

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 8 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560059

研究課題名（和文） 高速中性子イメージング用輝尽性蛍光体の研究

研究課題名（英文） Research on Photostimulated Phosphors
for Fast Neutron Imaging

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（和文）：

高速中性子の検出・イメージングを行うため、輝尽性蛍光体とポリエチレンを用いる方法について研究を行った。その結果、高い感度で検出するためにはポリエチレンを全面に配置する方法が、高い位置分解能で検出するにはポリエチレンと輝尽性蛍光体を混合する方法が有効であることがわかった。また、これを基に実際に 10cm×10cm 程度の大きさの実用的なプレートを作成した。

研究成果の概要（英文）：

In order to detect or image fast neutrons, detection methods using photostimulated phosphors and polyethylene have been studied. As a result of experimental and numerical studies, it was confirmed that the method where the polyethylene sheets were set in front of the phosphors was effective for high sensitive detection, while the method using the mixture of polyethylene powder and the phosphors for imaging with high position resolution. In addition, based on the results, practical plates with an area of 10 x 10 cm² have been manufactured.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010 年度	800,000	240,000	1,040,000
2011 年度	1,700,000	510,000	2,210,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

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：高速中性子、イメージング、輝尽性蛍光体

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用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

一方、中性子の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 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が、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/中子感度比の向上は期待できない。一方、前年度までの成果により、研究代表者らが開発した SrBPO₃:Eu²⁺輝尽性蛍光体にラジエータを配置し、その厚さを実験的理論的に最適化を図る等の工夫を行い、従来型に比べガンマ線感度の影響が一桁少ない高速中子イメージングの取得の見通しが得られた。ただ、昨年度までの媒体は直径 10mm 程度のサンプルであり、イメージングを取得するにはやや小さい。このため、本申請課題では、最適な検出媒体及び検出方法を見極め、最終年度には 10cm×10cm 程度のプレートを製作する。

3. 研究の方法

輝尽性蛍光体を用いて高速中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) 及び 2) の方法で研究を進めた。1) 及び 2) の方法の概念図をそれぞれ図 1 及び図 2 に示す。図 1 では、左側から高速中子が入射し、弾性散乱によって生じた陽子が輝尽性蛍光体中

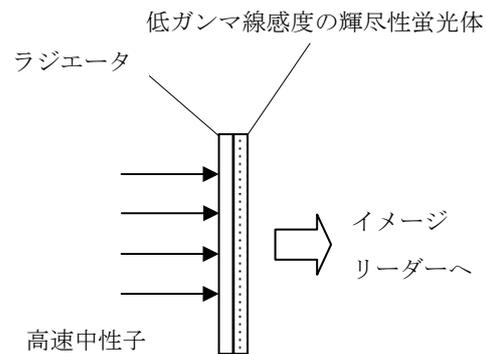


図 1 ガンマ線感度の低い輝尽性蛍光体の前面にラジエータを配置する方法

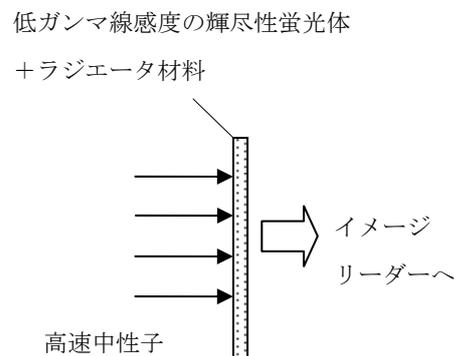


図 2 ガンマ線感度の低い輝尽性蛍光体中にラジエータ材料を分散させる方法

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、すなわち高速中子のイメージを取得することが可能である。ただし、陽子のエネルギー E_p は、高速中子のエネルギー E_n と $E_p = E_n \cos^2 \theta$ (θ 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。

図 2 では、図 1 と同様、左側から高速中子が入射し、分散させたラジエータ中の水素と高速中子の弾性散乱によって生じた陽子が輝尽性蛍光体に入射して電子・正孔対を生成する。本方法では、ラジエータ材料が輝尽性蛍光体中に分散されているので、1) の方法よりは位置分解能が改善される。ただし、ラジエータ材料を多量に分散させることが困難であるので高速中子による出力は比較的小さい可能性があるしかし、

