イオンビームによる蛍光中心の発現機構の解明

Elucidation of the Formation Mechanism of Fluorescent Centers Induced by Ion Beams

岡田豪#,A), 越水正典 B), 澤田真一 C), 越川博 C), 倉島俊 C),

Go Okada #,A), Masanori Koshimizu ^{B)}, Shin-ichi Sawada ^{C)}, Hiroshi Koshikawa ^{C)}, Satoshi Kurashima ^{C)}

^{A)} Co-creative center of Industrial Science and Technology, Kanazawa Institute of Technology

^{B)} Research Institute of Electronics, Shizuoka University

^{C)} Takasaki Institute for Advanced Quantum Science, National Institutes for Quantum Science and Technology (QST)

Abstract

Radiophotoluminescence (RPL) is a phenomenon in which new luminescent centers are generated through interactions with ionizing radiation. RPL holds significant promise as a next-generation technique for nuclear track detection. However, the limited availability of suitable RPL-active materials presents a major challenge for the continued research and development of this technology. In recent years, we have identified a number of novel materials exhibiting RPL properties, which show considerable potential for nuclear track detection applications. The aim of this study is to demonstrate the feasibility of these materials and to deepen the understanding of the underlying physics of the RPL phenomenon, thereby contributing to the advancement of RPL-based technologies.

Keyword: Radiophotoluminescence, RPL, nuclear track detection

1. はじめに

放射線と物質との相互作用により、その物質中に 蛍光中心が形成される現象はラジオフォトルミネッ センス(RPL)と呼ばれる[1]。RPL は次世代型飛跡 検出器である蛍光飛跡検出器としての応用が期待さ れる一方で、これまでに報告例のある材料は Al₂O₃:C,Mg [2]、LiF [3]および Ag 添加リン酸塩ガラ ス [4]の3 種類のみに限られ、蛍光飛跡検出器の性 能に与える材料の条件は明らかとされていない。こ れは、RPL 現象そのものが稀有であり、世の中で認 知されている材料が極めて少なく、知見の蓄積が皆 無である事が主要因である。一方、申請者等はこれ までに数多くの新規 RPL 材料の創出に成功してお り、材料系を跨いだ比較研究を行う事ができる立場 にある[5,6]。

本研究では申請者が独自開発した複数の異なる RPL 材料に対して異なるイオンビームを照射し、蛍 光中心の形成をサブミクロンスケールで検出・比較 する事により、蛍光中心の発現機構を解明する事を 目的とする。初年度の 2024 年では既存材料である Ag 添加リン酸塩ガラスを用い、本研究で計画する実 験フィージビリティスタディを実施した。

2. 実験方法

Ag 添加ナトリウム・アルミニウムリン酸塩(Na-Al-P) ガラスは千代田テクノル㈱より提供された。 同材料は個人被ばく線量計(ガラスバッジおよびガ ラスリング)に用いられているものであり、その化 学組成は質量比で 11.00% Na, 6.12% Al, 31.55% P, 51.16% O, 0.17% Ag である[7]。

Ag 添加リン酸塩ガラスの基礎特性評価は TSL/OSL/RPL 自動統合計測装置(TORAIMS)を用 いて行った。評価では特に、X 線照射前後のフォト ルミネッセンススペクトルおよびX線照射後の熱処 理温度の影響を評価した。

粒子線照射は QST 高崎研の TIARA サイクロトロ ンを用いて真空中で行った。照射したイオンは、カ クテル5より 56 MeV N³⁺、75 MeV Ne⁴⁺、150 MeV Ar⁸⁺、322 MeV Kr¹⁷⁺および 454 MeV Xe²⁵⁺および 20 MeV H⁺とした。またこれらイオンの照射フルエンス は 10⁷ n/cm² とした。

照射した試料は自作した共焦点レーザー走査蛍光 顕微鏡を用いて読み出しを行った。励起源には 371 nm 半導体レーザー (CUBE, Coherent)、対物レンズ にはニコン製 Plan Fluor (40×, NA0.75, WD0.66; Nikon)、光検出器には光電子増倍管 (H10722-20, Hamamatsu Photonics)を用いた。また、光検出器上 流に短波長カットフィルタ (FELH0500, Thorlabs)を 設置し、励起光をカットし、試料からの蛍光信号の みを検出した。

