

# 宇宙線検出用熱ルミネセンスシート ( $\text{BaSO}_4:\text{Eu}$ ) における妨害放射光の除去

山本 勲, 富山 毅, 蜷川清隆\*, 久我 清,  
山下敬彦\*\*, 和田俱典\*\*

岡山理科大学 電子理学科

\*岡山理科大学 応用物理学科

\*\*岡山大学 理学部

(昭和58年9月20 受理)

## 要 旨

Photon counting method により, 宇宙線測定用 TL (Thermoluminescence)-sheet [ $\text{BaSO}_4:\text{Eu}$ ] の発光特性を調べた.

[I] 放射線照射による Signal light [SL] は, UV-域にピークがある.

[II] TL-sheet を長時間曝露したり, 手荒く扱った際に生ずる Obstructive light[OL] は, yellow と blue に peak がある.

[III] [OL] の原因である Obstructive radiation [OR] は  $\text{O}_2$  の関与する表面現象に起因する.

[IV-1] 窒素雰囲気中で加熱計測をすれば, [OR] を抑えることができる.

[IV-2] 適当なバンドパスフィルタを用いれば [OL] を減少させることができる.

TL-sheet を用いた高エネルギー宇宙線観測に対して, これら [IV-1, 2] の方法の導入は,

(a) “大量のシートも容易に取扱うことができる.”

(b) “[OR] による background を小さくするので, シャワーエネルギーの計測しきい値を下げるができる.”

等の点で有効である.

## 1. TL-sheet

熱ルミネセンスシート (TL-sheet) は高エネルギー宇宙線<sup>1)</sup>, 又は, 電子線の密度分布測定器<sup>2)</sup> として優れている. 主な特徴は, (1.) 照射線量と TL の直線性が良く, 直線性を保つ領域が広い, (2.) 繰り返し使用が可能で, 感度変化も少ない, (3.) フェーディング (温度による劣化) が少く, 長期露出に耐える<sup>3)</sup>. 等である. この為, 現在安価で再利用のできるこの TL-sheet のユニット (50cm×40cm) を, 多枚数, 広い範囲にわたって宇宙線に曝露させ, それを読み出して, 宇宙物理及び宇宙線物理の研究に使用する計画

がなされている。この目的で、多種の TL-sheet が、「TLC 開発グループ」<sup>3)</sup> によって開発された。最終的に開発されたシートは、BaSO<sub>4</sub> に Eu をドーピングさせ、アルミ薄板上に 100 μm の厚さで塗布されているものである。今回その特性を得る為、TL 特性測定システムを組み立て、加熱中の gas 雰囲気を変えて、TL シートのグロカーブ、及びその光のスペクトル計測を行った。

## 2. 装置

TL の測定は、TL-sheet を加熱して放出される光を光電子増倍管で捕えて行う。Fig. 1. に使用した測定システムの概略を示す。測定する試料(TL-sheet)は約 1cm<sup>2</sup>で、セラミックヒーターの上に直接置き、密封されたオーブンの中で加熱した。ヒーター温度は、ヒーターに密着させたクロメル-アルメル熱電対で測定し、ヒーターの温度が時間と共にリニアに上昇するように、heat-controller でヒーター電流を制御した。heat-controller として、S. Miono の開発した「TL アナライザー」<sup>4)</sup> を用いた。

