

一般セッション(口頭講演) | 2 放射線: 2.5 放射線誘起蛍光体

2024年9月16日(月) 13:00 ~ 17:45 会場 D62 (万代島ビル)

[16p-D62-1~17] 2.5 放射線誘起蛍光体

越水 正典(静岡大)、岡田 豪(金沢工大)

◆ 奨励賞エントリー

13:00 ~ 13:15

[16p-D62-1]

波動方程式を用いた固体飛跡検出器中エッチピット成長挙動についての新しいシミュレーション

○(M1)勢一 隼人¹、金崎 真聡¹、山内 知也¹ (1.神大院海事)

◆ 奨励賞エントリー

13:15 ~ 13:30

[16p-D62-2]

PADC検出器の紫外線及びプロトン等の照射効果

○木本 敦¹、勢一 隼人¹、山田 怜央¹、小日向 大輔¹、貞光 俊斗¹、山内 知也¹、金崎 真聡¹、楠本 多聞²、小平 聡²、石川 一平³ (1.神大院海事、2.量研、3.舞鶴高専)

13:30 ~ 13:45

[16p-D62-3]

ガンマ線照射によるPADC飛跡検出器の構造変化

○小日向 大輔¹、貞光 俊斗¹、木本 敦¹、勢一 隼人¹、山田 怜央¹、楠本 多聞²、金崎 真聡¹、小平 聡²、藤乗 幸子³、誉田 義英³、山内 知也¹ (1.神大院海事、2.量研、3.阪大産研)

13:45 ~ 14:00

[16p-D62-4]

PADC 検出器中に形成される放射線損傷における エーテル基損失量とヒドロキシル基生成量との関係

○山田 怜央¹、小日向 大輔¹、貞光 俊斗¹、木本 敦¹、勢一 隼人¹、楠本 多聞²、金崎 真聡¹、小平 聡²、藤乗 幸子³、山内 知也¹ (1.神大院海事、2.量研、3.阪大産研)

14:00 ~ 14:15

[16p-D62-5]

極低温照射後のアニーリング過程におけるPADC中ヒドロキシル基の生成

○貞光 俊斗¹、小日向 大輔¹、木本 敦¹、勢一 隼人¹、山田 怜央¹、金崎 真聡¹、小平 聡²、山内 知也¹、Ngono-Ravache Yvette³、楠本 多聞² (1.神大院海事、2.量研、3.CIMAP-GANIL)

14:30 ~ 14:45

[16p-D62-6]

Eu添加BaFCl透光性セラミックスの作製と放射線応答特性の評価

○尾竹 祥太¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

14:45 ~ 15:00

[16p-D62-7]

Tb添加CaHfO₃単結晶シンチレータのMg置換による発光量向上○遠藤 優介¹、市場 賢政¹、中内 大介¹、渡辺 賢一²、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.九州大)

15:00 ~ 15:15

[16p-D62-8]

SrCl₂:Eu透明セラミックスのシンチレーション特性におけるEu濃度依存性○生方 丈士¹、尾竹 祥太¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

15:15 ~ 15:30

[16p-D62-9]

Nd添加BaO-Bi₂O₃-P₂O₅ガラスの放射線誘起蛍光特性○宮島 溪太¹、西川 晃弘¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

15:30 ~ 15:45

[16p-D62-10]

Tm添加Ca₃TaGa₃Si₂O₁₄単結晶シンチレータのTm濃度依存性○高橋 遼成¹、岡崎 魁¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

15:45 ~ 16:00

[16p-D62-11]

Mn添加Y₃Al₅O₁₂単結晶の光学及びシンチレーション特性○林 尚輝^{1,2}、國方 俊彰²、加藤 匠²、中内 大介²、河川 範明²、尾身 博雄¹、柳田 健之² (1.大和大学、2.奈良先端科学技術大学院大学)

16:15 ~ 16:30

[16p-D62-12]

Eu添加Gd₃(Al,Ga)₅O₁₂単結晶シンチレータのAl/Ga比の最適化○國方 俊彰¹、渡辺 賢²、木村 大海³、加藤 匠¹、中内 大介¹、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端科学技術大学院大学、2.九州大学、3.産業技術総合研究所)

16:30 ~ 16:45

[16p-D62-13]

Ho添加CsI単結晶のシンチレーション特性評価

○高瀬 峻汰¹、宮崎 慧一郎¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

16:45 ~ 17:00

[16p-D62-14]

熱中性子検出用Eu添加LiBr単結晶シンチレータの開発

○宮崎 慧一郎¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

17:00 ~ 17:15

[16p-D62-15]

Tb添加Sr₂Y₈(SiO₄)₆O₂結晶シンチレータにおけるTb濃度依存性○坪内 廉¹、江澤 喜朗¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

17:15 ~ 17:30

[16p-D62-16]

シンチレータ型放射線電池の基礎検討

○柳田 健之¹、岡崎 魁¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河川 範明¹ (1.奈良先端大)

17:30 ~ 17:45

[16p-D62-17]

(n-CH₃PEA)₂PbCl₄結晶のシンチレーション特性評価

○若林 樹¹、山林 恵士¹、中内 大介¹、岡崎 魁¹、河野 直樹²、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.秋田大)

波動方程式を用いた固体飛跡検出器中エッチピット成長挙動について の新しいシミュレーション

A novel simulation of etch-pit evolution in Solid State Nuclear Track Detectors using wave equation

神大院海事¹ ○勢一 隼人¹, 金崎 真聡¹, 山内 知也¹

Kobe Univ.¹ ○Hayato Seiichi¹, Masato Kanasaki¹, Tomoya Yamauchi¹

E-mail: 245w316w@stu.kobe-u.ac.jp

【はじめに】イオンの通り道に沿ったエッチング速度はトラックエッチング速度 V_t と呼ばれ、それがイオントラック外のバルクエッチング速度 V_b よりも大きい場合にエッチピットと呼ばれる微細な窪みが生じる。エッチピットの大きさや幾何形状、個数や分布から入射したイオンのエネルギーやイオン種、入射方向やフルエンス分布を求めることが可能である。エッチピットの成長挙動を記述するために「2速度モデル」が使われている。そこではトラックエッチング速度は直線と見られるイオントラック上においてのみ定義され、損傷の径方向の広がりは無視されているが、このモデルは実際上の成功を収めており、トラックエッチング速度が深さ方向に変化する場合でも、仮定したレスポンスに対する厳密解が得られる。ただし、トラックエッチング速度と同時にバルクエッチング速度も変化するような場合については実用可能な解を得るのは困難である。2速度モデルを含めて、エッチングによって生まれる表面がホイヘンスの原理を使って記述される。ホイヘンスの原理は光や音などの波の伝播を説明するが、波動を使ってエッチピットの成長挙動を直接記述しようとする試みはこれまで無かった。本研究は、2次元波動方程式を使ってエッチピットの成長挙動を直接記述しようとする国際的に見ても初めての試みである。

【シミュレーション結果】本研究では波動方程式を数値的に解くシミュレーションによりピット形状を求めている。ここではエッチング速度に相当する位相速度をメッシュごとに任意に設定することができる。バルクエッチング速度が深さに依存して変化する場合や、イオントラックが非連続的に存在する場合、また2速度モデルでは太さを持たない線としてしか考えることのできなかったイオントラックに実際的な径方向の広がりを持たせることも可能である。メッシュごとに行う基本的な計算を図1に示す。入射波として調和振動子を配列し、イオントラック上の波は1次元の波として取り扱っている。境界からの反射波の影響を低減するための境界条件も用意した。図2にトラックエッチング速度が深さ方向に変化する場合のシミュレーション結果を示す。講演では、波動方程式を用いた計算結果が、2速度モデルによる計算結果や実際のエッチピット観察結果とよく一致することを示す。

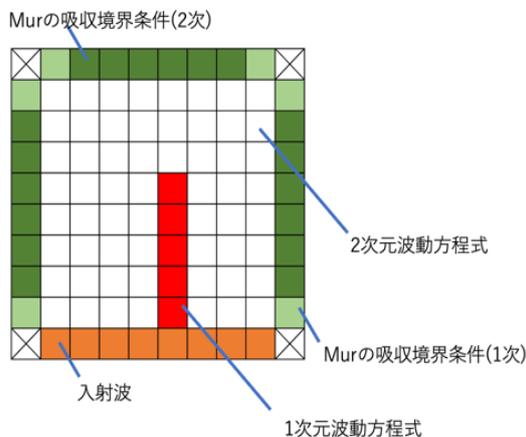


Fig. 1 Calculation conditions at each mesh

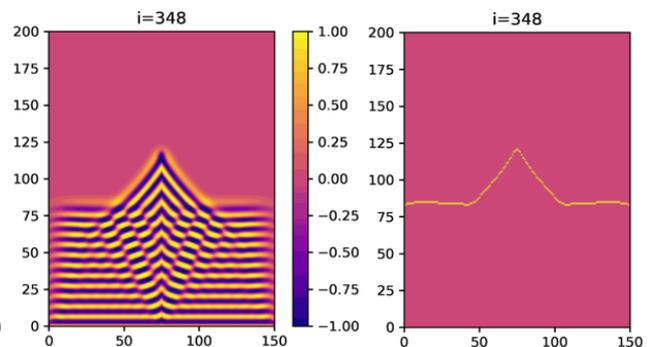


Fig. 2 Simulation using wave equation for a proton.

