講座

個人被ばく線量計の最近の展開

Ⅱ. 光刺激ルミネセンス (OSL) 線量計
——測定原理, 開発からシステム運用まで——†

R. Craig YODER

Landauer Inc., 2 Science Road, Glenwood, IL 60425-1568, USA

Key Words : radiation, dosimetry, personal monitoring, optically stimulated luminescence

1. はじめに

放射線取り扱い作業中に受ける被ばく線量の測定に用いる光刺激ルミネセンス (OSL: Optically Stimulated Luminescence) 線量計は, 最近開発された先進的な線量計である。この線量計による個人被ばく線量測定のサービスは, 1998年6月に米国で, 続いて2000年4月に日本でも開始された。

この OSL 線量計は, 炭素を添加した α -アルミナ ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$) の素材からなる。 α -アルミナは, 高感度の熱ルミネセンス線量計 (TLD) 材料としても知られており, 放射線の被ばく量に比例して励起電子が格子欠陥に捕捉される。それを特定の波長を持った光で刺激すると, 受けた放射線量に比例した蛍光を刺激中と刺激後に発する。この放出された蛍光量を測定することにより, 受けた放射線量を定量するものである。

光刺激ルミネセンス (OSL) は, 天然の石英や長石を含んだ考古学的試料の年代測定に用いられてきた。これらの試料からでるルミネセンスから, その物質が生成したときから今までの

時間に受けた自然バックグラウンド放射線の総量を推定できる。同じように原子力事故があったサイトの周辺線量分布は, 磁器中に含まれる酸化アルミニウムの OSL 特性を利用して知ることができる。家庭内にある陶磁器を用いて今まで受けた線量を測定し, 集団線量およびその影響について, 広範囲にわたる放射線量地図を作成することが可能になった。さらに結晶粉末を薄膜状に加工したシートは, レーザーでスキャンし, コンピュータ画面にデジタル画像として処理することも可能なイメージングプレートとして使用されている。

近年, 陰イオン欠陥のある $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ が非常に高感度の OSL 結晶であることが明らかにされてきた。OSL 法を線量測定に利用する試みは, 最初, 1950年代から60年代にかけて行われた^{1) - 3)}。当初の研究対象となった希土類元素を添加した硫黄化合物^{2) - 4)}は, MgS や CaS などであった。これらの候補材料は, 放射線感受性および赤外線による光刺激応答性とも高効率を有していたが, 室温で著しいフェーディングがあった上にエネルギー依存性が高く, 個人線量計として利用するには困難であった。

その後, BeO , $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ や $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ などの硫黄化合物を用いて, 深いエネルギーポテンシャルに捕捉された励起電子を光刺激によって浅いポテンシャル準位に移し, 室温でそこから発する蛍光を測定して線量計として利用する方法が研究された。いわゆる DOSL (Delayed

†Development of Dosimeters for Personal Monitoring. II. Optically Stimulated Luminescence Dosimeter. R. C. YODER, Ph. D. :Landauer Inc., Glenwood, IL 60425-1568, USA.

(訳) 長瀬ランダウア株式会社 石山 智
103-8487 東京都中央区日本橋久松町11-6

OSL)⁵⁾⁻¹¹⁾である。この測定原理を後に説明するパルス式 DSL (POSL) と合わせて模式的に示したのが図 1 である。しかし、これらの材料は、結局、個人線量計として必要な感度が不足していた。

この DOSL と類似の手法に COSL (Cooled OSL) がある¹²⁾。照射された蛍光体に低温で光を当てて深い捕捉準位から浅い準位に移動させ、その後、温度を室温に上げた際に発生する熱蛍光を計測する、というアイデアであった。これらの試みも操作プロセスを安定的に実現させることに困難があり、この研究は実用に至らなかった。

