

平成 21 年 6 月 8 日現在

研究種目：基盤研究 (C)  
 研究期間：2006～2008  
 課題番号：18560050  
 研究課題名 (和文) 輝尽性蛍光体を用いた高速中性子イメージングの研究  
 研究課題名 (英文) Research on Fast Neutron Imaging  
 Using Photostimulated Phosphors  
 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・J-PARC センター・研究主幹  
 研究者番号：00343913

## 研究成果の概要：

電荷を持たないため直接の検出が難しく、しかも人体に有害な、高いエネルギーを有する高速中性子のイメージング或いは検出方法として、輝尽性蛍光体（放射線を光信号に変える物質）とポリエチレン（高速中性子を測定しやすい荷電粒子に変換する物質）を組み合わせた方法について研究した。高速中性子発生には必ずガンマ線が伴うが、高速中性子のみを測定するために、本研究では、ガンマ線に感じにくい輝尽性蛍光体を作成して研究を行い、その方法の有効性を確認した。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006 年度	1,700,000	0	1,700,000
2007 年度	900,000	270,000	1,170,000
2008 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	540,000	4,040,000

## 研究分野：放射線検出器

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：輝尽性蛍光体、高速中性子、イメージング

## 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。高速中性子は線質係数が大きく、人体への影響も多大であるので、その量及び分布を正確に評価することは極

めて重要である。一方、熱中性子用としては、中性子イメージングプレートが開発され、生物単結晶の中性子散乱研究に使用され、多大な成果をあげている。しかし、中性子イメージングプレートは元来 X 線あるいはガンマ線検出媒体として開発された BaFBr:Eu という輝尽性蛍光体に中性子コンバータとして酸化ガドリニウムを混合したものからできている。したがって、積分型検出器である中性子イメージングプレートを用いた場合、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。このように、中性子イメージングプレートは、高性能ではあるがガンマ線の問題がつきまとっていた。

## 2. 研究の目的

中性子イメージングプレートのガンマ線の問題は基本的にその構成物質である  $\text{BaFBr}$  と  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  に由来する。特に、中性子エネルギーが高くなると中性子反応断面積が低下し、ガンマ線/中性子感度の比が悪くなる。また、中性子コンバータであるガドリニウムは通常の  $1/v$  法則に従わず、高速中性子エネルギー領域で複雑な共鳴反応を多数有しており、また中性子との反応では多数のガンマ線が発生する。さらに、ガドリニウムは、 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}$  がガンマ線用シンチレータとして使用されていることからわかるように、原子番号が大きく、ガンマ線に感度を有する。したがって、高エネルギー中性子イメージング検出媒体としてイメージングプレート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。このため、X線あるいはガンマ線用の  $\text{BaFBr:Eu}$  輝尽性蛍光体の前面に有機高分子で作られたラジエータを配置し、高速中性子と水素の弾性散乱による反跳陽子を輝尽性蛍光体で検出する方法が有効である。しかし、 $\text{BaFBr:Eu}$  のガンマ線感度が高いため、ガンマ線の付随する場では、遮蔽対策を施さない限り、ガンマ線/中性子感度比の向上は期待できない。これらのガンマ線の問題を解決するためには、ガンマ線感度の無い、あるいは非常に小さな高速中性子用あるいは重粒子用検出媒体の開発が必要である。このため、本研究では、ガンマ線感度の低い輝尽性蛍光体を用いた高速中性子用イメージング手法の研究を行った。

## 3. 研究の方法

輝尽性蛍光体を用いて高速中性子イメージングを行うには、3つの方法がある。すなわち、1) ガンマ線感度の低い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方法、2) ガンマ線感度の低い輝尽性蛍光体中にラジエータ材料を分散させる方法、及び3) ガンマ線感度が低く、かつ母体に水素を多く含有する輝尽性蛍光体を開発する方法である。本研究では、主に1)の方法で研究を進めた。1)の方法の概念図を図1に示す。図の左側から高速中性子が入射し、弾性散乱によって生じた陽子が輝尽性蛍光体中に入射する。この輝尽性蛍光体表面をレーザーで走査することによって、輝尽性蛍光強度分布を知ることが可能となり、陽子、すなわち高速中性子のイメージを取得するこ

