

Oral presentation | 2 Ionizing Radiation : 2.5 Radiation-induced phosphors

📅 Tue. Sep 19, 2023 1:30 PM - 4:30 PM JST | Tue. Sep 19, 2023 4:30 AM - 7:30 AM UTC | 📍 A308 (KJ Hall)

[19p-A308-1~11] 2.5 Radiation-induced phosphors

Yutaka Fujimoto(Tohoku Univ.), Shiratori Daiki(Tokyo Univ. of Science)

1:30 PM - 1:45 PM JST | 4:30 AM - 4:45 AM UTC

[19p-A308-1] Scintillation properties of BaCl₂:Eu transparent ceramics

○(M1)Shota Otake¹, Hirotaka Sakaguchi¹, Yuta Yoshikawa¹, Takumi Kato¹, Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹ (1.NAIST)

1:45 PM - 2:00 PM JST | 4:45 AM - 5:00 AM UTC

[19p-A308-2] Optimization of fabrication process for Tl-doped NaI transparent ceramic scintillators.

○Yuta Yosikawa¹, Takumi Kato¹, Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹ (1.NAIST)

2:00 PM - 2:15 PM JST | 5:00 AM - 5:15 AM UTC

[19p-A308-3] Dosimeter properties of Ce-doped CaF₂ transparent ceramics

○Naoki Kawano¹, Takumi Kato², Robin Conner³, Luiz Jacobsohn³, Daisuke Nakauchi², Yuma Takebuchi², Hiroyuki Fukushima⁴, Daiki Shiratori⁵, Takayuki Yanagida² (1.Akita Univ., 2.NAIST, 3.Clemson Univ., 4.NIT-Fukui, 5.TUS)

2:15 PM - 2:30 PM JST | 5:15 AM - 5:30 AM UTC

[19p-A308-4] Development of (K, Rb)₂CuBr₃ single crystalline scintillators by slow cooling method

○Keishi Yamabayashi¹, Kai Okazaki¹, Daisuke Nakauchi¹, Takumi Kato¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹ (1.NAIST)

2:30 PM - 2:45 PM JST | 5:30 AM - 5:45 AM UTC

[19p-A308-5] High Temperature Performance Tests of Scintillators with Excitonic Emissions

○Noriaki Kawaguchi¹, Naoki Kawano², Kai Okazaki¹, Takumi Kato¹, Daisuke Nakauchi¹, Takayuki Yanagida¹ (1.NAIST, 2.Akita Univ.)

2:45 PM - 3:00 PM JST | 5:45 AM - 6:00 AM UTC

[19p-A308-6] Dosimeter properties of Tb-doped Ca₂BO₃Cl

○(M2)Tomoaki Wauke¹, Naoki Kawano¹, Daisuke Nakauchi², Takumi Kato², Yuma Takebuchi², Hiroyuki Fukushima³, Daiki Shiratori⁴, Takayuki Yanagida² (1.Akita Univ., 2.NAIST, 3.NIT-Fukui, 4.TUS)

3:15 PM - 3:30 PM JST | 6:15 AM - 6:30 AM UTC

[19p-A308-7] Development of Nd-doped CsI single crystalline scintillators

○Shunta Takase¹, Keiichiro Miyazaki¹, Daisuke Nakauchi¹, Takumi Kato¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹ (1.NAIST)

3:30 PM - 3:45 PM JST | 6:30 AM - 6:45 AM UTC

[19p-A308-8] Near-infrared scintillation properties of Cr-doped Mg₄Ta₂O₉ single crystals

○Taisei Hayashi¹, Kensei Ichiba¹, Daisuke Nakauchi¹, Kato Takumi¹, Kawaguchi Noriaki¹, Yanagida Takayuki¹ (1.NAIST)

3:45 PM - 4:00 PM JST | 6:45 AM - 7:00 AM UTC

[19p-A308-9] Scintillation properties of one-dimensional organic-inorganic hybrid compounds

○Takeru Sutoh¹, Naoki Kawano¹, Kai Okazaki², Kensei Ichiba², Yuma Takebuchi², Takumi Kato², Daisuke Nakauchi², Takayuki Yanagida² (1.Akita Univ., 2.NAIST)

4:00 PM - 4:15 PM JST | 7:00 AM - 7:15 AM UTC

[19p-A308-10] Development of $(\text{CH}_3\text{OC}_6\text{H}_4\text{C}_2\text{H}_4\text{NH}_3)_2\text{PbCl}_4$ crystal scintillators forming multiple quantum well structures

○Shun Matsuzawa¹, Kai Okazaki¹, Daisuke Nakauchi¹, Naoki Kawano², Takeru Suto², Takumi Kato¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹ (1.NAIST, 2.Akita Univ.)

4:15 PM - 4:30 PM JST | 7:15 AM - 7:30 AM UTC

[19p-A308-11] Radiation response properties of Eu^{3+} -doped Bi_2O_3 - Na_2O - TiO_2 - ZnO - TeO_2 glass ceramics

○Shuntaro Muneta¹, Naoki Kawano¹, Daisuke Nakauchi², Takumi Kato², Takebuchi Yuma², Kai Okazaki², Kensei Ichiba², Kenji Shinozaki³, Takayuki Yanagida² (1.Akita Univ., 2.NAIST, 3.AIST)

BaCl₂:Eu 透明セラミックスのシンチレーション特性

Scintillation properties of BaCl₂:Eu transparent ceramics

奈良先端大[○]尾竹 祥太, 坂口 大貴, 吉川 裕太, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST[○]Shota Otake, Hirotaka Sakaguchi, Yuta Yoshikawa, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi,

Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: otake.shota.os4@ms.naist.jp

