

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560067

研究課題名(和文) 広領域対応型中性子用輝尽性蛍光体の研究

研究課題名(英文) Research on Photostimulable Phosphors for Wide-Range Neutron Detection

研究代表者

坂佐井 馨(SAKASAI, KAORU)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・J-PARCセンター・研究主席

研究者番号：00343913

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：広い中性子エネルギー範囲に対応した検出媒体を開発するため、ポリエチレンを中性子有感物質及び輝尽性蛍光体の混合物中に分散する方法について研究を行った。モンテカルロ計算や相対論を用いた理論計算及び実験の結果、ポリエチレンを含まなくても広い中性子エネルギー範囲について検出可能であることがわかった。高い感度のためには、輝尽性蛍光体と中性子有感物質を混合する方法が、高い位置分解能で検出するためには母体に有感物質を含む輝尽性蛍光体が有効であることがわかった。

研究成果の概要(英文)：In order to develop novel media for wide-range neutron detection, the mixtures of photostimulable phosphors and neutron sensitive materials in which polyethylene powder was dispersed have been investigated. As a results of experimental and theoretical studies using Monte Carlo simulation and relativistic theory, it was confirmed that the wide-range neutron detection can be established without adding any polyethylene. For high-sensitive neutron detection, the mixtures of photostimulable phosphors and neutron sensitive materials was effective, while the photostimulable phosphors that has a neutron sensitive materials in its matrix was effective for high-position resolution.

研究分野：放射線計測

キーワード：輝尽性蛍光体 低ガンマ線感度 高速中性子 熱中性子

1. 研究開始当初の背景

日本原子力研究開発機構と高エネルギー加速器研究機構との共同プロジェクトである大強度陽子加速器 (J-PARC) 計画や米国の SNS 計画をはじめ、国内外で大型の加速器の建設計画が進められている。それに伴い広いエネルギー領域の中性子の利用が可能になり、熱中性子だけでなく、高速中性子の線量測定あるいはそのイメージングの必要性が高まってきている。一方、先の東日本大震災による東京電力福島第一原子力発電所の事故では、作業員の被曝が問題となっており、ガンマ線だけでなく、中性子の被曝線量も測定することが不可欠であった。

一方、熱中性子用として開発された中性子イメージングプレートは高性能ではあるが、積分型検出器であるため、検出器信号として中性子によるものだけでなく、ガンマ線が付随する場においては、厚い鉛等の遮蔽対策を講じない限り、ガンマ線による信号も混在することになる。このため、研究代表者らはガンマ線感度の小さな、熱中性子及び高速中性子イメージング用輝尽性蛍光体の開発を行ってきた。

2. 研究の目的

熱中性子の測定には中性子の捕獲反応を利用するが、捕獲反応の断面積は通常中性子のエネルギーが高くなるにつれて減少するため、高エネルギー中性子用としてのイメージング検出媒体として輝尽性蛍光体を使用する場合には、中性子の捕獲反応ではなく、中性子と水素の弾性散乱を利用するのが得策である。これまでの研究代表者らの結果では、熱中性子用輝尽性蛍光体として、ガンマ線/中性子感度比の優れた $\text{SrBPO}_5:\text{Eu}^{2+}$ 輝尽性蛍光体、高速中性子用輝尽性蛍光体として、やはりガンマ線感度の低い $\text{KCl}:\text{Eu}^{2+}$ 輝尽性蛍光体に陽子発生用ラジエータを配置あるいは分散したものが得られている。ラジエータを前面に配置する方法では高速中性子の感度は高くなるが、分解能は劣る。一方、ラジエータを分散する方法では、感度は低いが分解能に優れる。本研究では、これらの輝尽性蛍光体の特性を生かすことによって広い範囲の中性子エネルギーに対応した輝尽性蛍光体の研究を行う。