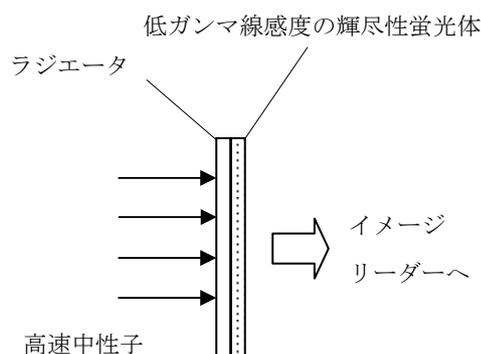


図1 ガンマ線感度の低い輝尽性蛍光体の前面にラジエータを配置する方法

とが可能である。ただし、陽子のエネルギー  $E_p$  は、高速中性子のエネルギー  $E_n$  と  $E_p = E_n \cos^2\theta$  ( $\theta$ は散乱角) の関係があり、さらにラジエータは有限の厚みを持つので、その位置分解能は制限される可能性がある。しかし、本検出媒体を小さなサイズにして、光ファイバ等を用いて多点計測を行えば非常に簡便に高速中性子の空間分布を知ることが可能である。

実験では、輝尽性蛍光体として既に開発した低ガンマ線感度の  $\text{SrBPO}_5:\text{Eu}^{2+}$  を主に用いた。高速中性子としてはエネルギー  $5\text{MeV}$  及び  $14\text{MeV}$  を使い、ラジエータの厚さを変化させてその輝尽性蛍光出力を測定すると共に、PHITSを用いたシミュレーション計算を実施した。

## 4. 研究成果

### (1) 高速中性子照射実験方法

製作した  $\text{SrBPO}_5:\text{Eu}^{2+}$  粉末とバインダを混合してプレート状に成形したものを照射サンプルとして使用した。 $\text{SrBPO}_5:\text{Eu}^{2+}$  輝尽性蛍光体層の厚さは  $0.45\text{mm}$  である。このプレートを  $1\text{cm} \times 1\text{cm}$  に切り出し、その前面にラジエータとしてポリエチレンシートを配置して高速中性子を照射した。また、比較のため、市販のX線用イメージングプレート(富士フィルム、BAS-SR)を同様に照射した。

高速中性子照射実験は、原子力機構の放射線標準施設棟で行った。放射線標準施設棟では、 $4\text{MV}$  バンデグラフ静電型加速器で加速された荷電粒子を中性子発生用ターゲットに入射させ、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  $\text{D}(d,n)^3\text{He}$  及び  $\text{T}(d,n)^4\text{He}$  で、発生する中性子のエネルギーはそれぞれ、 $5\text{MeV}$  及び  $14.8\text{MeV}$  である。

高速中性子照射量は加速のビーム電流によって校正した。高速中性子照射後、輝尽性蛍光特性曲線を図2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、

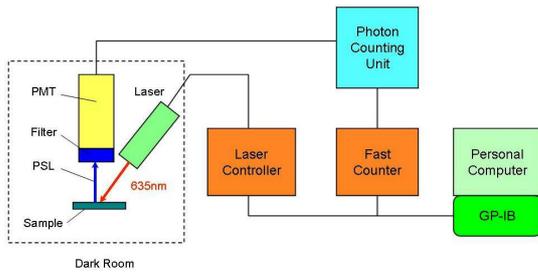


図2 輝尽性蛍光特性測定体系

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400nm干渉フィルタをセットした。光電子増倍管からの信号はフォトン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、その出力パルスを高速カウンタ(ヒューレットパッカード製、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。

## (2) 5MeV高速中性子照射実験結果

図3及び図4に、ポリエチレンシートの厚さを変えた場合のSrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>輝尽性蛍光体とBAS-SRの輝尽性蛍光出力を示す。高速中性子のエネルギーは5MeV、照射量は、そ