シンチレータとは、X・ γ 線等の電離放射線を即発的に紫外・可視光子に変換する素子を指す。その応用分野は多様で、X線CT等の画像医学分野、天文衛星等の基礎物理、空港の手荷物検査器等のセキュリティをはじめとした検出器全般の構成部品の一つに利用されている。放射線検出器の精度にはシンチレータの性能が大きく影響するため、発光量の向上に向けた研究が日々行われている。シンチレータ材料には透明性が高くシンチレーション光の損失が少ない単結晶が一般的だが、結晶育成に時間を要する点や添加物を均一に分布させることが困難な点に問題がある。そのような中、透明セラミックスは上記の問題を克服できることから、近年シンチレータ材料としての研究が進んでいる [1,2]。

本研究では放電プラズマ焼結 (SPS) 法により BaCl₂:Eu 透明セラミックスを作製し、そのシンチレーション特性を調査した。Eu を添加したアルカリ土類ハロゲン化合物は比較的高い発光量を示す傾向にあるものの、臭化物やヨウ化物は吸湿性が高い。一方、塩化物である BaCl₂ の吸湿性はアルカリ土類ハロゲン化合物の中では低い。また BaCl₂:Eu 単結晶のシンチレーション特性を評価した研究例はあるが、BaCl₂:Eu 透明セラミックスの研究例はない。

Fig. 1 に添加濃度 0.05, 0.1, 0.5, 1.0 および 3.0% の Eu 添加 BaCl₂ 透明セラミックスの透過率を示す。Eu 添加濃度の増大に伴って紫外-可視領域の透過率が減少した。また、300–400 nm 付近の透過率の大幅な減少は Eu²⁺ の吸収が原因と考えられる。Fig. 2 にシンチレーションスペクトルを示す。400 nm 付近に Eu²⁺ に起因するピークが検出され [3]、添加濃度の増加に伴い長波長側へのシフトが観測された。

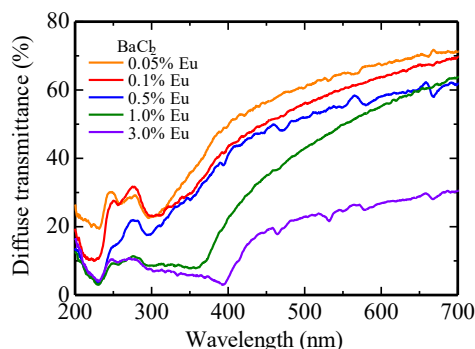


Fig. 1. Diffuse transmission spectra.

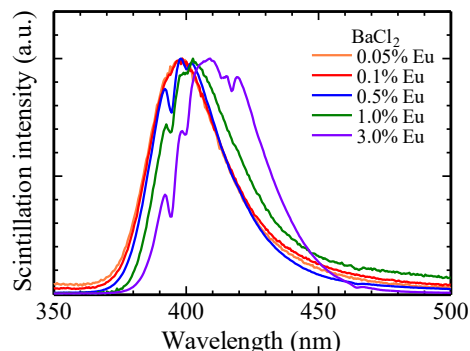


Fig. 2. X-ray-induced scintillation spectra.

参考文献

- [1] T. Yanagida, *et al.*, Opt. Mater., **35**, 2480-2485 (2013).
- [2] N. J. Cherepy, *et al.*, SPIE Optics and Photonics., **9593** (2015).
- [3] Zewu Yan, *et al.*, Nucl., **735**, 83-87 (2014).

Tl 添加 NaI 透明セラミックスシンチレータにおける作製条件の最適化

Optimization of fabrication process for Tl-doped NaI transparent ceramic scintillators.

奈良先端大¹, °吉川裕太¹, 加藤匠¹, 中内大介¹, 河口範明¹, 柳田健之¹

NAIST.¹, °Yuta Yoshikawa¹, Takumi Kato¹, Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, and Takayuki Yanagida¹

E-mail: yoshikawa.yuta.yv5@ms.naist.jp

シンチレータとは蛍光体の一種であり、X・γ線等の放射線を瞬時に可視光子に変換する材料である。そのため、シンチレータは医療、セキュリティ、資源探査、環境モニタリングなど多くの分野で大きな役割を担っている。これまでに放射線検出器の需要拡大に伴って酸化物やハロゲン化物など様々な化学組成のシンチレータが開発され、材料形態として主に単結晶材料が利用されてきた。しかしながら、一般的に単結晶材料は作製に時間を有することや、機械的な強度が低いこと、コスト高に繋がるという欠点がある。そのような中、近年では焼結技術の向上により高い透明性を有するセラミックスを合成することが可能となったため、透明セラミックスのシンチレータ応用が期待されている。透明セラミックスは単結晶と比較して、機械的な強度が高いことや固相反応であることから発光中心を均一に添加することが容易であり大型化が可能であること、またニアネット製造により低コスト化が可能であることなど多くの利点がある。

本研究では、透明セラミックスシンチレータの新たな候補として NaI に着目した。Tl 添加 NaI 単結晶は古くからそのシンチレーション特性が知られており、比較的安価であることに加え、高い発光量を持つことから今なお放射線検出器として利用されている。また、我々の過去の研究では無添加の NaI において、シンチレータとして利用可能な高い透過率を有する NaI 透明セラミックスの合成に成功した [1]。そこで本研究では Tl 添加 NaI 透明セラミックスを放電プラズマ焼結法により作製し、光学特性およびシンチレーション特性における Tl 濃度依存性について評価を行った。

Fig. 1 に Tl 添加 NaI 透明セラミックスの拡散透過スペクトルを示す。Tl 濃度が低い試料において、吸収が 260、300 nm 付近に観測され、500 nm における拡散透過率は 70%程度であった。Fig. 2 に X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。シンチレーションピークは 330 および 420 nm 付近に観測された。同様のピークが Tl 添加 NaI 単結晶においても報告されていることから、これらはそれぞれ自己束縛励起子と TI^+ の $^3\text{P}_1 \rightarrow ^1\text{S}_0$ 遷移に由来するピークと考えられる [2, 3]。

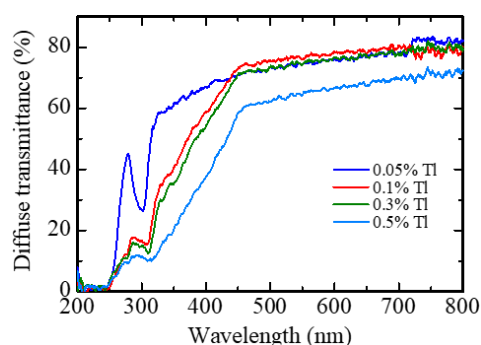


Fig. 1 Diffuse transmission spectra.

