

熱ルミネッセンス 2次元読み取りシステム

山本 勲, 富山 毅, 今枝国之助, 久我 清, 蛭川清隆*,
中村改樹*, 高野安正**, 山下敬彦***, 和田俱典***

岡山理科大学 電子理学教室

*岡山理科大学 応用物理学教室

**岡山理科大学 機械理学教室

***岡山大学 理学部 物理教室

(昭和59年9月27日受理)

要 旨

熱ルミネッセンス [TL] 2次元読み取りシステムを開発した。このシステムを使った応用として、人工の TL-sheet ($\text{BaSO}_4:\text{Eu}$) を用いて高エネルギー宇宙線シャワーの検出を行なった例と、天然の試料(鍾乳石, 花崗岩)の TL 空間分布を測定した例を示す。

1. はじめに

熱ルミネッセンス [TL] は、今まで $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$, CaF_2 などの人工 TL 素子を使っての放射線管理や、石英などの天然鉱物を使っての年代測定など幅広く応用されている。これらの測定に使われてきた TL 測定法は、加熱された試料から出る光を一括して光電子増倍管で検出する方法である。この方法では、試料面が不均一な構造をもった物質の場合、構造に対応する TL 強度分布は簡単には得られない。又、空間強度分布を持った放射線の照射を受けた TL-sheet の場合にも、放射線強度に対応する TL 強度分布を一挙に求めることは困難である。

2次元構造をもっている TL の観測については、光電子増倍管のかわりに、写真フィルムを用いることによって行なわれてきている¹⁾。しかし試料の直接写真撮影法は、TL 強度の大きい、大線量照射を受けたものに限られ、TL 強度の小さい微弱線量計測や年代測定には適していない。微弱な光を扱う場合、イメージ・インテンシファイヤー [I. I.] で増幅して写真撮影した結果が報告されている²⁾。この方法は微弱な光を検出できるので、幅広い応用の可能性を含んでいるが、写真撮影は定量化を行う場合、撮影・現像した後フィルムをフォトメータで読みとらなければならない。又、その特性は感光材料に依存し、ダイナミックレンジも 10^2 程度に限られる。

今回我々は、I. I. の出力画像を TV-camera で撮影し、さらに TV-camera の出力信号を高速 ADC でデジタル化し、2次元画像メモリ(フレームメモリ)に加算記録するこ

とのできる TL 2次元読み取りシステムを製作した。本論文ではこのシステムの特性及び各種応用例について報告する。

2. 2次元読み取りシステム

TL の 2次元読み取りシステムの全体図を Fig. 1. に示す。TL の発光信号が各系を経由しながら取り込まれ、処理されるまで、(i) 試料加熱系、(ii) 光学系、(iii) I. I., (iv) TV-camera 系、(v) データ収録と処理系について述べる。

