

Poster presentation | 2 Ionizing Radiation : 2 Ionizing Radiation (Poster)

📅 Wed. Sep 20, 2023 1:30 PM - 3:30 PM JST | Wed. Sep 20, 2023 4:30 AM - 6:30 AM UTC | 🏠 P01 (KJ Hall)

[20p-P01-1~28] 2 Ionizing Radiation (Poster)

[20p-P01-1] Development of radiation detector using $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ perovskite single crystal

○Takashi Yamanaka¹, Kenichi Goushi², Taikan Suehara³ (1.Kyushu Univ. Artsci., 2.Kyushu Univ. Eng., 3.Kyushu Univ. Sci.)

[20p-P01-2] Evaluation of thick perovskite films for X-ray detector

○Toshiyuki Sato¹, Mihar Uekado¹, Yurika Okamoto¹, Nagisa Saito¹, Fumi Shiraki¹, Yuki Furukawa¹ (1.Kyoto Col. of Med. Sci)

[20p-P01-3] Fabrication of high sensitivity $\text{MA}_3\text{Bi}_2\text{I}_9$ films using PAN-added precursor solution

○Yuui Nakano¹, Takumi Ikenoue¹, Masao Miyake¹, Tetsuji Hirato¹ (1.Kyoto Univ.)

[20p-P01-4] Study of a radiation detector made of organic semiconductors and heavy inorganic chemicals

○Erika Fukasawa¹, Hitoshi Miyata², Eri Miyata³, Kiyoshi Hayasaka², Masaaki Katsumata⁴, Hitoaki Ono⁵, Minoru Watanabe⁵, Eisuke Saito⁶, Yoshiaki Seino⁷, Akinori Umeyama⁸, Makoto Sato⁸, Takahito Suzuki⁸, Masaaki Tamura⁸ (1.NIT Gunma Col., 2.Niigata Univ., 3.Ashikaga Univ., 4.Kanagawa P.H., 5.Nippon Dental Univ., 6.NIT Nagano Col., 7.NIT Toyama Col., 8.Carlit Co.,Ltd.)

[20p-P01-5] Study of carrier transport characteristics and deep levels in CdTe semiconductor radiation detectors using laser pulses

○Kensuke Nishii¹, Tomohide Shoji¹, Toru Aoki^{1,2}, Tetsu Ito^{1,2} (1.Shizuoka Univ., 2.RIE, Shizuoka Univ.)

[20p-P01-6] Trace-element analysis on TlBr

○Mitsuhiro Nogami¹, Keitaro Hitomi¹, Kenichi Watanabe², Kanoko Kurihara³, Takafumi Hirata³ (1.Tohoku Univ., 2.Kyusyu Univ., 3.The Univ. of Tokyo)

[20p-P01-7] Study on Neutron Response of Transparent Composite Neutron Scintillator

○(M2)Yuya Oshima¹, Kenichi Watanabe¹ (1.Kyushu Univ.)

[20p-P01-8] Real-time measurement of radioluminescence utilizing phosphate glass with aluminum impurities

○Wataru Kada¹, Sota Orimo¹, Tatsuki Amanuma¹, Saya Ono², Satoe Konta², Ryota Sindo², Makoto Sakai³, Osamu Hanaizumi¹, Yohei Inaba² (1.Gunma Univ., 2.Tohoku Univ., 3.GHMC)

[20p-P01-9] Evaluation of the Characteristics of the Reactor Start-up Neutron Source

○Tomohiro Hirata¹, Wakabayashi Genichiro², Ohwada Ren¹, Hanawa Kazutaka¹, Kiura Kota¹ (1.Kindai Univ., 2.KUAERI.)

[20p-P01-10] Examination of a transmission image utilizing natural radiation of ^{40}K

○Kazunori Kuribara¹, Anri Watanabe¹, Hiromitsu Furukawa¹, Nobuko Fukuda¹ (1.AIST)

[20p-P01-11] Development of an optical-fiber-type detector system for in-core neutron measurement at UTR-KINKI

○Kenichi Watanabe¹, Yuya Oshima¹, Hiroshi Shiga^{1,2}, Genichiro Wakabayashi², Tomohiro Endo³, Cheol Ho Pyeon⁴ (1.Kyushu Univ., 2.Kindai Univ., 3.Nagoya Univ., 4.Kyoto Univ.)

[20p-P01-12] Development of a tunable laser system for multi-elemental/isotope analysis with resonant laser Secondary Neutral Mass Spectrometry (2) Demonstration of resonance ionization

○Hiroki Miura¹, Naoki Matsumoto¹, Momo Mukai¹, Shoki Yoshimura², Masato Morita², Tetsuo Sakamoto², Hideki Tomita¹ (1.Nagoya Univ., 2.Kogakuin Univ.)

[20p-P01-13] Development of evaluation technique of linearity for neutron detectors using integrating spheres

○Tetsuro Matsumoto¹, Kazuki Niwa¹, Akihiko Masuda¹, Seiya Manabe¹, Hideki Harano¹ (1.AIST)

[20p-P01-14] Scintillation properties of organic–inorganic hybrid compounds in a porous glass

○Naoki Kawano¹, Kenji Shinozaki², Daisuke Nakauchi³, Takumi Kato³, Yuma Takebuchi³, Takayuki Yanagida³ (1.Akita Univ., 2.AIST, 3.NAIST)

[20p-P01-15] Comparison of Scintillation Properties of UV-cured Plastic Scintillators with Different Fluorescent Molecules

○Naru Hayashi¹, Yutaka Fujimoto², Keisuke Asai², Masanori Koshimizu¹ (1.Shizuoka Univ., 2.Tohoku Univ.)

[20p-P01-16] Development of LiGaO₂ nanoparticle-loaded plastic scintillators for neutron detection

○Haruhisa Tsukahara¹, Yutaka Fujimoto², Keisuke Asai², Masanori Koshimizu¹ (1.Shizuoka Univ., 2.Tohoku Univ.)

[20p-P01-17] Scintillation properties of activator -doped Tl₃ZnCl₅ crystals

○Miyu Ishida¹, Akito Watanabe¹, Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹ (1.Tohoku Univ.)

[20p-P01-18] Photoluminescence and scintillation properties of Ce-doped Al(PO₃)₃–Sr(PO₃)₂–CsPO₃ inorganic glass scintillators

○Yusuke Nakabayashi¹, Yutaka Fujimoto¹, Masanori Koshimizu², Hiroki Kawamoto¹, Keisuke Asai¹ (1.Tohoku Univ., 2.Shizuoka Univ.)

[20p-P01-19] Development of Non-hygroscopic Iodide Crystalline Scintillators : Cs₂ZnI₄

○Marina Furuta¹, Miyu Ishida¹, Akito Watanabe¹, Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹ (1.Tohoku Univ.)

[20p-P01-20] Scintillation Performance Evaluation of SrFCl:Eu Crystals

○Shotaro Nakahata¹, Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹ (1.Tohoku University of Engineering)

[20p-P01-21] Development of Al (PO₃)₃–CsPO₃–TiCl glass scintillators

○Chie Morita¹, Yutaka Fujimoto¹, Ko Hasegawa¹, Yusuke Nakabayashi¹, Akito Watanabe¹, Hiroki Kawamoto¹, Keisuke Asai¹ (1.Tohoku Univ.)

[20p-P01-22] Photoluminescence and scintillation properties of Ce^{3+} -doped Cs_3PrCl_6 crystal

○YUTAKA FUJIMOTO¹, HIROKI KAWAMOTO¹, KEISUKE ASAI¹ (1.Tohoku Univ.)

[20p-P01-23] Development of Sb^{3+} added Cs_2HfCl_6 Crystal Scintillator by using a slow solvent evaporation method

○(M1)Haruto Sasaki¹, Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹ (1.Tohoku Univ.)

[20p-P01-24] Development of Cr-doped GAGG nanoparticle scintillators

○(B)Rin Amano¹, Yutaka Fujimoto², Keisuke Asai², Masanori Koshimizu¹ (1.Shizuoka Univ., 2.Tohoku Univ.)

[20p-P01-25] Changes in fluorescence and thermoluminescence properties of BCNO with increased C composition

○(B)Haruto Taki¹, Yuta Hiramatsu¹, Masanori Koshimizu¹ (1.Shizuoka Univ.)

[20p-P01-26] The Quest for RPL materials based on impurity doped CsBr

○(B)Mana Okuno¹, Go Okada¹, Hidehito Nanto¹ (1.KIT)

[20p-P01-27] RPL properties of Eu-doped $\text{Li}_2\text{BaSiO}_4$

○Fumio Takebayashi¹, Go Okada¹, Hidehito Nanto¹ (1.KIT)

[20p-P01-28] Application of SrMoO_4 nanoparticle dispersion to scintillation detectors

○(DC)Akito Watanabe¹, Masanori Koshimizu², Akira Yoko³, Gimyeong Seong⁴, Takaaki Tomai⁵, Tadafumi Adschiri³, Yamato Hayashi¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹ (1.Tohoku Univ., 2.Shizuoka Univ., 3.Tohoku Univ. WPI-AIMR, 4.Univ. Suwon, 5.Tohoku Univ. FRIS)

CH₃NH₃PbBr₃ ペロブスカイト単結晶を用いた放射線検出器の開発

Development of radiation detector using CH₃NH₃PbBr₃ perovskite single crystal

九大基¹, 九大工², 九大理³ ◯山中 隆志¹, 合志 憲一², 末原大幹³

Kyushu Univ. Artsci.¹, Kyushu Univ. Eng.², Kyushu Univ. Sci.³

◯Takashi Yamanaka¹, Kenichi Goushi², Taikan Suehara³

E-mail: yamanaka@artsci.kyushu-u.ac.jp

素粒子、原子核実験分野などで放射線検出器として広く使われる半導体検出器ではこれまでシリコンやゲルマニウムが主に使われてきた。これらの半導体を利用した検出器は高い検出効率や高いエネルギー分解能など極めて優秀な性能を持つ一方で、単体での大型化が難しいことや製作コストが高額になるなど実験で使用する上での制限がある。太陽電池分野などで現在、高い注目を集めているペロブスカイト半導体は CH₃NH₃PbBr₃ (MAPbBr₃) に代表されるように単結晶として生成できる他、溶剤に溶かして薄膜を形成するなど、低コストで大面積化することが可能となりつつある。また、原子番号が大きな元素を構成元素に含むため、ガンマ線などの放射線に対する高い吸収断面積も期待される。このようなペロブスカイト半導体の特性に着目し、我々はペロブスカイト半導体を用いた放射線検出器の開発に着手した。

ペロブスカイト半導体としては結晶生成が容易でいて、かつ原子番号が大きい Pbなどを構成元素に含む MAPbBr₃ 単結晶を用いる。当初市販されている結晶を用いての開発を進めていたが、入手困難さや結晶の質を制御できないことから、我々自身で結晶生成を開始し、逆温度結晶化法を用いての単結晶の生成に成功した(図 1)。現在、さらなる低欠陥結晶の生成を目指して研究を進めている。これと並行して、信号読み出し回路の開発も進め、放射線がペロブスカイト半導体内を通過した際に生じる微小な信号を増幅して読み出す回路の試作機を製作し(図 2)、これらを組み合わせた検出器の開発を進めている。本講演ではこれらの開発の現状について報告する。



図 1. 作成した MAPbBr₃ 単結晶



図 2. 試作信号読み出し回路

晶析法で作成した放射線検出器用ペロブスカイト膜の特性評価

Evaluation of thick perovskite films for X-ray detector

京都医療科学大学 ○佐藤 敏幸, 上門 美遥, 岡本 侑里香, 齋藤 凖沙, 白木 芙美, 古川 悠希

Kyoto College of Medical Science, °Toshiyuki Sato, Miharuru Uekado, Yurika Okamoto,

Nagisa Saito, Fumi Shiraki, Yuki Furukawa

E-mail: tsato@kyoto-msc.jp

【はじめに】簡便に多チャンネルの検出器を作製するために、読み出し基板上に溶液を塗布し、直接ペロブスカイト厚膜を作製することを目指している。昨年秋の講演会では溶媒と結晶形態の関係を報告した¹⁾。今回は厚膜化が容易な微結晶分散液による厚膜作製方法と、作製したペロブスカイト膜の特性評価について報告する。

【実験方法および結果】微結晶を析出させ、ペースト状にし、ブレード法で厚膜を作製する手法の報告²⁾があるが、本研究では微結晶分散液を基板上に滴下し、晶析法によってペロブスカイト膜の厚膜化を図った。GVL 溶媒に沃化鉛と沃化メチルアンモニウムを溶解しペロブスカイト溶液を作成し、この溶液を 90℃4 時間加熱保持することで微結晶分散液を作製した。開口径 8mmφ、厚さ 1mm の Si ゴムを ITO 基板 (20mm 角) 上に貼り付け、この中に微結晶分散液を滴下保持し、加熱することで結晶化を行った。得られた膜中に多数の空隙が生じていることがわかったため、空隙を埋めるために分散液滴下後、溶媒が蒸発した時点で別途調整したペロブスカイト溶液を追加塗布した。追加塗布した溶液は成膜中のペロブスカイト膜の空隙そって染み込み、結晶化する。図 1 にこの手法によって作成した厚さ 1mm のペロブスカイト膜の断面 SEM 像を示す。追加の溶液の塗布によって結晶粒の境界が再溶解し、空隙が少ない均一な膜となったと考えている。図 2 は膜厚 1mm のペロブスカイト膜に 40V の電圧を印加し、管電圧 70kV の X 線の照射線量を変えて出力電流を測定した結果である。高線量域から低線量域まではほぼ一定の感度となっている。図 3 は照射線量 617 μ Gy/s 時の検出器の時間応答を示す。立ち上がり、立下りと共に、良好な応答性を示している。本講演では追加塗布による結晶形態の変化、X 線の線質を変えた時の特性、1mm 厚の CdTe 検出器との比較などを報告する。

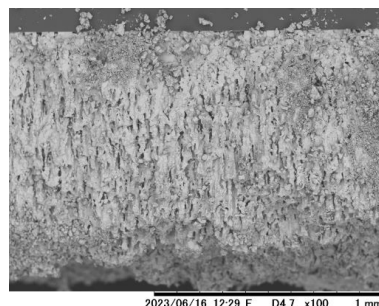


Fig.1. Cross-sectional SEM image of the Perovskite film.

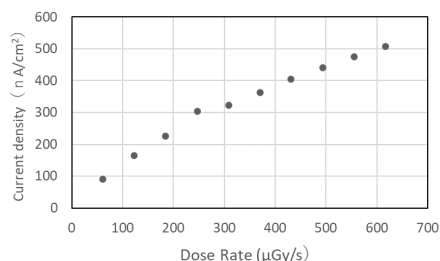


Fig.2. X-ray induced current at different dose rate.

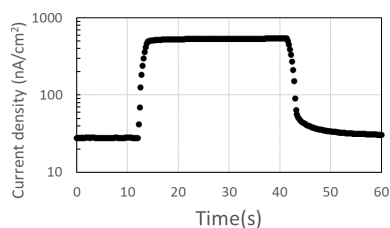


Fig.3. Response of the Perovskite film to X-ray.

