

## Cu 含有シリカガラスにおけるラジオフォトルミネセンス

Radiophotoluminescence phenomenon in Cu-doped silica glasses prepared from porous silica glass

京工織大<sup>1</sup>, 京都大複合研<sup>2</sup> ○(B)高田雄矢<sup>1</sup>, 橋川 凌<sup>1</sup>, 木野村 淳<sup>2</sup>,齋藤 毅<sup>2</sup>, 若杉 隆<sup>1</sup>, 角野 広平<sup>1</sup>,Kyoto Inst. Tech.<sup>1</sup>, KURNS<sup>2</sup>, ○Yuya Takada<sup>1</sup>, Ryo Hashikawa<sup>1</sup>, Atsushi Kinomura<sup>2</sup>, Takeshi Saito<sup>2</sup>,Takashi Wakasugi<sup>1</sup>, Kohei Kadono<sup>1</sup>

E-mail: kadono@kit.ac.jp

【緒言】ラジオフォトルミネセンス (RPL) は放射線の照射によって生成した新たな発光中心による発光現象である。RPL 現象を示す材料として Ag 含リン酸塩ガラスがよく知られており、その RPL 強度は吸収線量に対して比例的に増大するため、個人被ばく線量計として応用されている[1]。しかし、Ag 含有リン酸塩ガラスは、その母体ガラスの化学的耐久性が低いなどの課題を有しており、RPL 現象を発現する他の材料の探索が進められている。当研究室でも Cu 含有アルミノホウケイ酸塩ガラス (Cu-ABS) において良好な RPL 現象を見出し報告した[2]。本発表では、多孔質ガラス含浸法[3]で作製した Cu 含有シリカガラス (Cu-SG) における RPL 挙動について報告する。

【実験操作】多孔質シリカガラス (*p*-SG) は、ホウケイ酸塩ガラスの分相・酸溶出処理により作製した。まず、原料粉末 ( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ) を  $9.0\text{Na}_2\text{O} \cdot 26.6\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 64.4\text{SiO}_2$  の組成となるように乳鉢で混合した後、白金るつぼで、 $1600^\circ\text{C}$ , 2 h 熔融した。ガラス融液をカーボン板上に流し出し、 $600^\circ\text{C}$ , 18 h 分相熱処理を行った。そのガラスを厚さ約 2 mm に成形し、0.3 M,  $95^\circ\text{C}$  の硝酸水溶液に浸漬し酸溶出を行った。得られた *p*-SG を 0.0005 M~0.005 M の  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  水溶液または、 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  水溶液の濃度を 0.0005 M に固定し、Al/Cu モル比が 0, 1, 2, 5, 10 となるように調製した  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{Al}(\text{NO}_3)_3$  混合水溶液に 6 h 浸漬した後、 $900^\circ\text{C}$ , 保持時間 2 h で焼結を行った。ガラス試料に対して様々な線量でガンマ線 ( $^{60}\text{Co}$ ) や X 線を照射した。ガンマ線照射は京都大学複合原子力科学研究所コバルト 60 ガンマ線照射装置で行った。X 線照射は蛍光 X 分析装置 (Rigaku ZSX Primus II, ターゲット Rh) を用いて行った。これらの試料の放射線照射前後における吸収・発光スペクトルを測定した。

【結果と考察】0.0005 M の  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  に浸漬して作製した Cu-SG および、比較のために Cu を 0.005 mol% ドープした Cu-ABS の発光スペクトルと試料概観を Fig. 1 に示す。照射線量は約 800 Gy である。またスペクトルはどちらもガンマ線照射前の発光強度で規格化してある。ガンマ線照射前後の発光強度の比 (感度) は Cu-ABS では 4 倍以上 (Fig. 1 破線矢印) であったが、Cu-SG では 2 倍程度 (実線矢印) であった。また、Cu-SG の Cu 濃度を増大させると、感度は低下した。RPL 強度は吸収線量に対して比例的に増大した。Cu-SG では放射線照射によって発光ピークのレッドシフトが観察され、発光色は青緑色から黄色へ変化した。このような現象は Cu-ABS では観察されない。これは、熔融急冷法で作製する Cu-ABS と比較すると Cu-SG 中の銅イオンの分布が不均一であり、放射線照射により新たに生成した発光中心である  $\text{Cu}^+$  イオンの配位状態が、照射前に存在していた  $\text{Cu}^+$  のそれとは異なっているためであると考えられる。

Cu と Al を共ドープした Cu, Al-SG では、Al/Cu のモル比がどの溶液に浸漬した試料でも RPL の発光強度は、ガンマ線照射前の 3 倍程度となり、Cu-SG に比べ感度は増加した。Cu, Al-SG の RPL 感度と Al/Cu の比には明確な相関は認められなかった。

【参考文献】 [1] S.M. Hsu, et al., *Radiat. Meas.*, **42** (2007) 621–624. [2] R. Hashikawa, et al., *J. Am. Ceram. Soc.*, in press. [3] D. Chen, et al., *Appl. Phys. Lett.*, **86** (2005) 231908.

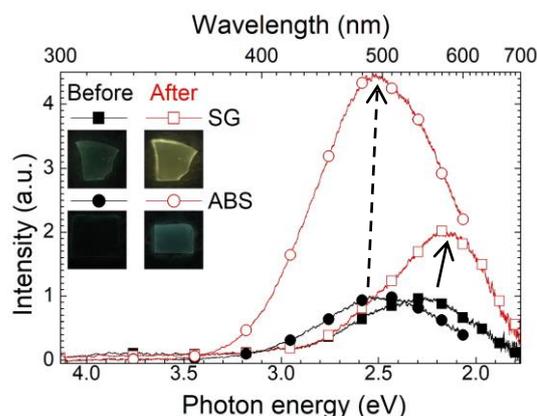


Fig. 1. Emission spectra of Cu-doped glasses (Cu-SG and Cu-ABS). The spectra were normalized with the peak intensities of the spectra before irradiation.