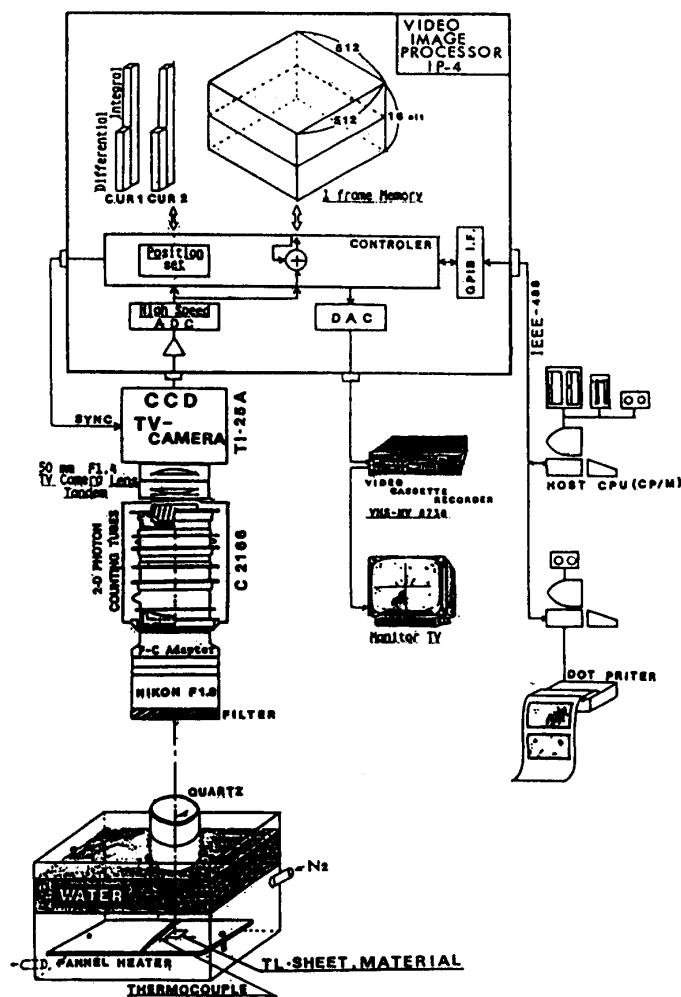


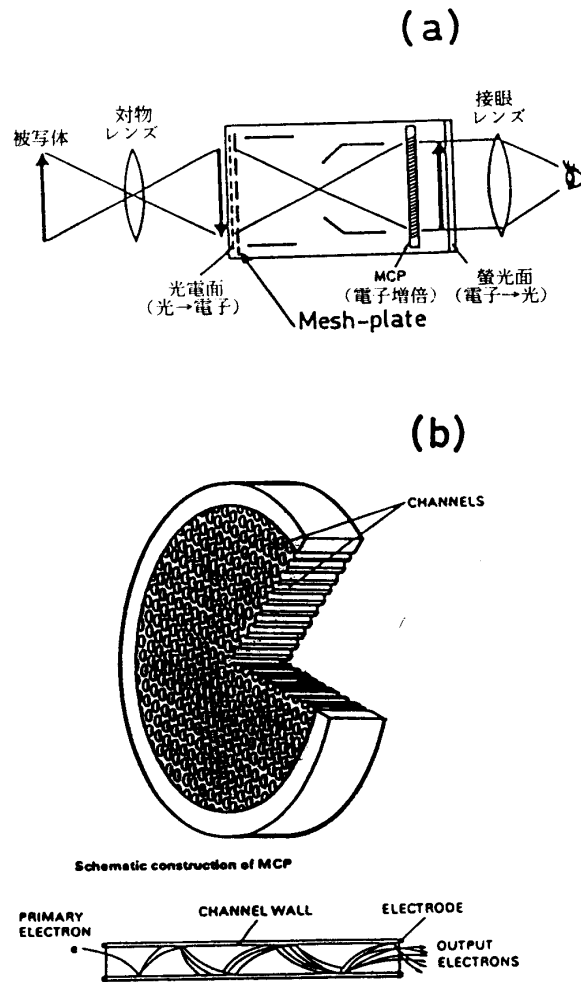
Fig. 1. 熱ルミネッセンス 2次元読み取りシステム。

(i) 試料を加熱する heater は、10 cm×30 cm の panel heater で、温度は約 3°C/sec で時間に対してリニアに上昇させた。偽グローを抑える為に、オープンには窒素ガスを流すことができ³⁾、測定は quartz の窓を通して行なった。

(ii) 加熱によって出てきた試料の TL は、フィルターを通し、カメラ用レンズにより I. I. の入力部に結像させる。光学フィルターは、偽グローを除去し、試料の発光波長に合うように選んだ。レンズの選択は、微弱光を効率よく測定するために試料に対してできる

だけ大きい立体角で集光できること，測定したい光の波長に対し透過率のよいこと，又球面収差や像の歪の少ない事等を考慮した。

(iii) 我々が用いた I.I. は Fig. 2. に示すように，光電面，メッシュ電極，電子レンズ，マイクロチャンネルプレート [MCP]，及び蛍光面で構成された 2次元光電子増倍管である。Fig. 2a. に構造を示す。光電面に像を結ばせると，像の明るさに応じた光電子が飛び出す。この光電子の“像”は，電子レンズによって MCP の入力面に結像される。MCP は Fig. 2b. に示すように，直径 15 mmφ，厚さ 0.5 mm で，入力面と出力面との間に数 kV の直流電圧がかけられており，チャンネルと呼ばれる直径 12 μmφ の穴が約 10⁶ 個程規則正しくあいている。入射した電子はチャンネル内で加速され，壁面での衝突をくり返して増倍され，MCP の出力面にでる。



ことができる。

MCP の出力面から出た電子は加速され、蛍光面に衝突・発光する。蛍光面の材料は、発光効率がよく、残光時間の短い P-20 (550 nm の発光) が用いられている。尚、光電面はマルチアルカリのものを用いた。又、微弱な光を捉え、フォトンカウンティング法ができるように、MCP を 2 段組にし、 10^8 までの利得がとれるものを使用した。I. I. は、光電子増倍管に比較し構造が複雑であり、実効的な量子効率 η は光電面の量子光率の約 $\frac{1}{4}$ である。つまり、光電面の量子効率は通常の光電子増倍管と同様のエネルギー依存性を示すが、光電面から出た電子がメッシュ電極で一部吸収されたり、MCP のチャンネル入口以外の部分に当たって吸収される為である。例えば 400 nm の光子が I. I. に入射した場合、光電面の量子効率は約 20% であるから、I. I. 全体の効率としては約 5% に低下する。

(iv) I. I. の蛍光面の像を TV-camera で撮影する。I. I. の蛍光面の発光波長は 550 nm (max) なので、TV-camera は、可視光用のもので十分である。撮像部は、低残像で、図形歪やブルーミングのない、均一性のよい、産業用白黒 CCD-TV camera (NEC・TI-25A) を使用した。I. I. と TV-camera との接続は、I. I. の出力面の発光を効率よく導く為に、TV-camera 用レンズをタンデム形式にした。

(v) Video-Image-Processor (IP-4) は、TV 画面を 512×512 の画素に分割し、各画素に対応した画像メモリを持ち、1 画素は 16 bit の容量をもつ。画像信号の処理及び速度は通常の家用的 TV-system と同じ画像信号形式 (ラスタスキャン方式, 30 画面/sec) にあわせてある。画像信号は、各画素毎に 8 bit の高速 AD 変換を行い、画像メモリに加算し蓄えられる。画像蓄積の start/stop は任意にできるので、TL の出始めで start し、TL の終了頃で stop すればよい。このようにすると、画像メモリにはグローカーブの面積に相当するものが各画素毎に蓄積され、TL-image が形成される。蓄積された画像データは、host-computer に転送され、フロッピー・ディスク、MT 等に記録・保存したり、濃淡画像をハード・コピーで出力するとか、ある線にそった強度曲線を得る等の各種のデータ処理ができる。又、使用した Video-Image-Processor は、特定の画素を指定して、加算していく途中のデータを記憶できる機能もあるのでその画素におけるグローカーブに相当するものが得られる。さらに、家庭用の画像信号形式に合わせてある為、測定中の画像は家庭用のビデオ・レコーダに記録し、直接モニター TV でみることができる。

3. イメージインテンシファイヤー [I. I.] の特性

ここでは、今回の測定系で用いた I. I. の特性について述べる。今回使用した I. I. (ホトニイメージングヘッド C 2166) は、ダークノイズが少く (0.2 cps/mm^2)、ゲインが高くとれる等の特徴があり、 $10^0 \sim 10^{10} \text{ photon/mm}^2 \cdot \text{sec}$ の間の入力光を撮像可能である。連続光領域 ($10^6 \sim 10^{10} \text{ photon/mm}^2 \cdot \text{sec}$) ではアナログイメージを撮ることができ、さらに暗い photon counting 領域 ($10^6 \text{ photon/mm}^2 \cdot \text{sec}$ 以下) では、電子増倍率を 10^6 以上にすることにより、入射単一光子を輝点 (Single Photon Spot=[SPS]) として捉える

