

平成 21 年 5 月 15 日現在

研究種目：基盤研究(G)
研究期間：2007~2008
課題番号：19560835
研究課題名（和文） イメージングプレートの潜像浮き出し現象のメカニズム解明及び 消去法の開発
研究課題名（英文） Study about unerasable and reappearing photostimulated luminescence signals in over-irradiated imaging plates and a new complete erasing method
研究代表者 大内 浩子 (OHUCHI HIROKO) 東北大学・大学院薬学研究科・助教 研究者番号：10241522

研究成果の概要：比較的高い線量を照射したイメージングプレートでは、消去不全現象及び浮き出し現象が生じる。消去不全現象で観察される光は光輝尽発光であることを確認し、従来考えられてきた 600nm 近傍の光で励起される準位の電子の他に、より短波長側の光によって励起される深い準位 (290nm 付近) に電子が局在することを示した。この電子がこれら二つの現象の原因であると推論し、UV 光と白色蛍光灯とを同時照射する新消去法を開発した。本法により、未照射レベルまで完全に消去することができた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2008 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：(1) 放射線・X線・粒子線 (2) イメージングプレート (3) 固体物理
(4) 固体検出器 (5) 光輝尽発光 (6) 浮き出し光 (7) 消去不全光 (8) 潜像消去

1. 研究開始当初の背景

イメージングプレート (Imaging Plate, 以下「IP」という) は、光輝尽発光 (Photo-Stimulated Luminescence, 以下「PSL」という) 特性を持つ BaFBr(I):Eu²⁺ 結晶の蛍光体を放射線検出素材とする二次元画像センサーである。光輝尽発光は、放射線などの第一の刺激の後で、発光波長よりも長波長の光による第二の刺激で再発光する現象であり、BaFBr:Eu²⁺ では発光スペクトルのピークは 400nm 付近に、PSL 励起スペクトルのピークは 600nm 付近にある。IP は、X 線フ

ィルムと比べて、放射線に対する感度が極めて高く、広いダイナミックレンジ (強度範囲) を有し、かつ発光量と放射線量との間の直線性が良い、などの特長をもつ。さらに、積算型検出器であるため、高いフラックス下においてもシンチレーションカウンタ等のパルス型検出器で見られるような数え落としがなく、線量率特性にも優れている。これらの特長により、IP は今日、医療、物理学、バイオサイエンス分野などで幅広く使用されている。また、IP の大きな欠点とされてきたフェーディング (照射後の時間とともに放

射線照射によって形成された潜像が退行していく現象)についても、照射後の経過時間と絶対温度を変数とするフェーディング補正関数を用いて、その影響を補正する手法が開発され、累積線量の定量評価法が確立されてきた。

このように多岐にわたって IP が応用されているもう一つの理由に、読み取り後、可視光照射により残存していた潜像が消去され、再使用できることがある。しかし、比較的高い線量を照射した IP や繰り返し使用した IP では、消去用の白色可視光をいくら長時間照射しても、潜像が消去されない現象(消去不全現象)や、いったん消去されたように見えても後に潜像が再び浮き出ししてくる現象(浮き出し現象)のあることが経験的に良く知られている。これらは疑似信号(アーチファクト)として医療診断の際の障害になるおそれがあり、コンピューティッドラジオグラフィ(CR:Computed Radiography)やデジタルラジオグラフィ(DR:Digital Radiography)において読み取り値の不均一化や定量性悪化を引き起こし、品質管理(QC)や品質保証(QA)上大きな問題となる上、IP 寿命の短命化にもつながるため、実用上の問題として長らく懸案事項となっていた。

しかし、これらの現象について、詳細な特性の解明や解決策の検討はこれまであまりなされてこなかった。IP に放射線が入射すると、添加されている結晶中のユーロピウムイオンの電子が伝導帯へ励起され、結晶中にあらかじめ形成されている F⁺センター(陰イオン空格子点)に捕えられて、準安定状態の F⁺センターを作る。これにより、潜像が形成される。小林らは、大線量の He⁺イオンを照射した IP で消去不全現象が観察されることを報告し、放射線照射によって生じた欠損が F⁺センターと競合的に電子を捕獲し、F⁺センターへの電子供給源となっている可能性を示唆したが、電子の供給源がどの準位にあるか等の詳細については検討していない。

