

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21560867

研究課題名（和文）輝尽性蛍光体中に深く捕獲された電子を利用した
ワイドダイナミックレンジ線量計の開発研究課題名（英文）Deeply trapped electrons in photostimulated luminescent materials and
their utilization for extending the dynamic range

研究代表者

吉田 浩子 (YOSHIDA HIROKO)

東北大学・大学院薬学研究科・講師

研究者番号：10241522

研究成果の概要（和文）：放射線の過照射により、BaFBr(I):Eu²⁺輝尽性蛍光体中の深い準位に電子が捕獲される。この電子を読み取ることにより大線量計としての開発を行った。捕獲準位を調べた結果、特定の波長にピークを持つこと、波長のピーク高さは照射線量に依存することがわかった。ピーク高さは X 線による照射 35.0 Gy まで上昇していた。この電子は、UV 光を光源として固有の波長で選択的に励起後、630nm のレーザー光で読み出せる。

研究成果の概要（英文）：By utilizing deeply trapped electrons in overirradiated photostimulated luminescent materials, we have extended the dynamic range of the PSL materials. Deep centers showed specific peaks in the absorption spectra and the peak heights were dose-dependent until 35.0 Gy X-ray exposure. Electrons can be readout by the method uses two step excitations with ultraviolet light and 630-nm laser light.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010 年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2011 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

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：保健物理・環境安全

1. 研究開始当初の背景

輝尽性蛍光体 (BaFBr(I):Eu²⁺) では、可視光照射による残像消去によって繰り返し使用が可能であることが大きな特長の一つとされる。ところが、ある線量以上の放射線を照射すると、その後いくら長時間可視光を照射しても、潜像が消去されない現象（「消去不全現象」といい、観察される光を「消去不全光」という。）が顕著に現われる。これまでその現象について詳細に検討されてこなかった。研究代表者らは、この現象の解明に

取り組んだ結果（平成 19～20 年度基盤研究(C)「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」による）、従来の読み取りに用いられている 600nm 付近の準位の電子以外に、短波長側（290nm 付近）の深い準位に電子が局在することを明らかにし、この短波長側の電子が消えない信号の原因となっていることを示した。この電子は、大線量になると初めて有意に測定されるようになる。さらに、600nm 付近の準位の電子を可視光により消去すると、時間経過と

ともに、深い準位の電子が 600nm 付近に転移すること、転移する量が照射線量に比例して増加することを明らかにした (Nucl.Instrum.Methods Phys.Res A, in Press,2008)。これらの知見に基づき、短波長側に深く捕獲された電子を有効に利用することで、大線量側へレンジを拡大した線量計として開発することを試みた。

2. 研究の目的

本研究は、輝尽性蛍光体において従来の読み取りに使われている準位の電子だけでなく、深く捕獲された電子を利用することで、大線量側にダイナミックレンジを拡大した線量計としてあらたに開発することを目的とする。イメージングプレートなどとして汎用されている BaFBr(I):Eu²⁺輝尽性蛍光体は、二次元イメージを提供できるフィルム状の積算線量計として様々な分野で利用価値が極めて高く、特に、6桁にわたる広いダイナミックレンジが大きな特長の一つとなっている。しかし、このレンジは、BaFBr(I):Eu²⁺がX線に対して高感度特性を持つためにμGyオーダーの低線量側には広がっているものの、大線量側では数 Gy で飽和してしまう欠点がある。本研究では、この深く捕獲された電子を用いた新たな読み取り方法を構築し、環境線量レベルから事故などの異常時の大線量まで広いレンジを測定できる線量計として開発する。

3. 研究の方法

(1) 試料 輝尽性蛍光体 (BaFBr(I):Eu²⁺) である以下を用いた。富士フィルム(株)社製イメージングプレート(IP:Imaging Plate)、BAS-TR、BAS-MS 及びコンピュータドラジオグラフィ(CR:Computed Radiography)プレート、ST-VI (BaFBr(I):Eu²⁺)、ケアストリームヘルス社製 CR プレート、Kodak DIRECT VIEW EHRM2 (BaFBr(I):Eu²⁺)、Agfa 社製 CR プレート ADC MD10 (Ba(Sr)FBr(I):Eu²⁺)及びコニカミノルタ社製 CR プレート REGIUS(BaFBr:Eu²⁺)。

(2) 照射 X線装置 MBR-1520R (Hitachi Medico Co.) を使用し、150kV(フィルターなし)にて、5または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 (輝尽発光, Photo-Stimulated Luminescence) 測定装置による測定以外は、富士フィルム(株)社製 FLA-3000 により行った。