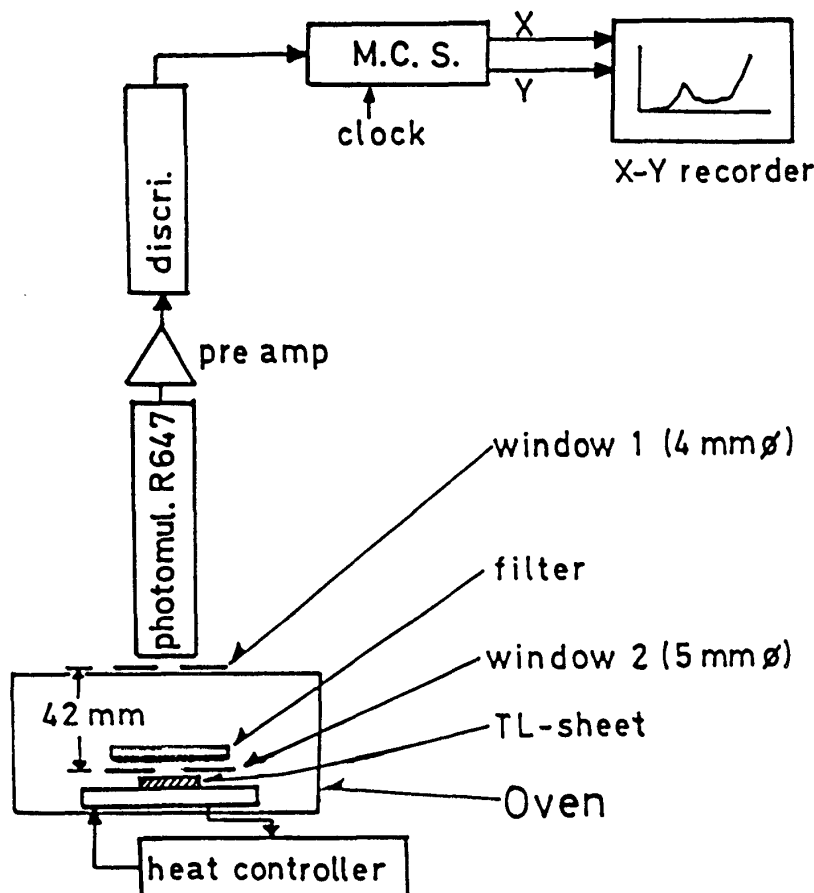


Fig. 1. 使用した装置の概略図。

Fig. 1. に見るように、TL シートから出た光は、コリメータ (window 1, 2) を通って光電子増倍管 (浜松ホトニクス R 647) に入り 800 [V] の印加電圧で増幅し、discrimi-

nator を通して M. C. S. (Multi-Channel Scaler) でフォトンカウンティングを行った。測定後、M. C. S. の Data を X-Y recorder に書かせた。

### 3. 典型的なグローカーブ

Fig. 2. に測定した TL-sheet の典型的なグローカーブを示す。この測定は Fig. 1. の装置で、光学フィルタを通さずに、空气中で加熱計測をすることにより得られたものである。カーブ A は、試料をアニール（約 700 K まで加熱）した後、100  $\mu$ Ci の <sup>90</sup>Sr  $\beta$  線を 1 分間照射（吸収線量は 1 rad）して得られたグローカーブで約 450 K にピークがある。これは、放射線照射によって電離され Trap に捕獲されていた電子が、加熱によって再び伝導帯にまで励起され、発光中心に衝突した時発光したものである。この発光を Signal radiation [SR] と呼ぶことにする。

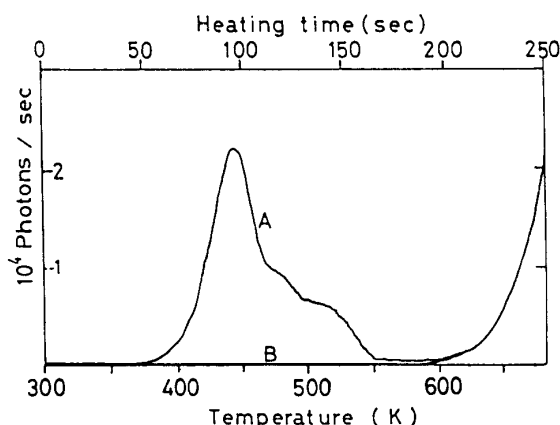


Fig. 2. 典型的な Ba SO<sub>4</sub>: Eu TL-sheet のグローカーブ。

カーブ B は、カーブ A の測定後 TL-sheet を室温まで冷却し、再び加熱した時に得られるグローカーブで、黒体放射に起因し 600 K を超えると顕著になる。以降のグローカーブ図に示されているカーブ B は、黒体放射量を意味する。

