

(11) 中性子用線量計測材料の特性評価

東北大学大学院工学研究科	川本 弘樹、藤本 裕、越水 正典
奈良先端科学技術大学院 大学先端科学技術研究科	木村 大海、柳田 健之、河口 範明、 加藤 匠、中内 大介、赤塚 雅紀、 福嶋 宏之
金沢工業大学バイオ・化学部	岡田 豪
近畿大学原子力研究所	若林 源一郎

【緒言】

中性子の利用は医療から先端科学まで幅広い領域に広がりを見せつつあり、それに伴って、中性子計測の重要性も高まっている。中性子は電氣的に中性であるため、物質中で電子に対して直接的に(静電的な相互作用で)働きかけることができない。そのため、中性子の計測においては、 ^6Li や ^{10}B などとの核反応が用いられることが多い。また、共存するガンマ線との弁別も重要となることが多い。近年では、ホウ素中性子捕捉療法(BNCT)などでの線量計測ニーズが高まりを見せている。

本研究では、簡便な中性子計測を可能とすべく、ガラスに着目し、その熱蛍光(TL)特性を利用した中性子計測の実現を企図した。高い透明性を有するガラスの大量生産は、単結晶などと比較すると容易であり、光学材料として多様な用途で利用されている上、個人被ばく線量計としても利用されている。中性子計測においてガラスを利用するもう一つの利点は、ガラスホストに Li や B を主成分として含有しやすい点である。これらを利用し、本研究では、中性子フルエンスについて幅広いダイナミックレンジを有する熱蛍光体開発を目的とした。具体的には、 Ce^{3+} を発光中心として添加した $35\text{CaO}-15\text{Al}_2\text{O}_3-50\text{B}_2\text{O}_3$ ガラスを、 ^{10}B および ^{11}B 濃縮原料を用いて作製し、付随するガンマ線の寄与を見積もり、また差し引きながら、中性子計測を可能とする素子を開発した。

【実験方法】

Ce 添加 $35\text{CaO}-15\text{Al}_2\text{O}_3-50\text{B}_2\text{O}_3$ ガラスを、アルミナルツボ中での熔融後の急冷により、空気中において作製した。Ca に対して 0.1 mol%の濃度で Ce を添加した。 CaCO_3 (99.99%; Rare Metallic Co., Ltd.)、 Al_2O_3 (99.99%; High Purity Chemicals)、 $\text{H}_3^{10}\text{BO}_3$ ($^{10}\text{B} > 96\%$; Stella-Chemifa Corp.)、および CeO_2 (99.9%; Rare Metallic Co., Ltd.) を量論比で混合した後、 1100°C で 20 分間加熱して、アルミナルツボ中で熔融した。 500°C に保持したステンレス板に融液を落とし、上からもステンレスブロックで圧縮することにより急冷した。このようにして合成したガラスを、これ以降、 ^{10}B ガラスと称する。同様の手法で、 $\text{H}_3^{11}\text{BO}_3$ ($^{11}\text{B} > 99.0\%$; Yamanaka Ceradyne, Inc.) を原料として用いたガラスも合成した。以降、これを ^{11}B ガラスと称する。全てのガラスは透明であり、潮解性はなかった。また、厚さは 1.2~1.8 mm であった。

PL および励起スペクトルについては、蛍光分光光度計(F-7000, Hitachi High-Technologies Corp)

を用いて測定した。X線照射には、Cu ターゲットを備えたX線照射装置(Rigaku)を用いた。電離箱で線量率を測定し、1 Gy/min となる箇所を試料を照射した。重粒子線照射では、核子当たり 135 MeV の炭素イオンを、放射線医学総合研究所 HIMAC にて照射した。中性子照射においては二つの施設を利用した。 10^9 neutrons/cm²以上の中性子フルエンスにおいては、放射線医学総合研究所の NASBEE を用いた。 10^8 neutrons/cm²以下のフルエンスについては、近畿大学の原子炉のラジオグラフィポートにおいて照射を行った。TL グローカーブの測定については、自作の測定系を用いて行った。プログラブルヒーター (SCR-SHQ-A; Sakaguchi E.H VOC Corp.) で、X線照射の場合では 0.5 K/s、中性子および重粒子線照射の場合では 1 K/s で温度を変化させた。303~673 K の範囲で一定速度で加熱しながら、放出される光子を光子カウンティングユニット (H11890-210; Hamamatsu Photonics) により計数した。NASBEE での照射の場合では、試料の放射化のため、研究室の測定系への即日の持ち帰りが困難な試料があった。そのため、それらの試料については、後日、放射能の低下後に測定を行った。

