

平成 29 年 4 月 27 日現在

機関番号：13301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14290

研究課題名(和文) 2D, 3Dイメージ用ガラス放射線検出器の新規な測定法の確立と放射線飛跡への応用

研究課題名(英文) Novel measuring methods using 2D and 3D imaging glass detectors and their fluorescent nuclear track imaging applications

研究代表者

黒堀 利夫 (Kurobori, Toshio)

金沢大学・その他部局等・名誉教授

研究者番号：90153428

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究で得られた成果は以下のようにまとめることができる：(1)橙色RPLの代替としての青色RPLの使用で、通常必要な100℃, 10分程度の「プレヒート」処理が不要となった。このため書込み、読取り、消去の3工程全てを光処理だけで代替できた。(2)青色RPLの蛍光寿命は5 nsと格段に短いため、今後リアルタイムでの線量や線量率測定への応用が確認できた。(3)構築したディスク型蛍光ガラス読取機は共焦点配置を成しているため表面から深さ400 μm程度のイメージまで迅速に高いコントラストで再構築できた。(4)UV励起の共焦点レーザー顕微鏡を用いて、この材料での蛍光核飛跡の取得に世界で初めて成功した。

研究成果の概要(英文)：The data obtained in this study led to the following conclusions: (1)It should be possible for the three stages of operation of an Ag-activated phosphate glass detector -pre-heating, reading and erasing- to be performed optically, without the need to use a thermal heating furnace, as is typically done.(2)Some advantages of using the blue RPL instead of the typically used orange RPL were demonstrated and discussed. Specifically, the use of the blue RPL with a short lifetime of 5 ns in Ag-activated glass should be suitable for real-time measurements for the radiative doses as well as for simultaneous 3D imaging.(3)The use of a confocal detection system and the high luminescent RPL glass allow one to reconstruct a 3D image by combining each image at different depths from the surface to 400 μm.(4)A fluorescent track image of X-ray irradiated phosphate glass was taken with a confocal fluorescent image microscope, though a 405 nm laser line was not suitable for the excitation source.

研究分野：放射線物理計測

キーワード：蛍光ガラス線量計 放射線イメージング 銀活性リン酸塩ガラス ラジオフォトルミネッセンス 蛍光核飛跡 重粒子線 X線

### 1. 研究開始当初の背景

一般に放射線検出器は次の2つに分類できる:1つは能動型(active)つまり電子的な線量計であり、もう1つは本研究で扱う受動型(passive)つまりルミネッセンスを用いた線量計である。さらに、どのようなルミネッセンス現象を用いるかにより、RPL(Radio-Photo Luminescence), OSL(Optically Stimulated Luminescence), PL(Photo Luminescence), TL(Thermo Luminescence)などに分類できる。このうちRPL, OSL, PL現象は光励起により、TL現象は熱励起により発光する。これらの原理に基づく線量計はそれぞれ一長一短があるが、個人、環境、医療などへの応用に向け、その性能向上と共に新たな展開も現在活発に行なわれている。

しかしながら、研究開発当初、大面積(ここでは100 mm以上の径あるいは一辺)でしかもサブミクロン程度の高い空間分解能、広いダイナミックレンジ、広いエネルギー特性、非破壊読出し特性を有する2次元、3次元(2D, 3D)イメージ検出器の開発は国内・国外を通して研究者が知る限りにおいて見当たらなかった。

### 2. 研究の目的

本研究では受動型検出器の中で上記条件を満たすRPL現象に基づく、代表的な銀活性リン酸塩ガラス(以後、Agガラス)に着目した。これは放射線的特性、光学的特性、形態性に優れ、さらに日本が世界をリードしている材料の一つである。特に、本研究ではこれまで着目されていなかったAgガラスの青色RPLを用いた2D, 3Dイメージ検出器の開発および広い面積と高速読取りに重点を置いた機能ならびに高い空間分解能に重点を置いた機能を有する新規な読取機の開発も目的とした。

### 3. 研究の方法

研究方法の概要は以下の通りである:

- (1) 青色 RPL を用いることで「プレヒート工程(PH)」が不要となり、光学処理だけで、書込み、読取り、消去工程、全てを代替し実用化への礎の確立と実証
- (2) 上記の2つの異なる読取機能による迅速な3Dイメージングの収集ならびに高空間分解能な核飛跡イメージング収集読取機の構築と実証

### 4. 研究成果

#### (1) 「プレヒート(熱処理)」不要となることの実験的根拠

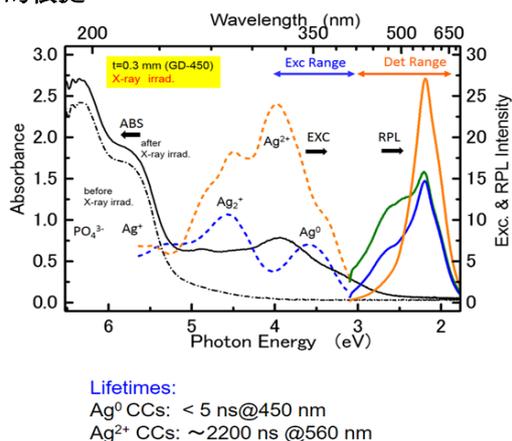


図1 定常状態でのX線照射したAgガラスの吸収、励起、蛍光スペクトル。

図1は典型的なAgガラスの吸収(ABS)、励起(EXC)、蛍光(RPL)スペクトルを示す。放射線照射後、形成される主な吸収帯としてAg<sup>0</sup>センター(ガラス中のAg<sup>+</sup>イオンが電子を捕獲、青色RPLの起源)とAg<sup>2+</sup>センター(Ag<sup>+</sup>イオンが正孔を捕獲、橙色RPLの起源)がある。それぞれの蛍光寿命は、前者が5 ns以下、後者が2200 ns程度と測定された。

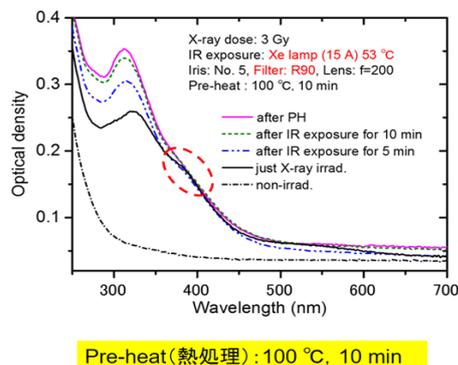


図2 プレヒートの代替として光励起の可能性と青色RPLではプレヒートが不要である根拠。

通常、銀ガラスを用いた線量計では、橙色RPL蛍光を利用した線量測定が行われている。図2の吸収スペクトルにおいて320 nm付近の吸収帯がAg<sup>2+</sup>センターによるものである。X線照射直後(黒線)ならびにPH(100°C, 10 min, ピンク線)処理後のスペクトルの変化を示している。これより320 nmの吸収帯の増大が確認でき、これ

は橙色 RPL 強度が PH 処理で増大することを示している。その中間の吸収カーブ(青線, 緑線)は X 線照射後, 赤外線(熱線)を 5, 10 min 照射したものである。この結果は PH の代替として光励起が可能であることを示唆している。一方, 370 nm 付近の吸収帯(赤色点線)は, この処理で吸収強度に変化がないことから, 青色 RPL では PH 工程が不要であることを示している。

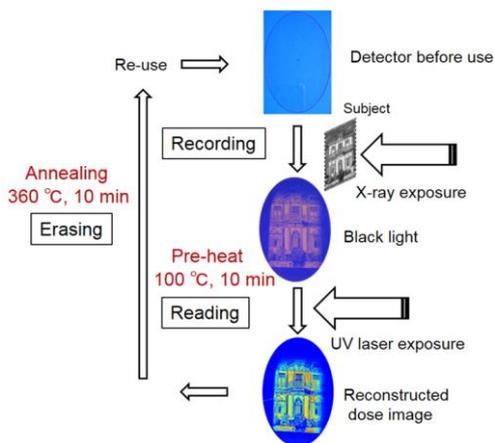


図 3 通常(橙色 RPL 使用)の銀ガラスの書き込み, 読取り, プレヒート, 消去の一連の工程。

図 3 に示すように, 銀ガラスに各種放射線照射によって格子欠陥の形で書込まれた情報は, 紫外線(UV)照射によって PH 工程が不要な青色 RPL として検出される。さらに再利用の為のイメージ消去において, 通常 360°C, 10 min 程度の熱処理を必要とするが, この工程も赤外線照射で消去可能なことが確認できた。

