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

**\overline{\over** 

### [18p-P01-1~43] 2 Ionizing Radiation (Poster)

[18p-P01-1]

The effect of photolysis on TIBr detectors

OShoma Sakawaki<sup>1</sup>, Kosuke Doi<sup>1</sup>, Manato Yaguchi<sup>1</sup>, Toshiyuki Onodera<sup>1</sup>, Taro Nojima<sup>2</sup>, Keitaro Hitomi<sup>3</sup> (1.Tohoku Inst. Tech., 2.Thallous Labo. Co., Ltd., 3.Tohoku Univ.)

[18p-P01-2]

Photoluminescence in CdTe bulk crystals prepared by the liquinert processed vertical Bridgman method using SiCl<sub>4</sub> gas

OTakeshi Hirai<sup>1</sup>, Akira Fujimoto<sup>2</sup>, Yoshiyuki Harada<sup>2</sup>, Hiroyasu Nakata<sup>3</sup>, Shiro Sakuragi<sup>4</sup> (1.Ritsumeikan Univ., 2.Osaka Inst. of Tech., 3.Osaka Kyoiku Univ., 4.Union Materials Inc.)

[18p-P01-3]

Carrier injection position dependence in CdTe radiation detectors spectrum using laser pulses

OTomohide Shoji<sup>1</sup>, Ayaka Sakakibara<sup>1</sup>, Daiki Tomiita<sup>1</sup>, Toru Aoki<sup>1,2</sup>, Tetsu Ito<sup>1,2</sup> (1.Shizuoka Univ., 2.RIE,Shizuoka Univ.)

[18p-P01-4]

Fabrication of pn Junction CdTe Detector by Electron Beam Thermal Diffusion Doping

OYuki Shinmura<sup>1</sup>, Kagemitsu Inaba<sup>2</sup>, Junichi Nishizawa<sup>3,4</sup>, Katsuyuki Takagi<sup>3</sup>, Hiroki Kase<sup>1,3</sup>, Katsumasa Nakamura<sup>4</sup>, Toru Aoki<sup>1,2,3,4</sup> (1.Shizuoka Univ., 2.Shizuoka Univ. G.S.I.S.T., 3.Shizuoka Univ. R.I.E., 4.Hamamatsu Univ. S.M. Nx-CEC)

[18p-P01-5]

Evaluation of TIBr Thin Film Formed by Vacuum Evaporation

O(D)Kohei Toyoda<sup>1,2</sup>, Junichi Nishizawa<sup>1,3,4</sup>, Katsuyuki Takagi<sup>2,3</sup>, Hiroki Kase<sup>3</sup>, Toru Aoki<sup>1,2,3</sup> (1.Shizuoka Univ. CMMP, 2.ANSeeN Inc., 3.Shizuoka Univ. RIE, 4.Hamamatsu Univ.S.M.)

[18p-P01-6]

Development of a Charge Capture Level Evaluation System Using Photo-Excitation and evaluation of CVD diamond single crystals

OMasaki Takahashi<sup>1</sup>, Junichi Kaneko<sup>1</sup>, Kengo Oda<sup>1</sup>, Yuto Akashi<sup>1</sup>, Naohisa Hoshikawa<sup>2</sup>, Hitoshi Umezawa<sup>3</sup> (1.HOKKAIDO Univ., 2.ODD, 3.AIST)

[18p-P01-7]

Neutron Spectrum Measurement of Reactor Start-up Source

ORen Ohwada<sup>1</sup>, Genichiro Wakabayashi<sup>2</sup>, Kazutaka Hanawa<sup>1</sup>, Kota Kiura<sup>1</sup>, Taketo Itani<sup>1</sup>, Yuya Tonosaki<sup>1</sup> (1.Kindai Univ., 2.KUAERI.)

[18p-P01-8]

Study on the Activation of a CLLB(Ce) Scintillation Detector

OKota Kiura<sup>1</sup>, Genichiro Wakabayashi<sup>2</sup>, Ren Owada<sup>1</sup>, Kazutaka Hanawa<sup>1</sup>, Yuya Tonosaki<sup>1</sup>, Taketo Itani<sup>1</sup> (1.Kindai Univ., 2.KUAERI)

[18p-P01-9]

Research on Compact Neutron Sources for the Development of Neutron Imaging Devices

OKeigo Nakiyama<sup>1</sup>, Shinmmura Yuki<sup>1</sup>, Junichi Nishizawa<sup>2,3</sup>, Hiroki Kase<sup>1,2</sup>, Katsuyuki Takagi<sup>2</sup>, Toru Aoki<sup>1,2,3</sup>, Shigeki Tani<sup>3</sup>, Katsumasa Nakamura<sup>3</sup> (1.Shizuoka Univ., 2.Shizuoka Univ R.I.E., 3.Shizuoka Univ S.M. Nx-CEC)

[18p-P01-10]

Determination of light yields of the PEN scintillator for alpha- and beta-particles

O(M1)Yuya Soeta<sup>1</sup>, Takahiro Yamada<sup>1,2</sup> (1.Grad. School of Sci. and Eng. Research, Kindai Univ., 2.AERI Kindai Univ.)

[18p-P01-11]

Observation of α-ray spectra of medical nuclides using an ion-implanted-Si detector

OSeiya Otsuka<sup>1</sup>, Takahiro Yamada<sup>1,2</sup> (1.Kindai Univ., 2.AERI, Kindai Univ.)

[18p-P01-12]

Development of a compact microbeam system

OKyoka Maruta<sup>1</sup>, Kentaro Kojima<sup>1</sup>, Misako Miwa<sup>1</sup>, Sho Toyama<sup>1</sup>, Wataru Kada<sup>1</sup>, Yohei Kikuchi<sup>1</sup>, Shigeo Matsuyama<sup>1</sup> (1.QSE, Tohoku Univ.)

[18p-P01-13]

Development of a microscopic optics designed for ion beam induced luminescence (IBIL) spectroscopic imaging for simultaneous biofunctional and elemental composition

O(M1)Ayumi Nakatsuma<sup>1</sup>, Yuki Ohtsuka<sup>1</sup>, Makoto Nishizawa<sup>1</sup>, Misako Miwa<sup>1</sup>, Sho Toyama<sup>1</sup>, Wataru Kada<sup>1</sup>, Shigeo Matsuyama<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-14]

Trials on real-time measurement of diagnostic X-rays using small Si semiconductor devices.

O(D)Takumi Matsumoto<sup>1</sup>, Yohei Inaba<sup>2</sup>, Shinnosuke Matsumoto<sup>3</sup>, Wataru Kada<sup>1</sup> (1.QSE, Tohoku Univ., 2.Tohoku Univ., 3.Tokyo Metro Univ.)

[18p-P01-15]

Evaluation of fast neutron measurement methods using polyethylene converter and BeO ceramics plates with PHITS

O(M1)Leo Takahashi<sup>1</sup>, Shinnosuke Matsumoto<sup>1</sup>, Hiroki Tanaka<sup>2</sup>, Genichiro Wakabayashi<sup>3</sup>, Mitsuki Kawane<sup>1</sup>, Kiyomitsu Shinsho<sup>1</sup> (1.Tokyo Metropolitan Univ., 2.Kyoto univ., 3.Kindai univ.)

[18p-P01-16]

Pre-heat process and dose-response property of OSL phosphor BeO

OHaduki Samura<sup>1</sup>, Leo Takahashi<sup>1</sup>, Mitsuki Kawane<sup>1</sup>, Go Okada<sup>2</sup>, Kiyomitsu Shinsho<sup>1</sup> (1.Tokyo Metroplitan Univ., 2.Kanazawa Institute of Technology)

[18p-P01-17]

Development and performance evaluation of a 1024-channel 2D MPPC-based PC-CT system for dynamical imaging

O(M1)Minori Oshima<sup>1</sup>, Makoto Arimoto<sup>1</sup>, Takahiro Tomoda<sup>1</sup>, Fitri Lucyana<sup>1</sup>, Yu Furuta<sup>1</sup>, Jun Kataoka<sup>2</sup>, Ryotaro Minagawa<sup>2</sup>, Shinsuke Terazawa<sup>3</sup>, Satoshi Shiota<sup>3</sup> (1.Kanazawa Univ., 2.Waseda Univ., 3.Proterial Ltd.)

[18p-P01-18]

Development of Tl doped Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>–Mg(PO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>–CsPO<sub>3</sub> glass scintillators for  $\gamma$ - and X-ray detection

OChie Morita<sup>1</sup>, Ko Hasegawa<sup>1</sup>, Yusuke Nakabayashi<sup>1</sup>, Akito Watanabe<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku univ.)

[18p-P01-19]

Development of Ce-doped Cs2NaScCl6 elpasolite single crystalline scintillators

OMarina Furuta<sup>1</sup>, Miyu Ishida<sup>1</sup>, Akito Watanabe<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-20]

Revelation of scintillation mechanism in Tl<sub>2</sub>NaScCl<sub>6</sub> crystal

OMiyu Ishida<sup>1</sup>, Akito Watanabe<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-21]

Scintillation properties of undoped and activator-doped CsI single crystals grown by an inverse temperature crystallization

Oltsuki Gonda<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-22]

Development of ZrO<sub>2</sub> nanoparticle dispersion with excellent transparency in the visible light region

O(DC)Akito Watanabe<sup>1</sup>, Akira Yoko<sup>2,3</sup>, Seong Gimyeong<sup>4</sup>, Takaaki Tomai<sup>5</sup>, Masafumi Adschiri<sup>3</sup>, Yamato Hayashi<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>6</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ., 2.Tohoku Univ. SRIS, 3.Tohoku Univ. AIMR, 4.Univ. Suwon, 5.Tohoku Univ. FRIS, 6.Shizuoka Univ.)

[18p-P01-23]

Scintillation Performance Evaluation of BaFCl:Eu Crystals

OTsubasa Tamura<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-24]

Ce-concentration dependence of luminescence properties in Ce-doped  $LiPO_3$ -Al $(PO_3)_3$ -CsPO $_3$  glasses

OKo Hasegawa<sup>1</sup>, Akito Watanabe<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-25]

Development and property evaluation of  ${\rm Sb}^{3+}$ -doped  ${\rm Rb}_2{\rm HfCl}_6$  Crystal Scintillator by using a slow solvent performance method

OHaruto Sasaki<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-26]

Photoluminescence and scintillation properties of CsPO<sub>3</sub>-Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-NdCl<sub>3</sub> based glasses

OYUTAKA FUJIMOTO<sup>1</sup>, YUSUKE NAKABAYASHI<sup>1</sup>, HIROKI KAWAMOTO<sup>1</sup>, KEISUKE ASAI<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-27]

Relationship between the formation phase and luminescence properties of YF<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup> phosphors prepared by the solvothermal method

OTomoki Sadamori<sup>1</sup>, Naruki Yoshimura<sup>1</sup>, Hiroko Kominami<sup>1</sup>, Kazuhiko Hara<sup>1</sup>, Katsuyuki Takagi<sup>1</sup>, Toru Aoki<sup>1</sup> (1.Shizuoka Univ.)

[18p-P01-28]

Investigation of optical properties in silver phosphate glasses for elucidation of the origin of the radiophotoluminescence property in Ag-doped phosphate glasses

OHiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-29]

Radiophotoluminescence during X-ray irradiation on silver-doped Li-Al borate glass

ORyoichi Morishita<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fuzimoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ.)

[18p-P01-30]

Neutron-induced thermoluminescence of Sn<sup>2+</sup>-doped CaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> glasses

OShogo Takatsu<sup>1</sup>, Hiroto Yamaguchi<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>2</sup>, Genichiro Wakabayashi<sup>3</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> (1.Tohoku Univ, 2.Shizuoka Univ, 3.Kindai Univ)

[18p-P01-31]

Evaluation of RPL properties in Bi-doped Li<sub>2</sub>O-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> glass

O(B)Ryota Inomata<sup>1</sup>, Go Okada<sup>1</sup>, Hidehito Nanto<sup>1</sup> (1.KIT)

[18p-P01-32]

Synthesis Conditions of CaO-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Ceramic Systems and RPL Properties

OMiho Aoki<sup>1</sup>, Go Okada<sup>1</sup>, Hidehito Nanto<sup>1</sup> (1.KIT)

#### • English Presentation

[18p-P01-33]

Analysis of Luminescent Characteristics in Silver-Doped Sodium Borate

O(M2)Caroline Fernandes<sup>1,2</sup>, Go Okada<sup>2</sup>, Sonia Tatumi<sup>1</sup>, Rocca Rene<sup>3</sup> (1.Univ. Sao Paulo, 2.KIT, 3.Fed. Univ. Sao Paulo)

[18p-P01-34]

Photoluminescence and thermoluminescence characteristics of Mn-doped BCNO

O(B)Yuto Kameyama<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>1</sup> (1.Shizuoka Univ.)

[18p-P01-35]

Development of organic dosimeters using radiation response of polymer films co-additional of fluorescein and p-benzoquinone

OTomoaki Yashiro<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>1</sup> (1.Shizuoka Univ.)

[18p-P01-36]

Neutron-induced Thermoluminescence Properties of Mg, Pr- codoped LiTaO<sub>3</sub> Ceramics

OYuta Hiramatsu<sup>1</sup>, Genichiro Wakabayashi<sup>2</sup>, Masanori Koshimizu<sup>1</sup> (1.Shizuoka Univ., 2.Kindai Univ.)

#### English Presentation

[18p-P01-37]

【Absence】Effect of Composition on Scintillation Light Yield of Ce-doped Gd<sub>3</sub>Al<sub>5-y</sub>Ga<sub>y</sub>O<sub>12</sub>Nanoparticle Scintillators

OpalithaRuwan Abewardana PinnalandeGedara<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>1</sup> (1.Shizuoka University)

[18p-P01-38]

Control of LET dependence of thermoluminescence properties of doped Ca<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>5</sub>

OMasanori Koshimizu<sup>1</sup>, Hajime Komiya<sup>2</sup>, Yusuke Koba<sup>3</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>2</sup>, Keisuke Asai<sup>2</sup> (1.Shizuoka Univ., 2.Tohoku Univ., 3.QST)

[18p-P01-39]

Development of plastic scintillators to achieve enhanced energy transfer efficiency

O(B)Taiyo Kanenari<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>1</sup> (1.Shizuoka Univ.)

[18p-P01-40]

Development of Organic-Inorganic Hybrid Scintillators Loaded with Different

OKAZUKI ASOU<sup>1</sup>, MASANORI KOSHIMIZU<sup>1</sup> (1.Shizuoka Univ.)

[18p-P01-41]

Luminescence and Scintillation Properties of Red-Emitting Eu-doped TAGG Nanoparticle Scintillators with Different Compositions

O(M1)Yuma Takahashi<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>1</sup> (1.Shizuoka Univ.)

[18p-P01-42]

Development of UV-cured Plastic Scintillators Containing 9-Vinylcarbazole

ONaru Hayashi<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>1</sup> (1.Shizuoka Univ.)

[18p-P01-43]

Development of plastic scintillators loaded with trimethoxyphenylsilane-modified LiGaO<sub>2</sub> nanoparticles for neutron detection

OHaruhisa Tsukahara<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>1</sup> (1.Shizuoka Univ.)

### 光分解反応が TIBr 検出器に与える影響

The effect of photolysis on TlBr detectors

東北工大工<sup>1</sup>, タロスラボ(株)<sup>2</sup>, 東北大工<sup>3</sup> 〇坂脇 翔馬<sup>1</sup>, 土井 浩介<sup>1</sup>, 矢口 愛斗<sup>1</sup>, 小野寺 敏幸<sup>1</sup>, 野島 太郎<sup>2</sup>, 人見 啓太朗<sup>3</sup>

Tohoku Inst. Tech. ¹, Thallous Labo. Co., Ltd.², Tohoku Univ. ³, ○Shoma Sakawaki¹, Kosuke Doi¹, Manato Yaguchi¹, Toshiyuki Onodera¹, Taro Nojima², Keitaro Hitomi³

E-mail: t\_onodera@tohtech.ac.jp

#### 1. はじめに

臭化タリウム(TIBr)は、高い原子番号(TI: 81, Br: 35)と高い密度(7.56 g/cm³)を特徴とする 化合物半導体である。 $\gamma$ 線の吸収効率が高く、エネルギ分解能が優れているため、TIBr は $\gamma$ 線検出器用材料として有望視されている。先行研究では、電極形成時における TIBr 結晶のプラズマ処理において、TIBr 結晶の変色が報告されている[1]。 XPS により、この変色は光分解による TI メタルの生成であると推測された。本研究では、還元剤と光照射を組み合わせ TIBr 結晶への光分解反応を試みることで、光分解が TIBr 検出器の諸特性に与える影響について評価した。

#### 2. 実験方法

図 1 は本実験で使用した金電極付き TIBr 結晶(直径 8.5 mm×厚さ 0.408 mm)から得られた  $^{137}$ Cs エネルギスペクトルである。実験では、研磨により金電極を除去した TIBr 結晶(直径 8.5 mm×厚さ 0.297 mm)に、純水に溶解した L-Yスコルビン酸ナトリウム(濃度 10%)を還元剤として滴下し 10 分間、日光に曝露した。次に、TIBr 結晶を純水で 3 回洗浄乾燥後、結晶両面を導電性のゴム(5 mm×5 mm)で挟み、プレーナ型検出器とした。この検出器に  $^{137}$ Cs からの $\gamma$ 線を照射し、日光曝露後に TIBr 検出器が示すエネルギスペクトルを評価した。その後、さらに 10 分間日光に曝露して同様に評価した。

#### 3. 実験結果

図2は、印加電圧30V、波形整形時間31.5 µs においてTIBr 検出器から得られた <sup>137</sup>Cs エネルギスペクトルである。日光曝露時間が長いほど波高値が減少した。また、日光曝露により TIBr 結晶が明確に黒色化したため、光分解により結晶表面に TI メタルが生成したと考えられる。以上の結果から、TIBr 検出器の電荷輸送特性はTI メタルの生成により低下すると推測される。

[1]野島他, 第84回応用物理学会秋季学術講演会, 91-A307-2(2023)

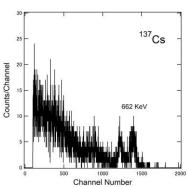


Fig.1. <sup>137</sup>Cs energy spectrum obtained from a TIBr detector with Au electrodes.

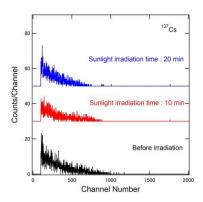


Fig.2. <sup>137</sup>Cs energy spectra obtained from a TlBr detector depending on the time of photolysis

# 四塩化ケイ素ガスを用いた溌液化垂直ブリッジマン法で作製した テルル化カドミウムバルク結晶の発光

Photoluminescence in CdTe bulk crystals

prepared by the liquinert processed vertical Bridgman method using SiCl4 gas

立命館大理工1,大阪工大ナノ材研2,大教大3,ユニオンマテリアル4

<sup>○</sup>平井 豪<sup>1</sup>,藤元 章<sup>2</sup>,原田 義之<sup>2</sup>,中田 博保<sup>3</sup>,櫻木 史郎<sup>4</sup>

Ritsumeikan Univ. <sup>1</sup>, Osaka Inst. of Tech. <sup>2</sup>, Osaka Kyoiku Univ. <sup>3</sup>, Union Materials Inc. <sup>4</sup>, 
<sup>o</sup>Takeshi Hirai<sup>1</sup>, Akira Fujimoto<sup>2</sup>, Yoshiyuki Harada<sup>2</sup>, Hiroyasu Nakata<sup>3</sup>, Shiro Sakuragi<sup>4</sup>
E-mail: t-hirai@se.ritsumei.ac.jp

テルル化カドミウム(CdTe)バルク結晶は、室温で動作する半導体放射線検出器に利用できることから、近年盛んに研究・開発が進められている。我々の研究グループでは、溌液結晶化法を応用することによって、高品質の CdTe バルク結晶を作製することに成功した[1]。 溌液結晶化法とは、原材料・ルツボ・雰囲気中に含まれる水や酸素を、四塩化ケイ素(SiCl4)ガスなどとの反応によって取り除き、原料融液とルツボとの間に溌液状態を実現させた上で、ブリッジマン法などで結晶化を行う方法である。この方法によって、ルツボや雰囲気からの不純物の結晶への混入やルツボと結晶との固着を防ぎ、高品質のバルク結晶を得ることができる。ただし、我々の研究[1]によって、SiCl4ガスから、主に Cl が不純物として CdTe 結晶中に混入することがわかった。さらに、この Cl 不純物は、実際に作製した素子で放射線を検出できるかどうかを決める重要な役割を果たしていることも示唆された。そこで本研究では、SiCl4ガスから CdTe 結晶へ混入する Cl 不純物の影響を明らかにするため、SiCl4ガス圧が 8、58、150 Torr の条件で溌液化垂直ブリッジマン法により作製した CdTe バルク結晶試料について、バンド間励起の発光スペクトルを測定した。

図は、Nd:YAG レーザーの第二高調波(波長532 nm)で励起した3種類の試料の10 K における発光スペクトルである。8 Torr の試料においては、1.59 eV 付近に、いくつかの鋭い束縛励起子発光線が観測される。ガス圧が増えるにつれて、同じく1.59 eV あたりにピークをもつブロードな発光帯が、その幅を拡げながら、顕著に観測されるようになる。講演では、この発光帯の起源も含めて、CdTe 結晶における Cl 不純物の影響について議論する。

[1] R. Sekine et al., Cryst. Growth Des. **19** (2019) 6218.

