

(様式第5号)

実施課題名：

ガラス線量計における Ag の状態変化の XANES による観測
Observation of change in Ag species in glass dosimeters by XANES

著者・共著者 氏名：越水正典、正井博和、川本弘樹
Masanori Koshimizu, Hirokazu Masai, Hiroki Kawamoto

著者・共著者 所属：東北大学、産業技術総合研究所
Tohoku University, National Institute of Advanced Science and Technology

- ※1 先端創生利用（長期タイプ）課題は、実施課題名の末尾に期を表す（Ⅰ）、（Ⅱ）、（Ⅲ）を追記してください。
- ※2 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後2年以内に研究成果公開（論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表）が必要です（トライアル利用を除く）。
- ※3 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※4 共著者には実験参加者をご記載ください（各実験参加機関より1人以上）。

1. 概要（注：結論を含めて下さい）

銀リン酸塩ガラスの放射線照射による変化を XANES により観測した。放射線量の増大とともに強度の増大するピークを、銀の価数変化によるものと帰属した。銀の平均価数 0~17/7 の参照試料との比較の結果、放射線照射により生じた銀のピークは3価によるものと帰属された。

(English)

We analyzed the irradiation effects in Ag-doped phosphate glasses by XANES. A peak appeared and increased its intensity with the irradiation dose. In comparison of the peak energy to those of reference samples with average valence state of Ag from 0 to 17/7, we concluded that the irradiation caused the oxidation of silver from Ag⁺ to Ag³⁺.

2. 背景と目的

個人線量モニタリングに用いられている、銀を微量添加したガラス線量計材料について、その動作機構は、従来、放射線により生じる電子正孔対の捕獲による、Ag⁰とAg²⁺という二種類の発光中心の形成に起因するとされてきた。これは主に光吸収および発光測定による推測に基づいており、直接の観測結果は存在しない。そこで、我々のグループでは、より高感度な線量計材料の実現を目指し、材料組成および基礎過程解明の双方の観点からの研究を進めている。その中で本研究では、Ag の L3 端での XANES 測定による価数変化の観測を目的とした。

3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

Ag LIII端 XAFS スペクトル測定（室温）を BL11 ビームライン（He 置換チャンバー使用）にて、単素子の SDD を利用した XANES 測定として行った。また、測定（照射）後に 400℃ 程度に加熱し、冷却後に同じ箇所の測定を行うことにより、放射線照射効果を初期化した測定も行った。さらには、表に示すように、今回の実験では、銀クラスレート化合物も参照試料として加え、銀の価数として 0~17/7 の範囲での測定を行った。

試料名	Agの平均価数
Ag	0
Ag ₂ O	1
AgO	2
Ag ₇ O ₈ NO ₃	17/7

4. 実験結果と考察

右に、参照試料のスペクトルおよび試料となる銀添加リン酸塩ガラスのスペクトルを示す。銀添加リン酸塩ガラスについては、同じ試料について、複数回の測定を行ったデータとなっており、これは、放射線量の増大に伴う変化を観測していることに対応する。放射線量の増大とともに、3.349 keV 付近にピークが現れた。このピークについては、当初、 Ag^{2+} によるものと考えていた。しかしながら、参照試料では、銀の平均価数の増大とともにピークが低エネルギー側にシフトし、平均価数が 17/7 の試料におけるピークは 3.351 keV に観測された。これらの結果から、放射線照射により銀添加リン酸塩ガラスで出現したピークは、その価数が 17/7 よりも顕著に大きいものに帰属されることとなり、おそらくは Ag^{3+} によるものと推察される。

5. 今後の課題

今回の測定による、 Ag^{3+} 生成という結果は、銀の化学状態を考察する上でも、銀添加リン酸塩ガラスの動作機構を解析する上でも、非常にインパクトの大きい結果である。そのため、この仮説を多方面から検証することが今後の課題となる。

6. 参考文献

とくになし

7. 論文発表・特許 (注：本課題に関連するこれまでの代表的な成果)

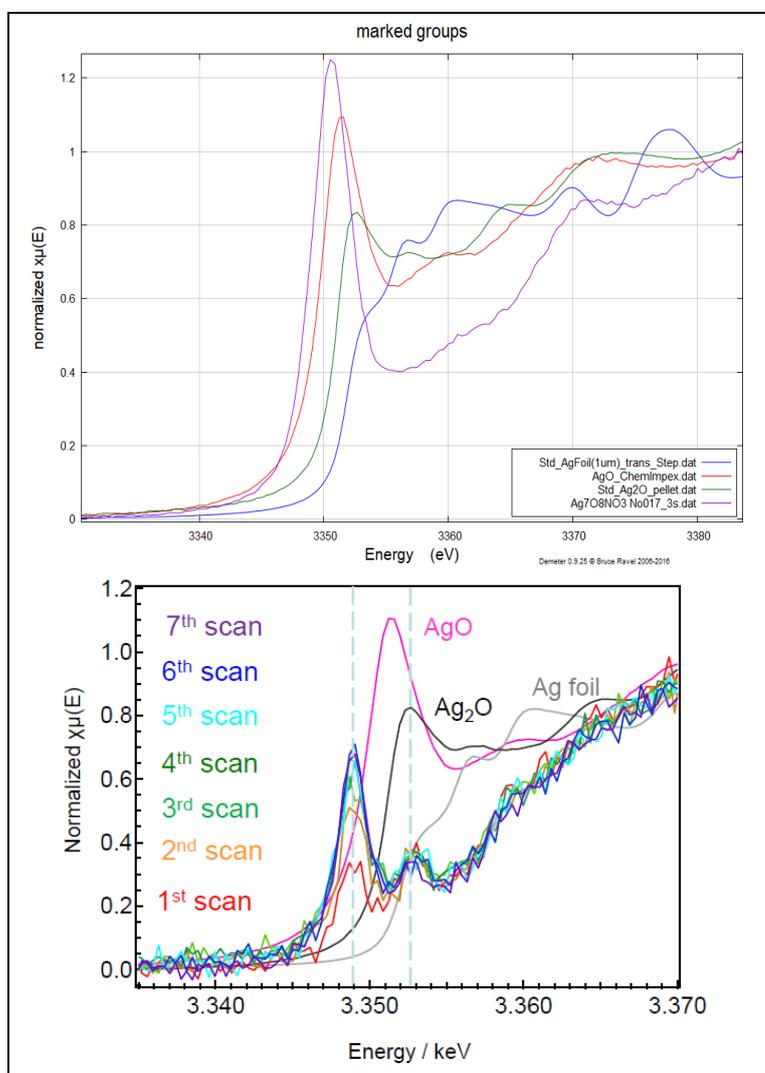
- "Temperature dependence of radiophotoluminescence in Ag-doped phosphate glasses containing different alkali metals", H. Kawamoto, Y. Fujimoto, M. Koshimizu, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 58 (2019) 062003.
- "Formation of Metallic Cation-Oxygen Network for Anomalous Thermal Expansion Coefficients in Binary Phosphate Glass", Y. Onodera, S. Kohara, H. Masai et al., Nat. Commun. 8 (2017) 15449.

8. キーワード (注：試料及び実験方法を特定する用語を 2～3)

ラジオフォトルミネッセンス、XANES、リン酸塩ガラス

9. 研究成果公開について (注：※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文(査読付)発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください。提出期限は利用年度終了後2年以内です。例えば2018年度実施課題であれば、2020年度末(2021年3月31日)となります。

長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。



① 論文(査読付)発表の報告

(報告時期： 2021年10月)