### 4. 「乗鞍シート」のグローカーブ

Fig. 3. は乗鞍岳（標高2770m）に設置し一年間宇宙線に曝露された TL-sheet [これらの TL-sheet は、以降「乗鞍シート」と呼ぶ。通常、乗鞍シート等宇宙線測定用の 1 ユニットは、50cm×40cm である。] のグローカーブである。この試料の宇宙線吸収線量は、露出した高さから概算して約 25 mrad と考えられる。このグローカーブは Fig. 2. と同様に、空气中で熱し、光学フィルタを通さずに得られたものである。これを同じスケールの Fig. 2. と比較すると、その形が違っているのがわかる。

Fig. 3. のカーブ A において、450 K をピークとして見られるはずの [SR] は、明確なピークにならない。M. C. S. の機能を使って、縦軸を 32 倍に拡大してこの部分を記録する

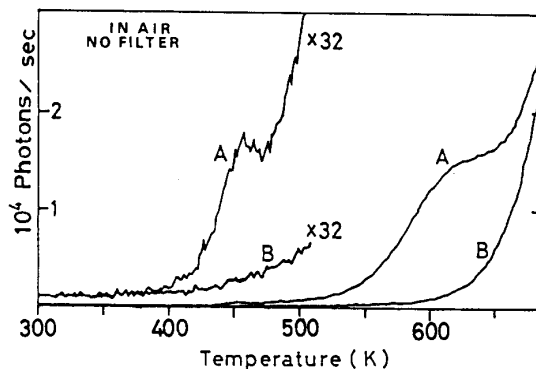


Fig. 3. 乗鞍山頂一年間宇宙線露出シートのグローカーブ。〔×32〕  
はカーブ A, B を一部、それぞれ32倍に拡大したもの。

と、小さなこぶが見られる。これが宇宙線曝露による [SR] である。

[SR] 以外に 620 K 付近にピークをもつ発光があり、[SR] はこのピークのすそに埋もれている。[SR] よりも高い温度に発光のピークがあるこの光は、TL-sheet の表面を摩擦したり、機械的にストレスを与えたり、又可視光の照射などの刺激によって生ずる事が、実験的に確められた。以後、この発光を Obstructive radiation [OR] と呼ぶ事にする。この [OR] は [SR] 同様、アニールすれば消える事が、Fig. 3. のカーブ B からわかる。一方、 $\text{CaCO}_3$  では、このような [OR] は、表面に酸素が吸着することによって引き起こされると考えられている<sup>5)</sup>。

## 5. TL-sheet が出す光のスペクトル

加熱によって TL シートが出す光は、

1. Signal light [SL]
2. Obstrutive light [OL]
3. 黒体輻射による light

の3つがある。[SL]、[OL] のスペクトルを調べる為、多数枚のガラスフィルタを差し換えることにより分光を行った。使用したガラスフィルタはそれぞれ、固有のカットオフ波長より長い波長のみを通す long pass filter である。

### 5-1 [SL] の分光

[SL] を分光して、その色（スペクトル）を調べる。

アニール後の表面刺激の与えられていないシートを使って  $^{90}\text{Sr}$   $\beta$  線を 1 分間照射し、フィルタを順に差し替えて [SL] を計測した。得られた [SL] のグローカーブから黒体輻射のグローカーブの値を差し引き、450 K での値を読んで順にプロットしたものを Fig. 4. に示す。このグラフは波長の長い方から短い方への積分型でプロットされて、実際の [SL] のスペクトルを見る為には、この方向に微分すればよい。