Excitation source : second harmonic light of Nd: YAG laser (532 nm)

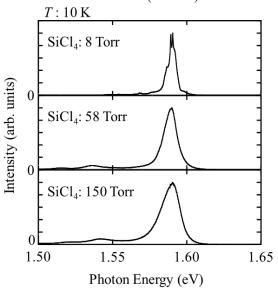


図 CdTe 結晶の発光スペクトル

# レーザーパルスを用いた CdTe 放射線検出器スペクトルのキャリア 注入位置依存性と評価

Carrier injection position dependence

in CdTe radiation detectors spectrum using laser pulses

静岡大院<sup>1</sup>, 静大電研<sup>2</sup> O庄子 朋秀<sup>1</sup>, 榊原 彩花<sup>1</sup>, 冨板 大輝<sup>1</sup>, 青木 徹 <sup>1,2</sup>, 伊藤 哲 <sup>1,2</sup> Shizuoka Univ.<sup>1</sup>, RIE, Shizuoka Univ.<sup>2</sup>,

°Tomohide Shoji<sup>1</sup>, Ayaka Sakakibara<sup>1</sup>, Daiki Tomiita<sup>1</sup>, Toru Aoki<sup>1,2</sup>, Tetsu Ito<sup>1,2</sup> 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。この現象が起きる要因の一つとして結晶内部の深い準位に負の空間電荷が蓄積し、内部電界分布の変化によりキャリア輸送特性が変化すると考えられているが、詳細なメカニズムは未だに議論が続いている。本研究では、ポラリゼーションのメカニズム解明のために半導体中の

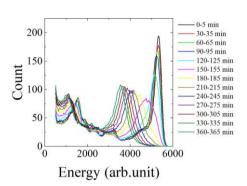
キャリア輸送特性とキャリア生成位置の関係について着目した. 放射線及び放射線に疑似したレーザーパルスを特定の位置に入射し, エネルギースペクトルのキャリア注入位置依存性より CdTe のキャリア輸送特性をキャリア生成位置の観点から評価した.

#### 2. 実験方法

本実験では、キャリア生成源として  $^{241}$ Am の  $\gamma$  線源と  $\gamma$  線に疑似したレーザーパルス(パワー:10.3 nW, 波長:850 nm, 周期:500 Hz)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生成位置を定めることが可能となった. 検出器はショットキー型 CdTe で厚さ 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 100 V を印加し、印加後 6 時間のエネルギースペクトルと立ち上がり時間の経時変化を測定した.

#### 実験結果

Fig.1 に γ線, Fig.2 にレーザーパルスを中央(z = 0.25 mm)照射した際のエネルギースペクトル経時変変化, Fig.3 に γ線とレーザーパルスのスペクトルから得られるピーク中心位置の経時変化を示す. γ線, レーザーともに, 光電ピークのカウント数の低下及びピーク位置の低エネルギー側へのシフトが観測された. これは, 深い準位への負の空間電荷の蓄積による内部電界分布変化に伴う空乏層幅の減少及び電界低下による再結合する正孔の増加に起因すると考察した. 講演ではキャリア注入位置依存性及びピーク高さ, 半値全幅, 平均立ち上がり時間の経時変化も示し, CdTe 検出器のキャリア輸送特性変化を議論する.



400 30-35 min 60-65 min 300 90-95 min 120-125 mir Count 150-155 mir 180-185 min 200 210-215 min 270-275 min 100 300-305 min 330-335 min 360-365 mir 6000

Energy (arb.unit)

Fig.3 Energy spectrum with laser pulse

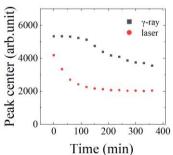


Fig.2 Peak center over elapsed time with γ-ray and laser pulse

### 電子ビーム熱拡散ドーピングによる pn 接合型 CdTe 検出器の作製

Fabrication of pn Junction CdTe Detector by Electron Beam Thermal Diffusion Doping

静岡大情 <sup>1</sup>, 静岡大院総合科学技術 <sup>2</sup>, 静岡大電子研 <sup>3</sup>, 浜松医大 Nx-CEC<sup>4</sup>

<sup>O</sup>新村勇葵 <sup>1</sup>, 稲葉影光 <sup>2</sup>, 西澤潤一 <sup>3,4</sup>, 都木克之 <sup>3</sup>, 加瀬裕貴 <sup>1,3</sup>, 中村和正 <sup>4</sup>, 青木徹 <sup>1,2,3,4</sup>

Shizuoka Univ <sup>1</sup>, Shizuoka Univ. G.S.I.S.T. <sup>2</sup>,

Shizuoka Univ. R.I.E.<sup>3</sup>, Hamamatsu Univ. S.M. Nx-CEC<sup>4</sup>

Yuki Shinmura<sup>1</sup>, Kagemitsu Inaba<sup>2</sup>, Junichi Nishizawa<sup>3,4</sup>, Katsuyuki Takagi<sup>3</sup>,

Hiroki Kase<sup>1,3</sup>, Nakamura Katsumasa<sup>4</sup>, Toru Aoki<sup>1,2,3</sup>

E-mail: shimmura.yuki.21@shizuoka.ac.jp

#### はじめに

半導体としての CdTe は放射線検出器として用いた際、高エネルギーへの感度を持ち、常温で動作可能などの利点を持っている.一方、欠点として Si や Ge と比べると電荷収集効率が低いことが挙げられ、十分に電荷を収集するためには高電圧を印加する必要がある.高電圧印加に伴いリーク電流の抑制、損傷耐性や耐熱性を確保する必要があり、これらを満たすには pn 接合によるダイオード化が望ましい.ドーピング方法としては、すでにショックウェーブと熱を利用したレーザードーピングを報告している.この方法ではドーパントと結晶界面に直接照射が行えるが、レーザーが局所的に当たるため、拡散のコントロールが難しく、結晶両面へのドーピングも困難である.そこで、本研究では電子ビームを用いた熱拡散ドーピングによる pn 接合型 CdTe 検出器の作製を目指した.

#### 実験方法と評価

今回実験を行うにあたり、厚さ 0.75 mm, 3 mm 角の Acrorad 社製の CdTe 結晶を使い、 片面には In, もう一方の面には Au を蒸着することで、In/CdTe/Au の構造を持つサンプル を作製した. サンプルに対し、EBAS(Electron Beam Assist Source)装置で発生させた電子ビ ームを用いて熱拡散ドーピングを行った. ドーパントは In とし、pn 接合型のダイオードを 形成した. また、ファラデーカップの導入により、電子ビームの電流値を測定し、照射電子

量や分布を明らかにした.以上のようにして作成したサンプルに対し、ホール効果、電流電圧特性、γスペクトル特性それぞれ評価を行った. Fig1 で実験結果であるEBA と Acrorad 製ショットキー接合型検出器の比較を示す. Acrorad 製ショットキー接合型検出器と比べ,低エネルギー側にカウントが増えているが、エネルギーのピーク位置はほぼ一致していた.

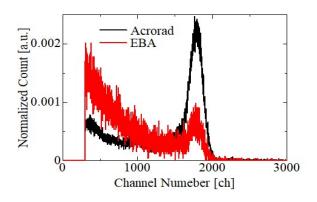


Fig1: shows result of  $\gamma$  spectrum measurement of <sup>241</sup>Am.

### 真空蒸着法で形成した TIBr 多結晶膜の評価

Evaluation of TlBr Thin Film Formed by Vacuum Evaporation 静岡大光医工 <sup>1</sup>, 株式会社 ANSeeN <sup>2</sup>, 静岡大電子研 <sup>3</sup>, 浜松医大 Nx-CEC <sup>4</sup> <sup>(D)</sup> 豊田 耕平 <sup>1,2</sup>, 西澤 潤一 <sup>1,3,4</sup>, 都木 克之 <sup>2,3</sup>, 加瀬 裕貴 <sup>3</sup>, 青木 徹 <sup>1,2,3</sup> Shizuoka Univ. C.M.M.P. <sup>1</sup>, ANSeeN Inc. <sup>2</sup>, Shizuoka Univ. R.I.E. <sup>3</sup>, Hamamatsu Univ.S.M. <sup>3</sup> <sup>°</sup>Kohei Toyoda <sup>1,2</sup>, Junichi Nishizawa <sup>1,3,4</sup>, Katsuyuki Takagi <sup>2,3</sup>, Hiroki Kase <sup>3</sup>, Toru Aoki <sup>1,2,3</sup>

E-mail: toyoda.kohei.22@shizuoka.ac.jp

### 背景

臭化タリウム (TIBr) は 2.68eV のバンドギャップを持つ半導体材料である。TIBr は大きな原子番号 (81, 35) と高い密度 (7.56g/cm³) を持つため、X線・ $\gamma$ 線に対して高い吸収効率を示す。これらの優れた物性から、TIBr は室温動作半導体検出器に適した材料として研究が進められている。

TIBr は沸点が低く、真空雰囲気にて抵抗加熱によって容易に揮発させることができるため、真空蒸着による薄膜の形成が可能である。真空蒸着法による成膜は、大面積を必要とする X 線 FPD (Flat Panel Detector)の製造に適している可能性がある[1]。

本研究では、真空蒸着法による TIBr 薄膜を放射線検出器として実装するために、蒸着条件を変化させたときの結晶粒径と表面性状、電気的特性および X 線検出特性の差異を評価した。

#### 実験方法および結果

真空蒸着装置を用いて、 $10\text{mm} \times 10\text{mm}$  (厚さ 0.65mm)の Si 基板に、マスクを用いて  $6\text{mm} \times 6\text{mm}$  の領域に TIBr 薄膜を形成した。成膜後、走査電子顕微鏡を用いて二次電子像および電子線後方散 乱回折法(EBSD)による逆極点図(IPF マップ) を測定した(図 1)。この結果から、真空蒸着法で形成された TIBr 薄膜は結晶粒径が  $2-5\mu$  m 程度の多結晶状態と考えられる。電気的特性および X 線 検出特性については当日議論する。

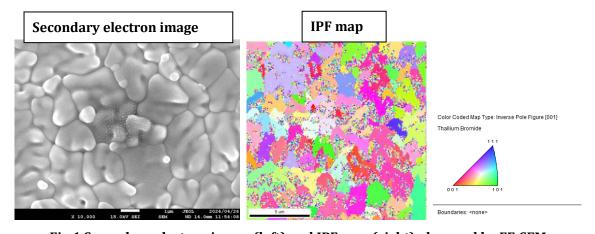


Fig.1 Secondary electron image (left) and IPF map (right) observed by FE-SEM

[1] M. Hamdan, et.al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 1064 (2024): 169372.

# 光励起法をもちいた電荷捕獲準位評価装置の開発と CVD ダイヤモンド単結晶に対する評価の試み

Development of a Charge Capture Level Evaluation System Using Photo-Excitation and evaluation of CVD diamond single crystals

北大院 $\mathbf{L}^1$ 大熊ダイヤモンドデバイス株式会社 $^2$  産総研 $^3$  高橋 正樹 $^1$ , 金子 純 $\mathbf{L}^1$ , 織田 堅吾 $^1$ ,

明石 悠宇斗1, 星川 尚久2, 梅沢 仁3

Hokkaido Univ.<sup>1</sup>, OOKUMA DIAMOND DEVICE Co., Ltd.<sup>2</sup>,AIST.<sup>3</sup>, Takahashi Masaki<sup>1</sup>, Kaneko Junich H.<sup>1</sup>, Oda Kengo<sup>1</sup>,

Akashi Yuto<sup>1</sup>, Hoshikawa Naohisa<sup>2</sup>, Umezawa Hitoshi<sup>3</sup> E-mail: masaki1212@eis.hokudai.ac.jp

#### 1. はじめに

半導体検出器の結晶中に存在する電荷捕獲準位は電荷収集効率を低下させチャージアップの原因となる。特に高線量率場や高温動作といった過酷環境で動作させるダイヤモンド放射線検出器にとって電荷捕獲準位の低減は極めて重要になる。

今回、電子、正孔それぞれに対する電荷捕獲準位を評価するため、 $\alpha$ 線、光励起を組み合わせ I-V 測定法に基づく電荷捕獲準位測定装置を試作した。初期的な実験として、化学気相合成(CVD) 法により育成したダイヤモンド単結晶に対する評価を行った結果について報告する。

#### 2. 測定原理と装置

ピークチャンネルの印可電圧依存性を事前に測定し、電荷収集効率:70%付近の印可電圧で $\alpha$ 線照射を行い、一部の電荷を検出器内に故意に捕獲させた。その後、電荷収集効率:100%となる電圧を印可したうえで、波長 1800nm(0.69eV)~250nm(4.96eV)の範囲で単色光照射を行い、電流を測定した。評価に使用したダイヤモンドは北海道大学で合成した単結晶CVD ダイヤモンドである。5.486MeV  $\alpha$ 線はダイヤモンド表面から  $14\,\mu$  m 付近で停止する。検出器の出力信号は電荷キャリアの走行距離に比例して出力されることから、印可電圧の極性を切り替えることで電子、正孔それぞれに対する捕獲準位を

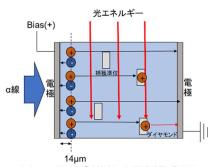


図1. 光照射漏れ電流模式図

評価することが可能となる。-30℃付近まで評価試料を冷却し測定した。漏れ電流測定はケースレー237 ソースメジャーユニットを使用した。測定した電流に対して高速フーリエ変換を行い、光励起による電荷開放による電流を評価した。

#### 3. 実験結果と考察

図 2 に示すように正孔に対して 1.7eV 付近から光励起電流が計測されピークを形成した。比較のため光照射の直前に $\alpha$ 線照射を繰り返す測定を行った場合、1.7eV より高いエネルギーの励起光では概ね一定の漏れ電流が得られたことから、1.7eV より高い励起光ではこの捕獲準位にとらえられた正孔を解放できることを確認した。一方、印可電圧の極性を反転させ電子に対する捕獲準位の評価を行ったところ、ほとんど漏れ電流は発生しなかった。以上の結果には良い再現性があった。

当初エネルギー準位として、伝導帯から 1.7eV に準位を作る窒素を考えた。電荷キャリアは正孔であり、逆バイアスをかけた場合、捕獲準位とおもわれるピークは計測されな

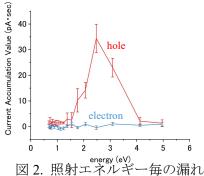


図 2. 照射エネルギー毎の漏れ 電流時間積分値

かったことから表面近傍で電子が捕獲された影響ではないとの結論に至った。

今後、励起波長を細かく分割し測定を行うとともに、他のダイヤモンド試料に対する評価を行い、測定方法の信びょう性の確認を進める。

# 原子炉起動用中性子源のスペクトル測定に関する研究 Neutron Spectrum Measurement of Reactor Start-up Source

近大院総理工<sup>1</sup>, 近大原研<sup>2</sup> <sup>○</sup>(M2)大和田蓮<sup>1</sup>, 若林源一郎<sup>2</sup>, (M2)塙和鷹<sup>1</sup>, (M2)木浦滉太<sup>1</sup>, (M1) 井谷豪人<sup>1</sup>, (M1) 外崎裕也<sup>1</sup>

Kindai Univ.<sup>1</sup>, KUAERI.<sup>2</sup>, °Ren Ohwada<sup>1</sup>, Genichiro Wakabayashi<sup>2</sup>, Kazutaka Hanawa<sup>1</sup>, Kota Kiura<sup>1</sup>, Taketo Itani<sup>1</sup>, Yuya Tonosaki<sup>1</sup>

E-mail: 2333340416t@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、この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放射化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 ング法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

放射化箔の代わりに CsI シンチレータを用いると、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。

本研究では、中性子源と円柱型 CsI シンチレータ( $\phi$ 2.54×2.54 cm³)までの距離を 15 cm とし、その間に厚さの異なるパラフィンブロック(密度  $0.82 \text{ g/cm}^3$ )を設置することで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 <sup>134m</sup>Cs 飽和放射能とした。高エネルギー領域において減速体系の違いによる応答関数の変化が小さい結果となった。減速材にポリエチレンを用いるなど他の減速体系についても検討を進めるとともに、実際に放射化実験を行って最終的に中性子源のエネルギースペクトルを求める予定である。

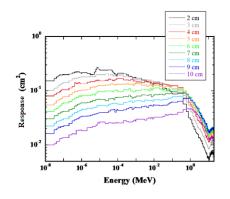


Fig.1. Response function of neutron irradiation with varying thickness of paraffin moderators

# CLLB(Ce)シンチレーション検出器の放射化に関する研究

Study on the Activation of a CLLB(Ce) Scintillation Detector 近大院総理工 <sup>1</sup>, 近大原研 <sup>2</sup> °(M2)木浦滉太 <sup>1</sup>, 若林源一郎 <sup>2</sup>, (M2)大和田蓮 <sup>1</sup>, (M2)塙和鷹 <sup>1</sup>, (M1)外崎裕也 <sup>1</sup>, (M1)井谷豪人 <sup>1</sup>

Kindai Univ. <sup>1</sup>, KUAERI. <sup>2</sup>, °Kota Kiura<sup>1</sup>, Genichiro Wakabayashi<sup>2</sup>, Ren Owada<sup>1</sup>, Kazutaka Hanawa<sup>1</sup>, Yuya Tonosaki<sup>1</sup>, Taketo Itani<sup>1</sup>

E-mail: 2333340461u@kindai.ac.jp

#### 【背景】

近年、放射線治療の発展や核セキュリティの強化によって、中性子測定の需要が高まっている。既存の中性子検出器には、<sup>3</sup>He 検出器や BF<sub>3</sub> 検出器が挙げられるが、これらの検出器は使用できる環境が限られつつあり、CLLB(Ce)シンチレーション検出器のような新たな中性子検出器の開発が進められている。

CLLB(Ce)シンチレーション検出器は <sup>6</sup>Li(n, α)<sup>3</sup>H 反応と n-γ波形弁別により熱中性子測定を行う。しかし、熱中性子による放射化の標的となる Cs, Br, La が含まれることから、放射化反応が測定に影響を及ぼす可能性がある。一方、これらの放射化反応を利用することにより、CLLB(Ce)シンチレーション検出器を放射化検出器として利用できる可能性もある。本研究では、熱中性子照射により CLLB(Ce)シンチレーション検出器中に生成する核種について評価を行った。

#### 【方法】

実験では、近畿大学原子炉起動用中性子源 (Pu-Be、 $1.4\times10^6$  n/s) を利用した。CLLB(Ce) シンチレーション検出器 ( $\phi$ 5.08 cm×5.08 cm) と中性子源の間に、減速材として厚さ 5 cm のパラフィンブロックを設置して 2 時間照射した。その後、放射化したシンチレータからの出力を多重波高分析器を用いて測定し、波高

分布を得た。また、粒子重イオン輸送計算コード PHITS を用いた計算によって放射化生成 核種を推定し、実験データと比較した。

#### 【結果】

Fig.1 に中性子照射終了後 35 分から 10 分間 の測定で得られた波高分布を示す。200 keV 以下に 3 つのピークが見られるが、これらのピークはそのエネルギーと半減期より、放射化反応で生成された <sup>134m</sup>Cs、<sup>80m</sup>Br、及びシンチレータに含まれる <sup>138</sup>La によるものであると考えられる。また、PHITS による計算の結果からは、照射終了後 30 分で生成割合の高い順に <sup>80</sup>Br、<sup>134m</sup>Cs、<sup>80m</sup>Br、<sup>82</sup>Br の生成が予測された。これらの結果から、CLLB(Ce)シンチレーション検出器においては、照射後に放射化の影響が長時間残ることがわかった。今後は、放射化により生成された <sup>134m</sup>Cs を利用し、放射化法による熱中性子束測定の可能性を検討する。

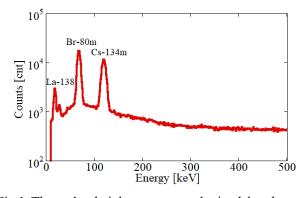


Fig.1 The pulse height spectrum obtained by the activation of a CLLB(Ce) scintillator.