PADC 検出器の紫外線及びプロトン等の照射効果

Effects of UV 172 nm and proton irradiation on PADC detector

神大院海事¹, 量研², 舞鶴高専³, ○(M1)木本 敦¹, (M1)勢一 隼人¹, (M1)山田 怜央¹, (M2)
小日向 大輔¹, (M2)貞光 俊斗¹, 楠本 多聞², 金崎 真聡¹, 小平 聡², 石川 一平³, 山
内 知也¹

Kobe Univ.¹, QST², NIT Maizuru³, (M1) Atsushi Kimoto¹, (M1) Hayato Seiichi¹, (M1) Reo Yamada¹,
(M2) Daisuke Kohinata¹, (M2) Syunto Sadamitsu¹, Tamon Kusumoto², Makoto Kanasaki¹,
Satoshi Kodaira², Ippei Ishikawa³, Tomoya Yamauchi¹

E-mail: 246W310W@stu.kobe-u.ac.jp

【緒言】

PADC は放射線に対して感受性の高い固体飛跡検出器としてよく知られている。PADC はその検出感度の高さから核物理学, ラドン線量測定, 放射線生物学実験など様々な科学分野で広く使用されている。舞鶴工業高等専門学校では PADC を利用した放射線教育実験方法が提案されている。この PADC を用いた教育方法においてエッチング工程に膨大な時間を必要とすることが課題である。そのため本研究では, PADC に対して波長 253.7 nm の UV 照射を行いエッチピットの短時間の拡大を試みた。また紫外線照射による分子鎖切断について系統的に調査を行い, 固体飛跡検出器の改良を目指す。

【結果と考察】

PADC はモノマーである ADC と重合開始剤となる IPP の混合溶液を加熱することで重合が開始される。舞鶴工業高等専門学校では自作の PADC を作製しており, 市販の PADC に比べ短時間でエッチピットを拡大することが明らかになっている。そのため本研究では自作の PADC に対して波長 253.7 nm の UV を照射し表面を改質することでより高感度な PADC の作製を実現した。Fig.1 に市販の PADC である BARYOTRAK (フクビ化学工業社製) と UV 照射を行った自作 PADC (舞鶴工業高等専門学校製) を NaOH30 wt%の水溶液温度 90°Cで 10 分間エッチングを行った結果を示す。UV 照射を行うことによりエッチピットが約 10 μm まで拡大することが示された。BRYOTRAK と比較を行うと直径で約 4 倍程度拡大していることが示された。これに加え, 講演では 172 nm の紫外線が PADC に及ぼす照射効果について, ガンマ線やイオンの飛跡と比較し, その違いについて定性的・定量的に評価する方法についても発表を行う予定である。



Fig.1 Etch-pits of Alpha-particles on Home-made PADC with UV irradiation

ガンマ線照射による PADC 飛跡検出器の構造変化

Structural changes in PADC track detectors due to gamma irradiation

神大院海事¹, 量研², 阪大産研³ ○小日向 大輔¹, 貞光 俊斗¹, 木本 敦¹, 勢一 隼人¹,

山田 怜央¹, 楠本 多聞², 金崎 真聡¹, 小平 聡², 藤乗 幸子³, 誉田 義英³, 山内 知也¹,

Kobe Univ.¹, QST.², SANKEN.³, °Daisuke Kohinata¹, Shunto Sadamitsu¹, Atsushi Kimoto¹,

Hayato Seiichi¹, Reo Yamada¹, Tamon Kusumoto², Masato Kanasaki¹, Satoshi Kodaira²,

Sachiko Tojo³, Yoshihide Honda³, Tomoya Yamauchi¹

E-mail: 238w312w@stu.kobe-u.ac.jp

【はじめに】ポリアリルジグリコールカーボネート(PADC)は、最も感度の高いエッチング型固体飛跡検出器である。本研究は、ガンマ線照射が PADC 中もたらず放射線損傷についての基本的知見を得るために行われた。これは PADC が高感度である理由を、損傷構造及び照射誘起酸化反応との関係で理解するために必要である。損傷構造の評価はエッチングテストと赤外線分光分析からなる。飛程がおよそ 50 μm である 6 MeV/u Xe イオンを照射した PADC 検出器及び同薄膜 (厚さ 15 μm) に 10 から 210 kGy の吸収線量の範囲でガンマ線を照射した。この線量は PADC 中に形成されるプロトンや重イオンのイオントラック中心付近の局所線量に相当する。線量率は Co-60 線源からの距離によって調整し、0.04 Gy/s から 8.24 Gy/s の中で 7 種類の線量率を選択した。未照射では円柱形になる Xe イオンのエッチピットの形状は、ガンマ線を照射することによって、表面近くでは半径が大きく、深い部分では半径が小さくなることが知られている。この表面近くの半径が大きい部分を”Body”、深部の半径が小さい部分を”Neck”と呼ぶ。

【ガンマ線照射後の各官能基の変化】

PADC の薄膜試料に対して赤外線分光分析を行った。ガンマ線照射によるエーテル基の減少とヒドロキシル基の増加があり、変化量に相関があることが認められた。試料厚さから薄膜は”Body”の損傷に相当する情報を記録していると考えられる。定量的分析から、ヒドロキシル基の生成密度はバルクエッチング速度と良い相関を持っていることが新たに明らかになった。

また、PADC に対して ATR 法を用いて分析を行った。ガンマ線照射によるカーボネートエステル基を構成する C=O と C-O-C の減少が認められた。このことから、ガンマ線照射によってカーボネートエステル基の切断が生じていると考えられる。先行研究において、高線量でのカーボネートエステル基の切断は確認されていたが、本研究で低線量でも切断が生じることが認められた。

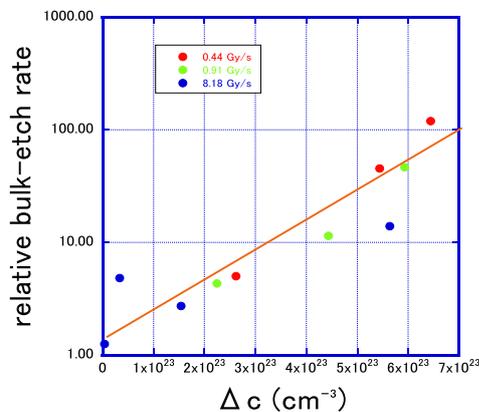


Fig. 1 Change in hydroxyl groups due to gamma irradiation.

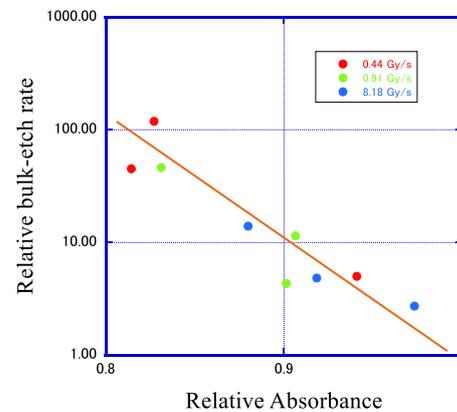


Fig. 2 Change in ether groups due to gamma irradiation.

PADC 検出器中に形成される放射線損傷における エーテル基損失量とヒドロキシル基生成量との関係

The relationship between the amount of ether group loss and hydroxyl group formation
in radiation damage formed in PADC detector

神大院海事¹, 量研², 阪大産研³ ○山田 怜央¹, 小日向 大輔¹, 貞光 俊斗¹, 木本 敦¹,
勢一 隼人¹, 楠本 多聞², 金崎 真聡¹, 小平 聡², 藤乗 幸子³, 山内 知也¹,

Kobe Univ.¹, QST.², SANKEN.³, °Reo Yamada¹, Daisuke Kohinata¹, Shunto Sadamitsu¹,
Atsushi Kimoto¹, Hayato Seiichi¹, Tamon Kusumoto², Masato Kanasaki¹, Satoshi Kodaira²,
Sachiko Tojo³, Tomoya Yamauchi¹

E-mail: 247w332w@stu.kobe-u.ac.jp

【緒言】

高い感度をもつポリアリルジグリコールカーボネート (PADC) 検出器は中性子等も検出可能であり、宇宙放射線線量計測などで使用されている。我々はその高い検出感度を実現させている分子構造上の特性を理解するため、イオントラックの損傷構造を系統的に評価している。本研究は、PADC 内で最も放射線感受性が高く、飛跡が生じる起点となっているエーテル基損失量と、飛跡生成時に新たな端点として生成するヒドロキシルの量との関係を定量的に明らかにすることを目的に行われた。薄膜化した PADC(約 10~15 μm 厚)に対して 6 MeV/u プロトンを照射し、FT-IR による分析を行った。さらに参照実験として 30~200 kGy の吸収線量の範囲でガンマ線を照射した。線量率は線源からの距離によって調整し、0.04~8.24 Gy/s の中で 4 種類の線量率を選択した。

【実験結果】

6 MeV/u のプロトン照射による PADC のエーテル基損失量とヒドロキシル基生成量の関係を Fig.1 に示す。PADC 中でエーテル基が 1 個失われるとおおよそ 2 個のヒドロキシル基が生成することが示された。またガンマ線照射による PADC のエーテル基損失量とヒドロキシル基生成量の関係を Fig.2 に示す (白抜きのプロットは先行研究の結果)。PADC 中でエーテル基が 1 個失われるとおおよそ 1 個のヒドロキシル基が生成することが示された。PADC 中に飛跡を作るプロトンと比べて、一様に損傷を与えるガンマ線照射では、ヒドロキシル基の生成量が少なくなる傾向があることが明らかになった。さらに 7 月に実施予定であるプロトン照射実験の結果についても報告する予定である。