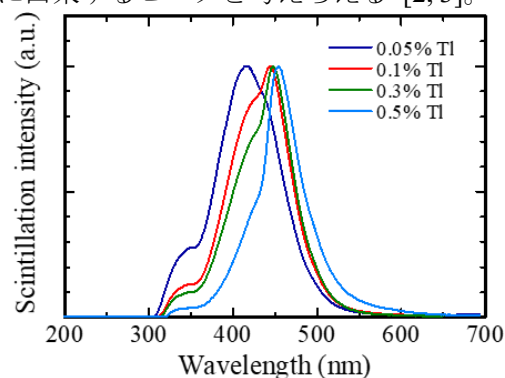


Fig. 2 X-ray-induced scintillation spectra.

参考文献

- [1] Y. Yoshikawa, Jpn. J. Appl. Phys. 61 (2022). [2] S. Nagata et al., J. Lumin., 47 (1991)147-157.
[3] W. Van Sciver, IRE Trans. Nucl. Sci. 3 (1956) 39-50

Ce 添加 CaF₂ 透明セラミックスのドシメータ特性

Dosimeter properties of Ce-doped CaF₂ transparent ceramics

秋田大¹、奈良先端大²、クレムゾン大³、福井高専⁴、東京理科大⁵

○河野 直樹¹、加藤 匠²、Robin L. Conner³、Luiz G. Jacobsohn³、中内 大介²、

竹淵 優馬²、福嶋 宏之⁴、白鳥 大毅⁵、柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology², Clemson University³,

National Institute of Technology Fukui College⁴, Tokyo University of Science⁵

○Naoki Kawano¹, Takumi Kato², Robin L. Conner³, Luiz G. Jacobsohn³, Daisuke Nakauchi²,

Yuma Takebuchi², Hiroyuki Fukushima⁴, Daiki Shiratori⁵ and Takayuki Yanagida²

E-mail: n-kawano@gipc.akita-u.ac.jp

【緒言】ドシメータに使用される発光材料は、照射された放射線のエネルギーを吸収・蓄積した後、熱や光の刺激により発光することが可能であり、個人被ばく線量計や環境放射線計測などに用いられている。ドシメータ材料の中でも、CaF₂は高強度な熱蛍光(TSL)を示すホスト材料であることが知られており[1]、発光中心元素(Dy³⁺, Mn²⁺等)を添加した CaF₂が TLD-200 や TLD-400 など用いられている。近年、発光中心元素を添加した CaF₂透明セラミックスが優れたドシメータ特性を示すことがわかった[1]。本研究では、放電プラズマ焼結法により新たに Ce 添加 CaF₂透明セラミックスを作製し、そのドシメータ特性を調べた。

【実験方法】CaF₂及びCeF₃をモル比(0.1, 0.5, 1.0%)通りに混合後、カーボンダイスに充填し、真空中で1070℃、15分間焼成することで透明セラミックス試料を得た。得られた試料について、TSL グロー曲線及び TSL スペクトルを測定した。

【実験結果】図1に、3 mGyのX線入射後のTSL グロー曲線を示す。115–145℃において、グローピークが観測された。0.1%CeF₃試料が最大のTSL強度を示した。CeF₃濃度の増加により、熱蛍光強度が減少した。

図2に、1 GyのX線入射後のTSL スペクトルを示す。Ce³⁺の5d-4f遷移由来のピークが観測された。よって、熱蛍光がCe³⁺イオンに由来することがわかった[2]。本講演では、当該物質のTSL 特性の詳細だけでなく、輝尽蛍光特性の詳細についても述べる。

【参考文献】

1. N. Kawano et. al., J. Ceram. Soc. J. 128 (2020) 57–61.
2. S. Chunshan et. al., J. Alloys. Compd. 192 (1993) 40–41.

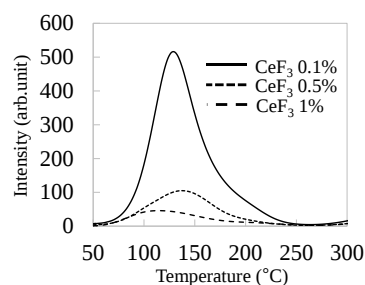


図1 TSL グロー曲線。

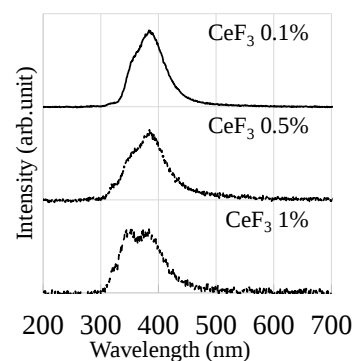


図2 TSL スペクトル。

温度降下法による(K, Rb)₂CuBr₃ 単結晶シンチレータの開発

Development of (K, Rb)₂CuBr₃ single crystalline scintillators

by the slow cooling method

奈良先端大[○]山林 恵士, 岡崎 魁, 中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST[°]Keishi Yamabayashi, Kai Okazaki, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato,

Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: yamabayashi.keishi.yh2@ms.naist.jp

シンチレータとは電離放射線のエネルギーの吸収により即時的に光を放出する蛍光体であり、医療診断・地下資源探査・セキュリティ等、幅広い分野の放射線検出器に搭載されている。シンチレータに求められる性能は応用先により様々であるが、X・γ線計測用途では主に大きい実効原子番号を有し、高い発光量を示すことが望まれる。 A_2CuBr_3 (A : K, Rb) は高い発光強度を示すことが報告されており [1, 2]、γ線照射下においても良好な発光特性を示すことが期待されるが、未だその報告例はない。本研究では K_2CuBr_3 と Rb_2CuBr_3 に加えアルカリ金属を一部置換した $(K_{1-x}, Rb_x)_2CuBr_3$ ($x = 0.25, 0.5, 0.75$) 単結晶を温度降下法により合成し、そのフォトルミネッセンスおよびX・γ線照射下における発光特性の評価を行った。