## 中性子イメージング装置の開発に向けた小型中性子源に関する研究

Research on Compact Neutron Sources for the Development of Neutron Imaging Devices 静岡大情 <sup>1</sup>,静岡大電子研 <sup>2</sup>,浜松医大 Nx-CEC <sup>3</sup>

<sup>○</sup>南金山 圭吾<sup>1</sup>, 新村 勇奏<sup>1</sup>, 西澤 潤一<sup>2,3</sup>, 加瀬 裕貴<sup>1,2</sup>, 都木 克之<sup>2</sup>, 谷 重喜<sup>3</sup>, 中村 和正<sup>3</sup>, 青木 徹<sup>1,2,3</sup>

Shizuoka Univ.<sup>1</sup>, Shizuoka Univ. R.I.E.<sup>2</sup>, Hamamatsu Univ.S.M. Nx-CEC<sup>3</sup> 
<sup>°</sup>Keigo Nakiyama<sup>1</sup>, Yuki Shinmura<sup>1</sup>, Junichi Nishizawa<sup>2,3</sup>, Hiroki Kase<sup>2</sup>, Katsuyuki Takagi<sup>2</sup>, 
Shigeki Tani<sup>3</sup>, Katsumasa Nakamura<sup>3</sup>, Toru Aoki<sup>1,2,3</sup>

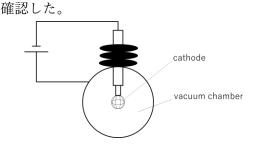
E-mail: nakiyama.keigo.21@shizuoka.ac.jp

#### はじめに

中性子は、物質内の核外電子との相互作用により減衰される X 線や  $\gamma$  線とは異なり、物質を構成する元素の原子核と相互作用を起こして減衰されるため、水素や炭素等の軽元素によって散乱、吸収される。また、X 線や  $\gamma$  線に比べ高い透過性を持つため、鉄や鉛等の重金属を透過する。これらの特徴より、中性子イメージングは中性子ラジオグラフィとして非破壊検査の分野において研究が進められている。一方で、中性子イメージング装置には中性子源として、大型の加速器や原子炉を用いる必要があり、設備が大規模になることから実用化が難しいという課題がある。そこで本研究では、中性子イメージング装置の実用化に向けた小型中性子発生源を実現することを目的とする。

#### 実験方法及び結果

本研究では小型中性子発生源を利用することに焦点を置くため、直径 250mm の真空チャンバー、直径 40mm の陰極を使用した。利用した真空チャンバーの模式図を Fig1 に示す。はじめに予備実験として、真空度 1Torr の真空チャンバー内に水素ガス 4sccm を流入させ、電力 80W(0.8kV、100mA)を印加し、陰極の中心部に集中して水素プラズマを発生させた。分光器を用いて電磁波スペクトルを測定することにより水素プラズマの発生を確認した。測定した発光スペクトルを Fig2 に示す。次に、真空度 1Torr の真空チャンバー内に重水素ガス 4sccm を流入させ、電力 100W(1.0kV、100mA)を印加することで重水素のプラズマを発生させた。発生させた重水素原子により DD 反応を利用することにより中性子を発生させた。また、真空度の変化により中性子の線量率がどのように変化するかを



20000 H \alpha (n=3)

20000 H \beta (n=4)

200 400 600 800

Wavelength[nm]

Fig1: schematic diagram of vacuum chamber Fig2: Emission spectrum of hydrogen plasma

### ポリエチレンナフタレートシンチレータにおける

## $\alpha/\beta$ 線に対する発光量測定

Determination of light yields of the PEN scintillator for alpha- and beta-particles 近畿大·院総理工¹,近畿大·原子力研² ○(M1)添田 悠也¹,山田 崇裕¹²

Grad. School of Sci. and Eng. Research, Kindai Univ. <sup>1</sup>, AERI Kindai Univ. <sup>2</sup>, 
<sup>°</sup>Yuya Soeta <sup>1</sup>, Takahiro Yamada <sup>1,2</sup>

E-mail: tyamada@kindai.ac.jp

#### 1. はじめに

有機シンチレータの一つであるプラスチックシンチレータは広く  $\alpha/\beta$  線の測定に利用されている。一方、比電離の大きい  $\alpha$  線は  $\beta$  線と比較し付与エネルギーに対する発光量が低下する電離クエンチングを引き起こす。その結果、 $\alpha/\beta$  核種混在下での測定では、 $\alpha/\beta$  スペクトルは相互に重畳し、単純な波高弁別での  $\alpha/\beta$  線の分離は困難となる。この重畳の程度は  $\alpha$  線及び  $\beta$  線に対する発光量の相対比に依存する。本研究では、シンチレータとして用いることが出来ることが報告されているポリエチレンナフタレート(PEN)における  $\alpha/\beta$  線に対する発光量の実測を試みた。

#### 2. 実験方法

本研究では、 $^{241}$ Am( $E_{\alpha}$  $\simeq$ 5.48 MeV)及び  $^{32}$ P( $E_{\beta}$  $\simeq$ 1.71 MeV)を用いた。厚さ  $50~\mu m \times 2$  枚の薄膜 PEN シートで線源を挟み、光電子増倍管(R7899,浜松ホトニクス)と組み合わせることで  $4\pi$  立体角での測定を可能にし、 $\alpha/\beta$  線の実測スペクトルをそれぞれ得た。また、PHITS(Ver.3.330)  $^{11}$ 0を用いて実験と同様の線源—検出器計算モデルを構築し、2 核種のエネルギー付与スペクトルを 得た。得られた実測及び計算スペクトルの比較によって  $\alpha$  線の  $\beta$  線に対する発光効率の相対比  $\alpha/\beta$  を求めた。

#### 3. 結果及び考察

図 1(a)に、 $\alpha$ 線の実測及び計算スペクトル比較を示す。計算で得られる値はエネルギーbin 毎の計数率、実測で得られる値は Channel あたりの計数率を示す。いずれも線源放射能 100 Bq 相当に規格化した。Fig.1 (a)の測定、計算による各 $\alpha$ スペクトルのピーク中心を得て、その比として 100 CH/MeV の関係を得た。同様に、Fig.1 (b)に $\beta$ 線の実測及び計算スペクトルの比較を示す。両スペクトルは<100 keV の領域を除き、指数関数に適合し、測定、計算それぞれのスペクトルから得られる Count-rates/CH、及び Count-rates/MeV の比から $\beta$ 線に対して 1188 CH/MeV の関係を得た。これらにより $\alpha$ 4%に対して 1188 CH/MeV の関係を得た。これらにより $\alpha$ 5%に対して  $\alpha$ 6%に対して  $\alpha$ 7%に対して  $\alpha$ 7%に対して

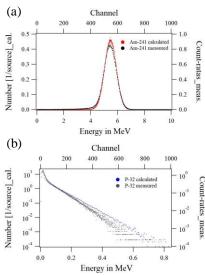


Fig.1. Measured and calculated spectra obtained by (a) <sup>241</sup>Am and (b) <sup>32</sup>P sources

はこれより 17% 低い値を示した。両者を比較すると用いた PEN 密度が異なった。また、本実験の場合、PEN から漏洩した  $\beta$ 線の散乱の影響も見込まれ、今後のさらなる検討が望まれた。

#### 参考文献

- 1) T. Sato, et al., Recent improvements of the Particle and Heavy Ion Transport code System PHITS version 3.33, J. Nucl. Sci. Technol. 61, 127-135 (2024)
- 2) Nakamura Hidehito et.al: Nuclear Instruments and Method in Physics Research A 739 (2014) 6-9

### イオン注入 Si 検出器を用いた医用核種 α線スペクトル測定

Observation of  $\alpha$ -ray spectra of medical nuclides using an ion-implanted-Si detector 近畿大学大学院総合理工研究科  $^1$ , 近畿大学原子力研究所  $^2$   $^{\circ}$  (M1) 大塚 聖也  $^1$ , 山田 崇裕  $^{1,2}$ 

Graduate School of Science and Engineering Research, Kindai Univ. 1, AERI, Kindai Univ. 1,2,

°Seiya Otsuka<sup>1</sup>, Takahiro Yamada<sup>1,2</sup>

**E-mail:** 2433340420p@kindai.ac.jp

#### 【目的】

近年短寿命  $\alpha$  核種が医療に利用されている。将来の医療応用が期待される核種も含め、これらは多数の  $\alpha/\beta$  子孫核種を含む特徴があり、このことは放射能測定に種々の困難をもたらす。 $\alpha$  核種の放射能測定に有力な手段として、Si 荷電粒子検出器を用いた定位立体角法がある。本研究ではこの手法の医用  $\alpha$  核種の放射能測定への適用に向け、 $\alpha$  線スペクトルの測定を行った。

#### 【方法】

本研究では、 $^{223}$ Ra 及び  $^{225}$ Ac の 0.1 N-HCl 溶液を用いた。各溶液約 30 mg 及び Ludox  $10^4$  倍希釈液(分散材)10 mg をプラスチック板に滴下、乾燥させ固体線源とした。測定には有効面積 50 mm²の Si 検出器 (Model BU-011-050-300, EG&G ORTEC 社) 及び Alpha spectrometer (Model 7401, Canberra 社)を用いた。線源—検出器間距離 d=45 mm、真空チャンバ内の圧力<40 Pa とした。

#### 【結果・考察】

得られた  $\alpha$  線スペクトルを Fig.1 に示す。エネルギー分解能は約 30 keV であり、 $^{223}$ Ra、 $^{225}$ Ac のそれぞれの線源について子孫  $\alpha$  核種を含む 4 つの  $\alpha$  核種が観測された。 $^{223}$ Ra 線源では  $^{223}$ Ra 及び  $^{215}$ Po は単純な波高弁別でピーク計数が得られるものの、エネルギーが隣接する  $^{211}$ Bi 及び  $^{219}$ Rn はピークが相互に重畳した。さらに、 $^{223}$ Ra のピーク計数が他の子孫核種に比べ 17 %以上低下した。そのため、測定後に線源を取り除き BG 測定を行ったところ、子孫核種である  $^{211}$ Bi が検出された。このことから子孫核種  $^{219}$ Rn の線源部からの散逸が測定に影響していることが示唆された。  $^{225}$ Ac は、 $^{213}$ Po を除く 3 核種に由来する  $\alpha$  線ピークが相互に重畳した。そこで、重畳する  $^{217}$ At 及び  $^{213}$ Po の  $\alpha$  線ピークについて、

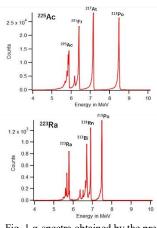


Fig. 1 α-spectra obtained by the present measurements using a Si-detector

ガウス関数適合による分離解析を試みた。その結果、単純な波高弁別のみによる場合、 $^{213}$ Po のピーク計数は $^{217}$ At に対し $^{+2.4}$ %高かったが、関数適合で補正した場合、差は $^{+0.01}$ %と改善された。

#### 【結論】

 $^{223}$ Ra 及び  $^{225}$ Ac の高分解能  $\alpha$  線スペクトル測定を試み、定位立体角法による核種個別の放射能測定について検討をした。本実験の結果では、多くの  $\alpha$  線ピークについて重畳が見られた。しかしながら、重畳の程度は限定的であり、 $^{217}$ At 及び  $^{213}$ Po については関数適合による分離により核種個別にピーク計数が得られた。同様の手法を他の重畳ピークにも応用することで、高精度で個別の放射能測定が可能となることが見込まれた。ただし、 $^{223}$ Ra については  $^{219}$ Rn の反跳による線源部からの逸脱が測定に大きく影響することが示唆された。 $^{223}$ Ra の放射能測定に定位立体角法を適用するには、 $^{219}$ Rn 保持のための措置が必要であると考えられる。

### コンパクトマイクロビームシステムの開発

Development of a compact microbeam system 東北大量子 <sup>1</sup>

O(M2) **丸田 京華**<sup>1</sup>, 小島 健太郎<sup>1</sup>, 三輪 美沙子<sup>1</sup>, 遠山 翔<sup>1</sup> 加田 渉<sup>1</sup>, 菊池 洋平<sup>1</sup>, 松山 成男<sup>1</sup>

Department of Quantum Science and Energy Engineering, Tohoku University <sup>1</sup>,

°Kyoka Maruta<sup>1</sup>, Kentaro Kojima<sup>1</sup>, Misako Miwa<sup>1</sup>, Sho Toyama<sup>1</sup>

Wataru Kada<sup>1</sup>, Yohei Kikuchi<sup>1</sup>, Shigeo Matsuyama<sup>1</sup>

E-mail: kyoka.maruta.s6@dc.tohoku.ac.jp

高エネルギーマイクロイオンビームは、様々なイオンビーム分析技術と組み合わせることにより、元素組成、表面状態、化学状態などをミクロ領域で高空間分解能での分析ができ、幅広い領域で利用されている。東北大学ではマイクロビームライン MBI / MBII-AQUA が開発され、様々な応用が進められるとともに、他施設でのマイクロビーム利用を拡大するためにモジュール化、自動化がすすめられ、研究機関や民間企業で利用されるようになった[1][2]。しかし、MBII-AQUAは全長が7mであり、既存の汎用小型加速器実験施設に設置するには長すぎることが課題である。そこで、ビームライン全長を3~4m程度に小型化できれば、既存加速器施設にマイクロビームラインを増設することが容易になると考え、MBII-AQUAをベースに、その性能を損なうことなくより短いビームラインである MBII-AQUA-Shortの設計・開発を行った。設計に際してビームライン全長やスリット・四重極レンズなどの各種コンポーネントの位置をシミュレーションによって検討した。その結果、3~4mのビームラインでもビーム径 1μm が達成できることが示されたため、これをもとに東北大学高速中性子実験室のダイナミトロン加速器施設に新たに全長約4.5mのビームラインを設置した。

本発表では、設計・開発した MBII-AQUA-Short の概要、および MBII-AQUA-Short を用いてラザフォード後方散乱分光(RBS)や粒子線励起 X 線分析(PIXE)、弾性反跳粒子検出分析(ERDA)による多元素同時イメージング分析を行った結果について紹介する。

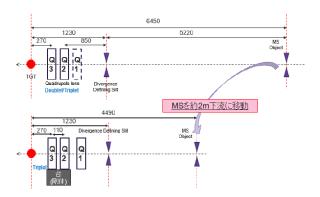


図 1. MBII-AQUA(上)と MBII-AQUA-Short(下)の構成

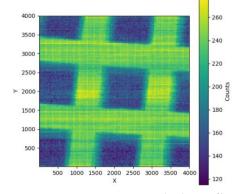


図 2. Ni メッシュの二次電子画像 (スキャン範囲 50 ×50 μm²)

#### 参考文献

- [1] S. Matsuyama, M. Miwa, S. Toyama, T. Kamiya, Y. Ishii, T. Satoh, Nucl. Instr. and Meth. B, 539(2023) pp. 79-88
- [2] S, Matsuyama, Int. J. PIXE, 25 (3&4) (2015), pp.153-185

# 生体機能・微量元素同時分析を目的とした イオンビーム誘起発光(IBIL)分光イメージングを実現させるための 顕微光学系の開発

Development of a microscopic optics designed for ion beam induced luminescence (IBIL) spectroscopic imaging for simultaneous biofunctional and elemental composition analysis

東北大量子 O(MC)中妻 愛友美<sup>1</sup>, 西澤 諒<sup>1</sup>,

三輪 美沙子¹, 遠山 翔¹,加田 涉¹, 松山 成男¹

QSE, Tohoku Univ. <sup>1</sup> °(MC)Ayumi Nakatsuma<sup>1</sup>, Yuki Ohtsuka<sup>1</sup>, Makoto Nishizawa<sup>1</sup>, Misako Miwa<sup>1</sup>, Sho Toyama<sup>1</sup>, Wataru Kada<sup>1</sup>, and Shigeo Matsuyama<sup>1</sup> E-mail: nakatsuma.ayumi.s7@dc.tohoku.ac.jp

【研究背景】MeV 級のイオンビームを用いた分析(Ion beam analysis: IBA)のうち、粒子線励起 X線(Particle Induced X-ray Emission: PIXE)分析法は極めて高感度な元素組成分析として、環境/農業/医療分野で応用されている。PIXEに併用可能な分析法として、イオンビーム誘起発光(Ion beam induced luminescence: IBIL) / 蛍光(Ion beam induced fluorescence: IBIF)分析法が存在する[1]。可 視光領域近傍の数 eV 程度に対応する IBIL 蛍光から得られる情報は多様であり、対象試料の化学形態や生化学と相関がある[1-3]。しかしながら、分析法に用いる IBIL 検出器の開発は途上であり、微弱発光である IBIL の分光スペクトルや、集束イオンビームと併用した IBIL イメージング技術に対応する検出器や分光体系が未整備である。このため、生体を含めた照射影響が顕著な試料からの化学形態や生化学情報の取得が実現してこなかった。

本研究では、IBIL/IBIF の高感度化を可能とするため、専用の光学系の改良と高感度分光器の開発を行った。先行研究の単一の光ファイバを用いた光学系に対して、バンドルファイバを用いた光学系[4]、さらにはビーム収束点と光学系の焦点を共有した光学系を新たに設計することで、イオンマイクロプローブに最適な IBIL/IBIF 分析体系の確立を目指した。

【手法と結果】東北大学 4.5MV Dynamitron 加速器のマイクロビームラインにおいて、顕微光学系による IBIL/IBIF 分析システムを構築した。先行研究において単一の両凸レンズであった光学系を改良し、サンプル近傍での実効的な開口数(Numerical Aperture: N.A.)を大型化した。本研究での分光光学系の集束イオンビーム照射体系への組込を図1に示す。本光学系は、光検出器(PMTアレイならびに MPPC アレイ)に接続され、ビーム照射時に発生した IBIL/IBIF 信号を高感度に計測可能とした。発表では、測定された分光スペクトル、顕微イメージング結果について発表する。

【謝辞】本研究の一部は科研費 (Nos. JP26706025, JP20H04450)の補助を受けて実施された。 参考文献

- [1] K.G. Malmqvist, et al., Nuclr. Instr. and Met. Sec. B, 109–110, (1996), 227-233.
- [2] W. Kada et al., Nuclr. Instr. and Met. Sec. B, 406/A, (2017), 124-129,.
- [3] W. Kada et al., Nuclr. Instr. and Met. Sec. B, 318/A (2014), 42-46.
- [4] M. Nishizawa et al., Nuclr. Instr. and Met. Sec. B(submitted).

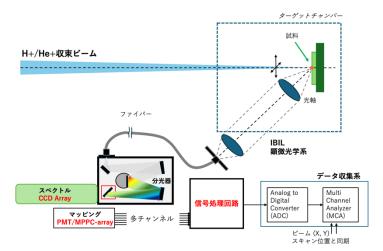


図 1 イオンビーム誘起発光 (Ion beam induced luminescence: IBIL) ならびに 蛍光 (Ion beam induced fluorescence: IBIF) 顕微光学系と接続される光検出器の概念図

### 小型 Si 半導体素子を用いた診断用 X線のリアルタイム計測の試み

Trials on real-time measurement of diagnostic X-rays using small Si semiconductor devices.