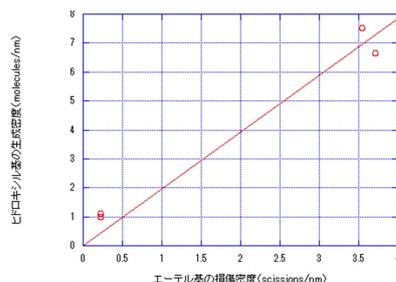


Fig.1 損傷密度と生成密度の相関 (プロトン)

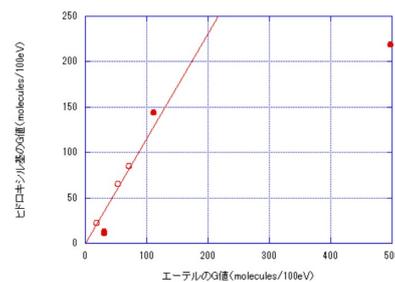


Fig.2 G 値の相関 (ガンマ線)

極低温照射後のアニーリング過程におけるPADC中ヒドロキシル基の生成 Generation of hydroxyl groups in PADC during annealing process after irradiation under cryogenic temperature

神大院海事¹, 量研², CIMAP-GANIL³

○貞光 俊斗¹, 小日向 大輔¹, 木本 敦¹, 勢一 隼人¹ 山田 怜央¹

金崎 真聡¹, 小平 聡², 山内 知也¹, Yvette Ngonon-Ravache³, 楠本 多聞²

Kobe Univ¹, QST², CIMAP-GANIL³

○Shunto Sadamitsu¹, Daisuke Kohinata¹, Atsushi Kimoto¹, Hayato Seiichi¹, Reo Yamada¹

Masato Kanasaki¹, Satoshi Kodaira², Tomoya Yamauchi¹, Yvette Ngonon-Ravache³, Tamon

Kusumoto²

E-mail: 236w313w@stu.kobe-u.ac.jp

【はじめに】

現在、固体飛跡検出器として最も感度の良いとされている PADC の放射線検出機構についての知見を得るために行われた。放射線の照射によって PADC 中にヒドロキシル基が生成することが知られている。また、ヒドロキシル基の生成密度と検出感度の間には強い相関が確認されており、ヒドロキシル基が PADC の固体飛跡検出器としての感度を支配する重要なパラメータと位置付けている。放射線照射によって PADC 中の分子鎖が切断されることで生じたラジカルが再結合することで、PADC 中にヒドロキシル基が生じているという考えに基づき、照射後からヒドロキシル基が生成していく様子を追跡した。16 K の極低温において照射を行うことで、生じるラジカルの移動を制限し、その後の昇温過程においてラジカルの移動を徐々に再開させることでヒドロキシル基の生成過程を追跡した。

【ヒドロキシル基の生成】

極低温時の照射では、 7×10^{11} ions/cm² 未満のフルエンスではヒドロキシル基の生成はほぼ確認されなかった。一方で、 7×10^{11} ions/cm² 以上のフルエンスではヒドロキシル基の生成が確認された。これは、イオントラックの重なりによるものであると推察され、ラジカルの移動がなくても再結合が進んだ結果であると考えられる。また、昇温過程においては、温度の上昇に伴うヒドロキシル基の生成が確認された。また、本年 6 月に CIMAP-GANIL にて行った実験の結果についても発表を行う予定である。

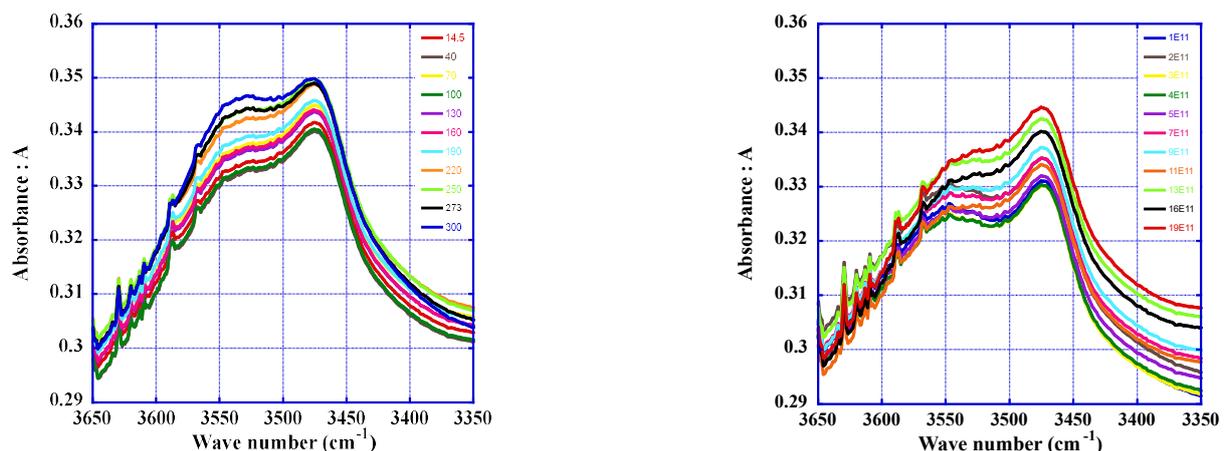


Fig1. Changes of OH groups in IR spectrum with fluence and temperature

Eu 添加 BaFCl 透光性セラミックスの作製と放射線応答特性の評価

Fabrication and evaluation of radiation response properties of Eu-doped BaFCl translucent ceramics

奈良先端大 °尾竹 祥太, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST °Shota Otake, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi, and Takayuki Yanagida

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

シンチレータは放射線計測に用いられる蛍光体の一種であり、一般的に高い光収率、短い蛍光寿命、高い検出効率等が要求される [1]。光収率と蛍光寿命は材料の発光特性であり、発光中心元素の添加などにより制御できる。また検出効率を高めるためには、大きい実効原子番号 (Z_{eff}) を持つことや高い透過率を持つバルク体を作製することが重要である。バルク体での透光性が重要なことから、シンチレータの材料形態には単結晶が汎用的に用いられてきた。単結晶は一般的に高い透光性を持つが、一方で作製に長い時間やコストがかかる点が課題として残されてきた。そこで我々は新たな材料形態として、透光性セラミックスに注目した。セラミックスは固相反応で作製するため、一般的に融液成長で育成される単結晶よりも短時間・低コストで作製が可能である。さらに透光性セラミックスは単結晶よりも添加物が偏析しにくく添加物を多量に含有できるという蛍光体応用における優位性を有する。

本研究では、新規シンチレータとして Eu:BaFCl 透光性セラミックスを作製した。Eu:BaFCl は光検出器に適した発光波長 (~380 nm)、比較的速い減衰時定数 (~5 μs)、高い化学安定性を持つが [2]、一方で透光性セラミックスの作製に関する報告はない。

図 1 に作製した Eu:BaFCl サンプルの XRD パターンを示す。全てのサンプルで BaFCl のリファレンスデータと同様のピークが得られ、不純物相は観測されなかった。図 2 は ^{137}Cs γ 線照射下のパルス波高値スペクトルを示しており、Ce:(Lu,Y) $_2$ SiO $_5$ 単結晶 (22,000 ph/MeV) と光収率を比較した。その結果、0.5% Eu 添加 BaFCl サンプルで最大の光収率 (~16,000 ph/MeV) が得られ、これは市販の Bi $_4$ Ge $_3$ O $_{12}$ 単結晶 (~7,000 ph/MeV) の約 1.5 倍の値であった [3]。本発表では光学特性および放射線応答特性の結果を基にし、具体的な発光中心の帰属や発光特性の評価を行う。

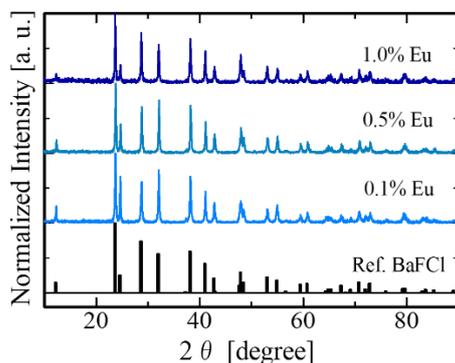


Fig. 1. XRD patterns of the prepared Eu:BaFCl samples and reference pattern of BaFCl (COD 9013891).

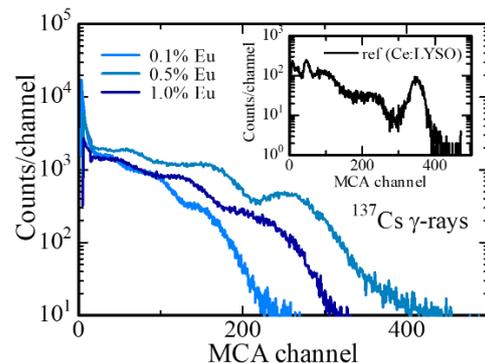


Fig. 2. Pulse height spectra of the samples under ^{137}Cs γ -ray (662 keV) irradiation. The inset indicates that of the Ce:(Lu,Y) $_2$ SiO $_5$ single crystal.