3. 研究の方法

輝尽性蛍光体を用いて熱中性子を測定するには捕獲反応を、高速中性子を測定するには水素の弾性散乱を利用することは既に述べた。従って、広い範囲の中性子を対象とした場合、1) $\text{KCl}:\text{Eu}^{2+}$ あるいは $\text{KBr}:\text{Eu}^{2+}$ のような輝尽性蛍光体と LiF 等の中性子有感物質を混合させたものの前面にラジエータを配置するかあるいは分散させる方法、及び 2) $\text{SrBPO}_5:\text{Eu}^{2+}$ のように母体に中性子有感物質を含む輝尽性蛍光体の前面に有機高分子でできたラジエータを配置するかあるいは分

散させる方法がある。しかし、ラジエータを全面に配置する方法の場合、熱中性子がそれによって散乱、吸収されることによって感度が大きく低下する。従って、広いエネルギーに対応するために、本研究ではラジエータを分散させる方法を採用する。本方法の概念図を図 1 に示す。

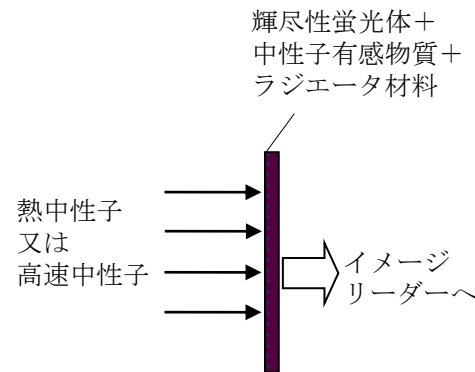


図 1 実験方法の概念図

図 1 は 1) の方法をについて示したもので、2) の方法の場合、「輝尽性蛍光体 + 中性子有感物質 + ラジエータ材料」が「母体に中性子有感物質を含む輝尽性蛍光体 + ラジエータ材料」となる。1) の実験では輝尽性蛍光体として低ガンマ線感度の $\text{KCl}:\text{Eu}^{2+}$ 及び LiF 、ラジエータとしてポリエチレンを用い ($\text{KCl}/\text{LiF}/\text{PE}$ サンプル)、そのポリエチレンの混合比を変えて 14MeV 中性子照射を行った。一方、2) の実験では、 $\text{SrBPO}_5:\text{Eu}^{2+}$ 輝尽性蛍光体とポリエチレンを用いて実験を行った。なお、 $\text{SrBPO}_5:\text{Eu}^{2+}$ 輝尽性蛍光体は $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ を混合すると熱中性子感度が上昇するのでこれを添加した ($\text{SBP}/\text{LBO}/\text{PE}$ サンプル)。なお、これら実験の理論計算を PHITS によるシミュレーション計算を行うと共に、相対論を用いてエネルギー付与の理論計算も併せて行った。

4. 研究成果

(1) サンプル作成方法

① $\text{KCl}/\text{LiF}/\text{PE}$ サンプル作成法

$\text{KCl}:\text{Eu}^{2+}$ 蛍光体は、 KCl 及び EuCl_2 を適量秤量し乳鉢で約 20 分間混合後、電気炉 (空気雰囲気) で 700°C で 3 時間焼成した。 Eu の濃度は 0.5mol% である。冷却後粉砕しさらに 20 分間乳鉢で混合し、再度 700°C で 3 時間焼成・粉砕した。その後、これに LiF 粉末及びポリエチレン粉末を乳鉢で混合し、ペレット状容器に入れ、60kN の圧力をかけてサンプルを製作した。作成したサンプルの大きさは直径が 13mm、厚さが 1.5mm である。

② $\text{SBP}/\text{LBO}/\text{PE}$ サンプル作成法

$\text{SrBPO}_5:\text{Eu}^{2+}$ 蛍光体は SrCO_3 、 $^{10}\text{H}_3\text{BO}_3$ (濃縮度 96%)、 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 、及び $\text{EuCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ を適量秤量し、乳鉢で 20 分混合後、電気炉