1) の方法での実験では、輝尽性蛍光体として低ガンマ線感度の KCl:Eu²⁺ 及び KBr:Eu²⁺ を主に用いた。高速中子としてはエネルギー 14MeV を用い、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。また、2)の方法では、KCl:Eu²⁺蛍光体とポリエチレンの混合物を用い、その混合比を変化させて実験を行った。

4. 研究成果

(1) 高速中性子照射実験方法

KCl:Eu²⁺蛍光体及び KBr:Eu²⁺蛍光体のサンプルの製作方法は以下の通りである。

KCl (KBr) 及び EuCl₂ 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。冷却後粉碎しさらに 20 分間乳鉢で混合し、再度 700°C で 3 時間焼成した。冷却後粉碎し、最後にペレット状容器に入れ、60 トンの圧力をかけてサンプルを製作した。製作したサンプルの色は共に白色で大きさは直径 13mm、厚さ 1.5mm である。図 3 に製作したサンプルの外観写真 (KCl:Eu²⁺蛍光体) を示す。

なお、輝尽性蛍光体として出力を有するた

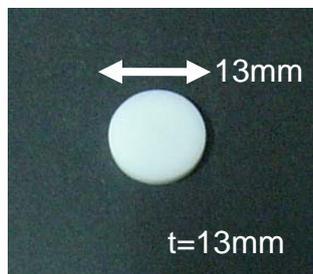


図 3 製作した KCl:Eu²⁺サンプルの外観写真

めに必要な活性化物質として従来の EuCl₃ から EuCl₂ に変更した。これは活性化物質として 2 価の Eu が必要であるが、EuCl₃ では 3 価のまま残っている部分が少なくないことが考えられるからである。この変更により出力が数倍増加したことが確認できている。

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 T(d, n)⁴He 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 3×10¹¹n/s である。高速中性子照射位置での照射量は ⁹³Nb(n, 2n)^{93m}核反応を用いた放射化により決定した。

高速中性子照射後、輝尽性蛍光出力を図 5 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 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

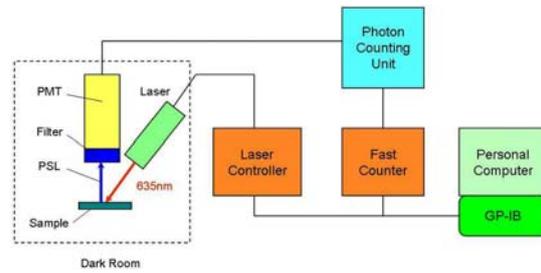


図 5 輝尽性蛍光特性測定体系

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) ラジエータを全面に置いた場合の照射実験結果

図 6 及び図 7 は前面にポリエチレンシートを配置した場合の 14MeV 高速中性子照射実験結果を示す。実験ではポリエチレンシートの厚さを変えて行った。高速中性子照射量は、それぞれ 7.2×10⁹n/cm²、6.3×10⁹n/cm² である。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 1cm×1cm 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。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 3mm であることがわかる。14MeV 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 3mm 程度なので、両図の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。図 8 には KBr:Eu²⁺中での陽子のフラックスの計算結果を示す。ポリエチレンシートの厚さが 3mm 以上ではほぼ一定になっていることからこの依存性がよりはっきりわかる。

さて、図 6 と図 7 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 9 と図 10

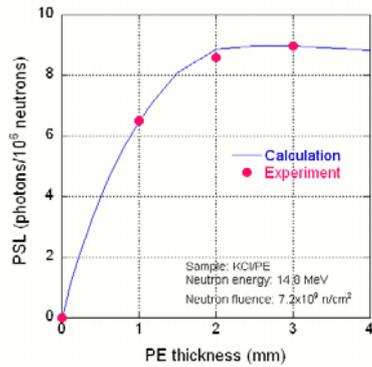


図 6 ポリエチレンシートの厚さを変えた場合の KCl:Eu²⁺試料の PSL 強度。ただし、ポリエチレンがない場合の値を差し引いている。実線は計算結果で実験値の最大値に規格化している。