他にも同様な OSL 原理を用いた被ばく線量測定法がある。アルカリ金属のハロゲン化物 LiF や蛍光ガラスに放射線を照射すると、吸収線量に比例して安定な照射欠陥が生じる。これに光刺激を与えると、格子欠陥中の電子が基底状態から励起状態に遷移し、基底状態に戻る際に蛍光を発する。この場合の光刺激は格子欠陥の電離状態に変化を起こさず、単に励起状態に移すだけの働きをする。したがって、測定は繰り返し行うことができる。この蛍光ガラスを用いた個人線量計は、ガラスバッジとして実用化されている^{13), 14)}。

一方、これらの研究開発結果をもとに、改良した炭素添加の α -アルミナを用いたパルス式 OSL (POSL) が開発された^{15), 16)}。この方法は、線量測定素子にパルス状の刺激光を当て、放出された蛍光をパルスとパルスの間で測定する。

刺激光照射中の蛍光測定は行わないので、検出効率を向上させ、また刺激光と蛍光の弁別用光フィルタを省略することができた。

その後、刺激光に LED を用いて刺激中も光フィルタにより刺激光を除いて蛍光測定する測定法も開発され、日本で運用されている。

2. パルス式 OSL 法の測定原理と手法

レーザーを用いた OSL 法では、その強力な刺激光に比較して信号成分の蛍光は微弱な場合が多く、通常の連続光による刺激で線量測定する場合、光電子増倍管に入射する刺激光をフィルタで十分に除去する必要がある。特に低線量被ばくを測定するに当っては、刺激光の除去が不十分だと、それがバックグラウンドとなって検出下限を押し上げることになる。この困難を解決するために採用されたのがパルス式 OSL (POSL) である。POSL 測定法を実現するためには、用いる測定素子材料の蛍光寿命と同調したパルス間隔を考慮して光電管のゲート開閉時間を決めている。現在、使用している OSL 線量計は、半減期が 35 ms 程度で約 420 nm に広いピークを持つ炭素添加のアルミナ結晶 (α - Al_2O_3 :C) を用いている。特にこの検出素子材料は、光刺激を受けた際に励起電子が浅い捕捉準位に再捕捉されることなく、ただちに蛍光中心と結合する性質を持ち、そのために温度依存性がないという特性を持っている。同じ炭素添加のアルミナで TLD あるいは DOSL で用いられてきた材料と比較した蛍光寿命の時間経過特

図 1 OSL 発光原理

図2 各種アルミナの蛍光時間特性

性を図2に示す^{17), 18)}。

蛍光寿命の短いアルミナで構成した測定素子を、光刺激中の数え落しが無視できる程度にその寿命より十分短いパルスで光刺激し、発生した蛍光を短時間で光電子管により計数する。これにより効率よく蛍光を計測することができる。

このPOSL測定の時変化の模式図を図3に示す。刺激光のパルス幅 T_1 は 300 ns で光電子増倍管のゲート閉鎖と同期している。パルス幅はゲート閉鎖時間 T_2 の 15 μ s に比較して十分短く、また、この 15 μ s の計測無効時間は、計測1サイクルの 250 μ s の 6% に過ぎない。この計測方式では計測時間 T_3 は 235 μ s となり、これらの各時間を素子の蛍光寿命 τ と比較すると $T_1 \ll T_2 \ll T_3 \ll \tau$ となる。したがって、この計測回路の設定で十分な蛍光を計測でき、かつ数え落としもきわめて少ないものとなっている。

光刺激のパルスとパルス間で光電子増倍管のゲートが開いて蛍光を収集する時間は、蛍光発光の半減期に比較して著しく短く、しかも光刺激パルスの周波数が高いと、前のパルスによる蛍光が消失する前に次のパルスによる蛍光が重畳される。POSL信号強度は光パルスの数、

すなわち刺激時間に比例して増加し、被ばく量に比例した蛍光中心の数と蛍光の寿命とで決まる平衡値に達する。さらに光パルスを照射し続けると、POSL信号強度は一定値を維持し、その後、徐々に蛍光中心が減少するにつれてPOSL信号も減少する。