【文献】[1] 佐藤, 第83回応用物理学会秋季学術講演会, 21p-P14-7, (2022)

[2] Yong Churl Kim. et al., Nature, 550, 87-91, (2017)

【謝辞】本研究はJSPS 科研費(21K12525)の助成を受けたものである。また、本研究の一部は文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業 (京都大学微細加工プラットフォーム) の支援を受けて実施された。

PAN 添加溶液を用いた高感度 $\text{MA}_3\text{Bi}_2\text{I}_9$ 膜の作製

Fabrication of high sensitivity $\text{MA}_3\text{Bi}_2\text{I}_9$ films using PAN-added precursor solution

京大院・エネルギー科学研究科 °中野 佑宇唯, 池之上 卓己, 三宅 正男, 平藤 哲司

Kyoto Univ., °Yuui Nakano, Takumi Ikenoue, Masao Miyake, Tetsuji Hirato

E-mail: ikenoue.takumi.4m@kyoto-u.ac.jp

$\text{MA}_3\text{Bi}_2\text{I}_9$ (MA; methylammonium) は、高い X 線吸収係数と優れた電荷移動特性を有することから、次世代の X 線撮像素子の検出母材に適した材料として注目されている。X 線撮像素子への応用には、X 線を十分に吸収できる厚さの $\text{MA}_3\text{Bi}_2\text{I}_9$ 膜を集積回路上に直接成膜できることや、撮像領域と同程度の大面積が必要となる。当研究室ではこれまでにミストデポジション法^[1]を用いて $\text{MA}_3\text{Bi}_2\text{I}_9$ の厚膜 (110 μm) の作製^[2]や 300 cm^2 の大面積膜の作製^[3]を達成している。また、PEAI (PEA; 2-Phenylethylammonium) 添加による膜の高抵抗化^[4]により単結晶に匹敵する比抵抗を達成した。今回、我々は PAN (polyacrylonitrile) を前駆体溶液に混合することで欠陥のパッシベーション効果による高感度化を目指した。

MAI と BiI_3 をそれぞれ 28.6 g/L, 70.7g/L となるように DMF (N,N-dimethylformamide) に溶解した前駆体溶液に PAN を 0.2–1.5 g/L 添加し、成膜を行った。PAN 添加量 1.5 g/L 以下では、異相は確認されず、 $\text{MA}_3\text{Bi}_2\text{I}_9$ 単相が得られた。前駆体溶液の PAN 添加量を増やすことで、X 線検出感度が徐々に増大し、1.5 g/L のとき、X 線検出感度が 21.4 $\mu\text{C Gy}_{\text{air}}^{-1} \text{cm}^{-2}$ となり、添加していないものと比べ 3 倍以上に増大した (Fig. 1a)。しかし、PAN の添加量が多いと、短絡の原因となるクラックが入りやすくなることが分かった (Fig. 1b)。

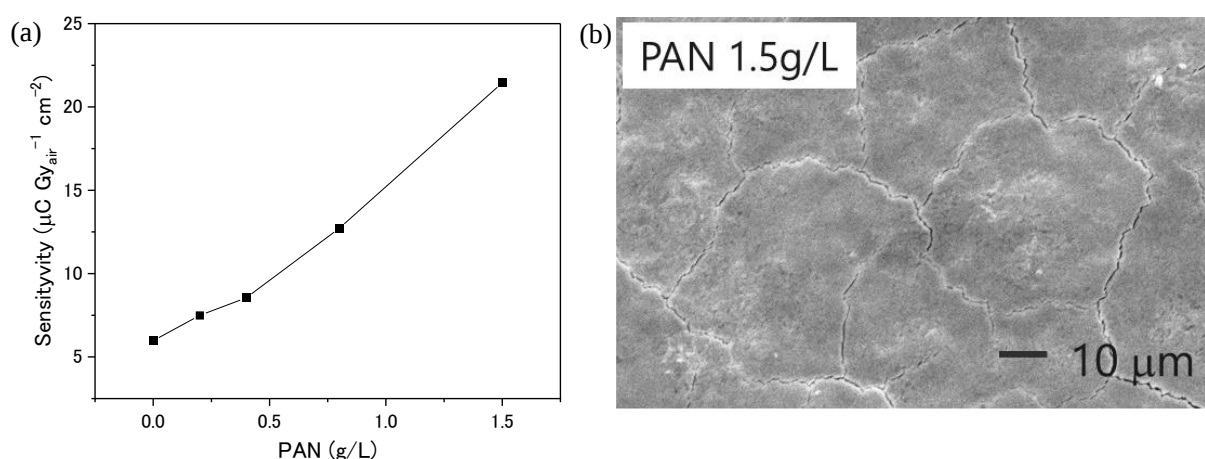


Figure 1 (a) Sensitivities of the $\text{MA}_3\text{Bi}_2\text{I}_9$ films with a dose rate of 1226 $\mu\text{Gy}_{\text{air}} \text{s}^{-1}$ under 50 V/mm. (b) SEM image of the 1.5 g/L PAN-added $\text{MA}_3\text{Bi}_2\text{I}_9$ film.

References

- [1] Haruta Y. *et al.*, *Appl. Phys. Express*, 12, 085505 (2019). [2] 川上ら, 第 82 回秋応物学会, 21a-P07-6. [3] 中野ら, 第 83 回秋応物学会, 21p-P14-10 [4] 川上ら, 第 70 回春応物学会, 17p-PA09-73

有機半導体と高密度無機物質を用いた新型放射線検出器の研究

Study of a radiation detector made of organic semiconductors and heavy inorganic chemicals

群馬高専¹, 新大自², 足利大³, 神奈川県衛生研⁴, 日本歯科大⁵, 長野高専⁶, 富山高専⁷, 日本カーリット(株)⁸ ○深澤 永里香¹, 宮田 等², 宮田 恵理³, 早坂 圭司², 勝亦 正明⁴, 小野 裕明⁵, 渡辺 みのり⁵, 斎藤 栄輔⁶, 清野 義敬⁷, 梅山 晃典⁸, 佐藤 誠⁸, 鈴木 崇民⁸, 田村 正明⁸

NIT Gunma Col.¹, Niigata Univ.², Ashikaga Univ.³, Kanagawa P.H.⁴, Nippon Dental Univ.⁵, NIT Nagano Col.⁶, NIT Toyama Col.⁷, Japan Carlit Co., Ltd.⁸, ○Erika Fukasawa¹, Hitoshi Miyata², Eri Miyata³, Kiyoshi Hayasaka², Masaaki Katsumata⁴, Hiroaki Ono⁵, Minoru Watanabe⁵, Eisuke Saito⁶, Yoshiaki Seino⁷, Akinori Umeyama⁸, Makoto Sato⁸, Takahito Suzuki⁸, Masaaki Tamura⁸
E-mail: fukasawa@gunma-ct.ac.jp

半導体放射線検出器は素粒子実験や原子核実験において、物理現象を測定するため多くの実験装置に用いられている。無機半導体、主にシリコンを用いた検出器は動作電圧が低くエネルギー分解能と位置分解能が良いため素粒子・原子核実験分野においては欠かせない検出器である。その一方で検出器の無機半導体材料は高純度結晶を必要とすることから製作コストが高価であり、大面積ピクセル化や曲面加工が困難であるといった制限がある。

この無機半導体の欠点を補い、低コストで形状自由度の高い半導体放射線検出器の実現が期待される材料が有機半導体であり導電性高分子として知られる材料である。導電性高分子は数多くの種類があるが、本研究で採用している材料はポリアニリン (PANI) である。開発中のポリアニリンを用いた検出器 (以下、PANI センサ) は、放射線の粒子 1 つ 1 つを検出できる粒子カウンタとしての動作が可能である。最近、製品化目標として掲げていた実験室レベルでの β 線検出効率 20% を達成した[1]。

これまで本研究グループが開発してきた PANI センサ[2-4]に関して、 γ 線検出や高感度化において不足していたものの 1 つはセンサ感度を上げるための高密度化である。本研究は高電子密度物質に着目し、それをセンサに添加することで高密度化し γ 線や β 線の検出効率の向上を目指した。本発表では γ 線に感度を持たせた検出器及び β 線検出効率 20% の検出器について作製方法と性能評価の結果、そして今後の展望を述べる。

[1] E. Fukasawa, et al., Nucl. Instru. Methods Phys. Res. A 1034 (2022) 166797.

[2] T. Suzuki, et al., Nucl. Instru. Methods Phys. Res. A 763 (2014) 304-307.

[3] M. Tamura, et al., Nucl. Instru. Methods Phys. Res. A 828 (2016) 176-180.

[4] E. Miyata, et al., Nucl. Instru. Methods Phys. Res. A 955 (2020) 163156.

レーザーパルスを用いた CdTe 放射線検出器における キャリア輸送特性と深い準位に関する研究

Study of carrier transport characteristics and deep levels

in CdTe semiconductor radiation detectors using laser pulses

静岡大院¹, 静大電研² ○西井 健介¹, 庄子 朋秀¹, 青木 徹^{1, 2}, 伊藤 哲^{1, 2}

Shizuoka Univ.¹, RIE, Shizuoka Univ.²,

○Kensuke Nishii¹, Shoji Tomohide¹, Toru Aoki^{1, 2}, Tetsu Ito^{1, 2}

E-mail: ito.tetsu@shizuoka.ac.jp

1. 緒言

CdTe 放射線検出器では長時間の連続利用で性能が劣化する現象「ポラリゼーション」が確認されている。この現象が起きる原因の 1 つとして、深い準位に電荷がトラップされ内部電界が変化することが考えられているが現象の詳細なメカニズムは未だ議論が続いている。本研究では、深い準位への電荷トラップの熱的な影響を考え、キャリア輸送特性の温度依存性を評価することとした。CdTe 放射線検出器に放射線に疑似したレーザーパルスを入射し、キャリアの発生位置を固定しながら各温度における出力信号の経時変化を観察した。

2. 実験方法

本実験では、放射線の代わりに放射線に疑似したレーザーパルスを用いた。レーザーパルスを用いることにより、検出器内でのキャリアの生成位置を定めることが可能となった。評価した検出器はショットキー型 CdTe で厚さは 0.5 mm, $z = 0$ mm を陽極, $z = 0.5$ mm を陰極とした。検出器に逆バイアス電圧を印加し、劈開面にレーザーパルス(パワー:10 nW, 波長:850 nm, 周期:500 Hz)を入射し、出力信号を観測した。温度制御にはペルチェモジュールを用い、25～45 °C の範囲で 5 °C おきに測定を行った。

3. 実験結果

Fig.1 にショットキー型 CdTe の中央($z = 0.25$ mm)照射時の各温度における波高値の経時変化を示す。温度上昇につれ、波高値の減少が顕著に表れた。温度上昇により、負の空間電荷が蓄積し、内部電界が低下することによって、電荷の収集効率が悪くなっているのではないかと考える。時定数 τ は、波高値の時間依存性から指数関数フィッティングにより求められる。この時定数 τ を用いて、アレニウスプロットから傾きを計算し、深い準位の価電子帯からのエネルギーレベル E_A を求めることができる。Fig.2 にアレニウスプロットの一例を示す。中央照射時の波高値の時間依存性から $E_A = 1.09 \pm 0.06$ eV と求めることができた。この測定により、深い準位のエネルギーレベルを把握することができ、ポラリゼーションメカニズムの解明につながると考えられる。

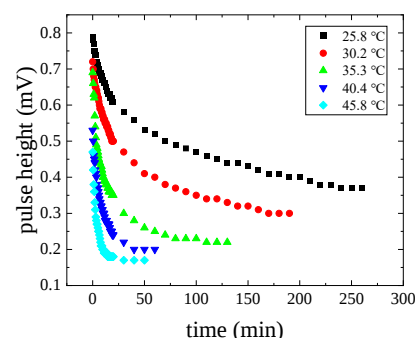


Fig.1 Time dependence of pulse height

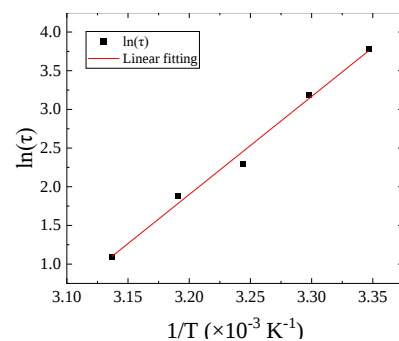


Fig.2 Arrhenius plot of the time constant τ

臭化タリウム中の不純物元素分析

Trace-element analysis on TlBr

東北大学¹, 九州大学², 東京大学³

○野上光博¹, 人見啓太郎¹, 渡辺賢一², 栗原かのこ³, 平田岳史³

Mitsuhiro Nogami¹, Keitaro Hitomi¹, Kenichi Watanabe², Kanoko Kurihara³, Takafumi Hirata³

Tohoku Univ.¹, Kyusyu Univ.², The Univ. of Tokyo³

E-mail: mitsuhiro.nogami.c4@tohoku.ac.jp

1. はじめに

臭化タリウム(TlBr)結晶からなる放射線検出器は、高原子番号元素である Tl を含みかつ、高密度(7.56 g/cm³)なためガンマ線との相互作用確率が高い。また、バンドギャップが 2.68 eV と高いために常温動作が可能である。このような特徴をもつ TlBr は常温動作が可能な重元素化合物半導体放射線検出器材料として研究開発が進められている。TlBr 検出器は古くから半導体放射線検出器材料の候補の 1 つとして着目されてきたが、近年の性能向上につながる鍵となったのは、Si 等の材料の純化工程にも用いられている帯域精製法を適用したことである。帯域精製回数と TlBr 中の電荷輸送特性の相関関係については、人見らにより研究されており、帯域精製が 1 回では移動度ーキャリア寿命積($\mu\tau$ 積)が電子で $3.2 \times 10^4 \text{ cm}^2/\text{V}$ 、正孔で $9.4 \times 10^6 \text{ cm}^2/\text{V}$ だったが、帯域精製回数を 300 回に増やすことにより、 $\mu\tau$ 積が電子で $9.1 \times 10^4 \text{ cm}^2/\text{V}$ 、正孔で $3.6 \times 10^3 \text{ cm}^2/\text{V}$ に改善したという報告がある^[1]。そのため、TlBr の純化の際に行われる帯域精製は 300 回以上に行うことが多い。しかしながら、帯域精製により TlBr 中のどの元素が取り除かれたかについては分かっていないのが現状である。また、TlBr 中の不純物元素の取り除かれ方が分かっていないということは、現状で 300 回としている TlBr の帯域精製の回数について最適化できていないことを表している。

2. 実験・評価方法

TlBr は原料の時点で 5N であり、帯域精製後の TlBr 中の不純物元素の分析は一般的な方法では非常に困難である。実際に、過去に実施した ICP-MS を用いた TlBr 中の不純物元素分析では、全ての不純物元素が検出下限以下であった。そこで、我々の研究グループでは、TlBr 中の不純物元素分析にレーザーアブレーションー誘導結合プラズマ質量分析法(LA-ICP-MS)を適用することにした。LA-ICP-MS では固体試料を希釈する必要があるため、検出下限を下げるのが可能である。はじめに LA-ICP-MS を用いて TlBr 中に含まれる元素のスクリーニングを実施し、分析対象元素の選定を行った。その後、選定した分析対象元素の TlBr 原料(5N)および、帯域精製後の TlBr 中の含有量を LA-ICP-MS を用いて分析した。

- [1] K. Hitomi et al., Influence of zone purification process on TlBr crystals for radiation detector fabrication., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 579 (2007) 153-156.