で 600°C で 2 時間、800°C で 2 時間焼成した。Eu の濃度は 2mol% である。冷却後粉碎しさらに 20 分間乳鉢で混合し、再度 600°C で 2 時間、800°C で 2 時間焼成・粉碎した。その後、これに $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ 粉末及びポリエチレン粉末を乳鉢で混合し、ペレット状容器に入れ、60kN の圧力をかけてサンプルを製作した。作成したサンプルの大きさは直径が 13mm、厚さが 1.5mm である。

(2) 高速中性子照射実験

高速中性子照射実験は、原子力機構の核融合中性子工学用中性子源施設 (FNS) で行った。FNS では、400keV 加速器で加速された荷電粒子 (deuteron) を中性子発生用ターゲット (トリチウム) に入射させ、ターゲット内で起こる核反応を利用して中性子を発生させている。使用した核反応は $\text{T}(d,n)^4\text{He}$ で、発生する中性子のエネルギーは 14.8MeV であり、中性子発生数はおおよそ $1.7 \times 10^{11} \text{ n/s}$ である。高速中性子照射位置での照射量は $^{93}\text{Nb}(n,2n)^{93m}\text{Nb}$ 核反応を用いた放射化により決定した。図 2 に照射実験のセットアップ状況 (KCl/LiF/PE サンプル) を示す。

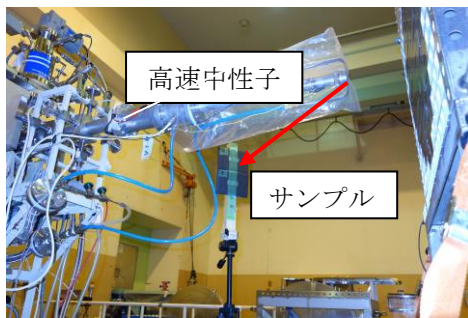


図 2 高速中性子照射実験の様子

高速中性子照射後、輝尽性蛍光出力を図 3 に示す測定体系で測定した。高速中性子で照射された試料を半導体レーザー (オーディオテクニカ製、SU-31E、635nm、6mW) で照射することにより、輝尽性蛍光を発生させる。輝尽性蛍光は光電子増倍管 (浜松ホトニクス製、R647P) で測定されるが、レーザー光その他のバックグラウンド光を除去するため、光電子増倍管の受光面に KCl/LiF/PE サンプルに対しては 420nm 干渉フィルタを、SBP/LBO/PE サンプルに対しては 400nm フィルタセットした。これは、KCl/LiF/PE 及

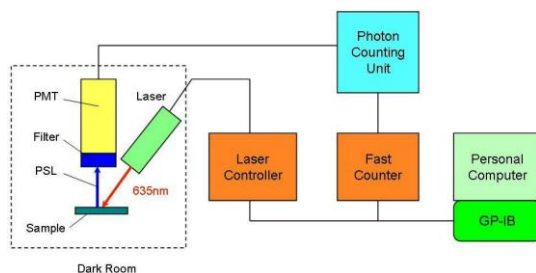


図 3 輝尽性蛍光特性測定体系

び SBP/LBO/PE の発光波長のピークがそれぞれ 390nm、420nm であるからである。光電子増倍管からの信号は光子カウンティングユニット (浜松ホトニクス製、C3866) にて NIM 信号に変換され、その出力パルスは高速カウンタ (ヒューレットパッカー製、HP53131A) で測定した。なお、この測定システムは GP-IB を通じて全てコンピュータ制御されている。また、測定系の一部 (図中で点線で囲まれた部分) は簡易暗室におかれている。

輝尽性蛍光出力の一例として、KCl/LiF/PE サンプルに ^{241}Am からのアルファ線を照射し、その後レーザーで照射したときの輝尽性蛍光出力を図 4 に示す。