3. 実験結果

Fig. 1 に Ag 添加リン酸塩ガラスの X 線照射前後 における PL スペクトルおよび X 線照射後に 140°C で 10 分間熱処理した後の PL スペクトルを示す。同 結果より、X 線を照射することにより 650 nm をピ ークとする発光帯が認められた。これは先行研究よ り X 線の電離作用により生成された正孔が Ag⁺に捕 獲されることにより Ag²⁺が、Ag⁰ と Ag⁺が皆合する ことにより Ag²⁺が形成し、発光中心として振舞った ためであると考えられる[8]。また、X 線照射後に熱 処理を加えると発光強度が増加した。これは、上記 反応が熱エネルギーにより促進されたためであると 考えられる。挿入図に X 線照射後の発光強度および 熱処理温度との関係を示す。発光強度は 140°C で最



Figure 1. PL spectra of Ag-doped phosphate glass as a function of irradiation and heat-treatment histories. The inset shows integrated PL intensity as a function of treatment temperature.

大となり、さらに高温で処理をした場合は発光強度 が減少した。すなわち、RPLとしての感度は、放射 線照射後に140℃で熱処理を行うことにより最大化 されることが示唆された。よって、蛍光飛跡の読み 出しには140℃で10分間熱処理した試料を用いた。



Figure 2. Nuclear track image of 75 MeV Ne⁴⁺ detected by using RPL of Ag-doped phosphate glass.

Fig. 2に代表例としてAg 添加リン酸塩ガラスを検 出器として用いた際に得られた 75 MeV Ne⁴⁺の蛍光 飛跡像を示す。像の取得範囲は 256 µm×256 µm で あり、解像度は 512×512 ピクセルである。同結果よ り、Ag 添加リン酸塩を用いることにより照射した粒 子の飛跡を記録することができること、また、構築 した共焦点レーザー走査蛍光顕微鏡を用いることに より蛍光飛跡像を読み出す事ができることが認めら れた。

Fig. 3 に各粒子線を照射した際に得られた蛍光飛跡強度のヒストグラムを示す。同結果より、蛍光飛跡強度は照射イオン種に強く依存する事が認められる。また、照射イオンビームの線エネルギー付与(LET)が増加する低向が認められた。そのため、局所中に形成される蛍光中心濃度は粒子線により付与されるエネルギ

ーに大きく依存するといえる。 今後は異なる材料の LET 依存性を評価すること により、蛍光中心形成の発現機構を考察する。



Figure 3. Histogram of track intensities induced by different ion species.

参考文献

- J. H. Schulman, R. J. Ginther, C. C. Klick, R. S. Alger, and R. A. Levy, "Dosimetry of X-Rays and Gamma-Rays by Radiophotoluminescence," J. Appl. Phys., vol. 22, no. 12, pp. 1479-1487, 1951, doi: 10.1063/1.1699896.
- [2] M. S. Akselrod and A. E. Akselrod, "New Al2O3:C,Mg crystals for radiophotoluminescent dosimetry and optical imaging," Radiat Prot Dosimetry, vol. 119, no. 1-4, pp. 218-21, 2006, doi: 10.1093/rpd/nci663.
- [3] M. Levita, T. Schlesinger, and S. S. Friedland, "LiF Dosimetry Based on Radiophotoluminescence (RPL)," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 23, no. 1, pp. 667-674, 1976, doi: 10.1109/tns.1976.4328325.
- [4] R. Yokota and H. Imagawa, "Radiophotoluminescent Centers in Silver-Activated Phosphate Glass," Journal of the Physical Society of Japan, vol. 23, no. 5, pp. 1038-1048, 1967, doi: 10.1143/jpsj.23.1038.
- [5] G. Okada, "Novel radio-photoluminescence materials and applications," J. Ceram. Soc. Jpn., vol. 129, no. 7, pp. 419-424, Jul 2021, doi: 10.2109/jcersj2.21056.
- [6] G. Okada, Y. Koguchi, T. Yanagida, S. Kasap, and H. Nanto, "Recent advances in radiophotoluminescence materials for luminescence dosimetry," Jpn. J. Appl. Phys., vol. 62, no. 1, p. 010609, 2023, doi: 10.35848/1347-4065/ac9023.
- [7] J. A. Perry, RPL Dosimetry (Medical Science Series). IOP Publishing, 1987.
- [8] S. W. S. McKeever, S. Sholom, and N. Shrestha, "Observations regarding the build-up effect in radiophotoluminescence of silver-doped phosphate glasses," Radiat. Meas., vol. 123, pp. 13-20, 2019, doi: 10.1016/j.radmeas.2019.02.009.