

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 18 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23760833

研究課題名(和文)パルス光励起蛍光測定による緊急時線量測定法の開発

研究課題名(英文)Development of retrospective dosimetry using pulsed optically stimulated luminescence

研究代表者

藤田 博喜(Fujita, Hiroki)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 放射線管理部  
・研究員

研究者番号：20446446

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円、(間接経費) 990,000円

研究成果の概要(和文)：パルス光励起蛍光測定装置の開発を行い、その性能試験を実施した。さらに、土壌を採取し、それに標準線源で一定線量を照射し、その線量を正確に読み取れるかどうかの試験を行った。本研究結果からは、当初予定していた検出下限値よりは高かったが、パルス光励起蛍光測定法を開発することができた。なお、表土から石英を物理的に抽出する必要のない方法の開発を目指していたが、石英の含有量が少ないために、簡単な化学操作は必要となった。しかし、その作業を3日間から数時間程度に短縮することができた。

研究成果の概要(英文)：Pulsed optically stimulated luminescence (POSL) measurement system was developed in this research. The system was used in the performance test. Moreover, the method was applied to dose recovery test using a known dosed soil. From the results, the POSL dosimetry could be developed with higher detection limit than the expected value. The method needed the simple pretreatment procedure because the sample had relatively small amount of quartz. However, The dosimetry could shorten the pretreatment time from 3 days to some hours.

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：パルス光励起蛍光 線量 石英 表土

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 放射線と鉱物との相互作用において、放射線の電離作用で生成した電子のごく一部が鉱物中の格子欠陥や不純物に捕捉され蓄積する。この蓄積した電子が光照射により解放され、正孔と再結合する際に光励起蛍光 (OSL) が観測される。この発光量は過去の被ばく線量に比例する。また、光照射以外に熱によっても電子が解放され、熱蛍光が観測され、これも過去の被ばく線量に比例する。

(2) 上記の蛍光現象を利用して、天然石英を用いた緊急時線量測定法を確立するため、その測定方法の開発及び基礎研究を実施してきた。さらに、本研究で使用する自動蛍光測定装置は、X線発生装置を装備し、照射と測定を装置内で繰り返し行い、さらにX線照射中の蛍光 (ラジオルミネセンス) も測定できるように工夫して独自に開発した。合わせて、基礎研究として、これまでに未解明の日本で産出する天然石英からの蛍光発光機構の解明に取り組んできた。

(3) しかし、これまでの研究においては、石英以外の鉱物からの蛍光は測定時妨害となるために、目的鉱物である天然石英粒子を砂利や石材から抽出する必要があり、これらの作業に2~3日間を要するとともに、化学薬品や化学分析設備を必要としていた。このため、試料採取から線量測定結果を得るまでには、3~4日間が必要となる。この目的鉱物の抽出作業に掛かる時間短縮が、緊急時における線量測定法としての手法確立の最大の課題となっていた。

(4) 最近、パルスOSL測定法によって、石英とその他の鉱物からのOSLシグナルをその減衰時間 (寿命) の違いから弁別できる可能性が示された。これは、石英とその他の鉱物の混合試料に対してパルスの光照射と測定を繰り返し行うことで、石英からのOSLシグナルのみを抽出する方法である。この方法は、測定装置の開発も含めて、未だに実用化に至っていないが、本研究によってこれを実用化できれば、石英の抽出作業の必要のない緊急時線量測定法を実現できる。

## 2. 研究の目的

パルスOSL測定装置の開発と、本装置を用いた線量測定法を世界で初めて実用化し、どこにでも存在する砂利や石材をそのまま利用することで、いかなる場所でも迅速かつ正確に放射線被ばく線量 (0.1Gy程度) を測定できる画期的な手法を確立することを目的とした。

本研究の目的を達成するために、研究期間内で以下のことを明らかにすることにした。

- (1) パルスOSL測定装置の開発
- (2) 石英からのパルスOSL特性
- (3) 石英と長石の混合試料からのパルスOSL

## 特性

- (4) 表土にパルスOSL測定法を適用するための測定条件及び定量下限値
- (5) 標準線源を使用して一定線量を照射した表土の線量測定試験によるパルスOSL測定法の妥当性

