

# ルミネッセンス (TL/OSL) 自動測定システム装備の 小型 X 線照射装置の線量率校正

北 沢 俊 幸\* 八 幡 崇\*\* 伊 藤 成 樹\*\*\* 橋 本 哲 夫\*\*\*\*

キーワード：ルミネッセンス、OSL、X 線

## 1. はじめに

ルミネッセンス年代測定法とは、鉱物に蓄積した放射線量を、光や熱などの励起によって発する光（ルミネッセンス）の強さから求め、年代に換算するものである。光励起によるものを光ルミネッセンス（optically stimulated luminescence: OSL）法、熱励起によるものを熱ルミネッセンス（thermoluminescence: TL）法と呼ぶ。励起により発光した鉱物は蓄積線量を失い、年代の時計がゼロになるが、地質・土壌由来の放射線や宇宙線によって鉱物が被曝することで、再び放射線を蓄積する。1年あたりの被曝量を年間線量といい、別途見積もる必要がある。年代 = 蓄積線量 / 年間線量という計算で目的の年代を求めるが、ここで言う年代とは、OSL 法では最後の日光照射から、TL 法では最後の加熱からの経過時間である。ルミネッセンス年代測定法では一般的に数百から数十万年前の年代測定が可能であり、第四紀地質学、自然地理学、考古学などで利用が広がりつつある。

蓄積線量の測定には、ルミネッセンス発光強度の測定とともに、鉱物の放射線に対する応答性を人工的な放射線照射により調べる必要がある。そのため測定装置には放射線源が装備される。世界中で広く利用されているルミネッセンス測定装置は、デンマーク技術大学・リソ国立研究所（Risø）製のもので、放射線源に $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$  ベータ線源を用いているが、これは線量調整の難しさに加え、日本などでは管理に法的な制限がある。それに対し、放射線源に小型 X 線照射装置を備えた測定装置も開発されている（Hashimoto et al., 2002; Andersen et al., 2003; Hong et al., 2007）。小型 X 線照射装置を用いる利点として、法的な制限が少ないこと、X 線管の管電流の調整によって線量率を制御できること、照射場の均一性が良好であること、装置外部への遮蔽が容易であることなどが

挙げられる。一方で、X 線管に電圧をかけてから、実際の X 線発生までに数秒の遅れが生じる（Yawata et al., 2007）などの問題もある。

立正大学では、小型 X 線照射装置を備えたルミネッセンス自動測定システムを所有し、2012年より稼働している。正確な年代測定のためには X 線線量率の校正が必要であるが、X 線の発生遅れ（ラグ）を測定し、それを考慮して X 線線量率の校正を行ったので報告する。

## 2. 方法

### 2. 1 測定システムの概要

立正大学設置のルミネッセンス (TL/OSL) 自動測定システム (Hashimoto et al., 2002; Nakagawa et al., 2003)

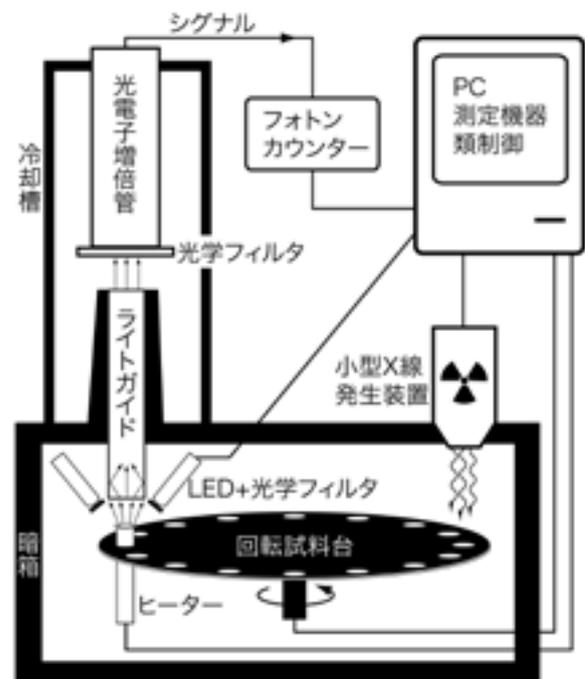


図1 ルミネッセンス自動測定システムの概要

\* 立正大学地球環境科学部

\*\* 信越化学工業株式会社

\*\*\* 株式会社ゼットコスモス

\*\*\*\* NRI 研究所・新潟大学名誉教授

表 1 X 線の発生ラグおよび線量率

設定電圧 (V)	管電流 (mA)	ラグ (秒)	線量率 (Gy/min)	誤差率 (%)
0.1	0.01	14.97	1.16 ± 0.09	7.7
0.5	0.05	5.10	5.65 ± 0.40	7.0
1	0.1	3.04	12.26 ± 0.36	2.9
5	0.5	3.30	51.44 ± 1.45	2.8
10	1	4.55	126.95 ± 3.52	2.8

