

LiF(Mg) の TL の紫外線エネルギー依存性

山 岡 義 人*

U. V. Light Energy Dependence on TL of LiF(Mg)

by Yoshito YAMAOKA

Summary: The changes in TL rate of LiF(Mg) crystals produced in Japan as a function of u. v. light exposure time were investigated to elucidate the decay by u. v. light. LiF crystals were exposed to u. v. light of an ultra high pressure type mercury lamp through various u. v. cut filters after X-ray preirradiation at the room temperature. It was indicated that the TL intensity decayed exponentially with three different half-value periods with respect to the u. v. light exposure dose. Investigating the relations between the half-value periods and the wavelengths of u. v. cut filters, it was found that the u. v. light energy dependence on TL occur in the range of $>3,250\text{\AA}$ in case of glow peak 1, and in the range of $>3,100\text{\AA}$ in case of glow peak 3. As the tendency seemed to have a correlation to the photoelectric effect and the optically stimulated exoelectron emission of LiF(Mg), some further examination were made.

1. ま え が き

D. C. Freeswick ら¹⁾は LiF 熱蛍光線量計用素子を室内蛍光灯のもとで取扱うと、その光の影響を受けることを報告し、とくに紫外線（以下 u. v. と略す）に対して注意すべきであると警告している。また W. G. Buckman ら²⁾は LiF (TLD-100) に特別な処理を施すことによって殺菌灯 u. v. 線量計がえられることを報告している。根本特殊化学精製 LiF (Mg) 結晶粉末 NTL-50P は放射線照射なしでは u. v. 光に対する感度は極めて低く、殆んど熱ルミネッセンス（以下 TL と略す）を現わさないが、X 線を照射したのちに u. v. 照射をおこなうと、各グローピークに著しい影響が現われることは著者が以前に報告³⁾した通りである。

LiF はその TL がガンマ線によってはもちろんのこと、このように X 線、紫外線によって影響を受ける。しかし可視光によっての影響についての報告は未だみない。このことは LiF の TL は波長の影響を受ける可能性、いかえればエネルギー依存性の存在の可能性を示唆するものである。

そこで、NTL-50P, LiF (Mg) 結晶粉末を用い、これに X 線を照射したのち、各種カットフィルタを使用して波長領域をかえた u. v. 光をこれに照射し、TL の u. v. 光エネ

* 理工学部物理学科教授 放射線物理学

ルギー依存性を調べてみた。その結果をつぎに報告する。

2. 実験方法

N TL-50P, LiF (Mg) 素子は 80~150 メッシュの結晶粉末の混合物で、使用前にメーカーの指示通り窒素ガス中で前処理をして前歴を消したものを使用した。これを厚さ 0.7 mm のポリエチレン製黒色不透明カプセルに入れ、30 KV_p, 15 mA, の強度の連続 X 線で 1m の距離から 2~6 分間照射した。

u. v. 光照射はウシオ電機(株)製超高圧水銀灯モデル USH-102D 型を用い、この光を内径 14 mm の浅い銀皿上に薄く広げた 30 mg の LiF 結晶粉末上に一様にあてた。u. v. 光強度は光源と試料の距離を加減することによって変化させる。またその強度測定は日本高周波(株)製モデル LPM-1 K 型レーザー出力計によっておこなった。

カットフィルタとしては東芝化成工業(株)製の UV-25, UV-27, UV-29, UV-31, UV-39, V-Y 45 および写真乾板ガラスを用い、それらを試料の約 10 cm 上方に固定して u. v. 光をさえぎり実験をおこなった。ここでたとえば UV-25 フィルタの意味は 2,500 Å 以下の波長の u. v. 光を 50% 透過し、80% さえぎる波長は約 2,700 Å で 200 Å 位の幅があるということである。また写真乾板ガラスは UV-32.5 に相当している。したがって V-Y 45 フィルタは可視域に属している。