参考文献

- [1] P. Lecoq, *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **809**, 130 (2016).
- [2] M. Ignatovych *et al.*, Radiat. Prot. Dosimetry, **84**, 185 (1999).
- [3] M. Moszynski *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci., **51**, 1074 (2004).

Tb添加CaHfO₃単結晶シンチレータのMg置換による発光量向上

Improvement of Light Yield of Tb-doped CaHfO₃ Single Crystals by Mg-substitution

奈良先端大¹ 九州大²

○遠藤 優介¹, 市場 賢政¹, 中内 大介¹, 渡辺 賢一², 加藤 匠¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, Kyushu University², [○]Yusuke Endo¹, Kensei Ichiba¹, Daisuke Nakauchi¹, Kenichi Watanabe², Takumi Kato¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹
E-mail: endo.yusuke.ev5@ms.naist.jp

シンチレータとはX線や γ 線などの電離放射線を吸収し、検出可能な低エネルギー光子に即時変換できる蛍光体材料である。光電子増倍管やSiフォトダイオードなどでシンチレーション光を電気信号へ変換することにより放射線計測に用いることができる。近年、HfO₂系材料が新たなシンチレータの候補として注目されている。その中でも我々は密度が6.95 g/cm³、実効原子番号が65.2とシンチレータの母材として優れた材料特性を有するCaHfO₃に発光中心元素として様々な希土類を微量添加した単結晶を作製し、それらのフォトルミネッセンス (PL) およびシンチレーション特性を評価してきた [1–3]。その過程でTb:CaHfO₃において12000 photons/MeVと高い発光量が得られ [1]、Ce:CaHfO₃において母材の一部をMgによって置換することで発光量の改善がなされた。そこで本研究では、Tb:CaHfO₃の発光量を改善することを企図しTb:Ca_{1-x}Mg_xHfO₃ ($x = 0, 0.05, 0.075, 0.1$) 単結晶を作製し、そのPLおよびシンチレーション特性を評価した。

Fig. 1にX線照射下における作製したTb:Ca_{1-x}Mg_xHfO₃サンプルのシンチレーションスペクトルを示す。全てのMg濃度サンプルにおいて、350–650 nmの範囲でTb³⁺の4f–4f遷移に由来する複数の発光ピークが観測された [1]。Fig. 2に γ 線照射下におけるTb:Ca_{1-x}Mg_xHfO₃サンプルのパルス波高分布スペクトルを示す。発光量算出のために実用品で8000 photons/MeVを示すBi₄Ge₃O₁₂をリファレンスサンプルとして用いた。全てのサンプルで明瞭な光電吸収ピークが観測され、 $x = 0.075$ サンプルにおいて、17400 photons/MeVと作製サンプル中最も高い発光量が得られた。

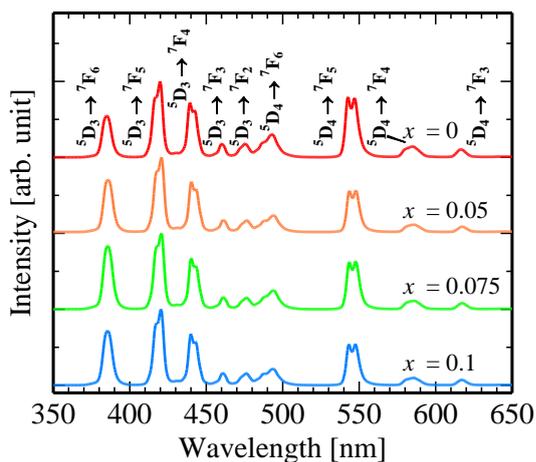


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of the Tb:Ca_{1-x}Mg_xHfO₃.

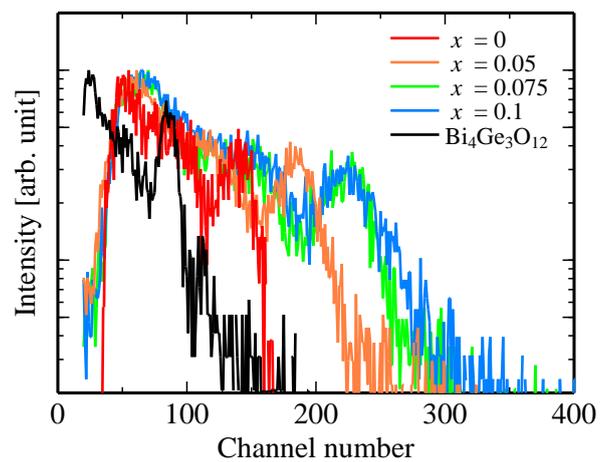


Fig. 2 Pulse height spectra of the Tb:Ca_{1-x}Mg_xHfO₃ and Bi₄Ge₃O₁₂ under γ -ray irradiation from ¹³⁷Cs (662 keV).

参考文献

- [1] Y. Endo *et al.*, Solid State Sci. **145**, 107333 (2023). [2] Y. Endo *et al.*, Sens. Mater. **36**, 473–479 (2024). [3] H. Fukushima *et al.*, J. Lumin. **250**, 119088 (2022). [4] H. Fukushima *et al.*, Sens. Mater. **35**, 429–437 (2023).

SrCl₂:Eu 透明セラミックスの シンチレーション特性における Eu 濃度依存性 Eu concentration dependence on scintillation properties of SrCl₂:Eu transparent ceramics

奈良先端大 °生方 丈士, 尾竹 祥太, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST °Takeshi Ubukata, Shota Otake, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi,
Takayuki Yanagida

E-mail: ubukata.takeshi.uv0@naist.ac.jp

シンチレータは電離放射線を可視光子に変換する蛍光体の一種であり、放射線検出器として医療・資源探査・宇宙開発等の幅広い分野で応用されている。これまでシンチレータに用いられてきた材料は、SrI₂:Eu 単結晶や LaBr₃:Ce 単結晶等の希土類イオンを添加した臭化物・ヨウ化物が多い。これらは既存のシンチレータの中でも高い発光量を示すが[1]、潮解性が高く空気中での使用に不向きであるため、現在も材料探索が行われている。またシンチレータには単結晶が用いられることが多いが、近年の作製技術の発展により単結晶と同等以上の透過率・発光量を有する透明セラミックスシンチレータが開発され[2]、国内外で盛んに研究されている。

本研究では、放電プラズマ焼結(SPS)法により SrCl₂:Eu 透明セラミックスを作製した。SrCl₂ のような塩化物はヨウ化物や臭化物に比べ潮解しにくく、また Sr²⁺と Eu²⁺は同じ価数かつ同等のイオン半径(Sr²⁺: 1.26 Å, Eu²⁺: 1.25 Å)を有しており、置換が容易であることから高い発光特性を示すことが期待される。SrCl₂:Eu はこれまでに単結晶においてシンチレーション特性が調査されているが[3]、透明セラミックスの作製に関する報告はない。

Fig.1 に SrCl₂:Eu 透明セラミックスのシンチレーションスペクトルを示す。すべてのサンプルにおいて、410 nm 付近に Eu²⁺の 5d-4f 遷移に起因する発光ピークが観測された[3]。Fig.2 に ¹³⁷Cs γ線照射下におけるパルス波高分布スペクトルを示す。LYSO:Ce 単結晶のリファレンスサンプルと比較した結果、0.5% Eu において最大の発光量(24,000 ph/MeV)が得られ、この値は既報の SrCl₂:Eu 単結晶の約 2 倍の値であった[3]。

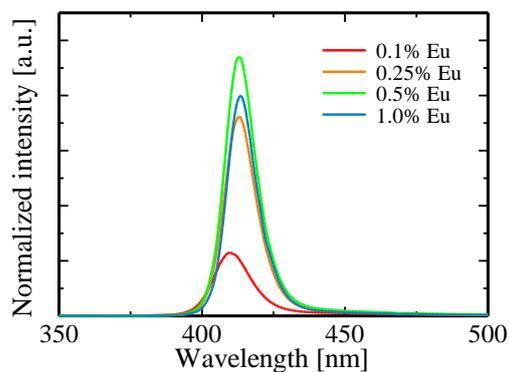


Fig. 1. X-ray-induced scintillation spectra of the SrCl₂:Eu transparent ceramics.

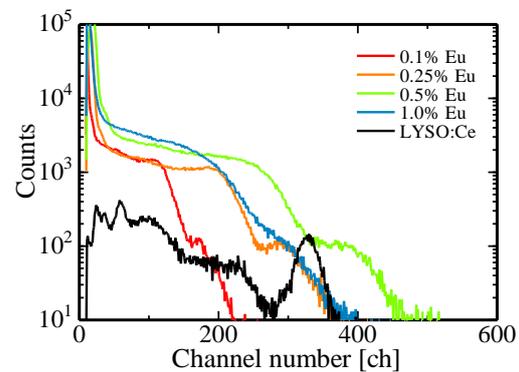


Fig. 2. Fig.2 Pulse height spectra of the SrCl₂:Eu and LYSO:Ce under ¹³⁷Cs γ-ray (662 keV) irradiation.

参考文献

- [1] P. Dorenbos, IEEE Trans. Nucl. Sci., **57**, 1162–1167 (2010).
- [2] T. Yanagida, et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., **52**, 1836–1841 (2005).
- [3] V. L. Cherginets, et al., Funct. Mater., **2**, 187–191 (2012).