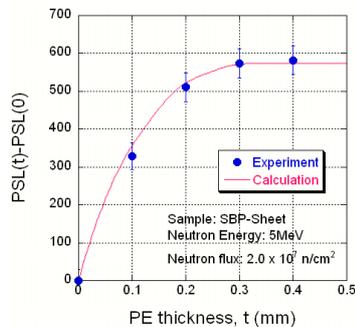


図3 SrBPO<sub>5</sub>:Eu 蛍光体の輝尽性蛍光出力

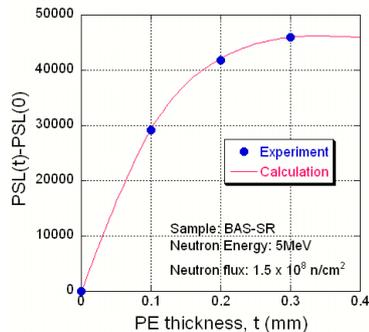


図4 BAS-SRの輝尽性蛍光出力

れぞれ  $2 \times 10^7 \text{ n/cm}^2$  及び  $1.5 \times 10^8 \text{ n/cm}^2$  であった。両図では、ガンマ線の影響や高速中性子とポリエチレンシート等の核反応の影響を除去するため、ポリエチレンシートのない場合の出力を差し引いている。また、図中には、モンテカルロシミュレーションコードPHITS (Multi-Purpose Particle and Heavy Ion Transport Code System) を用いて計算した結果も併せて示す。計算では、高速中性子はポリエチレンシートに垂直に照射されるように設定され、照射面積は実験と同様  $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$  である。計算したのは、蛍光体に付与される単位体積あたりの平均付与エネルギーである。輝尽性蛍光出力は付与エネルギーに比例すると考えられるので、図中では、実験で得られた最大の輝尽性蛍光出力に計算結果を規格化した。

この付与エネルギーは、MCNP (Monte Carlo N-Particle Transport Code) に使用されている核反応を用いて計算されている。したがって、SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>蛍光体中に付与されるエネルギーは、ポリエチレン中の水素原子核と高速中性子との弾性散乱で生じた陽子以外に、高速中性子とSr、B、P、O、及びC原子核と高速中性子の核反応で生じた荷電粒子によるエネルギー付与も含まれる。なお、計算ではガンマ線がないものと仮定して計算した。

実験及び計算から、最大の輝尽性蛍光出力を与えるポリエチレンシートの厚さは約0.3mmであることがわかる。そして0.3mm以上ではほぼ一定となることもわかる。水素原子核と高速中性子の弾性散乱において、そのエネルギーには、 $E_p = E_n \cos^2 \theta$  の関係がある。ここに、 $E_p$  及び  $E_n$  は陽子及び中性子のエネルギーであり、 $\theta$  は散乱角である。したがって、高速中性子との弾性散乱で生じる陽子のエネルギーは入射中性子エネルギーが5MeVであれば、最大で5MeVのエネルギーを有することができる。5MeVのエネルギーを有する陽子のポリエチレン中での飛程は0.3mm程度なので、図3及び図4におけるエネルギー付与及び輝尽性蛍光出力のポリエチレンシートの厚さ依存性は容易に理解できる。また、図3及び図4における計算値と実験値の一致は極めて良いこともわかる。両図を比較すると、輝尽性蛍光出力と言う点ではBAS-SRの方がSrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>蛍光体よりも優れている。しかし、後述するように、ガンマ線除去性能と言う点では、SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>蛍光体が約一桁優れている。さらなるポリエチレンシートの厚さの増大はエネルギー付与の減少あるいは輝尽性蛍光出力の減少を招く恐れがある。図5はSrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>蛍光体中のエネルギー付与をPHITSを用いて計算したものである。中性子エネルギーが5MeVの場合、ポリエチレンシートの厚さが増大する

につれエネルギー付与は増大し、約 0.3mm で最大値をとり、それ以降徐々に減少していく。これは、ポリエチレンシートの厚さが過度に増大すると、中性子の散乱及びストッピングが増大するためと考えられる。

一方、ポリエチレンシートの厚さが増大するにつれ、高速中性子がポリエチレン中で熱化され、 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  反応の割合が増大することも考えられる。しかし、この割合は PHITS の計算によると非常に小さいものである。図 6 に中性子エネルギーが 5MeV、ポリエチレン厚さが 0.3mm の場合、ポリエチレンシートを通過した直後の中性子エネルギースペクトル（蛍光体に入射する中性子のスペクトル）の計算結果を示す。熱化される中性子