使用した熱蛍光線量計はアロカ(株)製 TLR-101 C 型で、薄い加熱板上に置かれた銀皿入りの LiF 試料を加熱電球により加熱する方式のもので、昇温速度は 100~250°C 間で平均約 10°C/s である。この線量計の TL 出力はデジタルに読み取ることもできるし、また同時に X-Y 記銀計によって時間または温度の関数として TL グローブ曲線を記録するこ

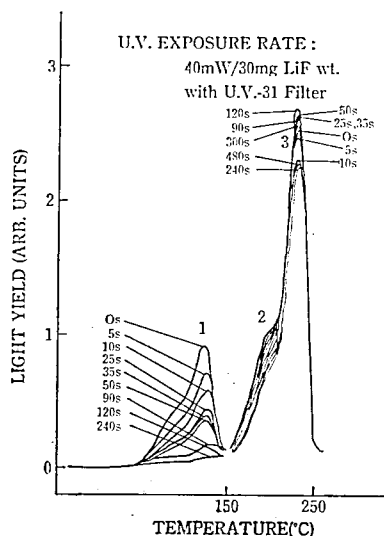


Fig. 1 TL light yield of LiF (Mg) as a function of heating temperature. The figures 1, 2 and 3 show the peak number. Decay of the glow peaks under u. v. light exposure through UV-31 filter after X-ray preirradiation are shown.

ともできる。

3. 実験結果

7種類のフィルタを用いた場合とフィルタを用いない場合と、合せて8組の実験結果のうちの1例として UV-31 フィルタを用いた場合のグロー曲線の変化の有様を Fig. 1 および Fig. 2 に示した。

これはあらかじめ 30 KV_p, 15 mA で 1 m の距離において2分間 X 線照射をおこなった LiF (Mg) 結晶粉末を 30 mg ずつ秤量し、内径 14 mm の浅い銀皿上に薄く広げたものに UV-31 フィルタを透した u. v. 光を図中に示したようにいろいろな時間照射したときのグロー曲線の変化を示したものである。実際にはもっと多くの異なった時間についてグロー曲線を求めたのであるが、図が複雑になるので示してない。u. v. 光照射率は Fig. 1 では 40 mW/30 mg LiF wt. (25.97 mW/cm²) であり、Fig. 2 では 160 mW/30 mg LiF wt. (103.88 mW/cm²) (以下 LiF wt. は省略する) である。Fig. 1 のグローピークの上または横に 1, 2 および 3 で示した数字はピーク番号である。Fig. 1 はピーク 1 の減衰を示したもので、u. v. 光を順次 0 s から 240 s またはそれ以上照射すると、そのピーク高が次第に消失していくことがわかる。図中ピーク 2 および 3 は参考のために描いたものである。

主ピークである第3ピーク高は以前³⁾にも報告したように、u. v. 光照射量が少ない間は上昇する傾向があるが、その照射量を増加すると減衰してくる。ピーク 2 についてもピーク 3 と類似の傾向がみられる。そこで Fig. 2 の場合は u. v. 光照射率を Fig. 1 の場合の4倍に増加し、フィルタを透した u. v. 光を図中に示したいろいろな時間照射したときのグロー曲線の変化を示したものである。この場合もっと多くの異なった時間について測定した結果があるが、図の複雑化を避けて示してない。ピーク 1 は参考のために描かれ

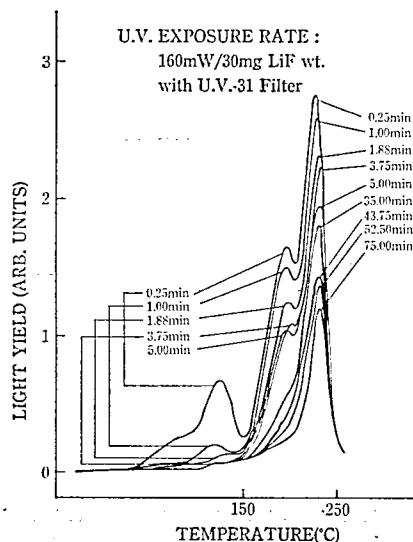


Fig. 2 TL light yield of LiF (Mg) as a function of heating temperature. Decay of the glow peaks under four times intense u. v. light exposure than in case of Fig. 1.