透明コンポジットシンチレータの中性子応答に関する検討

Study on Neutron on Response of Transparent Composite Neutron Scintillator

九大工¹ ○(M1)大島 裕也¹, 渡辺 賢一¹

Kyushu Univ.¹, °Yuya Oshima¹, Kenichi Watanabe¹

E-mail: oshima.yuya.140@s.kyushu-u.ac.jp

ホウ素中性子捕捉療法(BNCT: Boron Neutron Capture Therapy)は新しい放射線治療法の一つである。BNCTにおいて、治療の安全性及び治療効果の確認のためには、中性子の計測技術を確認しておくことは不可欠である。我々の研究グループでは、発光時定数の短い Li ガラスシンチレータをベースとした透明コンポジットシンチレータを開発し、これを用いた光ファイバベース中性子検出器の開発を進めてきた。透明コンポジットシンチレータでは、従来のランダム形状の小片シンチレータと異なり、微小サイズであっても形状制御が可能である。

今回は、実際の透明コンポジットシンチレータを模擬し、粒径が 40 μm の Li ガラス内で $^6\text{Li}(n,t)\alpha$ 反応により放出される荷電粒子の挙動を、PHITS を用いたシミュレーションで確認した。 $^6\text{Li}(n,t)\alpha$ 反応で発生する t 粒子(^3H)の、Li ガラス内における飛程は 35 μm 程度であり、ある割合で発生源であるシンチレータの外に出ていく。そのため、全エネルギーをシンチレータ内に付与できず、信号波高分布中にピークを形成できないと予想されていたが、実験ではピークが確認されていた。シミュレーションでは、 ^6Li ガラス小片から t 粒子が出て樹脂を介して隣接小片にもエネルギーを付与し得るといふ実際の状況を模擬すべく、 ^6Li を含有する微小 Li ガラス球の周りに ^6Li を含有しないガラス球を配し、間の領域にアクリル樹脂を充填した体系に、熱中性子のビームを照射した。

Li ガラスシンチレータへの付与エネルギー分布を Fig.1 に示す。実際にはシンチレーション光発生過程、光ファイバへの入射、PMT における光変換は確率的過程で、最終的に得られる信号波高は広がりを持つため、コンボリューションを行った。Fig.2 に示すように、実験で得られた信号波高分布をよく再現できることが分かった。シミュレーションとの比較によりピーク波高 ch 以上のイベントが全体の 48.7%に相当することが分かった。

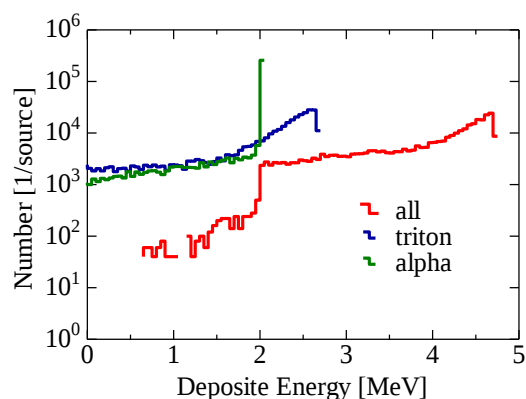


Fig. 1 Deposited energy spectrum in Li glass obtained by PHITS simulation.

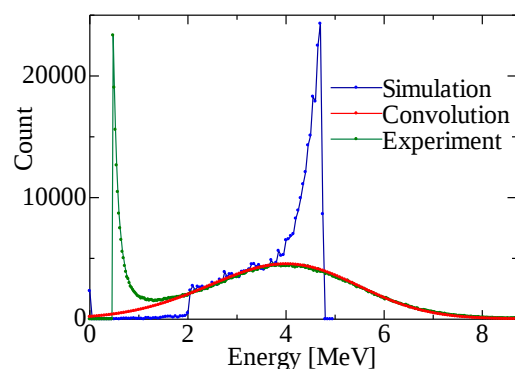


Fig. 2 Comparison between simulation and experimental spectrum.

Al 添加リン酸塩ガラスからの放射線誘起発光による 放射線リアルタイム計測

Real time measurement of radioluminescence
utilizing phosphate glass with aluminum impurities

群馬大理工¹, 東北大医学部², 群馬大重粒子³ ○加田 渉¹, 織茂 颯汰¹, 天沼 竜輝¹,
大野 紗耶², 今田 聡恵², 進藤 僚太², 酒井 真理³, 花泉 修¹, 稲葉 洋平²

Gunma Univ.¹, Tohoku Univ.², GHMC³ ○Wataru Kada¹, Sota Orimo¹, Tatsuki Amanuma¹,
Saya Ono², Satoe Konta², Ryota Sindo², Makoto Sakai³, Osamu Hanaizumi¹, and Yohei Inaba²

E-mail: kada.wataru@gunma-u.ac.jp

【はじめに】

小型かつ簡便な線量計素子は、医療診断や治療に用いられる X 線、陽子線、炭素線といった各種放射線場の線量分布プロファイリングにおいて有効な技術となりうる。ラジオフォトルミネセンス(Radio-photoluminescence: RPL)現象を利用した個人被ばく線量計素子として用いられるリン酸塩ガラスは信頼性の高い素子[1,2]である反面、銀活性中心のビルドアップ効果などにより、十分にその場(リアルタイム)計測の可能性を担保されるに至っていない。これに対し我々は、銀以外の活性中心を共添加する手法の開発を進めることで、積算型線量計測とリアルタイム計測を同時に達成できるデバイスの検討を進めてきた。これまでに酸化ユーロピウム(Eu_2O_3)粉末を導入したリン酸塩において、リアルタイム放射線計測の可能性を示した。しかしながら、銀活性中心の読み出し波長と Eu 由来の蛍光波長が重なる課題があった[3]。他方で、リン酸塩ガラスにアルミニウム(Al)並びにスズ(Sn)を積極的に添加することで、300 nm 以下の深紫外線励起にて白色発光を示すことが確認された[4]。これらの蛍光中心を銀活性中心と併用することで、RPL 読み出し時には背景雑音とならない放射線誘起発光(Radioluminescence: RL)によるリアルタイム計測の達成が期待された。本発表では、アルミニウム(Al)を添加したガラスデバイスの試作例と放射線照射下における測定結果を報告する。

【実験及び結果】

リン酸塩系ガラス(Phosphate glass: PG)材料として、メタリン酸アルミニウム($\text{Al}(\text{PO}_3)_3$)粉末とメタリン酸ナトリウム(NaPO_3)粉末を質量比 1:1 で混合し主材を構成した。これに加えて混合量が、0.2 mol% となるように不純物としてのアルミニウム粉末を導入した。ガラス母材原料全体を 1000°C で 2 時間加熱した後、クロム銅板に形成した円柱くぼみを利用して急速冷却法により半球状のガラスビーズ構造を整形した。アルミニウム共添加銀活性リン酸塩ガラスビーズを作成し、SMA 光ファイバアタッチメント(Amphenol Insert Fibre Optic Connector)を介して、光ファイバー(THORLABS: M29L05)に接続した。光電子増倍管(Photomultiplier tube, PMT: HPK: H1890-01)と組み合わせることで、リアルタイム測定デバイスを実現した。Fig. 1 に、1-2 mm 程度の任意の直径の半球レンズ状に形成された Al 添加リン酸塩ガラス材料を用いた診断用 X 線の測定例を示す。本例において、併設した半導体線量計(RaySafe ThinX RAD X)によって計測された線量の増大に沿って線形的に RL 強度が増大することが確認された。管電圧・管電流を変化させた際に、線量変化と同様に、RL の変化を確認することができた。本デバイスは低原子番号の元素のみで構成されており、放射線診断画像に外乱を生じさせにくいと考えられる。今後、材料機能性や構造を更に最適化することで、放射線診断や治療用途により適切かつ簡便なリアルタイム計測材料としての機能拡充が期待できる。

【謝辞】

本研究の一部は JSPS 科研費(19K12860, JP21K12522, JP22H02009, 23K11929)の助成を受けて行われた。本研究の一部は、GHMC の共同利用の一環として行われた。

【参考文献】

- [1] F. Sato et al., *Rad. Meas.*, **55** (2013) 68-71.
- [2] T. Kurobori et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **57** (2018) 106402.
- [3] S. Akiyama et al., *J. Phys.: Conf. Ser.* **2326** (2022) 012012.
- [4] S. Akiyama et al., *Sensor and Materials*, **34** (2022) 735-744.

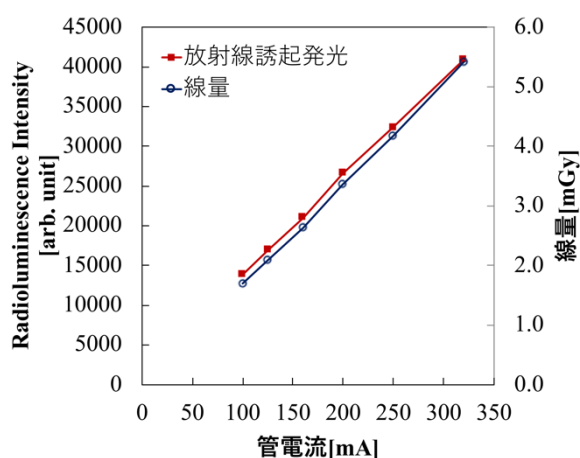


Fig. 1. 診断用 X 線照射時のリン酸塩ガラスからの Radioluminescence の照射電流量依存性と多機能 X 線測定器(RaySafe ThinX RAD X)により測定された線量との比較。

原子炉起動用中性子源の特性評価

Evaluation of the Characteristics of the Reactor Start-up Neutron Source

近大院総合理工¹, 近大原研² [○](M2)平田智大¹, 若林源一郎², 大和田蓮¹, 塙和鷹¹, 木浦滉太¹

Kindai Univ.¹, KUAERI.², [○]Tomohiro Hirata¹, Genichiro Wakabayashi², Ren Oowada¹,

Kazutaka Hanawa¹, Kota Kiura¹

E-mail: 2233340418n@kindai.ac.jp

1. はじめに

近畿大学原子力研究所が保有する中性子源 (Pu-Be) は、長年にわたり原子炉の起動用中性子源として用いられてきたが、近年では低強度の中性子源として様々な照射実験にも用いられるようになった。しかしながら、線源の特性に関する情報が乏しく、定量的な評価も行われてこなかった。そこで特性評価の一つとして、Pu-Be 中性子源のエネルギースペクトルを求めることを計画した。

中性子のエネルギースペクトルを求める方法の中に、複数の減速体系で放射化させた箔の放射能からアンフォールディング法を用いてスペクトルを求める方法がある。この方法では、一般的に金やインジウムなどが放射化箔として用いられるが、低強度の Pu-Be 中性子源の場合、計量管理・核セキュリティ上の制約から使用場所・時間が限られ、十分な放射能を得ることが困難である。

そこで本研究では、放射化箔の代替として CsI シンチレータを用いて、アンフォールディングにより中性子スペクトルを測定することを検討した。

2. 方法

放射箔の代わりに CsI シンチレータを使うと、シンチレータ中に内部線源として ^{134m}Cs 及び ^{128}I が生成されるため、きわめて検出効率の高い測定が可能である。また、生成核種の半減期が短いことから、短時間で大きな放射

能が得られる利点がある。また、生成核種の半減期が短いことから、短時間で大きな放射能が得られる利点がある。

本研究では、中性子源と円柱型 CsI シンチレータ ($\phi 2.54 \times 2.54 \text{ cm}^3$) の距離を 15 cm とし、その間に厚さの異なるアクリル板を設置して複数の減速体系を作る計画とした。各減速体系に対する応答関数を調べるため、PHITS を用いてシミュレーション計算を行った。

3. 結果

図 1 に得られた応答関数を示す。応答関数は中性子フルエンスあたりに CsI シンチレータ中に生成される ^{134m}Cs 飽和放射能とした。放射化反応の共鳴領域において応答関数が大きな変化を示す結果となったが、この部分についてはさらに検討する予定である。今後は放射化実験を行い、最終的に中性子のエネルギースペクトルを求める予定である。

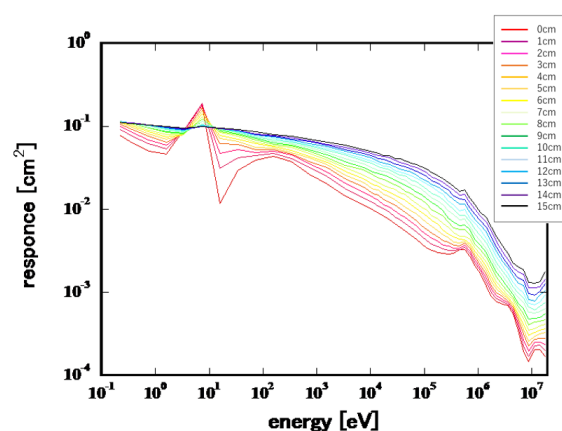


Fig.1. Response function of neutron irradiation with varying thickness of acrylic plate

カリウム 40 の自然放射線を利用した透過画像撮影の検討

Examination of a transmission image utilizing natural radiation of ⁴⁰K

産総研¹, °栗原 一徳¹, 渡部 愛理¹, 古川 祐光¹, 福田 伸子¹

AIST¹, °Kazunori Kuribara¹, Anri Watanabe¹, Hiromitsu Furukawa¹, and Nobuko Fukuda¹

E-mail: kuribara-kazunori@aist.go.jp

【背景】コンクリート劣化をはじめとするインフラ寿命の評価は現在、重要な課題となっている。これまでの非破壊検査ではレーザー誘起超音波やエックス線などを利用して、欠陥の診断が行われてきた。特にエックス線の利用はインフラの表面だけではなく、より深部の状態を評価できるために重要である。そのようなエックス線診断では、主に放射性元素を利用したシステムが使用されてきた。しかし、携帯型の放射線源を利用する場合、意識的にも無意識的にもある種の制限が伴っていた。すなわち、①被爆リスク低減のため時間や範囲を制限すること、②対象を線源と検出器で挟み込めない場所（例えば埋設されたトンネル等）では透過画像撮影が現実的に困難であることの2つである。一方で、線源のない透過画像撮影技術として宇宙放射線の一種であるミュー粒子を利用したミュオグラフィが巨大構造物への利用で一定の成果を収めている。そこで本研究では、宇宙放射線の代わりに土中に含まれるカリウム 40 からの自然放射線を利用して同様に上述の制限がない透過画像撮影が可能かを検討した。

【実験内容】カリウム 40 が豊富に含まれる市販の化学肥料を線源に用いて実験を行った。カリウム 40 を含めたカリウム同位体総量での放射能は 30.4 Bq/g であり、そのうち 11% がガンマ線を出す崩壊である。本試験で利用した 10 kg の肥料にはカリウムが約 9.52 g 含まれており、ガンマ線は毎秒 32 回程度発生している。検出器には市販の検出器（岩崎通信機 SV-2000）を用い、計測は時速モードで行った。カリウム 40 からは別途ベータ線も出るため 3mm 厚のアルミ板を置いてその影響を抑えた(Fig.1)。対象として 5mm 厚の SUS 板を埋設して、周囲の放射線強度を 5cm 間隔で三度ずつ計測した時の中央値を表したものが Fig. 2 である（数値の単位は nSv/h）。結果として、SUS 板の有無により画像の赤枠内の中央の検出強度が上下することが分かった。赤丸で示した SUS 板の直上での計測ではγ線強度が 86nSv/h から 77nSv/h へ 10%ほど低下していた。

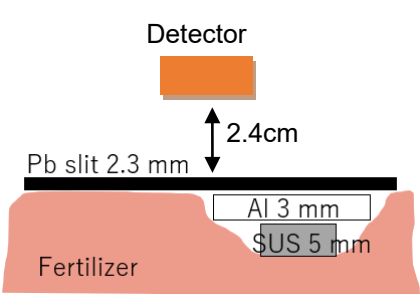


Fig.1 Schematic cross-section arrangement of stainless steel (SUS), Fertilizer, and Detector.