Figure 1 に $(K, Rb)_2CuBr_3$ 単結晶の X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。作製した全てのサンプルにおいて 390 nm 付近に自己束縛励起子 (STE) の再結合に由来する発光ピークが観測された。加えて 425–550 nm 付近にショルダーピークが観測されたが、これは欠陥起因による STE の再結合に由来すると考えられる [3]。Figure 2 に $(K, Rb)_2CuBr_3$ の X 線誘起シンチレーション減衰曲線を示す。得られた全ての減衰曲線は励起源由来の成分を除くと 1 成分の指数関数で近似され、STE の再結合に由来する成分は 57–63 μs の時定数を有していた。本発表では、詳細な発光特性の評価結果について報告する。

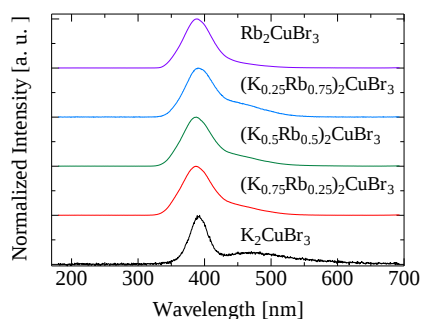


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of (K, Rb)₂CuBr₃.

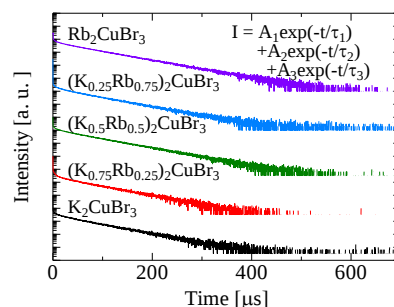


Fig. 2 X-ray-induced scintillation decay curves of (K, Rb)₂CuBr₃.

- [1] B. Yong, et.al., *Adv. Mater.* **31**, 1904711 (2019). [2] W. Gao, et.al., *ACS Appl. Electron. Mater.* **2**, 2242 (2020). [3] E. V. Pavlov, *Russ. Phys. J.* **36**, 879 (1993).

励起子発光シンチレーターの高温における性能調査

High Temperature Performance Tests of Scintillators with Excitonic Emissions

奈良先端大¹, 秋田大² °河口 範明¹, 河野 直樹², 岡崎 魁¹, 加藤 匠¹, 中内 大介¹,
柳田 健之¹

NAIST¹, Akita Univ.² °Noriaki Kawaguchi^{1*}, Naoki Kawano², Kai Okazaki¹, Takumi Kato¹,
Daisuke Nakauchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: n-kawaguchi@ms.naist.jp

シンチレーターとして Ce^{3+} 添加酸化物などドーパントの発光を利用したものが主に研究されてきたが、近年は励起子の発光を利用したものも注目されている。励起子発光は励起子を形成する電子、正孔の再結合に伴う発光である。多くの半導体材料において自由励起子発光が見られるが、室温での励起子の熱解離が問題となり、一般によく知られる半導体材料では低温でしか発光が観察されない。それに対し、結晶構造に基づく量子閉じ込め効果を利用して励起束縛エネルギーを向上させ、室温でも半導体の励起子発光を利用可能にした材料もある [1]。また、 CaF_2 や BaF_2 の自己束縛励起子 (Self-trapped exciton; STE) [2] は励起子束縛エネルギーが十分に高く、これらはシンチレーターの発光に利用可能である。一方、資源探査などのシンチレーターの応用において室温だけでなく約 200°C の高温まで性能安定性が求められる場合があり、励起子発光シンチレーターの高温における性能については興味深い。現状、励起子発光材料のフォトルミネッセンス特性の温度依存性については精力的に研究されているが、放射線励起源の利用が容易ではないことが原因か、シンチレーション特性については研究例が少なく、検討の余地がある。

本研究では、励起子発光シンチレーターの高温における特性を調査した。例として STE、ドーパント由来の発光が共存する $\text{Dy}:\text{CaF}_2$ を対象として熱蛍光により高温性能の評価を試みた結果を紹介する。Fig. 1 に STE 由来の熱蛍光強度の Dy^{3+} 由来の熱蛍光強度に対する比の温度依存性を示す。STE 由来の発光が Dy^{3+} 由来の発光よりも温度に対して激しく消光する様子が確認できる。熱蛍光では捕獲中心に捕獲された電子が伝導帯まで再励起され、発光を生じるため、最終的に放射線励起発光と類似した過程となる。また、同一材料内の二種類の発光中心の比較においては再励起電子の量の条件が同一で、相対比較ができる可能性がある。本手法は測定可能温度域が限定される等の課題もあるが、放射線励起と分光測定を別々に行うため、比較的容易に実施できる。

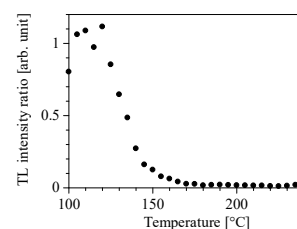


Fig. 1. Temperature dependence on thermoluminescence intensity ratio of the STE emission to the Dy^{3+} emission from $\text{Dy}:\text{CaF}_2$.

参考文献: [1] N. Kawano et al., *Sci. Rep.* **7**, 14754 (2017). [2] R. T. Williams et al., *Phys. Rev. B* **14**, 725 (1976).