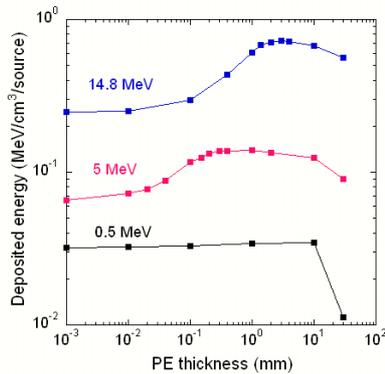


図 5 SrBPO<sub>5</sub>:Eu 蛍光体へのエネルギー付与

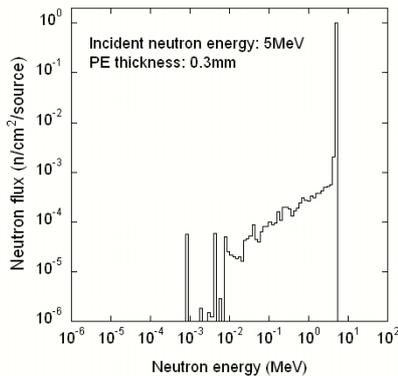


図 6 0.3mm ポリエチレン通過後のスペクトル

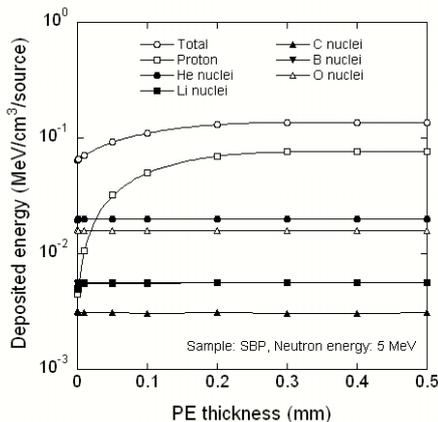


図 7 生成した荷電粒子による付与エネルギー

のエネルギーは非常に小さいことがわかる。また、図 7 には高速中性子照射によって生じた幾つかの荷電粒子によるエネルギー付与の計算結果を示す。 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  によって生じた  $\alpha$  粒子や  $^7\text{Li}$  粒子によるエネルギー付与はポリエチレン厚さにほとんど無関係に一定であることがわかる。このことは、本蛍光体中での  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  はほとんどが 5MeV 中性子によって引き起こされる（断面積は約 0.15 バーン）ことがわかる。

さて、図 3 と図 4 から PHITS で計算したエネルギー付与あたりの輝尽性蛍光出力を評価することができる。その結果を図 8 と図 9 に示す。ただし、付与エネルギーはガンマ線がないものとして計算したものであることに注意する。図 8 からわかるように、SrBPO<sub>5</sub>:Eu 蛍光体の場合、実験結果と計算結果が良く一致していることがわかる。これはガンマ線の影響が非常に小さいことを意味する。一方、BAS-SR の場合、実験結果と計算結果は一致しない。計算はガンマ線がないものとして行ったものであるから、実験データと計算結果との差は高速中性子発生に伴うガンマ線によるものである。この差はほとんど一定で、最大の輝尽性蛍光出力の約

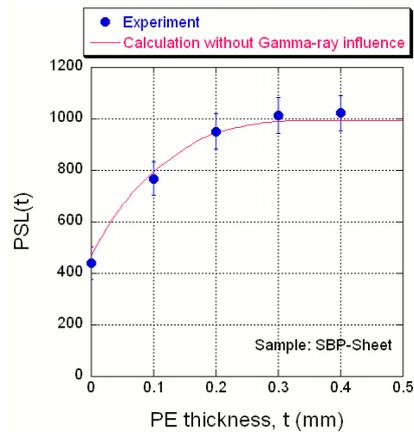


図 8 SrBPO<sub>5</sub>:Eu 蛍光体の輝尽性蛍光出力

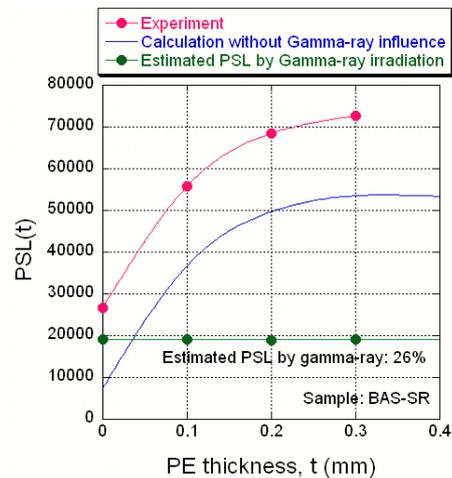


図 9 BAS-SR の輝尽性蛍光出力

表 1 評価した中性子感度及びガンマ線感度

	$S_n$	$S_\gamma$	$S_\gamma/S_n$
SrBPO <sub>5</sub> :Eu <sup>2+</sup> 蛍光体	50	1.5	0.03
BAS-SR	360	130	0.36
比	7.2	87	12

単位 :  $S_n$  (photons/ $10^6$ neutrons)、  
 $S_\gamma$  (photons/ $\gamma$ 's associated with $10^6$ neutrons)

26%であることがわかる。このような高いガンマ線感度は高速中性子イメージングの品質の低下を招く可能性がある。というのは、このような高いガンマ線感度を有するイメージングプレートを使用した場合、ガンマ線の影響を差し引く必要があるからである。