東北大量子¹, 東北大医², 東京都立大³

○(D)松本 卓己¹, 稲葉 洋平², 松本 真之介³,加田 渉¹

放射線画像を用いながら非侵襲的に行う治療法である画像下治療(Interventional Radiology: IVR) 技術は年々その需要が高まっている。一方で、放射線を間欠的に照射しながらの治療行為を行う手技においての線量計測や防護方法は、手技に取り組む医療従事者と治療対象の患者双方に課題が残っている。患者の一部では、IVR 処置後の放射線関連組織損傷が一部の医療行為において報告されている[1,2]。このような組織損傷を避け、治療診断の品質保証・品質管理(QA/QC)の向上、リアルタイムでの問題箇所の把握には、手技中に患者に照射される医療放射線をリアルタイムでの放射線モニタリングが求められている。これらの課題に対して、シンチレータや積算線量計、さらには CCD やフォトダイオード、太陽電池セルなどの半導体を用いたリアルタイム放射線計測システムが提案されている[3,4]。しかしながら、多くのセンサは構造的に方向依存性が生じやすい形状であり、その線量計測において方向依存性を生じさせる要因が存在した。

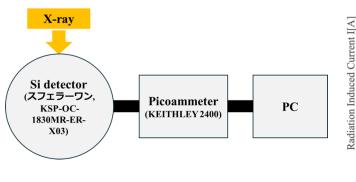
そこで、本研究では、重粒子線治療分野において線量計測に利用された[5]実績のある全方位検知の球状(スフェラー)放射線センサー素子(スフェラーワン、スフェラーパワー(株)、KSP-OC-1830MR-ER-X03)を用いた線量計測装置を構築した。半導体素子である球状センサー素子を微小電流計(Keithley 2400)に接続し、東北大学医学部にて X 線画像診断装置(島津製作所、RADspeed fit)を使用して直接照射実験を行った。照射体系の概形を図1に示す。図2には90kV、160 mAの X 線について簡便にその時間応答を評価した例を示す。おおよそ画像診断装置の出力パルス長(1000 msec)にしたがって読み取り電流が測定された。今後、角度依存性やエネルギー依存性を評価することで、本線量計が各種画像診断手技中の患者被ばく線量測定において有用であるか評価が可能となると考えられる。

#### 【謝辞】

本研究の一部は、科研費(JP22H03013)の助成を受けて実施された。

#### 参考文献

- [1] K. Chida, et al., Am. J. Roentgenol. 183, (2004) 1111–1114.
- [2] K. Chida, et al., Am. J. Roentgenol. 189 (2007) W224–W227.
- [3] Y. Inaba et al., Sensors. 20(9)(2020) 2741.
- [4] E. Damulira et al., Sensors 19(10)(2019) 2226.
- [5] S. Matsumoto et al., Anticancer Research, 43 (5)(2023) 2259-2264.



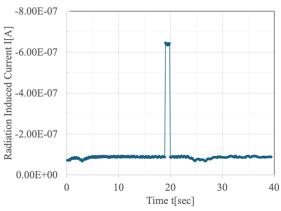


図1. 球状放射線センサ素子を用いた測定体系

図 2. 診断 X 線照射時の過渡電流時間応答の例

# PHITS によるポリエチレンコンバータと BeO セラミックス板を用いた 高速中性子測定法の検討

Evaluation of fast neutron measurement methods using polyethylene converter and BeO ceramics plates with PHITS

都立大1, 京都大2, 近畿大3

O(M1) 高橋 玲央 <sup>1</sup>,松本 真之介 <sup>1</sup>,田中 浩基 <sup>2</sup>,若林 源一郎 <sup>3</sup>,川根 充貴 <sup>1</sup>,眞正 浄光 <sup>1</sup>
Tokyo Metropolitan Univ. <sup>1</sup>, Kyoto univ. <sup>2</sup>, Kindai univ. <sup>3</sup>

°Leo Takahashi¹, Shinnosuke Matsumoto¹, Hiroki Tanaka², Genichiro Wakabayashi³,

Mitsuki Kawane<sup>1</sup>, Kiyomitsu Shinsho<sup>1</sup>

E-mail: shinsho@tmu.ac.jp

#### [諸言]

加速器ホウ素中性子補足療法(BNCT)では、ブリスタリングによるターゲットの劣化や減速材の 劣化を評価するため、熱・熱外・高速中性子を弁別して測定する必要がある。現在、この加速器 BNCT の QA では、Au 箔や In 箔の放射化法を用いた点での中性子評価が行われているが、更なる QA 精度向上のために分布での中性子測定法の検討が求められている。

今回用いる BeO セラミックス TLD は、中性子線の影響を補正することなく中性子場でのγ線量 測定が可能な線量計である <sup>1)</sup>。また、陽子線に対する線量応答性も良好 <sup>2)</sup>であり、分布測定にも応 用可能である。そこで、BeO セラミックス前面に高密度ポリエチレン(HDPE)コンバータを設置し、 高速中性子との弾性散乱で生じた反跳陽子の測定により、高速中性子測定を行う手法を検討した。 [方法]

放射線輸送計算コード PHITS<sup>3)</sup>を用いたシミュレーションを行った。面積 10 cm×10 cm、厚さ 0.07 cm の BeO セラミックス前面に、同面積の HDPE コンバータを設置した。中性子線源は単色 エネルギーの円状面線源とした。中性子エネルギーは  $0.025 \, \mathrm{eV} - 28 \, \mathrm{MeV}$ 、コンバータ厚は  $0.1 \, \mathrm{mm}$  一 $5.0 \, \mathrm{mm}$  の範囲で変化させ、BeO セラミックスに付与される陽子線量を評価した。

#### [結果・考察]

Fig.1 より、HDPE コンバータが厚いほど高エネルギー中性子による BeO セラミックスへの陽子

線量は上昇した。また、この陽子線量は約3 MeV 以下の中性子において、各厚さの最大線量の1%以下であった。このため、0.1 mm 以上の HDPE コンバータと BeO を併用することで、約3 MeV 以上の中性子を選択的に測定できることが示唆された。実際のBNCT 照射場では熱外中性子が支配的であり、高速中性子と比較してフルエンスが2 桁大きいため影響を受ける可能性があるが、今回の結果では、熱外中性子が寄与する陽子線量は3 MeV 以上の中性子が寄与する線量より4 桁以上小さいため、ほとんど影響しないことも示唆された。

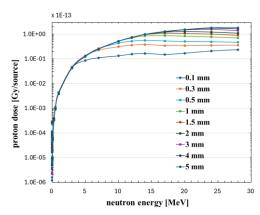


Fig. 1. Proton dose dependency for neutron energy using HDPE converter and BeO ceramics plates

<sup>1)</sup> M. Tanaka et al., J. Mater. Sci.: Mater. Electron.33 (2022): 20271-20279

<sup>2)</sup> Weishan Chang et al., J. Mater. Sci.: Mater. Electron. 34 (2023): 1606

<sup>3)</sup> T. Sato et al., J. Nucl. Sci. Technol. 61, 127-135 (2024).

### OSL 素子 BeO セラミックス板のプレ加熱処理と線量応答性

Pre-heat process and dose-response property of OSL phosphor BeO 東京都立大学 <sup>1</sup>, 金沢工業大学 <sup>2</sup> <sup>°</sup>佐村 春月 <sup>1</sup>, 高橋 玲央 <sup>1</sup>, 川根 充貴 <sup>1</sup>, 岡田 豪 <sup>2</sup>, 眞正 浄光 <sup>1</sup>

Tokyo Metropolitan Univ. <sup>1</sup>, Kanazawa Institute of Technology <sup>2</sup>,

OHaduki Samura <sup>1</sup>, Leo Takahashi <sup>1</sup>, Mitsuki Kawane <sup>1</sup>,

Go Okada <sup>2</sup>, Kiyomitsu Shinsho <sup>1</sup>

E mail: shinsho@tmu.ac.jp

【背景】 OSL素子として利用可能な BeO セラミックス板は生体等価性が高いため、個人被ばく線量計や水吸収線量測定など医療分野で用いるドシメータとして理想的な素子である。しかしながら、感度が不足していることや LET 依存性などの課題があるため、利用が限定されている。これまでに Okada らりは、X線を1Gy 照射したサンプルを 250 ℃でプレ加熱すると OSL 感度が大きく上昇することを報告した。これは OSL の高感度化に対して有用な知見であったが、このプレ加熱処理による OSL 特性と線量との関係など、詳しい特性については明らかになっていない。そこで本研究では、線量を変化させてプレ加熱処理を行い、OSL 特性に与える影響について調査した。

【方法】 OSL 測定は、TORAIM<sup>1)</sup> を用いた。プレ加熱温度は 100 - 400 ℃の範囲で 50 ℃間隔で行った。線量は 1 Gy、5 Gy、10 Gy とし、各線量で同様の測定を繰り返した。

【結果と考察】 Figure. に線量を変えたときのプレ加熱処理と OSL 強度の関係を示す。150 ℃以下のプレ加熱では、OSL 強度に変化は観られなかった。OSL に関与する捕獲電子と正孔が安定に保持されていると考えられる。250 ℃のプレ加熱では、いずれの線量においても OSL 強度が大きく上昇した。この温度帯では OSL

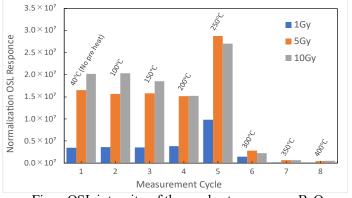


Fig. OSL intensity of the pre-heat process on BeO ceramics prates for different doses

に不活性だった捕獲電子や正孔が活性化した可能性が示唆された。また、この OSL 強度の 上昇率は線量が低いほど大きく、線量による OSL のプレ加熱特性が異なることが明らかと なった。プレ加熱 300 ℃以上になると、OSL をほとんど示さなかった。プレ加熱によって、 捕獲電子と正孔の再結合だけでなく、OSL に不活性であった捕獲電子と正孔が活性化する 現象が同時に起こっており、この特性が線量に依存することが示唆された。

1) Go Okada et.al, Sensors and Materials, Vol. 33, No. 6 (2021) 2117-2128

# 動態イメージングに向けた 1024ch 2 次元 MPPC based PC-CT システムの 開発と性能評価

Development and performance evaluation of a 1024-channel 2D MPPC-based PC-CT system for dynamical imaging

金沢大<sup>1</sup>, 早大理工<sup>2</sup>, プロテリアル<sup>3</sup> <sup>○</sup>大島 美礼<sup>1</sup>, 有元 誠<sup>1</sup>, 供田 崇弘<sup>1</sup>, Fitri Lucyana<sup>1</sup>, 古田 優<sup>1</sup>, 片岡 淳<sup>2</sup>, 皆川 遼太郎<sup>2</sup>, 寺澤 慎祐<sup>3</sup>, 塩田 諭<sup>3</sup> Kanazawa Univ.<sup>1</sup>, Waseda Univ.<sup>2</sup>, Proterial Ltd.<sup>3</sup>, <sup>9</sup>Minori Oshima<sup>1</sup>, Makoto Arimoto<sup>1</sup>, Takahiro Tomoda<sup>1</sup>, Fitri Lucyana<sup>1</sup>, Yu Furuta<sup>1</sup>, Jun Kataoka<sup>2</sup>, Ryotaro Minagawa<sup>2</sup>, Shinsuke Terazawa<sup>3</sup>, Satoshi Shiota<sup>3</sup>

E-mail: o2415011008@stu.kanazawa-u.ac.jp

X線 CT(Computed Tomography)とは、X線を利用して非侵襲的に被写体内部を 3 次元で可視化する技術であり、医療分野などの様々な分野で使われている。近年では、次世代 X線 CT としてフォトンカウンティング CT(PC-CT)が注目されている。PC-CT では、従来型 CT では得られなかった X 線のエネルギー情報を含めた CT 画像を取得できるという特徴を持つ。X 線のエネルギー情報を利用することで、被写体内部に分布する物質の弁別や溶液の濃度を定量的に評価することが可能である。それにより、医療イメージング技術を大きく進歩させることが期待されている。

私たちは、高速シンチレータ (YGAG:Ce) と光半導体素子である MPPC (Multi-Pixel Photon Counter) を組み合わせた X 線検出器を利用し、PC-CT を開発した。私たちは、これまでに開発した PC-CT で薬剤を注入したマウスの実験を行い、マウスの体内に蓄積した薬剤のみを可視化、濃度推定に成功している。しかし、現在の PC-CT システムでは、X 線検出器が  $64\times1$  ピクセルの 1 次元アレイであるため、CT 撮影に時間がかかり( $\sim30$  分)、マウスの体内を循環する薬剤を動的に評価することが困難である。

本研究では、マウスの生体内動態イメージング(〜数秒)を目指し、1024 チャンネル(64×16 ピクセル)の 2 次元アレイ検出器で PC-CT システム (Fig.1)を開発した。検出器からの信号は 64 チャンネルごとに 6 つのエネルギー閾値を設定する LSI (大規模集積回路)を 16 枚用いて高速処理される。CT 撮影では、検出器全体で性能の均一性が要求される。そこで、ピクセル間の応答のばらつきをおさえる補正機能を用いて、性能の均一化を行った。本発表では、開発した PC-CT システムの概要及び性能の評価について報告する。

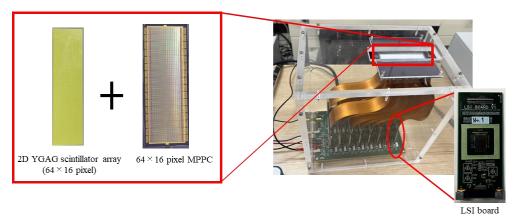


Fig.1 left: detector overview with 1024 channel MPPC array combined with YGAG scintillator array. right: image combining 16 LSIs and the detector.

# ガンマ・X 線検出用 Tl 添加 Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-Mg(PO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-CsPO<sub>3</sub> ガラス シンチレータの開発

Development of Tl doped Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>–Mg(PO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>–CsPO<sub>3</sub> glass scintillators for  $\gamma$ - and X-ray detection

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

Tohoku Univ. <sup>1</sup>, °Chie Morita<sup>1</sup>, Ko Hasegawa<sup>1</sup>, Yusuke Nakabayashi<sup>1</sup>, Akito Watanabe<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup>

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

【背景】 $\gamma$ 線及び X 線検出用シンチレータには、性能として大発光量、高密度、及び高い実効原子番号 ( $Z_{\rm eff}$ ) の具備が求められる。現在実用化されているシンチレータの多くは無機結晶である。しかし、無機結晶には加工性と作製コストに難点がある。これを克服すべく、優れた加工性と廉価性を備える無機ガラスが注目されているものの、無機結晶と比べ、発光量に劣る傾向を持つ。故に、当該ガラスの実用化には、発光性の向上が必須であり、さらには密度及び  $Z_{\rm eff}$  の増大が要求される。これまでに我々は、ガラスの高  $Z_{\rm eff}$  化を企図し、原子番号 81 のタリウムを高濃度に含有させた 0.4Al( $PO_3$ ) $_3$ -0.4M( $PO_3$ ) $_2$ -1.5Cs $PO_3$ -0.3TlCl (M=Mg,  $C_a$ ,  $S_r$ ,  $B_a$ ) ガラスシンチレータを開発し、フォトンカウンティング計測を可能とする 1000photons/MeV の発光量を得た 1)。本研究では、当該ガラスのシンチレーション収率向上を達成すべく、発光中心として含有させた T1 濃度を異にする 0.4Al( $PO_3$ ) $_3$ -0.4Mg( $PO_3$ ) $_2$ -1.5Cs $PO_3$ -xTlCl ガラス (x=0.1,0.2,0.3,0.4,0.5) を作製し、その蛍光及びシンチレーション特性を調査した。

【実験】原料である  $Al(PO_3)_3$  (99.999%),  $CsH_2PO_4$  (99%),  $Mg(PO_3)_2$  (99%), 及び TlCl (99.9%)を, 0.4:0.4:1.5:x の割合で混合し、真空下での溶融急冷法によりガラスを作製した。これらを試料として, X 線励起発光 (XRL) スペクトル及び  $^{137}Cs-\gamma$  線照射パルス波高 (PH) スペクトルを測定した。各試料の PH スペクトル中の光電吸収ピークの波高値を、市販の PH BGO シンチレータ (8600 photons/PH MeV) の当該値と比較することで、個々の試料の発光量を推算した。

【結果・考察】 Fig. 1 に、作製した試料の XRL スペクトルを示す。全試料において、340 nm 及び 390 nm 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 6sp-6s² 遷移に由来するものと考えられる  $^2$ )。 Fig.2 に、 $^{137}$ Cs- $\gamma$  線照射 PH スペクトルを示す。上記の方法で推算した各試料の発光量は、x=0.1,0.2,0.3,0.4,0.5 において、それぞれ 1100,1300,1000,720 及び 500 photons/MeV であった。 x=0.2 の試料において、最大発光量 1300 photons/MeV を得た。これは既報値の約 1.3 倍であり、シンチレーション収率の向上に成功したことを示す。 【参考文献】 1)森田千恵、他、23p-P01-28、第 71 回応用物理学会秋季学術講演会、東京(2024)。 2) K.Hashimoto, et al., *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **128**, 267–272 (2020).

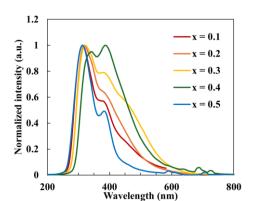


Fig. 1. XRL spectra of fabricated samples.

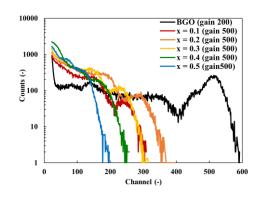


Fig. 2. pulse-height spectra of fabricated samples.

### Ce 添加 Cs2NaScCl6 エルパソライト単結晶シンチレータの開発

Development of Ce-doped Cs<sub>2</sub>NaScCl<sub>6</sub> elpasolite single crystalline scintillators 東北大院工 <sup>O</sup>(M1)古田 満理奈, (M2)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X線や $\gamma$ 線を吸収し、紫外-可視光を発する放射線検出材料であり、手荷物検査機等に広く応用されている。 実用に足る優れたシンチレータの条件として、高発光性および優れたエネルギー分解能といった数々の性能の具備が求められるが、すべての要求を満たすものは未だ開発されていない。近年、鉛フリーのメタルハライドエルパソライト ( $A_2B^+B^{'3+}X_6$ ) が新たな光学材料として注目されており、  $C_{S2}$ LiYCl $_6$ :Ce<sup>[1]</sup>において顕著なように、発光中心イオンの導入により優れたシンチレータとしての機能を発現する。これらの成果を鑑み、本研究では、

新たな高性能シンチレータの開発を企図して、希土類サイトが  $Sc^{3+}$ で構成される  $Cs_2NaScCl_6$  (CNSC) 単結晶に Ce を添加し、 蛍光及びシンチレーション特性を調査した.

【実験方法】純度 99.9%以上の CsCl, NaCl, ScCl<sub>3</sub>・6H<sub>2</sub>O, CeCl<sub>3</sub> (Sc に対して Ce を 0.5 mol%添加) を量論比で混合し、真空中 300 ℃で 24 h 脱水した後、石英アンプル管中に封入して垂直ブリッジマン法で結晶成長させた. 得られた結晶を研磨して試料とし, X 線励起ラジオルミネッセンス (XRL) スペクトルおよびパルス波高スペクトルを測定した.

【結果と考察】Fig.1 に、無添加および Ce 添加 CNSC 結晶の XRL スペクトルを示す。無添加結晶では、260-600 nm にブロードな発光帯が観測された。これは、母材の STE 発光<sup>[2]</sup>に由来するものと考えられる。一方、Ce 添加結晶では、3 つの発光帯が認められた。379、405 nm 付近に位置する発光帯は、Ce³+の 5d-4f 遷移<sup>[1]</sup>に起因するものと考えられる。Fig.2 に Ce 添加 CNSC 結晶のパルス波高スペクトルを示す。Ce 添加結晶の発光量は、BGO での値の約 4 倍

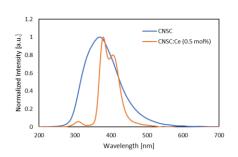


Fig.1. XRL spectra of pristine and Cedoped CNSC.

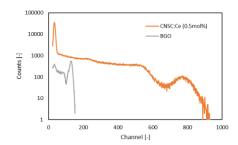


Fig.2. <sup>137</sup>Cs-gamma-ray irradiated pulse-height spectra for Ce-doped CNSC and BGO.

に及ぶ 34,500 photons/MeV であり、またエネルギー分解能は 12%であった.

- [1] C.M. Combes et al., J. Lumi. 82, 299–305 (1999).
- [2] R. Zhang et al., Adv. Optical Mater., 9, 2100689 (2021).

### Tl<sub>2</sub>NaScCl<sub>6</sub>結晶におけるシンチレーション機構の解明

Revelation of scintillation mechanism in Tl<sub>2</sub>NaScCl<sub>6</sub> crystal

東北大院工 〇石田 未夢,渡邊 晶斗,川本 弘樹,藤本 裕,浅井 圭介

Tohoku Univ. °Miyu Ishida, Akito Watanabe, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai E-mail: miyu.ishida.q8@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレータとは、放射線入射により蛍光を生じる物質であり、リアルタイムでの放射線検出に利用されている。検出対象がX線・ $\gamma$ 線である場合、シンチレータには、主として、大きな発光量、高いエネルギー分解能、そして大きな実効原子番号といった性能の具備が求められる。これに応えるべく、我々は、発光量およびエネルギー分解能に優れるエルパソライト結晶シンチレータのカチオンを原子番号の大きな Tl とすることで高実効原子番号化に成功した Tl 系エルパソライト結晶に着目した。しかし、当該結晶に関する研究報告例は 2 報と少なく、その発光起源についての調査も不十分である。そこで本研究では、同結晶群に属する  $Tl_2NaSeCl_6$  結晶におけるシンチレーション機構の解明を目的として、X線励起発光 (XRL) スペクトルの温度依存性を調査した。

【実験方法】垂直ブリッジマン法で  $Tl_2NaScCl_6$  結晶を作製し、これに研磨・加工を施したものを 試料とした. 極低温から室温 (10.5– $300\,K$ ) において  $25\,K$  間隔で XRL スペクトルを測定し、その 温度依存性を調べた.