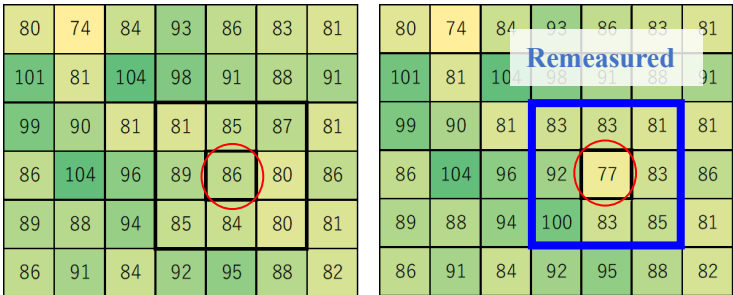


Fig.2 Intensity (nSv/h) of natural radiation without (left image) and with (right) SUS plate at red circle. We remeasured only in blue square.

近畿大学原子炉の炉内中性子計測用光ファイバ型検出器システムの開発

Development of an optical-fiber-type detector system for in-core neutron measurement at UTR-KINKI

九州大¹, 近畿大², 名古屋大³, 京都大⁴

○渡辺 賢一¹, 大島 裕也¹, 志賀 大史^{1,2}, 若林 源一郎², 遠藤 知弘³, 卞 哲浩⁴

Kyushu Univ.¹, Kindai Univ.², Nagoya Univ.³, Kyoto Univ.⁴

○Kenichi Watanabe¹, Yuya Oshima¹, Hiroshi Shiga^{1,2}, Genichiro Wakabayashi²,
Tomohiro Endo³, Cheol Ho Pyeon⁴

E-mail: k-watanabe@nucl.kyushu-u.ac.jp

1. 緒言 近畿大学原子炉 (UTR-KINKI) は、教育・研究用の原子炉として、原子炉物理、放射線計測、放射線生物等の幅広い分野の研究に利用されている。これらの中でも、特に原子炉物理学実験においては、原子炉内の中性子束の変化を計測することで、さまざまな情報を得ることが可能となる。現状、原子炉内の中性子強度を計測する検出器としては、核分裂計数管、BF₃ 計数管、³He 計数管等が利用されているが、これらは必ずしもダイナミックレンジが十分ではなく、原子炉物理学実験で用いる原子炉出力範囲をすべてカバーできていない。これまでに、最大出力時に原子炉中心部の中性子束を計測するために、光ファイバ型中性子検出器の利用を行ってきたが、原子炉起動時の低中性子束領域での計測が困難であった。そこで、今回は、近畿大学原子炉の全出力範囲をカバーできる中性子計測システムとして、感度の異なる光ファイバ型検出器を複数組み合わせさせた計測システムの開発を行った。

2. 実験 広いダイナミックレンジをカバーすべく、低・中・高感度の3つの光ファイバ型中性子検出器を組み合わせた。各々の検出器はシンチレータと光ファイバを組み合わせた検出器で、シンチレータとしては中性子に感度を有する⁶Liを含むLiF/CaF₂:Eu共晶体を用いた。低感度検出器では、数100 μmサイズのシンチレータ小片を石英光ファイバのコア端面に1粒配置している。また、中・高感度検出器では、波長シフトファイバの側面に上述の小片シンチレータを多数配置し、これを石英光ファイバに接続することで光ファイバ型検出器とした。各々、配置するシンチレータの重量により感度をコントロールできる。Fig. 1に中性子照射時に得られた信号波高分布を示すが、各々おおむね1桁ずつ感度の異なる検出器となっており、これらを組み合わせることでダイナミックレンジを拡張可能である。

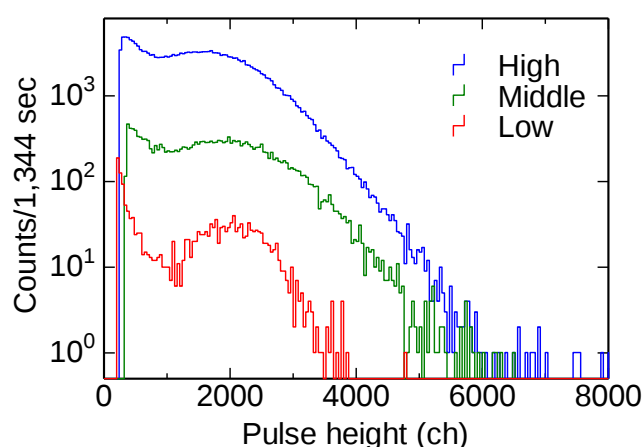


Fig. 1 Pulse height spectra obtained from the fabricated Low/Middle/High sensitivity detectors. The detectors were irradiated with moderated neutrons emitted from a Cf-252 source.

共鳴イオン化二次中性粒子質量分析による多元素・同位体分析のための 波長可変レーザーシステムの開発(2) 共鳴イオン化への適用

Development of a tunable laser system for multi-elemental/isotope analysis with resonant laser-Secondary Neutral Mass Spectrometry (2)

Demonstration of resonance ionization

名古屋大¹, 工学院大² ○三浦 裕玖¹, 松本 尚樹¹, 向井 もも¹,
吉村 昌稀², 森田 真人², 坂本 哲夫², 富田 英生¹

¹Nagoya Univ., ²Kogakuin Univ.

○Hiroki Miura¹, Naoki Matsumoto¹, Momo Mukai¹, Shoki Yoshimura²,
Masato Morita², Tetsuo Sakamoto², Hideki Tomita¹

E-mail: h-tomita@energy.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに 燃料デブリのような、元素・核種組成が不明な物質の分析においては、できる限り簡素な化学的前処理で多元素・同位体分析を行うことが望ましい。さらに、臨界安全の評価などの観点から、対象試料内での核燃料物質（特定の同位体）の空間分布を評価することが求められるが、二次イオン質量分析計などの従来法では、多種多様な夾雑物質による同重体干渉なしに質量イメージングを実現することが容易ではない。そこで本研究グループでは、集束イオンビームによる局所的な対象試料の原子化とレーザーを用いた元素選択的な共鳴イオン化を組み合わせた共鳴イオン化二次中性粒子質量分析法（resonant laser-Secondary Neutral Mass Spectrometry）の開発を進めている^[1]。これまでに、共鳴イオン化に適した波長可変パルスレーザー光源として、基本波と第2高調波を瞬時に切り替える可能なグレーティング型 Ti:Sapphire レーザー光源を開発した^[2]。本講演では、本レーザー光源を用いた共鳴イオン化の検証について報告する。

2. グレーティング型 Ti:Sapphire レーザーの発振モード切り替えによる共鳴イオン化の実証

レーザー共鳴イオン化には、元素固有のエネルギー準位間の遷移を起こすための波長可変レーザー光源が必要である。典型的に 5 eV 以上の第一イオン化ポテンシャルを超えるためには、Ti:Sapphire レーザーを光源とした場合、基本波と第二高調波による二色のイオン化スキームを用いることが望ましい。そこで、2 台のグレーティング型 Ti:Sapphire レーザー（従来型と基本波／倍波切替型）により、Fig. 1 に示す体系を構築した。発振波長を 3 種類の元素（Ca, Sr, Yb）の共鳴イオンスキームに順次合わせ、共鳴イオン化する対象元素を切り替える実験を行った。対象元素の原子化には抵抗加熱原子源を用いた。レーザー照射により得られたイオンを、飛行時間型質量分析計により質量毎に区別して検出した。得られた各元素の共鳴スペクトルを Fig. 2 に示す。これにより、開発した光源の発振モード切り替えが共鳴イオン化に適用できることが確認できた。

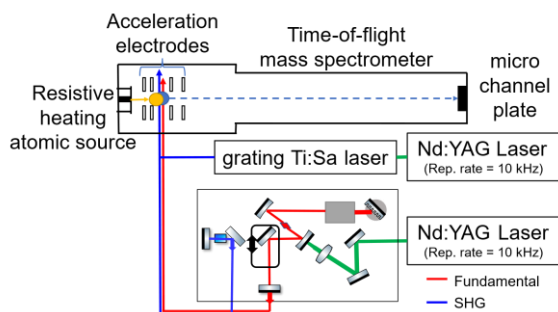


Fig. 1 Experimental setup

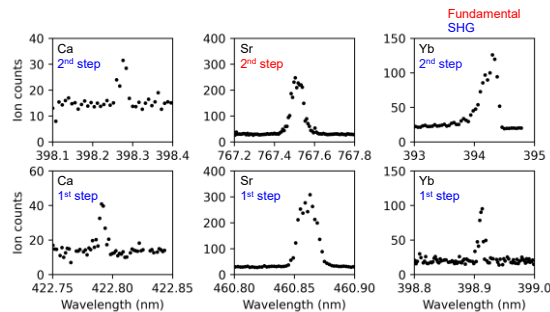


Fig. 2 Resonance spectra of Ca, Sr, and Yb

参考文献

- [1] T. Sakamoto *et al.*, Analytical Science, **34**, 1265–1270 (2018), [doi: 10.2116/analsci.18P249](https://doi.org/10.2116/analsci.18P249)
[2] 三浦ら、応用物理学会 2023 年春季学術講演会、16p-D519-12、(2023).

謝辞 本研究は、JAEA 英知を結集した原子力科学技術・人材育成事業 JPJA21P21465814 の助成を受けたものです。

積分球を用いた中性子検出器ためのリニアリティ評価手法開発

Development of evaluation technique of linearity for neutron detectors using integrating spheres

産総研¹ ○松本 哲郎¹, 丹羽 一樹¹, 増田 明彦¹, 真鍋 征也¹, 原野 英樹¹

AIST¹, [○]Tetsuro Matsumoto¹, Kazuki Niwa¹, Akihiko Masuda¹, Seiya Manabe¹, Hideki Harano¹

E-mail: t-matsumoto@aist.go.jp

ホウ素中性子捕捉療法(BNCT)の現場へ将来的に中性子標準のトレーサビリティを確立することが求められている。現在、BNCT で利用される $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 以上の熱外中性子を測定できる電流モード中性子検出器の開発を行っている。検出器は、 ^6Li ガラスシンチレータと光電子増倍管によって構成され、アノード出力の電流を計測する[1]。一方、トレーサビリティの観点では、BNCT 施設と産総研中性子標準場の両方で適切に測定が可能である必要がある。中性子標準場では、加速器を利用した場合でも中性子フラックスは $10^4 \sim 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ である。したがって、中性子検出器は、中性子フラックスに対して 4 桁から 5 桁の範囲で、リニアリティが確保されている必要がある。中性子検出器のリニアリティについて、中性子を用いて直接測定する方法では、データが離散的なため、正確な評価が難しい。そこで、本研究では、光計測標準で利用される積分球装置を用いて、光電子増倍管のリニアリティ評価を行う。その後 ^6Li ガラスシンチレータを取り付け、中性子標準場における校正を行い、中性子フラックスに対するリニアリティの評価方法を開発した。

図 1 に示すように 2 個の積分球を連結させ、一方に LED 光源、もう一方には光モニターであるフォトダイオードを 3 個取り付け、残る一つのポートに試験対象の光電子増倍管を取り付ける。光源前面には、光量調子のためのスリットを設置、フォトダイオード前面には、直径の異なるアパーチャーを取り付け、相対的に 6 桁の光束をモニターできるようにした。リニアリティ評価実験では、光電子増倍管前面には、 $2 \mu\text{m} \Phi$ 、 $10 \mu\text{m} \Phi$ 、 $50 \mu\text{m} \Phi$ 、 $200 \mu\text{m} \Phi$ 、 $1000 \mu\text{m} \Phi$ のアパーチャーを取り付けた 5 パターンの測定を行い、約 6 桁の出力範囲のリニアリティを測定できるようにした。検出器に用いている光電子増倍管に対して、印加電圧-700 V から-1200 V まで変化させたときのリニアリティを測定した。この装置で、約 6 桁のリニアリティ評価が可能なることを示すことができた。詳細は、当日報告する。

[1] T. Matsumoto et al., Radiat. Prot. Dosim.188 (1), 177-122 (2020).

本研究の一部は、科研費 21H03755 によって行われた。

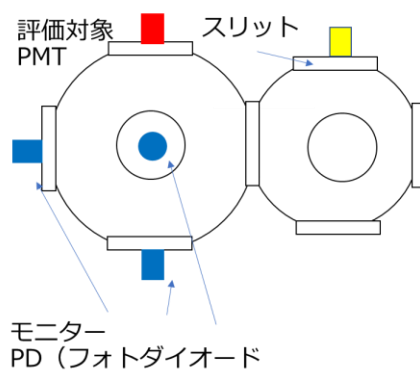


図 1 積分球を用いたリニアリティ評価装置

多孔質ガラスに有機無機ハイブリッド化合物を導入した 複合材料のシンチレーション特性

Scintillation properties of organic-inorganic hybrid compounds in a porous glass

秋田大¹、産総研²、奈良先端大³

○河野 直樹¹, 篠崎 健二², 中内 大介³, 加藤 匠³, 竹淵 優馬³, 柳田 健之³

Akita University¹, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology²,

Nara Institute of Science and Technology³

○Naoki Kawano¹, Kenji Shinozaki², Daisuke Nakauchi³, Takumi Kato³, Yuma Takebuchi³,

Takayuki Yanagida³

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

【緒言】有機無機層状ペロブスカイト型化合物は、量子閉じ込め効果に由来する優れたシンチレーション特性を示すことが知られており、特に $(C_6H_5C_2H_4NH_3)_2PbBr_4$ (Phe) 及び $(C_6H_5C_2H_4NH_3)_2Pb_{0.75}Sr_{0.25}Br_4$ (PheSr) が、発光量 14000 photons/MeV 以上、寿命数ナノ秒程度の優れた高速応答性を示すことが報告されている[1]。当該化合物の高速応答シンチレータへの応用が期待されるが、大きな単結晶の育成が既存の方法では困難である。そこで、本研究では多孔質ガラス中に Phe や PheSr を有する複合材料(Phe-iG、PheSr-iG)を合成し[2]、その放射線応答性を調べた。

【実験方法】有機無機ペロブスカイト化合物(Phe or PheSr) 1 g を ジメチルホルムアミド(DMF)10 g に溶解させた後、参考文献[3]の方法で合成した多孔質ガラスを DMF に混合し、25 °C で 1 時間撹拌した。その後、DMF を 110 °C で蒸発させることで試料を得た。

【実験結果】図 1 にシンチレーションスペクトルを示す。Phe-iG 及び PheSr-iG において、430 nm にピークが観測された。このシンチレーションピークは、無機層の励起子発光に起因する[1, 2]。

図 2 にシンチレーション時間プロファイルを示す。励起子発光由来の蛍光成分(Phe-iG:1.7 ns、PheSr-iG:2.7 ns)が第 1 成分で観測された[2]。本講演では、当該材料の X 線応答性の詳細について述べる。

【参考文献】

1. M. Akatsuka et. al., Nucl. Instrum. Phys. Res. A 954 (2020) 161372.
2. N. Kawano et al., J. Appl. Phys. 127 (2020) 213103.
3. W. Liu et al., J. Non-Cryst. Solids 352 (2006) 2969.

