

飛跡線量計の代替となる中性子計測用ホウ珪酸ガラスの開発

Development of Borosilicate Glass Based Neutron Dosimeter as an Alternative to Track Detector

H27助自78

代表研究者 藤 本 裕 東北大学 大学院工学研究科 助教
Yutaka Fujimoto Assistant professor, School of Engineering, Tohoku University

There is a continuous growing interest in Radiophotoluminescence (RPL) and optically-stimulated-luminescence (OSL) materials for radiation dosimetry, especially in the fields of environmental, personal and medical applications. Today Ag-doped phosphate RPL glass and $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ OSL crystal can be used as personal dosimeter for X-ray and gamma-ray. Meanwhile for neutron dosimetry a solid-state nuclear track detector have been well used for a long time. This study is aimed at new development of OSL glass neutron dosimeter. In this study we focus on borosilicate glass ($\text{SiO}_2\text{-B}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-Na}_2\text{O-CaO}$) as a host OSL material because of its low cost and large neutron capture cross-section due to ^{10}B isotope.

The rare-earth- and transition-metal- doped borosilicate glasses were prepared by a conventional melt quenching method using an alumina crucible in nitrogen atmosphere. Among the glasses, Ce-doped borosilicate glass showed the highest performance. A photoluminescence emission band in the 385 nm wavelength range was obtained under excitation at UV light owing to the 5d-4f allowed transition of the Ce^{3+} emission center. The photoluminescence quantum efficiency and decay time of the Ce^{3+} were estimated to be about 60% and 35 ns. The 5d-4f emission band of Ce^{3+} also appeared at 350 nm wavelength in the OSL spectra. Excellent linear responses of the OSL peak intensities were observed in the 0.5–10000 mGy X-ray dose range.

Our results indicate that the borosilicate glasses can be a promising candidate for neutron dosimeter.

研究目的

本研究では、従来の飛跡線量計の代替となる中性子計測用ホウ珪酸ガラス蛍光体材料の開発を目指している。個人被曝線量計は、放射線を取り扱う医療関係者や企業における技術者をはじめ、原子炉や加速器といった大型施設で勤務する作業員及び研究者の被曝線量を把握する上で、重要な役割を果たしている。一般に私たちが使用しているX線、ガンマ線用の線量計には、 $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ 単結晶の輝尽蛍光 (Optically stimulated

luminescence:OSL) を用いたOSL線量計やAg添加リン酸塩ガラスのラジオフォトルミネッセンス (Radiophotoluminescence:RPL) を使用したRPL線量計が利用されている。これらの線量計はいずれも、照射線量に比例した蛍光強度を示すことから、人体の被曝線量を見積もっている。一方、中性子用には、CR39プラスチック素子に陽子ラジエータと α コンバータを組み合わせた飛跡検出器が用いられている。線量計測がほぼ自動化されている前者と比べ、後者では熟練者による光学顕微鏡を用いた飛跡観測が行われており、計測の定量性や技術伝

承の観点から課題が残る。このような実情に対して、本研究では、従来のX線・ガンマ線用に用いられている輝尽蛍光(OSL)型の中性子用蛍光体素子の開発を目的としている。特に我々は、医療・理化学用ガラスや窓ガラスなど、最もありふれたガラスであり、且つ中性子捕獲断面積の大きい10ボロンを含有するホウ珪酸ガラスに着目し、当該ガラスに発光中心を導入することにより、輝尽蛍光機能の付与を試みた。

概 要

研究内容

個人被曝線量計は、放射線を取り扱う医療関係者や企業技術者をはじめ、原子炉や加速器といった大型施設で勤務する作業員の被曝線量を把握する上で、重要な役割を果たしている。一般に、私たちが使用しているX線、ガンマ線用の線量計の国内シェアを占めているのが、 Al_2O_3 :C単結晶の輝尽蛍光を用いたOptically stimulated luminescence (OSL) 線量計とAg添加リン酸塩ガラスのラジオフォトルミネッセンス (Radiophotoluminescence:RPL) を使用したRPL線量計である。一方、中性子用には、CR39プラスチック素子に陽子ラジエータと α コンバータを組み合わせた飛跡検出器が用いられている。線量計測がほぼ自動化されている前者に比べ、後者では熟練者による光学顕微鏡を用いた飛跡観測が行われており、定量性・技術伝承の観点から問題となっている。一方、世界における線量計測素子の市場においては、徐々に中性子の線量計測のニーズが高まりつつある。特に、米国の同時多発テロ以降、米国やEU圏を中心としたセキュリティ分野への投資が盛んになっており、中性子による非破壊検査などでは、中性子線量を定量的に把握する必要がある。しかしながら、上記で述べたように、現在使用されている飛跡線量計測は、

