

2 放射線 | 一般セッション(ポスター講演): 2 放射線 (ポスター)

[18p-P01-1~43] 2 放射線 (ポスター)

[18p-P01-1]

光分解反応がTlBr検出器に与える影響

○坂脇 翔馬¹、土井 浩介¹、矢口 愛斗¹、小野寺 敏幸¹、野島 太郎²、人見 啓太郎³ (1.東北工大工、2.タロスラボ(株)、3.東北大工)

[18p-P01-2]

四塩化ケイ素ガスを用いた澆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

○平井 豪¹、藤元 章²、原田 義之²、中田 博保³、櫻木 史郎⁴ (1.立命館大理工、2.大阪工大ナノ材研、3.大教大、4.ユニオンマテリアル)

[18p-P01-3]

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

○庄子 朋秀¹、榊原 彩花¹、富板 大輝¹、青木 徹^{1,2}、伊藤 哲^{1,2} (1.静岡大院、2.静大電研)

[18p-P01-4]

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

○新村 勇葵¹、稲葉 影光²、西澤 潤一^{3,4}、都木 克之³、加瀬 裕貴^{1,3}、中村 和正⁴、青木 徹^{1,2,3,4} (1.静岡大情、2.静岡大院総合科学技術、3.静岡大電子研、4.浜松医大 Nx-CEC)

[18p-P01-5]

真空蒸着法で形成したTlBr多結晶膜の評価

○(D)豊田 耕平^{1,2}、西澤 潤一^{1,3,4}、都木 克之^{2,3}、加瀬 裕貴³、青木 徹^{1,2,3} (1.静岡大光医工、2.株式会社ANSeeN、3.静岡大電子研、4.浜松医大Nx-CEC)

[18p-P01-6]

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

○高橋 正樹¹、金子 純一¹、織田 堅吾¹、明石 悠宇斗¹、星川 尚久²、梅沢 仁³ (1.北大院工、2.大熊ダイヤモンドデバイス、3.産総研)

[18p-P01-7]

原子炉起動用中性子源のスペクトル測定に関する研究

○大和田 蓮¹、若林 源一郎²、塙 和鷹¹、木浦 滉太¹、井谷 豪人¹、外崎 裕也¹ (1.近大院総理工、2.近大原研)

[18p-P01-8]

CLLB(Ce)シンチレーション検出器の放射化に関する研究

○木浦 滉太¹、若林 源一郎²、大和田 蓮¹、塙 和鷹¹、外崎 裕也¹、井谷 豪人¹ (1.近大院総理工、2.近大原研)

[18p-P01-9]

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

○南金山 圭吾¹、新村 勇葵¹、西澤 潤一^{2,3}、加瀬 裕貴^{1,2}、都木 克之²、青木 徹^{1,2,3}、谷 重喜³、中村 和正³ (1.静岡大情、2.静岡大電子研、3.浜松医大Nx-CEC)

[18p-P01-10]

ポリエチレンナフタレートシンチレータにおける α/β 線に対する発光量測定

○(M1)添田 悠也¹、山田 崇裕^{1,2} (1.近畿大・院総理工、2.近畿大・原子力研)

[18p-P01-11]

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

○大塚 聖也¹、山田 崇裕^{1,2} (1.近畿大学・院総合理工、2.近畿大・原子力研究所)

[18p-P01-12]

コンパクトマイクロビームシステムの開発

○丸田 京華¹、小島 健太郎¹、三輪 美沙子¹、遠山 翔¹、加田 渉¹、菊池 洋平¹、松山 成男¹ (1.東北大量子)

[18p-P01-13]

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

○(M1)中妻 愛友美¹、大塚 勇輝¹、西澤 諒¹、三輪 美沙子¹、遠山 翔¹、加田 渉¹、松山 成男¹ (1.東北大工)

[18p-P01-14]

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

○(D)松本 卓己¹、稲葉 洋平²、松本 真之介³、加田 渉¹ (1.東北大量子、2.東北大医、3.東京都立大)

[18p-P01-15]

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

○(M1)高橋 玲央¹、松本 真之介¹、田中 浩基²、若林 源一郎³、川根 充貴¹、眞正 浄光¹ (1.都立大、2.京都大、3.近畿大)

[18p-P01-16]

OSL素子BeOセラミックス板のプレ加熱処理と線量応答性

○佐村 春月¹、高橋 玲央¹、川根 充貴¹、岡田 豪²、眞正 浄光¹ (1.東京都立大学、2.金沢工業大学)

[18p-P01-17]

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

○(M1)大島 美礼¹、有元 誠¹、供田 崇弘¹、Fitri Lucyana¹、古田 優¹、片岡 淳²、皆川 遼太郎²、寺澤 慎祐³、塩田 諭³ (1.金沢大、2.早稲田大、3.プロテリアル)

[18p-P01-18]

ガンマ・X線検出用Tl 添加 $\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-Mg}(\text{PO}_3)_2\text{-CsPO}_3$ ガラスシンチレータの開発

○森田 千恵¹、長谷川 洸¹、中林 優輔¹、渡邊 晶斗¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[18p-P01-19]

Ce添加 $\text{Cs}_2\text{NaScCl}_6$ エルパソライト単結晶シンチレータの開発

○古田 満理奈¹、石田 未夢¹、渡邊 晶斗¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[18p-P01-20]

 $\text{Ti}_2\text{NaScCl}_6$ 結晶におけるシンチレーション機構の解明

○石田 未夢¹、渡邊 晶斗¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[18p-P01-21]

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

○榎田 樹¹、藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大学)

[18p-P01-22]

可視光領域において優れた透明性を示す ZrO_2 ナノ粒子分散液の開発

○(DC)渡邊 晶斗¹、横 哲^{2,3}、成 基明⁴、笥居 高明⁵、阿尻 雅文³、林 大和¹、藤本 裕¹、越水 正典⁶、浅井 圭介¹ (1.東北大院工、2.東北大SRIS、3.東北大AIMR、4.Univ. Suwon、5.東北大FRIS、6.静岡大電子研)

[18p-P01-23]

BaFCl:Eu結晶におけるシンチレーション性能評価

○田村 飛翔¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[18p-P01-24]

Ce添加 $\text{LiPO}_3\text{-Al(PO}_3)_3\text{-CsPO}_3$ ガラスシンチレータの発光特性におけるCe濃度依存性

○長谷川 洸¹、渡邊 晶斗¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[18p-P01-25]

溶媒蒸発法による Sb^{3+} 添加 Rb_2HfCl_6 結晶シンチレータの合成および性能評価

○佐々木 暖人¹、藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[18p-P01-26]

$\text{CsPO}_3\text{-Al(PO}_3)_3\text{-NdCl}_3$ 系ガラスの蛍光及びシンチレーション特性

○藤本 裕¹、中林 優輔¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[18p-P01-27]

ソルボサーマル法により作製した $\text{YF}_3\text{:Ce}^{3+}$ 蛍光体の生成相と発光特性の関係

○定盛 智紀¹、吉村 成生¹、小南 裕子¹、原 和彦¹、都木 克之¹、青木 徹¹ (1.静大工)

[18p-P01-28]

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

○川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[18p-P01-29]

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

○森下 諒一¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大学)

[18p-P01-30]

中性子線照射による Sn^{2+} 添加 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスの熱蛍光

○高津 匠吾¹、山口 寛人¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、越水 正典²、若林 源一郎³、浅井 圭介¹ (1.東北大学工、2.静岡大電子研、3.近大原研)

[18p-P01-31]

Bi添加 $\text{Li}_2\text{O-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ ガラスにおけるRPL特性評価

○(B)猪股 諒太¹、岡田 豪¹、南戸 秀仁¹ (1.金沢工大)

[18p-P01-32]

$\text{CaO-P}_2\text{O}_5$ 系セラミックスによる合成条件の検討及びRPL特性評価

○青木 美歩¹、岡田 豪¹、南戸 秀仁¹ (1.金沢工大)

[18p-P01-33]

Analysis of Luminescent Characteristics in Silver-Doped Sodium Borate

○(M2)Caroline Fernandes^{1,2}, Go Okada², Sonia Tatumi¹, Rocca Rene³ (1.Univ. Sao Paulo, 2.KIT, 3.Fed. Univ. Sao Paulo)

[18p-P01-34]

Mn 添加 BCNO の蛍光および熱蛍光特性

○(B)亀山 優人¹、越水 正典¹ (1.静岡大工)

[18p-P01-35]

P-ベンゾキノロ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

○矢代 智章¹、越水 正典¹ (1.静岡大工)

[18p-P01-36]

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

○平松 祐汰¹、若林 源一郎²、越水 正典¹ (1.静岡大、2.近大原研)

[18p-P01-37]

Effect of Composition on Scintillation Light Yield of Ce-doped Gd₃Al_{5-y}Ga_yO₁₂ Nanoparticle Scintillators

○Opalitha Ruwan Abewardana Pinnalande Gedara¹, Masanori Koshimizu¹ (1.Shizuoka University)

[18p-P01-38]

発光中心添加Ca₂B₂O₅熱蛍光体におけるLET特性の制御

○越水 正典¹、小宮 基²、古場 裕介³、藤本 裕²、浅井 圭介² (1.静大電子研、2.東北大院工、3.QST)

[18p-P01-39]

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

○(B)金成 太陽¹、越水 正典¹ (1.静岡大工)

[18p-P01-40]

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

○麻生 一樹¹、越水 正典¹ (1.静岡大工)

[18p-P01-41]

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

○(M1)高橋 悠真¹、越水 正典¹ (1.静岡大)

[18p-P01-42]

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

○林 南瑠¹、越水 正典¹ (1.静岡大)

[18p-P01-43]

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

○塚原 悠久¹、越水 正典¹ (1.静岡大)

光分解反応が TlBr 検出器に与える影響

The effect of photolysis on TlBr detectors

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

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 (TlBr) は、高い原子番号 (Tl: 81, Br: 35) と高い密度 (7.56 g/cm^3) を特徴とする化合物半導体である。 γ 線の吸収効率が高く、エネルギー分解能が優れているため、TlBr は γ 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 TlBr 結晶のプラズマ処理において、TlBr 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 Tl 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 TlBr 結晶への光分解反応を試みることで、光分解が TlBr 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 TlBr 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 TlBr 結晶 (直径 8.5 mm × 厚さ 0.297 mm) に、純水に溶解した L - ア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、TlBr 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 γ 線を照射し、日光曝露後に TlBr 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 30 V、波形整形時間 31.5 μs において TlBr 検出器から得られた ^{137}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 TlBr 結晶が明確に黒色化したため、光分解により結晶表面に Tl メタルが生成したと考えられる。以上の結果から、TlBr 検出器の電荷輸送特性は Tl 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)

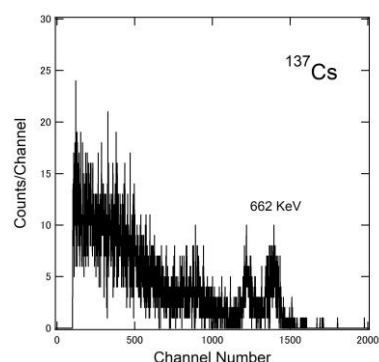


Fig.1. ^{137}Cs energy spectrum obtained from a TlBr detector with Au electrodes.

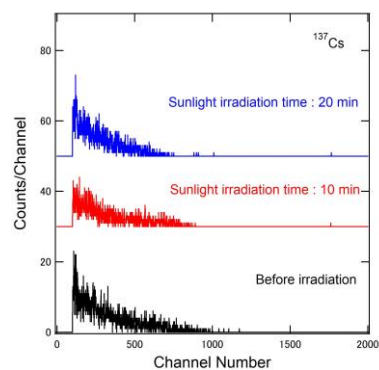


Fig.2. ^{137}Cs energy spectra obtained from a TlBr detector depending on the time of photolysis

四塩化ケイ素ガスを用いた澆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

○平井 豪¹, 藤元 章², 原田 義之², 中田 博保³, 櫻木 史郎⁴

Ritsumeikan Univ.¹, Osaka Inst. of Tech.², Osaka Kyoiku Univ.³, Union Materials Inc.⁴,

○Takeshi Hirai¹, Akira Fujimoto², Yoshiyuki Harada², Hiroyasu Nakata³, Shiro Sakuragi⁴

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、澆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]。澆液結晶化法とは、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澆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 の条件で澆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 結晶が示す発光スペクトルに基づいて、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.

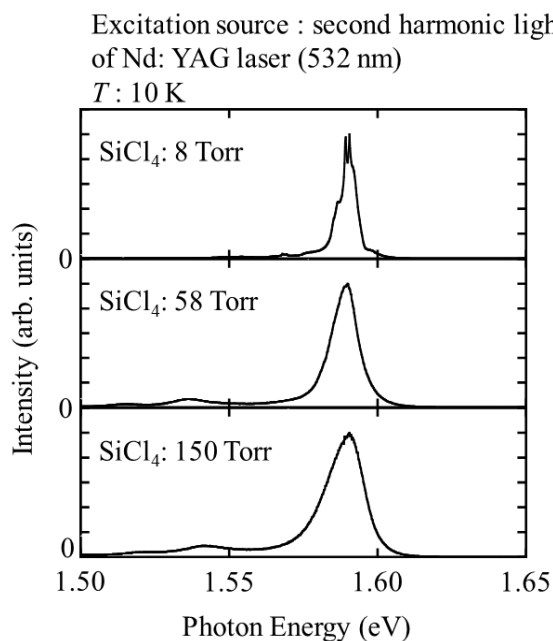


図 CdTe 結晶の発光スペクトル

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¹, 静大電研² °庄子 朋秀¹, 榊原 彩花¹, 富板 大輝¹, 青木 徹^{1,2}, 伊藤 哲^{1,2}

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

°Tomohide Shoji¹, Ayaka Sakakibara¹, Daiki Tomiita¹, Toru Aoki^{1,2}, Tetsu Ito^{1,2}

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

1. 緒言

CdTe 放射線検出器では長時間の連続利用で性能が劣化する現象「ポラリゼーション」が確認されている。この現象が起きる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 γ 線源と γ 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。

3. 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。

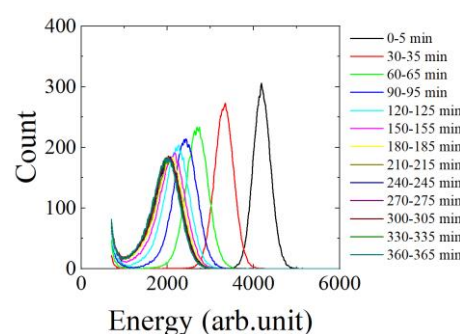
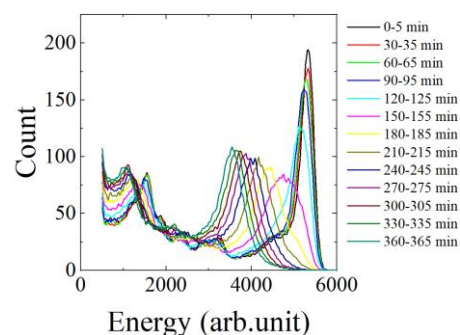


Fig.3 Energy spectrum with laser pulse

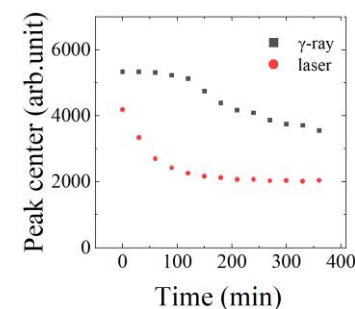


Fig.2 Peak center over elapsed time with γ -ray and laser pulse

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¹, 静岡大院総合科学技術², 静岡大電子研³, 浜松医大 N_x-CEC⁴

○新村勇葵¹, 稲葉影光², 西澤潤一^{3,4}, 都木克之³, 加瀬裕貴^{1,3}, 中村和正⁴, 青木徹^{1,2,3,4}

Shizuoka Univ¹, Shizuoka Univ. G.S.I.S.T.²,

Shizuoka Univ. R.I.E.³, Hamamatsu Univ. S.M. N_x-CEC⁴

○Yuki Shimmura¹, Kagemitsu Inaba², Junichi Nishizawa^{3,4}, Katsuyuki Takagi³,

Hiroki Kase^{1,3}, Nakamura Katsumasa⁴, Toru Aoki^{1,2,3}

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る、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。

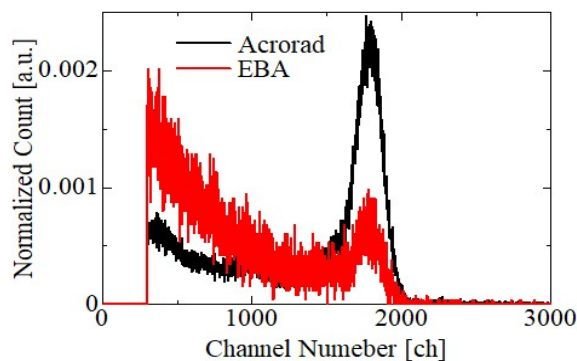


Fig1: shows result of γ spectrum measurement of ^{241}Am .

真空蒸着法で形成した TlBr 多結晶膜の評価

Evaluation of TlBr Thin Film Formed by Vacuum Evaporation

静岡大光医工¹, 株式会社 ANSeeN², 静岡大電子研³, 浜松医大 Nx-CEC⁴

○(D) 豊田 耕平^{1,2}, 西澤 潤一^{1,3,4}, 都木 克之^{2,3}, 加瀬 裕貴³, 青木 徹^{1,2,3}

Shizuoka Univ. C.M.M.P.¹, ANSeeN Inc.², Shizuoka Univ. R.I.E.³, Hamamatsu Univ.S.M.³

○Kohei Toyoda^{1,2}, Junichi Nishizawa^{1,3,4}, Katsuyuki Takagi^{2,3}, Hiroki Kase³, Toru Aoki^{1,2,3}

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

背景

臭化タリウム (TlBr) は 2.68eV のバンドギャップを持つ半導体材料である。TlBr 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・γ 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、TlBr 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。

TlBr 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 TlBr 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、10mm×10mm (厚さ 0.65mm) の Si 基板に、マスクを用いて 6mm×6mm の領域に TlBr 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 TlBr 薄膜は結晶粒径が 2-5 μm 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。

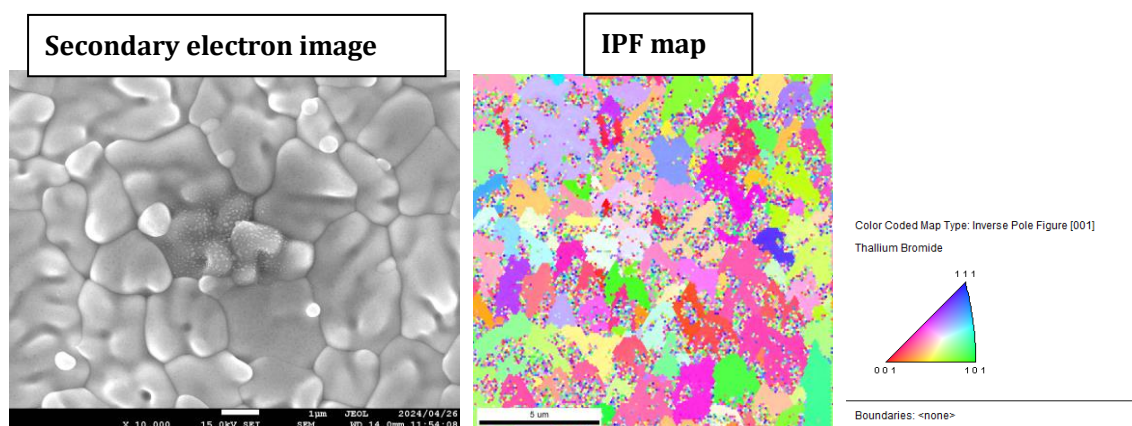


Fig.1 Secondary electron image (left) and IPF map (right) observed by FE-SEM

[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

北大院工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 純一¹, 織田 堅吾¹,

明石 悠宇斗¹, 星川 尚久², 梅沢 仁³

Hokkaido Univ.¹, OOKUMA DIAMOND DEVICE Co., Ltd.², AIST.³, Takahashi Masaki¹, Kaneko
Junich H.¹, Oda Kengo¹,

Akashi Yuto¹, Hoshikawa Naohisa², Umezawa Hitoshi³

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、 α 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 α 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 α 線はダイヤモンド表面から 14 μ 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。