謝辞: 本研究の一部は JST A-STEP トライアウト (JPMJTM22DM) の支援を受けた。また、本研究の一部は NEDO 「官民による若手研究者発掘支援事業」の一環として行われた。

Tb 添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ のドシメータ特性

Dosimeter properties of Tb-doped $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$

秋田大¹, 奈良先端大², 福井高専³, 東京理科大⁴

和宇慶 朝陽¹, 河野 直樹¹, 中内 大介², 加藤 匠²,

竹淵 優馬², 福嶋 宏之³, 白鳥 大毅⁴, 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²,

National Institute of Technology, Fukui College³, Tokyo University of Science⁴

○Tomoaki Wauke¹, Naoki Kawano¹, Daisuke Nakauchi², Takumi Kato²,

Yuma Takebuchi², Hiroyuki Fukushima³, Daiki Shiratori⁴, Takayuki Yanagida²

E-mail: m8022228@s.akita-u.ac.jp

【緒言】ドシメータに使用される蛍光体材料は、放射線のエネルギーの一部を吸収・蓄積後、光や熱などの外部刺激により発光する材料であり、個人被ばく線量計など多様な用途で用いられている。近年の我々の研究では、低実効原子番号を有するホウ酸塩化合物 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ に着目した蛍光材料の開発を行っている。例えば、 Mn^{2+} 添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ は熱蛍光(TSL)及び輝尽蛍光(OSL)を双方示すことが明らかとなり、その最低検出線量がそれぞれ 10 mGy、1 Gy であった[1]。本研究では、新たな発光中心元素として Tb^{3+} を添加した $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ を作製し、そのドシメータ特性を調べた。

【実験方法】原料粉末である CaCO_3 、 B_2O_3 、 CaCl_2 、 Tb_4O_7 を化学量論比通りに混合した後、950 °C、3 時間空气中で焼成することで、Tb 添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ を得た。得られた試料について、TSL グロー曲線及び OSL 減衰曲線を測定した。

【実験結果】図 1 に 1 Gy の X 線照射後の Tb 添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ の TSL グロー曲線を示す。3 つのサンプルで約 90 °C、145 °C、350 °C に TSL グローピークが観測された。Tb0.1%試料が最も高い TSL 強度を示した。

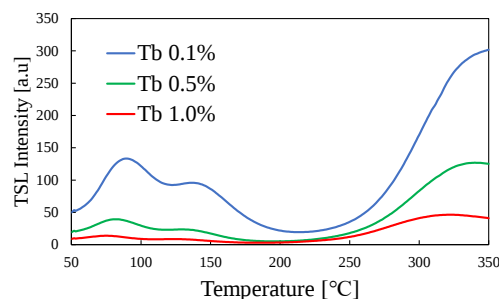


図 1. Tb 添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ の
TSL グロー曲線。

図 2 に 10 Gy の X 線照射後の Tb 添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ の OSL 減衰曲線を示す。刺激波長 620 nm、蛍光波長 545 nm で測定した。指数関数的な OSL 強度の減少が観測されたため、作製した試料が OSL を示すことがわかった。本講演では当該試料のドシメータ特性の詳細について議論する。

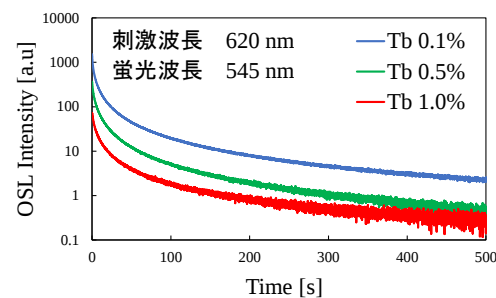


図 2. Tb 添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ の
OSL 減衰曲線。

【参考文献】

1. T. Wauke et. al. Jpn. J. Appl. Phys. **61** (2022) 102007.

Nd 添加 CsI 単結晶シンチレータの開発

Development of Nd-doped CsI single crystalline scintillators

奈良先端大 °高瀬峻汰, 宮崎慧一郎, 中内大介, 加藤匠, 河口範明, 柳田健之

NAIST, °Shunta Takase, Keiichiro Miyazaki, Daisuke Nakauchi,

Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: takase.shunta.tg9@ms.naist.jp

シンチレータとは電離放射線を瞬時に低エネルギー光子に変換する素子であり、医療・セキュリティ・資源探査・原子炉モニタ等の幅広い分野に利用されている。これまでに紫外・可視域にて発光するシンチレータが主に研究されている一方で、近赤外発光シンチレータの報告例は少ない。近赤外光はチェレンコフ光との区別が容易であることや生体への透過率が高いことから、高線量場での計測やバイオイメージングへの応用が期待されており、新たな近赤外発光シンチレータの開発が求められている。代表的なシンチレータである Tl 添加 CsI は高い発光量を示し、低コストで作製可能であることから汎用的に用いられており、シンチレータの母材として有望である [1]。そこで本研究では、近赤外光を得るため様々な濃度の Nd を添加した CsI 単結晶を作製し、シンチレーション特性の測定を行った。

Fig. 1 に Nd 添加 CsI 単結晶のシンチレーションスペクトルを示す。すべてのサンプルにおいて 900, 1080, 1350 nm 付近にピークが観測された。既報からこれらのピークはそれぞれ Nd^{3+} の $^4\text{F}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{9/2}$, $^4\text{F}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{11/2}$, $^4\text{F}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}$ 遷移に由来すると考えられる [2]。Fig. 2 に Nd 添加 CsI 単結晶のシンチレーション減衰曲線を示す。すべての減衰曲線は 3 成分の指数関数によって近似でき、観測された減衰時定数は 3.65-4.01, 23.8 -28.8 および 156-293 μs であった。これらの減衰時定数から、1 成分目は装置由来、2 成分目は母材由来、3 成分目は Nd^{3+} の $4f \rightarrow 4f$ 遷移 [3] に由来すると考えられる。本講演では線量率応答特性を含むシンチレーション特性に加え、フォトルミネセンス特性も含めて議論する。

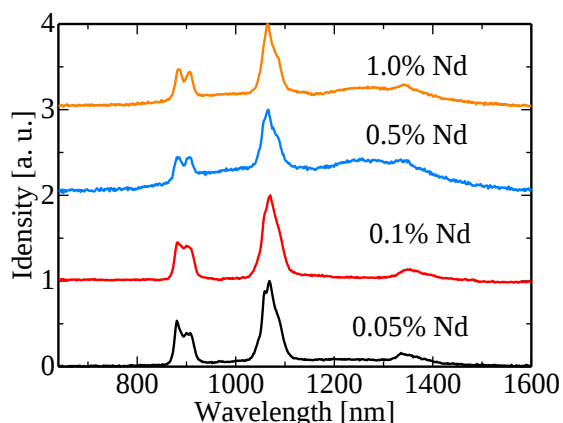


Fig. 1 Scintillation spectra of Nd-doped CsI single crystals under X-ray irradiation.