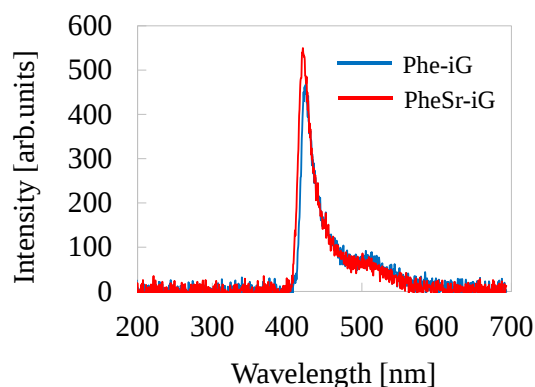


Fig.1 X 線励起時のシンチレーションスペクトル。

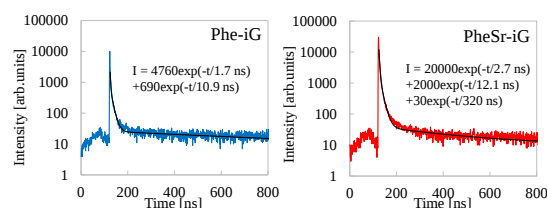


Fig.2 X 線励起時のシンチレーション時間プロファイル。

異なる蛍光体を添加した紫外線硬化プラスチックシンチレータ特性比較
Comparison of Scintillation Properties of UV-cured Plastic Scintillators
with Different Fluorescent Molecules

静岡大¹, 東北大院工² ○(B)林 南瑠¹, 藤本 裕², 浅井 圭介², 越水 正典¹
Shizuoka Univ.¹, Tohoku Univ.², ○Naru Hayashi¹,
Yutaka Fujimoto², Keisuke Asai², Masanori Koshimizu¹
E-mail: hayashi.naru.20@shizuoka.ac.jp

【緒言】プラスチックシンチレータは有機シンチレータの一つであり、安価で成形加工が容易である。特に、光重合を用いれば 3D プリントなどを用いてさらに簡単に造形可能である。しかし、光重合を用いて作製すると熱重合などで作製した場合に比べ発光量が低くなる。我々は、UV 硬化樹脂に含まれる重合阻害剤が消光剤となることを、蛍光体として DPO と POPOP の二種類を用いた試料のうち、重合阻害剤の除去前と除去後の試料の発光量を比較することで明らかにした[1]。本研究では、POPOP とは異なる蛍光体を用いて試料を作製した。また、DPO と POPOP を添加した試料では高濃度で高い発光量を示したことから、最も高い蛍光体濃度において重合阻害剤が発光量に与える影響を調査した。

【実験方法】UV 硬化樹脂である M-211B に含まれる重合阻害剤を NaOH 水溶液での 3 回洗浄と静置を繰り返して除去した。さらに蒸留水で洗浄することで残留する NaOH 水溶液を完全に除去した。M-211B に光重合開始剤である Irgacure TPO を M-211B に対して 0.067 wt% と蛍光体を加えたものを 365 nm の紫外線を照射し硬化させて試料を作製した。DPA は 1.99 wt%、bis-MSB は 1.19 wt%までは析出することなく試料が硬化した。さらに、bis-MSB の一番溶解した濃度と DPO を 21 wt%添加した試料を作製した。試料の波高スペクトル及びシンチレーションスペクトルを測定した。

【結果と考察】Fig. 1 に DPA 濃度 0.99 wt%の試料のシンチレーションスペクトルを示す。除去前、除去後とも、430 nm 付近に DPA に由来するピークを観測した。Table 1 に bis-MSB と DPO を添加した試料と、以前作製した POPOP と DPO を添加した試料[1]の発光量を示す。市販のプラスチックシンチレータである NE142 の発光量は 5200 photons/MeV(ph/MeV)であることから、作製した試料の発光量を、波高スペクトルの光電吸収ピークチャンネルの比較に基づき推算した。POPOP と DPO を添加した試料と比べて、bis-MSB と DPO を添加した試料では、発光量は低く、重合阻害剤の有無と発光量の相関も明確ではなかった。

【参考文献】 [1] 林南瑠ら、2023 年第 70 回応用物理学会春季学術講演会 [17p-PA09-15].

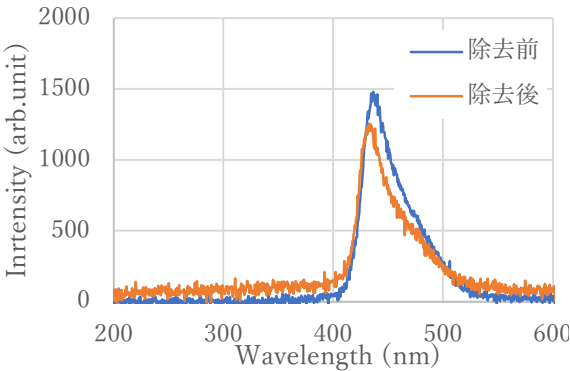


Fig.1 Scintillation spectra of samples with DPA concentration of 0.99 wt%.

Table 1. Comparison of scintillation light yields of plastic scintillators with bis-MSB+DPO or POPOP+DPO.

	除去前 [ph/MeV]	除去後 [ph/MeV]
bis-MSB0.63wt%+DPO21wt%	7400	3900
bis-MSB0.94wt%+DPO21wt%	5900	6500
POPOP 0.34 wt%+DPO 16wt%	4700	7900
POPOP 0.47 wt%+DPO 23wt%	7800	8500

中性子検出用 LiGaO₂ ナノ粒子添加プラスチックシンチレータの開発

Development of LiGaO₂ nanoparticle-loaded plastic scintillators for neutron detection

静岡大¹, 東北大院工² [○](M1)塚原悠久¹, 藤本裕², 浅井圭介², 越水正典¹

Shizuoka Univ.¹, Tohoku Univ.², [○]Haruhisa Tsukahara¹,
Yutaka Fujimoto², Keisuke Asai², Masanori Koshimizu¹
E-mail: tsukahara.haruhisa.19@shizuoka.ac.jp

【緒言】中性子検出器は、核融合実験施設等に設置される中性子モニタや中性子散乱実験装置等に利用されている。従来、中性子検出には ³He 比例計数管や ¹⁰BF₃ 比例計数管などが用いられてきた。しかし、これらは長い不感時間を持つため J-Parc などの大強度中性子源における高計数での測定に適さない。さらには、原料の ³He の枯渇により価格が高騰している。これに伴い、代替となる中性子検出器の開発が急務である。近年、低コストでの大型化が容易であり、かつ短い不感時間を持つプラスチックシンチレータ(PS)はその候補の 1 つである。従来、中性子と核反応を生じて荷電粒子を放出する ¹⁰B や ⁶Li を有機金属化合物としてプラスチック中に溶解し、PS に中性子の検出能を付与してきた。最近では、¹⁰B や ⁶Li を含有するナノ粒子を PS に添加することで、シンチレーションの発生を阻害せず、中性子の検出効率を高める手法が提案されてきた[1]。これまでに我々のグループでは、ポリスチレンをベースとした PS に ⁶Li を濃縮した LiAlO₂ ナノ粒子を添加することで中性子検出用 PS の開発に成功し、その発光量は市販の中性子検出用 PS である ¹⁰B 装荷 PS のものよりも高かった[2]。本研究では、LiAlO₂ と類似する特徴をもつ LiGaO₂ ナノ粒子を PS に添加することで中性子検出能を付与し、新たな中性子検出用 PS の開発を目指した。

【実験方法】LiGaO₂ 粒子の合成では、Li₂CO₃(⁶Li:95 atom%)、Ga(NO₃)₃・nH₂O(99.9%)、クエン酸、およびエチレンジアミン四酢酸(EDTA)を、物質質量比 1:1:2:1.5 で秤量した。最初に、Li₂CO₃ と Ga(NO₃)₃・9H₂O を水に溶解し、70℃で 1 h 攪拌した。クエン酸と EDTA を別々の水溶液とし、アンモニア水を滴下することで、それらの pH を 8.0–9.0 に調整した。調整した溶液を 70℃で 1 h 攪拌した水溶液に滴下した。その後、90℃で 24 h 攪拌後、溶媒を蒸発させ 700℃で焼成を行うことで LiGaO₂ 粒子を得た。PS の合成では、ポリスチレンと有機蛍光体として DPO および POPOP(物質質量比 80:1)をテトラヒドロフランに溶解し、LiGaO₂ 粒子を加え、溶媒を完全に蒸発させて PS を得た。DPO-POPOP を、スチレンモノマーに対し DPO の濃度 10 mol%として加え、LiGaO₂ の添加量をポリスチレンに対して 5–25 wt%とした。

【結果と考察】Fig. 1 に LiGaO₂ ナノ粒子の TEM 像を示す。150 nm ほどの大きさの粒子が観測された。Fig. 2 に ²⁵²Cf から発生した中性子に対する LiGaO₂ 添加 PS の波高スペクトルを示す。各試料ともに 95–130 チャネル付近に全エネルギーピークが見られた。ナノ粒子の添加量増加によるピーク位置の変化は見られなかった。Table 1 に中性子に対する LiGaO₂ ナノ粒子を 5–25 wt%添加 PS の全エネルギーピークと発光量既知である NE-142 のピーク位置との比較をもとに算出した各 PS の発光量を示す。発光量は 1800–2450 photons/neutron であり、市販の ¹⁰B 装荷 PS の発光量 800 photons/neutron および LiAlO₂ ナノ粒子 10 wt%添加 PS の発光量の 1600 photons/neutron より高い発光量を達成した[2]。

【参考文献】
[1] Camille Frangville et al. Mater. Chem. Front. 2019, 3, 1574.
[2] 塚原悠久ら、2023 年第 70 回応用物理学会春季学術講演会[17p-PA09-14].

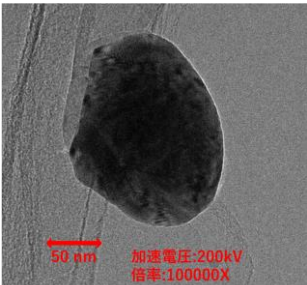


Fig. 1 TEM image of LiGaO₂ nanoparticle.

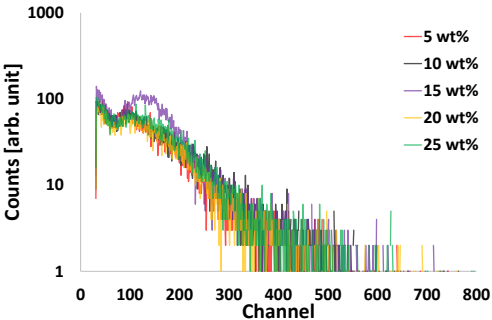


Fig. 2 Pulse-height spectra of plastic scintillators under neutron irradiation.

Table 1 Scintillation light yields for neutrons.

Sample	Peak channel	Light yield [photons/neutron]
5 wt%	95	1800
10 wt%	99	1880
15 wt%	129	2450
20 wt%	104	1970
25 wt%	112	2120

賦活剤添加 Ti_3ZnCl_5 結晶のシンチレーション特性

Scintillation properties of activator -doped Ti_3ZnCl_5 crystals

東北大院工¹ ○(M1)石田 未夢¹, (D)渡邊 晶斗¹, 川本 弘樹¹, 藤本 裕¹, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹ ○Miyu Ishida¹, Akito Watanabe¹, Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹,

Keisuke Asai¹

E-mail: miyu.ishida.q8@dc.tohoku.ac.jp

【背景】X線・γ線用シンチレータには、発光収率や実効原子番号 (Z_{eff}) の高さといった性能の具備が求められる。この要求に応えるべく、注目したのが Ti_3ZnCl_5 結晶^[1]である。当該結晶は、実用化されているシンチレータのうち最も高い Z_{eff} を有する BGO ($Z_{\text{eff}}=75.2$) に匹敵する Z_{eff} ($=74.6$) を有する。しかし、その発光量は要求基準に届いていない。そこで本研究では、発光中心の導入を企図して、当該結晶に Sb^{3+} を添加し、蛍光およびシンチレーション特性を調べた。

【実験方法】純度 99.9%以上の TiCl_3 と CdCl_2 を 1:1 で混合後、 SbCl_3 を ZnCl_2 に対して 0 および 1.0 mol%となるよう添加した。真空中で 250℃, 24 時間脱水したのち、石英製アンプル管中に封入して一方向凝固法で結晶育成を行った。得られた結晶につき、励起・蛍光スペクトル, X線励起ラジオリミネッセンス (XRL) スペクトル, およびγ線照射波高スペクトルを測定した。

【結果と考察】Fig. 1 及び 2 に、励起及び蛍光スペクトルをそれぞれ示す (励起波長: 270 nm, 蛍光波長: 470, 485 nm)。励起スペクトルにおいて、両結晶で 270, 350, および 375 nm 付近に励起ピーク波長が観測された。蛍光スペクトルにおいて、両結晶で 470 nm に発光帯が観測された。この発光帯は、XRL スペクトルの発光帯と符合した。Fig. 3 に ^{137}Cs -γ線照射波高スペクトルを示す。全試料において ^{137}Cs の 662 keV ガンマ線による光電吸収ピークが見られた。比較のため BGO (発光量: 8,600 photons/MeV) の測定結果を併記した。算出した Ti_3ZnCl_5 および $\text{Ti}_3\text{ZnCl}_5\text{:Sb}$ 1.0 mol%結晶の発光量は、それぞれ 3,300, および 3,400 photons/MeV であった。

【参考文献】[1] M. Arai, et al., Opt. Mater. 109, 110455 (2020).

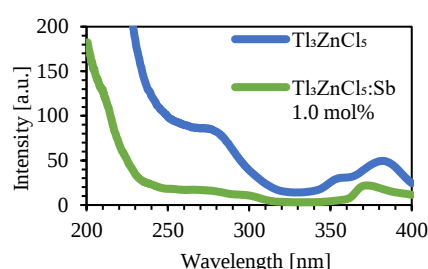


Fig.1 PLE spectra of Ti_3ZnCl_5 and $\text{Ti}_3\text{ZnCl}_5\text{:Sb}$ crystals.