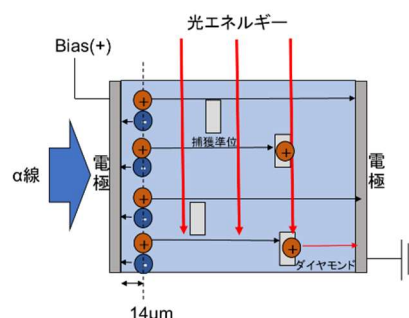


図1. 光照射漏れ電流模式図

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 α 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、測定方法の信ぴょう性の確認を進める。

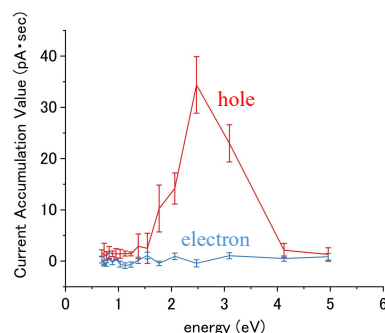


図2. 照射エネルギー毎の漏れ電流時間積分値

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¹, 近大原研² ○(M2)大和田蓮¹, 若林源一郎², (M2)塙和鷹¹,
(M2)木浦滉太¹, (M1) 井谷豪人¹, (M1) 外崎裕也¹

Kindai Univ.¹, KUAERI.², °Ren Ohwada¹, Genichiro Wakabayashi²,
Kazutaka Hanawa¹, Kota Kiura¹, Taketo Itani¹, Yuya Tonosaki¹

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箱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箱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、放射化箱の代替として 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

放射化箱の代わりに 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 ($\phi 2.54 \times 2.54 \text{ cm}^3$) 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 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 ^{134m}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。

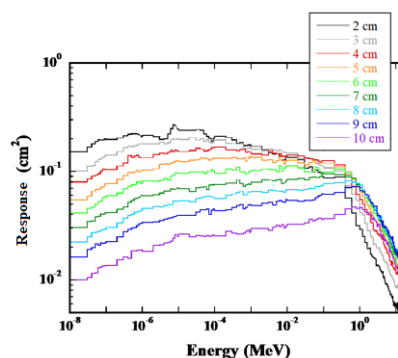


Fig.1. Response function of neutron irradiation with varying thickness of paraffin moderators

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¹, 近大原研² °(M2)木浦滉太¹, 若林源一郎², (M2)大和田蓮¹,
(M2)塙和鷹¹, (M1)外崎裕也¹, (M1)井谷豪人¹

Kindai Univ.¹, KUAERI.², °Kota Kiura¹, Genichiro Wakabayashi², Ren Owada¹,
Kazutaka Hanawa¹, Yuya Tonosaki¹, Taketo Itani¹

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、³He 検出器や BF₃ 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 ⁶Li(n, α)³H 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、 1.4×10^6 n/s) を利用した。CLLB(Ce)シンチレーション検出器 (φ 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 ^{134m}Cs、^{80m}Br、及びシンチレータに含まれる ¹³⁸La 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 ⁸⁰Br、^{134m}Cs、^{80m}Br、⁸²Br 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 ^{134m}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。

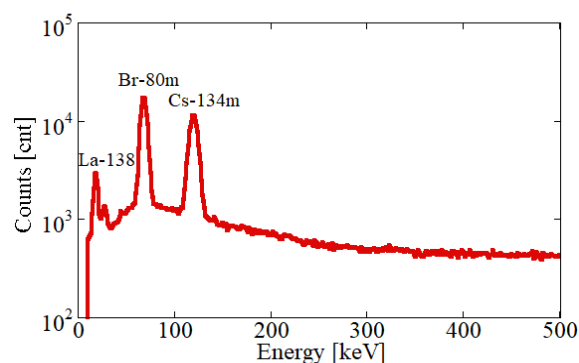


Fig.1 The pulse height spectrum obtained by the activation of a CLLB(Ce) scintillator.

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¹, 静岡大電子研², 浜松医大 Nx-CEC³

○南金山 圭吾¹, 新村 勇葵¹, 西澤 潤一^{2,3}, 加瀬 裕貴^{1,2}, 都木 克之², 谷 重喜³,
中村 和正³, 青木 徹^{1,2,3}

Shizuoka Univ.¹, Shizuoka Univ. R.I.E.², Hamamatsu Univ.S.M. Nx-CEC³

○Keigo Nakiyama¹, Yuki Shinmura¹, Junichi Nishizawa^{2,3}, Hiroki Kase², Katsuyuki Takagi²,
Shigeki Tani³, Katsumasa Nakamura³, Toru Aoki^{1,2,3}

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 γ 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 γ 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確認した。

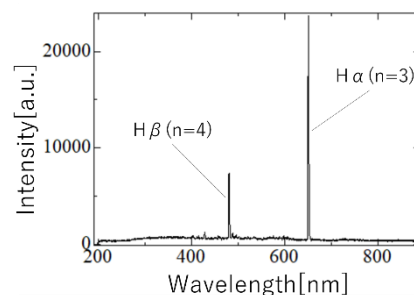
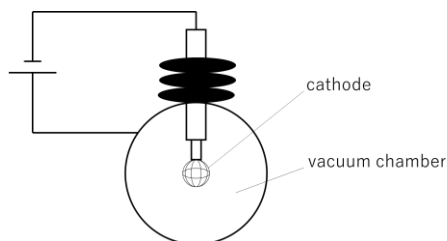


Fig1: schematic diagram of vacuum chamber Fig2: Emission spectrum of hydrogen plasma

ポリエチレンナフタレートシンチレータにおける

α/β 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^{1,2}

Grad. School of Sci. and Eng. Research, Kindai Univ.¹, AERI Kindai Univ.²,

○Yuya Soeta¹, Takahiro Yamada^{1,2}

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 α/β 線の測定に利用されている。一方、比電離の大きい α 線は β 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、 α/β 核種混在下での測定では、 α/β スペクトルは相互に重畳し、単純な波高弁別での α/β 線の分離は困難となる。この重畳の程度は α 線及び β 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 α/β 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、²⁴¹Am ($E_\alpha \approx 5.48$ MeV) 及び ³²P ($E_\beta \approx 1.71$ MeV) を用いた。厚さ 50 μm \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 4π 立体角での測定を可能にし、 α/β 線の実測スペクトルをそれぞれ得た。また、PHITS (Ver.3.330)¹⁾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 α 線の β 線に対する発光効率の相対比 α/β を求めた。

3. 結果及び考察

図 1(a)に、 α 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 α 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 β 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 β 線に対して 1188 CH/MeV の関係を得た。これらにより α 線による発光量の β 線に対する発光量の比 $\alpha/\beta = 8.42\text{E-}2 \pm 8.5\text{E-}3$ が得られる。一方、中村ら²⁾は、²⁰⁷Bi 及び ¹³⁷Cs から放出される内部転換電子及び ²⁴¹Am 及び ²⁵²Cf からの α 線の測定スペクトルから発光量の比較を行っている。その結果は $\alpha/\beta = 1.010\text{E-}1 \pm 8.2\text{E-}3$ とされ、本実験で得られた結果はこれより 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 β 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

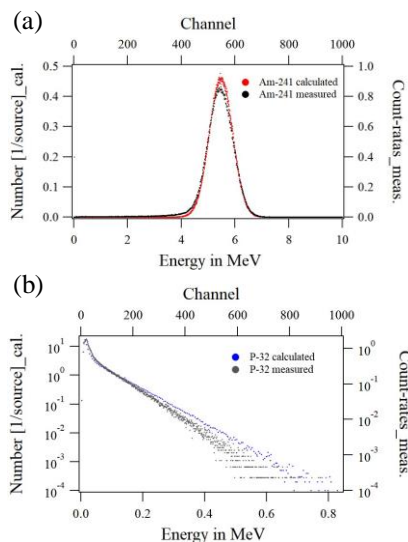


Fig.1. Measured and calculated spectra obtained by (a) ²⁴¹Am and (b) ³²P sources

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 α -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 [○](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 Otsuka¹, Takahiro Yamada^{1,2}

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

【目的】

近年短寿命 α 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 α/β 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。 α 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 α 核種の放射能測定への適用に向け、 α 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 mm^2 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 $d=45\text{ mm}$ 、真空チャンバ内の圧力 $<40\text{ Pa}$ とした。

【結果・考察】

得られた α 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 α 核種を含む 4 つの α 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 α 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 α 線ピークについて、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 α 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 α 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を見込まれた。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。

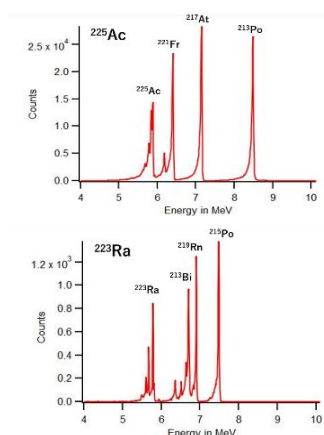


Fig. 1 α -spectra obtained by the present measurements using a Si-detector

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¹

○(M2) 丸田 京華¹, 小島 健太郎¹, 三輪 美沙子¹, 遠山 翔¹

加田 渉¹, 菊池 洋平¹, 松山 成男¹

Department of Quantum Science and Energy Engineering, Tohoku University¹,

°Kyoka Maruta¹, Kentaro Kojima¹, Misako Miwa¹, Sho Toyama¹

Wataru Kada¹, Yohei Kikuchi¹, Shigeo Matsuyama¹

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、化学状態などをマイ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 7 m 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のが課題である。

そこで、ビームライン全長を 3~4 m 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、3~4 m のビームラインでもビーム径 1 μ m 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ン加速器施設に新たに全長約 4.5 m 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。

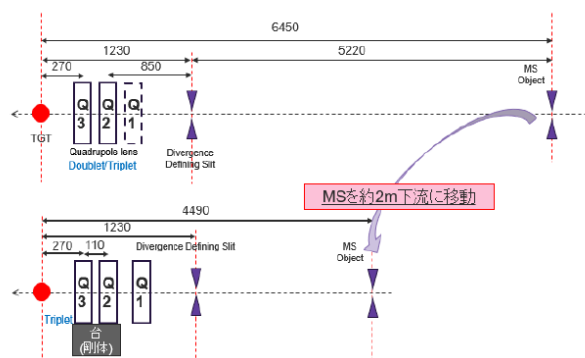


図 1. MBII-AQUA(上)と MBII-AQUA-Short(下)の構成

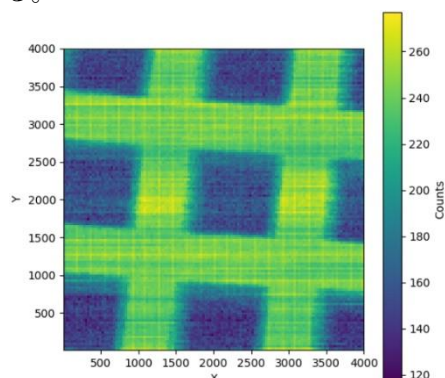


図 2. Ni メッシュの二次電子画像
(スキャン範囲 50 × 50 μ m²)

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 [○](MC)中妻 愛友美¹, 西澤 諒¹,

三輪 美沙子¹, 遠山 翔¹, 加田 渉¹, 松山 成男¹

QSE, Tohoku Univ.¹ [○](MC)Ayumi Nakatsuma¹, Yuki Ohtsuka¹, Makoto Nishizawa¹, Misako Miwa¹,
Sho Toyama¹, Wataru Kada¹, and Shigeo Matsuyama¹

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

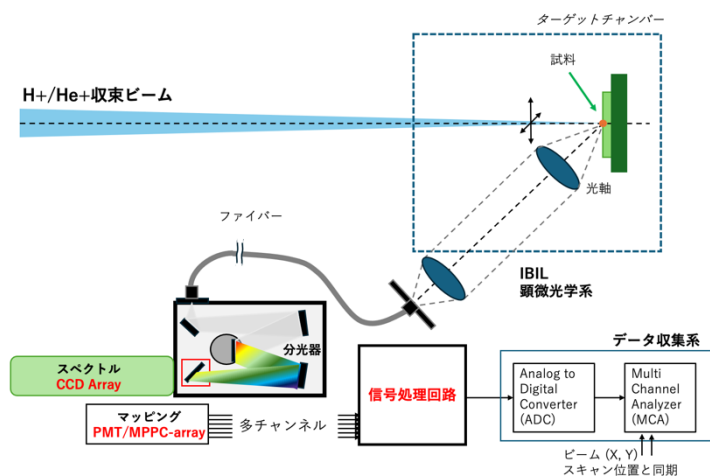


図 1 イオンビーム誘起発光 (Ion beam induced luminescence: IBIL) ならびに
蛍光 (Ion beam induced fluorescence: IBIF) 顕微光学系と接続される光検出器の概念図

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

Department of Quantum Science and Energy Engineering, Tohoku University¹,
Graduate School of Medicine, Tohoku University², Tokyo Metropolitan University³

°Takumi Matsumoto², Yohei Inaba², Shinnosuke Matsumoto³, and Wataru Kada²

E-mail: matsumoto.takumi.r1@dc.tohoku.ac.jp

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 90 kV, 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.

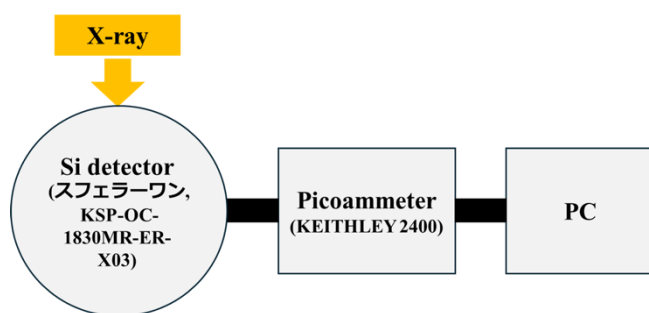


図 1. 球状放射線センサ素子を用いた測定体系

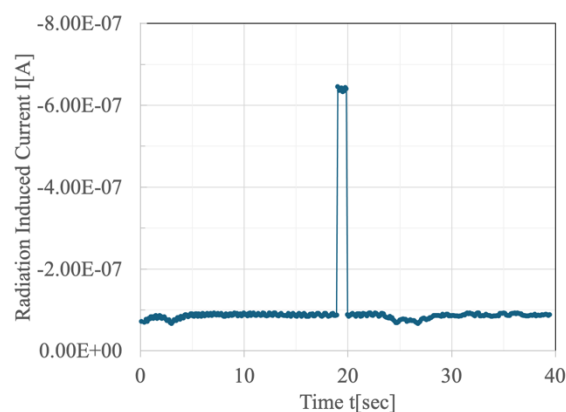


図 2. 診断 X 線照射時の過渡電流時間応答の例

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

○(M1) 高橋 玲央¹, 松本 真之介¹, 田中 浩基², 若林 源一郎³, 川根 充貴¹, 真正 浄光¹

Tokyo Metropolitan Univ.¹, Kyoto univ.², Kindai univ.³

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

Mitsuki Kawane¹, Kiyomitsu Shinsho¹

E-mail: shinsho@tmu.ac.jp

[諸言]

加速器ホウ素中性子補足療法(BNCT)では、ブリスト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¹⁾。また、陽子線に対する線量応答性も良好²⁾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 PHITS³⁾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 eV–28 MeV、コンバータ厚は 0.1 mm–5.0 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。

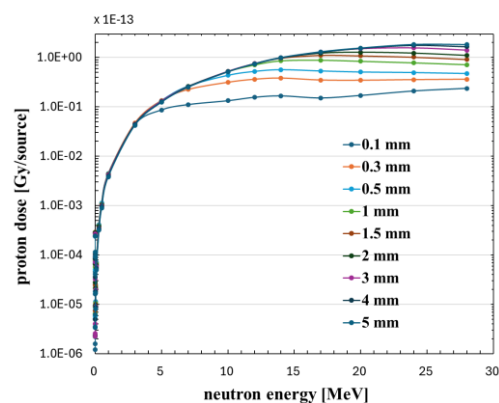


Fig. 1. Proton dose dependency for neutron energy using HDPE converter and BeO ceramics plates

1) M. Tanaka et al., J. Mater. Sci.: Mater. Electron. 33 (2022): 20271–20279

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

3) 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¹, 金沢工業大学² ○佐村 春月¹, 高橋 玲央¹, 川根 充貴¹,

岡田 豪², 眞正 浄光¹

Tokyo Metropolitan Univ.¹, Kanazawa Institute of Technology²,

○Haduki Samura¹, Leo Takahashi¹, Mitsuki Kawane¹,

Go Okada², Kiyomitsu Shinsho¹

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¹⁾は、X 線を 1 Gy 照射したサンプルを 250 °C 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、TORAIM¹⁾を用いた。プレ加熱温度は 100 - 400 °C の範囲で 50 °C 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 °C 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 °C 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

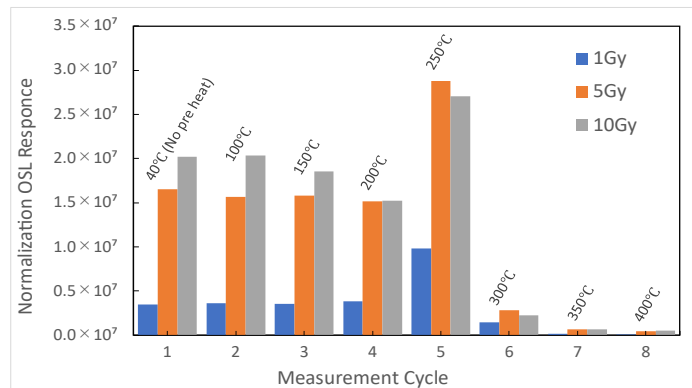


Fig. OSL intensity of the pre-heat process on BeO ceramics plates for different doses

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 °C 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¹, 早大理工², プロテリアル³ ◯大島 美礼¹, 有元 誠¹, 供田 崇弘¹,

Fitri Lucyana¹, 古田 優¹, 片岡 淳², 皆川 遼太郎², 寺澤 慎祐³, 塩田 諭³

Kanazawa Univ.¹, Waseda Univ.², Proterial Ltd.³, ◯Minori Oshima¹, Makoto Arimoto¹,

Takahiro Tomoda¹, Fitri Lucyana¹, Yu Furuta¹, Jun Kataoka², Ryotaro Minagawa²,

Shinsuke Terazawa³, Satoshi Shiota³

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64×1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 (~30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。

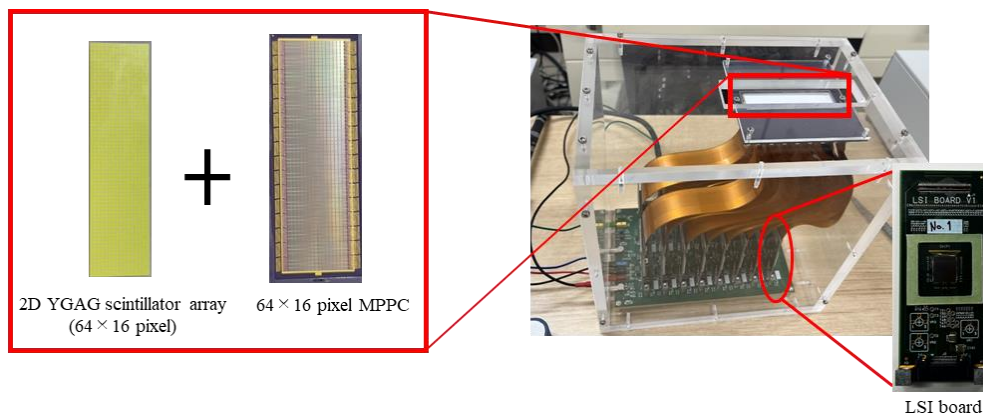


Fig.1 left : detector overview with 1024 channel MPPC array combined with YGAG scintillator array.
right : image combining 16 LSIs and the detector.