ことができる。

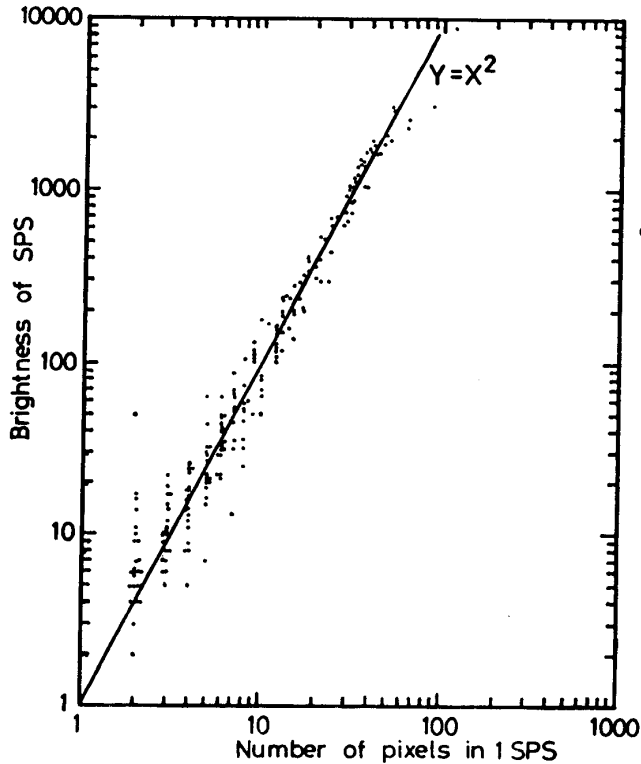


Fig. 3a. Single Photon Spot (SPS) の特性.
SPS の輝度と広がり関係. 実線は
 $Y=X^2$ の直線を示している.

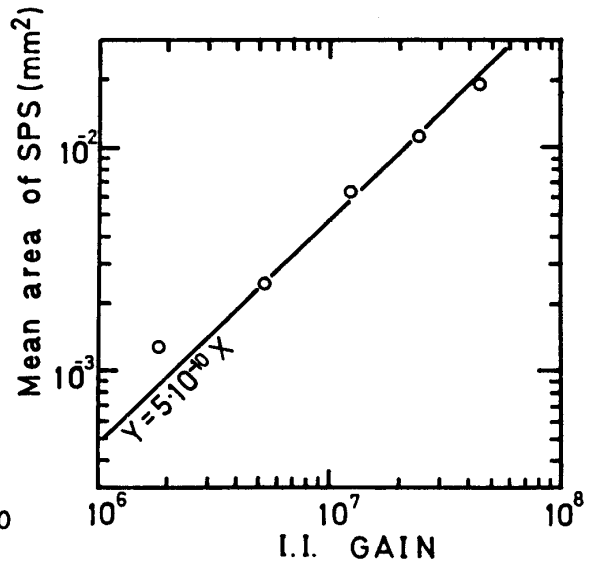


Fig. 3b. I. I. のゲインと SPS の平均的広
がりの関係. 実線は $Y=5 \times 10^{-5} X$
の直線を示している.

この SPS の性質を Fig. 1. に示されたシステムを使って、もう少し詳しく調べた。I. I. のゲインを大きくすると、SPS の輝度が大きくなると共に SPS の広がりも増す。この SPS の輝度と広がり関係を調べた結果を Fig. 3a. に示す。この図から、

$$\text{SPS の輝度} \propto (\text{SPS の占める画素数})^2$$

の関係がわかる。但し、1画素は $17 \mu\text{m} \times 14 \mu\text{m}$ である。さらに、I. I. のゲインと SPS の平均的広がりとの関係を Fig. 3b. に示す。SPS の平均的広がりとはゲインにほぼ比例して大きくなる。これらの関係から空間分解能をよくする方法のひとつとして MCP のゲインを下げる事が考えられる。しかし、TV-camera が輝点を感じる為にはある程度の輝度が必要であり、単純にゲインを下げることはできない。

システム全体の空間分解能を調べるために、I. I. を取り去り、レンズ系と TV-camera を組み合わせたシステムで空間分解能を調べた。その結果 TV-camera の入力面での分解能は 30 lp/mm 以上であった。次に I. I. を組み合わせて空間分解能を調べた。I. I. のゲインを 5×10^3 倍にして、テストパターン (27 mR 照射された X-ray film) を調べた結果は 12 lp/mm であった。一方 I. I. ゲインを 10^7 倍にして同様の測定を行った例を Fig. 4. に示す。この図で横軸は I. I. の出力面での長さであり、縦軸は輝度である。I. I. の入力面

と出力面の像の倍率は1であり、I.I.の出力面とTV-camera間のリレーレンズも等倍にセットしている。従ってこの図からI.I.の出力面での空間分解能は6 lp/mmであることが読み取れる。但しこの測定ではTL-sheetにX線を27 mR照射したテストパターンを使用した。これらの結果からシステム全体の空間分解能はI.I.で規定されることがわかる。

