

氏名	おうち ひろこ 大内 浩子
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	平成15年 2月 12日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第2項
最終学歴	昭和54年 3月 東北大学薬学部薬学科 卒業
学位論文題目	Development of Fading Correction Method for a Quantitative Evaluation Using Imaging Plates as an Integral Dosimeter and Its Dosimetry Applications (イメージングプレートによる積算線量の定量評価のためのフェーディング補正法とその応用に関する研究)
論文審査委員	主査 東北大学教授 中村 尚司 東北大学教授 内田 俊介 東北大学教授 馬場 護 弘前大学教授 山寺 亮

論文内容要旨

イメージングプレート (IP) は、輝尽性ルミネセンス (Photo-Stimulated Luminescence : PSL) 特性を持つBaFBr:Eu²⁺ 結晶を蛍光体とする、2次元放射線分布測定器である。IPは放射線検出器として数多くの特長を持ちながら、フェーディングの大きいことにより、放射線量の絶対測定には不向きとされてきた。本研究では、フェーディング現象を実験的に明らかにすることで、フェーディング補正関数を決定した。さらに、積算線量評価法を確立し、放射線量の定量評価への応用が可能であることを実証した。

以下に、本論文の概要を示す。

第1章 序論

研究の背景と目的を記した。現在、受動型積算型線量計としては、熱ルミネセンス線量計 (TLD)、蛍光ガラス線量計 (FGD) 及び光刺激ルミネセンス線量計 (OSLD) が汎用されている。これらと比較してIPには、感度が良く、広いダイナミックレンジをもつ、画像イメージが撮れる、また、素子の大きさを変えることができるため感度をさらに上げることができる、市販測定装置で容易に測定できる、という長所があり、積算線量の定量評価方法を確立することにより、特長を生かした新しいタイプの積算線量計として環境線量測定や医療現場の線量測定などいろいろな方面への応用が考えられる。

第2章 イメージングプレートの原理・特性及び従来の応用

IPの構造、輝尽発光メカニズム、読取りシステム、そして特性について述べた、従来の応用の大半がイメージャーとしてのものであり、これらに対して積算型線量計としてIPを用いようとする研究開発は、BaFBr:Eu²⁺ のフェーディングの大きいことが定量評価のネックとなり、ほとんど行われてこなかった。

第3章 フェーディング特性の検討及びフェーディング関数の開発

IPのフェーディング特性についてこれまで報告された結果は、お互いまったく一致を見ておらず、統一した見解に達していない。本章では温度依存性に注目することで、フェーディング特性を明らかにし、補正方法を確立することを試みた。

0~60℃において再現性の高いフェーディング曲線を作成した。フェーディング現象が強い温度依存性を示すことより、熱化学反応の1種であると考え、温度による反応速度の変化は、Arrhenius の反応速度式に従うことを示すとともに、フェーディング曲線が半減期の異なる3つの成分の和として示されることを実験的に明らかにした。温度変化を包括する共通の法則を見つけ、成分比が温度に依存しないことを証明し、フェーディング曲線を照射後の経過時間(t)と絶対温度(K)の2つの変数からなる関数として表わすことに成功した。従来、フェーディングを表わす式は時間経過についてのみを変数とする関数としてしか表わされておらず、温度も変数として組みこんだ関数は本研究により初めて表わされた。

第4章 フェーディング補正関数の確立

前章の実験で作成した関数は、0~40℃の間で誤差15%内で実験値をよく再現していた。しかし、50℃以上の経過時間が長いところでは計算値が実測値を下回っており、30~50%の差が認められた。このことは、成分比は小さいものの長い半減期を持つ第4成分の存在を示唆する。

