Cu 含有シリカガラスにおけるラジオフォトルミネッセンスの線量応答性 Dose response of radiophotoluminescence in Cu-doped silica glasses 京工繊大¹,京大複合研² (M1)高田 雄矢¹,木野村 淳²,齋藤 毅², 岡田 有史¹,若杉 隆¹,角野 広平¹ Kyoto Inst. Tech.¹, KURNS², 'Yuya Takada¹, Atsushi Kinomura², Takeshi Saito², Arifumi Okada¹, Takashi Wakasugi¹, Kohei Kadono¹ E-mail: kadono@kit.ac.jp

【緒言】放射線照射により新たに生成した発光中心による発光現象はラジオフォトルミネッセンス(RPL) とよばれ、Ag含有リン酸塩ガラスはRPLを示す代表的な材料である[1]. この材料は非常に高感度で、線 量応答性に優れるため個人線量計として応用されているが、その他に実用化された材料はほとんど知られ ていない、当研究室ではAgと同族のCuに着目し、Cu含有アルミノホウケイ酸塩ガラス(Cu-ABS)[2]お よび多孔質シリカガラスから作製したシリカガラス(Cu-SG)[3]において良好なRPL現象を見出した.本 研究では、単純なガラス系であるシリカガラスにおいてRPL挙動の調査により、Cu含有酸化物ガラスに おけるRPLメカニズムの解明を目的としている.本発表では、放射線照射による発光挙動の変化と線量応 答性について報告する.

【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熱処理および酸処理により作製 した.まず、Na₂CO₃、Na₂SO₄、B₂O₃、高純度 SiO₂を原料粉末として 9.0Na₂O·26.6B₂O₃·64.4SiO₂の組成の ガラスを溶融急冷法(1600°C, 2 h)で作製し、600°C, 18 h の分相熱処理を行った.得られたガラスを厚 さ約 2 mm に成形し、0.3 M、95°C の硝酸で 48 h 酸溶出を行った.得られた *p*-SG を 0.5、10 mM の硝酸銅 水溶液に 1 h 浸漬した後、900°C,保持時間 2 h で焼成し、厚さを 1 mm に成形・研磨した物を測定試料と した.これらの試料に対して種々の線量でガンマ線やX線を照射し、放射線照射前後および熱処理前後で 発光、吸収、ESR スペクトルを測定し、放射線照射により生成する欠陥や発光挙動について調査した.ガ ンマ線照射は京大複合研コバルト 60 ガンマ線照射装置,X線照射は蛍光X線分析装置 (Rigaku ZSX Primus II、ターゲット Rh)を用いて行った.

【結果と考察】0.5 mM Cu-SG の X 線照射前後の発光スペクトルを Fig.1 に示す.赤色破線は X 線照射後のスペクトルのピーク分離した結果を表している. X 線照射前は 2.5 eV を中心とする発光ピークが観察され、これは Cu⁺の 3d⁹4s¹→3d¹⁰ 遷移に帰属される. X 線照射後は 2.5 eV の強度の増大に加 え、2.1 eV 付近に新たな発光ピークが出現した. この 2.1 eV 付近の発光は Cu⁺の二量体に帰属される発光であると考えられ、X 線照射により Cu⁺二量体の生成が示唆された[4].

次に Cu-SG に対して種々の線量のガンマ線を照射し,発 光強度の増大量を調査した.発光強度の増大量は照射前後の 積分発光強度比とし,それを照射線量に対してプロットした 図を Fig.2 に示す.すべての試料に対し,ガンマ線照射後に 200°C, 2h の熱処理を行い,ビルドアップの進行度を一定に している.照射した約 200~2000 Gy の領域において発光強 度は照射線量に対して比例的に増大する傾向が観察された. また,発光強度の増大量は Cu 濃度の低い方が大きい.これ は,濃度が高いほど Cu⁺の正孔捕獲による発光種の減少反応 が起こりやすくなること, Cu⁺増大に伴って発光効率が低下 することによると考えられる.

【参考文献】[1] R. Yokota et al., *J. Phys. Soc. Japan* **23** (1966) 1038–1048. [2] R. Hashikawa et al., *J. Am. Ceram. Soc.* **102**(4) (2019) 1642–1651. [3] 高田雄矢 et al., 第66回 応用物理学会 春季学術講演会 予稿集 (東京, 2019) 9p-PB4-4. [4] Y. Fujimoto et al., *J. Lumin.* **75** (1997) 213–219.



Fig. 1. Emission spectra of 0.5 mM Cu-SG before and after X-ray irradiation.



Fig. 2. Dose response of 0.5 mM and 10 mM Cu-SG for γ -ray irradiation.