一方、[SL] の発光スペクトルは結晶内の電子状態を反映し、これは物質固有の性質で

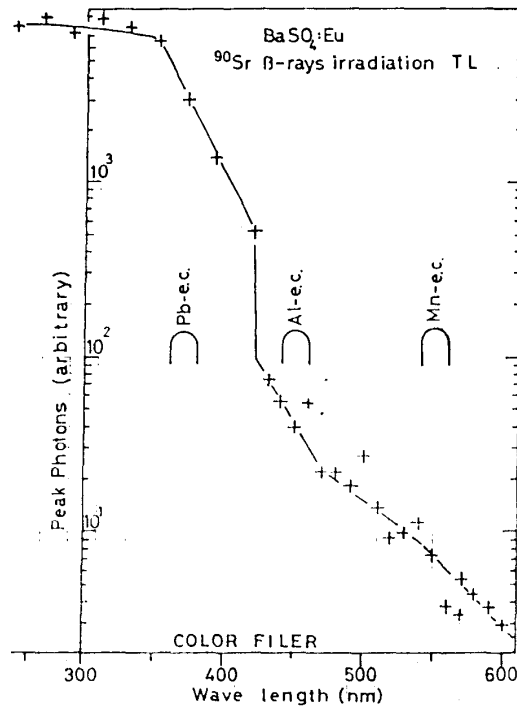


Fig. 4. [SL] 積分型分光特性.  $^{90}\text{Sr}$  使用による.  
 □ は典型的な発光中心を示す.

ある. 例えば  $\beta$  線励起による TL 発光と宇宙線励起による TL 発光が (同一の蛍光体でありながら) 違った色 (スペクトル) で発光する事は, TL の原理からは考えにくい<sup>6)</sup>.

### 5-2 [OL] の分光

[OL] の分光は乗鞍シートを使って行なった. 先ず前述の乗鞍シート (50cm×40cm) を約 1 cm<sup>2</sup> に細分割し, 同一条件の試料として必要な枚数だけ用意した. そしてこれらの試

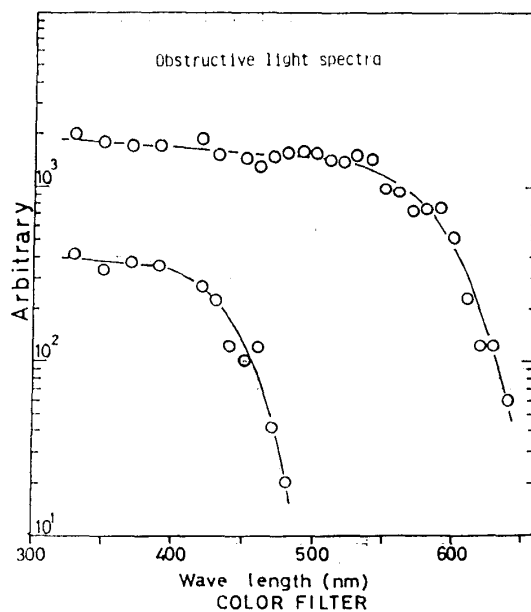


Fig. 5. [OL] 積分型分光特性. Intensity の弱い  
 発光測定は 7-59 フィルタを併用して計測.

料を1枚ずつフィルタを差し替えて分光測定を行なった。得られたグローカーブから、620 K (Fig. 3. より) における黒体輻射の量を差し引いた値をプロットしたものを Fig. 5. に示す。

さらに 500nm より波長の短い領域を詳しく調べる為にガラスフィルタと 7-59 バンドパスフィルタ [透過領域 300nm~500nm] を重ね合わせて測定した結果も Fig. 5. に同時にのせた。カーブは積分型ではあるが、450nm あたりにわずかな発光が見られる。

### 5-3 [SL] [OL] のスペクトル

上の Fig. 4., Fig. 5. の [SL], [OL] の分光された積分型のグラフをそれぞれ微分型にしてガウス近似させたものを Fig. 6. に示す。その結果を以下にまとめる。

