tritium β -rays

Masamichi IKEDA*, Lyuji OZAWA**, Kazuto HATA***, Yoshiharu SHINOZAKI* and Gisuke MESHITSUKA*

*Tokyo Metropolitan Isotope Centre, **Dai Nippon Toryo Co., Ltd.,

***Dai Nippon Sinloih Co., Ltd.

Radium salt has been generally used for radioactive self-luminous materials. However, this type of self-luminous materials has many drawbacks; 1) the phosphor crystal is damaged

and deteriorated by α -rays and brightness decreases, 2) γ -rays from radium have high energy and very hazardous. Recently, self-luminous materials using β -emitter instead of radium have been studied. In this paper the emission characteristics of ZnS-phosphors excited by tritium gas is described.

As phosphors cubic-ZnS:Cu:Cl($\phi=8\mu$) and hex-5 ZnS $\cdot$ 5 CdS:Ag:Cl($\phi=6\mu$), which gave most intense emission, were used. Inner walls of a 9 mm ϕ glass globe and a 5 mm ϕ glass cylinder were coated with monolayer of phosphor crystals. After evacuating the globe or cylinder, tritium gas (>96%, 2c) was introduced by a Toepler pump. Emission intensity was measured by RCA-931 A photomultiplier tube.

The relationship between emission intensity and pressure of tritium gas is shown in Fig. 2. Emission intensity increased with increasing tritium gas pressure, but in high pressure region, the emission efficiency decreased gradually. The phenomena can be explained by the self-absorption of tritium β -rays, which is expressed by the following equation.

$$N=N_{\infty}(1-e^{-\mu x}) \quad (1)$$

N : apparent radioactivity

N_{∞} : apparent radioactivity at infinite thickness

μ : self-absorption coefficient

x : thickness of tritium gas

The emission intensity (L) is proportional to the apparent radioactivity (N).

Thus eq. (2) is obtained from eq. (1).

$$L=L_{\infty}(1-e^{-\mu x}) \quad (2)$$

The self-absorption coefficient (μ) is proportional to the pressure of tritium gas. On the other hand, the factor (x) can be assumed to be constant in our systems.

Therefore,

$$L=L_{\infty}(1-e^{-Kx}) \quad (3)$$

$$K=kx, \quad k=\mu/P$$

From the experimental results, L_{∞} and K were calculated using eq. (3) (Table 1).

L_{∞} depends on the kind of phosphors and the shape of glass tube, and K depends only on the shape of glass tube. Solid lines in Fig. 2 are calculated curves obtained from eq. (3) using K and L_{∞} values. It is clear that experimental results can be expressed by eq. (3).

The absolute measurement of the emission intensity was made at 0.28 atm of tritium gas and found to be 44.3 microlamberts. Putting the values in eq. (3), L_{∞} is calculated to be about 160 microlamberts for 9 mm ϕ cubic-ZnS:Cu:Cl.

No decrease in brightness due to phosphor deterioration has been observed during these three months.

The self-luminous lamp excited by tritium gas may be useful as a standard light source.