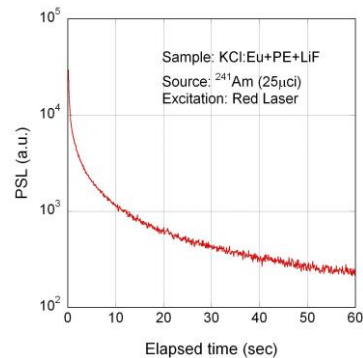


図 4 輝尽性蛍光出力の例

図 4 の横軸はレーザー照射開始からの時間を示しており、輝尽性蛍光出力はレーザー照射初期が非常に強く、その後指数関数的に減少し、最後にはレーザーを照射しても輝尽性蛍光が出力されなくなる。実験では、これを積分したものを輝尽性蛍光出力としている。

(3) KCl/LiF/PE サンプル照射実験

KCl/LiF/PE サンプルの照射実験では、KCl:Eu²⁺ と LiF の混合比を一定にしてラジエータとして PE の量を変化させたサンプルを製作し、そのスペクトル特性や α 線照射による輝尽性蛍光特性等の基礎特性を測定した後 FNS で照射実験を行った。

サンプルからの輝尽性蛍光出力 $P(x,y)$ は、サンプルが一樣で、その出力が荷電粒子によるエネルギー付与に比例すると仮定すれば、

$$PSL(x,y) = K \times \frac{x}{\rho_{KCl}} \times \frac{y}{\rho_{LiF}} \times \frac{1-x-y}{\rho_{PE}} \times E_{total}$$

と導出できる。ここに、 x,y はそれぞれサンプル中の KCl:Eu²⁺ 及び LiF の重量比であり、

$$F = \left(\frac{dE}{dx} \right)_{LiF} / \left(\frac{dE}{dx} \right)_{KCl}$$

$$G = \left(\frac{dE}{dx} \right)_{PE} / \left(\frac{dE}{dx} \right)_{KCl}$$

である。また、 K は比例定数で、 ρ_i は物質 i のバルク密度、 E_{total} は PHITS で計算したサンプルへの全エネルギー付与である。図 6 に照射実験結果と、その結果を上記の理論式でフィッティングした結果を示す。

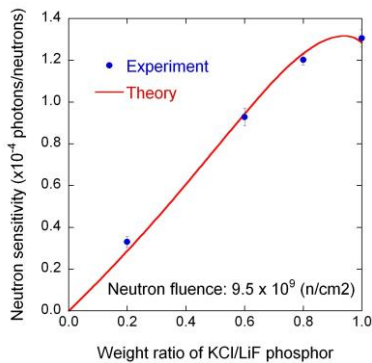


図 6 KCl/LiF/PE サンプルの照射実験結果

図からわかるように、理論式による解析計算の結果と実験結果はほぼ一致し、最大の輝尽性蛍光出力が得られるのは、ラジエータの量が重量比で 5% のときであった。しかし、ラジエータを全く添加しない場合と比較すると、その出力は数%しか変わらず、 $KCl:Eu^{2+}$ と LiF を混合しただけでも高速中性子検出は可能であることがわかる。

本サンプルを広い領域の中性子測定に適用するためには、入射中性子エネルギーの関数として全付与エネルギーを評価する必要がある。図 7 に PHITS による計算結果と

$$E_{capture} = (E_n + Q)(1 - e^{-\Sigma})$$

による解析結果を示す。ここに、 E_n は入射中性子エネルギー、 Q は反応の Q 値、 Σ は中性子捕獲断面積である。

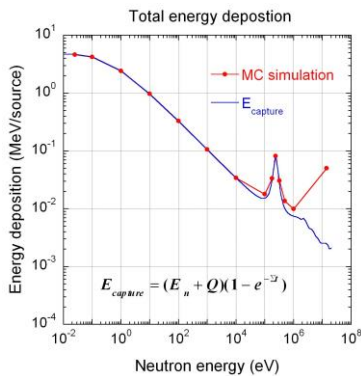


図 7 PHITS による全付与エネルギーと中性子捕獲による付与エネルギー

図からわかるように、中性子エネルギーが 1MeV を超えると捕獲による以外の付与エネルギーがあることがわかる。このため、どのような荷電粒子が寄与するのかを評価するために、高速中性子による捕獲反応における荷電粒子 (α 粒子とトリトン) による付与エネルギーを相対論を用いて計算した。