熟練作業者に依存し、自動化が難しく、定量性に劣ることに加え、工業的に高コストであるため、線量計測サービスを提供する各社メーカーとしても、X線/ガンマ線用と同様にOSL型の線量計素子の開発を待望している。このような実情に対して、本研究では、従来のX線・ガンマ線用に用いられている輝尽蛍光(OSL)型の中性子用蛍光体素子の開発を目的としている。特に我々は、医療・理化学用ガラスや窓ガラスなど、最もありふれたガラスであり、且つ中性子捕獲断面積の大きい10ボロンを含有するホウ珪酸ガラスに着目し、当該ガラスに発光中心を導入することにより、輝尽蛍光機能の付与を試みた。本研究は演繹型の研究ではなく、一サイクル1か月程度のフィードバック型研究システムにて行った。具体的には、①サンプル合成と構造解析評価、②光学特性評価、③X線照射時の輝尽蛍光(OSL)特性評価と行う形で進めたが、基本的な合成及び物性評価技術はすでに立ち上げ済みである。そのため、実質的には、ガラス組成のスクリーニングに絞って研究を行った。上記、①-③を繰り返し、合成条件と物性値をフィードバックすることで、輝尽蛍光機能と優れた線量応答性を有するホウ珪酸ガラスの開発を目指した。

研究成果

各種発光中心元素を微量添加したホウ珪酸ガラスを急冷法により作製した。作製においては、雰囲気や急冷温度の最適化を行い、結晶化の抑制を行った。その結果、すべての組成において、約350度での急冷が結晶化を防ぐ条件であることが確認された。また、雰囲気ガスについては、窒素雰囲気が合成の観点からと後述に示す輝尽蛍光の物性の観点から最適であることが示唆された。作製したサンプルについては、ラマンスペクトル及びFTIR測定を行っ

たが、添加する発光中心元素の種類による構造の変化は見られなかった。また、すべての組成において、水分含有に伴うOH基吸収が確認された。PL測定においては、各発光中心元素起因の発光が紫外線励起により確認された。特に、希土類元素はそれぞれ5d-4f許容遷移や4f-4f禁制遷移、電荷移動遷移などガラス中の価数により様々な発光を示していた。発光量子収率の評価では、Ceを添加したホウ珪酸ガラスが最も高い量子収率(~65%)を示し、その蛍光寿命も数十ナノ秒とCe³⁺の5d-4f許容遷移によるものであることが伺えた。ESR測定では、X線の照射前後で、大きくシグナルが変化することも確認され、各組成ともに電子を捕獲するトラップ準位が内在することが示唆された。このトラップ準位の起源について断定は難しいが、現段階では、合成過程で生成された酸素欠損に伴うFセンターや含有する水分によるOH基が考えられる。OSL測定では、まず、刺激波長の選定を行ったところ、すべての組成において、630 nmのLED光源が最適であることが分かった。このことは、電子のトラップ準位がすべて同一の起源であること、また、母ガラス組成に内在するものであることを示している。OSLスペクトル測定においては、多くの組成がPLスペクトルと同様の結果を示していたが、一部の組成(Fe、Co、Niなど)はPLとは異なり、母材料の欠陥由来と思われるホスト発光を示していた。最終的なOSL材料としての性能評価として、OSL強度の線量応答性を評価したところ、Ceを添加したガラスが1 mGy-10 Gyという広い線量率範囲で機能していた。以上の結果より、本研究においては、Ceを微量添加したホウ珪酸ガラスが最もOSL材料として優れた性能を示しており、中性子計測用のOSL材料として非常に期待できることが確認された。

- 以下割愛 -