【結果】図1に XRL スペクトルの温度依存性を示す.以下,主に 430 nm 付近に観測されるピー

クを①,660 nm 付近に観測されるピークを②と称す る. 図1より、①の強度は、温度上昇に伴って増大し 100 K で最大となった後,減少に転じた. また 10.5-75 K では、温度上昇に伴う高エネルギー側へのピー クシフトが観測された.一方,②の強度は,温度上昇 に伴い減少した. 図 2 に、両スペクトルの発光強度 の温度依存性を示す. ①については, 100-300K の領 域にのみ最小二乗法を用いてフィッティングを行っ た. ①, ②の双方において, 温度上昇に伴う強度減少 の様態は、励起子由来の発光の特徴であるアレニウ ス型の熱消光モデルに従うものであり、アレニウス プロットにより得られた①,②の活性化エネルギー は、それぞれ約 140 meV、約 20 meV であった. これ らの結果から、少なくとも発光起源が2つ以上あり、 100 K 付近で熱活性によるエネルギー移動が起こっ ているものと考えられる.

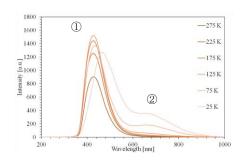


Fig. 1 Temperature dependence of the XRL spectrum of a Tl<sub>2</sub>NaScCl<sub>6</sub> crystal.

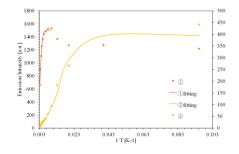


Fig. 2 Temperature dependence of the XRL intensity of a Tl<sub>2</sub>NaScCl<sub>6</sub> crystal.

# 昇温結晶化法により作製した無添加および賦活剤添加 Cs I 単結晶の シンチレーション特性

Scintillation properties of undoped and activator-doped CsI single crystals grown by an inverse temperature crystallization

東北大学, O(B)権田 樹, 藤本 裕, 川本 弘樹, 浅井 圭介

Tohoku Univ. <sup>1</sup>, °Itsuki Gonda, Yutaka Fujimoto, Hiroki Kawamoto, Keisuke Asai E-mail: keisuke.asai.c8@tohoku.ac.jp

【緒言】シンチレータは、放射線を受けて可視光、紫外光などの蛍光を発する放射線検出用材料であり、放射線のリアルタイム検出が可能なシンチレーション検出器に利用されている。シンチレータ単結晶の育成法として融液成長法が主に用いられているものの、製出のための装置・プロセスの構築・立上・運転・維持・管理に高コストを要するという不可避な欠点がある。この克服に極めて有効な溶液成長法には、シンチレータの研究開発費用の低減のみならず、応用先のシンチレーション検出器の製造コストの削減および製品の低価格化に大いに寄与する可能性が秘められている。本研究では、単結晶シンチレータ製造の低コスト化を企図し、X線・ガンマ線用シンチレータとして知られる、賦活剤としてタリウム(TI)およびインジウム(In)を添加した CsI 単結晶

を、100℃以下の低温での単結晶育成を期待しうる昇温結晶化法にて製出し、その性能評価を行った。

【実験内容と結果】図1に結晶化操作の概略を示す.溶質となる出発原料には CsI および TII, InI 粉末を,溶媒にはジメチルスルホキシド (DMSO)を用いた.調整済みのDMSO 溶液を室温で 4 時間ほど攪拌し、その後、シリンジレスフィルター(孔径:0.45μm)で濾過した.これをスクリュー菅瓶に移し、ホットプレート上で 80℃まで加熱・保持し、昇温結晶化法にて単結晶を製出し、付着した溶媒などをアセトンで洗浄した.こうして得られた試料は、直方体の無色透明な結晶であった.図2にその外観を示す.図3には、無添加 CsI および CsI:Tl、CsI:In 結晶の X 線励起シンチレーションスペクトルを示す.315nm にピークをもつ母材 CsI 由来の発光帯に加えて、Tl 添加体では559nm 付近に、In 添加体では 423nm 付近に、各々ブロードな発光帯が確認され、目論見通りのシンチレーション発現が実証された.

[1] W. Wang et al., Cryst. Growth Des., 20, 3474-3481(2020).

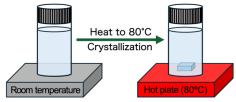


Fig. 1 Crystallization method

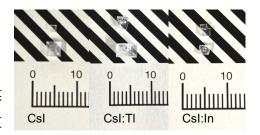


Fig. 2 Appearance of CsI, CsI:Tl and CsI:In crystals

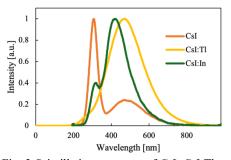


Fig. 3 Scintillation spectrum of CsI, CsI:Tl and CsI:In crystal

# 可視光領域において優れた透明性を示す ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子分散液の開発 Development of ZrO<sub>2</sub> nanoparticle dispersion with excellent transparency in the visible light region

東北大院工<sup>1</sup>, 東北大 SRIS<sup>2</sup>, 東北大 AIMR<sup>3</sup>, Univ. Suwon<sup>4</sup>, 東北大 FRIS<sup>5</sup>, 静岡大電子研<sup>6</sup>
○渡邊 晶斗<sup>1</sup>, 横哲 <sup>2,3</sup>, 成基明 <sup>4</sup>, 笘居高明 <sup>5</sup>, 阿尻雅文 <sup>3</sup>,

林大和1,藤本裕1,越水正典6,浅井圭介1

Tohoku Univ.¹, Tohoku Univ. SRIS², Tohoku Univ. AIMR³, Univ. Suwon⁴, Tohoku Univ. FRIS⁵, Shizuoka Univ.⁶ ∘Akito Watanabe¹, Akira Yoko²,³, Gimyeong Seong⁴, Takaaki Tomai⁵, Tadafumi Adschiri³, Yamato Hayashi¹, Yutaka Fujimoto¹, Masanori Koshimizu⁶, Keisuke Asai¹

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

次世代のニュートリノ検出器の開発に向けて、高濃度の金属装荷および優れたエネルギー分解能の両性能を兼備した金属装荷型液体シンチレータが要求されている。我々のグループでは、液体シンチレータの光学特性を損なわない金属添加の手法として、金属酸化物ナノ粒子の分散に着目し、これまでに有機修飾  $ZrO_2$ ナノ粒子を分散させた液体シンチレータの開発を行ってきた。表面有機修飾系の検討により、溶媒となるトルエンに高濃度分散する  $ZrO_2$ ナノ粒子の開発には成功しているものの、二次粒子形成の抑制が課題として残り、透明分散液の調整には至っていない!近年、均一な有機修飾には有機金属錯体を出発物質に用いた合成方法が効果的であるとの報告がなされている  $^2$ . そこで本研究では、この手法を採用し、出発物質に Zr 錯体を用いることで、単分散  $ZrO_2$ ナノ粒子の合成を試みた。

亜臨界水熱合成法により有機修飾  $ZrO_2$ ナノ粒子を合成した。 $0.1\,M$  のビス(2-エチルヘキサン酸)酸化ジルコニウム(IV), $0.2\,M$  の 3 フェニルプロピオン酸および 6 フェニルヘキサン酸を  $3.75\,m$  の超純水とともに  $5\,m$  のハステロイ管に封入し, $300\,^{\circ}$ C, $30\,M$ Pa, $10\,m$ in.の条件下で反応させた.得られた生成物をトルエンで回収し,エタノールを用いて洗浄した.沈殿物を  $5\,m$  のトルエンに再分散させることで,ナノ粒子分散液を調整した.

図 1(a)にナノ粒子分散液の画像、図 1(b)に合成した  $ZrO_2$ ナノ粒子の TEM 像を各々示す. 分散

液は無色透明であり、尚且つナノ粒子の存 在を示唆するレーザー光のチンダル現象も 観測された. TEM 像により, ナノ粒子の形 成が確認され、その平均粒子径は4.00 nmで あった. また, DLS によって計測した, 溶 媒中でのナノ粒子の平均粒子径は 8.05 nm であった. 一次粒子と液中分散粒子との間 には、径とその値の分布様態における高い 近接性が認められ、当該手法による二次粒 子形成の抑制が実証された. 図2にナノ粒 子分散液の吸収スペクトルを示す. 可視光 の全領域に渡って吸光度は0.02以下に留ま っており、得られた分散液の優れた透過性 を示唆する. 本講演においては、合成した  $ZrO_2$ ナノ粒子の分析結果に加えて、 $ZrO_2$ ナ ノ粒子を分散させた液体シンチレータの性 能についても報告する.

- 1. A. Watanabe, et al., LSC2024, 15-17, April, The UK (2024).
- 2. Y. Omura, et al., *J. Phys. Chem. C* **2022**, *126*, 6008.

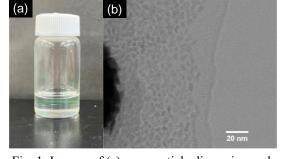


Fig. 1. Images of (a) nanoparticle dispersion and (b) TEM.

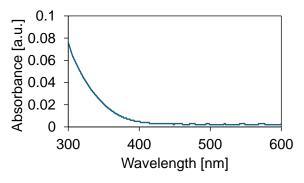


Fig. 2. Absorption spectrum.

### BaFCl:Eu 結晶におけるシンチレーション性能評価

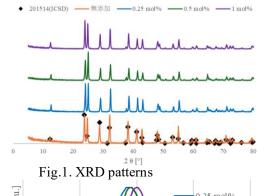
Scintillation Performance Evaluation of BaFCl:Eu Crystals 東北大工,°(B)田村 飛翔,川本 弘樹,藤本裕,浅井圭介

Tohoku Univ., °Tsubasa Tamura, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai, E-mail: keisuke.asai.c8@tohoku.ac.jp

【緒言】シンチレータとは、X線及びγ線などの放射線を吸収し、蛍光を発する物質である.この蛍光が、電気信号への変換の後、増幅を経て検出されることで、放射線検出に応用されている. 既存シンチレータの中でも、ハロゲン化物シンチレータには、低融点、高発光性といった利点がある一方、低密度、小実効原子番号、高潮解性などの難点がある. 高潮解性については、密閉容器への封入等の措置がとられるものの、高コストに繋がることは否めない. 対策が講じられる中で、複合アニオン系ハロゲン化物結晶における潮解性抑制の成功が報じられた凹. そこで本研究で

は,低潮解性のハロゲン化物シンチレータの開発を企図して, BaFCl:Eu のシンチレーション性能評価を行った. 【実験】Fと Cl が等モル量, Eu<sup>2+</sup>が所定の含有率 (無添加, 0.25 mol%, 0.5 mol%, および 1 mol%) となるように, BaF<sub>2</sub>, BaCl<sub>2</sub>, EuCl<sub>2</sub>の粉末を混合し, これをプレス機で固め, 砕き, カーボン坩堝へ入れ, 石英管中で真空乾燥の後, 封じ切った. これを 4 時間かけて  $1100^{\circ}$ Cまで熱し, 2 h後, 放冷させた. 得られた結晶につき, X線回折(XRD)での結晶構造解析の後, X線励起発光(XRL)スペクトルを測定した.

【結果と考察】Fig. 1 に、BaFCl の無添加体と、 $Eu^{2+}$ を それぞれ 0.25 mol%、0.5 mol%、1 mol%添加したものの XRD パターンを、BaFCl のデータベースから得た情報 とともに示す。全パターンにおいて、測定データとデータベースとの間に良好な一致が認められたため、全試料



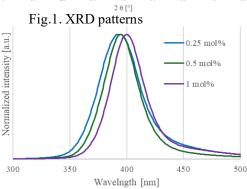


Fig.2. X-ray excited emission spectra

が BaFCl の結晶構造をもつものと判断した。Fig. 2 に,上述の無添加体と添加体の XRL スペクトルを示す。 $0.25, 0.5, 1 \, \text{mol}$ %添加体での蛍光ピーク波長はそれぞれ  $392, 395, 400 \, \text{nm}$  であり, $Eu^{2+}$ 濃度の増加に伴って長波長側にシフトした,また,当該蛍光帯は,ハロゲン化物バリウムへの  $Eu^{2+}$ 添加で発現する  $Eu^{2+}$ の 5d-4f 遷移に起因する発光帯  $[^{2]}$ と同一の様態を示す。したがって,今回 BaFCl:Eu において観測された蛍光も, $Eu^{2+}$ の 5d-4f 遷移によるものと考えられる。

【結言】BaFCl の無添加体と, $Eu^{2+}$ をそれぞれ 0.25 mol%, 0.5 mol%, 1 mol%添加したものとを製出した。XRD 測定の結果,結晶構造において,全試料が BaFCl 結晶と一致した。また,XRL スペクトル測定の結果, $Eu^{2+}$ 添加体においては,蛍光波長 400 nm 付近に, $Eu^{2+}$ の 5d–4f 遷移に起因する発光ピークが認められ, $Eu^{2+}$ 濃度増加に伴う蛍光波長の長波長側シフトが観測された。

【参考文献】[1] E.D. Bourret-Courchesne, et al., *J. Cryst, Growth*, **352** (2012) 78-83 [2] Z. Yan, et al., *NUCL INSTRUM METHODS PHYS RES*. A, **735** (2014) 83-87

# Ce 添加 LiPO<sub>3</sub>-AI(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-CsPO<sub>3</sub> ガラスシンチレータの発光特性における Ce 濃度依存性

Ce-concentration dependence of luminescence properties in Ce-doped LiPO<sub>3</sub>-Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-CsPO<sub>3</sub> glasses

東北大院工, 〇長谷川 洸, 渡邊 晶斗, 川本 弘樹, 藤本 裕, 浅井 圭介

Tohoku Univ., °Ko Hasegawa, Akito Watanabe, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai E-mail: ko.hasegawa.t3@dc.tohoku.ac.jp

【背景】近年,中性子計測に使用されてきた  $^3$ He ガスの枯渇危機を受け, $^3$ He 比例計数管を代替する検出機器の開発が切望されている。その有力な候補として,熱中性子捕獲反応断面積及び Q 値の大きさに優れる検出を可能とする  $^6$ Li 含有シンチレータを搭載した機器が挙げられる。しかし,当該機器を構成する材料として主流であるリチウムガラスには,高融点,高コスト,及び蛍光における減衰時定数の大なる成分の顕在といった欠点がある。この克服を目的として,我々は,低融点且つ低コストで製造可能であり,発光の高速性に優れた新規中性子検出用ガラスシンチレータである  $^6$ Ce 添加  $^6$ Li  $^6$ O3) $^3$ -CsPO3  $^3$ ガラス  $^6$ Dを開発した。本研究では,添加する  $^6$ Ce 濃度の最適化を目的として,当該組成において様々な  $^6$ Ce 濃度のガラスを製出し,その蛍光およびシンチレーション特性における  $^6$ Ce 濃度依存性の評価を行った.

【実験方法】原料には、LiPO<sub>3</sub> (98.0%)、Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> (99.999%)、CsH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> (99%)、及び CeCl<sub>3</sub> (99.99%)を使用した。これらをそれぞれ LiPO<sub>3</sub>: Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>: CsH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>: CeCl<sub>3</sub> = 1:1:1:x (x = 0.2, 0.3, 0.4, 0.5) の割合で混合し、真空中 950°Cで溶融後、水中にて急冷した。これらを試料として、X 線励起発光 (XRL) スペクトル、並びに  $^{252}$ Cf を中性子源としたパルス波高スペクトルを測定した。なお、中性子線の減速材としてポリエチレンブロックを使用した。作製試料の発光量算出には、市販のリチウムガラス (GS20、発光量:6000 photons/neutron)での channel 値を比較として用いた。

【結果】Fig. 1 に、XRL スペクトルを示す.同スペクトル中には、350 nm 付近にピークを持つ発光帯が観測され、X 線励起での  $Ce^{3+}$ の 5d—4f 遷移による発光の現出が明らかになった.Fig.2 に、 $^{252}$ Cf 中性子照射に対するパルス波高スペクトルを示す.全試料において熱中性子のピークが観測され、その発光量は x=0.3 および 0.4 において最大(1900 photons/neutron)であった.また、これらの  $\alpha/\gamma$  比はそれぞれ 0.18 および 0.14 であった.以上より、 $LiPO_3$ — $Al(PO_3)_3$ — $CsPO_3$  ガラスにおいて中性子検出に最適な添加 Ce 濃度は x=0.3 (9.1mol%)であることが明らかとなった.

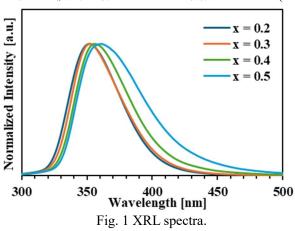


Fig. 2 <sup>252</sup>Cf-neutron-irradiatied pulse-height spectra.

【参考文献】

1) 長谷川洸, 他, 23p-P01-19, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 3/22-25, 東京(2024)

# 溶媒蒸発法による Sb³+添加 Rb₂HfCl ₅結晶シンチレータの合成および性能 評価



Development and property evaluation of Sb<sup>3+</sup>-doped Rb<sub>2</sub>HfCl<sub>6</sub> Crystal Scintillator by using a slow solvent performance method 東北大院工 〇佐々木 暖人,藤本裕,川本弘樹,浅井圭介

Tohoku Univ. °Haruto Sasaki, Yutaka Fujioto, Hiroki Kawamoto, Keisuke Asai E-mail: haruto.sasaki.t1@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレータとは放射線を可視光に変換する蛍光体であり、光検出器と併せてシンチレーション検出器として、セキュリティや医療診断など、多岐にわたる分野において放射線検出に利用されている。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。我々はこれまでに、本手法によって $Sb^{3+}$ を添加した $Cs_2HfCl_6$ シンチレータ結晶の合成に成功し、さらに、同添加により当該結晶のシンチレーション減衰時間が短縮することを明らかにしたり。本研究では、新たなシンチレータ材料の探索として、 $Cs_2HfCl_6$ と類似した電子配置を有する $Rb_2HfCl_6$ に $Sb^{3+}$ を添加したシンチレータ結晶を溶媒蒸発法により合成し、その性能評価を行った。

【実験内容】出発原料としての溶質には、RbCl(3N)、 $HfCl_4(3N)$ 、及び  $SbCl_3(3N)$ を、溶媒には  $HCl_4(36)$  を用いた。 $SbCl_3$ の添加量を、 $HfCl_4$ の分量に対して 0、0.5、1.0、1.5、2.0、3.0 及び 5.0  $mol_8$ とした。これらをスクリュー管瓶に移し、温度を  $80^{\circ}$  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、100°Cでの加熱で溶媒を蒸発させた。析出した結晶を 洗浄し、そのシンチレーション性能を評価した。

【結果と考察】Fig. 1 に,X 線励起ラジオルミネッセンス (XRL)スペクトルを示す。340-600 nm と 550-800 nm に二 つの発光帯が観測された.発光波長に基づいて,前者は 母材中の[HfCl $_6$ ] $^2$ 錯体による発光 $^2$ ),後者は[SbCl $_5$ ] $^2$ による自己束縛励起子発光 $^3$ と考えられる.Table 1 に,シンチレーション減衰時定数の Sb $^3$ +濃度依存性を示す.Sb $^3$ +添加 濃度の増大により,シンチレーション減衰時間が短縮された.

【文献】1) 佐々木暖人ら, 第 71 回応用物理学春季学術講演会, 2024年 3 月, 応用物理学会 2) Keiichiro Saeki et. Al. Appl. Phys., Express 9, 2016, 042602 3) B.Chen *et. al.* J. Am. Chem. Soc. 2021, 143, 17599–17606.