本章では、第4成分の存在を実験的に示し、これを組み入れることにより、フェーディング補正関数を実測値をより良く再現できるものに改善した。BAS-URを用いたときの関数は4成分モデルとして以下のように表わされる。

$$\begin{aligned}
 (\text{PSL})_{t,k} / (\text{PSL})_{0,k} = & 0.461 \exp \{-2.19 \times 10^8 \cdot t \cdot \exp(-6.14 \times 10^3 / K)\} \\
 & + 0.277 \exp \{-1.60 \times 10^{13} \cdot t \cdot \exp(-1.02 \times 10^4 / K)\} \\
 & + 0.230 \exp \{-7.98 \times 10^{12} \cdot t \cdot \exp(-1.05 \times 10^4 / K)\} \\
 & + 0.030 \exp \{-1.99 \times 10^{12} \cdot t \cdot \exp(-1.05 \times 10^4 / K)\} \\
 & + 0.002 \exp \{-4.96 \times 10^{10} \cdot t \cdot \exp(-1.05 \times 10^4 / K)\}
 \end{aligned} \tag{1}$$

ここで、 $(\text{PSL})_{t,k}$ 、 $(\text{PSL})_{0,k}$ は照射後t時間、0時間のPSL密度であり、Kは照射時から読取りまでIPを放置した絶対温度である。式(1)から算出した計算値と実験値との比較を図1に示す。全ての温度及び経過時間において計算値は実験値をよく再現しており、実測値との誤差は最大でも15%であった。

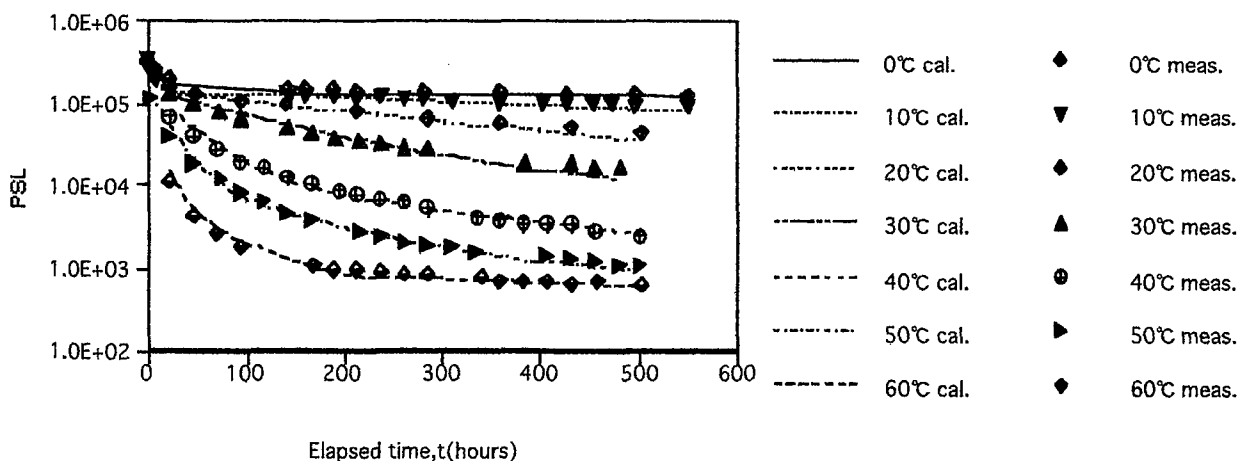


図1 式(1)から算出した計算値と実験値との比較

次に、照射後放置している間に温度が変化した場合について検討した。計算によるPSL値は実験値とよく一致しており、温度変化に関数に対応できることが示された。

フェーディング補正関数より、各成分の活性化エネルギーを求めることが出来る。放射線の照射によりFセンターとよばれるF(Br⁻)とF(F⁻)の2種類の色中心が形成され、F(Br⁻)に捕獲された電子がPSLの発光

に寄与する。この電子が伝導帯へ光励起されるのに必要なエネルギーは2.1eVであるが、本研究による計算結果より、PSL発光に関わるFセンターには異なる熱的な活性化エネルギーをもついくつかのレベルが浅いところにあること、これらの活性化エネルギーは0.53-0.90eVであることを明らかにした。即ち、フェーディングは、PSL発光過程とは別の熱的に浅いレベルを経由して電子が正孔と再結合する現象であることを示した。さらに、成分が進むにつれて活性化エネルギーが明らかに高くなっており、熱的にフェーディングが生じやすい成分とそうでない成分とがあることも示した。