図 8 にアルファ線による付与エネルギーの

計算結果を示す。同図には参考のため陽子による付与エネルギーも示す。

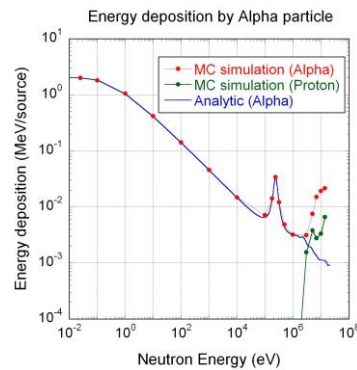


図 8 アルファ線による付与エネルギーの計算結果

図 8 によると、アルファ線による付与エネルギーは入射中性子エネルギーが数 MeV までは捕獲反応によるものとほぼ一致するが、それ以上では一致しないことがわかる。つまり、捕獲反応以外から生成されるアルファ線の付与エネルギーが支配的であることがわかる。

これをさらに明確にするために、入射中性子エネルギーを 100keV、1MeV、5MeV、及び 14MeV に変化させたときのアルファ線とトリトンのエネルギー付与分布を図 9 に示す。

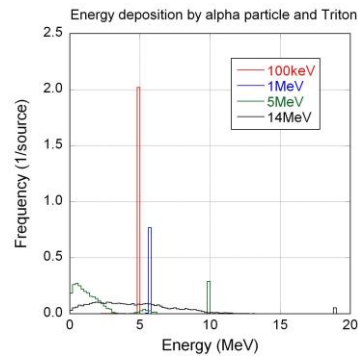


図 9 入射中性子エネルギーを変化させたときアルファ粒子とトリトンの付与エネルギーの計算結果

図 9 で入射エネルギーごとに、 $E_n + Q$ に対応したピークが確認でき、そのピーク高さはほぼ捕獲反応断面積に比例している。一方、入射中性子エネルギーが 5MeV 以上の場合、そのピーク以外に低エネルギー側に裾をひいた分布が確認できる。これら付与エネルギーは捕獲反応以外、例えば $^{35}Cl(n,\alpha)$ や $^{39}K(n,\alpha)$ 反応のような核破砕反応によって生成されたアルファ線によるものと考えられる。これは、入射中性子エネルギーが 14MeV の場合、反応断面積がそれぞれ 0.36 バーン及び 0.26 バーンあり、一方 $^6Li(n,\alpha)^3T$ 反応は 0.08 バーンしかないことから予想できる。

最後に本サンプルによる 14MeV 中性子入射の場合の位置分解能の評価を行った。その結果を図 10 に示す。

図 10 はサンプルの半面を高速中性子で照射された場合のエネルギー付与を位置の関

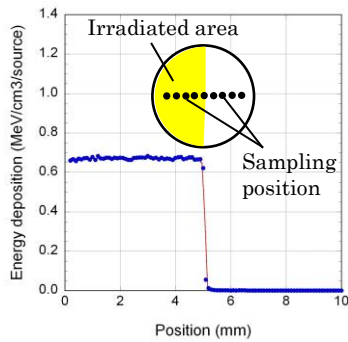


図 10 計算したエネルギー付与分布。ここに、高速中性子は試料の半面のみを照射したものと計算した。

数として示したものである。通常この曲線を Edge Spread Function (ESF) と呼び、これを微分した関数を Line Spread Function (LSF) と呼んでいる。これを tan 型の ESF

$$C_1 + C_2 \times \tan^{-1}[-\lambda(x - x_0)]$$

でフィッティングし、LSF の半値幅を分解能と定義すると、分解能は

$$\frac{2}{\lambda} = 0.023 \text{ (mm)}$$

となった。これが KCl/LiF/PE サンプル試料を用いる場合に得られる最大の位置分解能である

(4) SBP/LBO/PE サンプル照射実験

SBP/LBO/PE サンプルの照射実験では、KCl/LiF/PE サンプル照射試験と同様、SrBPO₅:Eu²⁺ と Li₂B₄O₇ の混合比を一定にしてラジエータとして PE の量を変化させたサンプルを製作し、そのスペクトル特性や α 線照射による輝尽性蛍光特性等の基礎特性を測定した後 FNS で照射実験を行った。