## 3. 研究の方法

パルスOSL測定装置を開発し、装置の性能試験を実施した。装置の性能試験は、鉱物標本から抽出した石英及び長石にX線を照射し、これを使用した。性能試験後に、先に用いた石英と長石を様々な割合で混合し、パルスOSL測定で石英のOSLのみを抽出できる条件を見出した。

次に、茨城県内の神社において、表土を採取し、その表土から石英を抽出した。これに鉱物標本から抽出した長石を混合し、これらの混合物に対してパルスOSL測定法を適用し、石英からのパルスOSLのみを測定できる最適条件を求めた。さらに、先に採取した表土から数種類の表土を選択し、これにパルスOSL測定法を適用し、石英からのパルスOSLのみを測定する条件の最適化を図った。最終的には、京都大学原子炉実験所の所有する標準線源で照射した表土の線量測定をパルスOSL測定法で行い、その妥当性を評価した。なお、これらの実験においては、採取した表土に太陽模擬装置を使用して光照射を行い、それらの表土が記憶していた過去の放射線照射の影響については、取り除いたものを使用した。

## 4. 研究成果

### (1) パルスOSL測定装置の開発

パルスOSL測定装置 (時間間隔解析装置を応用) を購入し、応募者が以前に開発した自動蛍光測定装置に組み込み、パルスOSL測定が行えるようにした。

この装置の性能試験を行うために、オシロスコープを用いて、そのパルスの幅が最小で1μ秒であること (1μ秒から40μ秒で設定可能)、そのパルス間隔が最小で200μ秒であること (200~800μ秒で設定可能) を確認した。その結果、当初計画した装置の性能が得られ、パルス光励起蛍光測定装置を開発することができた。

### (2) 石英からのパルスOSL特性

茨城県内の神社において、26点の表土採取を行い、石英とその他の鉱物を分離した。当初は地層の起源を考慮して採取を行う予定であったが、東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故の影響を受けて、茨城県内全域の線量分布調査を行うことの重要性から、その採取方法を変更した。

(1) で開発した測定装置を使用して、採取した石英粒子のパルスOSLを測定した。その結果、石英粒子由来のパルス光励起蛍光が観測でき、そのパルス幅に応じて、その強度の

異なることが分かった(図1)。また、パルス間隔 200  $\mu$  秒で、石英からのパルス光励起蛍光は消失しており、当初の装置の仕様が妥当であったことも確認できた。しかし、採取した試料のうち、石英粒子の存在割合の少ないものについては、本研究範囲から除外した。

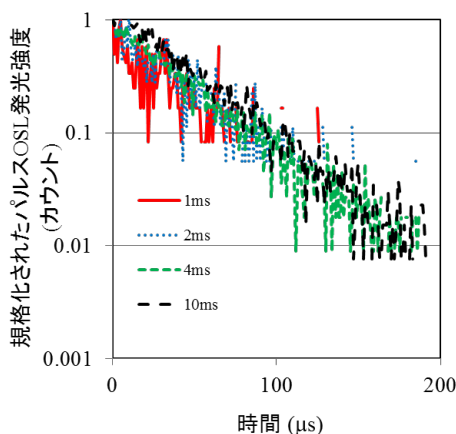


図1 測定時間に対するパルスOSL発光強度

### (3) 石英と長石の混合試料からのパルス OSL 特性

採取した表土から抽出した石英と鉱物標本から選択した長石の混合物にパルス OSL 測定法を適用し、石英からの信号のみを取り出すための測定条件を検討した。検討の結果、測定温度、前加熱温度、光照射条件、検出時間を設定することができた。また、照射後に一定時間保持した試料に、先に設定した測定条件でパルス OSL 測定法を適用し、照射に関する情報を正確に保持しているかどうかを調査した結果、ほぼ保持できていることを確認した。