ガンマ・X線検出用 Tl 添加 $\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-Mg}(\text{PO}_3)_2\text{-CsPO}_3$ ガラス シンチレータの開発

Development of Tl doped $\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-Mg}(\text{PO}_3)_2\text{-CsPO}_3$ glass scintillators for γ - and X-ray detection

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

Tohoku Univ.¹, °Chie Morita¹, Ko Hasegawa¹, Yusuke Nakabayashi¹, Akito Watanabe¹,

Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹

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

【背景】 γ 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_{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_{eff} の増大が要求される。これまでに我々は、ガラスの高 Z_{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 $0.4\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-}0.4\text{M}(\text{PO}_3)_2\text{-}1.5\text{CsPO}_3\text{-}0.3\text{TlCl}$ ($\text{M} = \text{Mg, Ca, Sr, Ba}$) 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 Tl 濃度を異にする $0.4\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-}0.4\text{Mg}(\text{PO}_3)_2\text{-}1.5\text{CsPO}_3\text{-}x\text{TlCl}$ 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 $\text{Al}(\text{PO}_3)_3$ (99.999%), CsH_2PO_4 (99%), $\text{Mg}(\text{PO}_3)_2$ (99%), 及び TlCl (99.9%) を、 $0.4 : 0.4 : 1.5 : x$ の割合で混合し、真空下での熔融急冷法によりガラスを作製した。これらを試料として、X線励起発光 (XRL) スペクトル及び ^{137}Cs - γ 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 BGO シンチレータ (8600 photons/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 $6s^2 \rightarrow 6s$ 遷移に由来するものと考えられる²⁾。Fig.2 に、 ^{137}Cs - γ 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).

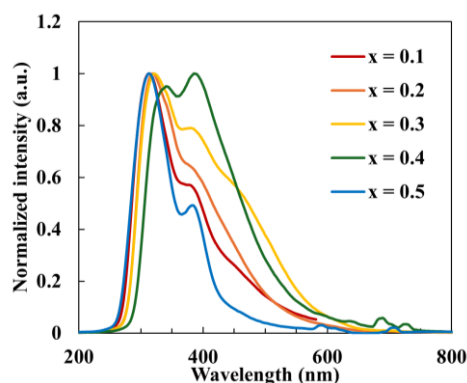


Fig. 1. XRL spectra of fabricated samples.

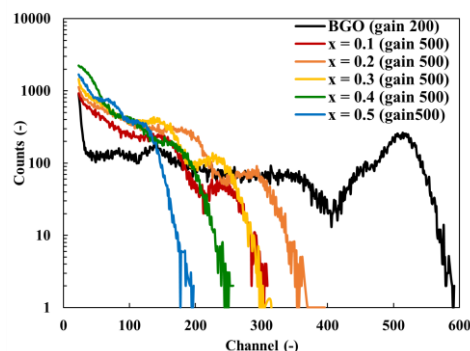


Fig. 2. pulse-height spectra of fabricated samples.

Ce 添加 $\text{Cs}_2\text{NaScCl}_6$ エルパソライト単結晶シンチレータの開発

Development of Ce-doped $\text{Cs}_2\text{NaScCl}_6$ elpasolite single crystalline scintillators

東北大院工 [○](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 γ 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 ($\text{A}_2\text{B}^+\text{B}'^{3+}\text{X}_6$) が新たな光学材料として注目されており、 $\text{Cs}_2\text{LiYCl}_6\text{:Ce}^{[1]}$ において顕著のように、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 $\text{Cs}_2\text{NaScCl}_6$ (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 , $\text{ScCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, CeCl_3 (Sc に対して Ce を 0.5 mol%添加) を量論比で混合し、真空中 300 °Cで 24 h 脱水した後、石英アンブ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線励起ラジオリミネッセンス (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^[2]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、 Ce^{3+} の 5d–4f 遷移^[1]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).

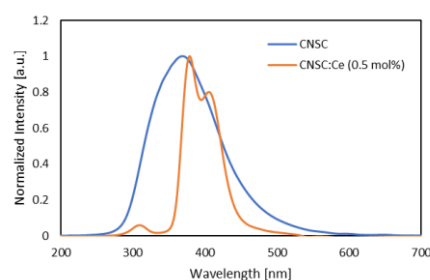


Fig.1. XRL spectra of pristine and Ce-doped CNSC.

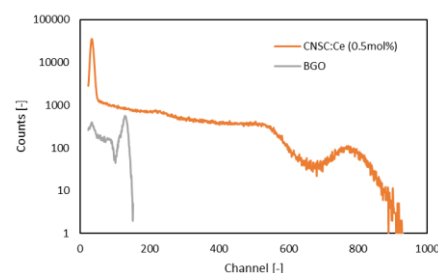


Fig.2. ^{137}Cs -gamma-ray irradiated pulse-height spectra for Ce-doped CNSC and BGO.

Tl₂NaScCl₆ 結晶におけるシンチレーション機構の解明

Revelation of scintillation mechanism in Tl₂NaScCl₆ crystal

東北大院工 °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・γ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 Tl₂NaScCl₆ 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 Tl₂NaScCl₆ 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。

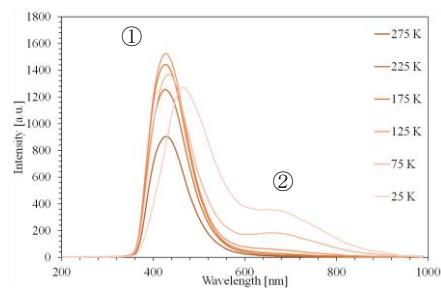


Fig. 1 Temperature dependence of the XRL spectrum of a Tl₂NaScCl₆ crystal.

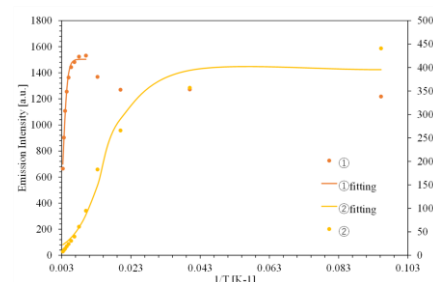


Fig. 2 Temperature dependence of the XRL intensity of a Tl₂NaScCl₆ crystal.

昇温結晶化法により作製した無添加および賦活剤添加 CsI 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, °(B) 権田 樹, 藤本 裕, 川本 弘樹, 浅井 圭介

Tohoku Univ.¹, °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(Tl)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TlI, 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、シリジレスフィルター(孔径:0.45μm)で濾過した。これをスクリー菅瓶に移し、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).

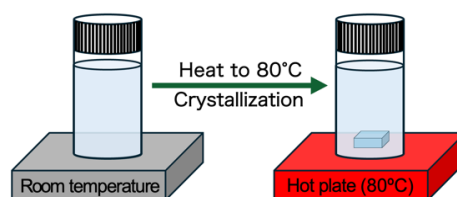


Fig. 1 Crystallization method

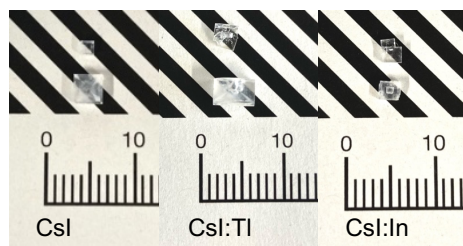


Fig. 2 Appearance of CsI, CsI:Tl and CsI:In crystals

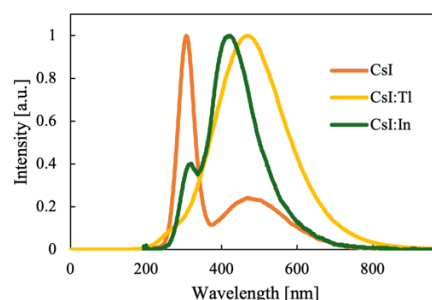


Fig. 3 Scintillation spectrum of CsI, CsI:Tl and CsI:In crystal

可視光領域において優れた透明性を示す ZrO_2 ナノ粒子分散液の開発 Development of ZrO_2 nanoparticle dispersion with excellent transparency in the visible light region

東北大院工¹, 東北大 SRIS², 東北大 AIMR³, Univ. Suwon⁴, 東北大 FRIS⁵, 静岡大電子研⁶

○渡邊 晶斗¹, 横哲^{2,3}, 成基明⁴, 筈居高明⁵, 阿尻雅文³,

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 Yoko^{2,3}, 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ね備え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¹。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。

亜臨界面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 ml の超純水とともに 5 ml のハステロイ管に封入し、300 °C、30 MPa、10 min. 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 ml 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.

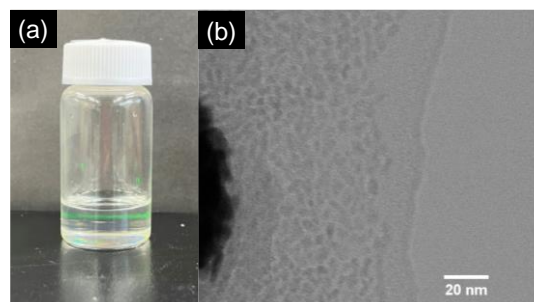


Fig. 1. Images of (a) nanoparticle dispersion and (b) TEM.

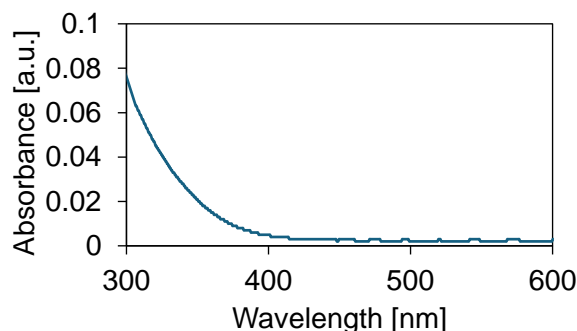


Fig. 2. Absorption spectrum.

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、放射線検出に应用されている。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、低熔点、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^[1]。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、Eu²⁺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、BaF₂、BaCl₂、EuCl₂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°Cまで熱し、2h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、Eu²⁺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 mol%添加体での蛍光ピーク波長はそれぞれ392, 395, 400 nmであり、Eu²⁺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Eu²⁺添加で発現するEu²⁺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、Eu²⁺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、Eu²⁺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、Eu²⁺添加体においては、蛍光波長400 nm付近に、Eu²⁺の5d-4f遷移に起因する発光ピークが認められ、Eu²⁺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

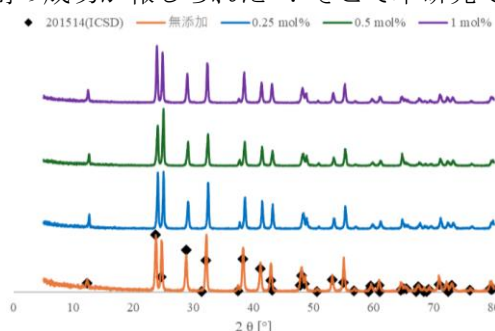


Fig.1. XRD patterns

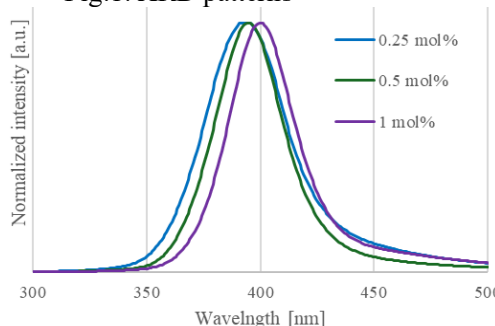


Fig.2. X-ray excited emission spectra

Ce 添加 $\text{LiPO}_3\text{--Al(PO}_3)_3\text{--CsPO}_3$ 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 $\text{LiPO}_3\text{--Al(PO}_3)_3\text{--CsPO}_3$ glasses

東北大院工, °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 ^3He ガスの枯渇危機を受け, ^3He 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 ^6Li 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 Ce 添加 $\text{LiPO}_3\text{--Al(PO}_3)_3\text{--CsPO}_3$ ガラス¹⁾を開発した. 本研究では, 添加する Ce 濃度の最適化を目的として, 当該組成において様々な 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 Ce 濃度依存性の評価を行った.

【実験方法】原料には, LiPO_3 (98.0%), $\text{Al(PO}_3)_3$ (99.999%), CsH_2PO_4 (99%), 及び CeCl_3 (99.99%) を使用した. これらをそれぞれ $\text{LiPO}_3 : \text{Al(PO}_3)_3 : \text{CsH}_2\text{PO}_4 : \text{CeCl}_3 = 1 : 1 : 1 : x$ ($x = 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$) の割合で混合し, 真空中 950°C で熔融後, 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 α/γ 比はそれぞれ 0.18 および 0.14 であった. 以上より, $\text{LiPO}_3\text{--Al(PO}_3)_3\text{--CsPO}_3$ 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.

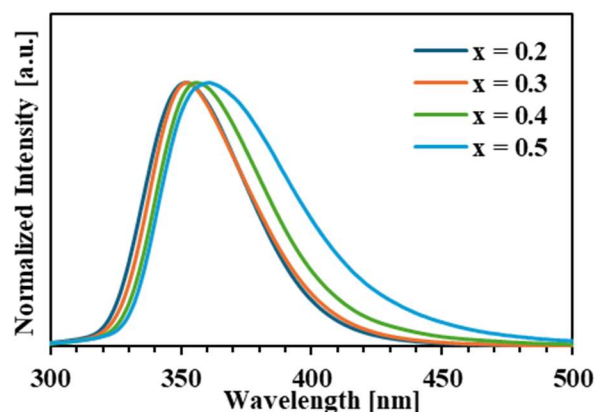


Fig. 1 XRL spectra.

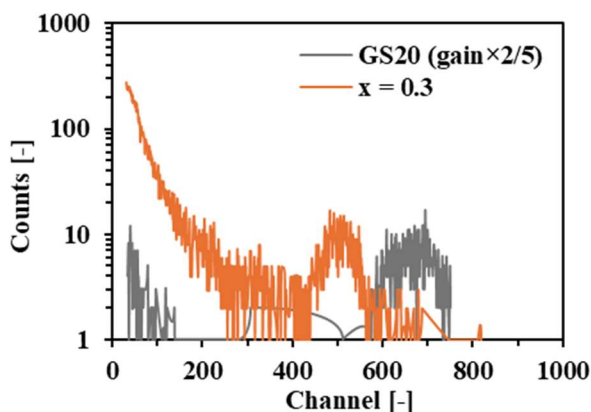


Fig. 2 ^{252}Cf -neutron-irradiated pulse-height spectra.

【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 Sb^{3+} 添加 Rb_2HfCl_6 結晶シンチレータの合成および性能評価



Development and property evaluation of Sb^{3+} -doped Rb_2HfCl_6 Crystal Scintillator by using a slow solvent performance method

東北大院工 ◯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¹⁾。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 aq (36 wt%) 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% とした。これらをスクリュウ管瓶に移し、温度を 80°C に設定したホットスターラーで加熱・攪拌した。溶質が完全に溶解したところで攪拌を止め、 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 $[\text{HfCl}_6]^{2-}$ 錯体による発光²⁾、後者は $[\text{SbCl}_5]^{2-}$ 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.

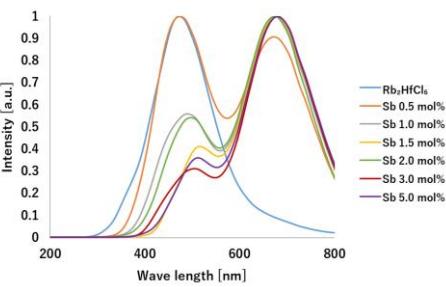


Fig. 1 XRL spectra of Sb^{3+} -doped Rb_2HfCl_6

Table 1 Decay time constants of Sb^{3+} -doped Cs_2HfCl_6

Sb^{3+} 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%)

※カッコ内は蛍光強度比

CsPO₃-Al(PO₃)₃-NdCl₃系ガラスの蛍光及びシンチレーション特性 Photoluminescence and scintillation properties of CsPO₃-Al(PO₃)₃-NdCl₃ 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、真空中での急冷法により行った。出発原料として、CsH₂PO₄ (2N)、Al(PO₃)₃ (5N)及び NdCl₃・6H₂O (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°Cに加熱することで原料を熔融し、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 1.5CsPO₃-0.7Al(PO₃)₃-0.3NdCl₃ 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、Nd³⁺の ²F_{5/2}→⁴F_{5/2} (390 nm)、⁴F_{3/2}→⁴I_{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 1.5CsPO₃-0.7Al(PO₃)₃-0.3NdCl₃ glass.

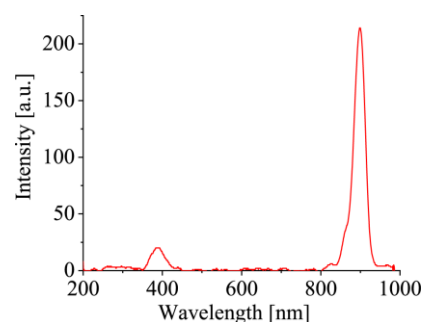


Fig. 2 X-ray excited scintillation spectrum of the glass.

ソルボサーマル法により作製した $\text{YF}_3:\text{Ce}^{3+}$ 蛍光体の生成相と発光特性の関係 Relationship between the formation phase and luminescence properties of $\text{YF}_3:\text{Ce}^{3+}$ phosphors prepared by the solvothermal method

¹静岡大学大学院 総合科学技術研究科, ²静岡大学 電子工学研究所, ³静岡大学 情報学部
(M2)定盛 智紀¹, (M1)吉村 成生¹, 小南 裕子¹, 原 和彦^{1,2}, 都木 克之², 青木 徹^{1,2,3}

¹Grad.School of Integrated Sci.&Technol., Shizuoka Univ., ²Res.Inst.Electron., Shizuoka Univ.,
³Faculty of Informatics, Shizuoka Univ.

Tomoki Sadamori¹, Naruki Yoshimura¹, Hiroko Kominami^{1,2}, Kazuhiko Hara^{1,2},
Katsuyuki Takagi², Toru Aoki^{1,2,3}

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 Ce^{3+} 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、 $\text{YF}_3:\text{Ce}^{3+}$ 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 °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、フォトルミネッセンス(PL)測定、X 線ルミネッセンス測定、透過型電子顕微鏡観察により評価した。

3. 結果と考察

Fig.1 に合成時間を変化させた $\text{YF}_3:\text{Ce}^{3+}$ 試料の XRD パターンを示す。この結果より、母体である YF_3 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、 YF_3 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。

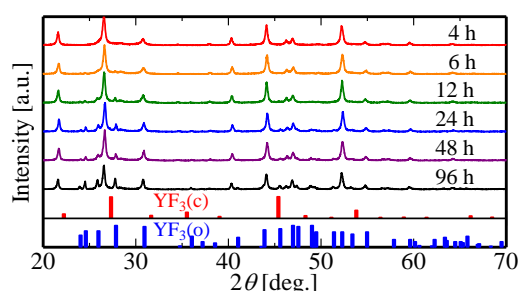


Fig.1 XRD patterns of $\text{YF}_3:\text{Ce}^{3+}$ nanoparticle with different synthesis time

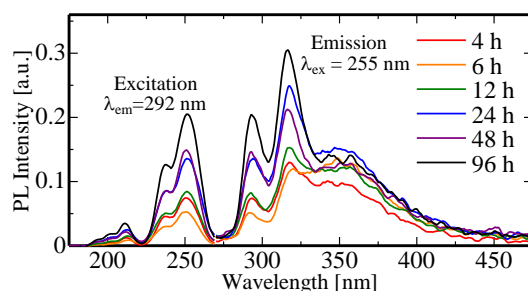


Fig.2 Photoluminescence Spectra of $\text{YF}_3:\text{Ce}^{3+}$ with different synthesis time

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 $\text{YF}_3:\text{Ce}^{3+}$ 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, °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^[1]。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 $\text{Ag}_2\text{O}-\text{P}_2\text{O}_5$ 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_2O 及び $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ の粉末試薬を用いて、 $40.96\text{Ag}_2\text{O}-59.04\text{P}_2\text{O}_5$ 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、 $\text{Ag}_2\text{O}-\text{P}_2\text{O}_5$ 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).

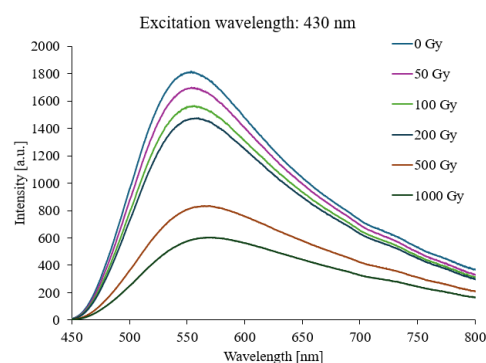


Fig. 1 PL spectra

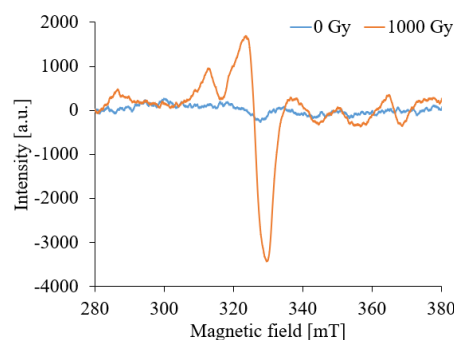


Fig. 2 ESR spectra

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, °(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ッセンス (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^[1]、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 $(100-x) (65\text{B}_2\text{O}_3-5\text{Al}_2\text{O}_3-30\text{Li}_2\text{O})-x\text{Ag}_2\text{O}$ ($x = 0, 1$) ガラスを熔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。

【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.