図 8 及び図 9 から、高速中性子及びガンマ線感度を評価することができる。これを表 1 に示す。高速中性子感度においては、BAS-SR の場合の方が約 7 倍高いが、ガンマ感度においては約 80 倍も高い。したがって、ガンマ線除去性能を示す  $S_\gamma/S_n$  比は SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>蛍光体の方が 10 倍優れていることがわかる。ここに、 $S_\gamma$  及び  $S_n$  はガンマ線感度及び中性子感度である。

ところで、ガンマ線感度を計算で評価するためには、本照射場におけるガンマ線のスペクトルを知る必要がある。しかし、これもまた正確には評価されていない。というのは、高速中性子と検出器の壁物質との核反応から発生するガンマ線の影響等もあって

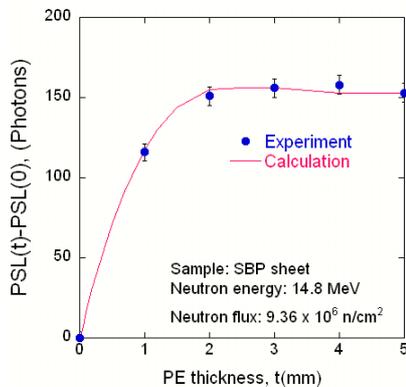


図 10 SrBPO<sub>5</sub>:Eu 蛍光体の輝尽性蛍光出力

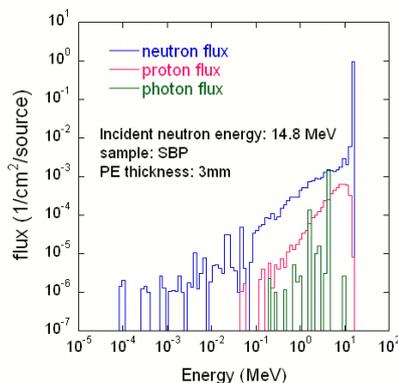


図 11 3mm ポリエチレン通過後のスペクトル

実測するのが困難であるからである。その一方、同じ核反応  $D(d,n)^3\text{He}$  で発生させた 5MeV 高速中性子場でのガンマ線を評価した報告がある。そこで、実験を行った場でのガンマ線スペクトルはこれとさほど変わらないとして評価を行った。評価されたガンマ線スペクトルは約 10MeV のエネルギー範囲にまで伸びているが、ほぼ 2MeV 程度のエネルギーのガンマ線が多くを占めている。このため、PHITS を用いて 2MeV ガンマ線によるエネルギー付与を計算し、輝尽性蛍光出力はこれに比例すると仮定した場合、2MeV ガンマ線による感度は、BAS-SR で  $9.9 \times 10^{-4}$  (photons/ $\gamma$ 's)、SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>蛍光体で  $1.4 \times 10^{-5}$  (photons/ $\gamma$ 's) となった。その比 71 は、表 1 に示した値とほぼ一致した。SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>蛍光体の低いガンマ線感度はその構成元素が Sr、B、P、及び O 等の原子番号の小さなものであることに由来するものと考えられる。

### (3) 14MeV 高速中性子照射実験結果

図 10 に 14.8MeV 高速中性子での SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>蛍光体の輝尽性蛍光出力と PHITS による計算結果(エネルギー付与を最大の輝尽性蛍光出力に規格化)を示す。高速中性子照射量は  $9.36 \times 10^6$ (n/cm<sup>2</sup>)である。図では、ポリエチレンシートがない場合の値を差し引いたものを示している。輝尽性蛍光出力の最大値を与えるポリエチレンの厚さはほぼ 3mm であることがわかる。また、図 11 には 3mm 厚さのポリエチレン通過後の中性子スペクトルの計算結果を示す。5MeV 中性子の場合と同じように、熱化される中性子の割合は極めて小さいことがわかる。したがって、本蛍光体中での  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  はほとんどが 14.8MeV 中性子によって引き起こされる(断面積は約 0.047 バーン)。

図 12 には計算したエネルギー付与あたりの輝尽性蛍光出力と実験データを示す。計算値と実験データはほぼ一致していることがわかる。5MeV 中性子の場合と同様、エネルギー付与の計算にはガンマ線がないとして行っているため、この結果は、ガンマ線の影響がほとんどないことを示している。図 12