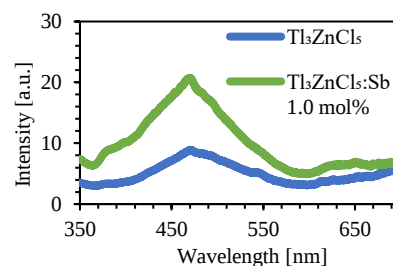


Fig.2 PL spectra of Ti_3ZnCl_5 and $\text{Ti}_3\text{ZnCl}_5\text{:Sb}$ crystals.

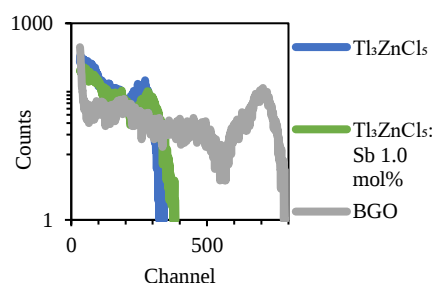


Fig.3 ^{137}Cs -gamma-ray irradiated pulse-height spectra for Ti_3ZnCl_5 , $\text{Ti}_3\text{ZnCl}_5\text{:Sb}$ and BGO crystals.

Ce 添加 $\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-Sr}(\text{PO}_3)_2\text{-CsPO}_3$ ガラスシンチレータの 蛍光及びシンチレーション特性

Photoluminescence and scintillation properties of Ce-doped $\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-Sr}(\text{PO}_3)_2\text{-CsPO}_3$ inorganic
glass scintillators

東北大院工¹, 静岡大² ◯中林優輔¹, 藤本裕¹, 越水正典², 川本弘樹¹, 浅井圭介¹

Tohoku Univ.¹, Shizuoka Univ.², ◯Yusuke Nakabayashi¹, Yutaka Fujimoto¹, Masanori Koshimizu², Hiroki

Kawamoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: yusuke.nakabayashi.s8@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】シンチレータには、主要な性能の一つとして高発光量の具備が求められる。これに応えて現在実用化されたものの多くは無機結晶であるが、大型化し難いといった製造プロセス上の難点を持つ。これを解消しうる材料である無機ガラスは、製造の容易さ、廉価性等の点から大量生産にも適する。しかし、ホストから発光中心へのエネルギー移動効率の低さゆえに、発光量においては無機結晶に劣る。この問題の克服を企図し、我々は $\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-MPO}_3\text{-CeBr}_3$ ($\text{M} = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$) を創製しアルカリ金属の相違によるエネルギー移動効率の差異を調査することにより、リン酸塩ガラスにおいて Cs が最大のエネルギー移動効率を生じるアルカリ金属であると決定した¹⁾。本研究では、アルカリ土類金属含有による発光量向上を企図し、アルカリ土類金属として Sr を含有する $(1.0-x)\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-}x\text{Sr}(\text{PO}_3)_2\text{-}1.5\text{CsPO}_3\text{-}0.3\text{CeBr}_3$ ($x = 0.3, 0.4, 0.5$) を製出し、最適な Sr 含有率を決定することで既報を上回る発光量の実現を試みた。

【実験方法】出発原料として、 $\text{Al}(\text{PO}_3)_3$, $\text{Sr}(\text{PO}_3)_2$, CsH_2PO_4 , 及び CeBr_3 を使用し、真空中での熔融急冷法によりガラスを作製した。これを試料として、X 線励起発光 (XRL) スペクトル、ガンマ線照射パルス波高スペクトルを測定した。さらに、ガンマ線照射パルス波高スペクトル中の各試料の光電吸収ピークの波高値を、Li ガラス (GS20, 4000 photons/MeV) の当該値と比較することで、前者の発光量を推算した。

【結果・考察】Fig. 1 に、作製した各試料の XRL スペクトルを示す。全試料において、340–380 nm 付近に発光中心である Ce^{3+} の 5d–4f 遷移に起因する発光ピークが確認された。Fig. 2 に、各試料のパルス波高スペクトルを示す。 $x=0.4$ において最大発光量 (3200 photons/MeV) が得られ、この発光量は既報の高発光量ガラスの値 (約 2000 photons/MeV) を上回った。

【参考文献】1) 中林優輔, 藤本裕, 越水正典, 浅井圭介, 第 70 回春季応用物理学会 (2023).

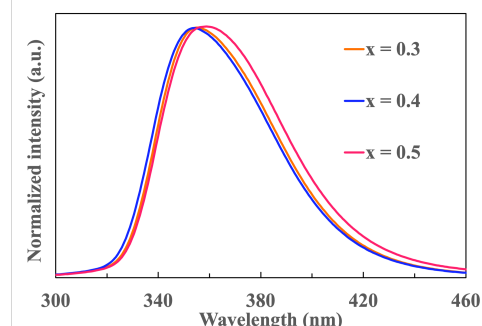


Fig. 1 XRL spectra of the fabricated samples.

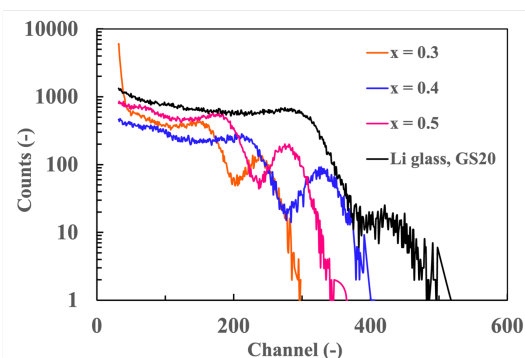


Fig. 2 Pulse-height spectra of the fabricated samples.

非潮解性ヨウ化物 Cs_2ZnI_4 結晶シンチレータの開発

Development of Non-hygroscopic Iodide Crystalline Scintillators: Cs_2ZnI_4

東北大[○](B4)古田 満理奈, (M1)石田 未夢, (D)渡邊 晶斗, 川本 弘樹, 藤本 裕,
浅井 圭介

Tohoku Univ.,[○]Marina Furuta, Miyu Ishida, Akito Watanabe, Hiroki Kawamoto,
Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai

E-mail: furuta.marina.r2@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレータは放射線検出材料であり、X線や γ 線を吸収し、紫外-可視光を発する。優れたシンチレータであるための主たる条件の一つとして、大発光量が挙げられる。この点において優れる代表的な物質がハロゲン化物である。ハロゲン化物では、例えば酸化物と比較すると、バンドギャップの狭小さゆえに、一つの電子正孔対形成に要するエネルギーが小さい。これは、放射線からの付与エネルギーが同じであれば、より多くのシンチレーション光子を生成し得ることを意味する。とは言え、ハロゲン化物シンチレータの多くは、サーベイメータに用いられる NaI:Tl 結晶のように、強い潮解性を示すため、密封処理を必要とする。本研究では、非潮解性ハロゲン化物結晶の開発を企図して、 Cs_2ZnI_4 結晶のシンチレータとしての性能を評価した。

【実験方法】純度99.9%以上の CsI と ZnI_2 を2:1で混合し、真空中150℃で24h脱水したのち、石英アンプル管中に封入して一方向凝固法で結晶成長させた。得られた結晶を研磨して試料とし、粉末X線回折(XRD)パターン、励起波長314nmにおけるフォトルミネッセンス(PL)スペクトル、蛍光波長430nmにおけるPL励起(PLE)スペクトル、及びX線ラジオリミネッセンス(XRL)スペクトルを測定した。

【結果と考察】Fig. 1に、作製した結晶及び参照のXRDデータを示す。 Cs_2ZnI_4 由来のピークのみが観測され、同結晶が Cs_2ZnI_4 であることが確認された。Fig. 2に、同結晶のPLE及びPLスペクトルを示す。励起帯のピークは314nm付近に、蛍光帯のピークは430nm付近にあることが分る。Fig. 3に、同結晶のXRLスペクトルを示す。400nm付近に鋭いピークが見られる。このピーク位置は、PLスペクトルの蛍光波長とほぼ一致する。同発光ピークの由来については、今だ調査中であるものの、上述の結果は、 Cs_2ZnI_4 結晶シンチレータの開発に成功したことを明示する。

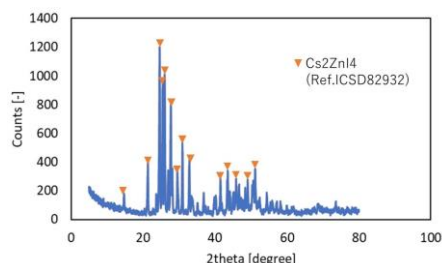


Fig. 1. XRD patterns of the crystal produced.

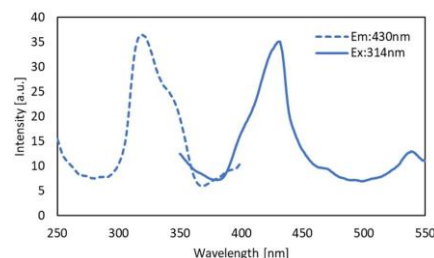


Fig. 2. PLE and PL spectra of Cs_2ZnI_4

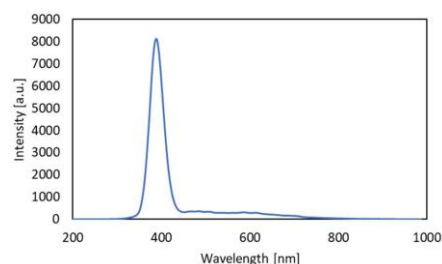


Fig. 3. XRL spectrum of Cs_2ZnI_4

SrFCl:Eu 結晶におけるシンチレーション性能評価

Scintillation Performance Evaluation of SrFCl:Eu Crystals

東北大工, °(B) 中畠 章太郎, 川本 弘樹, 藤本裕, 浅井圭介

Tohoku Univ., °Shotaro Nakahata, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai,

E-mail: keisuke.asai.c8@tohoku.ac.jp

【緒言】シンチレータとは、放射線を受けて吸収したエネルギーを紫外・可視域の光に変換する物質であり、X線及び γ 線等の検出に利用される。主要なシンチレータ材料の1つであるハロゲン化合物には低融点、高発光性といった利点が認められるものの、高潮解性という重大な欠点がある。この克服に繋がるものとして、複合アニオン系ハロゲン化合物における潮解性の抑制が報告¹⁾された。本研究では、低潮解性シンチレータ開発を目的として、1.0mol%の Eu^{2+} 添加を施した混合ハロゲン化合物 SrFCl:Eu のシンチレーション性能評価を行った。

【実験】 SrF_2 と SrCl_2 を等モル量混合し、無添加のもの及び1.0mol%の Eu^{2+} 添加を施した混合物をプレスし、砕いてカーボン坩堝に入れ、真空中 350°C で1日加熱し、一方向凝固法により試料を得た。両試料につき、粉末X線回折(XRD)法を用いて結晶構造を調べ、比較した。また、1.0 mol%の Eu^{2+} 添加結晶につき、X線励起ラジオルミネッセンス(XRL)スペクトルを測定した。

【結果と考察】Fig.1に、無添加及び1.0 mol% Eu^{2+} 添加の両SrFClのXRDパターン、及びSrFCl帰属のデータベースを示す。両結晶がほぼ同じ位置でピークを示し、それらがSrFCl帰属のものとも一致することから、双方ともSrFClであると言える。Fig.2に、SrFCl:EuのXRLスペクトルを示す。同試料の蛍光ピーク波長は400 nmであった。これとは組成を異にするハロゲン化合物に Eu^{2+} を添加したものにおいても同波長の蛍光ピークが観測²⁾されているため、当該蛍光ピークは Eu^{2+} の5d-4f遷移に起因するものと考えられる。

【結言】XRD測定により、作製した結晶がSrFClであることを確認し、XRLスペクトル測定により、 Eu^{2+} に起因する蛍光ピークを波長400 nmに観測した。

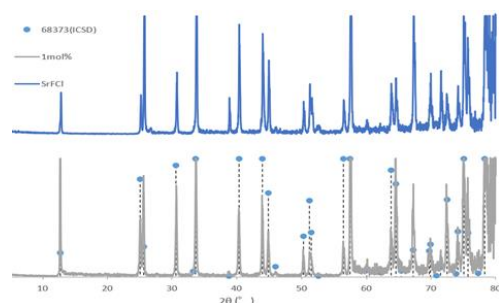


Fig.1. XRD pattern

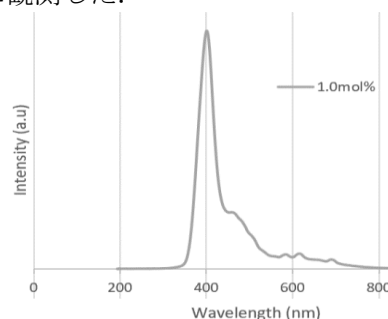


Fig.2. X-ray excited emission spectrum

【参考文献】1) E.D. Bourret-Courchesne et al., J. Cryst. Growth. 352 (2012) 78-83.

2) D.H. Gahane et al., J. Lumin. 130 (2010) 254-257.

Al(PO₃)₃-CsPO₃-TiCl ガラスシンチレータの開発

Development of Al(PO₃)₃-CsPO₃-TiCl glass scintillators

東北大工¹ ○(B)森田 千恵¹, 藤本 裕¹, (M1)長谷川 洸¹, (M2)中林優輔¹, 渡邊 晶斗¹,
川本 弘樹¹, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, °Chie Morita¹, Yutaka Fujimoto¹, Ko Hasegawa¹, Yusuke Nakabayashi¹, Akito
Watanabe¹, Hiroki Kawamoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: morita.chie.r5@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】 シンチレータは、放射線によって蛍光を発する物質であり、医療診断や高エネルギー物理学実験等での放射線検出・計測において多用されている。無機ガラスは、機械的・化学的に安定であり、大量生産に向くため、長らく実用材料として利用されてきた。また、組成に高い自由度を有するため、X線及びγ線検出用として大きな実効原子番号をもつべきシンチレータにも良好な適合性を備える。そこで、本研究では、X線及びγ線検出用ガラスシンチレータの実現を企図し、リン酸塩ガラスにタリウム（原子番号 81）を含有させた X Al(PO₃)₃-1.5CsPO₃-0.3TiCl (X = 1, 0.8, 0.7) ガラスを作製し、その放射線誘起発光性能を評価した。

【実験】 原料である Al(PO₃)₃ (99.999 %), CsH₂PO₄ (99 %), 及び TiCl (99.9 %)を、X : 1.5 : 0.3 の割合で混合し、真空下での熔融急冷法によりガラスを作製した。これらを試料として、紫外線励起発光 (PLE, PL) スペクトル及び ¹³⁷Cs ガンマ線照射パルス波高 (PH) スペクトルを測定した。PH スペクトル中の各試料の光電吸収ピークの波高値を、市販の Li ガラスシンチレータ (GS20, 4000 photons/MeV) の当該値と比較することで、試料の発光量を推算した。

【結果・考察】 Fig. 1 に、X = 0.8 における PL, PLE スペクトルを示す。発光波長 340, 400 nm の双方において、270 nm に励起ピークが観測された。また、励起波長 270 nm において、340 nm 及び 380nm 付近にピークを持つブロードな発光帯が確認された。これらは、発光中心として添加された Tl⁺の 6p-6s 遷移に由来するものと考えられる¹⁾。Fig.2 に、X = 0.8 における ¹³⁷Cs ガンマ線照射 PH スペクトルを示す。上記の方法で推算した試料の発光量は、750 photons/MeV であった。

【参考文献】 1) K. Takahashi et al., Radiat. Meas., **132**, 106260 (2020)

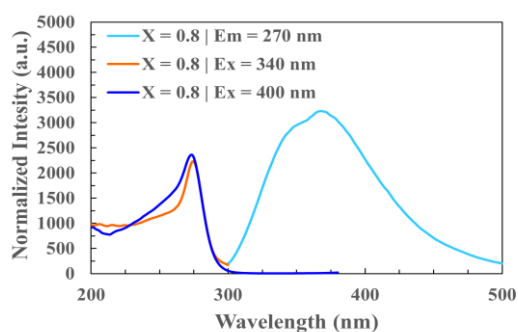


Fig. 1. PLE/PL spectra of the fabricated sample.