### (4) 表土にパルス OSL 測定法を適用するための測定条件及び定量下限値

採取した表土のうち、2 種類についてパルス OSL 測定法を適用し、照射した線量を正確に読み出せるかどうかに関する検討を行った。この照射は、自動蛍光測定装置に具備した X 線発生装置を使用して一定線量照射した。なお、予め環境下での線量の情報を消去するため、本事業で購入した太陽光模擬装置で露光を行った。その結果から、測定条件の最適化を図った。次に、ここで最適化した測定条件で、同様に X 線発生装置で照射した表土にパルス OSL 測定法を適用したところ、全ての試料ではないものの、照射した線量を正確に読み出せることが分かった。

さらに、この測定における検出下限値は、試料に依存するものの、0.3~1 Gy であり、その定量下限値は、数 Gy であることが分かった。この検出下限値は、当初の目標であった 0.1 Gy よりも高いものであった。しかし、今回の東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故のように、周辺環境の線量が高く、事故発生から数年後の積算線量を測定する

上では、十分に適用可能なものである。

以上のことから、表土にパルス OSL 測定法を適用し、線量測定を行える可能性を示すことができた。

### (5) 標準 線源を使用した実試験によるパルス OSL 測定法の妥当性

太陽光模擬装置により光照射を行った表土に、京都大学原子炉実験所の標準 線源で一定線量を照射し、簡単な数時間の化学操作を行った後に、(4)で確立したパルス OSL 測定法を適用し、その線量測定を行った。図 2 に線量応答曲線の一例を示す。その結果、4 種類の表土で、照射した線量と一致した線量値を得ることができた。

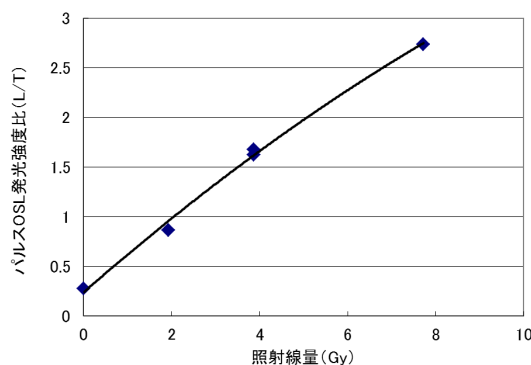


図2 パルスOSL発光強度の線量応答曲線

研究期間全体を通じて、パルス OSL 測定装置の開発を行い、その性能試験を実施した。また、標準 線源を利用しての適用試験を行った。これにより、当初予定していた検出下限値よりは高かったが、パルス OSL 線量測定法を開発することができた。また、石英粒子を完全に抽出することなく、簡単な化学操作で他の共存物質を取り除くのみで線量測定できるようになった。これにより、試料を採取してから、線量測定結果を出すまでの迅速性を高めることができた。

以上のことから、適用範囲は限定されるが、線量測定装置の未設置な場所においても、どこにでも存在する表土、砂利や石材をそのまま利用することで、迅速の放射線被ばく線量を測定できる手法を確立することができた。

今後、さらに研究を進めることで、当初の目的の予期せぬ場所での放射線漏えい事故においても容易かつ迅速に対応できる線量測定手法が確立され、原子力安全委員会策定「原子力施設等の防災対策について」における「緊急時放射線モニタリング」に反映することができる。さらに、1) 地層処分地における放射線モニター、2) 原子炉の廃止措置の際の建築部材の被ばく履歴評価、3) 照射食品の被ばく線量測定、4) 放射性物質輸送事故時の環境線量測定、5) テロ発生時の周辺線量測定等へ応用できるものである。また、無機物質である天然鉱物のパルスの光照射に対する蛍光発光特性が得られることが

ら、無機材料研究と結びつけることができる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

藤田 博喜、Application of pulsed optically stimulated luminescence from surface soil to retrospective dosimetry、Radiation Physics and Chemistry、査読有、2014【発表確定】(印刷中)

DOI:

<http://dx.doi.org/10.1016/j.radphyschem.2014.01.001>

〔学会発表〕(計 1 件)

藤田 博喜、Application of pulsed optically stimulated luminescence from surface soil to retrospective dosimetry、1<sup>st</sup> International Conference on Dosimetry and its Application、2013年6月23日~6月28日、チェコ/プラハ

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

藤田 博喜 (FUJITA, Hiroki)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・バックエンド研究開発部門核燃料サイクル工学研究所放射線管理部・研究員

研究者番号：20446446