

平成 22 年 5 月 18 日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19760042
 研究課題名 (和文) イオンビームを利用した蓄光体の残光寿命改善
 研究課題名 (英文) Improvement of long-lasting emission property of long-lasting phosphors using ion beams
 研究代表者
 藤 健太郎 (KENTARO TOH)
 日本原子力研究開発機構・J-PARC センター・研究員
 研究者番号：40344717

研究成果の概要 (和文):イオンビームを用いた蓄光体の残光寿命の改善に関する研究を行った。基礎特性を調べるために入射イオン種およびエネルギーを変化させ発光スペクトルを測定した結果、発光スペクトルの形状が入射イオン種およびそのエネルギーによって異なることから、発光を用いたイオン種・エネルギー弁別の可能性があるということを見出すことができた。ここで照射損傷による発光量の減少を測定したところ、重イオンになるにつれ減少量が大きく、プロトンが残光寿命改善に適していると分かった。プロトンを用いた残光寿命改善を試みた結果、 $6.8 \times 10^{20} / \text{m}^2$ を照射した蓄光体が最も残光寿命が長いということが確認できた。

研究成果の概要 (英文): The fluorescence and long-lasting emission properties are examined by irradiating it by some ions to improve its long-lasting property. The spectral shape of long-lasting phosphor has dependencies to the kind of ions and incident energy. Therefore, this material has the potential of being employed to identify the kinds of ion and the incident energy. The radiation damages exhibit incident particle dependence and damages by protons is smallest. Proton is a good candidate for improving the long-lasting property of the materials. By irradiating protons, it was found that the decay time of the long-lasting emission is different for different irradiation fluence, and the time increased with increasing the proton irradiation fluence. Long-lasting emission after the irradiation of protons with fluences of $6.8 \times 10^{20} / \text{m}^2$ is strongest in all conditions.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,400,000	0	1,400,000
2008 年度	800,000	240,000	1,040,000
2009 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,100,000	510,000	3,610,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物理学一般

キーワード：蓄光体、残光、イオンビーム、加速器

1. 研究開始当初の背景

蓄光体は長残光性蛍光体とも呼ばれ、夜光塗料の代替品としてとして開発されたもの

である。紫外線等の外部エネルギーを蓄積し、外部刺激停止後も長時間にわたり発光を続ける特性 (残光特性) を持った蛍光体であり、

その特性は残光時間および発光波長で決められている。また、蓄光体は長寿命の残光を持つという特徴だけではなく、**Radioisotope (RI)**を用いた α 線、 β 線照射下において強い発光を示すということが分かってきた。照射下での発光について、高速中性子を用いたこれまでの研究においてアルミン酸ストロンチウム系長残光性蛍光体は下記の特性を有するということが分かってきた。

- 高速中性子照射下で発光し、そのスペクトルにはいくつかのピークが存在する
- 紫外線照射後と同様に残光特性を示し、その寿命は高速中性子照射量によって変化する

蓄光体の残光寿命特性は、捕獲中心である準安定状態のエネルギー準位の有無、およびそのエネルギーにより決定する。これらのパラメータは蓄光体材料の化学組成や微量添加物（付活材）によって変化するため、これまでの残光寿命の改善は主として付活材の選択、および化合物の化学組成調整によりなされてきたが、これには網羅的な材料探索が不可欠である。高速中性子を照射することによって残光寿命が変化するため、蓄光体の長寿命化手法として高速中性子照射が有効であることが分かったが、同時に放射化も生じるために照射後試料の取り扱いが困難であり、実用上現実的ではない。そこで、衝突作用（核的作用）を生じ、材料中に構造変化をもたらす線源としてイオンビームを利用して蓄光体の長寿命化に関する研究を行う。

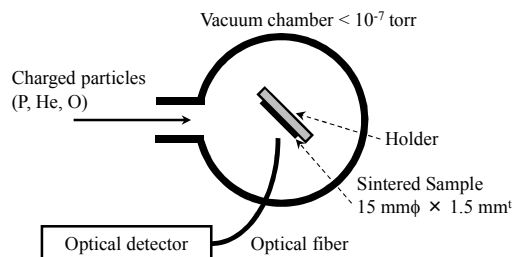
2. 研究の目的

放射線と物質との相互作用としては、主として電子的および核的作用が考えられるが、材料内に構造変化をもたらし、それによって新たなエネルギー準位の生成および既存のエネルギー準位の変化をもたらすのは主として核的作用である。イオンビームは種々の放射線の中でも核的效果が大きいことから、イオンビームを用いることで、効果的に発光（捕獲）中心の構造変化、およびそれに伴うエネルギー準位の変化を生成させ、蓄光体の機能を変化させることができると考えられる。ここで、イオンビームはそのイオン源の種類によって照射効果（電子的および核的效果）が異なる。そこで、種々のイオンビームをエネルギーを変化させながら照射して、蓄光体の残光特性の変化を調べ、最も優れた残光特性を示すイオンビーム照射条件を導出する。