さらに、フェーディングの α, β, γ それぞれの線種による依存性及び同一線種におけるエネルギー依存性について検討を行った結果、 β, γ 線とも同一線種におけるエネルギー依存性は認められず、 α 線が大きく寄与する短半減期の第1成分以外、 α, β, γ 線の線種差によるフェーディングの差は認められないことがわかった。これにより、それぞれのIPにおいて固有の関数を作成しておけば、線種差又はエネルギー差に依存せず一つの関数によりフェーディングの補正が行えることが明らかになった。

また、測定器により、フェーディング特性が異なることが経験的に知られているが、2種類の測定器を用いて測定を行った結果、IP表面にあたるHe-Neレーザー光の輪郭の差がフェーディングの差の原因であることを明らかにし、その補正が可能であることを示した。

第5章 フェーディング補正関数を用いた積算線量測定への応用

前章までの結果により、アニーリングにより意図的に熱的活性化エネルギーの低いF⁻中心の捕獲電子を解放し短半減期成分のフェーディングを早めてやると、長半減期成分だけが残り、積算線量を安定して定量測定することが可能になることが示唆された。アニーリングにより同時に感度も低下するため、感度のある程度保ちつつ、フェーディングの影響をできるだけ低く抑えるためのアニーリングの1カ月積算線量計としての最適条件を、2種類のIPについてフェーディング補正関数を利用して検討した。

その結果、BAS-MSを用いて積算後24時間80℃でアニーリングを行うという条件が、1カ月積算線量計として定量評価を行うには実用的に最適であることが示された。アニーリングによりPSL密度と線量との間に良好な直線関係が生じるため、PSL密度だけから1カ月の積算線量を絶対評価できる。本法を1カ月積算計として環境モニタリング測定への応用し、環境用蛍光ガラス線量計 (FGD) 及び環境用ルクセルバッジ (OSLD) による測定結果と比較検討を行ったところ、よい相関を示した。本法による検出下限は1.3 μ Sv/月と算出され、FGD及びOSLDの10 μ Sv/月と比べてかなり低いこと、繰り返し測定における再現性が高いため、PSL値を定量的に加算することで、感度をよりよく高くできることが示された。

さらに、アニーリングを利用することで、高線量評価ができる手法の開発を試みた。高線量下で使用され1回目の読み取りでは測定上限をオーバーしてしまったIPに、アニーリングを行うことでPSL発光を減少させ、その後で再び読み取ることによって、光電子増倍管 (PMT) を飽和させないようにPSL発光を制御し、さらに2桁以上高線量側まで線量評価できる手法を開発した。本法により定量測定を行うことが可能であり、環境放射線レベルから事故時などの大線量レベルまで広範囲 (γ 線に対して7桁以上; $10^{-6} \sim 10^1$ Sv) の線量測定ができることを示した。

第6章 低濃度放射性廃液の測定への応用

フェーディング補正関数を利用してフェーディングの影響の評価を行い、低レベル放射性廃水を前処理せずそのままIPにより測定する新しい方法を開発した。

第7章 結論

第7章においては、本論文の総括を行い、今後の課題についても述べた。

本研究ではIPのフェーディング補正関数を照射後の経過時間(t)と絶対温度(K)の2つの変数からなる関数として表わすことに成功し、これを用いて積算線量評価法を確立し、放射線モニタリング等などの放射線量の定量評価に応用可能であることを実証し、新しいタイプの積算線量計としての有用性を確認した。

論文審査結果の要旨及び学力確認結果の要旨

論文提出者氏名	大内 浩子
論文題目	イメージングプレートによる積算線量の定量評価のためのフェーディング補正法とその応用に関する研究
論文審査及び学力確認担当者	主査 教授 中村 尚司 教授 内田 俊介 教授 馬場 護 教授 山寺 亮(弘前大学)