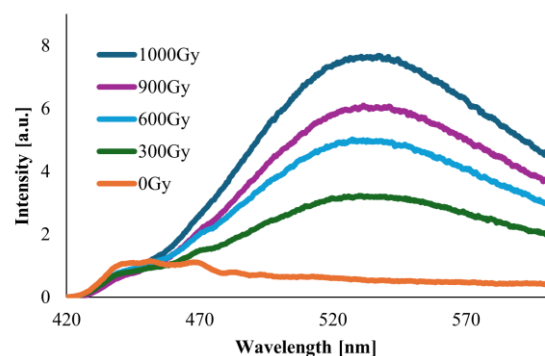


Fig. 1 PL spectra with the excitation wavelength of 410 nm.

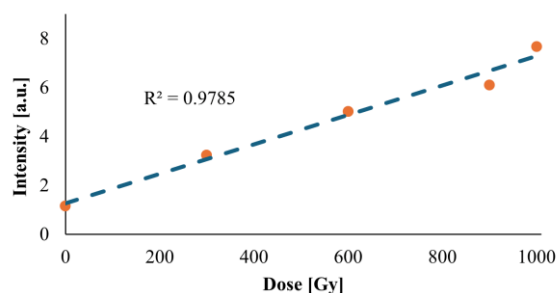


Fig. 2 Dose dependences of the PL intensity with the excitation wavelength of 410 nm.

中性子線照射による Sn^{2+} 添加 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスの熱蛍光

Neutron-induced thermoluminescence of Sn^{2+} -doped $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ glasses

東北大院工¹, 静岡大電子研², 近大原研³ ○(M1)高津 匠吾¹, 山口 寛人¹, 川本 弘樹¹,
藤本 裕¹, 越水 正典², 若林 源一郎³, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, Shizuoka Univ.², Kindai Univ.³ °Shogo Takatsu¹, Hiroto Yamaguchi¹,

Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Masanori Koshimizu², Genichiro Wakabayashi³, Keisuke Asai¹

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 Sn^{2+} を添加した $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ 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 ($^{10}\text{B}>96.0\%$)または ^{11}B 濃縮 H_3BO_3 ($^{11}\text{B}>99.0\%$)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・熔融後、ステンレス板上 (500 °C) に展延、急冷し、2種類の $34.5\text{CaO-15Al}_2\text{O}_3\text{-50B}_2\text{O}_3\text{-0.3SnO}_2$ 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 1.0×10^{11} neutrons/cm² 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 γ 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 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスの中性子検出機能を実証した。

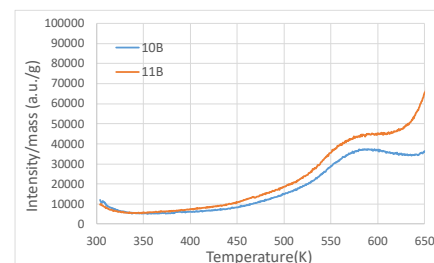


Fig.1 TL glow curves of Sn^{2+} -doped glasses after X-ray irradiation of 10 Gy.

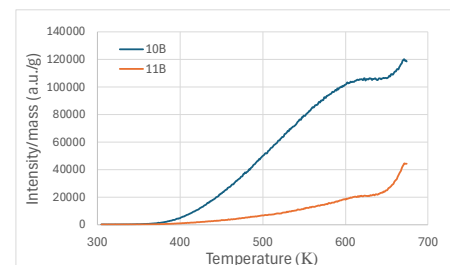


Fig.2 TL glow curves of Sn^{2+} -doped glasses after neutron irradiation of 10^{11} neutrons/cm².

Bi 添加 $\text{Li}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ ガラスにおける RPL 特性評価

Evaluation of RPL properties in Bi-doped $\text{Li}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ glass

金沢工大, °(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 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 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 $1200^\circ\text{C} \cdot 1$ 時間熔融した。さらに、この融液をおよそ 400°C でプレス冷却することでガラス化させた。その後、 450°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

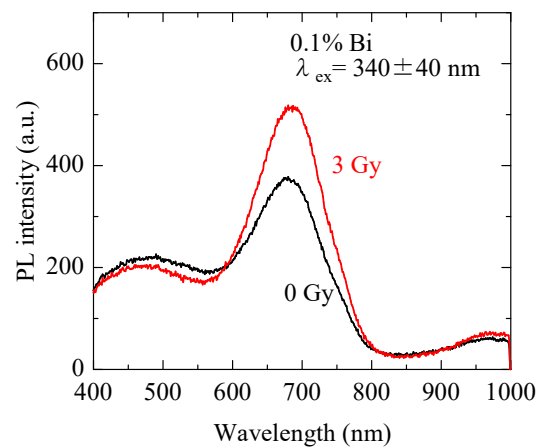


Fig. 1 PL spectra of Bi-doped LAP glass before and after X-ray irradiation.

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 ± 40 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、 $^2\text{P}_{3/2}(1) \rightarrow ^2\text{P}_{1/2}$ 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-P₂O₅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-P₂O₅ Ceramic Systems and RPL Properties

金沢工大, ○(B)青木 美歩, 岡田 豪, 南戸 秀仁

KIT, ○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-P₂O₅系セラミックスに着目した。CaO-P₂O₅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 材料探索の一步として、CaO-P₂O₅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-P₂O₅系セラミックスを合成した。出発原料には CaCO₃ および NH₄H₂PO₄ 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℃、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、CaP₂O₆、Ca₂P₂O₇、Ca₃P₂O₈、Ca₄P₂O₉ 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 CaP₂O₆ および Ca₂P₂O₇、Ca:P = 1.75:1.00 のときに Ca₂P₂O₇ および Ca₅P₃O₁₃ 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。

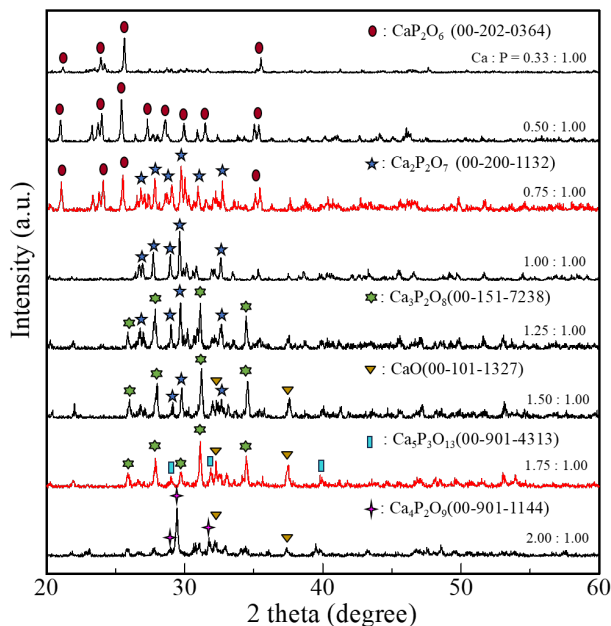


Fig. 1 XRD patterns of CaO-P₂O₅ systems prepared in this study.

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 Paulo¹, Kanazawa Institute of Technology², Federal University of São Paulo³

E-mail: paschoal.caroline@usp.br

Borate matrices are commonly used in luminescent dosimetry due to their effective atomic number (Z_{eff}) being close to that of human tissue. An example is $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (LTB) doped with Cu, Ag, P, and Mn in different concentrations to increase its luminescent response, with a minimum detectable dose around $0.5 \mu\text{Gy}$. 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[○](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、 $\text{MnSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ をホウ酸に対し、0、 2.0×10^{-2} 、 3.0×10^{-2} 、 5.0×10^{-2} 、 10×10^{-2} 、 20×10^{-2} mol/mol で混合した。この溶液を 70℃で 10 分間攪拌し、80℃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℃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ブカーブを示す。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。

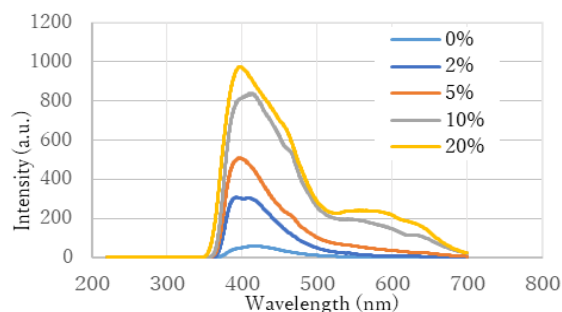


Fig. 1 Photoluminescence spectra of BCNO phosphors with $\text{MnSO}_4/\text{H}_3\text{BO}_3$ molar ratio of 0–20%.

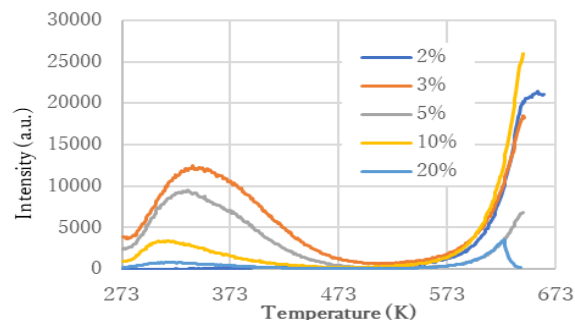


Fig. 2 Thermoluminescence glow curves of BCNO phosphors with $\text{MnSO}_4/\text{H}_3\text{BO}_3$ molar ratio of 2–20% after X-ray irradiation to 1 Gy.

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 10wt%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.

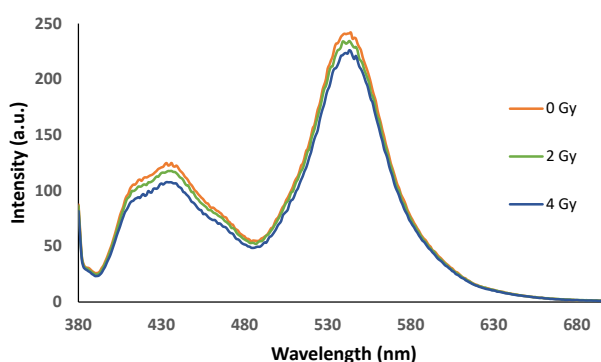


Fig. 1. Photoluminescence spectra of fluorescein in PMMA and PC before and after X-ray irradiation.

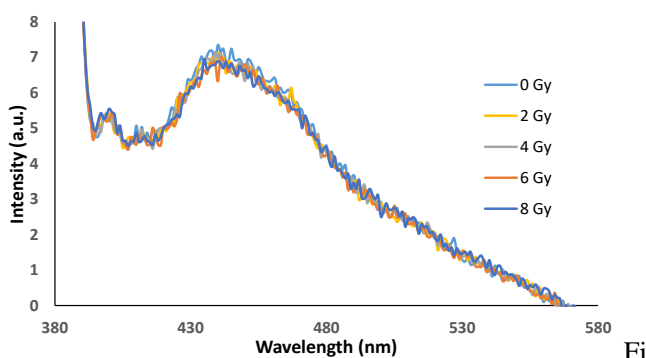


Fig. 2. Photoluminescence spectra of fluorescein and BQ in PMMA and PC before and after X-ray irradiation.

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 LiTaO₃ Ceramics

静岡大¹, 近大原研² [○](M1)平松 祐汰¹, 若林 源一郎², 越水 正典¹

Shizuoka Univ.¹, Kindai Univ.², [○]Yuta Hiramatsu¹, Genichiro Wakabayashi², Masanori Koshimizu¹

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 ⁶Li 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 LiTaO₃ 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^[1]、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】⁶Li₂CO₃ (99.99%)または⁶Li濃縮Li₂CO₃ (⁶Li: 95 atom%含有)、Ta₂O₅、MgO、および Pr₆O₁₁ 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、⁶Li または ⁶Li 濃縮 LiTaO₃: 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。⁶Li および ⁶Li 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

γ 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 10⁹ neutrons/cm² 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 ± 15 K の熱蛍光強度を積分すると、⁶Li 試料は ⁶Li 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、⁶Li 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.

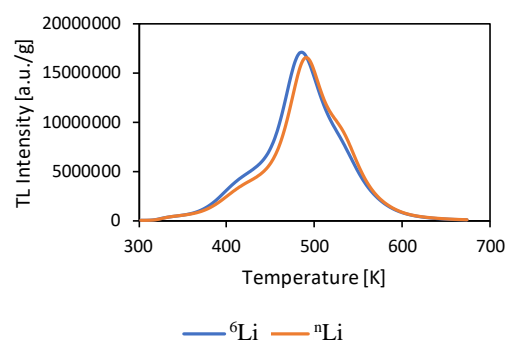


Fig. 1. Thermoluminescence glow curves of Mg, Pr-codoped LiTaO₃ irradiated with X-rays to 0.1 Gy.

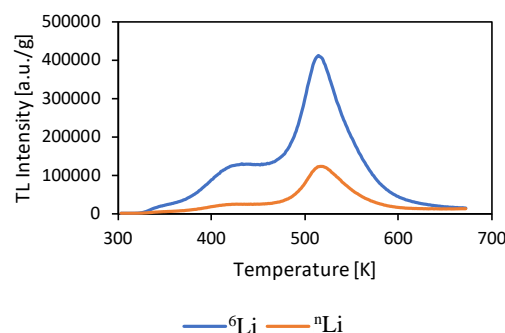


Fig. 2. Thermoluminescence glow curves of Mg, Pr-codoped LiTaO₃ irradiated with neutrons at 1.0×10⁹ neutrons/cm².

Effect of Composition on Scintillation Light Yield of Ce-doped $\text{Gd}_3\text{Al}_{5-y}\text{Ga}_y\text{O}_{12}$ 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 $\text{Gd}_3\text{Al}_{5-x}\text{Ga}_x\text{O}_{12}$ (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 Ce^{3+} 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 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.

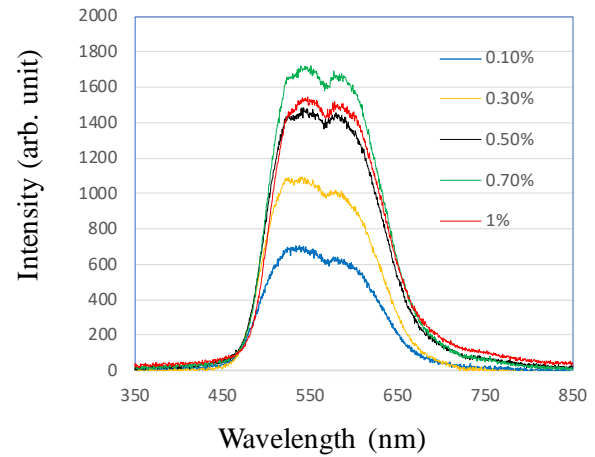


Fig. 1. Scintillation spectrum of the nanoparticles synthesized with different Ce concentrations.

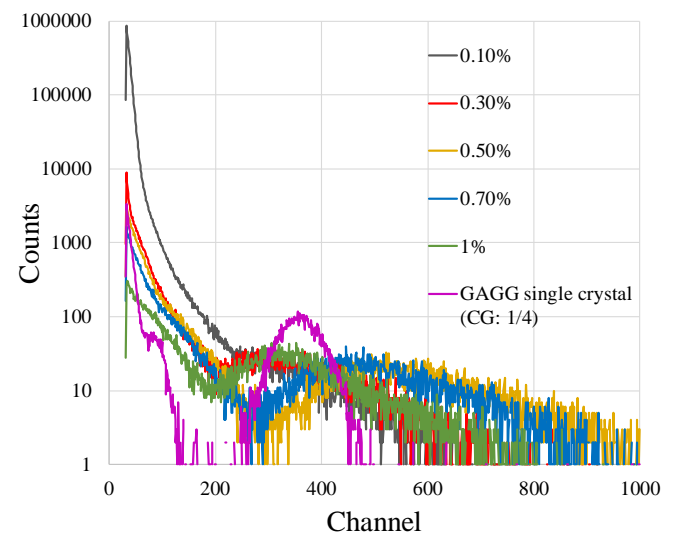


Fig. 2. Pulse height spectra of the nanoparticles with different Ce concentrations.

発光中心添加 $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$ 熱蛍光体における LET 特性の制御

Control of LET dependence of thermoluminescence properties of doped $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$

静大電子研¹, 東北大院工², QST³

越水 正典¹, 小宮 基², 古場 裕介³, 藤本 裕², 浅井 圭介²

Shizuoka Univ.¹, Tohoku Univ.², QST³ Masanori Koshimizu¹, Hajime Komiya², Yusuke Koba³,

Yutaka Fujimoto², Keisuke Asai²

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变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 $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$ 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 $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$ 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 $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$ 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 $\text{Sr}_2\text{B}_2\text{O}_5$ 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 $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$ 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 $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$ 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。①～③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。

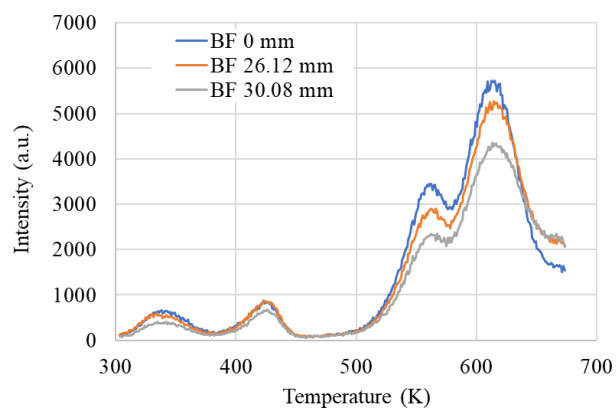


Fig. 1. TL glow curves of Sn-doped $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$ ceramics after irradiation of 135-MeV/n carbon with different thicknesses of binary filter (BF).

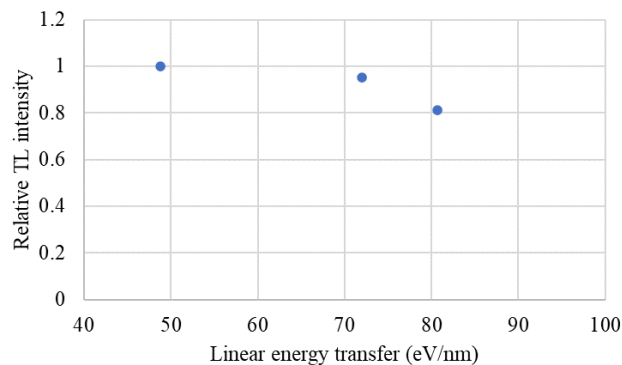


Fig. 2. LET dependence of TL intensity of Sn-doped $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5$ ceramics.

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 ○(B)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、および機械的強靱性に優れる。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 γ 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.

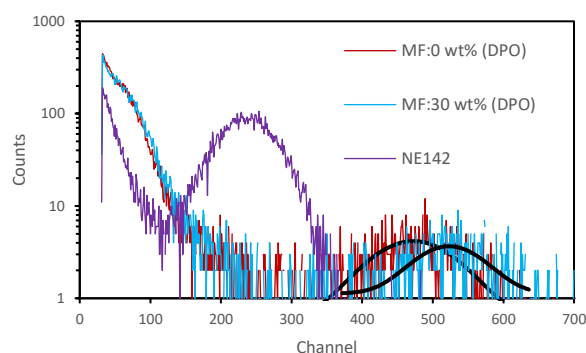


Fig. 1. Pulse-height spectra of scintillator with DPO added as the primary dye, and NE142.

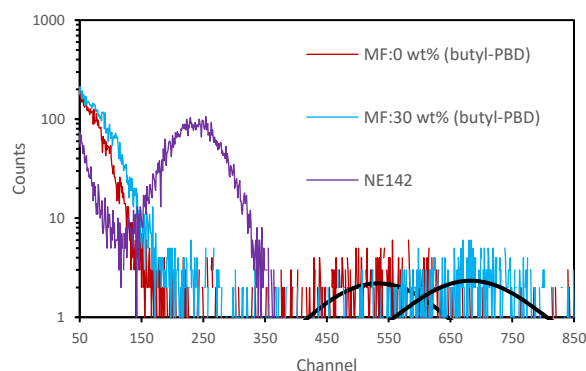


Fig. 2. Pulse-height spectra of scintillator with butyl-PBD added as the primary dye, and NE142.