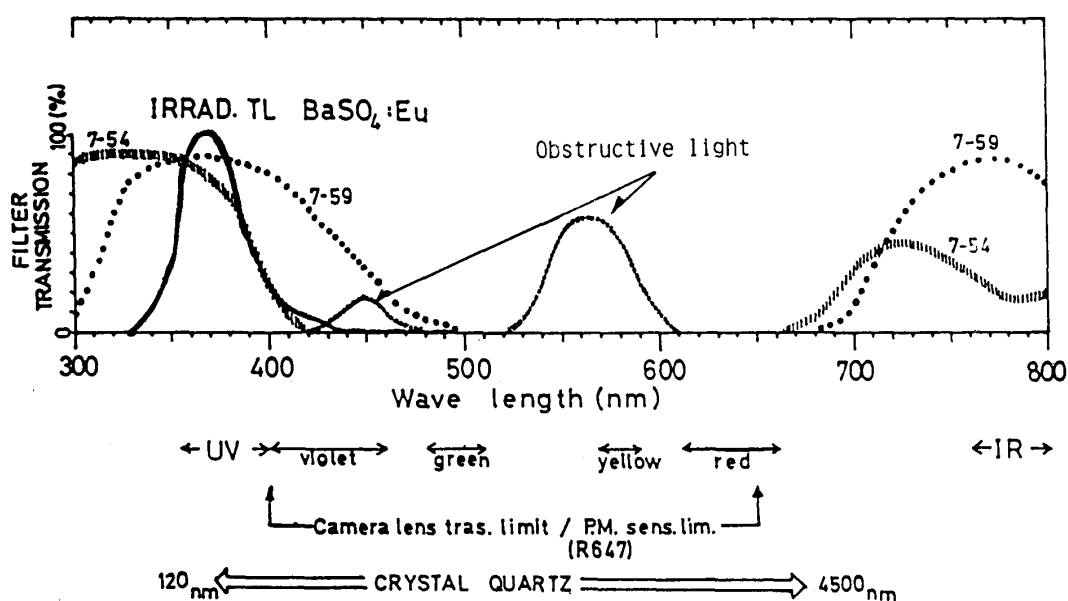


Fig. 6. BaSO<sub>4</sub>:Eu シート発光スペクトル。

[1] [SL] は、370nm 付近にピークを持つ帯スペクトルである。

[2] [OL] は、570nm 付近にピークがあり、又 450nm あたりにも弱いピークを持つ幅広い帯スペクトルである。

同様に Fig. 6. に参考として、7-54, 7-59バンドパスフィルタの透過特性を添えた。尚、使用した光電子増倍管の光電面は multi-alkalihalide である為、640nm より長い波長領域は測定していない。

上の [1], [2] の結果から、[OL] の波長領域は通さず [SL] の波長領域のみを通すバンドパスフィルタを使えば、[OL] を減少させる事が予想できる。Fig. 7. に、7-54 バンドパスフィルタを使って得た乗鞍シートのグローカーブを示す。図の×32のカーブは縦軸を32倍に拡大して記録したものである。

620 K にピークがある [OL] は少なくなくなってほとんど見られなくなった。この為、450 K にピークのある [SL] の山は明瞭に観測された。ピークの高さは、フィルタの透過率により80%くらいになった。

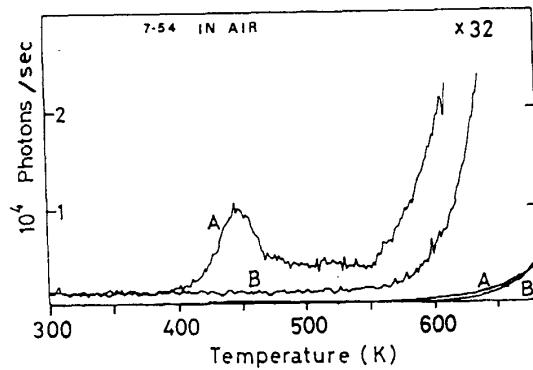


Fig. 7. 7-54フィルタを用いた大気中でのグローカーブ。  
[乗鞍山頂一年間露出シート]