(4) PSL 測定装置による消去不全光の測定

BAS-MS IP 試料に X線 1Gy を照射後、消去器 IP ERASER 3 (富士フィルム(株)) を用いて消去した。IP ERASER 3 は白色蛍光灯を光源として使用しているが、短波長の光による

Eu の励起を防ぐために、290nm よりも長波長側にカット波長が設定されている。FLA-3000 にて読み取り、これ以上読み取り値が下がらなくなるまで十分に消去したものを消去不全光を生じる試料とした。半導体レーザー LDU33-635-4.5 (635nm, シグマ光機(株)) とフォトンカウンティング検出器 H7467(浜松ホトニクス(株))により PSL 測定装置を構築し、試料の測定を行なった。フォトンカウンティング検出器の前に 8種類の波長の異なるバンドパスフィルター(エドモンド・オプティクス・ジャパン(株))を円形に組み込んだディスクを置き、これを回転させて IP 試料を測定することにより、発光スペクトルを調べた。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。比較のために、X線を照射後消去しない試料について同様に測定を行ない、PSL の発光スペクトルを取得した。

(5) 消去不全光の PSL 測定装置での読み取りによるダイナミックレンジの拡大

BAS-MS、KODAK DIRECT VIEW 及び REGIUS 試料に X線 8.07mGy~80.7Gy を照射後、IP ERASER 3 で十分に消去し、前述 PSL 測定装置により消去不全光を測定した。

(6) IP における短波長領域電子捕獲準位 (波長) の特定

短波長側に捕獲されている電子の準位 (波長) を特定した。BAS-MS を用いて消去不全光を生じる試料を作成した。DeepUV ランプ (ウシオ電機 (株) 製、UXM-500SX) からの UV 光を暗箱内にてブレード回折格子 (エドモンド・オプティクス社製、600本/mm、ブレード波長 400nm)により分光した。Fig.1 に装置の模式図を示す。分光した UV 光のスペクトル強度をシリコン PIN フォトダイオード(浜松ホトニクス(株)製、S1226-18BQ) を用いて 0.1mm ステップで測定し、フォトダイオードのエネルギー特性で強度補正を行った。波長の決定は低圧水銀ランプの輝線により行った。これにより、IP をスキャンしたときの横軸 (距離) を波長に変換することができる。以上の方法により UV 光スペクトルを得た。消去不全光を生じる IP 試料に分光した UV 光を 10 分間照射し、FLA-3000 にて読み取った。吸収スペクトルを UV 光スペクトルで強度補正し、ピーク波長の特定を行った。

(7) 汎用 CR プレートにおける短波長領域電子捕獲準位の特定と励起ピークの線量依存性

(6) の方法により、汎用されている BaFBr 組成 CR プレート Agfa 社製 ADC MD10、Kodak 社製 DIRECT VIEW EHRM2 及び富士フィルム社製 ST-VI について波長の特定を行った。それぞれに X線 5-30Gy を照

射し、励起ピークの線量依存性を調べた。

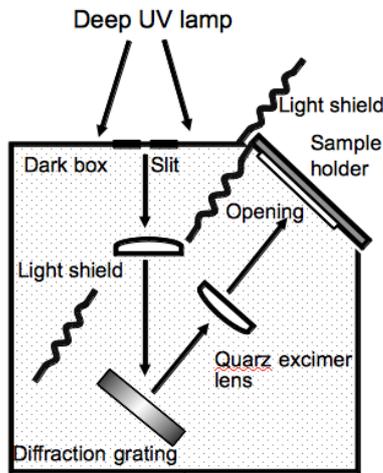


Fig. 1. Schematic illustration of the diffracted ultraviolet light irradiation system, in which ultraviolet light passing through a 1.0-mm slit is separated into its component wavelengths with a 50-mm² diffraction grating having 600 grooves/nm. The complete system is installed in a dark box to exclude light from outside.