## (2) 2 種類の機能を有するイメージ読取機の構築と再構築の実証

### ① 迅速な 3D イメージ収集読取機

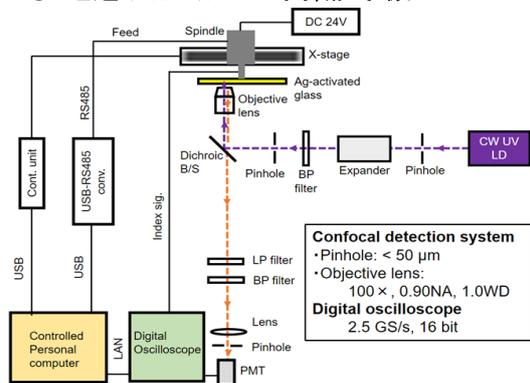


図 4 迅速な 3D イメージ読取機の構築。

図 4 は本研究で構築したディスク型 Ag ガラス検出器(直径 100 mm φ)を高速回転(2400 rpm)し, これを 1 μm 径に絞った UV 光(波長 375 nm)で励起し, この点光源から発する RPL 信号を検出する読取機を示している。本読取機の特徴は, 光電子増倍管(PMT)の直前にピンホールを設置し共焦点構成とすることで深さ方向の分解能を高めた。さらに, PMT で検出したアナログ信号を高速オシロスコープ(2.5 GS/s, 16 bits)でデジタル信号に変換後, LAN を介して大量(1 GB 程度)のデータを PC に高速転送することが可能となった。また, PMT の直前のバンドパスフィルタ(BP)を交換することで, 青色, 橙色 RPL 信号のどちらのイメージも容易に収集可能となった。

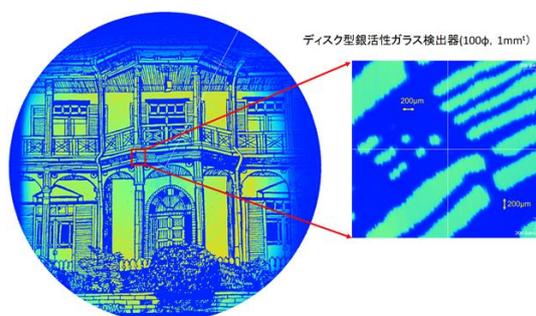


図 5 典型的な 2D 再構築イメージ(左)と拡大機能によるイメージ(右)。

図 5 は構築した読取機を用いてディスク型 Ag ガラス検出器(100 mm φ, 厚さ 1 mm)に格子欠陥の形で書き込まれた情報の 2D 再構築イメージ(左)とその一部を拡大機能で表示したイメージ(右)を示す。イメージ収集時間は回転速度, 掃引ピッチ, 測定領域などのパラメータ設定で異なるが, 数 10 μm 程度の分解能で全領域の場合, 読取から再構築まで 5 分程度であった。

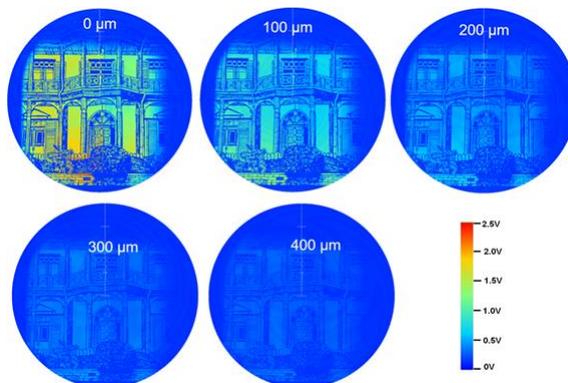


図 6 Ag ガラス表面(0 μm)から 400 μm 深さにおける 2D イメージの再構築。

図6は表面から100 $\mu\text{m}$ 間隔で測定した2Dイメージ再構築の一例である。これは図4でUV光を集光する対物レンズ(倍率100 $\times$ , 開口数NA 0.90, 作動距離WD 1.0 mm)のWDの微動を利用して特定の深さでのイメージを収集した。