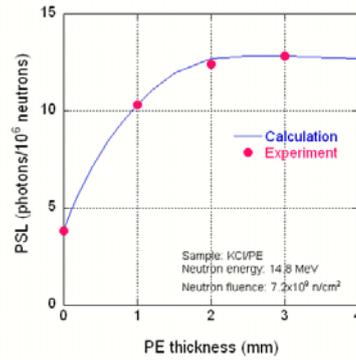


図 9 ポリエチレンシートの厚さを変えた場合の KCl:Eu²⁺試料の PSL 強度。計算値は、図 8 から評価した単位付与エネルギーあたりの PSL 強度。

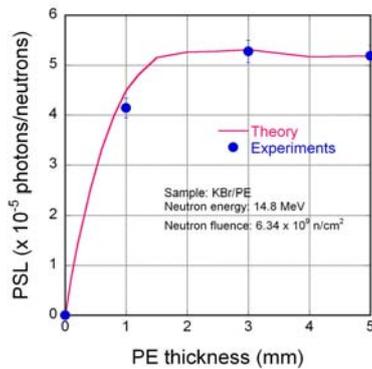


図 7 ポリエチレンシートの厚さを変えた場合の KBr:Eu²⁺試料の PSL 強度。ただし、ポリエチレンがない場合の値を差し引いている。実線は計算結果で実験値の最大値に規格化している。

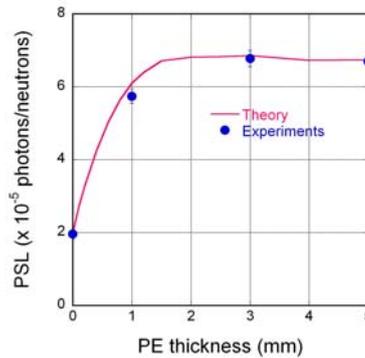


図 10 ポリエチレンシートの厚さを変えた場合の KBr:Eu²⁺試料の PSL 強度。計算値は、図 9 から評価した単位付与エネルギーあたりの PSL 強度。

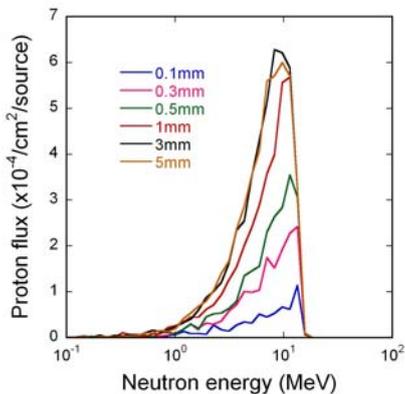


図 8 ポリエチレンシートの厚さを変えた場合の KBr:Eu²⁺試料中の陽子のフラックス。

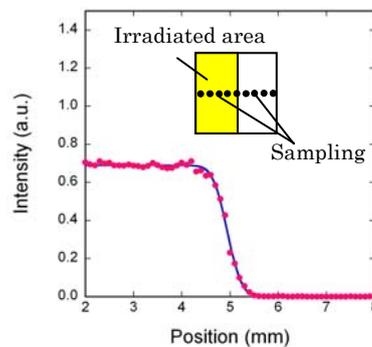


図 11 計算したエネルギー付与分布。ここに、高速中性子は試料の半面のみを照射したものとして計算した。

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。したがって、計算結果と実測値との差がガンマ線の影響によるものと考えられるが、図 9 及び図 10 では計算結果と実測値がほぼ一致している。このことは、この 2 つの試料はガンマ線感度が非常に低いことを意味している。

前面にポリエチレンシートを配置した場合、ポリエチレン中の水素原子と高速中性子

との弾性散乱で発生した陽子によって蛍光体中にエネルギーが付与され、また、陽子エネルギー E_p と中性子エネルギー E_n の間には $E_p = E_n \cos^2 \cdot$ の関係 (\cdot は散乱角) があるため、分解能が低下する可能性がある。このため、試料の位置分解能を PHITS で評価した。図 11 は前面にポリエチレンシートのついた KBr:Eu²⁺試料の半面に高速中性子が照射された場合のエネルギー付与を位置の関数としてプロットしたものである。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。ガウス型の ESF

$$C_1 + C_2 \times \text{Erf}[-\lambda(x - x_0)]$$

で図 12 の曲線をフィッティングし、その LSF の半値幅で分解能を定義すると、

$$\frac{2\sqrt{\ln 2}}{\lambda} = 0.46(\text{mm})$$

となった。これが KBr:Eu²⁺試料を用いる場合に得られる最大の位置分解能である。なお、KCl:Eu²⁺試料の場合は、やや大きく 0.62mm となった。これは試料の密度の影響によるものと考えられる。