3. 研究の方法

イオン種、およびエネルギーを変化させな

がら蓄光体材料に照射し、照射下の発光、および照射後の残光を測定した。ここで使用したイオン種は比較的材料自身との反応性が低い（材料自身と化学反応を起こして材料組成を変化させにくい）プロトン（P）、ヘリウム（He）およびP、Heよりも重い粒子である酸素（O）である。イオン照射は東北大学金属材料研究所の1.7MV タンデム加速器を用いて行った。イオン種の照射線量率は $5.0 \times 10^{17} / \text{m}^2\text{s}$ 以下である。図1に照射時の概念図を示す。ここで、照射試料が設置される真空容器内は 10^{-7}Torr 以下に真空引きされている。試料からの発光・残光は石英コア光ファイバを用いて真空容器から導出され、光スペクトラムアナライザで測定した。使用した蓄光体材料はユウロピウム、ディスプレイシウム添加アルミン酸ストロンチウム系長残光性蛍光体の一種である $\text{Sr}_4\text{Al}_4\text{O}_{25} \cdot \text{Eu}^{2+}, \text{Dy}^{3+}$ である。SPS プラズマ焼結装置を用いることで粉末の $\text{Sr}_4\text{Al}_4\text{O}_{25} \cdot \text{Eu}^{2+}, \text{Dy}^{3+}$ から焼結体試料を作



成した。作成した焼結体試料のサイズは $15\text{mm}\phi \times 1.5\text{mm}^t$ である。

図1 照射試験の概念図

4. 研究成果

照射したイオン種（P、He、O）ごとの発光スペクトルを図2に示す。また、プロトンのエネルギーを変化させ多量に得られた発光スペクトルを図3に示す。ここですべての発光スペクトルにおいて、400、480nmの発光ピークは Eu^{2+} 内の電子遷移に起因する発光であり、570nmの発光ピークは Dy^{3+} 内の電子遷移に起因する発光である。図2、3より、入射イオン種、およびそのエネルギーによって発光スペクトルの形状が異なることが分かる。すなわち蓄光体はイオンビーム照射下で強い発光（照射誘起発光）を持ち、そのイオン種、およびそのエネルギーに対して依存性を有しているということが分かる。これらのことから、蓄光体の発光を用いることで入射イオンの種類やエネルギーを弁別できる可能性があるということを見出した。