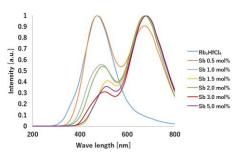


Fig. 1 XRL spectra of Sb<sup>3+</sup>–doped Rb<sub>2</sub>HfCl<sub>6</sub>

Table 1 Decay time constants

of So -doped Cs2H1Cl6		
Sb³+濃度[mol %]	τ 1 [μs]	τ 2 [μs]
undoped	1.89 (60%)	7.25 (40%)
0.5	1.82 (62%)	6.71 (38%)
1.0	1.21 (66%)	8.13 (34%)
1.5	1.18 (68%)	5.52 (32%)
2.0	1.25 (61%)	6.17 (39%)
3.0	1.09 (64%)	5.46(36%)
5.0	1.01 (69%)	4.81(31%)
<b>ツ.ト </b>		

※カッコ内は蛍光強度比

# CsPO<sub>3</sub>-Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-NdCl<sub>3</sub> 系ガラスの蛍光及びシンチレーション特性 Photoluminescence and scintillation properties of CsPO<sub>3</sub>-Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-NdCl<sub>3</sub> based glasses 。藤本裕、中林、川本弘樹、浅井圭介(東北大院工)

°Yutaka Fujimoto, Yusuke Nakabayashi, Hiroki Kawamoto, and Keisuke Asai (Tohoku Univ.)

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

【緒言】 核医学をはじめ、セキュリティや資源探査、宇宙・素粒子物理など幅広い分野において利用されている放射線検出器は、一般に放射線を数 eV 程度の光子に変換するシンチレータ、その蛍光(=シンチレーション)を受ける微弱光検出器とから構成されており、事実上、両者の特性が最終製品の性能を左右する。シンチレーションを受光する微弱光検出器には、光電子増倍管(PMT)や Si 系半導体検出器(PD や APD)が使われ、それぞれの最高感度波長域は、おおよそ PMTにおいて 300-450 nm、PD では 800-1000 nm、APD では 500-900 nmとなっている。特に近年では、APD の技術開発が飛躍的に進み、APD の最大感度波長域の量子効率は 80%を超え、PMT の 2 倍以上になっている。しかし、現状、製品化・実用化されているシンチレータは PMT と組み合わせることを想定しているため、紫外-可視域にて発光を示し、APD の性能を最大限に活かすことは出来ていない。そのため、APD の感度波長域にて高い発光収率を示すシンチレータが開発された暁には、従来よりも優れた性能を示す放射線検出器の実現と応用技術の向上に繋がる。本研究では、工業的な低コスト化や大口径化、化学的安定性、ファイバーなど特殊形状制御も期待できるガラスをベースとした赤色-近赤外発光型シンチレータの開発を実行する。

【実験内容と考察】 ガラスの作製は、真空下での急冷法 により行った。出発原料として、CsH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> (2N)、Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> (5N)及び NdCl<sub>3</sub>・6H<sub>2</sub>O (3N)を使用し、秤量・混合後、ロー タリーポンプに接続された石英管内にて真空脱水した。そ の後、石英管を縦型ポット炉内で 1000℃に加熱すること で原料を溶融し、30 分程度保持した。ここで、石英管を 常温の水に挿入することで融液をガラス転移温度以下まで 急冷した。図 1 に作製した 1.5CsPO<sub>3</sub>-0.7Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-0.3NdCl<sub>3</sub> ガラスの外観を示す。自然光下において、紫色の透明な試 料が得られた。また、別途評価した粉末 X 線回折測定の 結果から、試料がアモルファス相であることが確認された。 図2には、X線励起におけるシンチレーションスペクトル の結果を示す。スペクトルより、390 nm 及び900 nm 付近 に発光ピークが観測された。当該発光ピークはそれぞれ、  $Nd^{3+}$ の  ${}^{2}F_{5/2} \rightarrow {}^{4}F_{5/2}$  (390 nm)、  ${}^{4}F_{3/2} \rightarrow {}^{4}I_{9/2}$  (900 nm)に起因した 電子遷移と推察される。



Fig. 1 A photograph of as prepared 1.5CsPO<sub>3</sub>-0.7Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-0.3NdCl<sub>3</sub> glass.

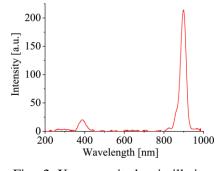


Fig. 2 X-ray excited scintillation spectrum of the glass.

#### ソルボサーマル法により作製した YF3:Ce3+蛍光体の生成相と発光特性の関係

Relationship between the formation phase and luminescence properties of YF<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup> phosphors prepared by the solvothermal method

<sup>1</sup>静岡大学大学院 総合科学技術研究科, <sup>2</sup>静岡大学 電子工学研究所, <sup>3</sup>静岡大学 情報学部 (M2)定盛 智紀 <sup>1</sup>, (M1)吉村 成生 <sup>1</sup>, 小南 裕子 <sup>1</sup>, 原 和彦 <sup>1,2</sup>, 都木 克之 <sup>2</sup>, 青木 徹 <sup>1,2,3</sup>
<sup>1</sup>Grad.School of Integrated Sci.&Technol., Shizuoka Univ., <sup>2</sup>Res.Inst.Electron., Shizuoka Univ.

<sup>3</sup>Faculty of Informatics, Shizuoka Univ.

Tomoki Sadamori<sup>1</sup>, Naruki Yoshimura<sup>1</sup>, Hiroko Kominami<sup>12</sup>, Kazuhiko Hara<sup>12</sup>, Katsuyuki Takagi<sup>2</sup>, Toru Aoki<sup>1,2,3</sup>

E-mail: kominami.hiroko@shizuoka.ac.jp

#### 1. 緒言

現在、癌治療における効果的な手法として 光線力学療法(Photodynamic Therapy, PDT)が研究されている。PDT は、光感受性物質とレー ザー光照射による光化学反応を利用した局所 療法で、癌細胞に集積させた蛍光体と光増感 剤へ体外から X 線を照射することで光化学反応を引き起こし、治療を行う新たな方法が検 討されている。ここで蛍光体は、X 線で励起 して紫外領域で発光すること、人体に無害で 粒径 100 nm 以下であることなど複数の条件が 求められる。本研究では、上記の条件を満た す Ce³+添加フッ化物蛍光体に着目した。実験 では、ソルボサーマル法により蛍光体のナノ 粒子化を目指し、作製した試料の生成相や発 光特性を評価した。

#### 2. 実験方法

本研究では、ナノサイズの結晶の合成に適したソルボサーマル法を用いて、 $YF_3$ : $Ce^{3+}$ を作製した。原料粉末をエタノールへ加えて攪拌し、その溶液をオートクレーブに入れ、200  $^{\circ}$ Cのオーブンで加熱・加圧後、遠心分離により試料を得た。添加剤にはポリエチレングリコール、ポリビニルピロリドンを使用した。また、得られた試料において、粉末 X 線回折(XRD)測定、Z 水のションス(Z とのでは、Z が、Z により評価した。

#### 3. 結果と考察

Fig.1 に合成時間を変化させた YF3:Ce<sup>3+</sup>試料の XRDパターンを示す。この結果より、母体である YF3 相の結晶構造は立方晶(Cubic)と斜方晶(Orthorhombic)の 2 相が存在し、合成時間の増加に伴い立方晶から斜方晶へ相変化することがわかった。また、半値幅から求めた結晶子サイズは、どの試料も約 30 nm 程度であり、実験した合成時間の範囲では結晶子サイズは大きく変化しないと考えられる。次に、

Fig.2 に同試料の PL スペクトルを示す。ここで、全試料に共通してピーク位置 292 nm, 316 nm, 350 nm の 3 つのピークを確認した。短波長側の 2 つの鋭いピークは、YF3 格子内に添加された  $Ce^{3+}$ の内殻軌道における、5d から 4f のスピン軌道相互作用による分裂準位  $^2F_{7/2}$ ,  $^2F_{5/2}$  への遷移に起因する発光であると考えられる。長波長側のブロードなピークは、 $Ce^{3+}$  近傍の F 空孔によって摂動されたサイトに存在することに起因すると考えられる。また、合成時間の増加に伴い 292 nm の発光が強くなることがわかった。よって、 $YF_3$  相の斜方晶割合が高い試料は、5d-4f 遷移の量子収率が高くなるのではないかと考えた。

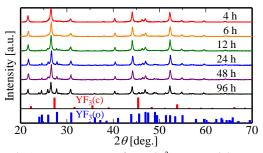


Fig.1 XRD patterns of YF<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup> nanoparticle with different synthesis time

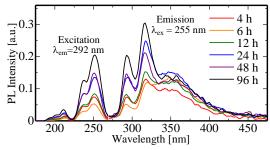


Fig.2 Photoluminescence Spectra of YF<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup> with different synthesis time

#### 4. まとめ

PDT への応用を目的とし、ソルボサーマル法により作製した  $YF_3$ : $Ce^{3+}$ の特性評価を行った。PL 測定結果から 5d-4f 遷移に起因する発光が確認できた。今後は、母体が発光に及ぼす影響についてさらに調査する予定である。

# 銀添加リン酸塩ガラスにおけるラジオフォトルミネッセンス能の 起源解明を企図した銀リン酸塩ガラスにおける光学特性調査

Investigation of optical properties in silver phosphate glasses for elucidation of the origin of the radiophotoluminescence property in Ag-doped phosphate glasses.

東北大院工1 0川本 弘樹1, 藤本 裕1, 浅井 圭介1

Tohoku Univ. 1,, °Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: hiroki.kawamoto.c7@tohoku.ac.jp

【背景】放射線照射による蛍光中心 (RPL 中心) の形成と、その光励起による蛍光現象であるラジオフォトルミネッセンス (RPL) 能を示す銀添加リン酸塩ガラスが、市販の個人被ばく線量計素子として利用されている。当該ガラスにおける RPL 中心の同定やその形成機構の解析がなされているものの、RPL 能発現の起源が不明なままであるため、当該ガラスに匹敵あるいは凌駕するような新規 RPL 材料開発は達成されていない。そこで、以下に記す RPL 中心形成機構に着目した じ。まず放射線によって電子正孔対が形成される。電子は  $Ag^+$ に捕獲されて  $Ag^0$ を形成する。その後、 $Ag^+$ と  $Ag^0$ との会合によって  $Ag_2^+$ が形成される。一方で、正孔は一度  $PO_4$ 四面体に捕獲された後に  $Ag^+$ へと移動して  $Ag^2^+$ を形成する。このように、RPL 中心形成反応に関与する化学種は、リン酸基と銀イオンのみである。そこで本研究では、RPL 中心形成反応に関与する元素のみを含んだ  $Ag_2O-P_2O_5$  ガラスにおける光学特性を調査することで、RPL 能の起源の解明を目指した。

【実験内容】Ag<sub>2</sub>O 及び(NH<sub>4</sub>)H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> の粉末試薬を用いて、40.96Ag<sub>2</sub>O-59.04P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ガラスを融液急冷法により作製した.得られたガラス試料における X 線照射前後での蛍光 (励起波長: 430 nm) 及び電子スピン共鳴 (ESR) スペクトルを測定した.

【結果と考察】Figure 1 に蛍光スペクトルを示す.未照射時に観測されていた,銀ナノクラスターに帰属される  ${}^{[2]}$ 蛍光ピークの強度が線量増加に伴って減少した.なお,X 線照射による新たな蛍光帯の現出は観測されず, $Ag_2O-P_2O_5$  ガラスは RPL を示さなかった.Figure 2 に ESR スペクトルを示す.X 線照射後に, $Ag^{2+}$ に帰属される  ${}^{[1]}ESR$  信号が 330 mT 付近で明瞭に観測された.RPL 中心に帰属されている  $Ag^{2+}$ が存在しているにも関わらず,当該ガラスは RPL 能を示さなかったことから, $Ag^{2+}$  形成能の有無が RPL 能の有無に直結しているわけではないことが示唆された.

【参考文献】[1] H. Kawamoto, et. al., Jpn. J. Appl. Phys., **62**, 010501 (2023).

[2] V. K. Tikhomirov, et. al., Opt. Express, 18, 22032 (2010).

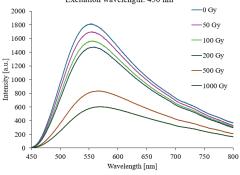


Fig. 1 PL spectra

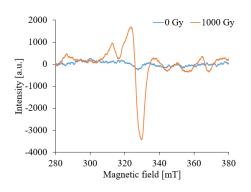


Fig. 2 ESR spectra

# 銀添加 Li-Al ホウ酸塩ガラスへの X 線照射時のラジオフォトルミネッセンス

Radiophotoluminescence during X-ray irradiation on silver-doped Li-Al borate glass 東北大工, <sup>O</sup>(B)森下 諒一,川本 弘樹,藤本裕,浅井圭介

Tohoku Univ., °Ryoichi Morishita, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai,

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

【緒言】ラジオフォトルミネセンス (RPL) とは、放射線照射により形成された蛍光中心 (RPL 中心)が、光励起により発光する現象である。RPL 中心は、発光後も消失せず安定であり、吸収線量の情報を長期に亘って保持し、また、その形成量と吸収線量の間には線形関係がある。この性質が個人被ばく線量計などに応用されているものの、実用化に至っている RPL 材料は極めて少ない。これまでの研究で、銀添加 Na-Al ホウ酸塩ガラスが RPL を示すことが明らかにされ「」、新規 RPL 材料の候補として注目されている。そこで本研究では、より高性能な新規 RPL 材料の開発を企図し、銀添加 Li-Al ホウ酸塩ガラスを製出して、その RPL 特性を調べた。

【実験】 $H_3BO_3$ ,  $Al_2O_3$ ,  $Li_2CO_3$  及び  $Ag_2O$  の粉末を用いて(100-x) (65 $B_2O$ -5 $Al_2O_3$ -30 $Li_2O$ )- $xAg_2O$  (x=0,1)ガラスを溶融急冷法により作製した.これらを試料として, X 線を 0-1000 Gy 照射し, 蛍光(PL)スペクトル(蛍光波長:310 および 410 nm, 励起波長:550 nm), 吸収スペクトル, 及び電子スピン共鳴スペクトル を測定した.

【結果と考察】Fig. 1 に, X線 (0-1000Gy) を照射した銀添加ホウ酸塩ガラスにおける励起光 410 nm での蛍光スペクトルを示す.線量増加に伴い500-600 nm に位置するブロードな発光帯の強度が増大し,当該ガラスの RPL 性具備が明らかになった. Fig. 2 に RPL 強度の線量依存性を示す.線量増加に伴う蛍光強度増大の様態は,線量の関数としての RPL 中心形成量の線形的増大を示唆する.

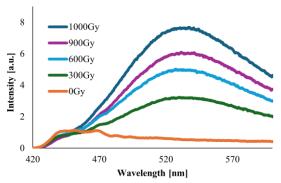


Fig. 1 PL spectra with the excitation wavelength of 410 nm.

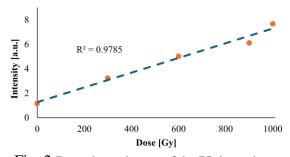


Fig. 2 Dose dependences of the PL intensity with the excitation wavelength of 410 nm.

【結言】製出した銀添加 Li-Al ホウ酸塩ガラスにおいて, RPL(励起波長 410nm)を観測した. また,線量増大に伴う RPL 強度の良好な線形的増大は,高線量域に至るまでの線量計測への応用可能性を示す.

[1]H. Kawamoto, et.al, Sens. Mater., volume36, Number2(2), pp.607-621, 2024.

### 中性子線照射による Sn<sup>2+</sup>添加 CaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ガラスの熱蛍光

Neutron-induced thermoluminescence of Sn<sup>2+</sup>-doped CaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> glasses 東北大院工<sup>1</sup>,静岡大電子研<sup>2</sup>,近大原研<sup>3</sup> <sup>O</sup>(M1)高津 匠吾<sup>1</sup>,山口 寛人<sup>1</sup>,川本 弘樹<sup>1</sup>,藤本 裕<sup>1</sup>,越水 正典<sup>2</sup>,若林 源一郎<sup>3</sup>,浅井 圭介<sup>1</sup>

Tohoku Univ. <sup>1</sup>, Shizuoka Univ. <sup>2</sup>, Kindai Univ. <sup>3</sup> °Shogo Takatsu<sup>1</sup>, Hiroto Yamaguchi<sup>1</sup>, Hiroki Kawamoto<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>2</sup>, Genichiro Wakabayashi<sup>3</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup> E-mail: takatsu.shogo.s2@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】中性子線は、電荷を持たない粒子放射線であることから、被照射物質との相互作用の様態において、電離放射線と異なる。近年、中性子の高い透過性と核反応における高い元素選択性を活かした物質の構造解析やホウ素中性子補足療法などの中性子利用技術が発展している。これに伴って安価で簡便な中性子検出器の開発が望まれている。しかし、現下の技術はこれに対応できていない。例えば、固体飛跡検出器での線量計測に用いられるのは、技術的難度の高い光学顕微鏡による飛跡観測であり、簡便性のみならず、計測の定量性にも難点をもつ。これらの問題を解決し、件の要望に応えるべく、熱蛍光現象の利用で安価・簡便で定量性の高さが見込まれる中性子検出を可能とする熱蛍光ガラスの開発が進められている。本研究では発光中心として Sn²+を添加した CaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ガラスを作製し、X線及び熱中性子照射後の熱蛍光特性を調査した。

【実験方法】 $Al_2O_3$ ,  $CaCO_3$ ,  $^{10}B$  濃縮  $H_3BO_3$  ( $^{10}B>96.0\%$ )または  $^{11}B$  濃縮  $H_3BO_3$  ( $^{11}B>99.0\%$ )及び  $SnO_2$  を量論比で混合後,アルミナ坩堝に充填,電気炉内 (1100 °C) で加熱・溶融後,ステンレス板上 (500 °C) に展延,急冷し,2種類の  $34.5CaO-15Al_2O_3-50B_2O_3-0.3SnO_2$  ガラス( $^{10}B$  及び  $^{11}B$  濃縮ガラス)を作製した.これらの試料の X 線および熱中性子照射後の TL グローカーブを測定した.

【結果・考察】Fig.1 に、当該ガラスにおける X 線照射後の TL グローカーブを示す。同図中には、 $^{10}B$  と  $^{11}B$  双方のガラスにおいて、580 K にピークが認められる。また、 $^{10}B$  に対して  $^{11}B$  の熱蛍光強度の差異は、20 %程度であった。このことより、X 線照射に対する熱蛍光特性は  $^{10}B$  と  $^{11}B$  において有意な差はないものと考えられる。

Fig.2 に,2種のガラスについて熱中性子  $1.0 \times 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup> 照射後の TL グローカーブを示す. 同図中には,460 K 付近にピークが認められる. また, $^{10}$ B 濃縮ガラスの熱

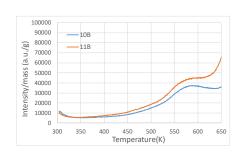


Fig.1 TL glow curves of Sn<sup>2+</sup>-doped glasses after X-ray irradiation of 10 Gy.

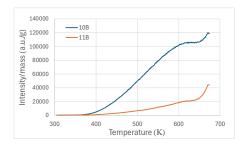


Fig.2 TL glow curves of Sn<sup>2+</sup>-doped glasses after neutron irradiation of 10<sup>11</sup> neutrons/cm<sup>2</sup>.

蛍光強度は、 $^{11}$ B の値に比べ約 5 倍であった.この結果は、中性子核反応で生じた荷電粒子および $\gamma$ 線が、 $^{10}$ B 濃縮ガラスにおいて熱蛍光を特に効率的に誘起することを示す.

【結言】製出した  $Sn^{2+}$ 添加  $CaO-Al_2O_3-B_2O_3$  ガラスの中性子検出機能を実証した.

# Bi 添加 Li<sub>2</sub>0-Al<sub>2</sub>0<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>0<sub>5</sub> ガラスにおける RPL 特性評価 Evaluation of RPL properties in Bi-doped Li<sub>2</sub>O-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> glass

金沢工大, O(B)猪股 諒太, 岡田 豪, 南戸 秀仁

KIT, °Ryota Inomata, Go Okada, Hidehito Nanto E-mail: c1125793@planet.kanazawa-it.ac.jp

ラジオフォトルミネッセンス (RPL)とは、放射線との相互作用により物質中に新たな発光中心が形成される現象である。発光中心が形成された物質に紫外線等で励起することで蛍光を示し、その発光強度は放射線量に比例する。また、形成された発光中心が安定であれば繰り返し同じ情報を読み取ることができる。この性質を利用し、RPL は個人被ばく線量計などに利用されている。一方、RPL の研究分野では現象理解を深めるための新規材料探索や新規応用展開に余地が残されている。そこで本研究では新規 RPL 材料を探索する事を目的とした。具体的には  $\text{Li}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$  (LAP)ガラスを母体材料とし、不純物として Bi を添加した LAP ガラスを合成し、各種特性の評価を行った。

試料の合成には、 $Li_2CO_3$ 、 $Al_2O_3$  および  $(NH_4)_2HPO_4$  を母体材料の原料とし、添加物には  $Bi_2O_3$  を用いた。これら原料をモル分率で 28:13:59:0.1 の割合で混合し、アルミナるつぼ内で 1200  $\mathbb{C}$  ・ 1 時間溶融した。さらに、この融液をおよそ 400  $\mathbb{C}$  でプレス冷却することでガラス化させた。その後、450  $\mathbb{C}$  で 10 分間の熱処理を行う事で除歪し、精密切断機を用いて約 10 mm 角に切断し、試料を得た。各種 RPL 特性の評価には TSL/OSL/RPL 自動統合計測装置  $(TORAIMS)^{1)}$  を使用した。同装置では主に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。Fig. 1 に 0.1 %Bi 添

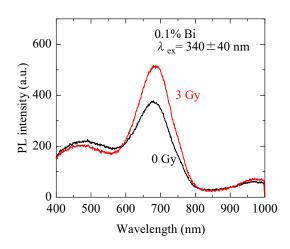


Fig. 1 PL spectra of Bi-doped LAP glass before and after X-ray irradiation.