## ② 高空間分解能なイメージの収集読取機

もう一つの読取機機能として, 上記のような迅速なイメージの再構築には欠けるが, 空間分解能(縦, 横)が数100 nm程度のイメージを収集可能な読取機を構築した。これは図7に示すように, 市販の共焦点顕微鏡を利用した読取機である。励起源として, 水銀ランプあるいは405 nm半導体レーザーを用いた。倒立顕微鏡 Ti-U(ニコン, NIS-Elements BR), デジタルカメラ(浜松ホトニクス, ORCA-Flash4.0)から構成されている。現在, 励起光源として励起効率の高い375 nm半導体レーザーあるいはチタンサファイアレーザーの2光子励起による観察も行っている。

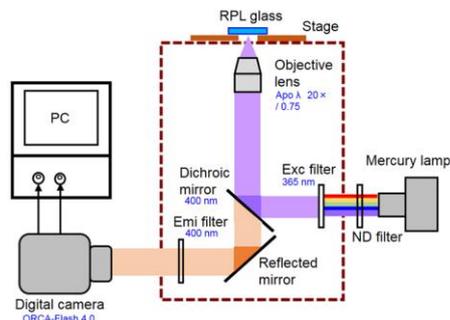


図7 構築した高分解能イメージ読取機。

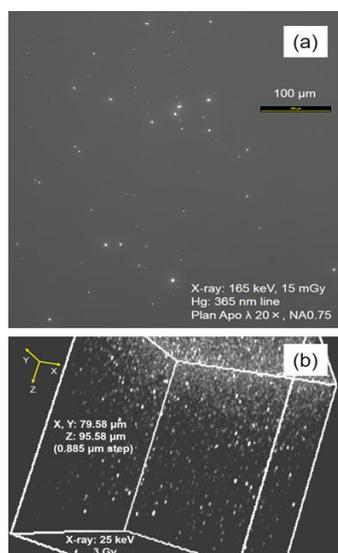


図8 顕微鏡による(a) 2D, (b) 3D イメージ。

図8(a)は構築した共焦点顕微鏡で収集したX線(エネルギー, 165 keV, 15 mGy)照射したAgガラスからの2D飛跡を示す。(b)はX線25 keV, 3 Gy照射の3Dイメージの一例である。これは深さ方向のピッチ0.885 $\mu\text{m}$ で108枚の2Dイメージの重ね合わせである。

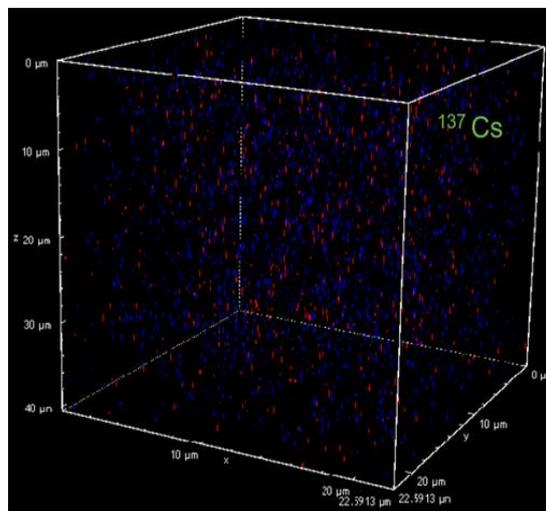


図9 改良した共焦点レーザー顕微鏡によるCsガンマ線(1Gy)の飛跡。

図9はCsガンマ線の飛跡を40 $\times$ , NA=1.25,  $n=1.33$ (水浸)のレンズで測定した飛跡であり, 赤点, 青点は, それぞれ $\text{Ag}^+$ ,  $\text{Ag}^0$ センターからの橙色および青色RPL蛍光に相当する。