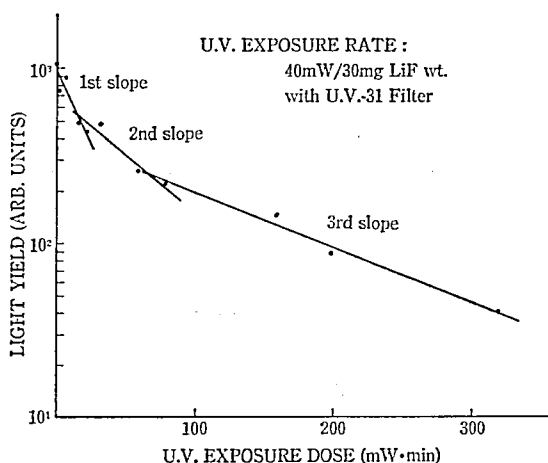


Fig. 3 Decay curves of the first peak of LiF (Mg) as a function of u.v. light exposure dose through UV-31 filter after X-ray preirradiation at the room temperature.

ている。

ピーク 1 の低温側の肩に小さなピークがみられるが、これは分離困難であるので、ピーク 1 の TL 発光量の積算は $0 \sim 150^\circ\text{C}$ 間でおこなった。この間の TL 発光量の対数値を縦軸に、u.v. 光照射量 (u.v. 光照射率と照射時間との積) を横軸にとると Fig. 3 のように TL 発光量が 3 つの指数関数曲線にしたがって減衰することがわかる。これが 3100 \AA 以下の波長を 50% 遮断したときの TL ピーク 1 の減衰の仕方であって、この関係から 3 段階に減衰して行くそれぞれの TL の減衰の半減期を計算することができる。

主ピーク 3 については、その低温側の肩にピーク 2 がのっていて TL 発光量を 150°C

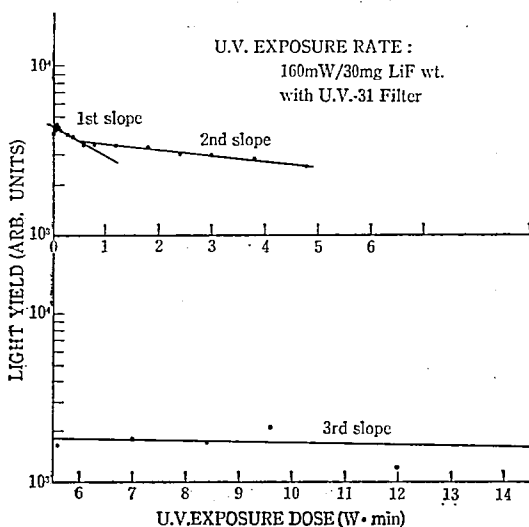


Fig. 4 Decay curves of the second plus third peaks of LiF (Mg) as a function of u.v. light exposure dose through UV-31 filter after X-ray preirradiation at the room temperature.

から 250°C の間積算するときにこれを分離することができない。またこの実験ではアロカ (株) 製熱蛍光線量計 TLR-101 C 型を使用した。この型はこのピーク 2 および 3 を一緒に含めて読み取るようになっている。この積算 TL 発光量の対数値を縦軸に、u. v. 光照射量を横軸にとると Fig. 4 のようになる。この場合も Fig. 3 のときと同様に TL は 3 つの指数関数曲線にしたがって減衰することがわかる。この関係からピーク 1 の場合と同様に 3 段階に減衰して行くそれぞれの TL 減衰の半減期を計算することが可能である。

4. 結果の検討ならびに吟味

Fig. 3 および Fig. 4 からピーク 1 およびピーク 2 と 3 の減衰の半減期を計算し、ほかの 7 組の実験についても同じように TL の減衰の半減期を求め、それらの値を縦軸に、各種フィルタの 50% 透過率の波長を横軸にとってそれらの間の関係を描くと、Fig. 5 およ