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., ○Kazuki 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 CsPbBr₃ 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 QY45.5% の QD 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 線ラジオリミネッセンス測定 (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 の発光ピーク (520–530 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 wt%と 40 wt%の試料のシンチレーション強度は、それぞれ、10wt%の試料のおよそ 1.1 倍および 5 倍であった。このことは、QD の PL QY が 30~50% のとき、シンチレーション強度が 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.

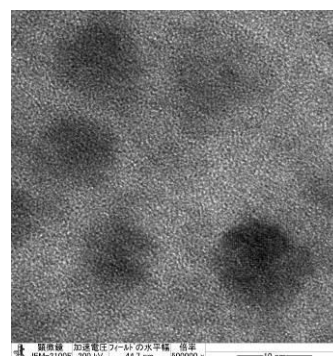


Fig.1 TEM image of Quantum dots.

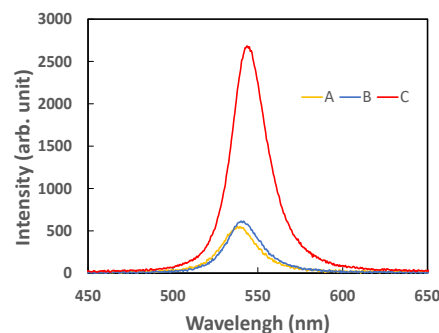


Fig. 2 Scintillation spectra of samples.

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 ($\text{Tb}_3\text{Al}_x\text{Ga}_{5-x}\text{O}_{12}$) の組成の探索を行った。

【実験方法】ホスト組成に $\text{Tb}_3\text{Al}_x\text{Ga}_{5-x}\text{O}_{12}$ 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、 $x=0\sim5$ 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^{3+} についての既報[1]より、それぞれ Eu^{3+} の $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_1$ と $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_2$ 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]より、ブロードなピークは Tb^{3+} の $^7\text{F}_6 \rightarrow ^9\text{E}$ に、鋭いピークは Tb^{3+} の $^7\text{F}_6 \rightarrow ^5\text{D}_0$ 、 $^7\text{F}_6 \rightarrow ^5\text{D}_1$ 、 $^7\text{F}_6 \rightarrow ^5\text{D}_2$ 、 $^7\text{F}_6 \rightarrow ^5\text{D}_3$ 、および $^7\text{F}_6 \rightarrow ^5\text{D}_4$ 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、 Eu^{3+} の周囲の配位環境が変化することで、 $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_1$ 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.

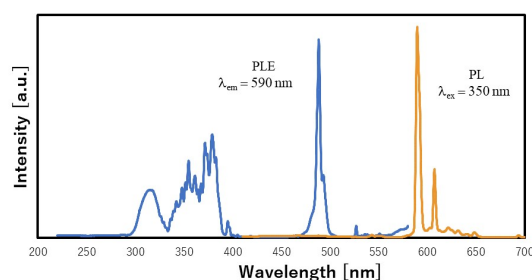


Fig. 1. Room-temperature PL and PLE spectra for the TAGG ($x=0$) phosphor measured with $\lambda_{\text{ex}} = 350 \text{ nm}$ and $\lambda_{\text{em}} = 590 \text{ nm}$.

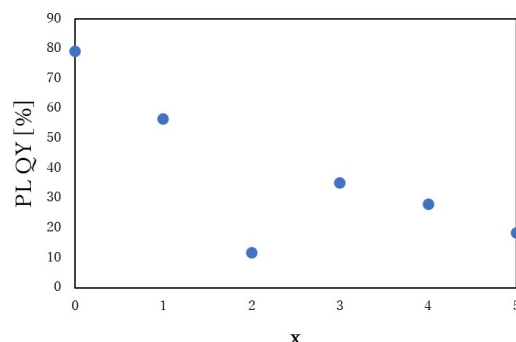


Fig. 2. Relationship between x and PL QY.

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. ○Naru 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、9-vinylcarbazole 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-dimethylfluorene 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 30 wt% と 60 wt% 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>

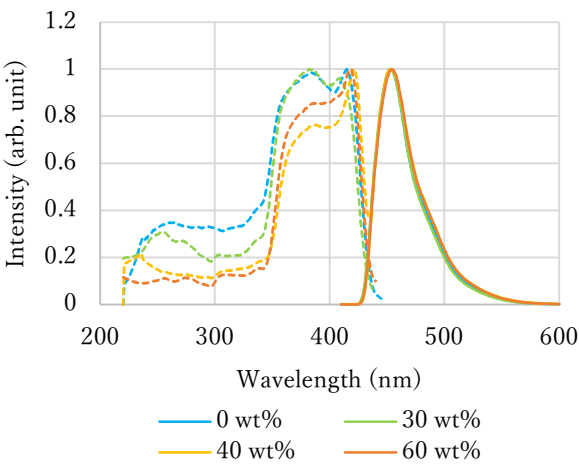


Fig. 1. Emission and excitation spectra of samples containing 9-vinylcarbazole.

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

DPO+POPOP 60 wt% (M-211B に対して)	
9-vinylcarbazole (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℃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 (物質質量比 80:1) をテトラヒドロフランに溶解し、表面修飾 LiGaO₂ 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 LiGaO₂ 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 μm の PS の厚さに対して PS 下部に 40 μm のナノ粒子層が観測された。表面修飾 LiGaO₂ 添加 PS では、350 μm の PS の厚さに対して PS 下部に 150 μm 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 ナノ粒子の 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.

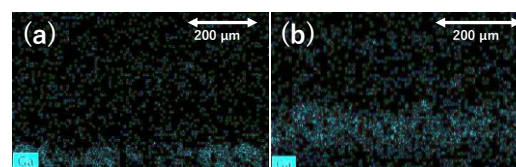


Fig. 1 EDS maps of Ga of (a) unmodified and (b) surface-modified LiGaO₂ nanoparticles-loaded plastic scintillators.

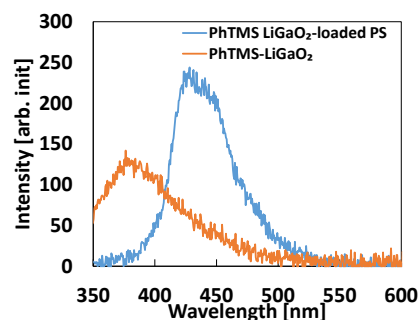


Fig. 2 XRL spectra of surface-modified LiGaO₂-loaded plastic scintillator and surface modified-LiGaO₂ nanoparticles.

2 放射線 | 一般セッション(口頭講演) : 2.1 検出器デバイス開発

[19a-D61-1~11] 2.1 検出器デバイス開発

[19a-D61-1]

宇宙線ミュオンの角度再構成による到来方向測定用DSSD二枚積層モジュールの評価

○(M1)佐藤 丞¹、幸村 孝由¹、内田 悠介¹、渡邊 雄気¹、永松 愛子²、玉川 徹^{3,4}、中村 吏一朗³、内山 慶祐⁴、大田 尚享⁴、武田 朋志⁴、高橋 忠幸⁵、武田 伸一郎⁵、萩野 浩一⁶、長澤 俊作⁷ (1.東理大創域理工、2.JAXA、3.理化学研究所、4.東理大理、5.東大カブリ IPMU、6.東大院理、7.SSL/UC Berkeley)

[19a-D61-2]

月探査機搭載用チェレンコフ検出器 Lunar-RICHeS のエネルギー測定下限調査

○大田 尚享^{1,3}、玉川 徹¹、中村 吏一朗¹、内山 慶祐^{1,3}、武田 朋志^{1,3}、永松 愛子²、幸村 孝由⁴、内田 悠介⁴、藤澤 海斗⁴、佐藤 丞⁴、富山 一貴⁴、藤井 雅之⁵、萩野 浩一⁶、北村 尚⁷ (1.理研、2.JAXA、3.東理大院理、4.東理大院理工、5.ファムサイエンス、6.東大院理、7.量研)

[19a-D61-3]

1 mm厚CdTe-DSDの性能評価

○古川 湧基¹、高橋 忠幸²、武田 伸一郎^{2,6}、桂川 美穂⁴、南 喬博^{3,2}、渡辺 伸⁵、幸村 孝由¹、内田 悠介¹ (1.東理大創域理工、2.Kavli IPMU、3.東大理、4.京大理、5.ISAS/JAXA、6.iMAGINE-X)

[19a-D61-4]

Cu電極を用いたショットキー型CdTe検出器の諸特性

○都木 克之¹、都木 利之²、西澤 潤一^{1,3}、加瀬 裕貴¹、青木 徹^{1,2,3} (1.静岡大電子研、2.静岡大院光医工、3.浜松医大Nx-CEC)

[19a-D61-5]

X線天文衛星搭載用SOIピクセル検出器に対する放射線耐性の評価

○(M1)藤田 紗弓¹、志賀 文哉¹、幸村 孝由¹、内田 悠介¹、鶴 剛²、内田 裕之²、松田 真宗²、成田 拓仁²、上林 暉²、上村 悠介²、森 浩二³、武田 彩希³、西岡 祐介³、行元 雅貴³、木村 明愉³、塩川 朝日³、三谷 美輝³、角谷 昂亮³、鎌田 信彦³、黒木 瑛介³、信川 久実子⁴、岸本 拓海⁴、栗野 慧⁴、萩野 浩一⁵、松橋 裕洋⁵、鈴木 寛大⁶、田中 孝明⁷、上ノ町 水紀⁸、新井 康夫⁹、倉知 郁夫¹⁰ 齊藤悠人 サイトウ ユウト Saito Yuto 3、佐々木悠任 ササキ ユウト Sasaki Yuto 3、淵田悠太 フチタ ユウタ Fuchita Yuta 3、吉田大雅 ヨシダ タイガ Yoshida Taiga 3 (1.東理大創域理工、2.京大理、3.宮崎大工、4.近大理工、5.東大理、6.JAXA、7.甲南大理工、8.東工大科創研、9.KEK、10.D&S)

[19a-D61-6]

ガンマ線検出用位置検出型TES型マイクロカロリメータの雑音と多重散乱を含めた位置分解能シミュレーション

○(M2)田河 佑規¹、伊豫本 直子¹、松見 勇輔¹、藤田 悠人¹、木原 優宏¹、秦 直央¹、森山 凛太郎¹、執行 信寛¹、梅野 高裕¹、山崎 典子²、八木 雄大²、田中 圭太²、太田 瞭²、満田 和久³、林 佑⁴、鶴田 哲也⁵ (1.九大院工、2.宇宙科学研究所、3.国立天文台、4.立教大、5.産総研)

[19a-D61-7]

Glass Gas Electron Multiplierイメージングシステムの開発

○高橋 浩之¹、Moh Hamdan¹、佐藤 節夫¹、三津谷 有貴¹ (1.東大工)

[19a-D61-8]

SX-STED : 軟X線撮像のための顕微鏡開発とその応用の紹介

○黒澤 俊介^{1,2}、田上 周路³、米田 竜馬⁴、小林 弘和³、森田 大樹⁵、山路 晃広¹、長谷 栄治⁶、若山 俊隆⁴、山本 晃司⁴ (1.東北大NICHe、2.阪大レーザー研、3.高知工科大システム工、4.埼玉医科大医、5.宇都宮大工、6.徳島大pLED研)

[19a-D61-9]

DOI identification in HR-GAGG and GAGG phoswich detector using a new PSD method using dTOT and TOT.

○(PC)Donghwan Kim¹, Moh Hamdan¹, Kenji Shimazoe¹, Hiroyuki Takahashi¹ (1.The Univ. of Tokyo)

[19a-D61-10]

ピンホール開口コリメータを用いた広帯域・高感度 SPECT の提案

○越川 七星¹、菊池 優花¹、田中 香津生¹、片岡 淳¹ (1.早大理工)

[19a-D61-11]

小動物用高解像度ガンマカメラの開発と性能評価

○菊池 優花¹、越川 七星¹、田中 香津生¹、片岡 淳¹ (1.早大理工)

宇宙線ミュオンの角度再構成による到来方向測定用 DSSD 二枚積層モジュールの評価

Evaluation of a two-layer DSSD module for measuring the arrival direction of cosmic ray muons via angular reconstruction

東理大創域理工¹, JAXA², 理化学研究所³, 東理大理⁴, 東大カブリ IPMU⁵, 東大院理⁶, SSL/UC Berkeley⁷

○佐藤 丞¹, 幸村 孝由¹, 内田 悠介¹, 渡邊 雄気¹, 永松 愛子², 玉川 徹^{3,4}, 中村 吏一朗³, 内山 慶祐⁴,
大田 尚享⁴, 武田 朋志⁴, 高橋 忠幸⁵, 武田 伸一郎⁵, 萩野 浩一⁶, 長澤 俊作⁷

Tokyo University of Science Grad School of Science and Technology¹, JAXA², RIKEN³,

Tokyo University of Science Grad School of Science⁴, Kavli IPMU⁵, The University of Tokyo⁶, SSL/UC Berkeley⁷

jo Sato¹, Takayoshi Kohmura¹, Yuusuke Uchida¹, Yuki Watanabe¹, Aiko Nagamatsu², Toru Tamagawa^{3,4}, Riichiro Nakamura³,

Keisuke Uchiyama⁴, Naoyuki Ota⁴, Tomoshi Takeda⁴, Tadayuki Takahashi⁵, Shinichiro Takeda⁵, Kouichi Hagino⁶, Shunsaku Nagasawa⁷

E-mail: 6224513@ed.tus.ac.jp

現在、月探査プログラムである「アルテミス」計画が、アメリカ、日本などの国際協力で推進されている。アルテミス計画では、月周回軌道の国際宇宙ステーションや月面での有人活動が計画されており、その有人活動に不可欠となるのが宇宙放射線による宇宙飛行士の被ばく管理である。これまでも地磁気圏内での宇宙放射線計測は行われていたものの、月周回軌道を含む地磁気外での実測データは少ない。そこで、JAXA、理化学研究所、東京理科大学の共同で、月周辺での被ばく線量を評価するエネルギー spektrometa Lunar-RICHeS の開発を行っている(Fig.1)。

宇宙放射線による被爆の影響は全身にわたるが、中でも造血器官であるRBM (Red Bone Marrow) が影響を受ける宇宙放射線のエネルギー帯域は生命維持器官の中でも最も低く約 15 MeV である。また、宇宙放射線の大半を占める陽子は 1 - 2GeV のエネルギーを超えると宇宙船などの宇宙機の壁面を貫通することがある。したがって被爆管理にはこの広い帯域のエネルギーを観測することのできるエネルギー spektrometa が必要となる。

Lunar-RICHeS は 15 MeV - 250 MeV のエネルギー帯域を計測する低エネルギー計測部と、250 MeV - 2 GeV のエネルギー帯域を計測する高エネルギー計測部の 2 ユニットで構成され、Lunar-RICHeS によって宇宙飛行士が受ける被曝線量の評価に必要な 15 MeV - 2 GeV の一次宇宙線のエネルギー計測が可能となる。また各計測部について、位置検出器である両面ストリップ型シリコン検出器 (DSSD : Double-sided Silicon Strip Detector) を 2 枚積層す

ることで、上層、下層の位置検出器 DSSD による検出位置から入射粒子の到来方向を決定できる。本研究では 2 枚積層した到来方向測定用 DSSD 二枚積層モジュール (Fig.2)を用いて荷電粒子である宇宙線ミュオンの観測を行うことで、入射荷電粒子の到来方向の決定に関する評価を行った。その結果、宇宙線ミュオンの到来方向の割合はミュオンにとって障害物となる建物の壁の厚みをよく反映したものであり、宇宙線ミュオンの到来方向を正しく測定できていることを明らかにした。本講演ではこの宇宙線ミュオンの到来方向の観測結果と到来方向測定用 DSSD 二枚積層モジュールによる角度再構成の有効性について報告する。

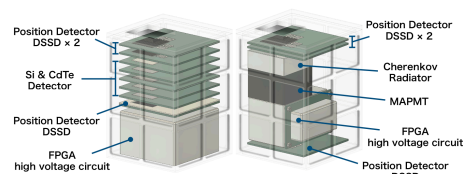


Fig.1 Structure of Lunar-RICHeS

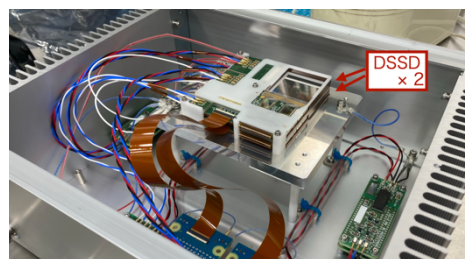


Fig.2 Picture of two stacked DSSDs

月探査機搭載用チェレンコフ検出器 Lunar-RICHeS のエネルギー測定下限調査

Investigation of the lower energy measurement limit of the Cherenkov detector Lunar-RICHeS onboard lunar explorers

理研¹, JAXA², 東理大院理³, 東理大院理工⁴, ファムサイエンス⁵, 東大院理⁶, 量研⁷

○大田 尚享^{1,3}, 玉川 徹¹, 中村吏一朗¹, 内山 慶祐^{1,3}, 武田 朋志^{1,3}, 永松 愛子², 幸村 孝由⁴, 内田 悠介⁴, 藤澤 海斗⁴, 佐藤 丞⁴, 富山 一貴⁴, 藤井 雅之⁵, 萩野 浩一⁶, 北村 尚⁷

RIKEN¹, JAXA², Tokyo University of Science Graduate School of Science³, Tokyo University of Science Graduate School of Science and Technology⁴, FAM Science⁵, The University of Tokyo⁶, QST⁷

○Naoyuki Ota^{1,3}, Toru Tamagawa¹, Riichiro Nakamura¹, Keisuke Uchiyama^{1,3}, Tomoshi Takeda^{1,3}, Aiko Nagamatsu², Takayoshi Kohmura⁴, Yuusuke Uchida⁴, Kaito Fujisawa⁴, Jo Sato⁴, Masayuki Fujii⁵,

Kouichi Hagino⁶, Hisashi Kitamura⁷

E-mail: naoyuki.ota@a.riken.jp

2025 年以降、月周回軌道有人拠点ゲートウェイ建設や月面探査が検討されている。地磁気圏外での有人探査では太陽系外や太陽から飛来する高エネルギー粒子が人体へ降り注ぎ問題となる。我々は被ばく寄与の高い 15–2000 MeV/n の荷電粒子のエネルギー測定をする小型スペクトロメータ Lunar-RICHeS を開発している。低エネルギー側を積層半導体検出器で、高エネルギー側をリング撮像型チェレンコフ検出器で測定する。入射粒子のエネルギーがチェレンコフ発光閾値近傍になると、チェレンコフ光量が低下するとともに、エネルギー損失に応じたシンチレーション光が生成される。本研究の目的は、チェレンコフ検出器への重イオン照射によりチェレンコフ発光閾値付近での検出器応答を実測し、エネルギー測定の下限値を明らかにすることである。

本実験ではチェレンコフ放射体として S-BSM2 ガラス (屈折率 1.6)、光センサとしてピクセルサイズ 6 mm 角、64ch のマルチアノード型光電子増倍管 (MAPMT) を用いた。我々は、チェレンコフ閾値 260 MeV/n 付近でのリング撮像型チェレンコフ検出器の性能を評価するため、185–430 MeV/n のエネルギーの炭素イオンを照射した。シンチレーション光子数とイメージをモデル化し、MAPMT の撮像結果から差し引いた上で、チェレンコフリングサイズを画像モーメント法で解析した。329 MeV/n 以上のエネルギーではリングサイズは同一の経験式付近に測定結果が分布したが、308 MeV/n 以下のエネルギーでは外れた (Fig.1)。今回の手法より我々は、炭素イオンの検出下限は 329 MeV/n から 308 MeV/n の間であるとした。

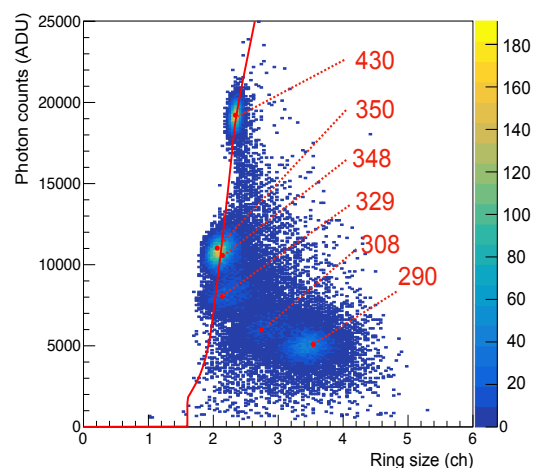


Figure 1 2D histogram of photon counts and ring sizes for the events subtracted scintillation photons. Red points show the mode bin for each irradiation energy. The numbers in the diagram indicate the irradiation energy (MeV/n). The red curve is an empirical calculation.