Nd 添加 BaO-Bi₂O₃-P₂O₅ ガラスの放射線誘起蛍光特性Radiation-induced luminescence properties of Nd-doped BaO-Bi₂O₃-P₂O₅ glasses奈良先端大¹, °宮島 溪太¹, 西川 晃弘¹, 加藤 匠¹, 中内 大介¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹NAIST¹, °Keita Miyajima¹, Akihiro Nishikawa¹, Takumi Kato¹, Daisuke Nakauchi¹,Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: miyajima.keita.mj2@ms.naist.jp

シンチレータは電離放射線を受けて即発的に発光する蛍光物質であり、光検出器と組み合わせることで放射線計測に用いられる。従来は紫外・可視領域で発光するシンチレータが主流であったが、近年、光検出器が進歩し、特に近赤外領域に感度を持つ InGaAs フォトダイオードが利用可能になったため、近赤外光を発するシンチレータが注目されている [1]。近赤外発光シンチレータの応用として、高線量場モニタリングおよび生体イメージングが考案されている。高線量場では検出機器を放射線から防護するため、シンチレーション光を光ファイバにより十分線量の低い離れたところまで伝達する必要がある。近赤外光は紫外・可視光に比べて光ファイバでの損失が少なく高効率にシンチレーション光を検出できる。また高線量場では高速の荷電粒子と冷却水などの媒質の相互作用によりチェレンコフ光が生じる。チェレンコフ光は紫外・可視領域に主な成分を持ち、近赤外光はそれらとの弁別が容易である [2]。また近赤外光は生体透過性に優れ、紫外光に比して生体侵襲性が小さく安全性が高いため、生体イメージングへの応用も考えられる。しかしながら、これらの応用に向けた近赤外シンチレータの開発報告例はいまだに少ないのが現状である。そこで本研究では、近赤外領域で発光を呈する Nd³⁺ [3] を添加した BaO-Bi₂O₃-P₂O₅ ガラスを作製し、その蛍光特性とシンチレーション特性を調査した。

Nd 濃度の異なるガラス試料 (1, 5, 10, 15, 20 %) を熔融急冷法で作製した。Figure 1 は試料の外観である。Figure 2 に Nd 濃度別のシンチレーションスペクトルを示す。Nd³⁺ の 4f-4f 遷移に由来する 900, 1100, 1300 nm の近赤外領域の発光が確認できた [4]。また発光強度は Nd 濃度 5% と 10% のサンプルで最大となった。

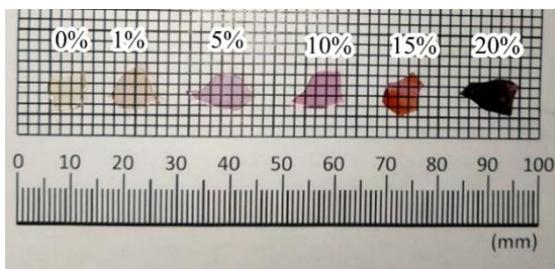


Figure 1 Picture of glass samples doped with 0, 1, 5, 10, 15, and 20% Nd from left to right.

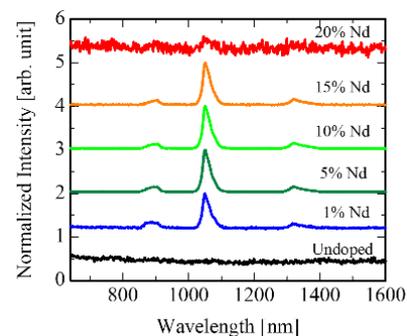


Figure 2 Scintillation spectra of Nd-doped BaO-Bi₂O₃-P₂O₅ glass samples.

<参考文献>

1. G. Okada, N. Kawaguchi, T. Yanagida, *Sens. Mater.* **29**, 1407 (2017).
2. L. Madden, J. Archer, E. Li, D. Wilkinson, A. Rosenfeld, *Physica Med.* **54**, 131 (2018).
3. S.K. Dickinson, R.M. Hilton, H.G. Lipson, *Mater. Res. Bull.* **7**, 181 (1972).
4. D. Nakauchi, G. Okada, M. Koshimizu, T. Yanagida, *J. Rare Earths* **34**, 757 (2016).

Tm 添加 $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ 単結晶シンチレータの Tm 濃度依存性

Tm-concentration dependence on Tm-doped $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ single crystalline scintillators

奈良先端大 °高橋遼成, 岡崎 魁, 中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST °Ryosei Takahashi, Kai Okazaki, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi,
Takayuki Yanagida

E-mail: takahashi.ryosei.tn7@naist.ac.jp

シンチレータは X 線や γ 線を吸収した際、低エネルギーの光を放出する物質であり、医用画像検査装置やセキュリティ用検査装置などの幅広い分野で活用されている。これまで Ce や Eu などの希土類を発光中心とした単結晶シンチレータが精力的に研究されてきたが、その他の希土類については報告数が比較的少なく、研究の余地がある。そこで本研究では 4f-4f 遷移による可視発光を呈する Tm に発光中心として着目した。化学安定性が高く、レーザー材料 [1] として期待されている $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ (CTGS) 単結晶に Tm を添加し、そのシンチレーション特性とその Tm 濃度依存性について調査した。

Figure 1 は無添加および 0.1%、0.5%、1% Tm 添加 CTGS の X 線誘起シンチレーションスペクトルである。全てのサンプルは 300–600 nm 付近にブロードな発光を示し、Tm を添加したサンプルでは 350、450、480 nm 付近にシャープな発光が観測された。既報の他の Tm 添加シンチレータと類似するため [2]、 Tm^{3+} の 4f-4f 遷移に由来すると考えられる。Figure 2 は 0.1%、0.5%、1% Tm 添加 CTGS の減衰曲線である。得られた減衰曲線は 3 成分の指数関数の和で近似され、1 成分目は装置起因関数、2 成分目は母材由来 [3]、3 成分目は Tm^{3+} の 4f-4f 遷移由来として典型的な時定数 [2] を示した。これらの測定データをもとに、Tm 濃度を変化させたフォトルミネセンスおよびシンチレーション特性の評価結果について報告する。

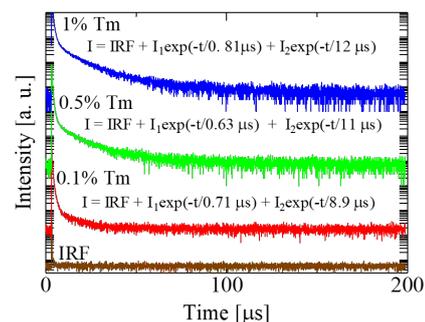
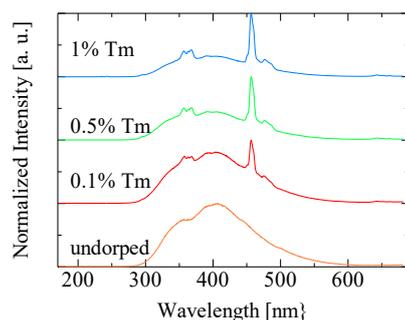


Fig. 1. X-ray-induced scintillation spectra of undoped and Tm-doped CTGS.

Fig. 2. X-ray-induced scintillation decay curves of Tm-doped CTGS.

参考文献

- [1] F. Chen et al., CrystEngComm, 16 (2014) 10286.
- [2] D. Totsuka et al., Opt. Mater., 34 (2012) 627.
- [3] S. Kurosawa et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., 61 (2014) 339.

Mn 添加 Y₃Al₅O₁₂ 単結晶の光学及びシンチレーション特性

Optical and scintillation properties of Mn-doped Y₃Al₅O₁₂ single crystal

大和大学¹, 奈良先端科学技術大学院大学², [○]林 尚輝^{1,2}, 國方 俊彰², 加藤 匠²,

中内 大介², 河口 範明², 尾身 博雄¹, 柳田 健之²

Yamato university¹, NAIST², [○]Naoki Hayashi^{1,2}, Toshiaki Kunikata², Takumi Kato²,

Daisuke Nakauchi², Noriaki Kawaguchi², Hiroo Omi¹, Takayuki Yanagida²

E-mail: 21414030nh@yamato-univ.jp

シンチレータとは電離放射線を量子エネルギー変換により多数の光子に変換する蛍光材料であり、放射線検出器の一部として医療分野、セキュリティ分野、宇宙分野などに応用されている。現在まで多くの材料が検討されてきたが、中でも酸化物ガーネット材料は化学的に安定で扱いやすく、Ce や Pr 等の希土類を添加した Y₃Al₅O₁₂(YAG)は精力的に研究されてきた。しかしながら、遷移金属を添加した YAG のシンチレーション特性に関しては研究例が少ないのが現状である。

本研究では Mn 添加 YAG 単結晶に着目した。先行研究において、異なる遷移金属元素を添加した YAG 単結晶のシンチレーション特性について評価し、その中で Mn 添加 YAG が比較的高い発光強度を示した[1]。既報[1]においては Mn 添加濃度 1%のサンプルにおいてのみシンチレーション特性が報告されているが、濃度依存性については未だ報告されていない。一方で Mn による 3d-3d 遷移に起因する発光の蛍光寿命はミリ秒オーダーであり、高い時間分解能が要求される測定への応用は不適當であるが、時間分解能がさほど重要ではない積分型シンチレーション検出器への応用においては Mn 添加 YAG 単結晶シンチレータも有用であると考えられる。本研究ではフローティングゾーン(FZ)法により異なる Mn 濃度(0.01, 0.05, 0.1, 0.5, 1.0, 2.0%)の Mn 添加 YAG 単結晶を作製し、その光学及びシンチレーション特性の評価を行った。