消去されない光(消去不全光)の消去法の開発は IP の定量性を向上させ、かつ、効率良い使用を可能にするため、あらゆる分野への波及効果が極めて大きいことが予想される。その目的のためには、消去不全現象及び浮き出し現象において観察される光についてその特性を詳細に調べることにより、電子の供給源がどこにあるのか等この現象を解明することがぜひとも必要である。

2. 研究の目的

IP の本体である BaFBr(I):Eu²⁺に放射線が入射すると、添加されている結晶中のユーロピウムイオンの電子が伝導帯へ励起されて、結晶中にあらかじめ形成されている F⁺センターに捕えられ、準安定状態の F⁺センター

(F(F⁺), F(Br⁻), F(I⁻)) を作る。一方、正孔は Eu²⁺イオンに捕えられ、Eu³⁺イオンを形成する。

読み取り光を照射すると、F⁺センターに捕獲されていた電子は再び伝導帯に解放され移動し、結晶中のユーロピウムイオン(Eu³⁺イオン)に捕えられ、このとき、PSL 光が生じる。しかし、電子が捕獲されているのは F⁺センターだけではない。F⁺センター以外の場所に捕獲された電子が緩解現象により移動し、PSL 光を発生するための供給源となるために潜像浮き出しが生じることが考えられる。

本研究の目的は、まず、線量や線量率依存性及び温度の影響を検討することにより、消去不全現象及び潜像浮き出し現象の特性を明らかにすることである。次に、選択的波長光により励起することで電子が捕獲されている場所のエネルギーレベルを相対的に明らかにし、電子の捕獲場所を明らかにすることである。そして、これらで得られた知見を基にして、消去不全光の消去法の開発を行なう。

そのために、以下の項目を遂行する。

(1) 消去不全現象及び潜像浮き出し現象の特性検討

- ① 温度依存性についての検討
- ② 線量率及び線量依存性についての検討
- ③ 選択的波長光による電子の相対的局在位置の検討
- ④ 光源の影響

(2) PSL 発光測定装置による消去不全光の測定

消去不全光が PSL 発光であることを確認する。

(3) 潜像の消去手法の開発(捕獲電子の強制的消去法の開発)

捕獲電子の解放手段としては、光、熱、時間がある。これらの因子を組み合わせることで捕獲電子を強制的に追い出す方法を検討し、効率的な消去法を新たに開発することを目指す。

3. 研究の方法

(1) 試料 富士フイルム(株)社製 IP、BAS-TR (TR2040) を用いた。BAS-TR は 50 μ m 厚の光輝性蛍光体層、250 μ m 厚のポリエチレンテレフタレートからなる支持体層、及び 160 μ m 厚の磁気吸着層から構成される。表面保護層のないタイプであるため、照射により IP に生じる種々の影響について関係因子を解明しやすい。以下の実験では、BAS-TR を 1.5-2.0 x 1.5-2.0cm² の大きさにカットしたものを試料とした。

(2) 照射 X線装置 MBR-1520R(Hitachi Medico Co.) を使用し、80 もしくは 100kV(1.0 mm Al もしくはフィルター無し)にて、5-20mA の条件で室温で照射した。線量の測定は、X線装置に組み込まれた電離箱で行った。

(3) 読み取り PSL 発光測定装置による測定以外は、富士フイルム(株)社製 FLA-3000 により行った。

(4) 潜像浮き出し現象及び消去不全現象の特性についての検討

①浮き出し光と経過日数との関係

X線の線量率を一定(0.815Gy/min)にして照射時間を変えて0.0081~8.1Gyのレンジで線量を変えてIP試料を照射し、これ以上PSL密度(PSL/mm²)が下がらなくなるまで富士フイルム(株)社製IP消去器IP ERASER 3による白色可視光消去を繰り返した。ここで読み取ったPSL密度を消去不全光とする。その後、4、20、50℃の3種類の温度下に、それぞれIP試料を7、13、20、27、35及び42日間放置し経過時間に伴う浮き出しPSL密度の変化を調べた。各条件ごとに未照射IPを同時に処置し、このPSL密度をBG値として差し引いた。

②浮き出し光の線量依存性

線量率を一定(0.815Gy/min)にして0.3~8.1Gyのレンジで線量を変えて照射したIP試料について、①と同様に消去した。0℃で20日間放置後、浮き出し光を調べた。BG値は①と同じように差し引いた。