## 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 6 件)

[1] T. Kurobori, Y. Yanagida, S. Kodaira, and T. Shirao: “Fluorescent nuclear track images of Ag-activated phosphate glass irradiated with photons and heavy charged particles”, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A, **855** (2017) pp.25-31.査読有

[2] T. Kurobori, Y. Yanagida, and Y. Q. Chen: “A three-dimensional imaging detector based on nano-scale silver-related defects in X- and gamma-ray-irradiated glasses”, Jpn. J. Appl. Phys. **55** (2016) 02BC01-05.査読有

[3] T. Kurobori, H. Itoi, Y. Yanagida, and Y. Q. Chen: “Time-resolved dose evaluation in an X- and gamma-ray irradiated silver-activated glass detector for three-dimensional imaging applications”, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A **793** (2015) 6-11. 査読有

[4] T. Kurobori, Y. Maruyama, Y. Miyamoto, T. Sasaki, and H. Nanto: “Non-destructive readout of 2D and 3D dose distributions using a disk-type radiophotoluminescent glass plate”, IOP Conf. Series: Mat. Sci. Eng. **80** (2015) 012001-06. 査読有

[5] T. Kurobori, A. Takemura, Y. Miyamoto, D. Maki, Y. Koguchi, N. Takeuchi, T. Yamamoto, and Y. Q. Chen: “A disk-type dose imaging detector based on blue and orange RPL in Ag-activated phosphate glass for 2D and 3D dose imaging applications”, Radiat. Meas. **83** (2015) 51-55. 査読有

[6] H. Nanto, R. Nakagawa; Y. Takei, K. Hirasawa, Y. Miyamoto, H. Masai, T. Kurobori, T. Yanagida, and Y. Fujimoto: “Optically Stimulated Luminescence in X-ray irradiated xSnO-(25-x) SrO-75B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Glass”, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A **784** (2015) 14-16. 査読有

〔学会発表〕(計 5 件)

[1] 黒堀 利夫, 加田 渉, 川端 駿介, 松原良典, 柳田 由香, 佐藤 隆博: 「プロトンマイクロビームで書き込んだ銀活性リン酸塩ガラス蛍光中心の多光子共焦点顕微鏡による評価」, 2017年 第64回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜(横浜市), 2017年 3月 14日～17日, 14p-E204-18. 査読無

[2] 黒堀 利夫, 柳田 由香, 小平 聡, 加田 渉, 川端 駿介, 松原 良典, 佐藤 隆博: 「銀活性リン酸塩ガラスの蛍光放射線飛跡の評価」, 2016年 第77回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ(新潟市), 2016年 9月 13日～16日, 15a-A37-7. 査読無

[3] 黒堀 利夫: 第10回 次世代先端光科学研究会, 招待講演「光子, 重荷電粒子線を照射し

た銀活性ガラスの蛍光飛跡について」, 金沢工業大学(金沢市), 平成 28年 9月 1日. 査読無

[4] 糸井 駿, 黒堀 利夫, 柳田 由香, 宇部道子, 陳 耀強: リン酸塩ガラス中のナノスケール銀関連欠陥に基づく 3次元放射線イメージング検出器の開発, 2015年 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場(名古屋市), 2015年 9月 13日～16日, 15a-2W-11. 査読無

[5] T. Kurobori, Y. Yanagida, and Y. Q. Chen: “A silver-activated phosphate glass detector for three-dimensional dose distribution measurement”, in Proc. of the 5<sup>th</sup> Int. Symp. on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO 2015), June 16-19 (2015), Toki Messe, Niigata, Japan. 査読有

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

黒堀 利夫 (Kurobori, Toshio)  
金沢大学, その他部局等, 名誉教授  
研究者番号: 90153428