SBP/LBO/PE サンプルのエネルギー付与は以下の式で表される。

$$PSL(x, y) = K \times \frac{\frac{x}{\rho_{SBP}}}{\frac{x}{\rho_{SBP}} + \frac{y}{\rho_{LBO}} + \frac{1-x-y}{\rho_{PE}}} \times E_{total}$$

ここに、x, y はそれぞれサンプル中の SrBPO₅:Eu²⁺ 及び LBO の重量比であり、

$$F = \left(\frac{dE}{dx} \right)_{LBO} / \left(\frac{dE}{dx} \right)_{SBP}$$

$$G = \left(\frac{dE}{dx} \right)_{PE} / \left(\frac{dE}{dx} \right)_{SBP}$$

である。その他の意味は KCl/LiF/PE サンプルと同様である。実験結果及び理論式によるフィッティング結果を図 11 に示す。

図 11 の横軸は SBP 及び LBO のサンプル全体に対する重量比を示しているが、この結

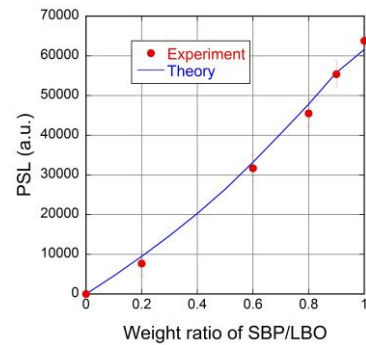


図 11 SBP/LBO/PE サンプルの照射実験結果

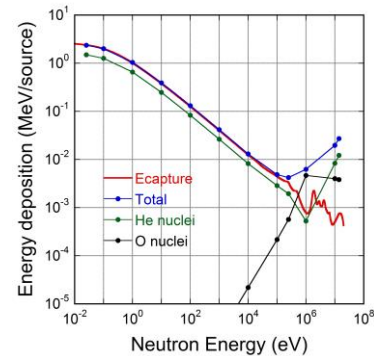


図 12 SBP/LBO/PE サンプルの照射実験結果

果から、理論式による解析計算の結果と実験結果はほぼ一致し、最大の輝尽性蛍光出力が得られるのは、ラジエータを含まない場合であることがわかる。

SBP/LBO/PE サンプルに対し、入射中性子エネルギーの関数としてエネルギー付与を計算したものを図 12 に示す。

図 12 から入射中性子エネルギーが 500keV 程度までは全エネルギー付与は中性子捕獲反応によるものとほぼ等しいが、それ以上のエネルギーでは一致しないことがわかる。一方、500keV 以上のエネルギーでは酸素原子によるエネルギー付与が増大していくことがわかる。つまり、SBP/LBO/PE サンプルでは、高い中性子エネルギーの場合、中性子の捕獲反応以外に、O(n,α) や P(n,α) 反応のような核破砕反応、及びサンプル中の酸素原子と中性子の弾性あるいは非弾性散乱の結果生ずるエネルギーをもった酸素原子によるエネルギー付与が支配的となる。また、アルファ粒子と ⁷Li 粒子のエネルギー付与のスペクトルを図 13 に示す。

図 13 からは、SBP/LBO/PE サンプルの場合でも入射中性子エネルギーが高くなるとピーク以外に低エネルギー側に裾をひいた分布が確認できる。なお、各エネルギーでピークが 2 つあるのは、¹⁰B(n,α) では、⁷Li の励起状態を経由する反応としない反応があり、それによってエネルギー付与が異なるからである。また、SBP/LBO/PE サンプルについても、KCl/LiF/PE サンプルと同様に位置分解能を評価すると 0.013mm となった。