③浮き出し光の線量率依存性

3種類の線量率、0.038、0.1、0.70Gy/minでいずれも線量を0.6Gyと一定になるようにIP試料を照射し、①と同様に消去した。0℃で20日間放置後、浮き出し光を調べた。BG値は①と同じように差し引いた。

④熱の影響

X線0.81GyをIP試料3セットに照射し、①と同様に消去した。120℃に設定したインキュベーター内に各セットを1、14、28日間放置した。取り出した後一度読み取り、次に20℃に設定した別のインキュベーターに24時間放置した後再度読み取った。後者から前者を差し引き浮き出し光を求めた。さらに、IP ERASER 3で1時間消去して読み取りを行ない、消去不全光を求めた。

⑤光源の影響

BAS-TR試料に100kVのX線を10Gy照射し、①と同様に消去した。各種光学フィルターを組み合わせることで波長を制御したハロゲンランプ(150W, EARTH MAN, WL-150)もしくは蛍光灯(15W, NEC Co., FL-15W)で一定時間光をあてた後再度読み取り、光照射の前後でのPSL密度の変化を調べ、浮き出し光に波長依存性があるかどうかを検討した。その後、IP ERASER 3で1時間消去してから読み取り、消去不全光に変化があるかどうかを調べた。ハロゲンランプに組み合わせた光学フィルターは、Y-50、R-60、R-72(HOYA Co.)で、それぞれ500、600、720nmの波長で短波をカットする。U-330はバンドパスフィルターで、330nmあたりの光を透過させ、400nm

より長波長の光は透過させない。ハロゲンランプの長波長の光は熱になるので、その影響を取り除くため、ハロゲンランプから18cmのところの間に置いたIP試料との間に水槽を配置し、さらにファンを回して光照射を行なった。UVランプはIP試料から1.5mの距離とし、30秒間光照射を行なった。蛍光灯に組み合わせた光学フィルターは、UV-29、UV-30、UV-31、UV-33、UV-35 (AGC TECHNO GLASS CO., LTD. UV-30だけはHOYA Co.)のいずれもlow-pass filterで、それぞれ、290、300、310、330、350nmの波長で短波長側を50%カットオフする。レファレンスとして、未照射IP試料も同様に処置し読み取った。この実験ではすべて、光学フィルターを用いない場合と結果を比較した。

(2) PSL 発光測定装置による消去不全光の測定

BAS-TR試料に80kVのX線1Gyを照射し、消去不全光を生じさせたものを試料とした。半導体レーザーLDU33-635-4.5(635nm, SIGMA KOKI Co., Ltd.)とフォトンカウンティングヘッドH7467(浜松ホトニクス(株))によりPSL発光測定装置を構築し、これにより消去不全光の測定を行なった。フォトンカウンティングヘッドの前に8種類のバンドパスフィルター(Edmund Optics Inc.)を円形に組み込んだディスクを置き、これを回転させることにより、発光のピークがどの波長にあるかを調べた。組み込んだバンドパスフィルターは、それぞれ、中心波長が334、340、365、394、405、415、430、450nmで、半値全幅は全て10nmである。

4. 研究成果

(1) 潜像浮き出し現象及び消去不全現象の特性についての検討

①浮き出し光と経過日数との関係

いずれの線量でも、浮き出し光のピークは20~30日の間にあった。この傾向は4℃に放置した場合には顕著に示されたが、20及び50℃に放置した場合には明らかに示されなかった。フェーディングの影響が大きいため、浮き出し分が相殺されたと考えられる。

②浮き出し光の線量依存性

明らかな線量依存性が観察され、浮き出し光は線量に対して直線的に増加することがわかった。

③浮き出し光の線量率依存性

浮き出し光と線量率の間には依存性は観察されず、線量率が異なっても浮き出し光の量に差は認められなかった。

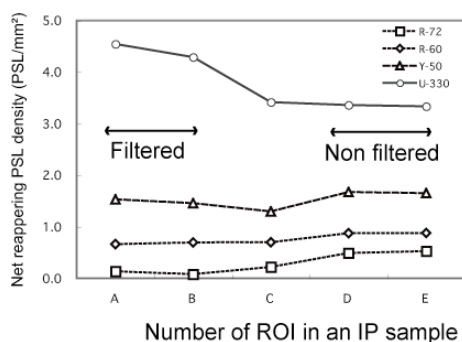
④熱の影響

120℃インキュベーター内に放置14日で浮き出し光はピークを示した後28日ではほぼ消失した。また、消去不全光も28日ではほぼ

消失した。加熱により消光することは、深い準位に電子が捕獲されていることを示唆する。ただし、加熱により IP が変色し、感度劣化が生じた。もっと穏やかな条件による消去法を考案する必要があることがわかった。