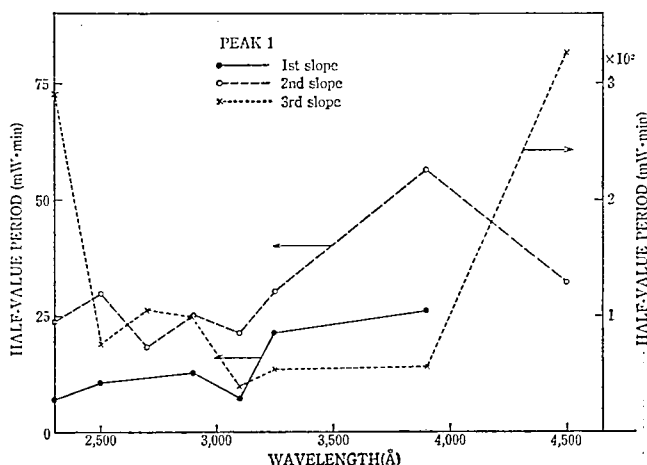


Fig. 5 Relation between half-value period and wavelength of the u. v. light exposed on TL glow peak 1.

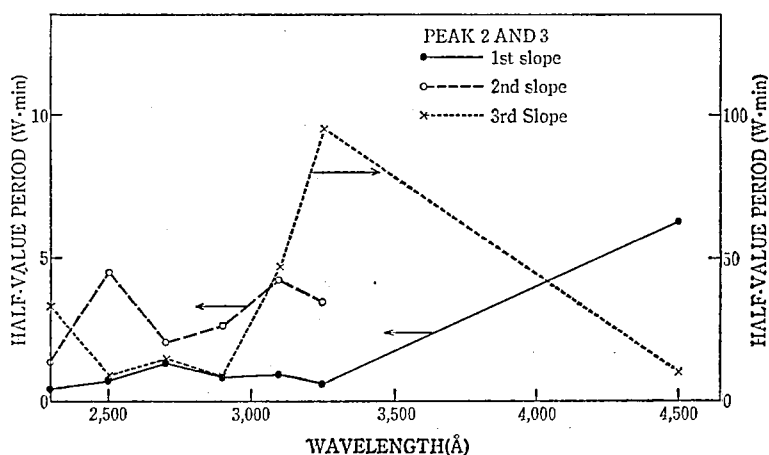


Fig. 6 Relation between half-value period and wavelength of the u. v. light exposed on TL glow peaks 2 and 3.

び Fig. 6 のようになった。両方の図において縦軸上にプロットした点は、フィルタを使用しない場合の値で、便宜上この位置にプロットしただけのものであり、波長が 2,300 Å であるという意味ではないことをお断りしておく。

ピーク 1 の場合 (Fig. 5) は 3,100 Å あたりまであまり大きな半減期の変化はみられないが、この点を超えてから半減期が急に大きくなっている。ピーク 2 および 3 の場合 (Fig. 6) においては第 1 スロープの半減期が 3,250 Å 以上の波長で大きくなっている。この場合は 3,900 Å に対する結果がマイナスになったので省略した。ピーク 1 の場合と違ってこんどは第 2 および第 3 スロープの半減期は 2,900 Å の点から増加を始めている。

これらの点を吟味するために、ウシオ電機(株)製超高压水銀灯モデル USH-102 D 型の発光スペクトル分布図をウシオ電機(株)のカタログを参考に描いてみると Fig. 7 のようになった。図でわかるようにこの高圧水銀灯からの u. v. 光は短波長としては 2,894 Å のピークが最後で、2,500 Å, 2,700 Å の波長のものは殆んど存在しない。したがってここまでの実験値の変動は u. v. 光の波長による影響ではなく、ほかの原因によるものと考えられる。また線スペクトル的に u. v. 光の相対分布が変動しているので各波長において u. v. 光照射率を一定にしてもその線質が異なってくる可能性がある。