測定素子の蛍光発光量は、刺激光量が一定ならば被ばく量に比例する。読取り装置の刺激光量を適切に選定すれば、素子に捕捉された励起電子の蛍光量を光電子増倍管の性能に合わせて制御でき、安定した信号による被ばく量を測定できる。また、刺激光量を一定に保つことにより複数回測定が可能であり、その結果、必要が生じた時には、保存しておいた測定素子を再測定することができる。

POSL線量計に使用される α -アルミナは、可視光により容易に光アニーリングが可能である。測定素子を簡便に初期状態に戻すことができるので実用的な線量計になる。また、極短時間の刺激パルス光によって発光する短い半減期の蛍光を測定するという光学的な測定方法が適用でき、測定値は短時間に客観的で定量的なデジタルデータとして取得される。バッジ1枚の

図3 POSL 計測ダイアグラム (米国ランダウア社)

測定処理時間は数秒であり、デジタルデータの計算機処理で大量のデータを正確・迅速に処理できるシステム構築が可能となった。

また、高感度の蛍光物質を透明シートに薄く塗布することにより、低エネルギーの β 線を検出することが可能になり、多孔板のフィルタ部分をレーザー照射し、CCDカメラで撮像することにより、被ばく方向依存が推定できるようになった。

一方、すでに述べたように、この米国実用化に引き続いて、日本ではより簡便で運転しやすい刺激光源のLEDとそれを用いたシステムを採用することになり、装置と線量評価手法の開発が行われた。

3. 線量計の構造

炭素添加の α -アルミナによるOSL線量計は、Luxel (ルクセル) バッジとして米国ランダウア社で実用化された。その外形の形状は図4に示すように六角で、これをホルダーにつけて胸部や腹部などに装着する。

粒径が約 $50\mu\text{m}$ の α -アルミナ粉体をポリエステル樹脂フィルムに薄く固定した測定素子が、図5に示すような線量計のフィルタパックに挟まれている。素子のコーティング部分はおよそ 18mm^2 で、約 80mg の粉末を含んでいる。フィルタパックは、測定素子に入射した放射線の種類とエネルギーによって感度を補正する必要があるため、Sn (スズの厚さ 0.5mm)、Cu (銅

図4 OSL 線量計 (ルクセルバッジ) 外観

図5 OSL線量計の測定素子とフィルタパック

の厚さ0.2 mm) のフィルタとオープンウインドウを備えている。また、必要に応じて被ばくの状態を把握するため、イメージング情報を得ることのできるイメージングフィルタ（銅の多孔板）を備えている。フィルタパックは遮光性の包装紙（ペーパーパック）に封入被覆され、さらにこのペーパーパックを塩化ビニルの透明で堅牢なプラスチックケース（プリスター）に密封封入し、機械的強度と汚染防止機能を持たせている。

測定素子は、すべて米国ランダウア社で製造され、わが国にも供給されている。主な蛍光中心は、2電子を捕捉する酸素の空孔で、放出する蛍光波長は420 nm、蛍光の半減期は約35 msである。POSL用に調整された特殊な素材で、長い蛍光寿命で熱ルミネセンスを放出する成分を含まない材料となっている。

4. 測定装置

POSL線量計の測定装置は、図6に光学系の

模式図を示す。刺激光源には、波長532 nm、パルス幅300nsで出力を2段階に可変できるNd:YAGレーザーが用いられている。

その他、パルス発生制御装置、ビームスプリッターとビーム強度測定装置、光学系フィルタ、光電子増倍管、刺激光側と光電子増倍管側のシャッターなどがある。

一方、日本では複数のLEDが自動読取り装置に組み込まれ、532 nmの光で連続刺激する。刺激光強度は、線量計の被ばく量によりLEDの点灯個数を2段階に調整して変化させる。光電子増倍管による蛍光測定は、連続刺激中も行われ、一定の時間間隔で積分値を計数処理している。したがって、パルス制御、ビーム強度の測定、シャッターとゲート制御回路を持たない、簡素な構成となっている。

光学系全体のシステムは、コンピュータによってプロセスを制御し、機械系システムと合わせて遮光紙の切断から素子の剥き出し、測定、測定済み素子の保存加工まで、すべてが暗室内