4. 研究成果

(1) 消去不全光が PSL であることの検証

635nm 励起によって生じる 405nm の発光であることを示し、PSL であることを明らかにした。

(2) 輝尽性蛍光体中に深く捕獲された電子及びその励起-PSL 発光モデルの考案

X 線照射後の IP において 600nm 付近の捕獲電子及び短波長領域に深く捕獲されている電子とその励起モデルを考案した。Fig.2 に示す。

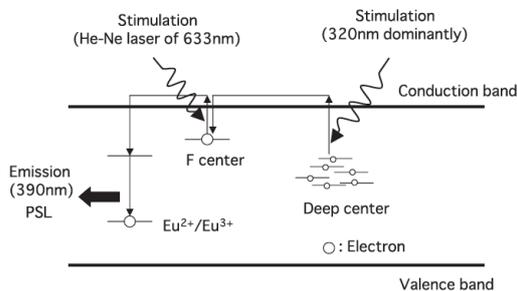


Fig.2 Model of the excitation of deeply trapped electrons and PSL processes

(3) 消去不全光の PSL 測定装置での読み取りによるダイナミックレンジの拡大

X 線照射後、BAS-MS を FLA-3000 で読み取ると 0.81Gy あたりまで良好な直線性を示すが、これを超えると F センターが飽和し、傾きは小さくなる。消去不全光を PSL 発光測定装置で測定した結果を Fig.3 に示す。線量に対し 40Gy まで log-log で直線関係を示し、その後傾きは急になり最大線量の 80.7Gy までダイナミックレンジが広がった。ほかの種類蛍光体でも消去不全光が観察され、線量依存性が示された。

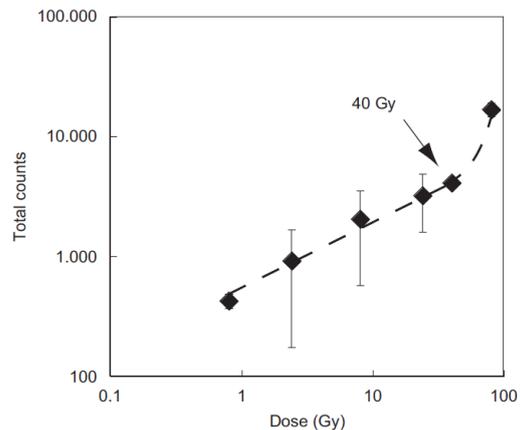


Fig.3 Total photon counts read out by the PSL detection system from the MAS-MS type IP samples in a log-log expression as a function of the irradiated dose (Gy). The average of eight measured values with error bar as one standard deviation is shown for each data.

(4) IP における短波長領域電子捕獲準位 (波長) の特定

短波長域に捕獲された電子は励起されると 600nm 付近の F⁺センター (ハロゲン陰イオン格子欠陥) に再捕獲される。従って、分光した UV 光で励起後、FLA-3000 にて読み取ったときの PSL 値が高い場所を調べることにより、励起波長、すなわち、電子の捕獲準位 (波長) を特定することができる。その結果、BAS-MS では、320nm 付近に大きなピークをもち、345nm、380nm 付近にも小さなピークを示すことがわかった。これまでの研究で BAS-TR では短波長側の電子捕獲部位は 290nm 付近にあると考えてきたが、BAS-MS と BAS-TR では、電子が捕獲されている部位 (バンドギャップにおける深さ) が異なることがわかった。

(5) 汎用 CR プレートにおける短波長領域電子捕獲準位の特定と励起ピークの線量依存性

3 種類の汎用 CR プレートについて電子捕獲準位を特定した結果を Fig.4 に示す。Agfa,Kodak ではいずれも 324nm に、また Fuji では 320nm に大きなピークをもつことが示

された。Fuji CR プレートの準位は、BAS-MS と同じ結果であった。これらのメインピーク以外に、Agfa では、345, 375 及び 420 nm に、また、Kodak では 345 nm に、Fuji では 345, 380nm に小さなピークをもつ。さらに、いずれのプレートにおいても、それぞれの波長のピークの大きさは照射線量に依存していることがわかった。これらの電子は、UV 光を光源として各波長の干渉フィルターを用いて固有の波長で選択的に励起後、630nm のレーザーで読み出せることがわかった。これにより、輝尽性蛍光体のダイナミックレンジを拡大した読み取りを行うことが可能である。