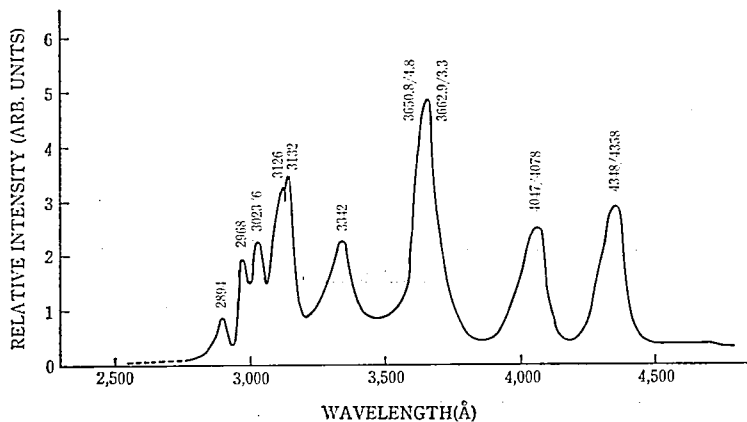


Fig. 7 Spectral distribution of relative intensity of the light emitted by USH-102D ultra high pressure type mercury lamp.

電子トラップの深さ E を求めるには、J. T. Randall and M. H. F. Wilkins⁴⁾ によって求められた近似式、

$$E \approx 25 k T_m \quad (1)$$

を利用することができる。ここで k はボルツマン定数、 T_m は絶対温度 (°K) で最大ピーク温度に相当する。この式は振動数因子を $2.9 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ とし誘導された近似式で、式中の数字はこの振動数因子に依存し、トラップごとに少しずつ異なるのでそれなりの精度しかもたないが、ここではそれで十分であるのでこの式を利用することにする。

最大ピーク温度は Fig. 1 および Fig. 2 に示したようなグロー曲線から求めることができる。今回の実験結果の平均をみると、グローピーク 1, 2 および 3 の最大ピーク温度はそれぞれ 120°C, 193°C および 230°C となった。そこで (1) 式に T_m の値としてそ

れぞれ 393°K (120°C), 466°K (193°C) および 503°K (230°C) を代入すると, E はそれぞれ, 0.85 eV, 1.00 eV および 1.08 eV となる。

一方 u. v. 光のエネルギー E_λ を計算するためには,

$$E_\lambda = hc/\lambda \quad (2)$$

を利用する。ここで h はプランク定数, c は光速, λ は u. v. 光の波長である。各種フィルタについて (2) 式により 50% 透過率の波長 (この波長を λ_{T50} で表わす) に対する E_λ eV の値を計算したものを Table 1 に示した。この E_λ がトラップに捕獲されている電子の励起エネルギーとなる。この励起エネルギーをみるとさきに求めた LiF (Mg) のグロー曲線の各最大ピーク温度に対するトラップの深さ E に比べて十分に大きい。それにも拘わらず Fig. 5 では 3,250 Å の点から半減期が増加し始め, Fig. 6 では 3,100 Å の点から半減期が増加し始めている。

Table 1. Various filters used and their λ_{T50} s and photon energy E_λ .

FILTER	λ_{T50} (Å)	E_λ (eV)	$(E_\lambda - 2.42^*)$ eV
UV-25	2,500	4.96	2.54
UV-27	2,700	4.60	2.18
UV-29	2,900	4.28	1.86
UV-31	3,100	4.00	1.58
dry plate glass	3,250	3.82	1.40
UV-39	3,900	3.18	0.76
V-Y 45	4,500	2.76	0.34

* figure 2.42 shows the work function of Li.