Fig.1 に各 Mn 添加 YAG 単結晶の外観を示す。全てのサンプルにおいて室内光下で高い透光性を示し、Mn 濃度 1.0 及び 2.0%のサンプルにおいては赤色の着色が確認された。Fig.2 に X 線励起時におけるシンチレーションスペクトルを示す。590 nm 付近に Mn²⁺の ⁴T₁→⁶A₁ 遷移に帰属する発光が観測され、Mn 濃度 0.1%のサンプルが最も高い発光強度を示した。その他の光学及びシンチレーション特性の詳細は当日報告する。

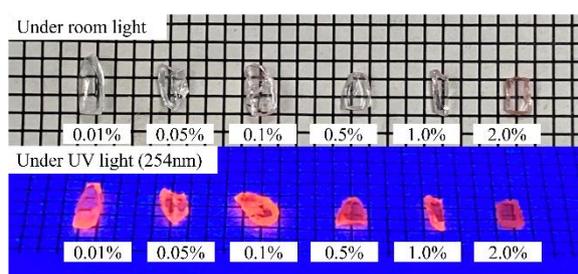


Fig 1. Appearances of the Mn:YAG single crystals Under room light (top) and under UV light (254nm) (bottom).

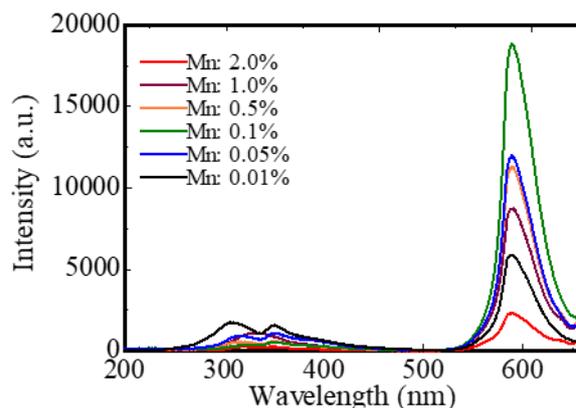


Fig 2. X-ray induced scintillation spectra of Mn:YAG single crystals

参考文献

[1] N. Kawaguchi, N. Hayashi, T. Kunikata, T. Kato, D. Nakauchi, T. Yanagida, Sens. Mater., 36, 499–506 (2024).

Eu 添加 $Gd_3(Al,Ga)_5O_{12}$ 単結晶シンチレータの Al/Ga 比の最適化

Optimization of the Al/Ga ratio in Eu-doped $Gd_3(Al,Ga)_5O_{12}$ single crystal scintillators

奈良先端科学技術大学院大学¹, 九州大学², 産業技術総合研究所³, [○]國方 俊彰¹, 渡辺 賢一²,

木村 大海,³ 加藤 匠¹, 中内 大介¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, Kyushu university², AIST³, [○]Toshiaki Kunikata¹, Kenichi Watanabe²,

Hiromi Kimura³, Takumi Kato¹, Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: kunikata.toshiaki.kt1@ms.naist.jp

シンチレータは電離放射線を可視光に変換する蛍光材料であり、光検出器と組み合わせることで放射線検出器として用いられる。シンチレーション検出器の具体的な応用先はセキュリティ分野や医療分野など多岐にわたる。シンチレータとして求められる特性は高い発光量、短い蛍光寿命、高い阻止能などがあげられるが、すべてを満たすものは存在せず、応用先に応じたシンチレータの開発が求められている。Eu³⁺イオンを発光中心としたシンチレータはその時定数がミリ秒オーダーであり、高い時間分解能が要求される応用には不向きである。しかしながら、時間分解能がそれほど重要ではない積分型シンチレーション検出器においては Eu³⁺イオンにより発光するシンチレータも検討されている[1]。以前我々は優れた放射線耐性、化学安定性を有するガーネット材料に着目し、Eu 添加 $Y_3Al_5O_{12}$ (YAG)[2]、 $Gd_3Al_2Ga_3O_{12}$ (GAGG)[3]、 $Lu_3Al_5O_{12}$ (LuAG)[4]単結晶のシンチレーション特性の評価を行った。上記の中で Eu 添加 $Gd_3Al_2Ga_3O_{12}$ が X・ γ 線検出に適した高い実効原子番号($Z_{eff}=54$)を有し、高い発光量(36,000 photons/MeV)を有することから上記の中で最も積分型シンチレーション検出器に有用であることが示唆された。

本研究では Eu 添加 GAGG シンチレータの性能向上を目的として、異なる Al/Ga 比を有する $Gd_{2.85}Eu_{0.15}Al_xGa_{5-x}O_{12}$ ($x=0, 1, 2, 3, 4$)単結晶について調査した。これらの単結晶サンプルをフローティングゾーン法によって作製し、光学及びシンチレーション特性を評価した。

Fig. 1 に作製した $Gd_{2.85}Eu_{0.15}Al_xGa_{5-x}O_{12}$ ($x=0, 1, 2, 3, 4$) 単結晶の X 線回折パターンを示す。 $Gd_{2.85}Eu_{0.15}Al_xGa_{5-x}O_{12}$ ($x=0, 1, 2, 3$) においては $Gd_3Al_3Ga_2O_{12}$ のリファレンスパターンと回折ピークが一致した。 $Gd_{2.85}Eu_{0.15}Al_4GaO_{12}$ においては異相が確認され、ガーネット構造の結晶が単相で得られなかった。Fig. 2 に $Gd_{2.85}Eu_{0.15}Al_xGa_{5-x}O_{12}$ ($x=0, 1, 2, 3$)単結晶及び市販の $Bi_4Ge_3O_{12}$ (BGO)の ¹³⁷Cs 線源によるガンマ線照射時のパルス波高スペクトルの結果を示す。いずれのサンプルの発光量も BGO を上回り、 $Gd_{2.85}Eu_{0.15}Al_3Ga_2O_{12}$ 単結晶が最も高い 41,000 photons/MeV の発光量を有することを確認した。結果の詳細については発表当日に報告する。

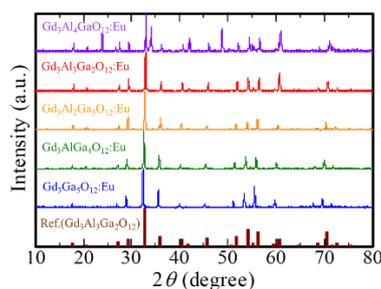


Fig 1. XRD patterns of the GAGG:Eu single crystals

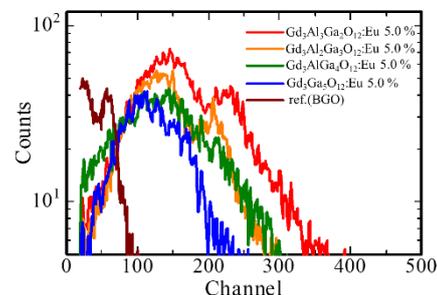


Fig 2. Pulse height spectra (γ -ray irradiation from ¹³⁷Cs) of the reference BGO and the Eu:GAGG single crystals.

参考文献

- [1] I. Seferis, et al., J. Lumin. **151** (2014) 229. [2] T. Kunikata et al., Radiat. Phys. Chem. **216** (2024) 111454. [3] T. Kunikata et al., Jpn. J. Appl. Phys. **63** (2023) 01SP1. [4] 2024 年応用物理学会春季学術講演会 [24p-12D-9] Eu 添加 $Lu_3Al_5O_{12}$ 単結晶の光学及びシンチレーション特性

Ho 添加 CsI 単結晶のシンチレーション特性評価

Evaluation of scintillation properties of Ho-doped CsI single crystals

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

NAIST,[○]Shunta Takase, Keiichiro Miyazaki, Daisuke Nakauchi,

Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: takase.shunta.tg6@ms.naist.jp

シンチレータとは放射線を瞬時に紫外・可視・近赤外光といった低エネルギー光子に変換する素子であり、医療・セキュリティ・資源探査・原子炉モニタ等の放射線計測分野に利用されている。代表的な可視領域で発光するシンチレータである TI 添加 CsI は高い発光量を示し [1]、低コストで作製可能であり汎用的に利用されていることから、CsI はシンチレータ母材として有望であると考えられる。これまでに紫外・可視領域で発光するシンチレータは活発に研究されている一方、近赤外領域で発光するシンチレータの報告例は少ない。近赤外光は高線量場で観測されるチェレンコフ光との区別が容易であることや生体軟組織への透過率が高いことから、高線量場での線量計測やバイオイメージングへの応用が期待されており、近赤外領域で発光する新たなシンチレータの開発が求められている。そこで本研究では近赤外発光シンチレータを開発するべく、CsI を母材として近赤外で発光を示す Ho を添加した単結晶を垂直ブリッジマン法により作製し、フォトルミネセンスおよび放射線検出器特性の評価を行った。