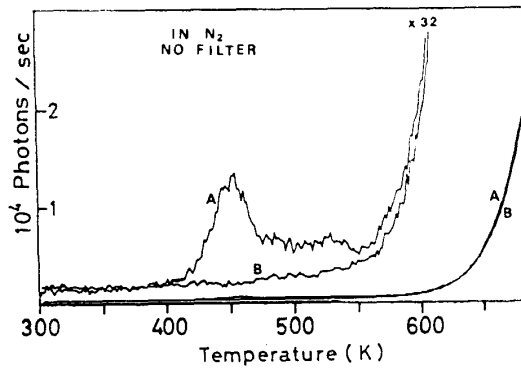


Fig. 8. 窒素雰囲気中でのグローカーブ。(フィルタなし)  
[Fig. 7. と同一条件シート]

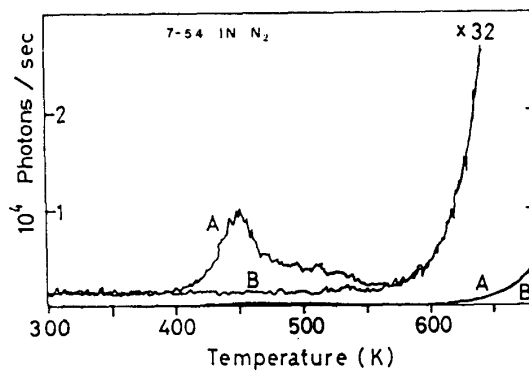


Fig. 9. 窒素雰囲気中でのグローカーブ。(7-54バンドパスフィルタを併用) [Fig. 7. と同一条件シート]

### 6. 加熱時の gas 雰囲気

今まで、TL 測定は空気中で行った。加熱時の gas 雰囲気の影響を調べる為、前述の乗鞍シートを窒素雰囲気中で加熱して測定した。得られたグローカーブを Fig. 8. に示す。Fig. 3. と比較すると、[OR] はほとんど見られず、[SR] は窒素をオープンに満たしたことによる影響は受けず、そのピークは明瞭に見られる。結果として、Fig. 7. (7-54 in Air)

と同様の効果が得られた。620 Kでの発光 [OR] は Fig. 3. のその約 4% に抑えられた。Ar, CO<sub>2</sub>, PR-gas をオープンに満たした場合にも、窒素 gas を満たした場合と同様に [OR] を抑えることが出来た。さらに、Fig. 9. は窒素雰囲気、且つ 7-54 バンドパスフィルタ ([SL] の波長領域のみ通す) を重ね合わせて測定した場合のグローカーブである。[SL] のピークはフィルタの透過率で少し低くなる。620 Kでの [OR] はほぼ完全 (約 2%) に抑えられ、さらに黒体放射は約 10% に抑えられた。

以上窒素 gas 等をオープンに満たしたり、バンドパスフィルタを使うことにより [OR] の除去を効果的に行なえる事が明らかになった。

これにより、[OR] の影響を気にせずに TL を測定する事が可能となった。

## 7. 結 論

今回の報告は、TL の物性研究の為の測定ではなく、「宇宙線測定用 TL-sheet 2次元 (平面) reader」を製作する為に必要な、TL-sheet の基礎特性研究の結果である。TL-sheet の製作は全て「TLC 開発グループ」<sup>3)</sup> から供与されたものである為、シートの改良、又は Eu 以外のものをドーピングしたシートの計測等を行なわなかった。