論文審査結果の要旨

イメージングプレート (IP) は、BaFBr:Eu²⁺ 結晶を蛍光体とする 2 次元放射線分布測定器であり、医学、生物学、物理学等様々な分野で広く利用されている。しかし、フェーディングの大きいことが放射線量の絶対測定には不向きとされ、積算型線量計としての研究開発はこれまでほとんど行われてこなかった。

本論文は、高い感度を有し、ダイナミックレンジが広いという IP の長所を生かした積算線量計としての応用を行うため、フェーディング特性を明確にしたうえで、積算線量の定量評価方法を開発したものであり、全編 7 章よりなる。

第 1 章は序論であり、本研究の背景と目的を述べている。

第 2 章では、IP の構造、輝尽発光メカニズム、読取りシステム、そして特性について述べ、これらを踏まえて従来の応用がどのように行われてきたかに言及している。

第 3 章では、IP のフェーディング特性についてのこれまでの報告例を示したうえで、フェーディングの温度依存性を実験的に明らかにし、Arrhenius の反応速度式を測定値に応用することにより 3 成分からなるフェーディング補正関数を開発している。温度についても変数として組み入れた関数が示されたのは本論文が初めてである。

第 4 章では、フェーディング補正関数をより良く実測値を再現できるものに改良するとともに、フェーディングの α 、 β 、 γ 線に対する線種依存性及び同一線種におけるエネルギー依存性を実験的に明らかにし、それぞれの線種に対応する補正関数の作成を行っている。 α 線の照射による第 1 成分以外は放射線種による依存性はないこと及び同一線種においてのエネルギー依存性がないことを明らかにしており、これらは重要な知見である。さらに、読取り装置による影響を調べ、その影響の補正が可能であることを示している。

第 5 章では、本論文で開発したフェーディング補正関数を利用して、積算中のフェーディングの影響を最小化する手法を見出し、積算線量評価法を開発している。さらに、この評価法を用いて放射線モニタリング及び高線量積算計への応用を行い、実用可能であることを示している。

第 6 章においては、IP の低濃度放射性廃液測定への応用を行い、実用化をはかっており、工学的有用性が高い。

第 7 章においては、本論文の総括を行い、結論を述べている。

以上要するに本論文は、IP のフェーディング補正法を開発し、これを用いて積算線量の定量評価法を確立し、その有用性を示したもので、保健物理学及び放射線管理学の発展に寄与するところが大きい。

よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として合格と認める。

学力確認結果の要旨

平成 14 年 12 月 24 日、審査委員ならびに関係教官出席のもとに、学力確認のための試問を行った結果、本人は量子エネルギー工学に関する十分な学力と研究指導能力を有することを確認した。