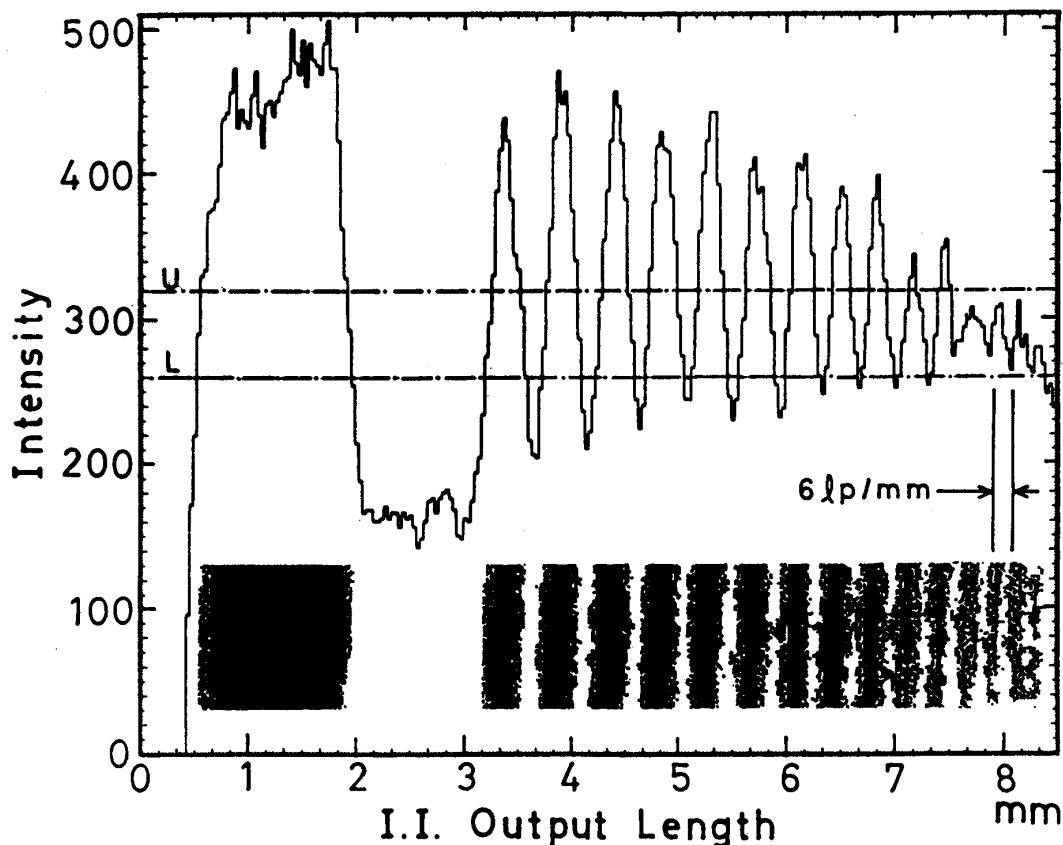


Fig. 4. 分解能テストの例。I.I.のゲインが 10^7 の場合のI.I.出力面での分解能を示している。(TV-cameraの分解能は30 lp/mm以上である。)

4. システムの応用

既に Fig. 4. で示したように、TV-cameraに取り込まれた画像にいくらかの処理を施したのち、プリンターに出力したものは、TLの分布を視覚的に理解するのに有効である。場合によっては、単なる数値的な表現では見出しにくい情報も読みとることができる。

この論文での濃淡パターンのプリンター打ち出し図は、特にことわらない限り以下のように扱う。まず、画像データのうち、上限レベルU、下限レベルL(参照例として Fig. 4. 及び Fig. 5b.) との間を適当な段階に区分し、取り込まれたデータを表現するのに適切な階調でプリントアウトする。今回の場合、等間隔の10階調で表現している。又、画素データの値が大きいとき白で表現する方法と黒で表現する方法があるが、この論文では後者を用いた。

下限レベル L を設定して、それ以下の値をカットするのは種々の原因によるノイズに眼を奪われないためである。一回のデータを幾組もの $U \cdot L$ で設定してプリントアウトし、情報の読み落としのないようにした。

プリンター出力は系全体を調整して、縦横で拡大率が変らないようにしてある。縦横共に 256 画素を表現している。元の画像データは 512×512 の画素から成り立っているのをこれを 4 枚の画に分けてプリントアウトする方法と、もとの 2×2 の画素を合併して新しく 256×256 の画像を作って、1 枚の画に出力する方法とがとられた。この論文では後者の方法を標準としている。

4-1 β -線吸収線量の空間分布

物質に照射された放射線が、物質中でいかに散乱・吸収されるかは、医療現場や放射線管理等の技術面で、物質の特性を調べる物理面で、強く関心が持たれている。 β -線の場合、その吸収線量が物質の深さに応じていかに変化するかを直視的に求めるのに適当なので、以下の実験を行った。

原理的には、線源により照射された TL 物質のブロックを適当な断面で薄片に切り出し、その断面を読み取ればよい。これを簡便にするには、シート状の TL 物質の側面から線源で照射したものを細片にしないで上面からそのまま TL の空間分布を読み取る。実際には、隣接した物質（空気や支持材）による β -線の散乱等の効果を避ける為に同一材の TL-sheet ($\text{BaSO}_4 : \text{Eu}$, テフロン充填, sheet の厚みは 0.3 mm) を 11 枚互に密着させて重ね横からディスク型の ^{90}Sr β -線源（直径約 10 mm, $100\mu\text{Ci}$ ）で 1 分間照射する。これを一枚ずつにはがして、その中央に相当する一枚をシステムで読み取る。

得られた 2 次元読みとり像を Fig. 5. に示す。ここで、深さの目盛 0 の線より右側に sheet が存在する。この図では、TL の発光強度分布が明確に表現されている。ひとつは、最初計画したように深さに応じた吸収線量が得られ、もうひとつは、線源が点状でもなく、一様な面分布でもないことの影響が現れている。なお Fig. 5. の (a) は 512×512 の元の画像の中央部分の 256×256 の画素をプリントアウトしたものである。

先にも述べたように、各画素のデータはフロッピー・ディスクに収録されているので目的に応じて read-out し、データ処理することができる。Fig. 5. の (b) には、一例として、放射線照射の軸に沿った線 (Fig. 5. の (a) の read out line) 上での TL の強度がグラフに示されている。つまり、この図は、sheet の吸収線量が深さと共にほぼ対数的に減少していることを示しており、その $1/e$ の長さとして、約 0.58 mm が得られた。

4-2 宇宙線高エネルギーシャワー検出への応用

高エネルギー粒子反応による電磁カスケードシャワーの検出器として、X-ray film や原子核乾板が用いられてきた。しかし、超高エネルギー反応をみるためには、超高エネルギー