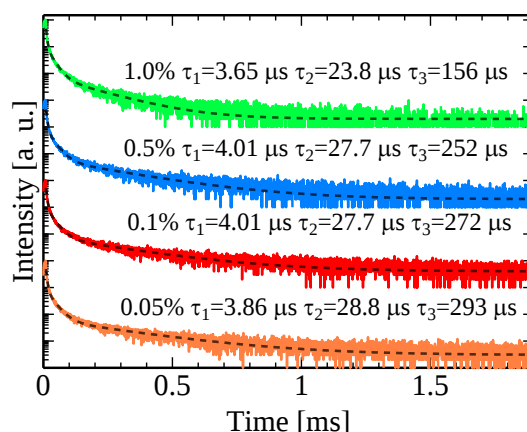


Fig. 2 Scintillation decay curves of Nd-doped CsI single crystals under X-ray irradiation.

<参考文献>

[1] P. Schotanus *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci. **37**, 177(1990). [2] K. Okazaki *et al.*, J. Mater. Sci. Mater. Electron. **32**, 21677 (2021). [3] K. Ichiba *et al.*, Materials **15**, 8784(2022).

Cr添加Mg₄Ta₂O₉単結晶の近赤外シンチレーション特性

Near-infrared scintillation properties of Cr-doped Mg₄Ta₂O₉ single crystals

奈良先端大 ○(M2) 林 泰世, 市場 賢政, 中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, °Taisei Hayashi, Kensei Ichiba, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi,

Takayuki Yanagida

E-mail: hayashi.taisei.ht2@ms.naist.jp

シンチレータは電離放射線が照射されると直ちに低エネルギーの光子を放出する蛍光材料の一種であり、X線CTや空港の手荷物検査、宇宙探査などに応用されている。これまで紫外可視域で発光するシンチレータが盛んに研究されてきたが、近年近赤外領域に波長感度を持つ光電変換素子の発展により、近赤外領域で発光するシンチレータが注目されつつある。近赤外発光シンチレータはチェレンコフ光との区別が容易であることから、高線量環境下での遠隔線量モニタリングへの応用が検討されている。さらに近赤外光は生体への透過率が高いという利点から、生体イメージングへの応用も提案されている [1]。このような用途のシンチレータには、高い化学的安定性、高い密度、大きい実効原子番号 (Z_{eff})、良好な線量応答特性などが求められる。このような要求を満たす材料の候補母材としてMg₄Ta₂O₉を選択した。Mg₄Ta₂O₉は化学的安定性が高く、 Z_{eff} が64.3と大きく、密度も6.20 g/cm³と高いことから紫外可視シンチレータとして研究されてきた [2,3]。Cr³⁺を添加した材料は生体の第一光学窓に相当する700-900 nmの範囲で発光することが報告されていることから [4,5]、本研究ではCr添加Mg₄Ta₂O₉単結晶を合成し、フォトルミネッセンス及びシンチレーション特性を評価した。

Figure 1はCr添加Mg₄Ta₂O₉単結晶の近赤外領域におけるシンチレーションスペクトルを示す。X線照射下において700-1200 nmにブロードな発光バンドが観測され、Cr³⁺の⁴T₂-⁴A₂遷移による発光ピークに由来する [5]。Figure 2にCr添加Mg₄Ta₂O₉単結晶のシンチレーション減衰曲線を示す。すべての減衰曲線は2つの指数関数により近似され、得られた減衰時定数は4.60-4.97 μsと17.1-20.1 μsであり、それぞれTa⁵⁺からO²⁻への電荷移動 [2]、Cr³⁺の⁴T₂-⁴A₂遷移 [6] に由来すると考えられる。

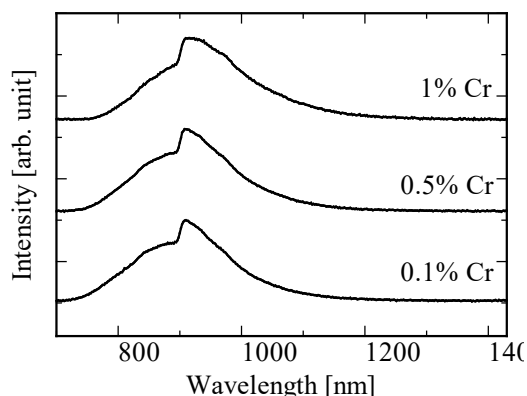


Figure 1 X-ray-induced scintillation spectra of Cr-doped Mg₄Ta₂O₉ single crystals.

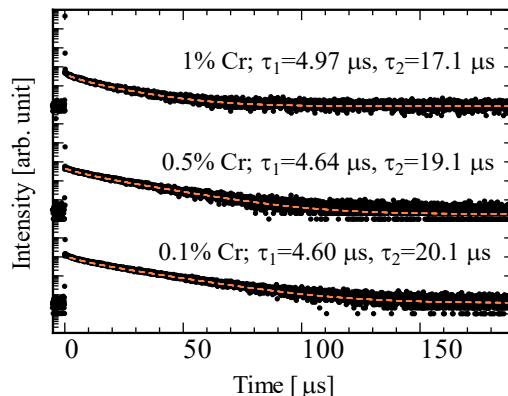


Figure 2 X-ray-induced scintillation decay curves of Cr-doped Mg₄Ta₂O₉ single crystals.