TL-sheet [BaSO<sub>4</sub>: Eu] の基礎測定の結果は次の 2つに要約出来る。

I) [SL] のスペクトルは紫外域にある。

II) 窒素雰囲気での加熱により [OR] を抑える事が出来る。又は適当なフィルタを使用する事により、[OL] を減少させる事が出来る。

これらの研究結果は TL-sheet を大量、且つ容易に取り扱える事を保証するもので、実用上での大きな成果になると思われる。当然、高エネルギー宇宙線の観測に際しても、シャワーエネルギーの低いところまでの計測が可能になる。

又、今後の TL-sheet に関する開発計画としては、TV-camera を用いた大面積読み出しシステムの実用化を予定している。

本研究を遂行するにあたり、TLC 開発グループ [埼玉大、東大宇宙線研、大阪市立大、足利工大、早稲田大等] には、TL-sheet 及び資料提供に協力していただいた。又、山下信彦博士 [岡山大理] には固体発光についての有益な議論をしていただいただけでなく、TL 分光に対しても尽力を惜しまず御協力いただいた。本学今枝国之助教授と嶽鐘二博士 [神戸大理] には本研究を推進していく上で大いなる励ましをいただいた。宮井裕史君、齊藤琢巳君には計測装置の製作及び測定に従事していただいた。

以上の皆様に、謝意を表します。



**References**

- 1) S. Dake, et. al.: Proc. of the 17th Int. conf. on Cosmic Ray, Paris (1981), Vol. 5, 46.
- 2) S. Miono: Nucl. Instr. and Meth. 128 (1975) 173.
- 3) Y. Okamoto, et. al.: to be submitted to Nucl. Instr. and Meth.
- 4) S. Miono and M. Ohta: Proc. of the 16th Int. Conf. on Cosmic Ray, Kyoto (1979), Vol. 2, 263.
- 5) C. Bettinali and G. Ferraresso: in "Thermoluminescence of Geological Materials: (edited by D. J. McDougall; Academic Press, London and New York, 1968) Chap. 3.6 pp 143-152.
- 6) N. Yamashita: private communications.

SCREENING OUT OBSTRUCTIVE RADIATION FROM  
THERMOLUMINESCENCE SHEETS ( $\text{BaSO}_4 : \text{Eu}$ )  
EXPOSED TO COSMIC RAYS

Isao YAMAMOTO, Tsuyoshi TOMIYAMA, Kiyotaka NINAGAWA\*  
Kiyoshi KUGA, Yoshihiko YAMASHITA\*\* and Tomonori WADA\*\*

*Department of Electronic Science, Okayama University  
of Science, Ridai-cho 1-1 Okayama 700 JAPAN*

*\* Department of Applied Physics, Okayama University  
of Science, Ridai-cho 1-1 Okayama 700 JAPAN*

*\*\* Faculty of Science, Okayama University,  
Tsushima 1-1 Okayama 700 JAPAN*

(Received September 20, 1983)

### Abstract

We have investigated emission light characteristics of the thermoluminescence [TL]-sheet [ $\text{BaSO}_4 : \text{Eu}$ ]. More, we have introduced the rejecting methods for the obstructive light [OL] of these sheets.

[I] Signal light [SL] emission spectra due to high energy  $\gamma$ ,  $\beta$  and cosmic rays irradiations were observed in ultra-violet regions (that peak is about 370 nm).

[II] In the case of rough treatments of TL-sheets or locating them for long time, we observed the OL emission in addition to the SL emission. These OL spectra are two bands of 570 nm (yellow) and 450 nm (blue).

[III] The OL emission due to the obstructive radiation [OR] is caused by surface phenomena concerned with  $\text{O}_2$  for the TL-sheet [ $\text{BaSO}_4 : \text{Eu}$ ].

[IV-1] The glow curves, in which the OR emission suppressed are obtained in a nitrogen atmosphere.

[IV-2] By using moderate band pass filter, the OL can be cut easily.

For high energy cosmic ray researches by using TL-sheets, these methods [IV-1, 2] are effective as follows;

a) One can treat easily TL-sheets in large quantities.

b) Deminishing backgrounds due to the OR emission, one can observe shower energies of lower threshold values.