(3) ラジエータを蛍光体中に分散させた場合の実験結果

前述したように、ラジエータを前面に配置した体系は陽子を発生するのに効果的であるが、その反面位置分解能が低下する恐れがある。このため、蛍光体中にポリエチレンを分散させた体系について評価を行った。評価では蛍光体として KCl:Eu²⁺を用いた。

蛍光体中に分散されたポリエチレン中の水素原子と高速中性子の弾性散乱によって生じた陽子によってエネルギーが付与されるわけであるが、当然分散させるポリエチレンの割合が高ければ高いほど陽子の発生数が多くなり、付与エネルギーが高くなる。しかし、その一方で、輝尽性蛍光を発生させる蛍光体そのものの割合が減少するため、蛍光体に付与されるエネルギーが減少する。

蛍光体中にはポリエチレンの様に分散されているものと仮定すると、この蛍光体からの輝尽性蛍光強度 PSL(x) は、

$$PSL(x) = K \times \frac{\rho_{PE} x}{F \rho_{KCl} (1-x) + \rho_{PE} x} \times E_{total}$$

と導出できる。ここに、x は KCl:Eu²⁺蛍光体の重量比であり、F は

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

である。また、K は比例定数、 ρ_{KCl} と ρ_{PE} は KCl:Eu²⁺とポリエチレンのバルクの密度であり、 E_{total} は試料中に付与される全エネルギーである。

図 12 は、PHITS を用いて計算した試料中に付与されるエネルギーを、幾つかの粒子ごとに示したものである。図からわかるように、陽子によるエネルギー付与は KCl:Eu²⁺の重量比が増加すると共に減少し、従って全エネルギー付与も減少していくことがわかる。

図 13 は、実際に KCl:Eu²⁺の重量比を変化させた試料を製作し、高速中性子照射後輝尽性蛍光強度を測定した結果である。理論曲線は

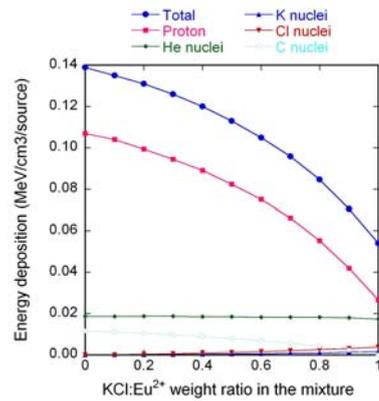


図 12 KCl:Eu²⁺の重量比を変えた場合のエネルギー付与。

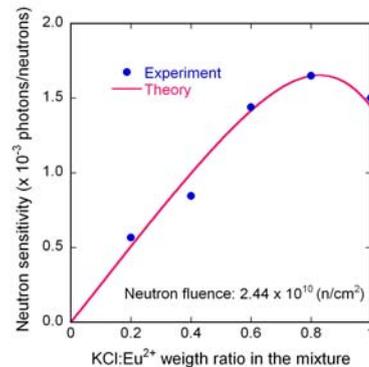


図 13 KCl:Eu²⁺の重量比を変えた場合の試料の中性子感度。実線は導出した理論曲線でフィッティングしたもの。

上で求めた理論曲線の比例係数 K のみを変化させてフィッティングした結果である。理論曲線と実験値は良く一致し、最大の PSL 強度を与えるのは KCl:Eu²⁺の重量比が 0.8 であることがわかる。