Figure 1 に Ho 添加 CsI 単結晶の X 線照射時の発光スペクトルを示す。すべてのサンプルにおいて 990, 1200, 1320, 1490 nm 付近にピークが観測された。既報から、これらのピークはそれぞれ Ho^{3+} の $^5\text{F}_5 \rightarrow ^5\text{I}_7$, $^5\text{I}_6 \rightarrow ^5\text{I}_8$, $^5\text{S}_2 \rightarrow ^5\text{I}_5$, $^5\text{F}_5 \rightarrow ^5\text{I}_6$ 遷移に由来すると考えられる [2]。Figure 2 に Ho 添加 CsI 単結晶の X 線照射時の減衰曲線を示す。すべての減衰曲線は装置由来の成分を除き、1 成分の指数関数によって近似することができた。得られた減衰時定数は 890-1757 μs であり、これは Ho^{3+} の $4\text{f} \rightarrow 4\text{f}$ 遷移に由来すると考えられる [3]。本講演ではフォトルミネッセンス特性に加え、実応用を模擬した線量率応答特性を調査したので報告する。

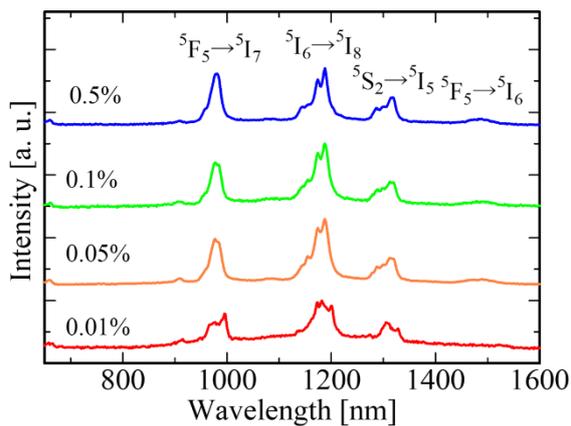


Figure 1 Scintillation spectra of Ho-doped CsI single crystals under X-ray irradiation.

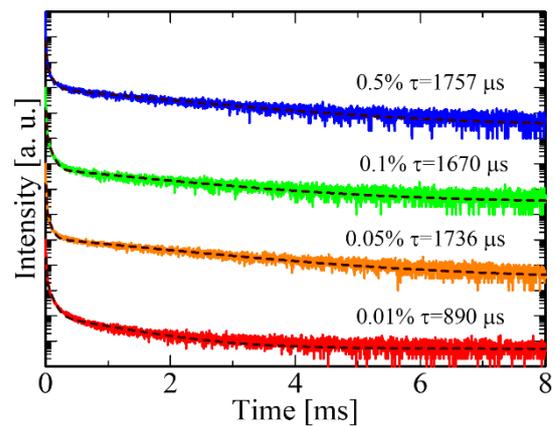


Figure 2 Scintillation decay curves of Ho-doped CsI single crystals under X-ray irradiation.

<参考文献>

- [1] P. Schotanus *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci. **37**, 177 (1990). [2] F. Chiossi *et al.*, J. Lumin. **203**, 203 (2018).
 [3] B. M. Walsh, *et al.*, J. Phys. Chem. Solids **67**, 1567 (2006).

中性子検出用 Eu 添加 LiBr 単結晶シンチレータの開発

Development of Eu-doped LiBr crystalline scintillators for neutron detection

奈良先端大[○]宮崎 慧一郎, 中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之NAIST, [○]Keiichiro Miyazaki, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi, Takayuki YanagidaE-mail: miyazaki.keiichiro.mg5@ms.naist.jp

従来の中性子検出器はセキュリティ分野、石油資源探査、放射線管理区域における環境モニタリング、医療分野等で利用されている。これまで中性子検出器には、 ^3He 比例計数管が中性子検出器として使用されてきた。しかしながら、近年 ^3He ガスの枯渇が問題視されており、価格が高騰している [1]。そのため ^3He 比例計数管の代替検出器として、中性子検出用シンチレータの開発が求められる。中性子検出用シンチレータに求められる特性は高い発光量、大きい α/γ 比、大きい中性子捕獲断面積、小さい実効原子番号 (Z_{eff})などが挙げられる。そこで本研究では、Li の含有量が多く、市販品である LiI より Z_{eff} が小さい LiBr を母材として着目し、Eu 添加 LiBr 単結晶を垂直ブリッジマン法により作製し、フォトルミネッセンスとシンチレーション特性の評価を行った。

Fig. 1 に無添加および Eu 添加 LiBr 単結晶の X 線照射下でのシンチレーションスペクトルを示す。すべての Eu 添加サンプルにおいて 440 と 550 nm に発光が観測された。440 nm の発光は既報の Eu 添加アルカリハライドの発光波長とほとんど同じであり [2]、無添加のサンプルでは観測されなかったことから、 Eu^{2+} の $4f^65d-4f^7$ ($^8\text{S}_{7/2}$) 遷移に由来すると考えられる。また 550 nm の発光は、無添加のサンプルにおいても観測されたことから、母材の欠陥由来であると考えられる。Fig. 2 に Eu 添加 LiBr 単結晶の X 線照射下でのシンチレーション減衰曲線を示す。すべての減衰曲線は 2 成分の指数関数の和により近似された。早い成分は Eu^{2+} の典型的な時定数であることから [3]、 Eu^{2+} の $4f^65d-4f^7$ ($^8\text{S}_{7/2}$) 遷移に由来する。また遅い成分は母材の欠陥由来であると考えられる。本発表では、放射線照射下での発光特性以外にも、フォトルミネッセンス特性や中性子検出用シンチレータとしての性能も評価したので報告する。

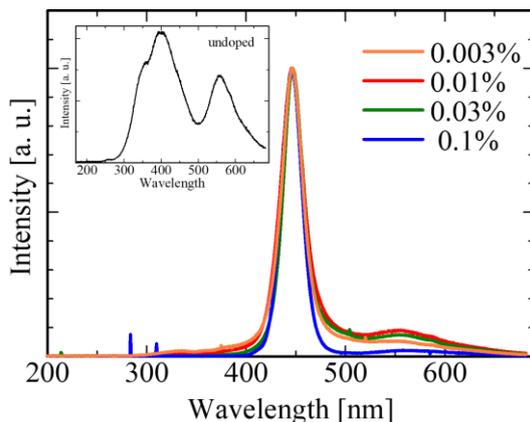


Fig. 1 Scintillation spectra of Eu-doped LiBr single crystals under X-ray irradiation.

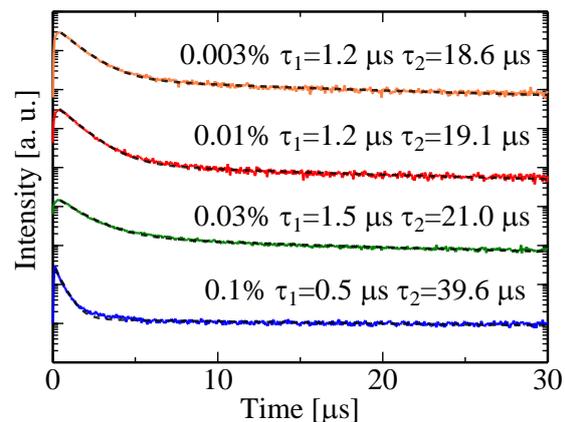


Fig. 2 Scintillation decay curves of Eu-doped LiBr single crystals under X-ray irradiation.

<参考文献>

- [1] R.T. Kouzes, United States, PNNL. (2009).
 [2] J. Hernandez A. et al., J. Phys. Soc. Jpn. **50**, 225 (1981).
 [3] R. Perez-Salas et al., Opt. Mat. **35**, 617 (2013).

Tb 添加 $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ 結晶シンチレータにおける Tb 濃度依存性

Tb-concentration Dependence on Tb-doped $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ Crystalline Scintillators

奈良先端大 [○]坪内 廉, 江澤 喜朗, 中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST [○]Ren Tsubouchi, Haruaki Ezawa, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi,

Takayuki Yanagida

E-mail: tsubouchi.ren.tw5@naist.ac.jp

シンチレータは電離放射線のエネルギーを吸収し、即発的に紫外可視領域の光へと変換できる蛍光体である。シンチレータは光検出器と組み合わせることでシンチレーション発光を電気信号に変換し、間接的な放射線計測が可能となる。主な応用先として陽電子放出断層撮影や X 線コンピュータ断層撮影などが挙げられる。アパタイト構造をとる $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ は優れた熱的・化学的安定性を有することから蛍光材料として注目されており、さまざまな希土類元素を発光中心として添加した $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ の蛍光特性が報告されている [1]。一部シンチレーション特性に関する報告があるが [2, 3]、添加濃度依存性は明らかにされていない。そこで本研究では、異なる Tb 添加濃度の $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ 結晶を作製し、そのフォトルミネッセンス特性およびシンチレーション特性の評価を行った。

Fig. 1 に Tb 添加 $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ 結晶の X 線励起シンチレーションスペクトルを示す。複数の発光ピークが 380–620 nm に観測され、これらのピークは Tb^{3+} の 4f-4f 遷移に起因すると考えられる [4]。Fig. 2 に Tb 添加 $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ 結晶の X 線励起シンチレーション減衰曲線を示す。全ての減衰曲線は装置応答関数を除き 2 成分の指数関数で近似され、得られた第 1 および第 2 成分の減衰時定数は、それぞれおおよそ 1.0、4.5 ms であり、 Tb^{3+} の 4f-4f 遷移に起因すると考えられる [5]。

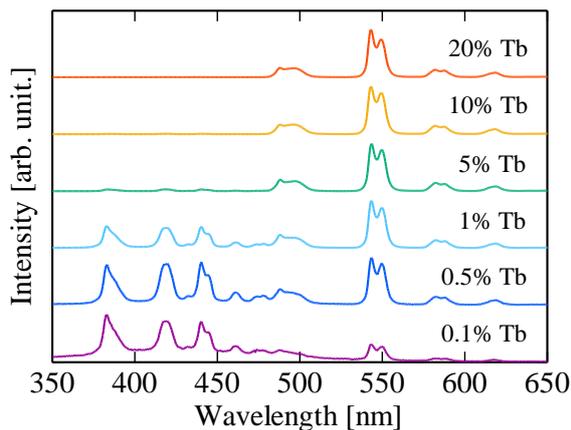


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of Tb-doped $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ crystals.