【結果と考察】

図1に励起波長 320 nm での PL スペクトルおよび蛍光波長 400 nm での励起スペクトルを示す。400 nm に明瞭に観測されたピークは、Ce³⁺ イオンの 5d-4f 遷移によるものである。

図2に、異なる線量でのX線照射後の TL グローカーブを示す。360 および 550 K にグローピークが観測された。また、比較のために、TLD-100 にX線を 10 Gy 照射した後のグローカーブの測定も行った。なお、双方の試料サイズの違いを考慮するため、単位質量あたりの熱蛍光カウント数に基づいた比較を行った。10 Gy の線量で比較すると、ガラス試料の TL 強度は

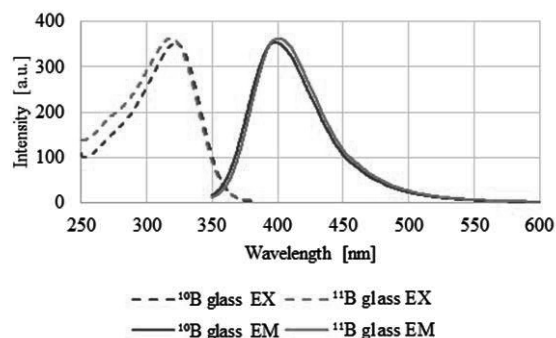


図1 ガラスの PL スペクトル(励起波長:320 nm) および励起スペクトル(蛍光波長:400 nm)

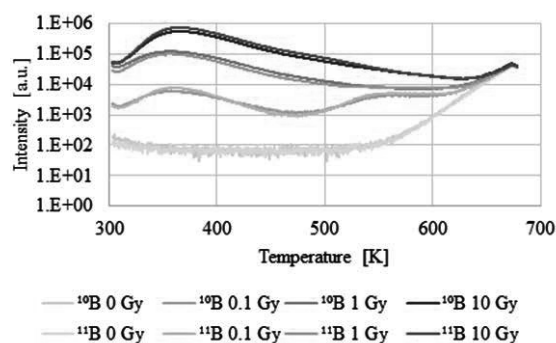


図2 異なる線量でのX線照射後の TL グローカーブ

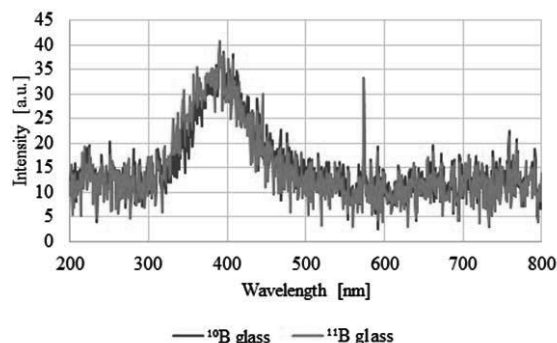


図3 350~400 K における TL スペクトル

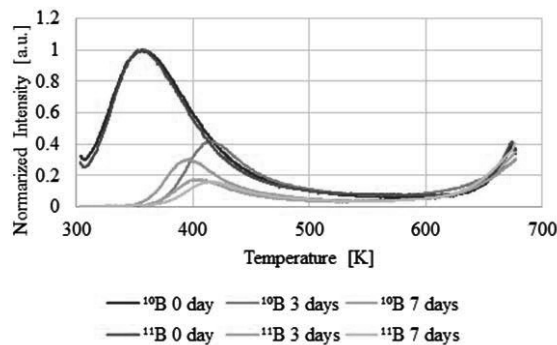


図4 X線を 1 Gy 照射後、0、3、および 7 日経過後の TL グローカーブ

TLD-100 の 14%であった。図3に、10 Gy 照射後のガラス試料の、350~400 K における TL スペクトルを示す。PL スペクトルと同様に、Ce³⁺イオンの 5d-4f 遷移に起因するピークが 400 nm に観測された。図4に、X線を 1 Gy 照射後、0、3、および 7 日経過後の TL グローカーブを示す。強度については 0 日後のグローカーブに対して規格化されている。¹⁰B および ¹¹B ガラスの双方で同様の TL 強度低下が観測され、3 日後で 30~40%、7 日後で 16~17%程度となった。また、時間経過とともにグローピーク温度が上昇した。ガラスのランダムネットワークを考慮すると、電子や正孔のトラップ深さは連続的に分布していると推察される。時間経過とともに、浅くトラップされた電子や正孔のみが優先的に解放され、深くトラップされた電子や正孔のみが残存することにより、時間経過に伴うグローピーク温度の上昇が説明される。図5に、核子あたり 135 MeV の炭素イオン照射 (4.1 Gy) 後の TL グローカーブを示す。重粒子線照射によっても明瞭に、390 K 付近にグローピークが観測された。