⑤光源の影響

ハロゲンランプと、Y-50、R-60、R-72、U-330の光学フィルターを組み合わせた場合と、光学フィルターを用いない場合との、浮き出し光の変化を Fig. 1 に示す。Y-50、R-60、R-72では、いずれも光学フィルターを用いない場合の方が浮き出し量が多く、長波長領域(500nm-)には大きな電子の供給源のないことが示唆された。しかし、U-330では、その逆の傾向、すなわち、U-330で分光した方が浮き出し量が多く、短波長域に励起波長が存



在することを示唆した。

Fig. 1 Reappearing PSL signals are plotted when IP samples were exposed to a halogen light source, with or without filtration. Regions of interest (ROIs) in the IP sample are denoted A, B, C, D, and E. The tendency seen in the optical filter of U-330, indicates that electrons localize under the shorter wavelength light (around 330 nm).

蛍光灯を光源とした場合にはさらに顕著な浮き出し光が認められた。蛍光灯の光に30秒間あてたときの、フィルターが無い場合、UV-29, UV-30, UV-31, UV-33, UV-35をそれぞれ組み合わせた場合での、浮き出し光を Fig. 2 に示す。浮き出し光はフィルターが無い場合が一番多く、UV カット波長が長波になるにつれて減っていき、U-35では、まったく観察されなかった。なお、未照射 IP 試料でも浮き出し光はまったく観察されなかった。蛍光灯では、短波長の紫外線は蛍光体及びバルブに吸収され、バルブ外には放出されない。しかし、比較的波長の長い紫外線と蛍光体による紫外線は蛍光体及びバルブを透過し、少量ではあるが蛍光灯より放出される。消去不全現象が生じた IP 試料では、253-300nm あたりの、蛍光灯から放出される水銀の短波長の輝線で電子が光励起されて 633nm 付近に移動し、

F センターに捕獲され、浮き出し現象の原因になっていることが考えられる。

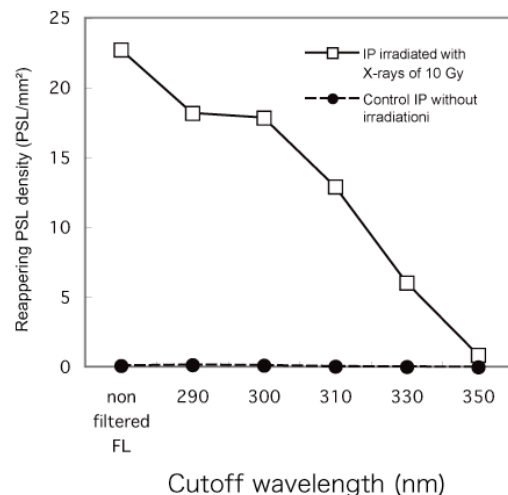


Fig. 2 Results obtained by exposing the IP samples to filtered and non-filtered fluorescent light. The largest amount of reappearing PSL signals is observed when an IP are exposed to the non-filtered fluorescent light. The amount of reappearing signal decreases according to the cutoff wavelength and PSL signals do not reappear at all with light filtered by the U-35.