1 mm 厚 CdTe-DSD の性能評価

Performance Evaluation of 1 mm Thick CdTe-DSD

東理大創域理工¹, Kavli IPMU², 東大理³, 京大理⁴, ISAS/JAXA⁵, iMAGINE-X⁶

○古川 湧基¹, 高橋 忠幸², 武田 伸一郎^{2,6}, 桂川 美穂⁴, 南 喬博^{3,2},

渡辺 伸⁵, 幸村 孝由¹, 内田 悠介¹

Tokyo University of Science¹, Kavli IPMU², The University of Tokyo³,

Kyoto University⁴, ISAS/JAXA⁵, iMAGINE-X⁶

○Yuki Furukawa¹, Tadayuki Takahashi², Shin'ichiro Takeda^{2,6}, Miho Katsuragawa⁴,

Takahiro Minami^{3,2}, Shin Watanabe⁴, Takayoshi Kohmura¹, Yuusuke Uchida¹

E-mail: 6224531@ed.tus.ac.jp

近年、我々は宇宙観測用半導体検出器を幅広い分野へ応用する研究を進めている。特に、CdTe(テルル化カドミウム)半導体検出器は、Si や Ge に比べて原子番号が大きく X 線およびガンマ線に対する検出効率が高いことや、バンドギャップエネルギーが Ge の 0.67 eV と比べて CdTe は 1.44 eV と大きく、0 度から-20 度程度の冷却温度で動作させることができるためペルチェ素子を用いた冷却設備の小型化が可能であるという点で優れている。我々は、CdTe ダイオードを用いて高いエネルギー分解能を持つ両面ストリップ型検出器(CdTe-DSD)を開発し、高感度な硬 X 線宇宙観測やがん治療のための薬物動態イメージングなど、多方面でその高水準なイメージング技術を応用することを目指している。そのためには、まず検出器の性能を理解することが必要不可欠である。

本研究では 1 mm 厚 CdTe-DSD の性能評価を行った。検出面の面積は 32 mm 四方であり、ピッチ幅は 250 μm 、ストリップ幅は 200 μm 、ギャップ幅は 50 μm の各面 128 本のストリップ電極を有し、両面で直交するように配置されている(Fig.1)。各ストリップで 1 次元のエネルギー情報を取得し、信号を読み出した両面のストリップの位置を組み合わせることで 2 次元のイメージングを行うことが可能である(Fig.2)。本研究では、両面の電極に対する印加電圧や検出器の動作温度、数時間から 1 日程度の動作時間に伴うイメージング及びスペクトル性能の他、検出されたエネルギーの反応深度依存性を評価した。これらの結果を講演にて述べる。

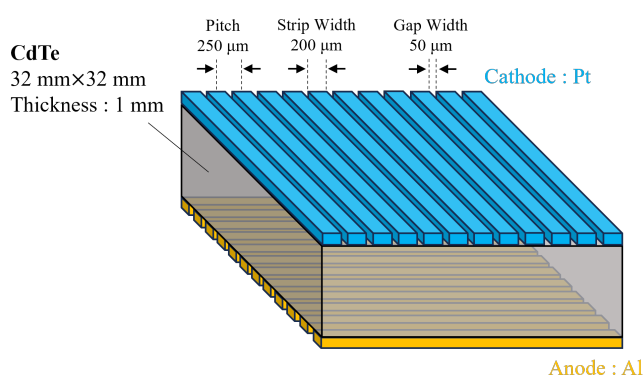


Fig.1 Structure of the CdTe-DSD

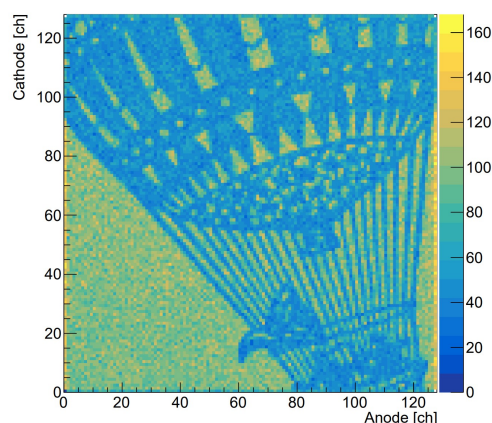


Fig.2 Example of imaging using CdTe-DSD

Cu 電極を用いたショットキー型 CdTe 検出器の諸特性

Characteristics of Schottky-type CdTe detector with Cu electrode

静岡大電子研¹, 静岡大院光医工², 浜松医大 Nx-CEC³

○都木 克之¹, 都木 利之², 西澤 潤一^{1,3}, 加瀬 裕貴¹, 青木 徹^{1,2,3}

Shizuoka Univ. R.I.E.¹, Shizuoka Univ. M.P.², Hamamatsu Univ. S.M. Nx-CEC³

○Katsuyuki Takagi¹, Toshiyuki Takagi², Nishizawa Junichi³, Hiroki Kase¹, Toru Aoki^{1,2,3}

E-mail: takagi.katsuyuki@shizuoka.ac.jp

テルル化カドミウム (CdTe)は高い原子番号と密度を有し放射線に対して高い感度を持つため、室温動作半導体検出器として有望な材料のひとつである。放射線検出器の実用においては、長期安定性が重要な特性の一つであり、CdTe 検出器はポーラリゼーションと呼ばれる経時変化を有する。この現象は、In や Al を電極としたショットキー型の CdTe 検出器で特に問題となり、一方で Au や Pt を電極としたオーミック型の CdTe 検出器では経時変化がないことが報告されている[1]。ポーラリゼーションの原因は、通常全空乏しているショットキー型検出器において、空乏化した領域の Cd の空格子点に負の電荷が溜まり空乏層が狭まることであると報告されている[2]。我々は、この負の電荷蓄積の挙動について新たな知見を得るために、Cu を電極としたショットキー型 CdTe 検出器を作成したので、その諸特性を報告する。

作成した検出器の構造は Au/Cu//p-CdTe//Au である。片側が Cu 電極によるショットキー接合、反対側が Au 電極によるオーミック様の接合、CdTe 結晶はアクロラド社製の p 型結晶である。Cu の仕事関数は従来のオーミック型 (Pt, Au) とショットキー型 (In, Al) の中間をとり、ポーラリゼーションの挙動も中間的な結果が期待される。

図1にこの検出器を用いて測定した²⁴¹Am線

源の γ 線スペクトルを示す。測定時間は12時間で、各1時間の最初の10分間をプロットしている。従来のショットキー型と異なり、12時間後でもピーク位置のずれが1%未満と少なく、オーミック型様の特性である。一方でFWHMは劣化が確認され、ショットキー型様の特徴も有している。

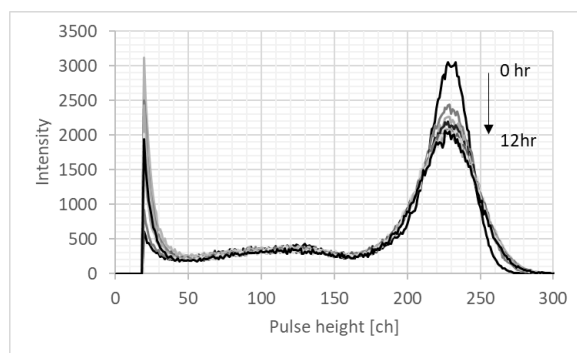


図1 Gamma-ray spectrum measured with Cu-CdTe detector biased at 500V.

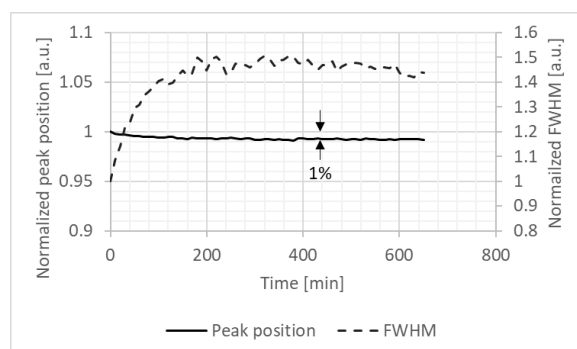


図2 Time dependence of photoelectric peak position and FWHM.

[1] K. Okada, et al., APL 90.6 (2007).

[2] C. Matsumoto, et al., IEEE TNS 45.3 (1998): 428-432.

X 線天文衛星搭載用 SOI ピクセル検出器に対する放射線耐性の評価 Radiation Tolerance Evaluation of SOI pixel Detectors for X-ray Astronomy Satellites

東理大創理¹, 京大理², 宮崎大工³, 近大理工⁴, 東大理⁵, JAXA⁶,

甲南大理工⁷, 東工大科創研⁸, KEK⁹, D&S¹⁰

○藤田紗弓¹, 志賀文哉¹, 幸村孝由¹, 内田悠介¹, 鶴剛², 内田裕之², 松田真宗², 成田拓仁²,
上林暉², 上村悠介², 森浩二³, 武田彩希³, 西岡祐介³, 行元雅貴³, 木村明愉³, 塩川朝日³,
三谷美輝³, 角谷昂亮³, 鎌田信彦³, 黒木瑛介³, 齊藤悠人³, 佐々木悠任³,
瀧田悠太³, 吉田大雅³, 信川久実子⁴, 岸本拓海⁴, 栗野慧⁴,
萩野浩一⁵, 松橋裕洋⁵, 鈴木寛大⁶, 田中孝明⁷, 上ノ町水紀⁸, 新井康夫⁹, 倉知郁生¹⁰

Tokyo Univ. of Science¹, Kyoto Univ.², Univ. of Miyazaki³, Kindai Univ.⁴,

Univ. of Tokyo⁵, JAXA⁶, Konan Univ.⁷, Tokyo Institute of Technology IIR⁸, KEK⁹, D&S¹⁰

○Sayumi Fujita¹, Fumiya Shiga¹, Takayoshi Kohmura¹, Yusuke Uchida¹, Takeshi Tsuru²,
Hiroyuki Uchida², Masamune Matsuda², Takuto Narita², Hikaru Uebayashi²,
Yusuke Komura², Koji Mori³, Ayaki Takeda³, Yusuke Nishioka³, Masataka Yukumoto³,
Miraku Kimura³, Asahi Shiokawa³, Hikaru Mitani³, Kosuke Kadoya³, Shinichi Kamada³,
Eisuke Kurogi³, Yuto Saito³, Yuto Sasaki³, Fuchita Yuta³, Taiga Yoshida³,
Kumiko Nobukawa⁴, Takumi Kishimoto⁴, Satoru Kuwano⁴, Kouichi Hagino⁵,
Hiroumi Matsushashi⁵, Hiromasa Suzuki⁶, Takaaki Tanaka⁷, Mizuki Uenomachi⁸,

Yasuo Arai⁹, Ikuo Kurachi¹⁰

E-mail: 6224530@ed.tus.ac.jp

我々は次世代 X 線天文衛星の搭載を目指し X 線 SOI 検出器「XRPIX」の開発を進めている。XRPIX は SOI 技術を用いて、センサー層(Si)・絶縁層 (SiO₂)・CMOS 回路層が一体となった構造を持つ。XRPIX は、300 μ m の厚い空乏層を持つことで~1keV - ~20keV までの広いエネルギー帯域をカバーし、各ピクセルに CMOS 回路を持つことで数 10 μ s の高時間分解能の観測が可能となる。

半導体検出器を宇宙で使用すると、宇宙空間を飛び交う宇宙線や天体が放射する X 線が入射して放射線損傷を引き起こし、経時的に分光性能が劣化することが知られている。我々は、XRPIX を宇宙で使用するために、これまでに地上で放射線損傷の評価実験を行っており、絶縁層内に正電荷が蓄積する Total Ionizing Dose(TID)効果の影響により、暗電流の増加やエネルギー分解能の劣化が起こることが分かった。また、暗電流増加の原因が、センサー層・絶縁層界面における空乏化によって、界面準位が生成し、その界面準位由来の暗電流が増加することを突き止め、暗電流を抑制するためには、界面付近の空乏化を防ぐことが必要とわかった。半導体デバイスシミュレーターの TCAD を用いて、界面の空乏化を抑制する方法を検討したところ、界面付近の正孔濃度を高くすることで空乏化が抑制できることがわかった。そこで、TID 効果の抑制を目的とした、センサー層の不純物ドーパ濃度を高くした新型の XRPIX を開発し、現在、高輝度の X 線を用いた放射線耐性の評価実験の準備を進めている。本講演では、以上の内容について報告する。

ガンマ線検出用位置検出型 TES 型マイクロカロリメータの 雑音と多重散乱を含めた位置分解能シミュレーション

Position resolution simulation including noise and multiple scattering of Position-Sensitive TES microcalorimeters for gamma ray detection

○田河 佑規¹, 伊豫本 直子¹, 松見 勇輔¹, 藤田 悠人¹, 木原 優宏¹,

秦 直央¹, 森山 凜太郎¹, 執行 信寛¹, 梅野 高裕¹,

山崎 典子², 八木 雄大², 田中 圭太², 太田 瞭², 満田 和久³, 林 佑⁴, 鶴田 哲也⁵

(1.九大院工, 2.宇宙科学研究所, 3.国立天文台, 4.立教大学, 5.産総研)

○Yuki Tagawa¹, Naoko Iyomoto¹, Yusuke Matsumi¹, Haruto Fujita¹, Masahiro Kihara¹,

Naohiro Hata¹, Rintaro Moriyama¹, Nobuhiro Shigyo¹, Takahiro Umeno¹, Noriko Yamasaki²,

Yuta Yagi², Keita Tanaka², Ryo Ota², Kazuhisa Mitsuda³, Tasuku Hayashi⁴, Tetsuya Tsuruta⁵

(1. Kyushu Univ., 2. ISAS, 3. NAOJ, 4. Rikkyo Univ., 5. AIST)

E-mail: tagawa.yuuki.982@s.kyushu-u.ac.jp

超伝導転移端温度計 (Transition-Edge Sensor : TES) 型マイクロカロリメータは温度計、吸収体、熱リンク、熱浴で構成されており、転移温度付近における急激な電気抵抗の変化を利用した温度計が放射線の入射による僅かな温度上昇を正確に測定することで、優れたエネルギー分解能を実現することのできる放射線検出器である。我々は、数百 keV~数 MeV 程度のガンマ線領域での TES 型マイクロカロリメータを開発している。さらに、放射線入射位置を特定することで、撮像能力を持つガンマ線検出用位置検出型 TES (Position-Sensitive TES : PoST) 型マイクロカロリメータの開発を目指している。

本研究の対象は、一つの細長い吸収体の両端に一つずつ TES を接続した構造を持つガンマ線検出用 PoST 型マイクロカロリメータである。この PoST 型マイクロカロリメータは、吸収体に入射した放射線が熱として両端の TES に伝わる際の放射線入射位置による伝達時間の差を利用している。つまり、放射線入射位置に一对一对応した信号を両端の TES から得ることができ、それらの信号を総合的に評価することで放射線入射位置の特定が可能となる。一方、ガンマ線は吸収体中で複数回の相互作用を起こすことがある。特に数百 keV~数 MeV 領域のガンマ線においてはコンプトン散乱が支配的となり、多重散乱によってエネルギーを付与する位置にばらつきが生じる。付与されたエネルギーは熱としてほぼ同時に読み出されるため、位置を特定することが困難になると考えられる。また、TES 型マイクロカロリメータの測定において、ジョンソンノイズ、フォノンノイズの影響は避けられず、これらも同様に波形弁別による入射位置特定を困難にする要因となり得る。

本講演では、粒子・重イオン輸送計算コードである PHITS と数理モデルを利用し、多重散乱とノイズの影響を考慮した上で行った 1 mm×1 mm×20 mm の鉛吸収体にガンマ線が入射した際のシミュレーション結果について報告する。

Glass Gas Electron Multiplier イメージングシステムの開発

Development of Glass-Gas Electron Multiplier Imaging System

東大工¹, ○高橋浩之¹, Moh Hamdan¹, 佐藤節夫¹, 三津谷有貴¹

School of Engineering, The Univ. of Tokyo¹

E-mail: leo@n.t.u-tokyo.ac.jp

Glass Gas Electron Multiplier (G-GEM) はガラス基板上に多数の細孔をあけた構造によりイメージング能力を有し、 $10^3 \sim 10^4$ 程度の高い増幅度を有する気体放射線検出器である。したがって、本構造を利用することで、低エネルギーの X 線や荷電粒子飛跡を精度よく求めることが可能になる。さらに高い増幅度を用いることでミュオンなどの信号電荷密度の小さい粒子の飛跡を求めることが可能となる上にガラスと金属から構成されるために、封じ切り動作が可能である。これまでに製作してきた G-GEM では 280 μm ピッチが標準であるが、最近の半導体実装技術の進化により、ガラス基板を用いた配線が普及しつつあり、チップレットの技術をベースに更にピッチの小さい構造が可能となってきた。これまでに 130 μm ピッチのものを試作し、Fe-55 線源からの X 線を用いて動作を確認しているが、一様性の向上に向けたプロセス改善の課題もある。また、G-GEM のピクセルが小さくなると、読み出し回路の集積度を上げる必要がある。FPD に用いられている ASIC は、積分型で電荷を読み出すものではあるが、等価雑音電荷 1000 電子以下で 128 -256 ch を集積した商用チップも存在しており、読み出しのレートが低い場合には、このようなチップを用いて、実質的にパルス信号を読み出し、計数モードで利用することも可能である。現在、我々は、ミュオンの信号読み出しに G-GEM と ASIC を組み込んだ 2 次元の信号読み出し回路を用いることを検討している。このような FPD 用の読み出し回路と高解像度の G-GEM を組み合わせを封じ切り動作で実現することは可能であり、信号の入射頻度が低い宇宙線ミュオンなどの測定に利用することで、比較的安価で高解像度とエネルギー情報を両立する測定系が構築できると考えている。講演では、研究の今後の展開について示す。

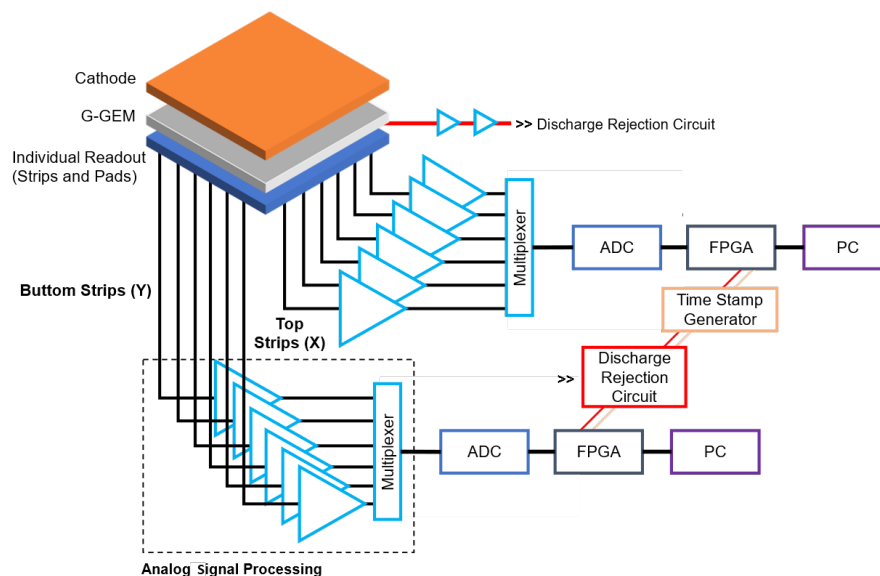


図1 信号読み出しシステムの全体像

SX-STED : 軟 X 線撮像のための顕微鏡開発とその応用の紹介

STED-SX : Introduction of Our Concept for the Soft X-ray Imaging Camera

東北大 NICHe¹, 阪大レーザー研², 高知工科大システム工³, 埼玉医科大医⁴,
宇都宮大工⁵, 徳島大 pLED 研⁶

○黒澤 俊介^{1,2}, 田上 周路³, 米田 竜馬⁴, 小林 弘和³, 森田 大樹⁵, 山路 晃広¹,
長谷 栄治⁶, 若山 俊隆⁴, 山本 晃司⁴ および STED-SX チーム

NICHe, Tohoku Univ.¹, ILE., Osaka Univ.², School of System Eng., Kochi Univ. of Tech.³,

Med., Saitama Medical Univ.⁴, School of Eng., Utsunomiya Univ.⁵, pLED, Tokushima Univ.⁶

○Shunsuke Kurosawa^{1,2}, Shuji Taue³, Ryoma Yoneda⁴, Hirokazu Kobayashi³, Hiroki Morita⁵, Akihiro
Yamaji¹, Eiji Hase⁶, Toshitaka Wakayama⁴, Koji Yamamoto⁴

and STED-SX collaboration team

E-mail: shunsuke.kurosawa.a6@tohoku.ac.jp

生物と無生物の間は複数の階層構造が存在し、上位階層は下位階層の構造体から成り立つ。この上位階層と下位階層の関係をメゾリンクと本研究では呼び、このメゾリンクに存在し解明されていないギャップや数十 nm のスケールの構造体（メゾスケール構造体とここでは定義する）や、それぞれのギャップでの関係性を明らかにすることを最終的な目標として、研究をすすめる。そこで、われわれは、これらの解明のための新しい計測方法と解析方法を開発することとした。

このギャップを埋めるための計測を可能にする手段として、軟 X 線をプローブとする分光顕微法にわれわれは着目した。30 eV~5 keV の軟 X 線領域（一部テnder X 線を含む）には生物構成元素である P, S, C, N, O などの吸収端を含み、元素固有の吸収端の情報を利用すれば、その構造は原子構造と電子状態の情報を与える。したがって、吸収端を利用した顕微法は、構成元素の空間分布と特定の位置での原子構造と電子状態を明らかにできる。ただし、メゾリンクを支える動的構造体を把握するためには、階層の特徴が得られる視野とその直下階層の構造単位を分別する空間分解能（10-30 nm 程度以下）を持つ計測が必要である。

最近、軟 X 線励起したシンチレータ発光にレーザー光による誘導放出抑制 (STED) 法と、シンチレータを組み合わせることで、回折限界よりも微細な像を撮れる可能性を見出した (SX-STED の開発)。本講演では、非常に挑戦的ではあるこの SX-STED について、その実用化を目指した研究と、上記の背景を含めた応用先について紹介する。

Reference:

1. T. Ejima, T. Wakayama, *et al.*, Sci. Rep. **10**, 5391 (2020)
2. T. Ejima, S. Kurosawa *et al.*, J.Lumi, **219**, 116850(2020)

DOI identification in pixelated HR-GAGG and GAGG phoswich detector with a new PSD method using dTOT and TOT.