加 LAP ガラスの X 線照射前後の PL スペクトルを示す。ここで励起波長は  $340\pm40$  nm とし、照射線量は 3 Gy とした。 X 線照射前後の PL スペクトルを比較すると 600 nm から 800 nm の間で発光強度が増加している。これは X 線照射により  $Bi^{2+}$ が形成され、 $^2P_{3/2}(1)\rightarrow^2P_{1/2}$  遷移に伴う発光が生じたためであると考えられる  $^2$ )。したがって、X 線照射により  $Bi^{2+}$ が新たな発光中心として形成されたことを意味し、Bi 添加 LAP ガラスが RPL 特性を持つことが示唆された。

#### 参考文献

- 1) Go Okada et.al., Sensors and Materials, 33(6), 2117-2128 (2021).
- 2) Tomoya Nakamura et al., Journal of Alloys and Compounds, 979, 173498 (2019).

## CaO-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>系セラミックスによる合成条件の検討及び RPL 特性評価

Synthesis Conditions of CaO-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Ceramic Systems and RPL Properties

金沢工大, ○(B)青木 美歩, 岡田 豪, 南戸 秀仁

KIT, <sup>O</sup>Miho Aoki, Go Okada, Hidehito Nanto

E-mail: c1149173@kanazawa-it.ac.jp

蛍光体とは外部からのエネルギーを吸収し、そのエネルギーを光に変換して放出する物質であり、蛍光体は白色 LED や線量計など様々な分野で応用されている。特に、線量計にはラジオフォトルミネッセンス(RPL) と呼ばれる蛍光特性を持つ蛍光体が使用されている。一方、RPL 現象は稀な現象であり、現在知られている RPL 特性を持つ材料は少なく、分野全体での現象理解が進んでいない。そのため、RPL 材料の設計指針が確立されておらず、新規材料の探索や現象理解により知見の蓄積が求められている。そこで、新規 RPL 材料の探索を目的として、 $CaO-P_2O_5$  系セラミックスに着目した。 $CaO-P_2O_5$  系セラミックスは Ca と P の比率や合成温度によって、様々な結晶相が合成される。そのため、複数の結晶相を含むセラミックスを合成することができる。したがって、少ない回数で手広く、効率的に新規 RPL 材料を探索することが可能である。本研究では、新規 RPL 材料探索の一歩として、 $CaO-P_2O_5$  系セラミックスの合成条件を検討し、そのセラミックスの RPL 特性について報告する。

本研究では、固相反応法により CaO-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 系セラミックスを合成した。出発原料には CaCO<sub>3</sub> および NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> を用いた。試薬比率は P を 1.00、Ca を 0.25、0.33、0.50、0.75、1.00、1.25、1.50、1.75 および 2.00 とし、全量 3 g となるように秤量し、混合した。これら混合物は大気中で 700-900  $^{\circ}$ C、4 時間で焼成した。得られた試料の X 線回析(XRD)パターンは、X 線回折装置(Ultima IV,リガク)

を用いて測定し、結晶相の同定を行った。

Fig. 1 異なる比率で調整し、得られた試料の XRD パターンを比較する。混合比率を変化させる事で、 $CaP_2O_6$ 、 $Ca_2P_2O_7$ 、 $Ca_3P_2O_8$ 、 $Ca_4P_2O_9$  および CaO の結晶の合成が認められた。なかでも、Ca:P=0.75:1.00 のときに $CaP_2O_6$  および  $Ca_2P_2O_7$ 、Ca:P=1.75:1.00 のときに $CaP_2O_6$  および  $Ca_2P_2O_7$ 、Ca:P=1.75:1.00 のときに $Ca_2P_2O_7$  および  $Ca_3P_3O_{13}$  が同様の割合で、加えて CaO が生成している事が認められた。この事により、これら比率で合成したものに対してスクリーニング調査を進める事に決定した。発表では、異なる遷移金属や希土類を添加した際の RPL 特性評価結果についても報告する。

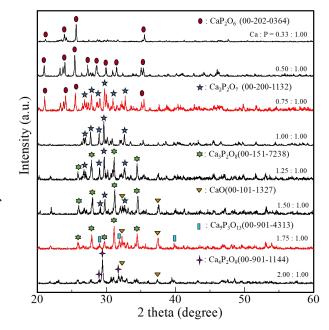


Fig. 1 XRD patterns of CaO-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> systems prepared in this study.

### **Analysis of Luminescent Characteristics in Silver-Doped Sodium Borate**

Fernandes, C. P. 1, 2, Okada, G. 2, Tatumi, S. H. 1, Rocca, R. R. 3

University of São Paulo <sup>1</sup>, Kanazawa Institute of Technology <sup>2</sup>, Federal University of São Paulo <sup>3</sup> E-mail: paschoal.caroline@usp.br

Borate matrices are commonly used in luminescent dosimetry due to their effective atomic number (Zeff) being close to that of human tissue. An example is Li2B4O7 (LTB) doped with Cu, Ag, P, and Mn in different concentrations to increase its luminescent response, with a minimum detectable dose around 0.5 μGy. In this study, vitreous matrices of pure sodium borate and sodium borate doped with silver were sintered for application in ionizing radiation dosimetry. The luminescent dose-response of the samples was evaluated using Optically Stimulated Luminescence (OSL), Thermoluminescence (TL), and the study of the Photoluminescence (PL) signal for Radiophotoluminescence (RPL) dosimetry applications. In the fluorescence spectra, the aim was to verify the bands attributed to Ag centers and matrix components. Measurements were conducted using the TL/OSL/RPL Automated and Integrated Measurement System (TORAIMS), equipped with an X-ray generator (XRB80N, Spellman), which is capable of performing all RPL, OSL, and TL analyses. Furthermore, the origin of the luminescent signal was investigated. Finally, the TL and OSL curves were fitted using the General Order Kinetics (GOK) model, and the fluorescence bands were fitted with Gaussian curves.

### Mn 添加 BCNO の蛍光および熱蛍光特性

### Photoluminescence and thermoluminescence characteristics of Mn-doped BCNO

#### 静岡大 <sup>○</sup> (B) 亀山 優人, 越水 正典

Shizuoka Univ. Yuto Kameyama, Masanori Koshimizu

E-mail: kameyama.yuto.19@shizuoka.ac.jp

#### 【緒言】

熱蛍光は、蛍光体が外部から放射線などの刺激を受け、加熱し発光する現象である。放射線量と熱蛍光強度が比例関係にあるため、個人被ばく線量計などに用いられる。人体付近で適用可能な線量計には、生体等価性が求められる。そのため、本研究では、BCNOという軽元素から構成され、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物質を用いて熱蛍光体を開発した。先行研究において、0-2%の範囲でのMn添加に効果が報告されており、本研究ではさらなるMn濃度の増大による蛍光特性および熱蛍光特性を評価した。

#### 【実験方法】

蒸留水 20 g にホウ素源であるホウ酸、窒素源である尿素、炭素源であるクエン酸をそれぞれ 1.0、4.0、0.02 g 加え、 $MnSO_4 \cdot H_2O$  をホウ酸に対し、0、 $2.0 \times 10^2$ 、 $3.0 \times 10^2$ 、 $5.0 \times 10^2$ 、 $10 \times 10^2$ 、 $20 \times 10^2$  mol/mol で混合した。この溶液を  $70^{\circ}$ Cで 10 分間攪拌し、 $80^{\circ}$ Cのオイルバスで 1 日 乾燥させた。乾燥後、得られた固体試料を  $600^{\circ}$ Cで 3 時間焼成した。得られた粉末を 0.07 g 計測し、ペレット状に成型し、蛍光特性および熱蛍光特性を評価した。

#### 【結果・考察】

Fig. 1 に Mn 添加濃度 0-20%の試料の蛍光スペクトルを示す。全ての試料について 400nm に発光ピークが観測され、これは BCNO ホストによるものと推察される。また、10%および 20%試料について 560 nm 付近に発光ピークが観測され、これは添加された Mn によるものと推察される。BCNO に帰属されるピークおよび Mn に帰属されるピークともに、Mn 濃度の増大とともに強度の上昇が観測された。

Fig. 2 に Mn 添加濃度 0-20%の試料の熱 蛍光グローカーブを示す。 Mn 添加濃度 3%の試料が最大の強度を示した。 これは、 濃度の増大により蛍光強度が上昇する一 方、電子および正孔のトラップ確率が減 少したためと推察される。

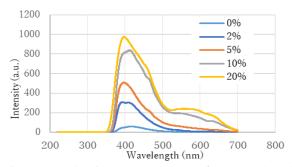


Fig. 1 Photoluminescence spectra of BCNO phosphors with MnSO<sub>4</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> molar ratio of 0–20%.

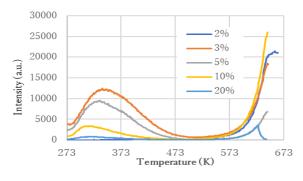


Fig. 2 Thermoluminescence glow curves of BCNO phosphors with MnSO<sub>4</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> molar ratio of 2–20% after X-ray irradiation to 1 Gy.

# P-ベンゾキノン及びフルオレセイン共添加ポリマーフィルムによる 放射線応答を用いた有機線量計の開発

Development of organic dosimeters using radiation response of polymer films co-additional of fluorescein and p-benzoquinone

## 静岡大 ○矢代 智章, 越水 正典

Shizuoka Univ. Tomoaki Yashiro, Masanori Koshimizu

E-mail: yashiro.tomoaki.21@shizuoka.ac.jp

【緒言】放射線治療の発展に伴い精密な被ばく線量測定の需要が高まっている。このような生体への正確な線量分布把握の必要性から、我々は生体組織と等価な有機材料で構成された線量計の開発を目指した。この観点から、p-benzoquinone (BQ)への放射線照射で誘起される共添加物fluoresceinの脱水素反応および、それに伴う蛍光波長の異なる新たな蛍光分子生成に注目した[1]。以前の研究では、fluoresceinを 1wt%および BQ を 10w%で、polymethyl methacrylate (PMMA) とpropylene carbonate (PC) の混合物に添加した材料が RPL 特性を発現することが示された[2]。本研究では、同材料における fluorescein に対する BQ の添加割合添加割合の蛍光特性への影響について調査した。

【実験方法】fluorescein および BQ を任意の 割合で PMMA と PC 混合物のホストに添加 し、乾燥させフィルム状に成型しこれを試 料とした。この試料に線量を変えて X 線を 照射し蛍光スペクトルを測定した。

【結果と考察】 Fig. 1 に、ホストに fluorescein を 1wt%添加した試料の蛍光スペクトル (励起波長:370 nm) を示す。 X 線 照射線量とともに、440 および 520nm 付近のピーク強度の低下が見られた。

Fig. 2 に、ホストに fluorescein を 1wt% および BQ を 10wt% 添加した試料の蛍光スペクトル (励起波長:370 nm) を示す。 X 線 照射線量に対して 440nm 付近のピーク強度 に変化は見られなかった。

- [1] Yu-Mo Zhang, et al., Chemical Communications 50 (2014) 1420.
- [2] Ritsuha Tanaka, et al., Journal of Luminescence 267 (2024) 120367.

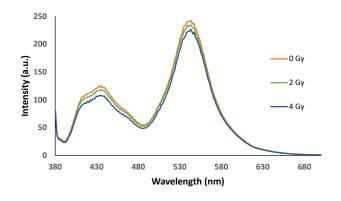
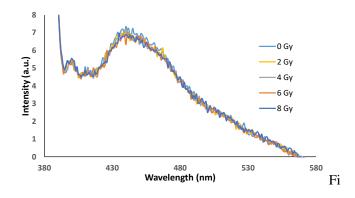


Fig. 1. Photoluminescence spectra of fluorescein in PMMA and PC before and after X-ray irradiation.



g. 2. Photoluminescence spectra of fluorescein and BQ in PMMA and PC before and after X-ray irradiation.

## 中性子照射による Mg、Pr 共添加 LiTaO3 セラミックスの熱蛍光特性

Neutron-induced Thermoluminescence Properties of Mg, Pr- codoped LiTaO<sub>3</sub> Ceramics 静岡大<sup>1</sup>,近大原研<sup>2</sup> <sup>(M1)</sup> 平松 祐汰<sup>1</sup>,若林 源一郎<sup>2</sup>,越水 正典<sup>1</sup>

Shizuoka Univ. <sup>1</sup>, Kindai Univ. <sup>2</sup>, <sup>°</sup>Yuta Hiramatsu<sup>1</sup>, Genichiro Wakabayashi<sup>2</sup>, Masanori Koshimizu<sup>1</sup> E-mail: hiramatsu.yuta.20@shizuoka.ac.jp

【緒言】中性子利用の拡大に伴い、中性子検出に対する需要が増加している。また、中性子検出では、その電荷が中性であるために、中性子捕獲反応を介した荷電粒子への変換が求められる。従来、中性子検出においては ³He 比例計数管が ³He の高い Q 値と中性子断面積の観点から広く用いられている。その一方、³He ガスの希少性の観点から新たな検出手段の検討も進められている。ここで、代替元素として ³He と比較して遙かに高い天然存在比を有する °Li が候補として挙げられている。本研究では、Li

を母材に含有しているLiTaO<sub>3</sub>にMgとPrをそれぞれ電子捕獲中心と発光中心としての作用を企図し<sup>11</sup>、微量添加した焼結体を作製した。また、両試料に対し、X線および熱中性子線照射後の熱蛍光グローカーブにおける熱蛍光特性の評価を行った。

【実験方法】 "Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> (99.99%) または "Li 濃縮 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> (<sup>6</sup>Li: 95 atom%含有)、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、MgO、および Pr<sub>6</sub>O<sub>11</sub> をカチオン両論比で混合し、錠剤成型後、電気炉で 1070℃にて焼成し、 "Li または "Li 濃縮 LiTaO<sub>3</sub>: Mg 5 mol%, Pr 1mol%試料を作製した。これら試料の電磁放射線および中性子応答性を調べるために、それぞれ X 線と熱中性子を照射後、熱蛍光グローカーブを測定した。

【結果と考察】Fig. 1 に X 線を 0.1 Gy 照射後の熱 蛍光グローカーブを示す。『Li および <sup>6</sup>Li の両試料 において、490 K にピークに加え、ショルダーが 400 および 540 K に観測され、両者の熱蛍光強度は 同程度であった。そのため、中性子源に由来する

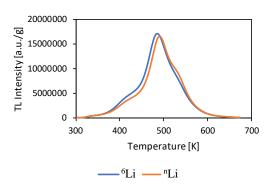


Fig. 1. Thermoluminescence glow curves of Mg, Pr-codoped LiTaO<sub>3</sub> irradiated with X-rays to 0.1 Gy.

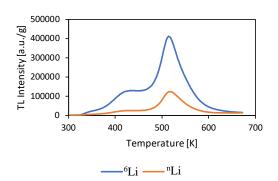


Fig. 2. Thermoluminescence glow curves of Mg, Pr-codoped LiTaO<sub>3</sub> irradiated with neutrons at  $1.0 \times 10^9$  neutrons/cm<sup>2</sup>.

 $\gamma$ 線への応答性が同程度であることが確認された。Fig. 2 に両試料を熱中性子で  $10^{\circ}$  neutrons/cm<sup>2</sup> 照射後の熱蛍光グローカーブを示す。 両試料において X 線照射時と同様に 515 K にピークおよび 430 K にショルダーが観測された。また、 $515\pm15$  K の熱蛍光強度を積分すると、 $^{\circ}$ Li 試料は  $^{\circ}$ Li 試料に対し、3.4 倍の強度を示した。この差は、Fig. 1 での議論を考慮すると、中性子由来だと考えられるため、 $^{\circ}$ Li 濃縮試料は熱中性子に対する検出能を有していることが示された。

【参考文献】[1] Shaopeng Lin et al., J. Mater. Chem. C, 6 (2018) 10067-10072.

## Effect of Composition on Scintillation Light Yield of Ce-doped Gd<sub>3</sub>Al<sub>5-y</sub>Ga<sub>y</sub>O<sub>12</sub> Nanoparticle Scintillators

#### Shizuoka Univ. P. G. P. R. Abewardana, Masanori Koshimizu

E-mail: ruwan.abewardana.23@shizuoka.ac.jp

[Introduction] Scintillators are materials that emit light when exposed to ionizing radiation and play a crucial role in radiation detection applications. In addition, some applications have been reported using scintillator nanoparticles as an in-vivo light source upon irradiation from the outside. In our previous work [1], we have developed Ce-doped Gd<sub>3</sub>Al<sub>5-x</sub>Ga<sub>x</sub>O<sub>12</sub> (GAGG) nanoparticles. In this study, we optimized the composition to achieve high scintillation yields.

[Experimental] Ce-doped GAGG nanoparticles were synthesized using tartaric acid as a complexing agent with the dissolution of Gd, Al, Ga, and Ce nitrates in an aqueous solution. After room-temperature stirring for 1 d and heating at 80°C for 2 h, the gel was dried, ground, and calcined at 1300°C for 6 h to obtain the nanoparticles.

[Results and Discussion] The scintillation spectra (Figure 1) show an emission peak at 550 nanometers, indicating the 5d to 4f transition of Ce3+ ions. Pulse height spectra analysis (Figure 2) reveals a clear correlation between Ce concentration and light yield, with concentrations of 0.1%, 0.3%, 0.5%, 0.7%, and 1% showing peak

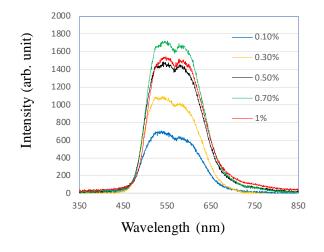


Fig. 1. Scintillation spectrum of the nanoparticles synthesized with different Ce concentrations.

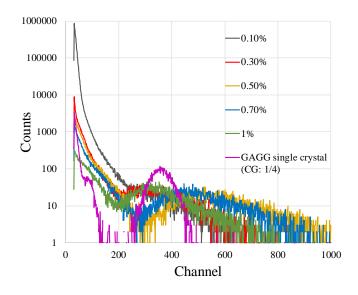


Fig. 2. Pulse height spectra of the nanoparticles with different Ce concentrations.

channel numbers of 270, 280, 520, 464, and 300, and light yields of 9,300, 9,600, 17,800, 15,900, and 10,300, respectively.

#### Reference

[1] Koshimizu et al., Sensors and Materials 35 (2023) 521.