参考文献

- [1] A. Bessière, et al., Chem. Mater., 26 (2014) 1365. [2] D. Yuan, et al, CrystEngComm, 22 (2020) 3497. [3] T. Hayashi, et al., J. Lumin., 225 (2023) 119614. [4] E. Hemmer, et al., Nanoscale Horiz., 1 (2016) 168. [5] P. Dang, et al., Adv. Opt. Mater., 11 (2023) 2201739. [6] W. Tang, et al., Adv. Opt. Mater., 11 (2023) 2202237.

1 次元有機無機ハイブリッド化合物のシンチレーション特性

Scintillation properties of one-dimensional organic-inorganic hybrid compounds

秋田大¹, 奈良先端大²

須藤 健¹, 河野 直樹¹, 岡崎 魁², 市場 賢政²,

竹淵 優馬², 加藤 匠², 中内 大介², 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²

°Takeru Suto¹, Naoki Kawano¹, Kai Okazaki², Kensei Ichiba²,

Yuma Takebuchi², Takumi Kato², Daisuke Nakauchi², Takayuki Yanagida²

E-mail: m8022215@s.akita-u.ac.jp

【緒言】有機カチオンと無機アニオンで構成される有機無機ハイブリッド化合物(OIHC)の独特な構造と発光特性が近年注目されている。OIHC は導入する有機物に応じて 0、1、2、3 次元の様々な構造を形成する。これまで 2 次元構造を有する OIHC を中心にシンチレーション特性評価が行われおり、その中でも自由励起子発光を示す $(\text{C}_6\text{H}_5\text{C}_2\text{H}_4\text{NH}_3)_2\text{PbBr}_4$ が γ 線励起時に 14000 photons/MeV の大きな発光量を示した¹。近年、光励起時に高効率な自己束縛励起子(STE)発光を示す 1 次元 OIHC が登場しているが、そのシンチレーション特性が報告された例は殆ど存在しない。そこで本研究では、1 次元構造を有する (TDMP)PbBr₄ (TDMP: trans-2,5-dimethylpiperazine)、(DMEDA)PbBr₄ (DMEDA: N,N-dimethylenediamine)を作製し、そのシンチレーション特性を調べた。

【実験方法】有機物(TDMP もしくは DMEDA)と PbBr₂ を化学両論比通りに臭化水素酸中に 100 °C で 2 時間混合後、1.5 °C/h で室温まで徐冷することで結晶を得た。

【結果】図 1 にシンチレーションスペクトルを示す。ブロードな発光ピークが 500 nm (TDMP)、480 nm (DMEDA)に観測された。これらは無機物からの STE 由来の発光と示唆された^{2,3}。

図 2 にシンチレーション時間プロファイルを示す。第一成分の寿命はそれぞれ 120 ns (TDMP)、50 ns (DMEDA)であった。第一成分の起源は STE の再結合と推察される^{2,3}。本講演では当該化合物のシンチレーション特性について詳細に議論する。

【参考文献】

1. N. Kawano et al., Sci. Rep. 7 (2017) 14754.
2. R. Gautier et al., Adv. Mater. 31 (2019) 1807383.
3. Z. Yuan et al., Nat. Commun. 8 (2017) 14051.

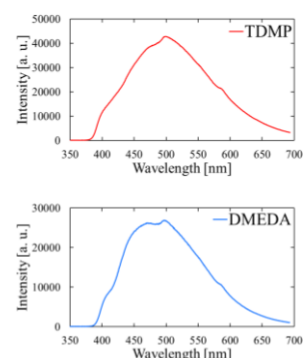


図 1 シンチレーションスペクトル。

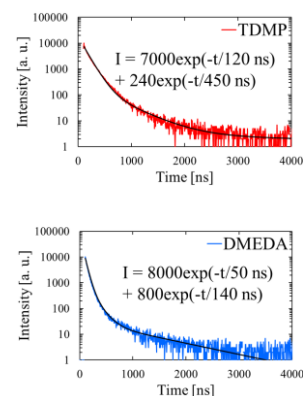


図 2 シンチレーション時間プロファイル。

多重量子井戸構造を形成する (CH₃OC₆H₄C₂H₄NH₃)₂PbCl₄ 結晶シンチレータの開発 Development of (CH₃OC₆H₄C₂H₄NH₃)₂PbCl₄ crystal scintillators forming multiple quantum well structures

奈良先端大¹, 秋田大² ○松澤 隼¹, 岡崎 魁¹, 中内 大介¹, 河野 直樹², 須藤 健²,
加藤 匠¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, Akita Univ.², °Shun Matsuzawa¹, Kai Okazaki¹, Daisuke Nakauchi¹, Naoki Kawano²,
Takeru Suto², Takumi Kato¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: matsuzawa.shun.mn5@ms.naist.jp

有機無機ペロブスカイト型化合物は絶縁体である有機層と半導体である無機層が自己組織化により交互に積層し、多重量子井戸構造を形成する。各層のバンドギャップの差により、無機層内に閉じ込められた励起子の束縛エネルギーは増大し、室温でも励起子の再結合由来の高強度な発光が観測されることが知られており [1]、シンチレータとしての利用が期待される。近年では、有機層のベンゼン環に置換基を導入すると格子歪が生じ、発光特性が変化することが報告されている [2]。本研究ではメトキシ置換基を導入した(n-CH₃OC₆H₄C₂H₄NH₃)₂PbCl₄ (n-CH₃OPEA) (n = 2, 3, 4) 及び(C₆H₅C₂H₄NH₃)₂PbCl₄ (PEA) 結晶を育成し、光学及びシンチレーション特性を評価した。

n-CH₃OPEA (n = 2, 3, 4) 及び PEA の X 線誘起シンチレーションスペクトルを Fig. 1 に示す。全てのサンプルで 400–700 nm にブロードな発光ピークが確認された。この発光は自己束縛励起子の再結合に由来すると考えられる。Figure 2 に X 線誘起シンチレーション減衰曲線を示す。これらの減衰曲線は全て 3 成分の指数関数の和で近似することができ、第 1 成分は装置由来の応答 (IRF) に起因し、第 2 成分は 5–9 ns の時定数を有することから無機層での自己束縛励起子の再結合に由来し、第 3 成分は 54–105 ns の時定数を有することから欠陥での励起子の再結合に由来すると考えられる [3]。