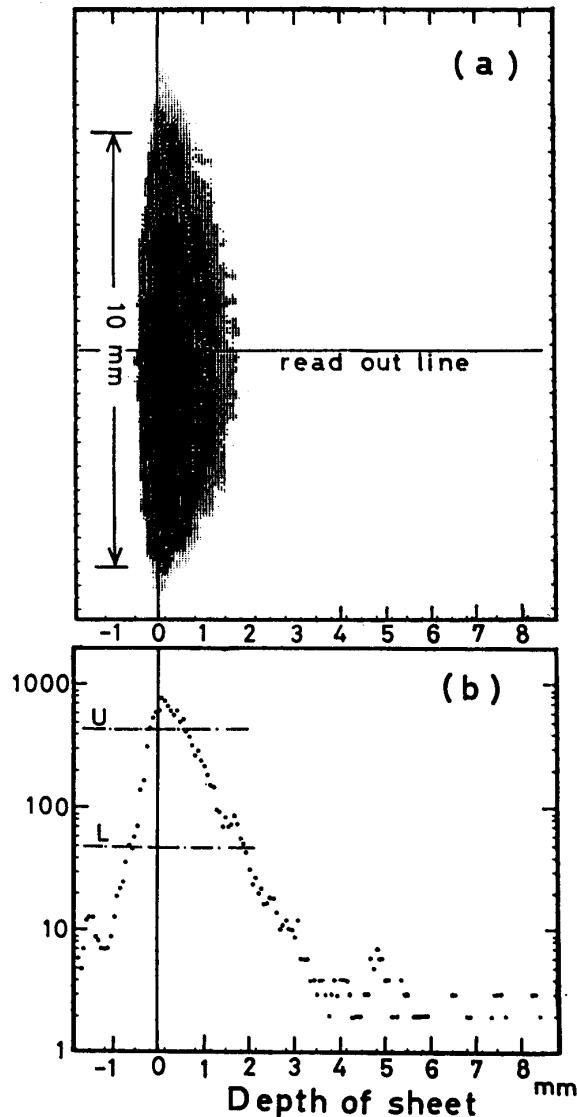


Fig. 5. β -線吸収線量の空間分布.

TL-sheet ($\text{BaSO}_4:\text{Eu}$) の側面から, β -線源 ($^{90}\text{Sr}-100\mu\text{Ci}$) で1分間照射したものを読みとった.

(a) TL 空間分布のプリンター出力.

(b) 照射の軸に沿った (read out line) 線上での深さ-TL 強度 (対数表示) 特性. いずれも, sheet は Depth 目盛の0より右側に存在する.

ギー宇宙線によるシャワーが $1\text{ TeV}\sim 10^3\text{ TeV}$ にわたり検出でき, 且つ大面積に設置するため安価である検出器の開発が不可欠である. そのひとつとして“TL-sheet”がある⁴⁾. この TL-sheet の Test のために, Emulsion chamber type に組立てた TL-calorimeter を富士山頂に約一年間設置した. この Test の最大の目標は X-ray film と同じように, TL-sheet から数 TeV のシャワーを読み取ることであった. TL-sheet は X-ray film と共に 1 cm 厚の鉛板 (cascade unit [C. U.] = 2) とでサンドイッチ状に5層積み重ねられ

た。この設置期間に低エネルギー宇宙線によるシャワー（TLの発光は微弱で、X-ray filmには感光していないと思われる）から数10 TeVにも達するシャワーが sheets や films に入射することになる。又、高エネルギーシャワーは何枚もの鉛板で発達・減衰することが知られている。この Test calorimeter を解体した後、X-ray film は直に現像される。高エネルギーシャワーが入射したところは X-ray film では黒化している。この黒化度をフォトメトリーで読み取り、シャワーのエネルギー値と入射場所を決定する。今回の TL 読み取り作業は、40cm×50cm の X-ray film で検出されたシャワーの場所に対応する附近を 40cm×50cm の TL-sheet から 2cm×3cm の area 分切り取り、2次元画像読み取りシステム（Fig. 1. に示したシステムの前期段階であり、TV-camera 等が違っている。）を用いて行った。その結果の一例を Fig. 6. に示す。Fig. 6. はシャワーが最高に発達した層（10 C.U.）の TL 強度分布である。この area には X-ray film の黒化は2箇所箇所で、フォトメトリーから、 ~ 20 TeV、 ~ 13 TeV と読まれており、TL-sheet では図の A, B が夫々対応している。同様に他の層も X-ray film と照合しながら、2cm×3cm 切り取り、読み取った結果を Fig. 7. に示す。このシャワーは Fig. 6. の A に対するものである。読み取られた TL 相対強度は X-ray film の結果と良く一致し、20 TeV のカスケード曲線に fit していることがわかる。Fig. 6. 及び Fig. 7. に見られるように