この場合の位置分解能を図 11 と同じように評価すると、0.12mm となってかなり分解能が改善されることがわかる。

(4) 実際のプレートの製作

以上の結果を基に、最終年度にはメーカーに依頼して実際のプレートを製作した。製作したのは、KCl:Eu²⁺、KBr:Eu²⁺、及び KCl:Eu²⁺とポリエチレンの混合物 (KCl:Eu²⁺の重量比 0.8) である。プレートの仕様は

厚さ : 0.6mm ± 0.1mm

サイズ : 100mm × 100mm ± 1mm

である。図 14 にその表面写真を示す。これらが実際に輝尽性蛍光を示すことを確認するため、FNS で照射したところ、プレートは全て輝尽性蛍光特性を示すことを確認できた。一例として KCl:Eu²⁺とポリエチレンの混合物の結果を図 15 に示す。実際に高速中性子照射により輝尽性蛍光を示すことがわかる。



図 14 製作したプレートの写真。10cm×10cmのプレートから1cm×1cmの大きさに切り出したもの。

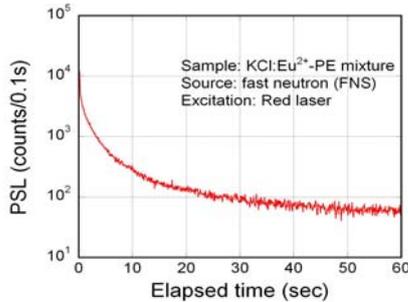


図 15 KCl:Eu²⁺とポリエチレンの混合物の高速中性子照射後の輝尽性蛍光特性。

(4)まとめ

ガンマ線感度の低い輝尽性蛍光体として KCl:Eu²⁺ 蛍光体及び KBr:Eu²⁺ を高速中性子検出に応用した結果について調べた。ラジエータを前面に配置した体系では、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 14.8MeV 中性子の場合 3mm であり、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。また、ガンマ線感度は無視できるほど小さかった。また、位置分解能を向上させるため、蛍光体中にポリエチレンを分散させた体系について調べた。最大の輝尽性蛍光強度を与えるのは、KCl:Eu²⁺ 蛍光体とポリエチレンの混合物では KCl:Eu²⁺ 蛍光体の重量比が 0.8 となり、導出した理論曲線とも極めて良く一致した。この場合、位置分解能は 0.12mm 程度となり、ポリエチレンを前面に配置した場合より数倍改善された。さらに、これらの結果を基に実際にプレートを製作した。製作したプレートは実際に輝尽性蛍光特性を有することが確認できた。これらのプレートは高速中性子測定やイメージングに有用である。

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)

K. Sakasai, Y. Iwamoto, T. Nakamura, K. Toh, K. Takakura, and C. Konno, “Storage characteristics of KCl:Eu²⁺ phosphors with

radiators by irradiation of fast neutrons”, 2009 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record (2009) pp. 1422-1426. (CD-ROM) (査読なし)

K. Sakasai, Y. Imamoto, K. Toh, T. Nakamura, K. Takakura, and C. Konno, “Storage Characteristics of KBr:Eu²⁺ Phosphors With Radiators by Irradiation of Fast Neutrons”, 2010 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, (2010) pp. 966-970. (CD-ROM) (査読なし)

[学会発表] (計 3 件)

K. Sakasai, Y. Iwamoto, T. Nakamura, K. Toh, K. Takakura, and C. Konno, “Storage characteristics of KCl:Eu²⁺ phosphors with radiators by irradiation of fast neutrons”, IEEE Nuclear Science Symposium, Orland, USA, October 28, 2009.

K. Sakasai, Y. Imamoto, K. Toh, T. Nakamura, K. Takakura, and C. Konno, “Storage Characteristics of KBr:Eu²⁺ Phosphors With Radiators by Irradiation of Fast Neutrons”, IEEE Nuclear Science Symposium, Knoxville, USA, November 3, 2010.

坂佐井馨、藤健太郎、中村龍也、高倉耕祐、今野力、岩元洋介 “KCl:Eu²⁺ 輝尽性蛍光体とポリエチレン混合物の高速中性子照射特性”、2011 年秋季第 72 回応用物理学会学術講演会、山形大学、2011 年 8 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 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・

J-PARC センター・研究副主幹

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・

J-PARC センター・研究副主幹

研究者番号：40344717