を用いて OSL 測定を行った (図 1)。システムは主に、光 (熱) 励起装置、ルミネッセンス測定装置、小型 X 線照射装置、回転試料台、それらを制御するパソコンとコントロールユニットからなる。

励起装置の光源には青色 LED (日亜化学工業製 NSPB599S、中心波長 470nm) を用い、その前面に波長 420nm 以下の光を除去するための光学フィルタ (Schott 製 GG-420) がついている。下部のヒーターは OSL 測定時に試料皿を加熱するほか、測定前にあらかじめ試料を加熱して不要な (不安定な) OSL 成分を除去するためのプレヒート、および TL 測定に用いる。励起時間や測定温度などの実験条件はパソコンで設定する。

ルミネッセンス測定装置は、鉱物から発せられた光を効率よく上部へ誘導するためのライトガイド、中心波長 340nm の光を透過させるための光学フィルタ (Schott 製 DUG-11)、光を検出するための光電子増倍管 (PMT、浜松ホトニクス製 R585S、検出波長 20-650nm) と光子数を計測するためのフォトンカウンター、光電子増倍管を -20℃ に冷却するためのペルチェ式冷却器からなる。データ取得間隔などの測定条件はパソコンで設定する。

小型 X 線照射装置は、Varian 製 X 線管 VF-50J (最大 50kVp、1 mA、50W) を用い、パソコンで管電圧、管電流、照射時間などを設定し、X 線照射量を調整する。この装置では管電流を直接制御するのが難しいため、電圧をかけて電流を制御する仕組みとなっており、設定電圧と管電流の関係は表 1 の通りである。管電流と X 線線量率はほぼ比例関係となることが知られている。

回転試料台には試料皿を同時に 16 個載せられる。パソコンであらかじめ測定プログラムを組んでおくことで、任意の順番と条件でルミネッセンス測定と X 線照射を自動で行うことが可能である。

2. 2 OSL 測定

Riso がベータ線源校正用に提供する、加熱処理と既知のガンマ線照射が施された石英砂 (粒径 180-250μm、蓄積線量 4.81Gy、デンマーク Skagen 産) を用いて、以下の実験から X 線線量率の校正を行った (図 2)。

OSL 測定と解析は、SAR 法 (single aliquot regenerative - doze protocol、単分画再現法) (Murray and Wintle, 2000) により行った (表 2)。一つの試料皿で、(1) 任意の放射線量の照射、(2) プレヒート、(3) OSL の測

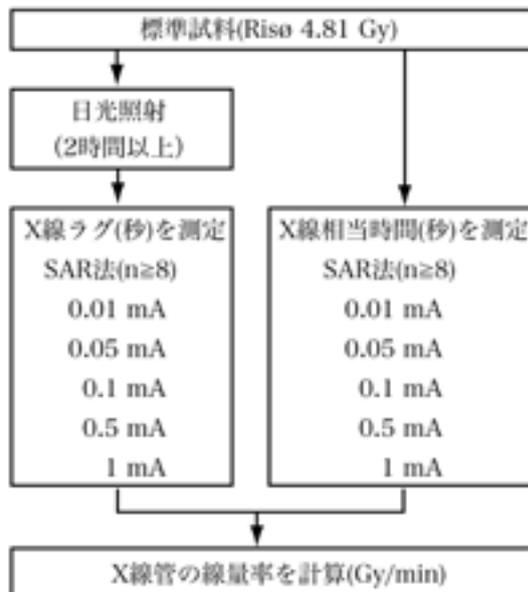


図 2 X 線線量率校正の流れ

表 2 SAR 法の手順

ステップ	処理	測定
1	X 線照射、Di	-
2	プレヒート (200℃, 10s)	-
3	光励起 (125℃)	Li
4	X 線照射 (テストドーズ)、Dt	-
5	プレヒート (180℃, 10s)	-
6	光励起 (125℃)	Ti
7	ステップ 1 に戻る	-