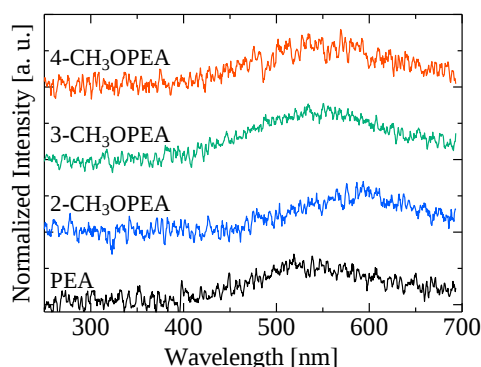


Fig. 1. X-ray-induced scintillation spectra.
参考文献

- [1] N. Kawano et al., Sci. Rep. **7**, 14754 (2017).
[2] N. Kawano et al., J. Lumin. **241**, 118467 (2022).
[3] P. Cai et al., J. Phys. Chem. Lett. **10**, 4095 (2019).

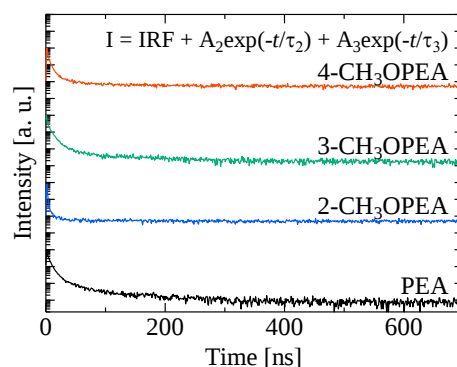


Fig. 2. X-ray-induced scintillation decay curves.

Eu³⁺添加 Bi₂O₃-Na₂O-TiO₂-ZnO-TeO₂ 結晶化ガラスの放射線応答特性

Radiation response properties of

Eu³⁺-doped Bi₂O₃-Na₂O-TiO₂-ZnO-TeO₂ glass ceramics

秋田大¹, 奈良先端大², 産総研³

○宗田 駿太郎¹, 河野 直樹¹, 中内 大介², 加藤 匠², 竹淵 優馬²,

岡崎 魁², 市場 賢政², 篠崎 健二³, 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²,

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology³

○Shuntaro Muneta¹, Naoki Kawano¹, Daisuke Nakauchi², Takumi Kato², Yuma Takebuchi²,

Kai Okazaki², Kensei Ichiba², Kenji Shinozaki³, Takayuki Yanagida²

E-mail: m8023219@s.akita-u.ac.jp

【緒言】近年、大容量化や加工の容易さなどの工業的な利点から、ガラスがシンチレータ材料として注目されている。これまで我々は、TeO₂ ガラスに注目した研究を行っており、その中でも Eu³⁺ 添加 TeO₂ ガラスが可視域で高い量子収率を示す傾向があることがわかった[1]。近年、TeO₂ ガラス(10Eu₂O₃-10BaO-80TeO₂)の結晶化により、放射線励起時の発光量が向上することが判明した[1]。そこで本研究では、新たなガラス組成(8Bi₂O₃-5Na₂O-5TiO₂-10ZnO-71TeO₂-1Eu₂O₃)の TeO₂ 結晶化ガラスを作製し、その放射線応答特性を評価した。

【実験方法】混合原料粉末(Bi₂O₃, Na₂CO₃, TiO₂, ZnO, TeO₂, Eu₂O₃)を 850℃ で 1 時間加熱後、熔融物を 300℃ で急冷してガラス(PG)を得た。さらに、PG にそれぞれ 380℃、390℃ および 400℃ で 2 時間熱処理することで、結晶化ガラス(GC380、GC390、GC400)を得た。

【実験結果】図 1 に X 線励起シンチレーションスペクトルを示す。全ての試料で 577、590、612、652 nm に Eu³⁺ の 4f-4f 遷移由来のピークが観測された[1]。作製した試料のうち、最大強度が GC400 で観測された。

図 2 に X 線励起シンチレーション減衰曲線を示す。第 2 成分の減衰時定数が 0.49 ms (PG)、0.50 ms (GC380)、0.49 ms (GC390)、0.71 ms (GC400) であった。これらは、Eu³⁺ の 4f-4f 遷移に由来すると推察される[1]。本講演では当該結晶化ガラスの放射線応答特性について詳細に議論する。

【参考文献】

[1] R. Nakamori et al. Ceram. Int. 49 (2023) 15884-15890

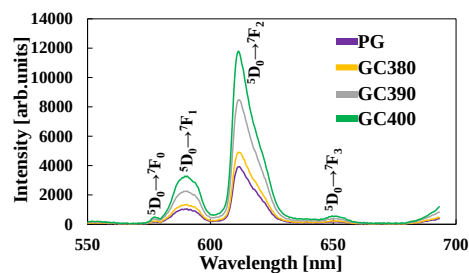


図 1 シンチレーションスペクトル。

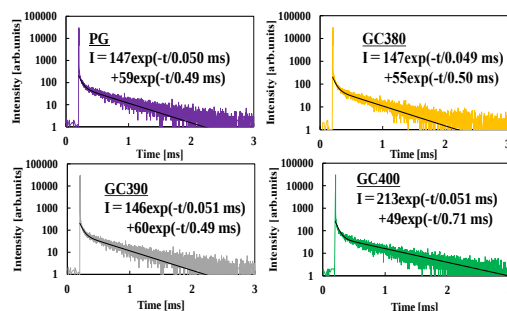


図 2 シンチレーション減衰曲線。