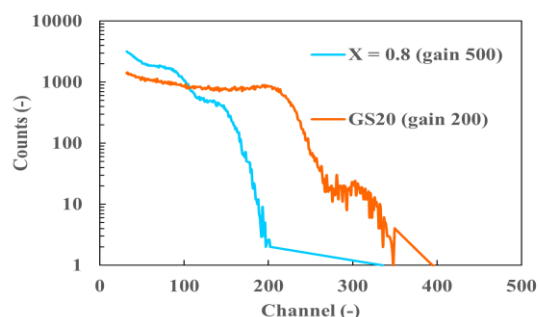


Fig. 2. pulse-height spectra of the fabricated sample.

Ce³⁺添加 Cs₃PrCl₆ 結晶の蛍光及びシンチレーション特性

Photoluminescence and scintillation properties of Ce³⁺-doped Cs₃PrCl₆ crystal

○藤本 裕、川本 弘樹、浅井 圭介 (東北大院工)

○Yutaka Fujimoto, Hiroki Kawamoto, and Keisuke Asai (Tohoku Univ.)

E-mail: yutaka.fujimoto.c3@tohoku.ac.jp

【緒言】 放射線から付与されたエネルギーの一部を紫外-可視光に変換するシンチレータとその光を受光する光センサで構成された放射線計測用の固体検出器は、核医学をはじめ、セキュリティや工業部品検査、資源探査、宇宙機器産業(スペースシャトルや人工衛星)など幅広い分野において活躍している。一般に、シンチレータは、微量の不純物イオンを蛍光中心として導入する外来型と母材料の主要構成イオンや格子欠陥により蛍光を生ずる内在型に分類される。ただ実際には、内在型蛍光を発する母材料に対して不純物イオンを別途添加し、当該イオンの高効率な電子遷移による発光の発現も多数報告されている。これは、母材料により生成された励起状態(電子正孔対)が効率的に添加された不純物イオンにエネルギー移行することに起因する。そこで本研究では、Pr³⁺イオンが主要元素として含み、且つ、Pr³⁺の 5d 励起準位から 4f(³H_J, ³F_J)準位への電子遷移による発光が生じる Cs₃PrCl₆ 結晶^[1]に対して、新たに Ce³⁺イオンを添加することで、母材料と不純物イオンの励起状態間で生じるエネルギー移行過程について調査する。

【結果と考察】 図 1 に Ce³⁺添加及び無添加 Cs₃PrCl₆ 結晶の X 線励起シンチレーションスペクトルを示す。スペクトルより、275-305 nm の紫外域と 400 nm の可視域において発光が観測された。紫外域の発光は、無添加 Cs₃PrCl₆ 結晶にて観測される Pr³⁺の 5d-4f 許容遷移と一致する。一方、紫外域の発光は Ce³⁺を添加した結晶のみに観測されており、別途測定した蛍光/励起スペクトル測定にて観測された発光とも一致しており、Ce³⁺の 5f-4f 許容遷移に起因すると推察される。シンチレーションの場合、母材料の電離により生成された電子正孔対の蛍光中心を介した再結合が観測される発光となるが、当該結晶においては、母材料の Pr³⁺の発光と不純物イオンの Ce³⁺の二つの発光が観測されている。このことから、母材料から Ce³⁺イオンへの何らかのエネルギー移行が生じていることを示唆する。

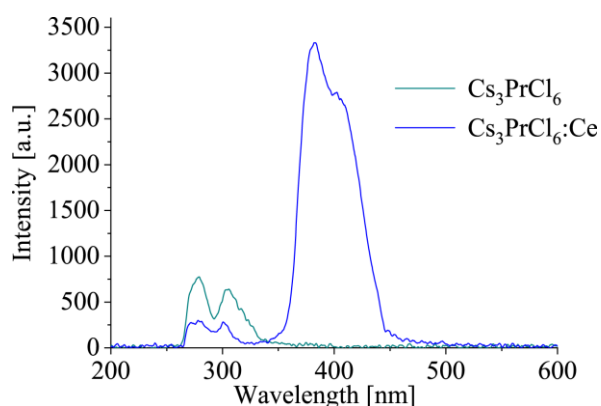


Fig. 1 X-ray excited scintillation spectra of undoped and 1.0 mol% Ce-doped Cs₃PrCl₆ crystals.

参考文献

[1] Yutaka Fujimoto, Daisuke Nakauchi, Takayuki Yanagida, Masanori Koshimizu, and Keisuke Asai, *Sensors and Materials*, 34 (2022) 629-636.

溶媒蒸発法による Sb^{3+} 添加 Cs_2HfCl_6 結晶シンチレータの開発

Development of Sb^{3+} added Cs_2HfCl_6 Crystal Scintillator by using a slow solvent evaporation method

東北大院工, ○佐々木 暖人, 川本 弘樹, 藤本 裕, 浅井 圭介

Tohoku Univ., ○Haruto Sasaki, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, and Keisuke Asai

E-mail: haruto.sasaki.t1@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレーション検出器は、放射線をリアルタイムで検出可能な機器として、セキュリティから医療診断、さらには基礎科学実験等の極めて多岐にわたる分野で利用されている。当該検出器に用いられるシンチレータ結晶製出に主として適用される手法は、融液からの成長であり、高コストという欠点をもつ。これに対し、溶媒蒸発法は、使用装置の簡便性と、低温プロセスゆえの低コストという利点を有する。我々はこの点を活かした新たなシンチレータ用結晶の開発手法の確立を目指している。今回、当該手法の適用対象として選んだのは Cs_2HfCl_6 である。 Cs_2HfCl_6 は、潮解性を示さず、エネルギー分解能の高さと実効電子番号の大なる点 ($Z_{\text{eff}} = 58$) で、シンチレータとしての性能に優れる一方、蛍光寿命の長さに欠点をもつ。これを克服する手立てを模索する中で、電子配置において Cs_2HfCl_6 に類似する Cs_2ZrCl_6 への Sb^{3+} 添加で蛍光の短寿命化に成功したとの報告に注目し、 Cs_2HfCl_6 において同じ効果の発現を企図するに至った。本研究では、溶媒蒸発法によって Sb^{3+} 添加 Cs_2HfCl_6 結晶を作製し、そのシンチレーション特性を調べた。

【実験内容と結果】出発原料としての溶質には、 CsCl (99.999%), HfCl_3 (99.9%), および SbCl_3 (99.9%) を、溶媒には HCl aq (36 wt%) を用いた。これらを混合してスクリー管瓶に移し、温度を 80°C に設定したホットスターラーで加熱・攪拌した。溶質が完全に溶解したところで攪拌を止め、 170°C での加熱で溶媒を蒸発させた。析出した結晶を洗浄したのち、そのシンチレーション性能を評価した。図 1 に、作製した結晶の外観を示す。粉末 XRD 測定により、 Cs_2HfCl_6 結晶の生成を確認するとともに、異相の混入はないものと判断した。また、図 2 に示す波高スペクトルを用いた、発光量既知の GSO との比較から、当該試料の発光量を 9630 ph/MeV と算出した。



図 1 Sb^{3+} 添加 Cs_2HfCl_6 結晶の外観

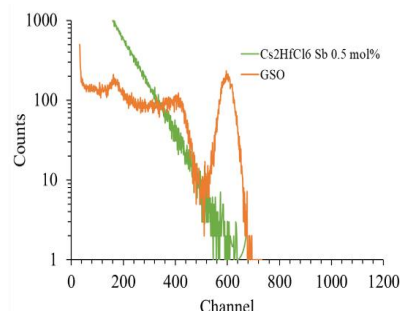


図 2 Sb^{3+} 添加 Cs_2HfCl_6 結晶の波高スペクトル

Cr 添加 GAGG ナノ粒子シンチレータの開発

Development of Cr-doped GAGG nanoparticle scintillators

静岡大¹, 東北大院工² ○(B)天野鈴¹, 藤本裕², 浅井圭介², 越水正典¹

Shizuoka Univ.¹, Tohoku Univ.², ○Rin Amano¹,

Yutaka Fujimoto², Keisuke Asai², Masanori Koshimizu¹

E-mail: amano.rin.19@shizuoka.ac.jp

【緒言】放射線を吸収して可視光へ変換する素子はシンチレータと呼ばれ、セキュリティ、医療、および資源探査などにおいて放射線検出に利用されている。シンチレータは有機および無機に分類される。無機シンチレータは遅いシンチレーション減衰を呈する一方で、高い密度、高い実効原子番号、および高い発光量を持つ。そのため、X線や γ 線の検出に用いられる。さらに、発光中心となる元素を選ぶことでシンチレーション光の波長を変化させることができる。無機結晶シンチレータである GAGG は潮解性を持たず、化学的に安定であるため、生体内部での利用が可能である。本研究では、放射線照射による GAGG の発光を用い、シアノバクテリアに光合成を促すことにより、バイオリアクタを駆動させることを目的とした。生体投与での非侵襲性を実現するためナノ粒子とし、Cr を添加することによりシアノバクテリアの吸収波長である 550~650 nm のシンチレーション光を得ることを目的とした。

【実験方法】0.6 mol/L となるように酒石酸を 25 mL の蒸留水に溶解し、Gd、Al、Ga、および Cr の硝酸塩を物質比(3-x):3:2:x で秤量、添加した。このとき Cr の Gd に対する物質量の割合を 0.1~10 %とし、硝酸塩の総物質量を酒石酸の物質量の 1/2 とした。溶液に蓋をして 24 時間攪拌した後、80℃で攪拌しながら 2 時間加熱した。その後、蓋を外し 80℃で 24 時間加熱して乾燥ゲルとした。これを乳鉢で砕いたものを電気炉で 1300℃で 6 時間焼成し、試料を得た。

【結果】Fig. 1 に各サンプルの XRD パターンを示す。GAGG: Cr³⁺についての報告[1]と比較すると、回折ピークはすべて一致し、異相のピークは観測されなかった。よって、単相の GAGG 結晶が得られたと言える。Fig. 2 に GAGG: 0.03 Cr³⁺の蛍光および励起スペクトルを示す。693 nm に蛍光波長のピークが観測された。これは Cr³⁺の $^4T_2 \rightarrow ^4A_2$ スピン許容遷移に起因する。励起スペクトルは 466 nm および 643 nm にピークを持ち、これはそれぞれ $^4A_2 \rightarrow ^4T_1$ および $^4A_2 \rightarrow ^4T_2$ 許容遷移に起因する。GAGG: Cr³⁺についての報告[1]と比較すると、蛍光波長および励起波長のピークの値はともにおおよそ一致した。

[1] Wu et al., J. Lumin. 244 (2022) 118750.

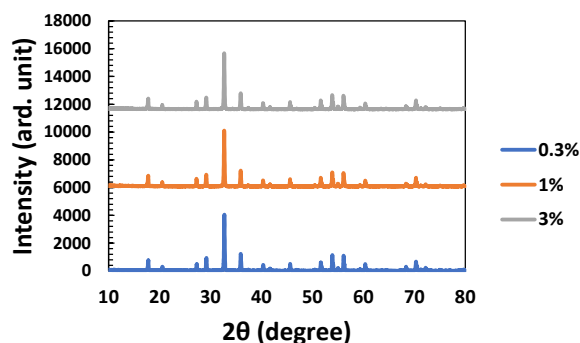


Fig. 1. XRD patterns of GAGG: x Cr³⁺ (x = 0.003, 0.01, 0.03).

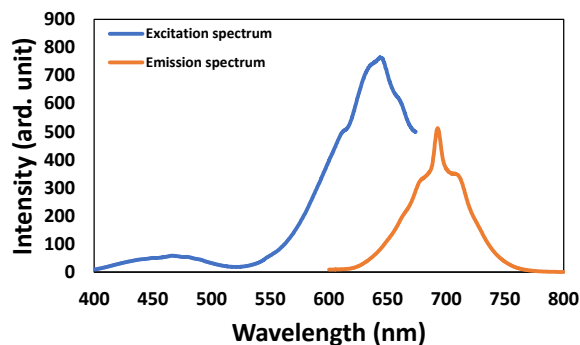


Fig. 2. Excitation and emission spectra of GAGG: 0.03 Cr³⁺ upon 690 nm emission and 450 nm excitation, respectively.

炭素成分増加による BCNO の蛍光・熱蛍光特性の変化

Changes in fluorescence and thermoluminescence properties
of BCNO with increased C composition静岡大¹ ○(B)瀧 晴人¹, (B)平松 祐汰¹, 越水 正典¹Shizuoka Univ.¹, °Haruto Taki¹, Yuta Hiramatsu¹, Masanori Koshimizu¹

E-mail: taki.haruto.20@shizuoka.ac.jp

【緒言】 熱蛍光とは、放射線照射によって物質中に蓄積されたエネルギーが加熱により光として放出される現象であり、線量評価に用いられている。BCNO は、B、C、N、および O から構成される非晶質蛍光体であり、生体組織に近い実効原子番号と高い蛍光量子収率を有するため、人体付近での熱蛍光線量計として利用が期待される。BCNO の炭素成分の原料として添加する PEG の添加量と試料の焼成温度の変化による蛍光波長の変化が報告された[1]。そこで、本研究では、蛍光に関与する電子準位の変化が生じた系において、熱蛍光への寄与にも変化が生じうると考え、炭素成分を増加させた試料の蛍光特性および熱蛍光特性の変化を調査した。

【実験方法】 蒸留水 20 g にホウ素源であるホウ酸および窒素源である尿素をそれぞれ 0.002 mol および 0.020 mol 加え、炭素源である分子量 20000 の PEG をホウ酸に対し 1.0×10^{-3} 、 2.0×10^{-3} 、 4.0×10^{-3} 、あるいは 6.0×10^{-3} (mol/mol) の比率で混合した。この溶液を 40℃で 1 時間攪拌した後、80℃のオイルバスで 3 日間乾燥させ、得られた固体試料をるつぼに入れ 700℃あるいは 800℃で 30 分焼成した。得られた粉末をペレットに成型し、蛍光・励起測定および熱蛍光測定を行った。

【結果・考察】 Fig. 1 に、PEG とホウ酸のモル比が 0.001、0.002、0.004、および 0.006 の試料の蛍光スペクトルを示す。PEG の添加量が増加するに従い、既報と同様に、発光波長が 425 nm から 572 nm までシフトすることが確認された[1]。また、蛍光強度は PEG/H₃BO₃ のモル比が 0.002 で最大となり、その後はモル比の増大に伴って強度が低下した。

Fig. 2 に、PEG とホウ酸のモル比が 0.001、0.002、0.004、および 0.006 の試料の熱蛍光グローブを示す。PEG の添加量の増加に伴い熱蛍光の強度が低下した。また、ピーク温度は全ての試料で 390 K 付近にあり、電子や正孔トラップの捕獲エネルギーに変化が生じていないと推察される。

[1] T. Ogi, et al. Adv. Mater. 20 (2008) 3235-3238.