シーケンス  $i$  は 7 つのステップからなる。試料皿 1 つにつき、シーケンス 0 および数回のシーケンスを行う。Di (シーケンス  $i$  の X 線照射量) はシーケンスごとに変えるが、Dt は一定にする。シーケンス 0 では  $i=0$ 、 $D_0=0Gy$  である。Li および Ti (Di および Dt による OSL 信号) は、最初の 1 秒の合計からバックグラウンド (最後の 1 秒の合計) を減じて求める。

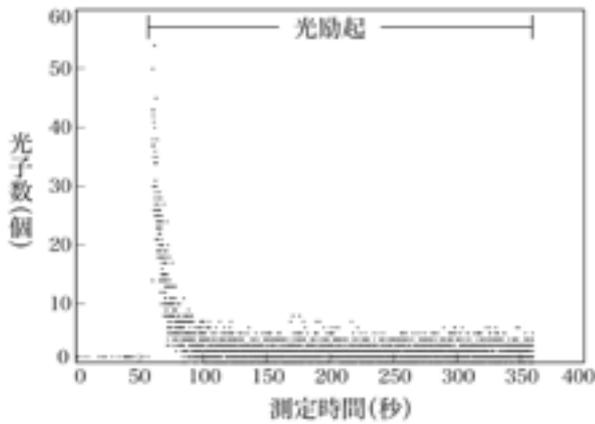


図3 石英砂 (4.81Gy) の発光曲線 (OSL 減衰曲線)

定 (Li)、(4) 一定量の放射線 (テストドーズ) の照射、(5) プレヒート、(6) OSL の測定 (Ti) というサイクルを繰り返す。一回の OSL 測定における LED による光励起は300秒とした。発光は最初が最も大きく、急激に減衰し一定の値 (バックグラウンド) で安定する (図3)。最初の1秒間の積算から発光強度を求めた。測定の繰り返しによって、試料の放射線に対する感度変化が生じることが知られているが、Li/Ti を求めることで感度変化を補正することができる。横軸に照射線量、縦軸に感度補正 OSL (Li/Ti) をとると、試料の放射線応答曲線 (生長曲線) が求まる。回帰分析により、最初に測定した  $L_0/T_0$  (測定前に放射線照射なし) に相当する照射線量を求めれば、これが蓄積線量となる。

#### 実験 (1) X 線発生ラグの測定

石英砂の蓄積線量を除去するため、晴天時の日光下に2時間以上曝露 (光曝) した後、5 mg 程度を試料皿に載せて、OSL 測定を行った。テストドーズによる感度変化補正の確認と、X 線照射量が多い領域までの放射線応答曲線を見るために、管電圧30kV、管電流0.1mA で X 線照射を20秒、40秒、80秒、160秒、320秒、640秒、20秒と変化させる測定を4皿ずつ行った。

また、X 線発生ラグについて検討するため、X 線の照射時間を0秒から始め、SAR 法のサイクルが進むたびに1秒ずつ増加させ、最終的に30秒照射までのサイクルで OSL 測定を行った。この測定を管電圧30kV で固定のまま、管電流を0.01mA、0.05mA、0.1mA、0.5mA、1 mA の5段階に変化させて8皿ずつ行った。この時、ある管電流で測定した石英砂を再利用して別の管電流での測定に使用することがあった。

#### 実験 (2) X 線線量率の測定

X 線線量率の測定法は Yawata et al. (2007) の手法に準じたが、本研究では X 線発生ラグを考慮に入れた。蓄積線量4.81Gy の石英砂 5 mg 程度を試料皿に載せ OSL 測定を行い、4.81Gy が X 線照射何秒に相当するか求めた。管電圧30kV で固定のまま、管電流を0.01mA、0.05mA、0.1mA、0.5mA、1 mA の5段階に変化させて8-9皿ずつ行った。この時、実験 (1) で求めた X 線発生ラグを計算に入れて照射時間を補正した。以上から、管電流ごとの X 線線量率 (Gy/min) が算出される。