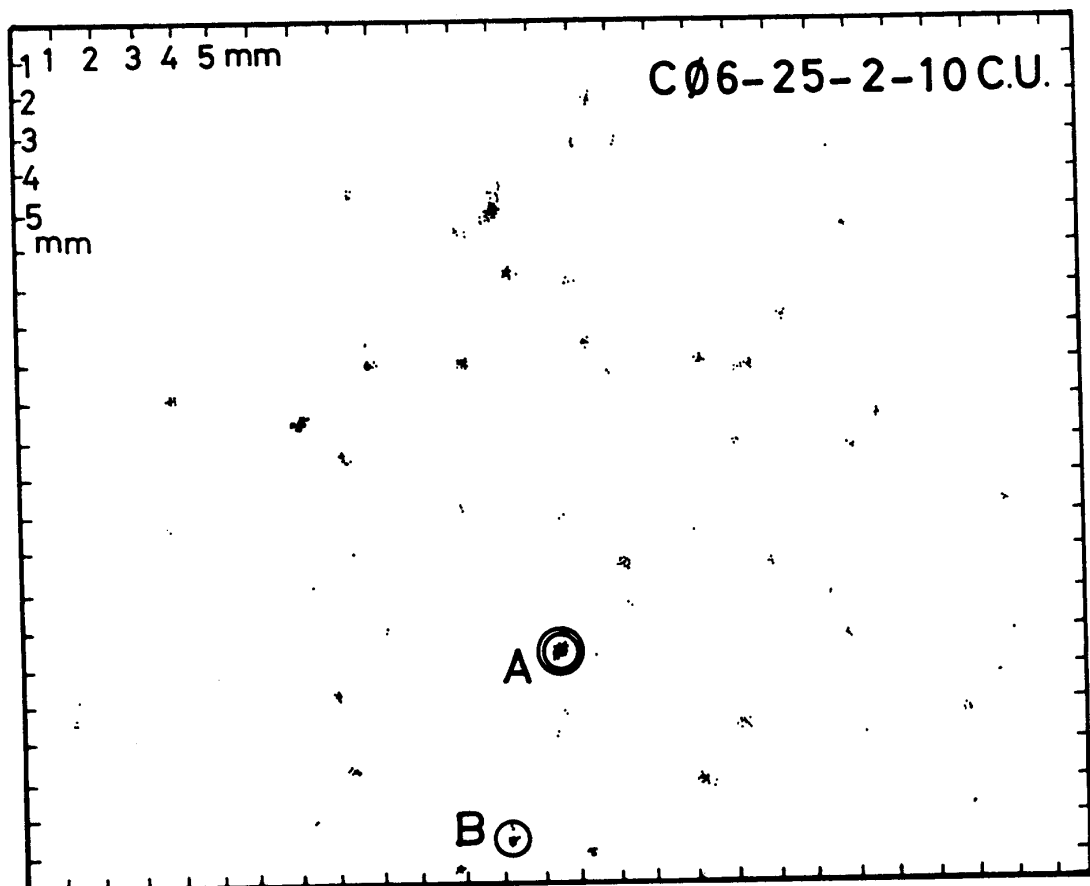


Fig. 6. 高エネルギーシャワーを TL-sheet から読み取った例。A, B の○で囲った発光が X-ray film に対応する。他の発光は X-ray film に感光していない。

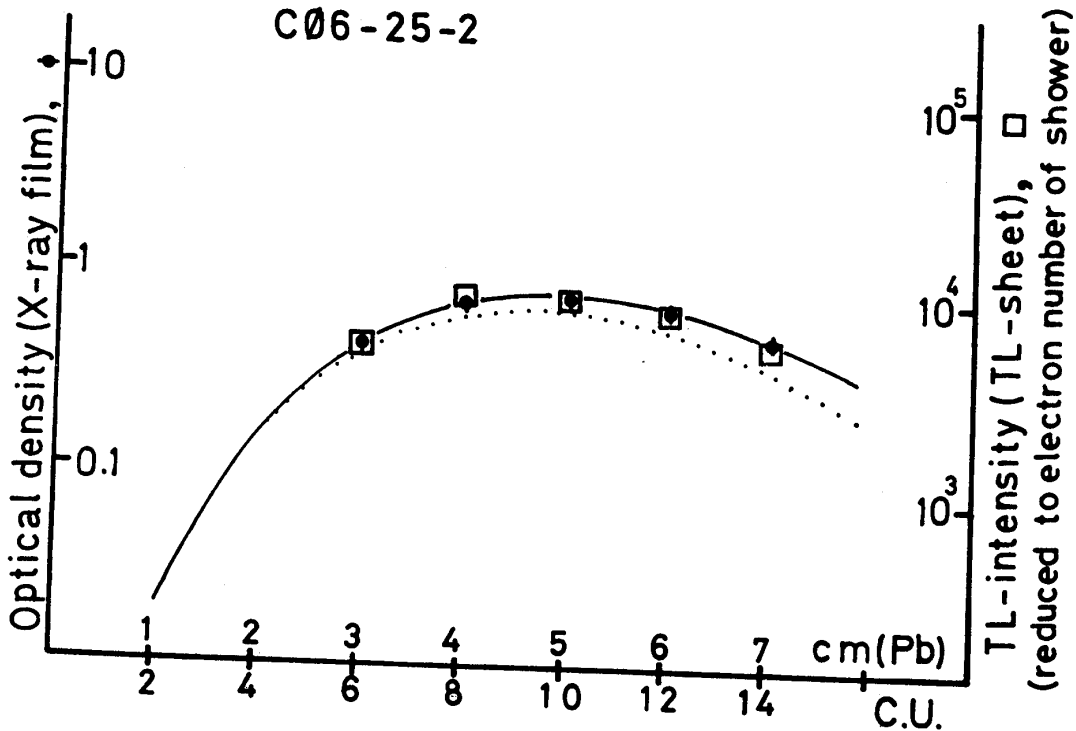


Fig. 7. 5層の X-ray film 及び TL-sheet のカスケードシャワー。実線は計算から得られる 20 TeV のカスケード曲線。点線は 15 TeV のカスケード曲線。左側縦軸は X-ray film の黒化度を示し、各層での読み取り値を●で示している。又、右側縦軸はシャワーの電子数に換算した相対 TL 強度目盛をあらわし、TL-sheets からの読み取り値を□で示している。

Test calorimeter での TL 読み出しから、TL-sheet がカスケードシャワーの検出に用いられることを示唆している。

4-3 岩石・鉱物への応用

上記のような人工 TL 素子による放射能測定と異なって、自然界の岩石・鉱物等の不均一な構造をもった試料面の TL はどのように発光するか、TL の空間分布を一回で読み取りすることから新しい情報が得られないか、等の目的で手近にある試料——鍾乳石・万成石（岡山県産の花崗岩）——の TL 空間分布読み取りを試みた。

鍾乳石は中心部分を軸に年輪状に生長し、構成する各層で年代が異っている。この2次元読み取りシステムは鍾乳石を輪切りにすることにより、一回の読み取りで各層の TL 分布を求めることができ、しかも連続的に年代を知ることができる。Fig. 8. は中心を通過して $\frac{1}{4}$ に割ったものの破片の natural TL を測定したもので、矢印の部分が中心部である。鍾乳石の性質上、TL 強度は中心部から外の層に向かうにつれて弱くなっていくと予想されるが、今回の試料では中心部よりもある年代に対応する層が強く光った。この層はその年代の気候・地下水脈の影響で TL 感度の高い層になったか、U 系列、Th 系列、K 等の自然放射能をもつ元素を多く含んだ層になったか等が考えられる。