(2) PSL 発光測定装置による消去不全光の測定

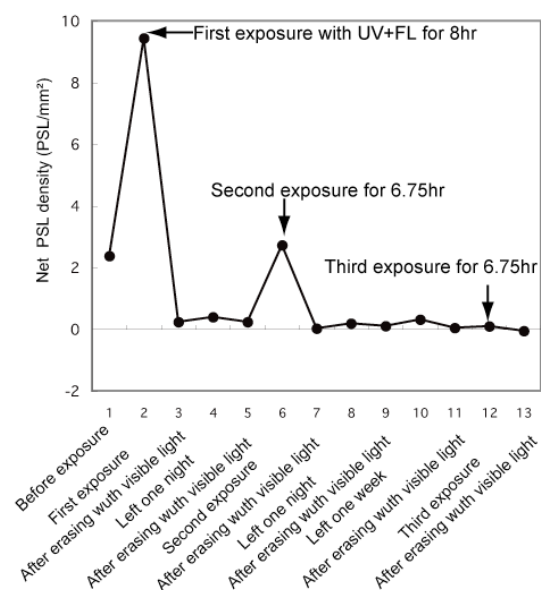
8種類のバンドパスフィルターで消去不全光を生じている IP 試料を測定した。それぞれの発光から減衰までの総カウントを波長に対してプロットしたところ、635nmの光で励起された発光は394nmにピークをもつことが示された。また、発光の減衰パターンはPSL発光として報告されているパターンと一致したことより、消去不全光はPSL光であることが確認された。

(3) 潜像の消去手法の開発

以上の結果より、消去不全光を消去するには、UV光と白色蛍光灯との同時照射により深い電子中心から電子を励起、再結合させればよいと考え、消去不全光の新消去手法を開発した。ただし、IP試料にUV光をあけるとドーピングされているEuイオンが励起され、あらたなFセンターが形成される。そこで Fluorescence Spectrophotometer F-2500 (Hitachi Co.) でEuイオンの励起スペクトルを測定し、270nmあたりより短い波長で顕著に励起されることを確かめ、本消去法においてはUV-29, lowpass filter (Asahi Technoglass Co. 製、290nmが50% cutoff波長)により短波長をカットすることとした。本消去法では、UV灯1本(15W, HITACHI LIGHTING Ltd., germicidal lamp GL-15)と

and 蛍光灯 (15W, fluorescent tubes (NEC Co., FL-15W) 4 本を組み合わせ、これらの真下に UV-29 でカバーした IP 試料を置き、光照射した。

本消去法の効果を検証するため、BAS-TR 試料に 100kV の X 線を 10Gy 照射し、消去不全現象を生じさせたものを用いて、本消去法による処置を 8、6.75、6.75 時間の 3 回繰り返した。処置と処置の間は 1 晩、もしくは 1 週間室温に放置した。処置を繰り返す都度、IP ERASER 3 で消去を 1 時間行ない、読み取った。未照射 IP を同時に処置し、照射 IP 試料の読み取り値からその値を差し引いた。この結果



を Fig. 3 に示す。

Fig. 3 Net PSL density during the repeated treatment of exposure to both lights: a filtered ultraviolet (UV) light with the UV-29 and four fluorescent (FL) lights. After the third round of exposure, the unerasable PSL signals fell to the same level as the control IP.

1 回目の処置後、大きな浮き出し光が観察されたが、2 回目の処置後では 2 割にまで減少し 3 回目の処置後はほとんど浮き出し光は観察されなくなった。消去不全光も同様に減少していき、3 回目の処置後は未照射 IP と同じレベルにまで下がった。以上により、本消去法で、消去不全光を完全に消去することができることが明らかに示された。

本消去法により、きわめて効果的に消去不全光を消去した例を Fig. 4 に示す。X 線 0.1-1Gy を照射し、消去不全光を生じた IP 試料に本消去法を 6.75 時間処置した。その後、IP ERASER 3 で消去を 1 時間行なった。Fig. 4 (b) において、矢印で示された白く抜けた部分が、本消去法で処置された部分であり、消去されていることがわかる。残りの部分に

は、消去不全潜像がそのまま残っている。この部分では、UV-29 ではなく黄色のアクリルフィルターでカバーして光照射を行なっている。UV 光は、黄色のアクリルフィルターを通過することができないので、UV 光で励起される準位の電子は励起されず、従ってこの部分では消去不全光は消去されていない。

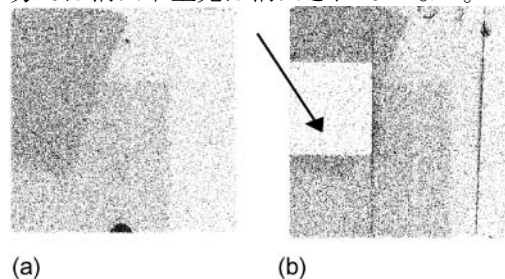


Fig. 4 (a) Example of unerasable latent images. (b) After simultaneous exposure with both lights for 6.75 hr and erasing with visible light for an hour, the unerasable latent image in a certain square region was completely erased, but still remains in the rest of the sample, where a yellow acrylic filter had been used instead of the UV-29 filter during the exposure.