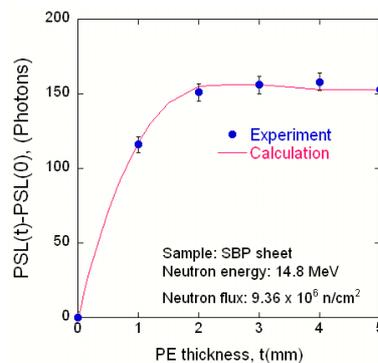


図 12 SrBPO<sub>5</sub>:Eu 蛍光体の輝尽性蛍光出力

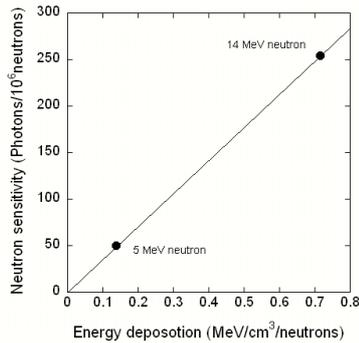


図 13 エネルギー付与と高速中性子感度の関係

から、14.8MeV 中性子による中性子感度は、 $2.54 \times 10^{-4}$  (photons/neutrons)となった。一方、表 1 によると、5MeV 中性子の感度は  $5.0 \times 10^{-5}$  (photons/neutrons)である。これを PHITS で計算した付与エネルギーの関数として示すと図 13 のようになる。ほぼエネルギー付与と中性子感度には線形な関係が存在することがわかる。

#### (4) まとめ

ガンマ線感度の低い輝尽性蛍光体として SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup> 蛍光体を高速中性子検出に応用した結果について調べた。この場合、高速中性子を荷電粒子である陽子に変換するラジエータとしてポリエチレンシートをその前面に配置した。最大の輝尽性蛍光出力を与えるポリエチレンシートの厚さは 5MeV 中性子の場合、約 0.3mm、14.8MeV 中性子の場合 3mm であり、これは PHITS によるモンテカルロシミュレーション計算とも一致した。5MeV 中性子照射を行った場合、SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup> 蛍光体におけるガンマ線感度の影響は無視できるのに対し、市販のイメージングプレートでは最大の輝尽性蛍光出力の 26%であった。このような高いガンマ線感度を有する輝尽性蛍光体を用いた場合、イメージの質の低下は免れない。一方、SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup> 蛍光体のような低ガンマ線感度の輝尽性蛍光体を用いた場合、輝尽性蛍光出力そのものは小さくなるものの、ガンマ線除去性能は格段に優れたものとなる。14.8MeV 中性子照射を行った場合でも、SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup> 蛍光体へのガンマ線の影響はほとんど無視できた。また、5MeV 中性子による中性子感度と 14.8MeV 中性子による感度には良い比例関係が見出された。

なお、SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup>以外の蛍光体として、KCl:Eu についても 14MeV 中性子照射実験も行っている。その輝尽性蛍光出力はほぼ SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup> 蛍光体と同じ程度であった。

#### 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 3 件)

K. Sakasai, Y. Iwamoto, K. Soyama, “Detection of Fast Neutron by Storage Phosphors With Low Gamma-ray Sensitivity”, IEEE Transaction on Nuclear Science, Vol.55, pp.2352-2356(2008) (査読有)

K. Sakasai, Y. Iwamoto, K. Soyama, “Storage Characteristics of SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup> Phosphors by Fast Neutron Irradiation”, IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record (CD-ROM) (2008) (査読無)

K. Sakasai, Y. Iwamoto, K. Soyama, “Fast Neutron Detection by Storage Phosphors With Low Gamma-ray Sensitivity”, IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record (CD-ROM) (2007) (査読無)

[学会発表] (計 3 件)

K. Sakasai, Y. Iwamoto, K. Soyama, “Storage Characteristics of SrBPO<sub>5</sub>:Eu<sup>2+</sup> Phosphors by Fast Neutron Irradiation”, IEEE Nuclear Science Symposium, Dresden, Germany, October 20, 2008.

K. Sakasai, Y. Iwamoto, K. Soyama, “Fast Neutron Detection by Storage Phosphors With Low Gamma-ray Sensitivity”, IEEE Nuclear Science Symposium, Hawaii, U.S., October 31, 2007.

坂佐井馨、岩元洋介、曾山和彦、“低ガンマ線感度輝尽性蛍光体による高速中性子検出”、2007年秋季第68回応用物理学会学術講演会、札幌、2007年9月

#### 6. 研究組織

(1) 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・

J-PARC センター・研究主幹

研究者番号：00343913

(2) 研究分担者

曾山 和彦 (SOYAMA KAZUHIKO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・

J-PARC センター・研究主幹

研究者番号：90343912