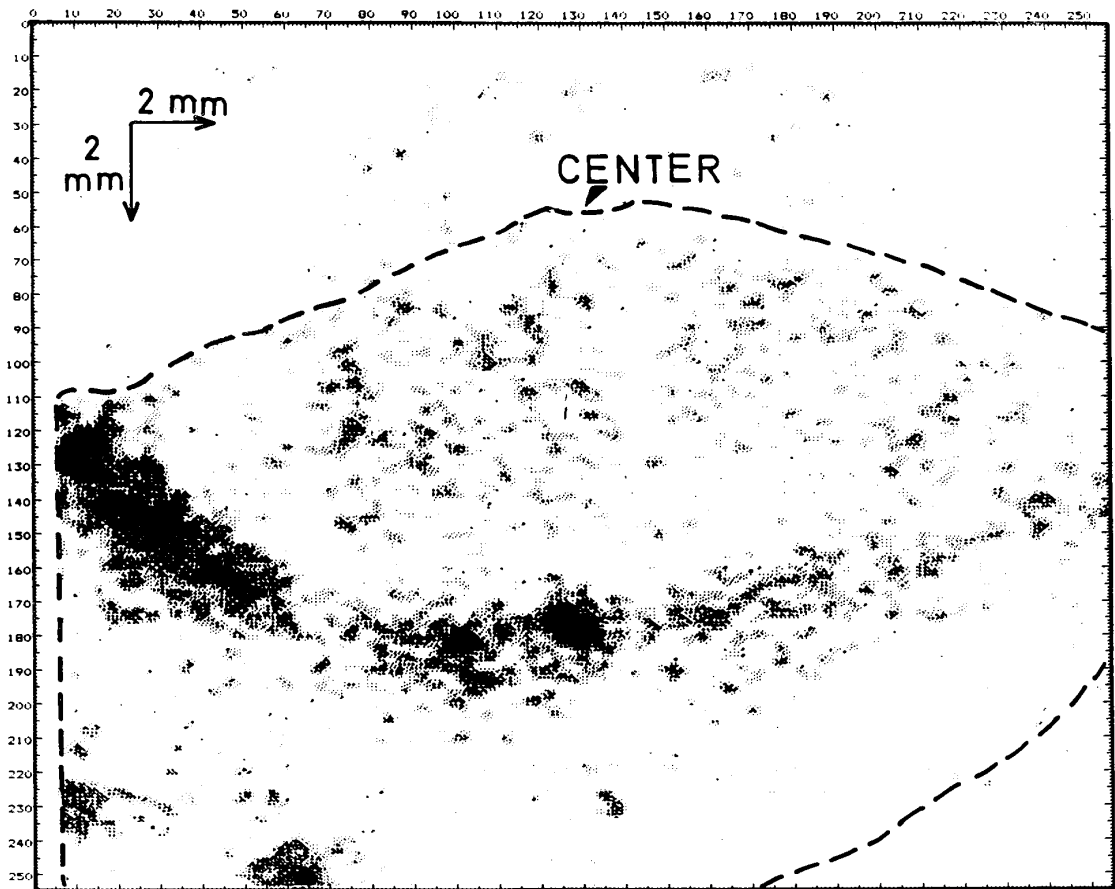


Fig. 8. 鍾乳石の natural TL を読み取った例. 破線は鍾乳石の外形を表わしている. 鍾乳石を輪切にし, 中心を通過して $\frac{1}{4}$ に割った破片の TL 空間分布.

次の例として万成石を取りあげる. まず万成石を薄片にし偏光顕微鏡写真を撮った (Fig. 9a.). 写真に見るように, 万成石は花崗岩の特徴である石英・アリカリ長石・黒雲母等の結晶粒が複雑に入り組んだ構成になっている. この薄片紙料の natural TL を測定した結果と偏光顕微鏡写真の鉱物の結晶粒マップを重ね合わせたものが Fig. 9b. である. Fig. 9b. の TL 空間分布の特徴は, アルカリ長石が石英よりもよく光り, 又 TL 強度分布も不均一である. 又, 結晶の境界付近で数箇所, ハレーションを生じる程強く輝いた. この異常に強い発光の原因として, 自然放射性元素が結晶の境界面に濃縮された場合等が考えられる⁵⁾. 又, 実際花崗岩等の岩石中にウランウムの濃縮したものが fission track で調べられた報告がある⁶⁾.