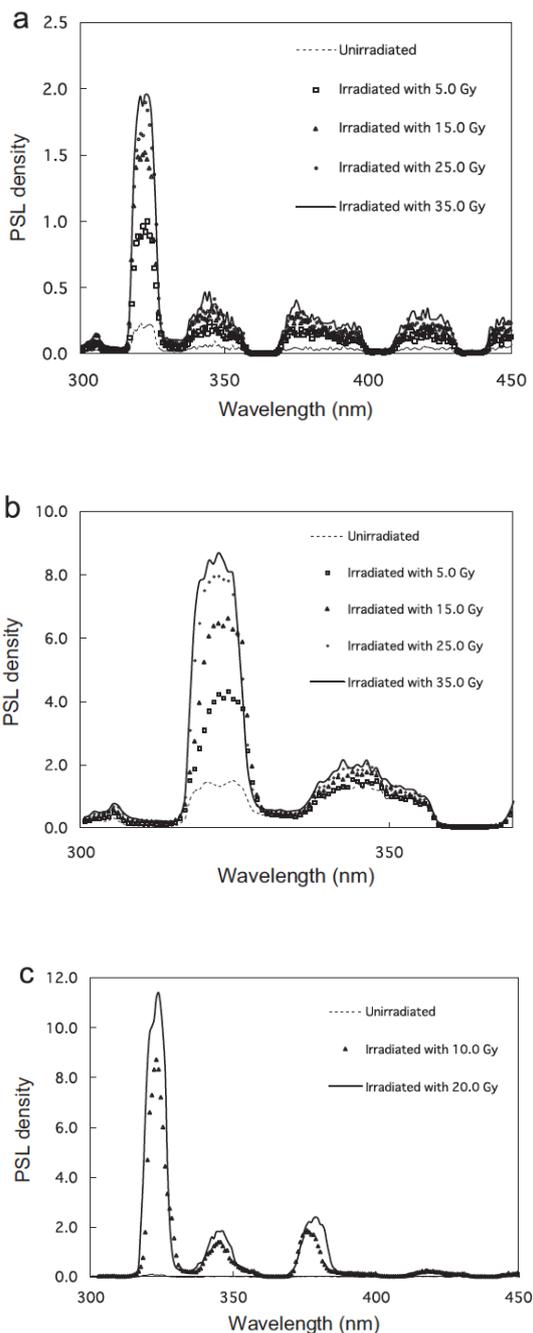


Fig.4 Luminescence inducing spectra of the three types of CR samples: (a) the Agfa MD10, (b) the Kodak EHRM2, and (c) the Fuji ST-VI, irradiated with X-rays and unirradiated. For the Agfa MD10 and the Fuji ST-VI, the spectra in the range 300–450 nm are shown. For the Kodak EHRM2, the spectra from 300 to 370 nm are shown to avoid the rather large peaks at wavelengths longer than 370 nm, which are independent of irradiation with X-rays.

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 5 件)

- (1) Hiroko Ohuchi-Yoshida et al. Complete erasing of ghost images on computed radiography plates and role of deeply trapped electrons, Nucl. Instr. and Meth. 有, A659, 2011, 247-251
- (2) Hiroko Ohuchi-Yoshida et al. Deeply trapped electrons in Imaging Plates and their utilization for extending the dynamic range, Nucl. Instr. and Meth. A 有, A621, 2010, 468-472
- (3) Takahide Okamoto et al. Adapted erase method using ultraviolet light and the influence of Ghosting image on a clinical CR image, Proc. of SPIE 有, 7622, 2010, 76224J-1-76224J-12
- (4) 大内 (吉田) 浩子, イメージングプレートに生じた消去不全光の紫外-白色光同時照射法による消去, RADIOISOTOPES 有 59(2), 2010, 81-91
- (5) 大内 (吉田) 浩子, イメージングプレートに生じた消去不全光の紫外-白色光同時照射法による消去, RADIOISOTOPES 有 59(1), 2010, 1-10

[学会発表] (計 6 件)

- (1) 大内 (吉田) 浩子, イメージングプレートの画質劣化を引き起こす蛍光体中に深く捕獲された電子とその消去, 第 48 回 アイソトープ・放射線研究発表会, 2011 年 7 月 7 日, 東京
- (2) Hiroko Ohuchi-Yoshida, Complete erasing of ghost images caused by deeply trapped electrons on computed radiography plates, SPIE Medical Imaging, 2011 年 2 月 15 日, Orlando, USA
- (3) 大内 (吉田) 浩子, 輝尽性蛍光体中に深く捕獲された電子とその利用, 第 48 回 アイソトープ・放射線研究発表会, 2010 年 7 月 7 日, 東京
- (4) Hiroko Ohuchi-Yoshida, Unerasable latent images observed in computed radiography and their complete erasing, The 51th American

Association of Physicists in Medicine, 2009年7月27-30日, Anaheim, USA

(5) 大内（吉田）浩子、輝尽性蛍光体の短波長領域局在電子を利用した大線量測定法の開発、第47回 アイソトープ・放射線研究発表会、2009年7月1日、東京

(6) 大内（吉田）浩子、輝尽性蛍光体(BaFBr(I):Eu²⁺)の消去不全光を利用した大線量測定法の開発、第43回日本保健物理学会研究発表会、2009年6月4日、大阪

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

○取得状況 (計0件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

吉田 浩子 (YOSHIDA HIROKO)

東北大学・大学院薬学研究科・講師

研究者番号: 10241522

(2)研究分担者

()

研究者番号:

(3)連携研究者

保田 浩志 (YASUDA HIROSHI)

独立行政法人放射線医学総合研究所放

射線防護研究センター・環境放射線影響

グループ・チームリーダー

研究者番号: 50250121