### 3. 結果および考察

#### 3. 1 実験 (1) X 線発生ラグ

図4は、光曝済み試料の X 線照射640秒までの放射線応答曲線である (管電流は0.1mA)。各照射時間における4皿の感度補正 OSL の平均  $E (Li/Ti)$  と標準偏差  $\sigma_i$  から求めた誤差率 ( $\sigma_i/E (Li/Ti)$ ) は0.014-0.097と十分小さかった。最初の20秒照射の感度補正 OSL ( $L_1/T_1$ ) と最後の20秒照射のそれ ( $L_7/T_7$ ) を比較すると、一皿については  $(L_1/T_1) / (L_7/T_7)$  が1.22とやや1から離れたが、残り3皿は0.97-0.99となり感度変化補正に問題はなかった。照射時間の増加に伴い曲線の傾きが減少するが、80秒照射以下では傾きがほぼ一定とみなせる。なお、管電流0.1mA における80秒の照射量は、1 mA における約8秒の照射量に相当する (ただし X 線発生ラグは考慮に入れていない)。したがって、この石英砂を用いて X 線発生ラグを求めるには数十秒以下の短時間照射域で行う

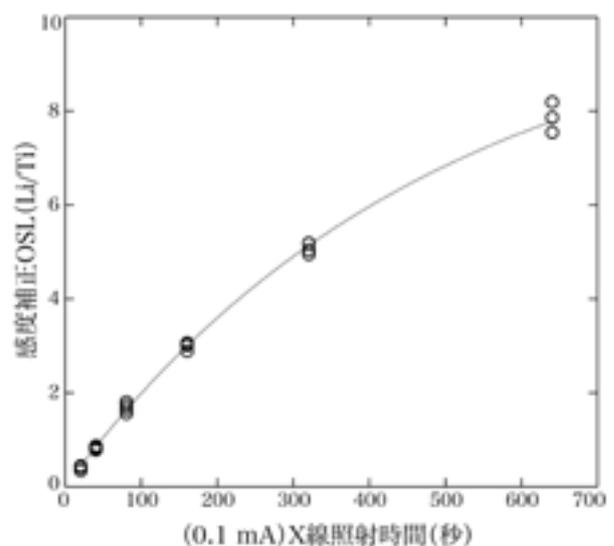


図4 石英砂の放射線応答曲線 (管電流0.1mA, 640秒まで)。X 線照射時間はラグを補正していない

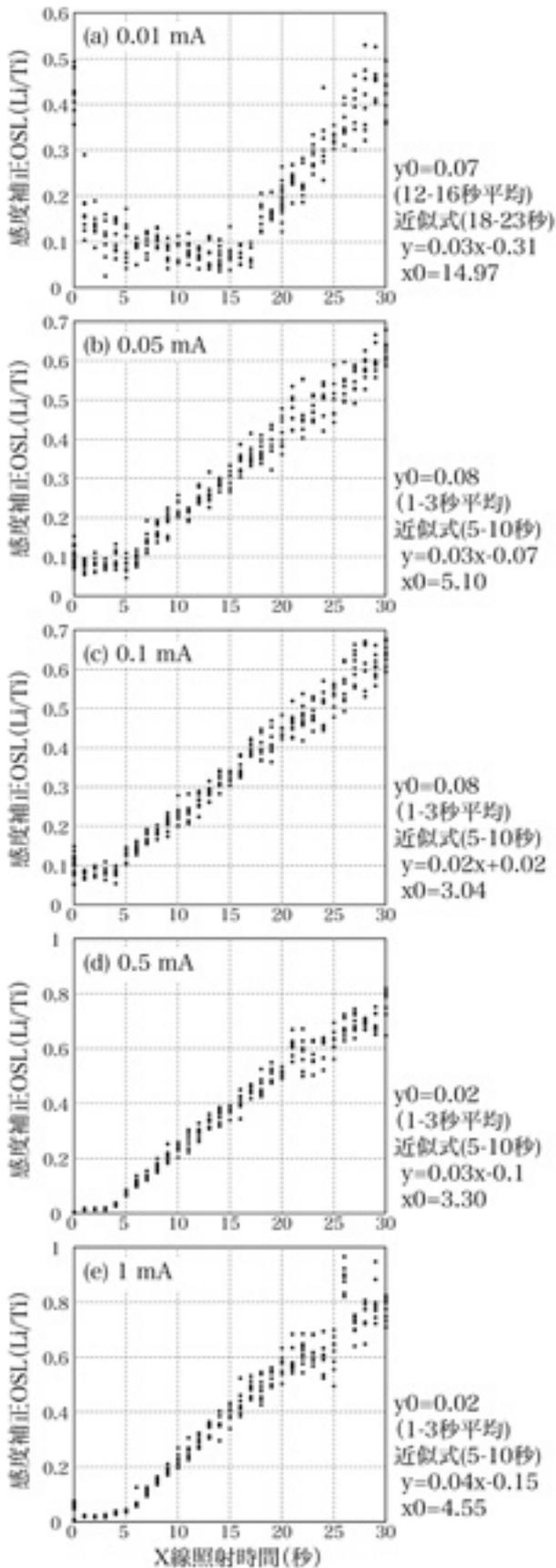


図5 石英砂の放射線応答性の全プロット。X線照射時間はラグを補正していない