図6 OSL線量読み取り光学系構成模式図（米国ランダウア社設備）

図7 自動読取り装置

で処理されている。自動読取り装置の外観を図7に示す。レーザー方式とLED方式は光学系の構成が一部異なるものの、自動読み取り装置のハードウェアの基本的な構成と全体の構造はまったく同一である。

5. 線量計の特性

5・1 線量直線性

この α -アルミナを用いた線量計を POSL 法で測定したときの直線性は、図8に示すとおりである。約100 mW の大きなレーザー光強度を用いる低線量の測定領域から、出力1.3 mW の弱強度レーザー光を用いる高線量領域まで、連続して高い信頼度で測定が可能である。図8に示すとおり、測定の範囲は0.01 mGy から10 Gy まで可能で、0.1 mSv の光子および β 線被ばくに対する測定精度は、95%信頼度で0.02 mSv となっている。

5・2 エネルギー特性

光子に対する OSL 線量計のエネルギー特性を図9に示す。 α -アルミナは、比較的エネルギー依存性が小さく、第3章の「線量計の構

造」で説明したフィルタを用いて、それぞれの応答読取り値の間に適切なアルゴリズムを構築することにより、主たる被ばく線源のエネルギーを推定でき、さまざまなエネルギー範囲や混合線源に対して妥当な線量応答特性となるような評価手法が確立されている。

5・3 フェーディング特性

線量計は、常温を超えて体温近くの温度で装着されたり、あるいは誤って環境条件の上限近くの温度に曝されることがある。その場合、放射線による照射効果が変わることがある。OSL 線量計が常温を超える温度にさらされた場合の測定値の変化を確認した。 α -アルミナでは、蛍光中心が深いポテンシャルを有しているので、熱エネルギーによる捕捉電子解放は小さい。一定量の照射を行った OSL 線量計を室温 (24℃) および高温 (40℃) で長期間保持した後に測定した結果を図10に示す¹⁹⁾。図10は、日本での実験結果であるが、体温を超える温度で4か月保持しても、測定値の減少はおよそ10%であり、実用上の問題はないものと判断している。

図8 α -アルミナの POSL 法における線量応答依存性

図9 OSL 線量計のエネルギー特性

5.4 再測定性

最初何回かの線量を測定した後、再確認のために測定をやり直した場合の測定値変化を調べた。刺激光は捕獲されている励起電子の一部分しか解放していないため、刺激光を再び照射す

ることにより再測定することができる。OSL 線量計の再測定特性を図11に示す¹⁹⁾。異なる線量を OSL 線量計に照射して、繰返し測定したデータをプロットしたものである。このデータは日本で LED 刺激に対する応答として取得し

図10 OSL 線量計のフェーディング特性

図11 OSL 線量計の再測定特性

たものである。何回かの測定後でも、試験したすべての照射線量の範囲で精度よく、初回の測定値と同じ値が得られることが示されている。

5・5 イメージング画像²⁰⁾

OSL 線量計は、高感度の α -アルミナ結晶粉末が透明プラスチック上に薄く塗布されているので、フィルタに多孔板を組み込み、面状に刺激光を照射して得られた蛍光画像を CCD カメラで撮影することにより、着用中に人間が動き回って被ばくする通常の場合と異なる異常な被ばく状態を確認することができる。すなわち、

バッジが放置されて被ばくをした場合やポケット内でペンやコインなどで部分的に遮蔽された状態で被ばくした場合などは、イメージ画像によりそれらの異常状態を発見することができる。図12(a)にバッジが放置された状態で被ばくした画像を、(b)に移動着用中の被ばくの画像を示す。