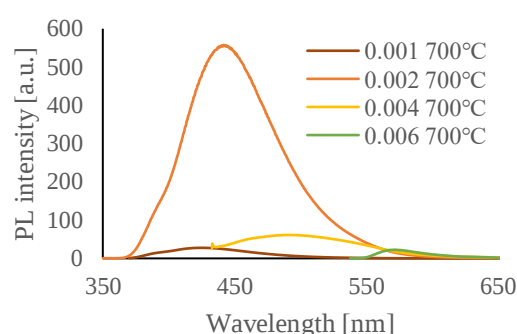


Fig. 1. Emission spectra of BCNO phosphors with PEG/H₃BO₃ molar ratio of 0.001, 0.002, 0.004 and 0.006.

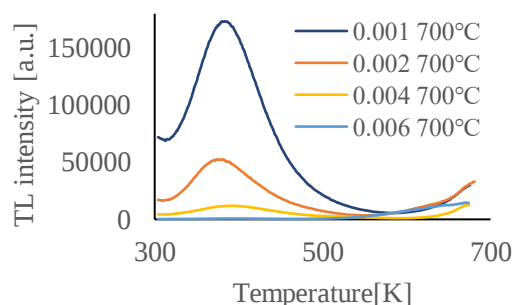


Fig. 2. Thermoluminescence glow curves of BCNO phosphors with PEG/H₃BO₃ molar ratio of 0.001, 0.002, 0.004, and 0.006 after X-ray irradiation to 1 Gy.

RPL 特性を有する不純物添加 CsBr 材料の探索

The Quest for RPL materials based on impurity doped CsBr

金工大, °(B)奥濃 麻夏, 岡田 豪, 南戸 秀仁

KIT, °Mana Okuno, Go Okada, Hidehito Nanto

E-mail: 1008157@planet.kanazawa-it.ac.jp

ラジオフォトルミネッセンス (RPL) とは、放射線を照射すると新たな蛍光中心が物質中に形成される現象をいう。RPL 現象は比較的新しく認知されたものであり、先行研究が少なく、知見の蓄積が必要とされている。そのため、本研究では RPL 特性を持つ新規材料の探索を行うことを目的とした。なかでも Sm を添加した RPL 材料で実績のある CsBr を母体材料とし、異なる不純物をそれぞれ添加した単結晶を育成し、RPL 特性評価を評価した。

本研究では、母体材料を CsBr とした単結晶を垂直ブリッジマン法により育成した。用いた試薬は母体材料として CsBr、不純物として合計 14 種類の異なる塩化物と臭化物を用いた。これら試薬を混合して石英アンプルに移し、真空ポンプで減圧しながらポット型電気炉を用いて 300°C で約 20 時間加熱する事で脱水を行った。その後、真空状態でアンプルを密封し、結晶育成装置で単結晶育成を行った。育成では 900°C で原料を熔融し、約 30 時間かけて 10 mm/h の速度でアンプルを下降させる事により単結晶を得た。得られた結晶は約 2 mm 角の大きさに切断し、TSL/OSL/RPL 自動統合計測装置

(TORAIMS)¹⁾を用いて RPL 特性の評価を行った。

RPL 特性評価では、X 線照射前後の蛍光スペクトルを測定し、比較を行った。蛍光スペクトルの測定では、340 nm のバンドパスフィルタと ND₁₀ フィルタを通した光を励起光とし、400 nm のショートカットフィルタを通った蛍光を測定した。また、1 度の X 線照射は 0.25 Gy とし、合計 4 回に分けて照射し、照射毎の蛍光スペクトルを測定した。

今回、顕著な RPL 特性が認められた Eu 添加試料の詳細な評価結果について報告する。Fig. 1 に 0.1 mol% Eu 添加 CsBr の蛍光スペクトルを示す。X 線照射前では 490, 600 および 700 nm 付近に蛍光ピークが見られた。一方、X 線照射後には 450 および 550 nm を中心とした蛍光ピークが新たに発現した。前者は添加した Eu による影響、後者は母体材料によるものであると考えられる。発表では、さらに濃度依存性等についても報告する。

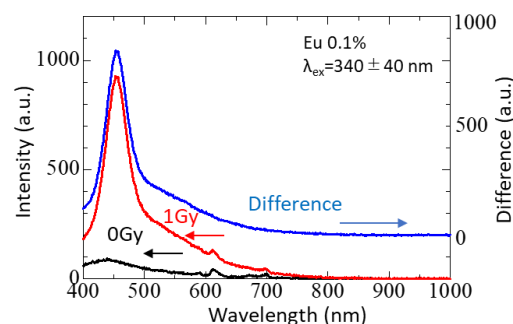


Fig. 1 X 線照射前後の CsBr:Eu (0.1%)
蛍光スペクトルと差スペクトル

参考文献

- 1) G.Okada et al., *Sensor. Mater.*, **33**(6) 2117-2128 (2021)

Eu 添加 $\text{Li}_2\text{BaSiO}_4$ におけるラジオフォトルミネッセンス特性

RPL properties of Eu-doped $\text{Li}_2\text{BaSiO}_4$

金沢工大, °(M1) 竹林 文夫, 岡田 豪, 南戸 秀仁

KIT, °Fumio Takebayashi, Go Okada, Hidehito Nanto

E-mail: c6301491@st.kanazawa-it.ac.jp

被ばく線量計には、しばしば熱蛍光(TSL)、輝尽蛍光(OSL)およびラジオフォトルミネッセンス(RPL)などの蛍光現象が利用される。これら蛍光現象では、照射された放射線量の情報を記録し、その情報を光として読み出すことが可能である。なかでも、TSL や OSL では一度の読み出しによって記録した情報が失われてしまうが、RPL では記録した情報は読み出し後も保持される。そのため、RPL を利用した線量計は複数回読み出しによる精度の高い線量計測が可能である。一方で、TSL や OSL と比較して RPL を示す材料は少なく、RPL には未解明の点が多く存在することから、新規 RPL 材料の探索が強く求められている。我々は既に Eu 添加 $\text{Li}_2\text{CaSiO}_4$ および Eu 添加 $\text{Li}_2\text{SrSiO}_4$ において新たに RPL 現象を発見している[1]。そこで、本研究では新規 RPL 材料探索の一環として、母体材料に Ba を用いた Eu 添加 $\text{Li}_2\text{BaSiO}_4$ における RPL 特性について調査した。

試料の合成は固相反応法を用いた。 Li_2CO_3 、 BaCO_3 、 SiO_2 および Eu_2O_3 (0.1%)を出発原料とし、化学量論比で 20 分間混合した。これらを大気中 700°C で 4 時間焼成した。この焼成物を粉碎・混合した後、再度同条件で焼成して試料を得た。RPL 特性評価には TSL/OSL/RPL 自動統合計測装置(TORAIMS)を用い、X 線照射およびフォトルミネッセンス(PL)スペクトルの測定を行った[2]。

励起波長 340 ± 40 nm における X 線照射前後の PL スペクトルを Fig. 1 に示す。X 線照射前では、590、610 および 700 nm 付近に Eu^{3+} に帰属されるシャープなピークが見られた[3]。一方で、X 線照射後では 515 nm 付近を中心に Eu^{2+} に帰属されるブロードなピークが新たに出現した[4]。これは、X 線照射によって Eu^{2+} が発光中心として新たに形成されたことを意味しており、本材料において新たに RPL 特性が認められた。挿入図は X 線照射前後の試料の発光の様子を示している。この写真からも、X 線照射によって赤色から緑色に発光色が顕著に変化したことが確認された。

参考文献

- [1] Fumio Takebayashi *et al.*, 令和 4 年度生体医歯工学共同研究拠点成果報告会, Tokyo Institute of Technology Suzukakedai Campus, 2023.3.3
- [2] Go Okada *et al.*, *Sensor. Mater.*, **33**(6), 2117–2128, (2021).
- [3] M. Xie *et al.*, *Phys. Status Solidi RRL*, **6**(9-10), 412–414 (2012).
- [4] X. Xhang *et al.*, *Solid State Sci.*, **99**, 106050 (2020).

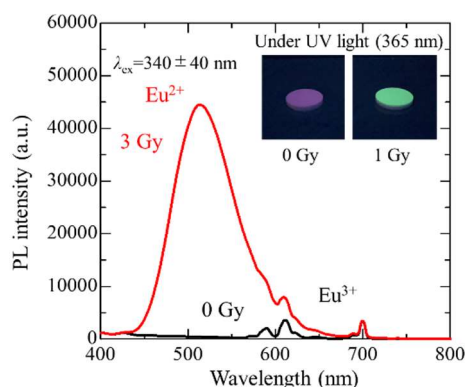


Fig. 1 X 線照射前後の PL スペクトル
挿入図は試料の発光の様子

SrMoO₄ ナノ粒子分散系のシンチレーション検出器への応用検討

Application of SrMoO₄ nanoparticle dispersion to scintillation detectors

東北大院工¹, 静岡大電子研², 東北大 WPI-AIMR³, 水原大学校⁴, 東北大 FRIS⁵ °渡邊 晶斗

¹, 越水正典², 横哲³, 成基明⁴, 筈居高明⁵, 阿尻雅文³, 林大和¹, 藤本裕¹, 浅井圭介¹

Tohoku Univ.¹, Shizuoka Univ.², Tohoku Univ. WPI-AIMR³, Univ. Suwon⁴, Tohoku Univ. FRIS⁵

°Akito Watanabe¹, Masanori Koshimizu², Akira Yoko³, Gimyeong Seong⁴, Takaaki Tomai⁵,

Tadafumi Adschiri³, Yamato Hayashi¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: akito.watanabe.e5@tohoku.ac.jp

有機シンチレータへの金属種装荷方法の探索は、放射線計測学における最重要課題の一つに位置付けられる。その一例として、二重 β 崩壊の候補同位体となる ¹⁰⁰Mo の装荷が挙げられるが、従来の有機金属躯体を用いた系では、安定的な Mo の装荷が達成されておらず¹、代替手法の開拓が必須となっている。そこで我々のグループでは、モリブデン複合酸化物ナノ粒子の分散溶液に着目し、当該分散液の液体シンチレータとしての利用を検討した。以前の研究において、カチオン種の組み合わせを検討することにより、液体シンチレータの溶媒となるトルエンに分散可能なナノ粒子の開発には成功しているものの、修飾剤や出発物質をはじめとした合成プロセスの検討は不十分であり、加えて、シンチレータとしての実効機能についても十分に議論されていない²。そこで本研究においては、現状最も良好な分散性が報告されている SrMoO₄ ナノ粒子を装荷した液体シンチレータの光学特性の調査を行い、その結果に基づいたプロセスの改善を検討することで、発光効率に優れた Mo 装荷液体シンチレータの開発を目指す。

修飾剤として 6 フェニルヘキサン酸 (PHA) およびオレイルアミン (OAm) を選定した。7 ml の精製水に、Sr(NO₃)₂, Na₂MoO₄ を 0.1 M になるよう添加し、0.564 ml の PHA および 0.988 ml の OAm と共に 10 ml ハステロイ管に封入し、亜臨界水熱合成を行うことで、SrMoO₄ ナノ粒子を製出した (反応条件: 300°C, 30 MPa, 15 min)。反応物を、トルエンで回収することにより、ナノ粒子分散液を調製した。得られた分散液を、透過型電子顕微鏡 (TEM)、動的分散乱法 (DLS) を用いて分析した。

図 1 に、合成したナノ粒子の TEM 像を示す。ナノサイズ結晶の形成は確認されたものの、粒子径に関しては 15–60 nm 程度のばらつきが観測された。図 2 に吸収スペクトルおよび分散液の画像を示す。チンダル現象およびレイリー散乱が観測されたことから、トルエンへのナノ粒子の分散に成功したことが分かった。また、可視光領域において光学的に透明であることから、シンチレータの溶媒として機能することが示唆される。図 3 に、DLS で得た、分散液中のナノ粒子の個数平均粒度分布を示す。平均粒子径が 217 nm と算出されたことから、分散液中での二次粒子形成が示唆される。粒子径が数百 nm になると、レイリー散乱の強度増加や、¹⁰⁰Mo 由来の β 線のナノ粒子自身へのエネルギー付与による無放射失活が問題となる。このことから、凝集体の粒子径は、少なくとも数十 nm 程度にまで抑えられることが望ましい。

以上の結果から、シンチレータとして利用可能な SrMoO₄ ナノ粒子分散液の調整には成功しているものの、そのナノ粒子の粒子径や凝集に克服すべき課題があることが示された。

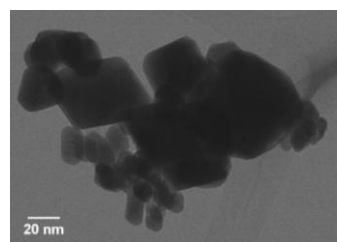


Fig.1 TEM image of SrMoO₄ nanoparticles.

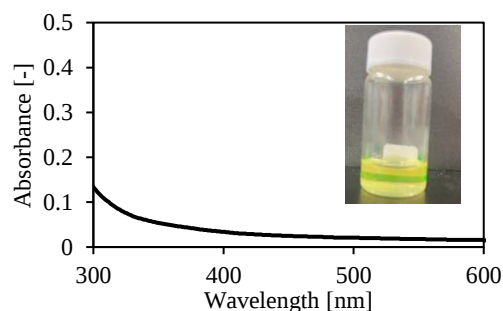


Fig 2. Absorption spectrum (Insert: figure of dispersion).

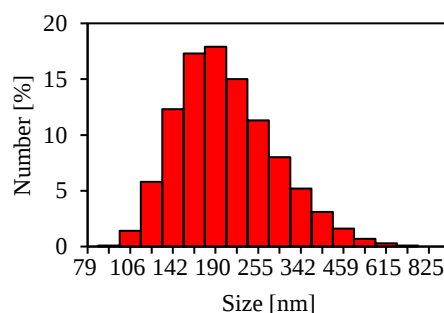


Fig. 3 Number size distribution of nanoparticles.

[1] V.M. Gehman, et al., Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. A, 622, 602 (2010). [2] S. Arai, et al., J. Ceram. Soc. Jpn. 128, 28 (2019).