なお、英学術論文に対する理解力から見て、外国語に対する学力も十分であることを認めた。

論文提出者氏名	大内 浩子
論文題目	イメージングプレートによる積算線量の定量評価のための フェーディング補正法とその応用に関する研究
論文審査担当者	主査 教授 中村 尚司 教授 山寺亮 (弘前大学) 教授 馬場護 (サイクロトン・ラジオアイソトープセンター)
論文審査結果の要旨	
<p>イメージングプレート (IP) は、BaFBr:Eu²⁺ 結晶を蛍光体とする 2 次元放射線分布測定器であり、医学、生物学、物理学等様々な分野で広く利用されている。しかし、フェーディングの大きいことが放射線量の絶対測定には不向きとされ、積算型線量計としての研究開発はこれまでほとんど行われてこなかった。本論文は、高い感度を有し、ダイナミックレンジが広いという IP の長所を生かした積算線量計としての応用を行うため、フェーディング特性を明確にしたうえで、積算線量の定量評価方法を開発したものであり、全編 7 章よりなる。</p> <p>第 1 章は序論であり、本研究の背景と目的を述べている。</p> <p>第 2 章では、IP の構造、輝尽発光メカニズム、読取りシステム、そして特性について述べ、これらを踏まえて従来の応用がどのように行われてきたかに言及している。</p> <p>第 3 章では、IP のフェーディング特性についてのこれまでの報告例を示したうえで、フェーディングの温度依存性を実験的に明らかにし、Arrhenius の反応速度式を測定値に応用することにより 3 成分からなるフェーディング補正関数を開発している。温度についても変数として組み入れた関数が示されたのは本論文が初めてである。</p> <p>第 4 章では、フェーディング補正関数をより良く実測値を再現できるものに改良するとともに、フェーディングの α、β、γ 線に対する線種依存性及び同一線種におけるエネルギー依存性を実験的に明らかにし、それぞれの線種に対応する補正関数の作成を行っている。α 線の照射による第 1 成分以外は放射線種による依存性はないこと及び同一線種においてのエネルギー依存性がないことを明らかにしており、これらは重要な知見である。さらに、読取り装置による影響を調べ、その影響の補正が可能であることを示している。</p> <p>第 5 章では、本論文で開発したフェーディング補正関数を利用して、積算中のフェーディングの影響を最小化する手法を見出し、積算線量評価法を開発している。さらに、この評価法を用いて放射線モニタリング及び高線量積算計への応用を行い、実用可能であることを示している。</p> <p>第 6 章においては、IP の低濃度放射性廃液測定への応用を行い、実用化をはかっており、工学的有用性が高い。</p> <p>第 7 章においては、本論文の総括を行い、結論を述べている。</p> <p>以上要するに本論文は、IP のフェーディング補正法を開発し、これを用いて積算線量の定量評価法を確立し、その有用性を示したもので、保健物理学及び放射線管理学の発展に寄与するところが大きい。</p> <p>よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として合格と認める。</p>	

論文審査結果の要旨

イメージングプレート (IP) は、 BaFBr:Eu^{2+} 結晶を蛍光体とする 2 次元放射線分布測定器であり、医学、生物学、物理学等様々な分野で広く利用されている。しかし、フェーディングの大きいことが放射線量の絶対測定には不向きとされ、積算型線量計としての研究開発はこれまでほとんど行われてこなかった。本論文は、高い感度を有し、ダイナミックレンジが広いという IP の長所を生かした積算線量計としての応用を行うため、フェーディング特性を明確にしたうえで、積算線量の定量評価方法を開発したものであり、全編 7 章よりなる。

第 1 章は序論であり、本研究の背景と目的を述べている。

第 2 章では、IP の構造、輝尽発光メカニズム、読取りシステム、そして特性について述べ、これらを踏まえて従来の応用がどのように行われてきたかに言及している。

第 3 章では、IP のフェーディング特性についてのこれまでの報告例を示したうえで、フェーディングの温度依存性を実験的に明らかにし、Arrhenius の反応速度式を測定値に適用することにより 3 成分からなるフェーディング補正関数を開発している。温度についても変数として組み入れた関数が示されたのは本論文が初めてである。

第 4 章では、フェーディング補正関数をより良く実測値を再現できるものに改良するとともに、フェーディングの α 、 β 、 γ 線に対する線種依存性及び同一線種におけるエネルギー依存性を実験的に明らかにし、それぞれの線種に対応する補正関数の作成を行っている。 α 線の照射による第 1 成分以外は放射線種による依存性はないこと及び同一線種においてのエネルギー依存性がないことを明らかにしており、これらは重要な知見である。さらに、読取り装置による影響を調べ、その影響の補正が可能であることを示している。

第 5 章では、本論文で開発したフェーディング補正関数を利用して、積算中のフェーディングの影響を最小化する手法を見出し、積算線量評価法を開発している。さらに、この評価法を用いて放射線モニタリング及び高線量積算計への応用を行い、実用可能であることを示している。

第 6 章においては、IP の低濃度放射性廃液測定への応用を行い、実用化をはかっており、工学的有用性が高い。

第 7 章においては、本論文の総括を行い、結論を述べている。

以上要するに本論文は、IP のフェーディング補正法を開発し、これを用いて積算線量の定量評価法を確立し、その有用性を示したもので、保健物理学及び放射線管理学の発展に寄与するところが大きい。

よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として合格と認める。