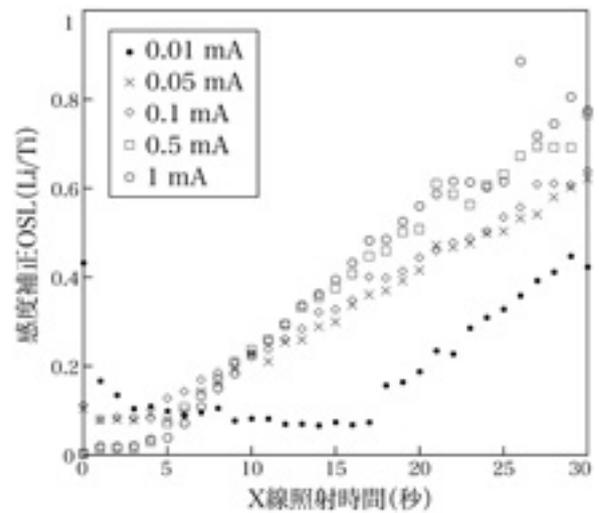


図6 石英砂の放射線応答性の平均値プロット。X線照射時間はラグを補正していない

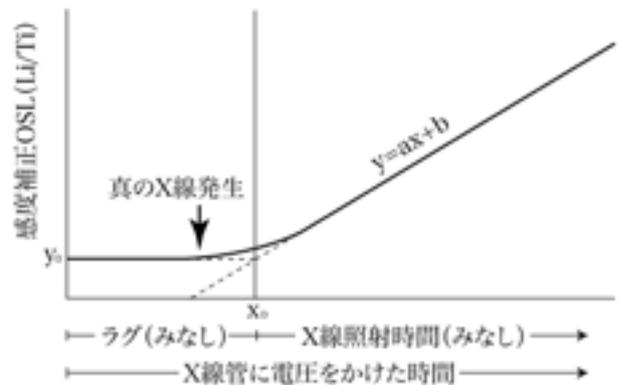


図7 X線発生ラグの概念図

のが適当である。それにより OSL の感度変化をなるべく小さくし、また放射線応答曲線を直線で近似することができる。

図5は、光曝済み試料の短時間照射 (30秒まで) による放射線応答性の分布である。横軸に照射時間 (実際には X 線管に電圧をかけてからの時間) をとり、測定を行った 8 皿全ての感度補正 OSL が 1 秒間隔でプロットされている。8 皿の平均値をプロットしたものが図6である。管電流 0.01mA、0.05mA、0.1mA では 0 秒照射でも比較的大きな感度補正 OSL が測定された理由として、光曝の不十分さ、直前に行った測定での励起の不十分さ、励起後にも OSL 成分が戻る回復現象が起きたなどの可能性が考えられる。光曝時間 2 時間、光励起時間 300 秒、試料の再利用、プレヒート条件などについては今後検討すべきであろう。照射時間 1 秒以降の曲線の形に注目すると、全ての管電流で最初は水平に近く、その後増加する。X 線発生ラグがなければ、本来は 1 秒目からほぼ一定の傾きで感度補正 OSL が増加するはずであり、すなわちこの水平区間が X 線発生ラグに相当する。

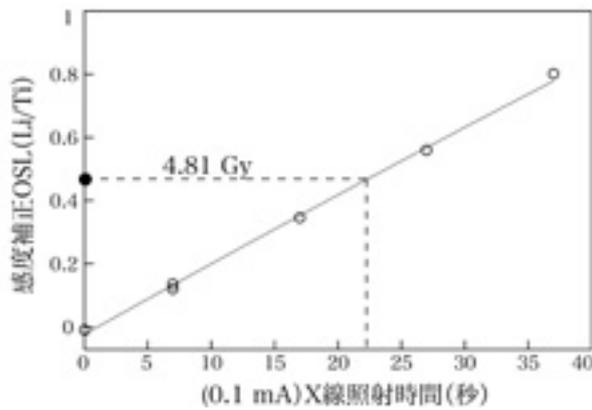


図8 石英砂 (4.81Gy) による X 線線量率の推定 (管電流0.1mA)