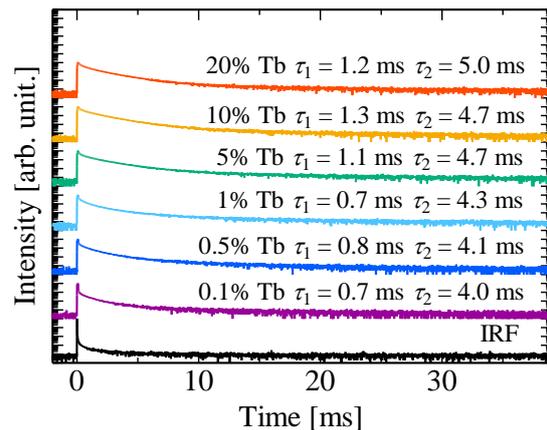


Fig. 2 X-ray-induced scintillation decay curves of Tb-doped $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ crystals.

参考文献

- [1] Y. Shen et al., *J. Solid State Chem.*, **183**, 3093 (2010). [2] T. Yanagida et al., *J. Ceram. Process. Res.*, **20**, 577 (2019). [3] T. Igashira et al., *Optik*, **155**, 36 (2018). [4] Y. Takebuchi et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **59**, 052007 (2020). [5] Y. Endo et al., *Opt. Mater.*, **152**, 115524 (2024).

シンチレータ型放射線電池の基礎検討

Basic study of scintillator-type nuclear battery

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

NAIST,[○]Takayuki Yanagida, Kai Okazaki, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi

E-mail: t-yanagida@ms.naist.jp

シンチレータは蛍光体の一種であり、電離放射線のエネルギーを吸収し、その吸収したエネルギーに応じた発光を示す機能を有している。応用は多岐にわたっており、医療、セキュリティ、資源探査、環境計測、宇宙・素粒子物理等、枚挙に暇がない。シンチレータの新たな応用の一つとして、放射線電池 (RI 電池、原子力電池ともいう) が挙げられる。放射線のエネルギーを何に変換するかにより、熱電変換型や光電変換型等、いくつかの方式が提案されている。これらのうちで光電変換型に着目すると、大別して二種類が検討されている。一つは半導体検出器 (SiC など) で放射線を吸収し、直接的に電流に変換する形式 [1] と、シンチレータで放射線を一旦、シンチレーション光子に変換し、それを光電変換素子 (Si 太陽電池など) で受けて電流に変換し、発電する形式である [2]。本学会においても近年、シンチレータを用いた放射線電池の報告がなされる等 [3]、特に放射性廃棄物の取り扱いが課題となっている我が国においては、着目すべき研究対象となっている。そこで本研究では、シンチレータ型放射線電池への応用を念頭に、幾つかのシンチレータに関して基礎検討を行った。

光電変換素子としては市販の Si フォトダイオード (PD) を選定し、シンチレータとしては、Ce 添加 LYSO 等の市販の有名材料、または Si-PD の波長感度域である近赤外で発光するシンチレータ (当研究室で作製) を選択した。線源としては市販の密封線源であるアルファ線源 (^{241}Am , 4 MBq) およびベータ線源 (^{90}Sr , 1 MBq) を用いた。これらをシンチレータの直上に配置し、発生したシンチレーション光を Si-PD で検出し、その出力を市販のピコアンメータ (B2985A、キーサイト) で読みだした。ピコアンメータで Si-PD のみを接続してノイズレベルを評価し、実験系のノイズレベルよりも出力が高い場合に信号が検出できたとした。様々なシンチレータを試行したところ、幾つかの市販材料、Ce 添加 LYSO (サンゴバン) や Ce 添加 YAG (神島化学工業)、Ce 添加 GAGG (古河機械金属) などに加え、無添加 ZnO 透明セラミックス等、研究室で作製したものからも信号を検出できた。講演では信号検出できなかったものを含め、一連の基礎検討の結果に関して報告する。

参考文献

- [1] 菅原隆徳、放射性廃棄物を資源に変える技術革新 第 18 回原子力機構報告会 (2023).
- [2] Q. Cui et al., *Materials Science in Semiconductor Processing* 179, 108493 (2024).
- [3] 藤本 裕ほか、シンチレータを用いた光電変換式 RI 電池の研究、第 71 回応用物理学会春季学術講演会 (2024).

(n-CH₃PEA)₂PbCl₄ 結晶のシンチレーション特性評価

Scintillation properties of (n-CH₃PEA)₂PbCl₄ crystals

奈良先端大¹, 秋田大理工² ○若林 樹¹, 山林 恵士¹, 中内 大介¹, 岡崎 魁¹,
河野直樹², 加藤 匠¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, Akita Univ² ○Itsuki Wakabayashi¹, Keishi Yamabayashi¹, Daisuke Nakauchi¹,
Kai Okazaki¹, Naoki Kawano², Takumi Kato¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: wakabayashi.itsuki.wj7@naist.ac.jp

シンチレータは高エネルギーの放射線を吸収し、即座に発光を呈する蛍光体であり、放射線計測に使用されている。シンチレータは幅広い用途で用いられており、医用画像診断・セキュリティ検査・地下資源探査等が挙げられる。特に医療イメージング分野における陽電子放出断層撮影用途には高い時間分解能が求められるため、短い蛍光寿命が必要とされる。これらの条件を満たすシンチレータのひとつに2次元有機無機ペロブスカイト型化合物がある。当該化合物中で2次元的に閉じ込められた励起子は3次元の場合よりも束縛エネルギーが4倍大きく、励起子が熱解離しにくく [1]、輻射再結合を行う励起子の割合が高くなり、高強度かつ高速な発光を得ることが出来る。そこで我々は2次元の結晶構造を有するPEA₂PbCl₄ペロブスカイト型化合物に着目して検討を行ってきた。有機層内に置換基を導入すると、無機層内に格子歪みが生じ、量子閉じ込め効果が強化されるため、高い発光量と短い蛍光寿命の両方の実現が見込まれるが [2]、当材料への置換基導入の多くはハロゲン元素によるものであり、その他の官能基についての調査は十分に行われていない。そこで本研究ではベンゼン環にメチル基を導入した(n-CH₃PEA)₂PbCl₄(n=2, 3, 4)結晶を溶液法で合成し、フォトルミネセンスおよびX・γ線応答特性について評価を行った。

Figure 1 に作製した(n-CH₃PEA)₂PbCl₄結晶のX線誘起シンチレーションスペクトルを示す。全てのサンプルにおいて450-700 nmに自己束縛励起子(STE)の再結合に由来するブロードな発光ピークが観測された。Figure 2 に示すのはX線誘起シンチレーション減衰曲線である。得られた全ての減衰曲線は励起源由来の成分を除いた2成分の指数関数の和で近似することができた。速い成分はSTEの再結合に由来し、遅い成分の起源は、欠陥発光や束縛励起子発光等の内因性発光に由来する成分であると考えられる。

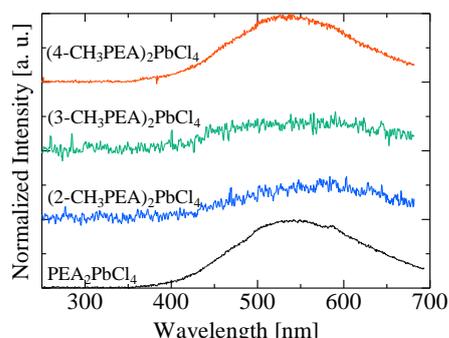


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of (n-CH₃PEA)₂PbCl₄ crystals.

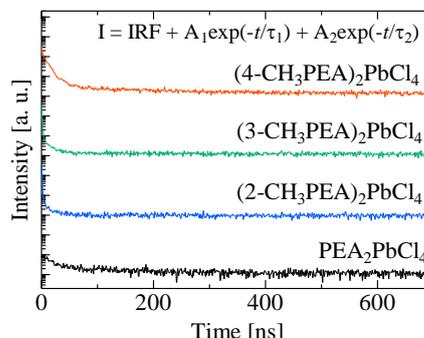


Fig. 2 X-ray-induced scintillation decay curves of (n-CH₃PEA)₂PbCl₄ crystals.

[1] Y. Kawakami et al., Appl. Phys. Lett. 69, 1414 (1996). [2] S. Matsuzawa, et al., J. Lumin. 270, 120547 (2024).