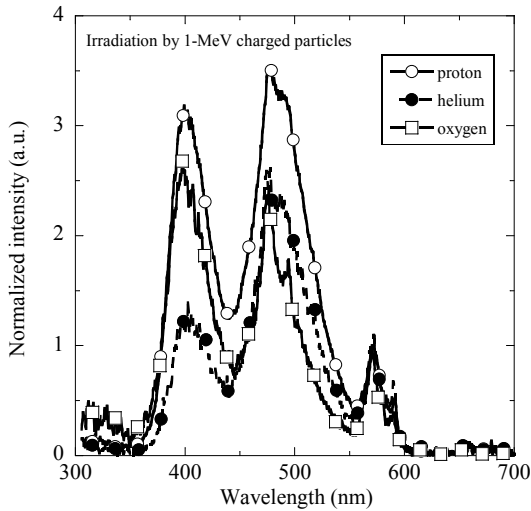


図2 プロトン、ヘリウム、酸素照射時の発光スペクトル

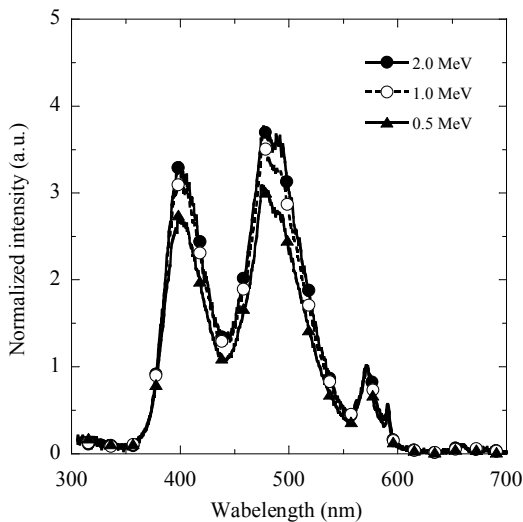


図3 0.5, 1, 2 MeV プロトン照射時の発光スペクトル

入射イオン種による照射損傷の変化を調べた。ここでは照射損傷としてイオン照射による発光量の減少を測定した。使用したイオン種 (P、He、O) による発光量の減少の照射線量依存性を図4に示す。横軸は各イオン種の照射線量であり、縦軸は各照射線量での発光量を照射直後の発光量で規格化した値である。図4より、すべてのイオン種において照射線量が増加するにつれて発光量が減少しているが、その減少割合はイオン種によって異なるということがわかる。その減少割合の違いはイオン種の質量に依存しており、酸素による照射損傷が最も大きく、プロトンによる照射損傷はわずかであるということが分かる。照射損傷はイオンの核的作用によると考えられる。そこで、蓄光体に P、He、O が入射した際の電子的、核的エネルギー付与の深さ分布を TRIM コードを用いて計算し

た。得られた計算結果を図5に示す。ここで、横軸はイオンの入射方向からの深さ分布であり、0は入射面である。図5より、酸素の核的作用が蓄光体表層に高密度で生じていることが分かる。そのため酸素による照射損傷が最も大きかったと考えられる。

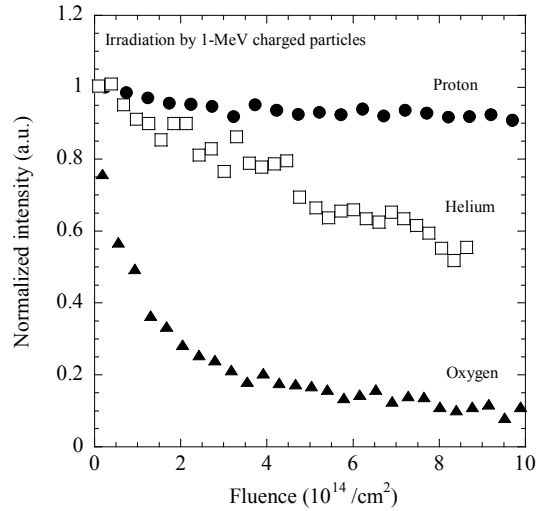


図4 プロトン、ヘリウム、酸素照射下の照射損傷による発光量の減少

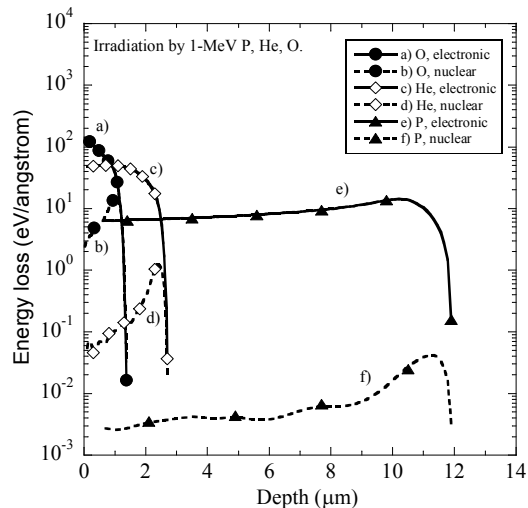


図5 TRIM コードを用いた P、He、O による電子的、核的エネルギー付与の深さ分布

蓄光体の残光寿命改善ということを考えると、改善するために利用する照射イオン種による蓄光体の照射損傷が小さく、発光量そのものが大きい必要がある。このことから蓄光体の残光寿命改善に使用するイオン種としてプロトンが最適であるという結論に達した。そこでプロトンを用いてその残光寿命変化を測定した。プロトン照射下の発光スペクトル、およびプロトン照射停止直後の発光スペクトルを図6に示す。照射下では Eu^{2+} 、 Dy^{3+} の発光が確認できるが、照射停止後は Eu^{2+} の発光のみが確認できる。このことから蓄光体の残光は Eu^{2+} 内の電子遷移のみによ

って生じているということが分かる。プロトンの照射線量の違いによる残光寿命の違いを測定した結果を図7に示す。横軸は照射停止後の経過時間であり、縦軸は照射停止直前の発光強度で規格化した残光の強度である。残光寿命は入射プロトンの照射線量によって異なり、 $6.8 \times 10^{20} / \text{m}^2$ 以下の照射線量では、プロトンの照射量が大きくなるにつれ残光寿命が長くなるということが分かる。プロトンを用いることで発光（捕獲）中心の構造変化、およびそれに伴うエネルギー準位の変化を生成させ、蓄光体の機能（寿命）を改善できたと考えられる。