X 線発生ラグの求め方は以下の通りである (図7)。まず図5の X 線発生後 (水平区間より後) のプロットの中から、右上がりの傾きが一定となる区間を選び、その区間の全プロットから近似式 (一次式) を立てる。そして X 線が照射されない区間の感度補正 OSL ( $y_0$ 、水平区間の平均) が、近似式上で何秒に相当するか計算する ( $x_0$ )。X 線発生直後は曲線の傾きが緩やかな区間があるため、曲線の立ち上がり始めと  $x_0$  は必ずしも一致しないが、OSL 測定を行う際はもっと長く X 線を照射するため、 $x_0$  を X 線の発生とみなして構わない。求められた各管電流の X 線発生ラグは表1の通りである。ラグは0.01mA で特に長いことが分かった。

### 3. 2 実験 (2) X 線線量率

4.81Gy の蓄積線量をもつ石英砂の OSL 測定を行うと、図8のような放射線応答曲線が得られる。上記で求められた X 線発生ラグはここでは差し引いてある。4.81Gy に相当する各管電流の X 線照射時間から X 線線量率 (Gy/min) を求め、表1にまとめた。線量率の誤差は 8 - 9 皿の測定における標準誤差である。管電流が大きくなるほど誤差率 (線量率に対する誤差の割合) は小さくなることが分かった。高出力の方が X 線が安定するためと思われる。特に0.05mA と0.1mA の間には誤差率に大きな隔りがある。

## 4. まとめ

これまで小型 X 線照射装置を用いた OSL 測定では経験的に、X 線発生ラグの影響を相対的に小さくするために、低出力で照射時間を長く取るという方法がとられた。しかし本研究のような方法で X 線発生ラグを見積もった上で、誤差の小さな出力を選択して使用することでより精度の高い年代測定が出来ると考えられる。また X 線管の個体差や経時変化を考えると、X 線管の交換や線量率校正の際には合わせて発生ラグを測定するのが望ましい。立正大学の測定システムに関して言えば、年代測定試料の蓄積線量に応じて、なるべく高出力の X 線を照射する方が誤差が少なく、管電流は0.1mA (設定電圧は 1 V) 以上の設定が望ましい。

## 参考文献

- Andersen, C.E., Botter-Jensen, L., Murray, A.S., 2003. A mini X-ray generator as an alternative to a  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$  beta source in luminescence dating. *Radiation Measurements*, 37, 557-561.
- Hashimoto T., Nakagawa T., Hong D.G., Takano M., 2002. An automated system for both red/blue thermoluminescence and optically stimulated luminescence measurement. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 39,108-109
- Hong, D.G., Yawata, T., Hashimoto, T., 2007. Preliminary results of a small X-ray irradiator for equivalent dose estimation. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 273, 353-356.
- Murray, A.S., Wintle, A.G., 2000. Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiation Measurements*, 32, 57-73.
- Nakagawa, T., Usuda, H., Hashimoto, T., 2003. Optically stimulated luminescence (OSL) and thermoluminescence (TL) measurements on red TL (RTL) quartz samples using a new automated OSL/TL measuring system. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 255, 355-358.
- Yawata, T., Hashimoto, T., Takeuchi, T., Hong, D.G., 2007. Optimal conditions of X-ray irradiation for accurate equivalent dose determination. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 258, 375-380.

## X-ray Calibration of an Automated Luminescence (TL/OSL) Measuring System

KITAZAWA Toshiyuki\*, YAWATA Takashi\*\*, ITOU Shigeki\*\*\*, HASHIMOTO Tetsuo\*\*\*\*

\*Faculty of Geo-environmental Science, Rissho University

\*\*Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.

\*\*\*Z cosmos Co., Ltd.

\*\*\*\*Institute of Natural Radioactivity, Emeritus Professor of Niigata University

### Abstract:

Radiation exposure rates of a small X-ray irradiator equipped in an automated luminescence (TL/OSL) measuring system have been investigated for the time lag (dead time) of X-ray emission after switching on. The lag was measured using OSL single-aliquot regenerative-dose (SAR) protocol with regenerative-dose of 1 second intervals. The lag varies from 3.04 to 14.97 seconds according to X-ray tube current (0.01–1 mA). The radiation exposure rate in each tube current is calculated by measuring OSL of quartzes (4.81 Gy) using SAR protocol. The error is negligibly small (less than 3%) at the tube current larger than 0.1 mA.

**Keywords:** luminescence, OSL, X-ray