## 発光中心添加 Ca<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 熱蛍光体における LET 特性の制御

Control of LET dependence of thermoluminescence properties of doped  $Ca_2B_2O_5$ 

静大電子研<sup>1</sup>,東北大院工<sup>2</sup>,QST<sup>3</sup>

°越水 正典<sup>1</sup>, 小宮 基<sup>2</sup>, 古場 裕介<sup>3</sup>, 藤本 裕<sup>2</sup>, 浅井 圭介<sup>2</sup>

Shizuoka Univ. <sup>1</sup>, Tohoku Univ. <sup>2</sup>, QST<sup>3</sup> <sup>o</sup>Masanori Koshimizu<sup>1</sup>, Hajime Komiya<sup>2</sup>, Yusuke Koba<sup>3</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>2</sup>, Keisuke Asai<sup>2</sup>

E-mail: koshimizu.masanori@shizuoka.ac.jp

【緒言】蓄積型線量計を用いた重粒子線の線量測定において、その応答の線エネルギー付与 (LET) に対する顕著な依存性は、線量の正確な測定を困難とする。この LET 依存性について、市販の熱 蛍光体に対する解析例は数多い。一方で、材料開発者がこの LET 依存性の解明ないし制御に取り 組む事例というのはあまり見られない。材料開発の観点からは、例えば、同一ホストに対してドーパントの種類や濃度を変化させた材料を開発し、その LET 依存性を系統的に調査することが可能である。本講演では、我々が熱中性子測定用の熱蛍光体として開発した、発光中心添加  $Ca_2B_2O_5$  セラミックスに対し、LET 依存性の制御に成功した事例を紹介する。

#### 【実験方法】

【結果と考察】既往の希土類添加 Ca2B2O5 セラミックスの熱蛍光特性の LET 依存性 の我々の研究では、

- ① 正孔捕獲機能を有する添加イオン+ 電荷補償欠陥 (Ce 添加 Ca<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>5</sub> が該当)
- ② 正孔捕獲機能を有する添加イオン(電 荷補償なし)(Eu添加 Sr<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>5</sub>が該当)
- ③ 正孔捕獲機能を有しない添加イオン+電荷補償欠陥(Dy 添加  $Ca_2B_2O_5$  が該当)というケースを対象として研究をこれまで進めてきた。これらの分類での LET 依存性の急峻さは、(1)>2>3となることから、少なくともこれまでの研究事例では、正孔捕獲機能を有する発光中心の添加や、電荷補償欠陥の生成は、LET 依存性を急峻にするものと結論づけられる。これらの結果からの自然な推察として、
- ④ 正孔捕獲機能を有しない添加イオン (電荷補償なし)

のケースにおいて最も LET 依存性が緩やかであると予想される。これを実現するものとして、Sn 添加  $Ca_2B_2O_5$ セラミックスとして実現し、その LET 依存性を解析した結果として、グローカーブを Fig. 1 に、LET に依存した熱蛍光強度を Fig. 2 に示す。①  $\sim$ 3のケースと比較して緩やかな LET 依存性が達成され、仮説が実証された。

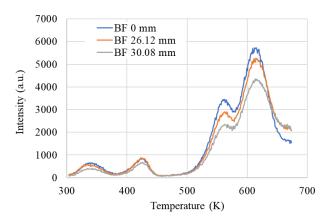


Fig. 1. TL glow curves of Sn-doped  $Ca_2B_2O_5$  ceramics after irradiation of 135-MeV/n carbon with different thicknesses of binary filter (BF).

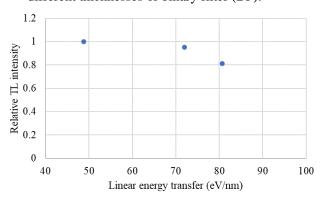


Fig. 2. LET dependence of TL intensity of Sn-doped Ca<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ceramics.

#### エネルギー移動の効率化を目指したプラスチックシンチレータの開発

# Development of plastic scintillators to achieve enhanced energy transfer efficiency 静岡大 <sup>(B)</sup>金成 太陽, 越水 正典

Shizuoka Univ. °Taiyo Kanenari, Masanori Koshimizu E-mail: kanenari.taiyo.21@shizuoka.ac.jp

【緒言】プラスチックシンチレータは高速応答性、大規模化の容易さ、および機械的強靭性に優れる。プラスチックシンチレータのホストとなる一般的なポリマー(ポリスチレンやポリビニルトルエン)は、バンドギャップが大きい。そのため、ポリマーと第一蛍光分子間のバンドギャップ差が大きく、エネルギー移動が非効率的になってしまう。本研究では、ポリビニルトルエンをホストとした既報[1]を参考に、9,9-dimethylfluorene(MF)を添加し、ポリスチレンから第一蛍光分子へのエネルギー移動の効率を上げ、より高いシンチレーション収率を持つプラスチックシンチレータの開発を目的とした。

【実験方法】ポリスチレンをホストとし、第一蛍光分子として DPO (2 wt%) あるいは butyl-PBD (2 wt%)、エネルギー移動効率化の促進材として MF (0 あるいは 30 wt%) を THF に 溶解し、室温で乾燥させ、試料を作製した。その後、すべての試料について、 $^{241}$ Amから発生する  $\gamma$  線(59.5 keV)に対する波高スペクトルを得た。

【結果と考察】Fig. 1 に DPO を添加した試 料、Fig. 2 に butyl-PBD を添加した試料の波 高スペクトルとそのガウス関数によるフィ ッティング結果を示す。本研究で作製したプ ラスチックシンチレータでは、MF 添加によ りチャンネルピークが高チャンネル側に顕 著にシフトし、シンチレーション収率が向上 した。NE142 の発光量(5,200 photons/MeV) に基づき、MF添加量 30 wt%でのシンチレー ション収率は、DPO の場合には 11,500 photons/MeV、butyl-PBD の場合には 15,000 photons/MeV と推算された。以上の結果から、 作製したシンチレータでは、MF を添加する ことによりエネルギー移動が効率良く行わ れ、シンチレーション収率を向上させること に成功した。

【参考文献】[1] Ziqing Han et al., ACS Appl. Polym. Mater. 4 (2022) 4424-4431.

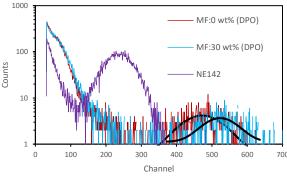


Fig. 1. Pulse-height spectra of scintillator with DPO added as the primary dye, and NE142.

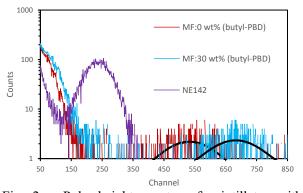


Fig. 2. Pulse-height spectra of scintillator with butyl-PBD added as the primary dye, and NE142.

## 量子ドット含有量が異なる 有機無機ハイブリッドシンチレータの開発

## Development of Organic-Inorganic Hybrid Scintillators Loaded with Different

**Quantum Dots Contents** 

静岡大 ○(B)麻生一樹, 越水正典

Shizuoka Univ., OKazuki Asou, Masanori Koshimizu

E-mail: aso.kazuki.21@shizuoka.ac.jp

【緒言】次世代の素粒子実験で利用されるシンチレーション検出器には、高時間分解能かつ、大きな体積をカバーできるシンチレータが必要である。そこで、ペロブスカイト量子ドット(QD)を添加した有機無機ハイブリッドシンチレータを開発することで、上記の要求を満たすことを目的とした。本研究では、大量合成可能な手法[1]で QD を合成し、QD の添加量が異なるシンチレータを開発した。

【実験方法】既報[1]に従い、蛍光量子収率 (PL QY) の異なる 3 種類の CsPbBr<sub>3</sub> を合成し、A ~Cの3種類のシンチレータを合成した。Aに は PL OY45.5%の OD がポリスチレンに対して 10 wt%、B には PL QY50%の QD がポリスチレ ンに対して 20 wt%、C には PL QY32%の QD が ポリスチレンに対して 40 wt%で添加されてい る。作製した3種類のシンチレータに対し、X 線ラジオルミネッセンス測定 (XRL) を行った。 【結果と考察】図1にBの試料に添加したQD の TEM 像を示す。この QD は、直径 10 nm 程度 の均一なサイズと、格子縞が観測されるほどの 高い結晶性を有していた。図2にA、B、およ び C のシンチレーションスペクトルを示す。A では538 nm、B では540 nm、C では543 nm に 蛍光ピークが観測された。全試料において、シ ンチレータの合成に用いる前の QD の発光ピー

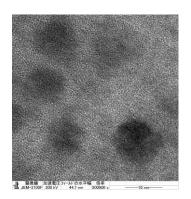


Fig.1 TEM image of Quantum dots.

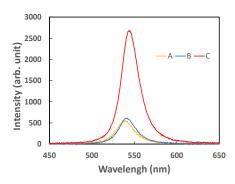


Fig. 2 Scintillation spectra of samples.

ク( $520-530 \, \mathrm{nm}$ )よりも長波長側にピークが観測された。これは、自己吸収による長波長シフトと考えられる。 $20 \, \mathrm{wt}$ %と  $40 \, \mathrm{wt}$ %の試料のシンチレーション強度は、ぞれぞれ、 $10 \, \mathrm{wt}$ %の試料のおよそ  $1.1 \, \mathrm{fm}$  倍および  $5 \, \mathrm{fm}$  であった。このことは、 $\mathrm{QD}$  の  $\mathrm{PL}$  QY が 30~50%のとき、シンチレーション強度が  $\mathrm{QD}$  の添加量に対して非線形的に増加することを示す。

【参考文献】[1] Mecca et al., ACS Appl. Nano Mater. 6 (2023) 9436.

## 組成の異なる赤色発光 Eu 添加 TAGG ナノ粒子シンチレータの蛍光特性

Luminescence and Scintillation Properties of Red-Emitting Eu-doped TAGG

Nanoparticle Scintillators with Different Compositions

静岡大 ○(M1)高橋 悠真, 越水 正典

Shizuoka Univ. °Yuma Takahashi¹, Masanori Koshimizu¹

E-mail: takahashi.yuma.20@shizuoka.ac.jp

【緒言】生体内部でシンチレーションを発生させる技術の需要は、医療や生体研究において高まっている。ガーネット型構造の無機結晶シンチレータは化学的に安定で潮解性がないといった特徴や、高い密度および実効原子番号を有することから、ナノ粒子にすることで非侵襲的な生体投与が期待される。本研究では、赤色光を吸収する光受容体への応用を目指した赤色発光ナノ粒子シンチレータの開発を目的とし、発光中心元素に Eu を用い、より内部量子収率が高い TAGG ( $Tb_3Al_xGa_{5-x}O_{12}$ ) の組成の探索を行った。

【実験方法】ホスト組成に  $Tb_3Al_xGa_{5-x}O_{12}$  を採用し、Tb、Al、および Ga の硝酸塩を量論比に基づいて 0.6 mol/L の酒石酸水溶液 25 mL に溶解した。Tb に対して 0.75 mol%の Eu 濃度となるように Eu の硝酸塩として溶解した。このとき、硝酸塩の総物質量を酒石酸の物質量の 1/2 とした。この溶液に蓋をして 24 時間攪拌した後、80 °C で 2 時間加熱して乾燥ゲルとした。これを乳鉢で砕き、電気炉で 1300 °C、6 時間焼成し、試料を得た。

【結果と考察】Fig. 1 に x=0 のサンプルの蛍光 励起スペクトルを示す。蛍光スペクトルにおい て、x=0~5のいずれのサンプルからも589およ び 608 nm にピークが観測された。これらのピー クは、TGG: Eu<sup>3+</sup>についての既報[1]より、それ ぞれ Eu<sup>3+</sup>の <sup>5</sup>D<sub>0</sub>→<sup>7</sup>F<sub>1</sub> と <sup>5</sup>D<sub>0</sub>→<sup>7</sup>F<sub>2</sub> の電子遷移に帰 属される。励起スペクトルにおいて、316 nm 付 近のブロードなピークと、355、361、371、379、 および 488 nm に鋭いピークが観測された。 既報 [1] $\sharp b$ ,  $\forall u - k c c$  = -p t c c c鋭いピークは  $Tb^{3+}$ の  ${}^{7}F_{6} \rightarrow {}^{5}D_{0}$ 、 ${}^{7}F_{6} \rightarrow {}^{5}D_{1}$ 、 ${}^{7}F_{6} \rightarrow {}^{5}D_{2}$ 、  ${}^{7}F_{6} \rightarrow {}^{5}D_{3}$ 、および  ${}^{7}F_{6} \rightarrow {}^{5}D_{4}$  にそれぞれ帰属される。 Fig. 2 に、x の値と PL QY の関係を示す。PL QY は x の増加に伴い減少し、x=0 のときが最も高 いPL QYを示した。これは、Eu³+の周囲の配位 環境が変化することで、5D<sub>0</sub>→7F<sub>1</sub>遷移の強度が低 下したためと考えられる[2]。

[1] Sawada et al., J. Lumin. 165 (2015): 138-144.

[2] Nakanishi et al., J. Lumin. 266 (2024): 120269.

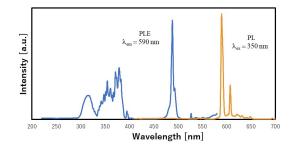


Fig. 1. Room-temperature PL and PLE spectra for the TAGG (x=0) phosphor measured with  $\lambda_{ex} = 350 \text{ nm}$  and  $\lambda_{em} = 590 \text{ nm}$ .

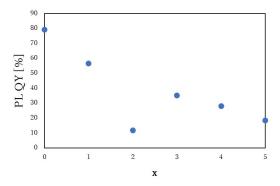


Fig. 2. Relationship between x and PL QY.

## 9-Vinylcarbazole 添加紫外線硬化プラスチックシンチレータの開発

## **Development of UV-cured Plastic Scintillators Containing 9-Vinylcarbazole**

#### 静岡大 ○(B)林 南瑠, 越水 正典

Shizuoka Univ. ONaru Hayashi, Masanori Koshimizu

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、成形加工が容易であり、材料が安価という特徴がある。特に、光重合を用いれば、熱重合に比べて短時間で作製が可能である。しかし、光重合を用いて作製したシンチレータの発光量は熱重合で作製した場合に比べて低くなる。[1]そこで、ホストポリマーとして 9-vinylcarbazole を添加したシンチレータの作製を行った。PVKのバンドギャップは 3.5 eV であり、一般的にホストポリマーとして使われているポリスチレンより小さい。[2]そのため、電子励起数が増え、発光量が増加すると考えた。本研究では、発光量に対する 9-vinylcarbazole の濃度依存性を調査した。

【実験方法】UV 硬化樹脂である M-211B に光重合開始剤である Irgacure TPO を 0.067 wt%添加した。次に蛍光体である DPO および POPOP をモル比で 80:1 に混合したものと、9-vinylcarbazole を加え、365 nm の紫外線を 5 時間照射し硬化させて試料を作製した。試料の波高スペクトル及び蛍光励起スペクトルを測定した。

【結果と考察】Fig. 1 に 9-vinylcarbazole 濃度 0,30, 40, および 60 wt%の試料の励起スペクトルおよ び蛍光スペクトルを示す。450 nm 付近に蛍光ピ ークが存在することから、この蛍光は POPOP に 帰属される。また、励起スペクトルの強度は、9vinylcarbazole の HOMO-LUMO ギャップである 3.5 eV に対応する 350 nm 付近で、9-vinylcarbazole の添加濃度が高くなるほど高くなった。このこと から、9-vinylcarbazole が光を吸収して励起状態と なり、その後、励起エネルギーが DPO に移動し その発光を POPOP が吸収して、蛍光を呈したこ とがわかる。Table 1 に 9.9-dimetylfluorene 濃度と 発光量との関係を示す。市販のプラスチックシン チレータである NE142 の発光量 (5200 photons/MeV(ph/MeV)) との波高スペクトルの光 電吸収ピークチャンネルの比に基づき推算した。 9-vinylcarbazole の添加濃度とともに発光量が高 くなり、添加濃度が30wt%と60wt%のとき、9600 ph/MeV で最大となった。これは、市販のプラス チックシンチレータである EJ-204[3]の 92 %に当 たる。

#### 【参考文献】

- [1] D. Kim, et al. Nucl. Eng. Technol. 52, 2910-2917 (2020).
- [2] A. Sato, et al. RSC Adv. 11, 15581-15589 (2021).
- [3] https://eljentechnology.com/products/plastic-scintillators/ej-200-ej-204-ej-208-ej-212

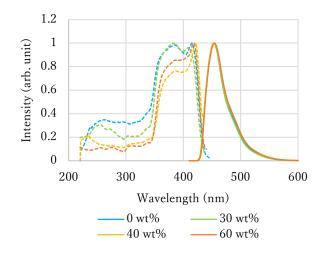


Fig. 1. Emission and excitation spectra of samples containing 9-vinylcarbazole.

Table 1. Scintillation light yields of plastic scintillators containing 9-vinylcarbazole.

DPO+POPOP 60 wt% (M-211B に対して)	
9-vinylcarbazole	マシ 小 月 <b>、 「 1 /b / 「 1 /b</b> / 「 1 /b / 「 1 /b / 「 1 /b / 」
(M-211B に対して)	発光量 [ph/MeV]
0 wt%	8800
10 wt%	9300
20 wt%	9200
30 wt%	9600
40 wt%	9400
50 wt%	9100
60 wt%	9600
70 wt%	8500

# トリメトキシフェニルシラン修飾 LiGaO2 ナノ粒子添加中性子検出用プラスチックシンチレータの開発

Development of plastic scintillators loaded with trimethoxyphenylsilane-modified LiGaO2 nanoparticles for neutron detection 静岡大 (M2) 塚原悠久,越水正典

Shizuoka Univ. °Haruhisa Tsukahara, Masanori Koshimizu E-mail: tsukahara.haruhisa.19@shizuoka.ac.jp

【緒言】シンチレータは、放射線を可視光へと変換する蛍光体である。近年、中性子検出用シンチレータは、基礎科学分野および安全保障分野などで注目が集まっている。従来、中性子検出には ³He 比例計数管などが用いられてきた。9.11 事件以降、安全保障分野において中性子検出器の需要が高まっている。一方で、原料となる ³He の枯渇による生産コストの高騰および大型化の困難が課題となっている。低コストかつ大型化の容易なプラスチックシンチレータ(PS)は、中性子検出用シンチレータとして注目されている。PS 自体には、熱中性子検出能はほとんどないため、中性子と核反応を起こして荷電粒子を放出する 10B や 6Li を含有する化合物をナノ粒子として添加する手法が提案されてきた。ナノ粒子として添加することで、10B や 6Li のポリマーへの溶解度の制限なしで添加することが可能である[1]。我々のグループでは、LiGaO2ナノ粒子を添加することで、PS による中性子検出を可能とした[2]。しかし、PS 下部へのナノ粒子の凝集が課題となった。本研究では、LiGaO2ナノ粒子にトリメトキシフェニルシラン(PhTMS)で表面修飾したナノ粒子を PS に添加し、ナノ粒子の分散性を向上させ、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、先行研究[2]と同様な手法を用いた。続いて、合成した LiGaO2ナノ粒子に蒸留水を加え超音波洗浄を 1 h 行った。PhTMS をエタノールに溶解し、ナノ粒子の分散液に滴下した。その溶液の pH を希塩酸で 10.7 に調整し、90°Cで 72 h 攪拌した。その後、遠心分離を行い、上澄み液を除去後、蒸留水とトルエンで洗浄し、乾燥させ、粒子を取り出した。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 (物質量比 80:1)をテトラヒドロフランに溶解し、表面修飾  $LiGaO_2$ 粒子を加え、溶媒を完全に蒸発させた。スチレンモノマーユ

ニットに対し DPO の濃度を 15 mol%として加え、表面修飾  $\text{LiGaO}_2$  の添加量をポリスチレンに対して 10 wt%とした。

【結果と考察】Fig. 1 に(a)無修飾および(b)表面修飾 LiGaO2添加 PS の断面 Ga の EDS マップを示す。無修飾 LiGaO2添加 PS では、460  $\mu$ m の PS の厚さに対して PS 下部に 40  $\mu$ m のナノ粒子層が観測された。表面修飾 LiGaO2添加 PS では、350  $\mu$ m の PS の厚さに対して PS 下部に 150  $\mu$ m のナノ粒子層が観測された。Fig. 2 に表面修飾 LiGaO2 ナノ粒子および表面修飾 LiGaO2 添加 PS の XRL スペクトルを示す。表面修飾 LiGaO2 赤加 PS の XRL スペクトルを示す。表面修飾 LiGaO2 大力粒子の380 nm 付近に観測されたピークは酸素空孔欠陥由来の発光であると推察される[3]。表面修飾 LiGaO2添加 PS の発光では、420 nm 付近にピークが観測され、POPOP 由来の発光と推察される。PS 内からのナノ粒子の発光は観測されなかった。

【参考文献】[1] Haruhisa Tsukahara et al. / Journal of Luminescence 271 (2024) 120592.

[2] 塚原悠久ら、2023 年第 84 回応用物理学会春季 学術講演会[20p-P01-16].

[3] L. Trinkler et al./ Optical Materials 69 (2017) 449-459.

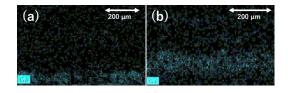


Fig. 1 EDS maps of Ga of (a) unmodified and (b) surface-modified LiGaO<sub>2</sub> nanoparticles-

loaded plastic scintillators.

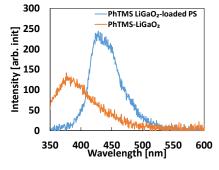


Fig. 2 XRL spectra of surface-modified LiGaO<sub>2</sub>-loaded plastic scintillator and surface modified-LiGaO<sub>2</sub> nanoparticles.