(4) 本消去法処置後の IP 試料の線量応答性
本消去法処置により、消去不全光を消去した IP を使い、4.6mGy~10Gy のレンジにおける線量応答性を、未使用の IP と比較した。その結果を Fig. 5 に示す。両者はほぼ同じ線量応答性を有していることがわかった。

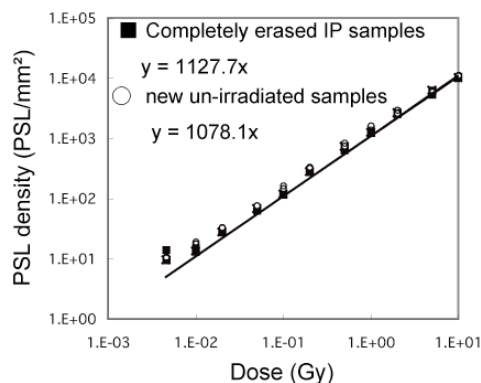


Fig. 5 Dose response to X-rays in the range of 4.6 mGy - 10 Gy using completely erased IP samples with the new erasing method and un-irradiated samples. Each relationship shows excellent linearity in the measured range, having almost the same slope (1,078.1 and 1,127.7 with a linear fit).

富士フイルム(株)社製 IP 消去器 IP ERASER 3 では、白色蛍光灯を光源として使用している。蛍光灯では、短波長の紫外線は蛍光体及

びバルブに吸収され、バルブ外には放出されない。しかし、比較的波長の長い紫外線と蛍光体による紫外線は蛍光体及びバルブを透過し、少量ではあるが蛍光灯より放出される。このため、消去器ではこれらの短波長の光による Eu の励起を防ぐために、フィルターを入れて短波長をカットしているのだと推察される。しかし、このカット波長が 290nm よりも超波長側に設定されているため、浮き出し現象の原因となる短波長の電子供給源を励起することができず、何時間消去しても潜像を消去することができないのだと考えられる。本研究において開発した消去法は、比較的短時間で効率的に完全に消去することができ、浮き出しも生じないきわめて有用な方法である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

(1) Hiroko Ohuchi et. al Characteristics of unerasable and reappearing photostimulated luminescence signals in over-irradiated imaging plates and a new complete erasing method, Nucl. Instr. and Meth. A, 有, A596, 2008, 390-395

(2) Hiroko Ohuchi et. al Skin dose measurement for patients using Imaging Plates in interventional radiology procedures, Health Phys., 有, 93(1), 2007, 78-86

[学会発表] (計 5 件)

(1) 大内 浩子, 3 種類のイメージングプレートにおける消去不全現象とその消去、第 7 回日本放射線安全管理学会、2008 年 12 月 4 日、石川県 金沢市金沢歌劇座

(2) 大内 浩子, 大線量照射後のイメージングプレートに生じる消去不全現象と浮き出し現象の解明と解決法、第 45 回 アイソトープ・放射線研究発表会、2008 年 7 月 4 日、東京都日本青年館

(3) 大内 浩子, 大線量照射後のイメージングプレートに生じる消去不全放射線像の消去法の開発、第 42 回日本保健物理学会研究発表会、2008 年 6 月 28 日、沖縄県那覇市コンベンションセンター

(4) 大内 浩子, 大線量照射後のイメージングプレートにおける潜像浮き出し現象と消去不全現象についての基礎的検討、第 6 回日本放射線安全管理学会、2007 年 12 月 5 日、仙台市東北大学青葉記念会館

(5) 大内 浩子, 大線量照射後のイメージングプレートにおける潜像浮き出し現象についての基礎的検討、第 44 回 アイソトープ・

放射線研究発表会、2007 年 7 月 4 日、東京都日本青年館

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大内 浩子 (OHUCHI HIROKO)

東北大学・大学院薬学研究科・助教

研究者番号：10241522

(2) 研究分担者

馬場 護 (BABA MAMORU)

東北大学・サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター・教授

研究者番号：20005466

(平成 19 年度のみ研究分担者で、平成 20 年度は連携研究者)

(3) 連携研究者

馬場 護 (BABA MAMORU)

東北大学・サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター・教授

研究者番号：20005466