図6に、中性子を 10¹² neutrons/cm² 照射後の熱蛍光グローカーブを示す。ここでも、¹⁰B および ¹¹B ガラスのサイズの違いについて、縦軸を単位質量あたりのカウントとすることにより勘案した。試料の放射化のため、照射の 3 日後に照射室外へと試料を持ち出して測定を行った。双方の試料で 405 K 付近にグローピークが観測され、¹⁰B ガラスではその強度が ¹¹B ガラスの 36 倍に及んだ。この結果は、¹⁰B ガラスにおける TL 信号のほとんどが ¹⁰B(n, α)⁷Li を通じた熱中性子に起因するものであることが明らかとなった。¹¹B ガラスで観測された TL は主に線源からのガンマ線によるものと推察される。これらのことを考慮し、双方のガラスの TL 信号の差を ¹⁰B(n, α)⁷Li を通じた熱中性子に起因するものとし、それを図7および図8に示す。図7については照射直後に、図8については、10⁹、10¹⁰、10¹¹、および 10¹² neutrons/cm²での照射後にそれぞれ 6、3、3、および 3 日後に測定を行った。これらのデータから、¹⁰B

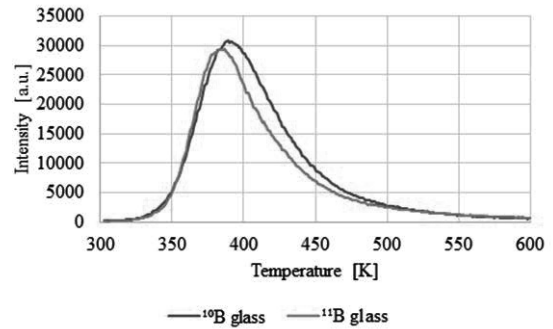


図5 核子あたり 135 MeV の炭素イオン照射 (4.1 Gy) 後の TL グローカーブ

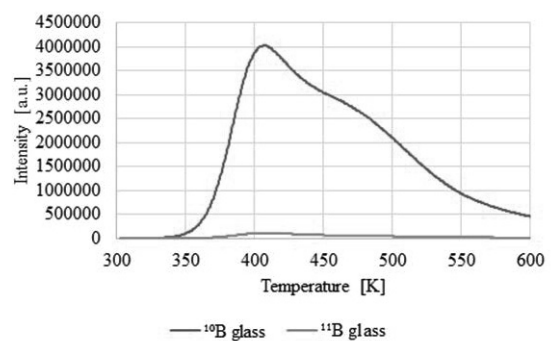


図6 中性子を 10¹² neutrons/cm² 照射後の熱蛍光グローカーブ

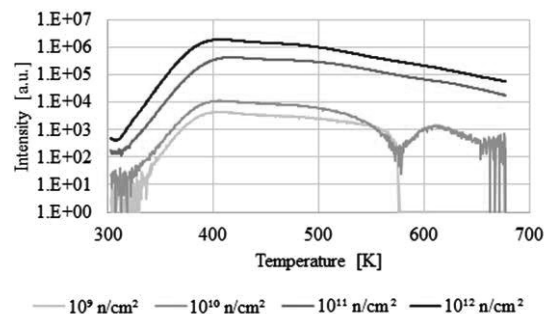


図7 熱中性子に起因する TL グローカーブ

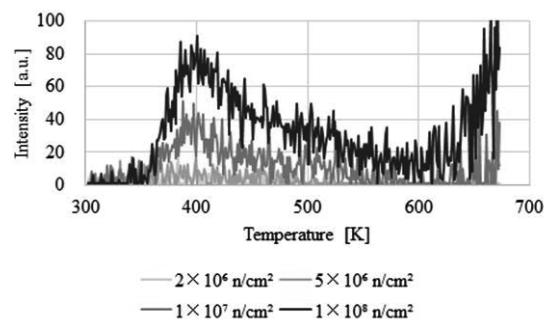


図8 熱中性子に起因する TL グローカーブ

ガラスおよび ^{11}B ガラスの対により、ガンマ線による寄与を差し引きながら、 $10^7 \sim 10^{12}$ neutrons/cm²の範囲で感度を有する熱蛍光体の開発に成功したと言える。

業績一覧

【学会発表】

[1] 小宮基, 川本弘樹, 藤本裕, 越水正典, 浅井圭介, 岡田豪, 木村大海, 柳田健之, 古場裕介, 若林源一郎, 「X線、粒子線、および中性子線の線量測定素子開発を企図した $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$ 焼結体の熱蛍光特性評価」、第10回日本セラミックス協会 MFD 研究会、令和2年3月3~4日、東北大学青葉山キャンパス、仙台。