5・6 OSL 線量計の諸特性

確認された OSL 線量計の諸特性は、表 1 のとおりとなっている。

図12(a) 静止被ばくのイメージ画像

図12(b) 移動中被ばくのイメージ画像

表1 OSL 線量計の諸特性

1. 測定線質	X・ γ 線、 β 線
	X・ γ 線、 β 線、中性子線
2. 測定エネルギー範囲	X・ γ 線 5keV～10MeV
	β 線 150keV～10MeV
3. 測定範囲	X・ γ 線 0.01mSv～10Sv
	β 線 0.1mSv～10Sv
4. 線量直線性	0.1mSv $\pm 10\%$ 以内
	0.1mSv～100mSv $\pm 5\%$ 以内
5. 指示誤差	$\pm 5\%$ 以内 (^{137}Cs γ 線 1mSv において)
6. 素子感度のばらつき	同一ロット内で $\pm 5\%$ 以内
7. エネルギー特性: 20keV～662keV (^{137}Cs)	$\pm 10\%$ 以内 (2mSv 照射時)
8. 方向依存性 (線量計正面より上下左右 60° 以内で)	$\pm 10\%$ 以内 (^{137}Cs γ 線で)
	$\pm 20\%$ 以内 (実効エネルギー83keVで)

6. 運用サービス

6・1 日本での適用前確認

米国での OSL 線量計のサービス開始に続いて、2000年4月から日本での適用を計画した。日本では、米国でのレーザー光刺激による POSL 方式の代りに運転と保守、補修のより簡単な LED による連続刺激、連続蛍光測定方式が採用された。それ以外の機械部分のハードウェアは米国と同一の仕様が維持された。

LED を用いた読取り装置の光学系模式図を図13に示す。レーザーによる POSL 方式に比較して、構成がきわめて簡略化されていることがわかる。

適用に先だって、日本でも OSL 線量計の性能確認を行うことになり、各種の特性確認用試

験を1999年から日本原子力研究所東海研究所で開始した。試験の結果は「OSL 線量計の諸特性」(JAERI-Tech 2000-089)として刊行されている。

この試験では、OSL 線量計の特性は、LED の緑色光で刺激され、発光した蛍光を読み取ることにより得られた。その結果、諸特性はレーザー光によるものと相違ないことが確認され、日本の法体系に合わせた線量評価のアルゴリズムが構築された。

6・2 運用サービス

基本的な OSL 線量計の性能を確認した後、国内におけるサービス運用がマニュアル操作の読取り装置を用いて2000年4月から開始された。サービスは従来のフィルムバッジサービスの代

図13 LEDによる自動読取り装置の光学系模式図

替として実施された。フィルムバッジから OSL 線量計への転換が進んで処理量が増大するのに合わせて、2000年10月には最初の自動読取り装置が導入された。

その後、2001年4月からはフィルムバッジはすべてが OSL 線量計に変換されて、現在に至っている。

7. おわりに

以前に発見され、いくつかの分野で応用されてきた広い意味での OSL 現象は、ようやく OSL 線量計としてフィルムバッジに代わる放射線被ばく線量計として実用化された。フィルムバッジの化学的手法を用いてアナログ像を取得し、デジタル値に変換する従来法から、光という物理的計測手段によりデジタル信号を直接取得し、加工・処理する方法への転換は、マニュアル処理からコンピュータ化、アナログからデジタル化、化学的手法から物理的手法（機械）へという現代文明を象徴している。大量のデータを迅速に処理するという要求に直接応える優れた現代的な手法である。実用化は緒についたばかりであり、これからさらにシステムは、緻密、精密化が図られるものと期待される。