The Univ. of Tokyo¹, ^oDonghwan Kim¹, Moh Hamdan¹, Kenji Shimazoe¹, and Hiroyuki Takahashi¹

E-mail: kim-donghwan@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

1. Introduction

Depth of interaction (DOI) identification is important in reducing parallax error in positron emission tomography (PET). A special reflector pattern in the crystal block, a dual-sided readout of crystals, pulse height and time over threshold (TOT) comparison, etc., have been proposed in the past. The dual-sided readout can be applied to a parallel and independent readout system. However, special treatment on the surface of the crystals is required, and two SiPM arrays are needed for one detector block. Other methods are used for charge-sharing design. In this study, a new method for DOI identification suitable for individual readout is proposed with dynamic time

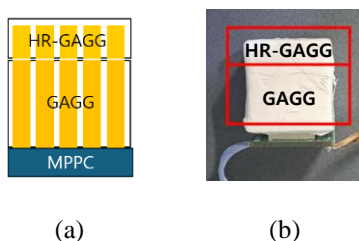


Figure 1 The schematic (a) and photograph (b) of the phoswich detector design used in this study.

over threshold (dTOT) and time over threshold (TOT) in a phoswich detector composed of HR-GAGG and GAGG shown in Figure 1.

2. Methods and Results

dTOT represents the pulse height, and TOT relative to dTOT indicates the decay constant. An interaction in HR-GAGG shows longer TOT relative to dTOT because HR-GAGG has a longer decay time. A 2D scatter plot of dTOT and TOT in Figure 2(a) is used to determine DOI.

Above the red line, showing longer TOT relative to dTOT, in Figure 2(a) is the interaction in HR-GAGG, and below it is the interaction in GAGG,

considering that HR-GAGG has a slower decay time than GAGG. Figure 2(b) shows the energy spectra obtained from the proposed method. Figure 2(c) shows the TOT distributions from HR-GAGG and GAGG in the 511 keV region. It showed the figure of merit (FOM) of 1.4.

3. Conclusion

The proposed method could identify interaction crystals. It requires an additional wire and a comparator for TOT to a typical dTOT circuit for application to a parallel readout system. The presentation will discuss more details including the verification of the method.

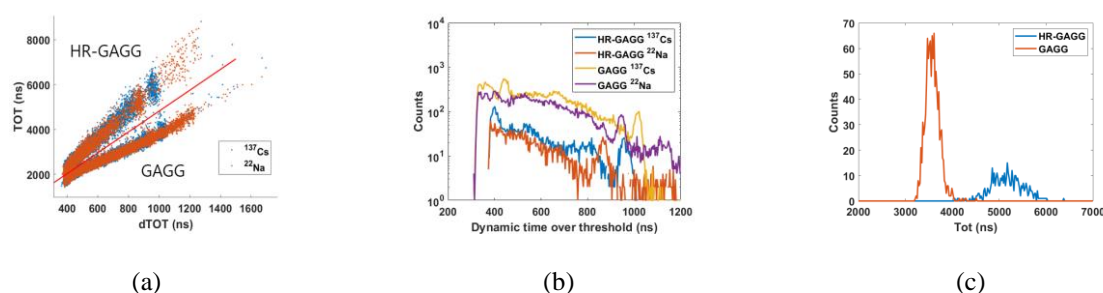


Figure 2 (a) dTOT and TOT scatter plot. (b) dTOT spectra from HR-GAGG and GAGG using the proposed method. (c) TOT distribution around 511 keV.

ピンホール開口コリメータを用いた広帯域・高感度 SPECT の提案

Proposal of wide-band and high-sensitivity SPECT using a pinhole-aperture collimator

早大理工¹, °越川 七星¹, 菊池 優花¹, 田中 香津生¹, 片岡 淳¹

Waseda Univ.¹, °Nanase Koshikawa¹, Yuka Kikuchi¹, Kazuo S. Tanaka¹, Jun Kataoka¹

E-mail: nkoshikawa@toki.waseda.jp

近年、核医学の分野において数百 keV 程度のガンマ線をイメージングする装置の需要が高まっている。甲状腺がんの治療薬である ^{131}I は主に 365 keV のガンマ線を放出するほか、有望なアルファ線放出治療薬である ^{225}Ac は崩壊の過程で 440 keV のガンマ線を放出し、また、薬剤キャリアのイメージング手法として提案されている金ナノ粒子の放射化イメージングでは、 ^{198}Au からの 412 keV ガンマ線を用いる¹⁾。Single-photon emission computed tomography (SPECT) はコリメータを用いて X 線・ガンマ線の到来方向を特定する高イメージング装置であり、高い分解能から広く臨床に普及している。一方で、高エネルギー (>200 keV) のガンマ線をイメージングするためにはコリメータの壁を厚くする必要があり、感度が下がるという課題があった。

そこで本研究では、高エネルギーのガンマ線を高感度でイメージングする新しいコリメータを提案する。従来の平行ホールコリメータと、本研究で提案するピンホール開口コリメータの構造を Fig. 1 に示す。ピンホール開口によって、壁の厚みを保ちつつ感度の向上が期待される。平行ホールコリメータとピンホール開口コリメータを比較するために Geant4 を用いてシミュレーションを行った。 $1.1 \times 1.1 \times 5 \text{ mm}^3$ の GAGG ($\text{Gd}_3(\text{Ga}, \text{Al})_5\text{O}_{12}(\text{Ce})$) シンチレータ上に厚み 20 mm のタングステンコリメータを設置した。シンチレータのピクセル数とコリメータの孔の数はどちらも 45×45 個で、各ピクセルの中心と孔の中心は一致している。平行ホールとピンホール開口それぞれについて、 ^{198}Au を想定した 412 keV の線源 ($\phi 3 \text{ mm}$) をコリメータから距離 5 mm に置き、孔のサイズを変えながらシミュレーションを行った。孔のサイズ 0.1~0.6 mm について、線源の位置で検出されたイベント数を Fig. 2 (a) に示す。また、孔のサイズ 0.4 mm で得られた画像を一次元投影したヒストグラムを Fig. 2 (b) に示す。ピンホール開口コリメータは平行ホールコリメータと比べ感度が高く、高い S/N 比が得られることが示唆された。発表ではシミュレーションの結果に加え、実機による実証についても報告する。

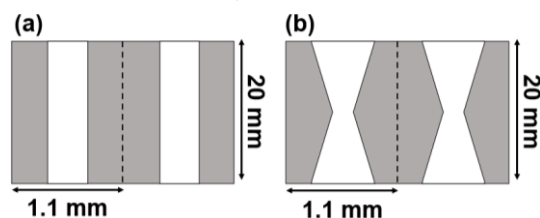


Fig. 1. (a) Parallel and (b) pinhole-aperture collimator holes.

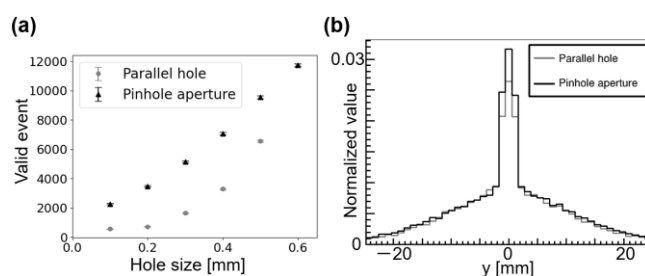


Fig. 2 (a) Number of valid events for different hole sizes. (b) 1-D projection of the images obtained with 0.4-mm hole collimators. (Black: pinhole aperture, gray: parallel hole.)

参考文献: 1. N. Koshikawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **121**(19), 193701 (2022).

小動物用高解像度ガンマカメラの開発と性能評価

Development and evaluation of high-resolution gamma camera for animal imaging

早大理工¹ ○菊池 優花¹, 越川 七星¹, 田中 香津生¹, 片岡 淳¹

Waseda Univ.¹, ○Yuka Kikuchi¹, Nanase Koshikawa¹, Kazuo Tanaka¹, Jun Kataoka¹

E-mail: y_kikuchi@fuji.waseda.jp

近年がん治療の RI 内用療法において、がんを局所的かつ効果的に治療することができる α 線放出核種が注目されている。中でも国内のサイクロトロンで生成可能な ^{211}At が有望視されている。RI 内用療法において薬剤の生体内の分布を可視化することは重要である。現在、動物実験での ^{211}At イメージングには、ヒト撮影用の診断 SPECT が使われており、典型的な解像度は約 5 mm である。しかしながら、小動物の SPECT イメージング実験では被写体が小さく、ヒト用より一桁高い解像度を実現し、かつ安価で簡単に使える装置の確立が望まれる。

そこで筆者らは、マウスイメージングに特化した高解像度ガンマカメラを製作し、その解像度評価を行った。試作した装置は 16×16 ch の 5×5 cm² MPPC(Multi-Pixel Photon Counter)アレイと 0.5 mm ピッチのダイシング加工 GAGG シンチレータ、同ピッチのタングステンパラレルホールコリメーターで構成した。また、MPPC の背後に抵抗分割基板を設け、四端で読み出した信号値から重心演算を行うことでコンパクトな検出器を実現した。

本研究では、 ^{211}At が α 線と共に放出する 79 keV の X 線をターゲットと想定し、 ^{133}Ba の 81ke V の γ 線を対象にイメージング実験を進めた。 ^{133}Ba 標準線源からの γ 線をタングステン製のスリットに通し、スリット間の分離に基づいて解像度評価を行った。画像の歪みや、線源強度についての補正方法を検討および適用した結果、現段階では 0.6mm の分解能を達成した。

また、薬剤の動態追跡のためにマウスの全身を一度にイメージングしたいという動物実験の現場における需要に応えるべく、今回達成された解像度を担保したうえで 10×10 cm² へと装置の拡大も進めている。さらに、シンチレータを CsI に変えた同構成の装置についても試作を進めており、これらについても初期成果を報告する予定である。

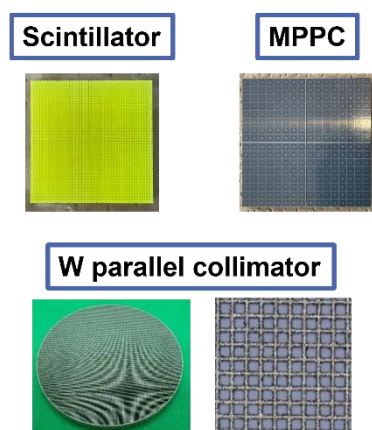


Fig. 1 Equipment components of Gamma Camera

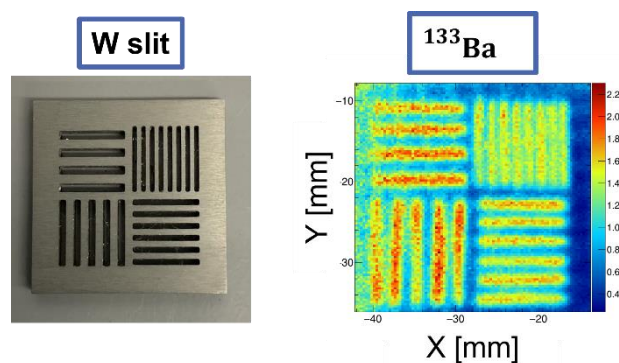


Fig. 2 Imaging Results of ^{133}Ba

2 放射線 | 一般セッション(口頭講演): 2.1 検出器デバイス開発

[19p-D61-1~18] 2.1 検出器デバイス開発

[19p-D61-1]

ラジオフォトルミネッセンスによる飛跡検出技術の開発

○岡田 豪¹、越水 正典²、南戸 秀仁¹ (1.金沢工大、2.静岡大)

[19p-D61-2]

高線量率場におけるNd 添加Lu₂O₃近赤外発光シンチレータの応答特性○(PC)石澤 倫^{1,2}、黒澤 俊介^{1,3,4}、山路 晃広^{1,3}、吉川 彰^{1,3,4,5}、高田 卓志⁶、田中 浩基⁶ (1.東北大 NICHe、2.日本学術振興会PD、3.東北大金研、4.阪大レーザー研、5.(株) C&A、6.京都大複合研)

[19p-D61-3]

Rare earth luminescence in ternary fluorides: role of crystal field splitting

○(P)Vojtech Vanecek^{1,2,3}、Masao Yoshino⁴、Takahiko Horiai⁴、Akihiro Yamaji⁴、Shunsuke Kurosawa⁴、Akira Yoshikawa^{1,4,5} (1.IMR, Tohoku Univ., 2.JSPS Fellow, 3.Inst. of Phys. AVCR, 4.NICHe, Tohoku Univ., 5.C&A corporation)

[19p-D61-4]

高分解能X線イメージングに向けたCe添加(Gd, Tb)₃Al₂Ga₃O₁₂単結晶シンチレータの開発○(M2)大室 和也^{1,2}、吉野 将生^{2,3}、Gushchina Liudmila⁴、山本 誠一⁶、中西 恒平⁷、鎌田 圭^{2,3,4}、金 敬鎮²、堀合 毅彦^{2,3}、村上 力輝斗²、山路 晃広^{2,3}、花田 貴²、横田 有為²、黒澤 俊介^{2,3,5}、大橋 雄二^{2,3}、佐藤 浩樹^{2,3}、吉川 彰^{2,3,4} (1.東北大工、2.東北大金研、3.東北大NICHe、4.C&A、5.阪大、6.早大、7.名大)

[19p-D61-5]

二重ベータ崩壊実験のための(Ca, Mg)I₂系シンチレータの育成と特性評価○川畑 諒輔^{1,2}、吉野 将生^{3,4}、鎌田 圭^{2,3,4}、飯田 崇史⁵、堀合 毅彦^{3,4}、金 敬鎮^{2,3,4}、沓澤 直子⁴、村上 力輝斗^{2,4}、山路 晃弘^{2,3}、黒澤 俊介^{2,3}、横田 有為^{2,3}、大橋 雄二^{2,3}、佐藤 浩樹^{2,3}、花田 貴²、吉川 彰^{2,3,4} (1.東北大工、2.東北大金研、3.東北大NICHe、4.株式会社C&A、5.筑波大学)

[19p-D61-6]

球形シンチレータを用いた光ファイバ型中性子検出器の基礎研究

○(B)齋藤 優太郎¹、大島 裕也¹、渡辺 賢一¹ (1.九大工)

[19p-D61-7]

光ファイバ型中性子検出器におけるLiガラスの自己吸収の評価

○(D)大島 裕也¹、齋藤 優太郎¹、渡辺 賢一¹ (1.九大工)

[19p-D61-8]

太陽電池型中性子線量計におけるコンバータ膜および太陽電池の影響

○岡本 保¹、小林 歩人¹、栗本 祐司¹、上川 由紀子²、奥野 泰希³、小林 知洋³ (1.木更津高専、2.産総研、3.理研)

[19p-D61-9]

TlBrウエハの結晶性評価

○小野寺 敏幸¹、野上 光博²、人見 啓太郎²、豊川 秀訓³ (1.東北工大、2.東北大、3.高輝度光科学研究センター)

[19p-D61-10]

Tl 電極TlBr 放射線検出器の暗電流に影響する要因について

○野島 太郎^{1,3}、野上 光博¹、小野寺 敏幸²、人見 啓太郎¹ (1.東北大工、2.東北工大工、3.タロ斯拉ボ(株))

[19p-D61-11]

TlBr半導体の二次元キャリア輸送特性評価可能範囲に関する検討

○須貝 優介¹、渡辺 賢一¹、長谷川 創大¹、田中 清志郎¹、野上 光博²、人見 啓太郎² (1.九大工、2.東北大工)

[19p-D61-12]

TlBr半導体検出器の多変量解析による信号処理

○(B)田中 清志郎¹、渡辺 賢一¹、長谷川 創大¹、須貝 優介¹、人見 啓太郎²、野上 光博² (1.九州大工、2.東北大工)

[19p-D61-13]

Direct Conversion Flat Panel Detectors Using 25 μm Thick TlBr Film for X-ray Imaging

○Moh Hamdan¹, Donghwan Kim¹, Kenji Shimazoe¹, Hiroyuki Takahashi¹, Mitsuhiro Nogami², Keitaro Hitomi², Shinya Asakura³, Takanori Tsunashima³, Takashi Nakamura³ (1.The University of Tokyo, 2.Tohoku University, 3.Japan Display Inc.)