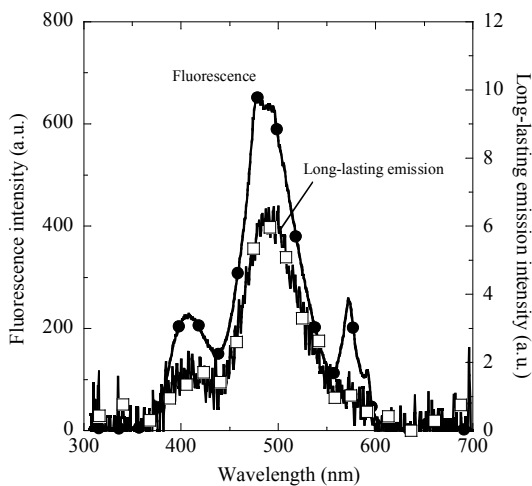


図6 プロトン照射時の発光スペクトルおよび照射停止後の残光スペクトル

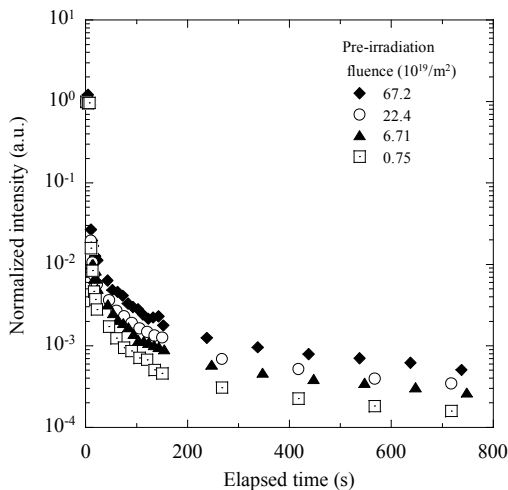


図7 プロトン照射後の残光の経時変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計3件）

1. K. Toh, T. Shikama, H. Katsui, S. Nagata, B. Tsuchiya, M. Yamauchi, T. Nishitani, "Effect of 14-MeV neutrons on strontium-aluminate-based

long-lasting phosphor", Journal of Nuclear Materials, Volumes 386-388 (2009) 1027-1029. 査読有

2. K. Toh, K. Sakasai, T. Nakamura, K. Soyama, S. Nagata, B. Tsuchiya, and T. Shikama, "Proton-induced Fluorescence and Long Lasting Emission of $\text{Sr}_4\text{Al}_{14}\text{O}_{25}:\text{Eu}^{2+}, \text{Dy}^{3+}$ ", Nuclear Science Symposium Conference Record (2009) 1427-1430. 査読無
3. K. Toh, K. Sakasai, T. Nakamura, K. Soyama, S. Nagata, B. Tsuchiya, and T. Shikama, "Charged-particle-induced Luminescence of $\text{Sr}_4\text{Al}_{14}\text{O}_{25}:\text{Eu}^{2+}, \text{Dy}^{3+}$ ", Nuclear Science Symposium Conference Record (2008) 1177-1180. 査読無

〔学会発表〕（計4件）

1. 藤健太郎、「放射線を利用した蓄光体の残光寿命改善」、第57回応用物理学関係連合講演会、2010年3月19日、東海大学。
2. Kentaro Toh, "Proton-induced fluorescence and long lasting emission of $\text{Sr}_4\text{Al}_{14}\text{O}_{25}:\text{Eu}^{2+}, \text{Dy}^{3+}$ ", 2009 Nuclear Science Symposium, 27 Oct 2009, Orlando, USA.
3. Kentaro Toh, "Charged-particle-induced Luminescence of $\text{Sr}_4\text{Al}_{14}\text{O}_{25}:\text{Eu}^{2+}, \text{Dy}^{3+}$ ", 2008 Nuclear Science Symposium, 20 Oct 2008, Dresden, Germany.
4. Kentaro Toh, "Effect of 14-MeV Neutrons on Strontium-aluminate-based Long-lasting Phosphor", 13th International Conference on Fusion Reactor Materials, 10 Dec 2007, Nice, France.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤 健太郎 (KENTARO TOH)

日本原子力研究開発機構・J-PARC センター・研究員

研究者番号：40344717

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：