文 献

- Antonov-Romanovskii, V. V., Keirum-Marcus, I. F., Poroshina, M. S. and Trapeznikova, Z. A.: In Conference of the Academy of Sciences of the USSR on the peaceful Uses of Atomic Energy, Moscow, 1955. USAEC Report AEC-tr-2435 (Pt. 1), pp. 239-250 (1956)
- Braunlich, P., Schafer, D. and Scharmann, A.: A Simple Model for Thermoluminescence and Thermally Stimulated Conductivity of Inorganic Photoconducting Phosphors and Experiments Pertaining to Infrared-Stimulated Luminescence. In: Proc. 1st Int. Conf. on Luminescence Dosimetry, Stanford, 21-23 June 1965. CONF 650637, pp. 57-73 (1967)
- Sanborn, E. N. and Beard, E. L.: Sulfides of Strontium, Calcium, and Magnesium in Infrared-Stimulated Luminescence Dosimetry. In: Proc. 1st Int. Conf. on Luminescence Dosimetry, Stanford, 21-23 June 1965. CONF 650637, pp. 183-191 (1967)
- Rao, R. P., de Murcia, M. and Gasiot, J.: Optically stimulated luminescence dosimetry, *Radiat. Prot. Dosim.*, **6**, 64-66 (1984)
- Tochilin, E., Goldstein, N. and Miller, W. G.: Beryllium Oxide as a Thermoluminescent Dosimeter, *Health Phys.*, **16**, 1-7 (1969)
- Rhyner, C. R. and Miller, W. G.: Radiation dosimetry by optically stimulated luminescence of BeO, *Health Phys.*, **18**, 681-684 (1970)
- Hanniger, J., Horlbeck, B., Hubner, K. and Prokert, K.: The evaluation of $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ -Polyethylene detectors with the aid of the optically stimulated luminescence (OSL), *Nucl. Instrum. Meth.*, **204**, 209-212 (1982)
- Bernhardt, R. and Herforth, L.: Radiation Dosimetry by Optically Stimulated Phosphorescence of $\text{CaF}_2:\text{Mn}$. In: Proc. of 4th Conf. on Luminescence Dosimetry, Krakow, Poland, 27-31 August 1974, pp. 1091-1097 (1974)
- Pradhan, A. S. and Bhatt, R. C.: Photostimulated

- luminescence of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **28**, 534-535 (1977)
- 10) Pradhan, A. S. and Bhatt, R. C.: Photostimulated luminescence and thermoluminescence in $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, *Phys. Status Solidia*, **68**, 405-411 (1981)
- 11) Yoder, R. C. and Salasky, M. R.: A dosimetry system based on delayed optically stimulated luminescence, *Health Phys.*, **72**, S 18-S 19 (1997)
- 12) Miller, S. D., Endre, G. W. R., McDonald, J. C. and Swinth, K. L.: Cooled optically stimulated luminescence in $\text{CaF}_2:\text{Mn}$, *Radiat. Prot. Dosim.*, **25**, 201-205 (1988)
- 13) Miller, S. D. and Endre, G. W. R.: Laser-induced optically stimulated M-Centre luminescence in LiF, *Radiat. Prot. Dosim.*, **33**, 59-62 (1990)
- 14) Piesch, E., Burgkhardt, B. and Vilgis, M.: Progress in phosphate glass dosimetry: Experiences and routine monitoring with a modern dosimetry system, *Radiat. Prot. Dosim.*, **47**, 409-414 (1993)
- 15) Markey, B. G., Colyott, L. E. and McKeever, S. W. S.: Time - resolved optically stimulated luminescence from $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$, *Radiat. Meas.*, **24**, 457-463 (1995)
- 16) McKeever, S. W. S., Akselrod, M. S. and Markey, B. G.: Pulsed optically stimulated luminescence dosimetry using $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$, *Radiat. Prot. Dosim.*, **65**, 267-272 (1996)
- 17) Akselrod, M. S., Lucas, A. C., Polf, J. C. and McKeever, S. W. S.: Optically stimulated luminescence of Al_2O_3 , *Radiat. Meas.*, **28**, 391-399 (1998)
- 18) Akselrod, M. S. and McKeever, S. W. S.: A radiation dosimetry method using pulsed optically stimulated luminescence, *Radiat. Prot. Dosim.*, **81**, 167-176 (1999)
- 19) 鈴木朗史, 伊藤 精: OSL 線量計の諸特性, JAERI-Tech 2000-089 (2001)
- 20) Akselrod, M. S., Agersnap, N. and McKeever, S. W. S.: A procedure for the distinction between static and dynamic radiation exposures of personal radiation badges using pulsed optically stimulated luminescence, *Radiat. Meas.*, **32**, 215-225 (2000)
-