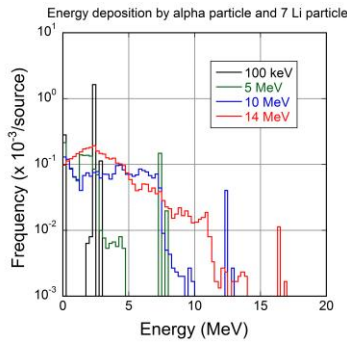


図 13 入射中性子エネルギーを変化させたときアルファ粒子と ${}^7\text{Li}$ 粒子の付与エネルギーの計算結果

(5) 照射実験結果のまとめ

照射実験結果から、 KCl/LiF/PE サンプルの場合は最適な混合比は PE が 5% であることが判明したが、PE が無い場合との差は数% であり、PE が無い場合でも高速中性子測定は可能である。一方、 SBP/LBO/PE サンプルでは PE が無い場合が最も高感度であった。すなわち、当初の目的であった「1 つの検出媒体によって熱中性子から高速中性子にわたる広い範囲の中性子を測定」することは両媒体で達成可能であることが分かった。両媒体の比較では、中性子感度は KCl+LiF の方が上回っているが、位置分解能は SBP+LBO が上回っていることが判明した。つまり、線量測定用としては KCl+LiF が、イメージング用としては SBP+LBO が適していることが結論できる。

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 2 件)

① K. Sakasai, K. Toh, T. Nakamura, K. Takakura, C. Konno, and Y. Iwamoto, "Application of KCl:Eu^{2+} Storage Phosphors to Wide-range Neutron Detection, 2013 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC) (2013), NPO1-26, (CD-ROM) (査読なし)

② K. Sakasai, K. Toh, T. Nakamura, K. Takakura, C. Konno, and Y. Iwamoto, "Storage Characteristics of Mixtures of KCl:Eu^{2+} Phosphors and Polyethylene Powder by Irradiation of Fast Neutrons", 2012 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC) (2012), pp.318-322. (CD-ROM) (査読なし)

[学会発表] (計 5 件)

① K. Sakasai, K. Toh, T. Nakamura, K.

Ochiai, and C. Konno, "SrBPO₅:Eu²⁺ Storage Phosphors for Wide-range Neutron Detection", 2014 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, Seattle, USA, November 11, 2014.

② 坂佐井馨, 藤健太郎, 中村龍也, 落合謙太郎, 今野力, 「広領域中性子測定のための $\text{SrBPO}_5\text{:Eu}^{2+}$ 輝尽性蛍光体の特性」、第 75 回応用物理学会、北大、札幌市、2014 年 9 月 17 日

③ K. Sakasai, K. Toh, T. Nakamura, K. Takakura, C. Konno, and Y. Iwamoto, "Application of KCl:Eu^{2+} Storage Phosphors to Wide-range Neutron Detection", 2013 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, Seoul, Korea, October 29, 2013.

④ 坂佐井馨, 藤健太郎, 中村龍也, 落合謙太郎, 今野力, 「 KCl:Eu^{2+} 輝尽性蛍光体の広領域中性子測定への応用」、第 74 回応用物理学会秋学期学術講演会、同志社大学、京都、2013 年 9 月 18 日

⑤ K. Sakasai, K. Toh, T. Nakamura, K. Takakura, C. Konno, and Y. Iwamoto, "Storage Characteristics of Mixtures of KCl:Eu^{2+} Phosphors and Polyethylene Powder by Irradiation of Fast Neutrons", 2012 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, Anaheim, USA, October 29, 2012

6. 研究組織

坂佐井 馨 (SAKASAI KAORU)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・J-PARC センター・研究主席

研究者番号：00343913

(2)研究分担者 なし

(3)連携研究者

中村 龍也 (NAKAMURA TATSUYA)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・J-PARC センター・研究主幹

研究者番号：60354768

藤 健太郎 (TOH KENTARO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・J-PARC センター・研究副主幹

研究者番号：40344717