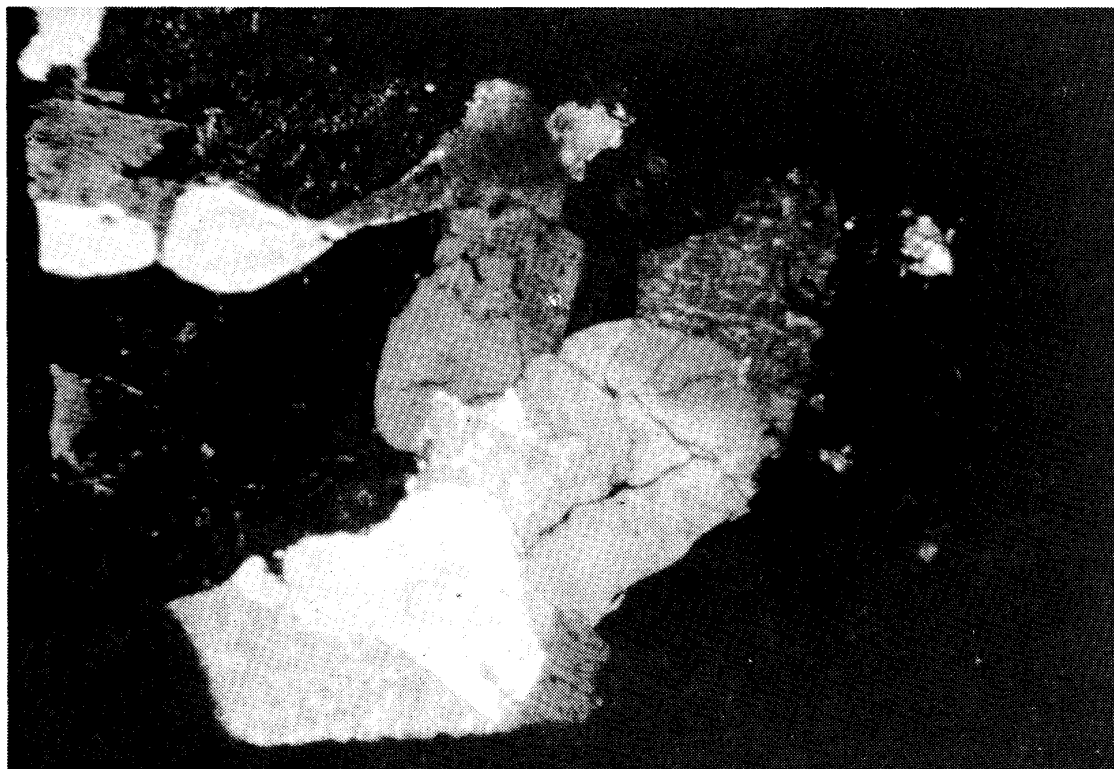


Fig. 9a. 万成石薄片の偏光顕微鏡写真。直交ニコル。

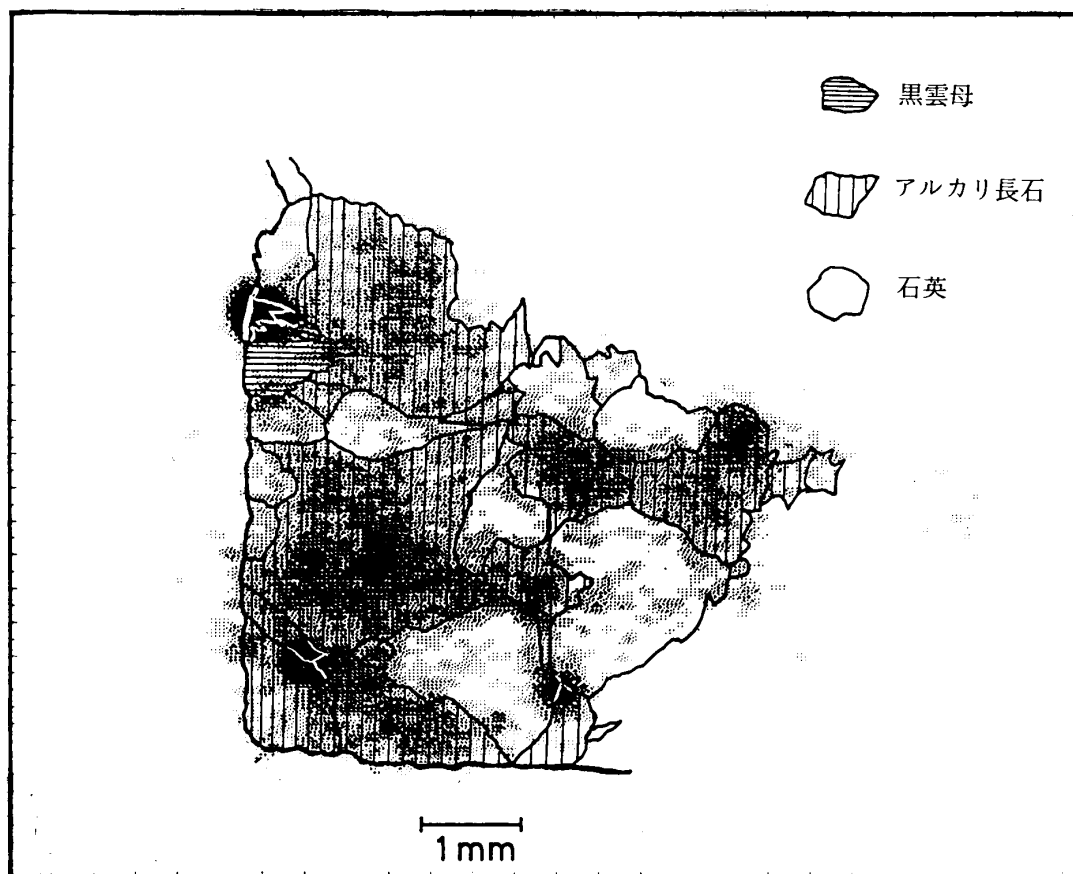


Fig. 9b. Fig. 9a. と同一試料の natural TL 空間分布。
Fig. 9a. の写真鉱物の結晶粒マップと重ね合わせてある。

(謝 辞)

本研究を遂行するにあたり、長谷川博一教授〔京都大理〕、本学三宅寛教授、大亀衛教授、山下信彦博士〔岡山大理〕、北島隆男講師〔足利工大〕の先生方には有益な助言や示唆をいただいた。又、システムの開発にあたり、鈴木誠氏をはじめとする浜松ホトニクス(株)、エー・ディー・エス(株)、根本特殊化学(株)の企業の皆様と超高エネルギー物理研究のワーキング・グループ〔埼玉大、東大宇宙線研、青山学院大、大阪市大、早大理工研、理化学研究所、神戸大、弘前大等〕の皆様には試料の提供をはじめとして種々の協力をいただいた。長岡佐代子さん、原田政明君、吉村宏一郎君、我謝清君、角田郷君には試料の作製や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) F. Daniels, C. A. Boyd and D. F. Saunders: *Science* 117 (1953) 343
J. H. Fremlin and S. Srirath: *Archaeometry* 7 (1964) 58
S. R. Sutton and D. W. Zimmerman: *Archaeometry* 18 (1976) 125
橋本哲夫, 木村健一, 小柳章, 高橋邦明, 外林武: *Radioisotopes* 32 (1983) 525
- 2) A. J. Walton and N. C. Debenham, *Nature* 284 (1980) 42
- 3) I. Yamamoto, T. Tomiyama, H. Miyai, T. Wada and Y. Yamashita: *Nucl. Instr. and Meth.* 224 (1984) 573
山本勲, 富山毅, 蜷川清隆, 久我清, 山下敬彦, 和田俱典: *岡山理科大学紀要* 19A (1983) 121
- 4) Y. Okamoto, et al.: to be submitted to *Nucl. Instr. and Meth.*
- 5) H. Hasegawa: private communication
- 6) J. D. Kleeman and J. F. Lovering: *Science* 156 (1967) 512

SPATIAL DISTRIBUTION READ-OUT SYSTEM OF THERMOLUMINESCENCE

Isao YAMAMOTO, Tsuyoshi TOMIYAMA, Kuninosuke IMAEDA
Kiyoshi KUGA, Kiyotaka NINAGAWA*, Masaki NAKAMURA*
Yasumasa TAKANO*, 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*

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

****Faculty of Science, Okayama University,
Tsushima 3-1-1 Okayama 700 JAPAN*

(Received September 27, 1984)

ABSTRACT

A spatial distribution read-out system of thermoluminescence [TL] is developed. This system is applied to artificial TL-sheets ($\text{BaSO}_4 : \text{Eu}$) for detecting high energy cosmic ray showers and to inhomogeneous materials for measuring natural TL spatial distributions of stalactite and Mannari-granite.