そこで光電子放出と何らかの関連を有するのではないかと考えて, リチウムの光電効果の仕事関数を調べてみると, 2.42 eV⁵⁾ であることがわかる。また以前に著者⁶⁾ が同じ NTL-50P, LiF (Mg) 素子を用い, 光刺激エキソ電子放出 (以下 OSEE と略す) について測定した際には, 光電子放出が約 3,200 Å あたりまで盛んで, それ以上の波長では急減すると同時に OSEE のピークが始まり, 4,100 Å にその最大値が現われることを示した。この光電子放出の影響をみるために Table 1 の一番右の欄に ($E_\lambda - 2.42$) の値を示した。これは LiF の表面から出る光電子の持ち逃げエネルギーに相当するが, 表面よりも深いところから放出される光電子では余分のエネルギーを必要とするので, 波長 3,200 Å あるいはそれ以下の波長で放出が停止される可能性が強い。

Fig. 5 および Fig. 6 においてはこのような波長を堺として TL 発光量の減衰の半減期が増加を始めている。すなわち, Fig. 5 では, 3,250 Å から半減期が増加を始め, Fig. 6 では, 3,100 Å から半減期が増加を始めている。

また Fig. 5 のピーク 1 の場合と Fig. 6 のピーク 3 の場合で半減期の増加の開始点が波長にして 150 Å, エネルギーにして 0.18 eV ずれているのは, 前者のトラップの深さは 0.85 eV で, 後者のそれは 1.08 eV であるので, 両者の間に 0.23 eV の差があり, 3,250 Å に相当する E_λ (3.82 eV) にこの差 0.23 eV を加えると 4.05 eV となって 3,100 Å に相当する E_λ (4.00 eV) を超えるからであると解釈することもできる。

なお, 3,250 Å および 3,100 Å の波長からより長い波長に向って LiF (Mg) の TL

発光量が u. v. 光エネルギー依存性を現わすのは、OSEE ピークが $4,100 \text{ \AA}$ を中心にそのすそを広げている有様と関連するが、これについてはこんごの実験にまたねばならない。

5. ま と め

本実験では7種類のフィルタを使用した場合とフィルタなしの場合と併せて8組の波長領域の異なった u. v. 光を、室温で X 線を照射した NTL-50 P, LiF (Mg) 粉末結晶に照射し、その TL 発光量の減衰を測定した。その結果グローピーク 1 および 2 と 3 がそれぞれ3つの指数関数曲線にしたがって減衰することがわかった。それらの減衰の半減期と u. v. 光の波長との関係を求めると、第1ピークに対しては半減期が $3,250 \text{ \AA}$ から増加を始め、第2および第3ピークに対しては半減期が $3,100 \text{ \AA}$ から増加を開始することがわかった。

そこで関連現象として光電効果と OSEE をとりあげ、以前の測定結果との一致点を調べ、比較的よい一致をみることができたので、一応これによって説明を試みた。しかし、これについては未だ実証がないので、こんごの研究にまたねばならない。

本論文は、著者の指導のもとに卒業研究をおこなった本学物理学科卒業生島根正彦君グループの実験データによるものが大きい。ここに謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) Freeswick, D.C. and Shambon, A. : Light Sensitivity of LiF Thermoluminescent Dosimeters, Health Physics, 19 [1], 65 (1970)
- 2) Buckman, W.G. and Payne, M.R. : Photostimulated Thermoluminescence of Lithium Fluoride as an Ultraviolet Radiation Dosimeter, Health Physics, 31 [6], 501 (1976)
- 3) 山岡義人 : LiF (Mg) の TL および TSEE におよぼす紫外線照射の影響, 明星大学研究紀要理工学部, 第18号, 13 (1982)
- 4) Randall, J.T. and Wilkins, M.H.F. : Phosphorescence and electron traps, Proc. R. Soc. A. 184, 366 (1945)
- 5) Gray D.E. and Billings B.H. et al. : American Institute of Physics Handbook, Third Edition, McGraw-Hill, Inc. (1972)
- 6) 山岡義人 : OSEE-TSEE 測定装置の試作とその実績, 明星大学研究紀要理工学部, 第19号, 31 (1983)