[19p-D61-14]

レーザ駆動イオン加速実験用水素御クラスターターゲットの特性解析

○豊永 啓太¹、尾崎 玲於奈¹、山内 知也¹、福田 祐仁²、杉本 拓也³、金崎 真聡¹ (1.神大院海事、2.量研関西研、3.株式会社 EX-Fusion)

[19p-D61-15]

高強度レーザーと水素クラスターターゲットの相互作用におけるレーザープレパルスが陽子線加速に及ぼす効果-II

○(M2)前川 馨¹、尾崎 玲於奈¹、豊永 啓太¹、山内 知也¹、福田 裕仁²、金崎 真聡¹ (1.神大院海事、2.量研関西研)

[19p-D61-16]

レーザー加速アルゴンイオンのピンホールイメージング

○(M1)苺谷 有哉¹、尾崎 玲於奈¹、豊永 啓太¹、前川 馨¹、合原 輔佑太¹、山内 知也¹、福田 裕仁²、金崎 真聡¹ (1.神大院海事、2.量研関西研)

[19p-D61-17]

固体飛跡検出器を用いたレーザー加速陽子線及び重イオンのエネルギー spektrometers の開発

尾崎 玲於奈¹、豊永 啓太¹、前川 馨¹、苺谷 有哉¹、山内 知也¹、○金崎 真聡¹、福田 祐仁² (1.神大院海事、2.量研関西研)

[19p-D61-18]

Cu,Ni,Zr試料中にトラップされたHe-3検出手法の開発

○東 柊斗¹、勢一 隼人¹、山内 知也¹、金崎 真聡¹ (1.神大院海事)

ラジオフォトルミネッセンスによる飛跡検出技術の開発

Development of Nuclear Track Detection by using Radiophotoluminescence

金沢工大¹, 静岡大² °岡田 豪¹, 越水 正典², 南戸 秀仁¹

Kanazawa Inst. of Tech.¹, Shizuoka Univ.², °Go Okada¹, Masanori Koshimizu², Hidehito Nanto²

E-mail: go.okada@neptune.kanazawa-it.ac.jp

ラジオフォトルミネッセンス (RPL) とは電離放射線との相互作用により物質中に蛍光中心が形成される現象を指す。形成される蛍光中心は従来のフォトルミネッセンス (PL) 技術により容易に検出する事ができ、その蛍光強度は形成された蛍光中心 (RPL 中心) の数、すなわち積算線量に比例する。そのため RPL は被ばく線量計に応用され、2000 年より千代田テクノルにより事業化されている。近年、RPL 現象は被ばく線量計以外に、飛跡検出器としての応用が期待されている[1]。加速された粒子が RPL 材料に衝突すると、その飛程に沿って物質中にエネルギーが付与される。すなわち、エネルギーが付与された領域で RPL 中心が形成される。さらに、形成された蛍光中心の分布は蛍光顕微鏡を用いて高分解能で読み出すことができ、可視化される。

このような背景の中、我々は材料および装置の両面から飛跡検出技術の開発に着手した。本研究では第一歩として既存材料と同じ組成を持つ Ag 添加リン酸塩ガラスを作成し、また、読取装置として用いる共焦点蛍光顕微鏡を自作し、研究環境を整備した。Ag 添加リン酸塩ガラスの合成では Na_2CO_3 、 Al_2O_3 、 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ および Ag_2O 粉末をモル比率でおよそ 28:13:59:0.1 となるように秤量・混合し、アルミナるつぼ内で 1200°C で 1 時間熔融した後、 400°C で急冷する事により得た。Fig. 1 に構築した共焦点蛍光顕微鏡システムの外観を示す。同システムは異なる 3 波長 (371 nm、450 nm および 630 nm) のレーザー光源を有し、異なる光学特性を持つ多種多様な材料の読み出しにも対応可能とした。粒子線の照射は量子研 (稲毛地区) の重粒子線がん治療装置 (HIMAC) を用いて行った。照射したイオン核種は 135 MeV/n C とし、LET はおよそ $530 \text{ keV}/\mu\text{m}$ とした。

Fig. 2 に取得した蛍光イメージを示す。同図より、炭素イオンの飛跡が蛍光として取得されている事が確認できる。今後はこれまでに我々が開発した様々な RPL 材料の比較を行い、イオン飛跡検出能力の違いや RPL 材料に求められるパラメータの導出を検討する。

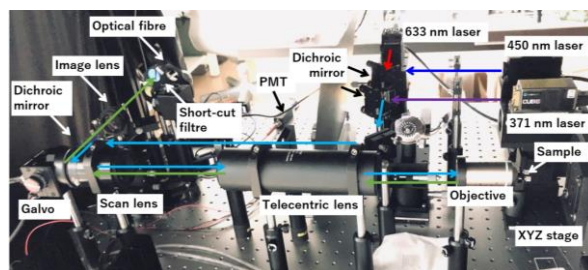


Fig. 1 Custom-built prototype of confocal laser scanning fluorescent microscope system.

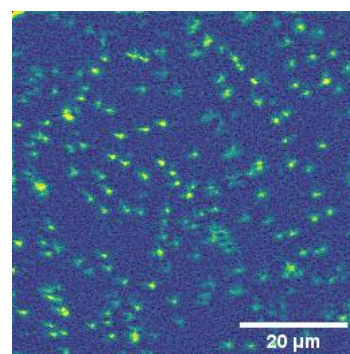


Fig. 2 Fluorescence image of carbon particle tracks detected by RPL of Ag-doped phosphate glass.

高線量率場における Nd 添加 Lu₂O₃ 近赤外発光シンチレータの応答特性

Response characteristics of Nd-doped Lu₂O₃ near-infrared emitting scintillator in high dose rate region

東北大 NICHe¹, 日本学術振興会 PD²、東北大金研³ 阪大レーザー研⁴,
(株) C&A⁵, 京都大複合研⁶

○(P)石澤 倫^{1,2}, 黒澤 俊介^{1,3,4}, 山路 晃広^{1,3}, 吉川 彰^{1,3,4,5}, 高田 卓志⁶, 田中 浩基⁶
NICHe, Tohoku Univ.¹, JSPS Research Fellow (PD)², IMR, Tohoku Univ.³, Institute for Laser Eng.,
Osaka Univ.⁴, C&A Corporation⁵, Radiation and Nuclear Science, Kyoto Univ.⁶
○(PC) Satoshi Ishizawa^{1,2}, Shunsuke Kurosawa^{1,3,4}, Akihiro Yamaji^{1,3}, Akira Yoshikawa^{1,3,4,5},
Takushi Takata⁶, Hiroki Tanaka⁶

E-mail: satoshi.ishizawa.a2@tohoku.ac.jp

福島第一原子力発電所(1F)の廃炉作業は、シンチレータ、光ファイバーならびに光検出器からなる遠隔線量計[1]等を用いて、炉内の線量率分布をなるべく正確に把握することにより迅速な遂行が期待される。また、炉内に存在すると推定される核種毎、またはそれらの組み合わせに起因する線量率の推定は廃炉作業の観点からも重要である。当研究グループではこれまでに 2200℃以上の高融点材料を対象に、特に高有効原子番号かつ赤-近赤外発光を示す 2 mm³程度のシンチレータを用いた遠隔線量計の開発を行ってきた[1,2]。本研究ではその一環として、融点が 2490℃で有効原子番号が約 69 の Nd 添加 Lu₂O₃ を用いた遠隔線量計の実証試験を、高線量率場にて行った。さらに、シミュレーションにより KUR 実験の線量率を模擬する応答関数の開発に取り組んだ。

Nd 添加 Lu₂O₃ の透明結晶はコアヒーティング法により育成した[2]。基礎特性を測定後、京都大学複合原子力科学研究所(KUR)の~60 TBq の ⁶⁰Co 線源を用いて、Nd 添加 Lu₂O₃ を用いた遠隔線量計の応答特性を評価した。KUR 実験をモデル化したシミュレーション体系の構築や、放射線挙動の計算には Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) [3]を使用した。

Fig. 1 に~0.661 kGy/h の線量率領域に設置した Nd 添加 Lu₂O₃ の発光スペクトルを示す。発光データは 0.006-0.661 kGy/h の範囲で取得し、全ての測定点にて 900 nm 付近に Nd³⁺由来の発光を観測することができた。また PHITS のシミュレーション体系において設定した ⁶⁰Co 線源から、1.17 MeV や 1.33 MeV のγ線等を輸送し、吸収線量等をシミュレートした。本発表では KUR における実験、ならびに PHITS を用いた線量推定の研究開発に関する詳細を報告する。

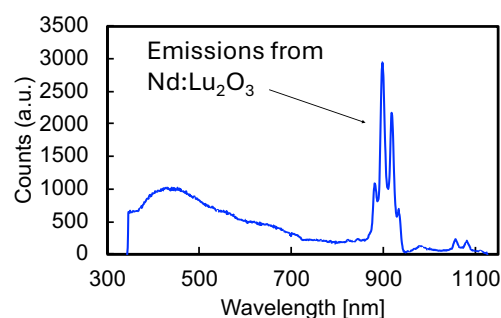


Fig. 1. Gamma ray excited RL spectrum under dose rate of ~0.661 kGy/h (⁶⁰Co gamma rays)

References

- [1] S. Ishizawa, K. Kurosawa, A. Yoshikawa et al., Optical Materials. **142**, (2023) 113941.
- [2] 石澤、黒澤、吉川ら、第 69 回応用物理学会春季学術講演会。
- [3] T. Sato, et al., J. Nucl. Sci. Technol. **61**, (2024) 127.

Rare earth luminescence in ternary fluorides: role of crystal field splitting**V. Vanecek^{1,2,3}, M. Yoshino⁴, T. Horiai⁴, A. Yamaji⁴, S. Kurosawa⁴, A. Yoshikawa^{1,4,5}**¹ IMR, Tohoku University, 2-1-1, Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi, 980-8577 Japan² FZU AVCR, Na Slovance 1999/2, 182 00 Prague 8, Czech Republic³ JSPS International Research Fellow⁴ NICHe, Tohoku University, 6-6-10 Aza-Aoba, Aoba-ku, Sendai, Miyagi, 980-8579 Japan⁵ C&A corporation, 6-6-40 Aza-Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai, Miyagi, 980-8579 Japan**E-mail: vanecekv@fzu.cz**

The $5d \rightarrow 4f$ luminescence of Ce^{3+} and Pr^{3+} exhibit fast decays in order of 10^1 ns due to its spin and parity-allowed nature. This makes Ce^{3+} and Pr^{3+} one of the most widespread dopants in novel scintillating materials^[1]. The application of Ce^{3+} and Pr^{3+} includes well-known commercial scintillators like $Y_3Al_5O_{12}:Ce$, $Gd_2SiO_5:Ce$, $LaBr_3:Ce$, $Lu_3Al_5O_{12}:Pr$, or $YAlO_3:Pr$. Contrary to the parity forbidden $4f \rightarrow 4f$ luminescence typical for lanthanides which is insensitive to the local environment due to the shielding effect, the $5d \rightarrow 4f$ emission is affected by the Nephelauxetic effect and crystal field splitting. In the case of Pr^{3+} there is a delicate interplay between energy of the $4f^2$ [1S_0] and $4f^15d^1$ electron configuration^[2] which strongly influences the luminescence decay kinetics. In fluorides the Nephelauxetic effect is very weak due to the strong ionic nature of the bonds, especially in the alkali metal-alkaline earth metal fluorides which are the object of this study. Therefore, the crystal field splitting is the main factor influencing the position of the $4f^15d^1$ level. We have investigated the influence of crystal field splitting on the luminescence of Ce^{3+} and Pr^{3+} in ternary fluoride crystals. Systematic changes in composition result in the alteration of the crystal field which influences energy and lifetime of the $5d \rightarrow 4f$ emission.

References:

[1] M. Nikl, A. Yoshikawa, *Advanced Optical Materials* 2015, 3, 463.

[2] C. van Aarle, K. W. Krämer, P. Dorenbos, *Journal of Luminescence* 2024, 266, 120329.

高分解能 X 線イメージングに向けた Ce 添加(Gd, Tb)₃Al₂Ga₃O₁₂ 単結晶シンチレータの開発

Development of Ce-doped (Gd, Tb)₃Al₂Ga₃O₁₂ Single-Crystal Scintillator for High-Resolution X-ray Imaging

東北大, 工¹, 金研², NICHe³, 株式会社 C&A⁴, 阪大⁵, 早大⁶, 名大⁷ (M2) 大室和也^{1,2}, 吉野将生^{2,3},
Liudmila Gushchina⁴, 山本誠一⁶, 中西恒平⁷, 鎌田圭^{2,3,4}, 金敬鎮², 堀合毅彦^{2,3}, 村上力輝斗²,
山路晃広^{2,3}, 花田貴², 横田有為², 黒澤俊介^{2,3,5}, 大橋雄二^{2,3}, 佐藤浩樹^{2,3}, 吉川彰^{2,3,4}
Tohoku Univ., Grad. Sch. Eng.¹, IMR², NICHe³, C&A Corp.⁴, Osaka Univ.⁵, Waseda Univ.⁶,
Nagoya Univ.⁷, [○]K. Omuro^{1,2}, M. Yoshino^{2,3}, L. Gushchina⁴, S. Yamamoto⁶, K. Nakanishi⁷,
K. Kamada^{2,3,4}, K. J. Kim², T. Horiai^{2,3}, R. Murakami², A. Yamaji^{2,3}, T. Hanada², Y. Yokota²,
S. Kurosawa^{2,3,5}, Y. Ohashi^{2,3}, H. Sato^{2,3}, A. Yoshikawa^{2,3,4}

E-mail: kazuya.omuro.r5@dc.tohoku.ac.jp

[背景]シンチレータは、医療診断や工業製品の非破壊検査などの分野で活躍する X 線イメージング技術に利用されており、短い露光時間でコントラストに優れた画像を得るために高感度であることが望まれる。近年では、密度と発光特性に優れる Ce 添加 Lu₃Al₅O₁₂(LuAG)や Gd₃Al₂Ga₃O₁₂(GAGG) [1]シンチレータを薄板状に加工した製品が高分解能 X 線イメージングに利用されている。我々は、X線イメージング用途に特化した GAGG:Ce の性能改善を進め、Gd³⁺サイトへの Tb³⁺置換により発光強度が向上することを見出した[2]。本研究では、有望性が確認された Ce 添加(Gd, Tb)₃Al₂Ga₃O₁₂ (GTAGG:Ce) の実用化を目指し、Czochralski(Cz)法を用いた大口径単結晶の育成を実施した。さらに、イメージング性能実証に向け、市販のシンチレータ薄板との X 線イメージング性能の比較までを実施した。

[結果]仕込み組成 (Ce_{0.015}Gd_{0.835}Tb_{0.15})₃Al₂Ga₃O₁₂において 50 mm φ の Ir 坩堝を用い、N₂+2%O₂ 雰囲気のもと、0.7mm/h の育成速度で Cz 法による 1 インチ径の単結晶育成を行った(Fig. 1a)。得られた結晶は、市販の LuAG:Ce 薄板と同じ厚みとなるように、0.1mm 厚に光学研磨し、20mm Φ × 1mm のアモルファスカーボン板に張り付けた。GTAGG:Ce と LuAG:Ce を用いて、同じ露光時間・X 線照射条件にて JIMARC-04 チャートの X 線透過像を取得し、CTF(contrast transfer function)を計算した(Fig.1b)。CTF 値 10%を分解能と定義し分解能を見積もったところ、LuAG:Ce が 1.2μm だったのに対し、GTAGG:Ce は 0.85μm の分解能を示した。X 線曝露時間とセンサ平均画素値の関係より、GTAGG:Ce の感度（発光出力）は GAGG:Ce の 1.6 倍、LuAG:Ce の 2.4 倍を達成した(Fig. 1c)。分解能や 感度（発光出力）等の解析方法、測定結果に関しては当日詳細に報告する。

[1] Kamada, K. et al., Crst. Growth. Des., 10, 2011, 4247–4720. [2] Omuro, K. et al., J. Lumin., 273, 2024, 120663.

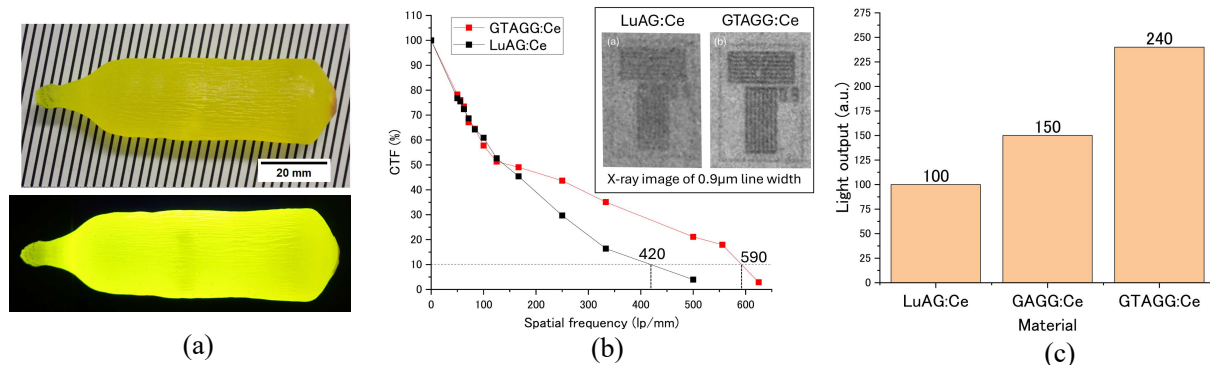


Fig. 1 (a) Photograph of the grown crystal, (top) under the light (bottom) under UV excitation, (b) CTF values as a function of spatial frequency, inset is X-ray image of 0.9μm line width chart, (c) Light output value calculated by average pixel value.

二重ベータ崩壊実験のための(Ca, Mg)I₂系シンチレータの育成と特性評価 Growth, scintillation properties, and pulse shape discrimination capability of (Ca, Mg) I₂ scintillator

東北大工¹, 東北大金研², 東北大 NICHe³, 株式会社 C&A⁴, 筑波大⁵ ○(M1)川畑諒輔^{1,2},
吉野将生^{3,4}, 鎌田圭^{2,3,4}, 飯田崇史⁵, 堀合毅彦^{3,4}, Kyoung Jin KIM^{2,3,4}, 沓澤直子⁴,
村上力輝斗^{2,4}, 山路晃弘^{2,3}, 黒澤俊介^{2,3}, 横田有為^{2,3}, 大橋雄二^{2,3}, 佐藤浩樹^{2,3}, 花田貴²,
吉川彰^{2,3,4}

Grad. Sch. Eng, Tohoku Univ.¹, IMR, Tohoku Univ.², NICHe, Tohoku Univ.³, C&A corporation⁴,
University of Tsukuba⁵, Ryosuke Kawabata,^{1,2} Masao Yoshino,^{3,4} Kei Kameda,^{2,3,4} Takashi Iida,⁵
Takahiko Horiai,^{3,4} Kyoung Jin KIM,^{2,3,4} Naoko Kutsuzawa,⁴ Rikito Murakami,^{2,4} Akihiro
Yamaji,^{2,3} Shunsuke Kurosawa,^{2,3} Yuui Yokota,^{2,3} Yuji Ohashi,^{2,3} Hiroki Sato,^{2,3} Takashi Hanada,²
and Akira Yoshikawa,^{2,3,4}

E-mail: kawabata.ryosuke.r5@dc.tohoku.ac.jp

[背景] 二重ベータ崩壊実験における観測対象である $0\nu\beta\beta$ は非常に稀な信号であり、半減期下限値は 10^{26} 年以上と長い。 $0\nu\beta\beta$ 信号の観測には高いエネルギー分解能および、 α 線と γ 線、 β 線に対する波形弁別性能を有するシンチレータが必要となる。CaI₂ シンチレータは 107000 photon/MeV という高い発光量、3.2%FWHM@662keV という優れたエネルギー分解能や α 線と γ 線に対する良好な波形弁別性能を持つことが報告されている。[1]しかし CaI₂ 単結晶は高い潮解性と劈開性を持つため、加工が困難であることが報告されている。[2]CaI₂ は a-b 平面に平行な層状の構造を持つため、層同士は c 軸方向への分離が容易である。本研究では、Ca をイオン半径の小さい Mg で置換することで層間隔を小さくし、CaI₂ の劈開の抑制、およびシンチレーション特性の向上を目的として (Ca, Mg) I₂ 系シンチレータの育成と特性評価を行ったので報告する。

[実験方法] 99.995%CaI₂ および 99.995%MgI₂ を Ar 雰囲気下のグローブボックス内で秤量、石英管に封入した。その後脱水のために真空下で 300℃で 3 時間加熱し、封かんを行い、垂直ブリッジマン法を用いて 1mm/hr の引き下げ速度で結晶を育成した。育成した結晶はドライルーム内でワイヤーソーを用いて切断、研磨後にシンチレーション特性、波形弁別性能について評価した。

[結果] 図 1(a)に切断、研磨後の (Ca_{0.9}Mg_{0.1})I₂ 単結晶を示す。育成した (Ca_{0.9}Mg_{0.1})I₂ 単結晶は CaI₂ 単結晶に比べて劈開性が大きく減少していることがわかった。図 1(b)に示す ¹³⁷Cs 線源によるエネルギースペクトルより (Ca_{0.9}Mg_{0.1})I₂ では 57000 photon/MeV の発光量が得られた。図 1(c)に PSD プロットを示す。0.3-2.0MeVee の範囲で得られた FOM(FWHM)は 2.502 であった。当日は詳細な育成方法と EuI₂ を添加した組成におけるシンチレーション特性、波形弁別性能について報告する。

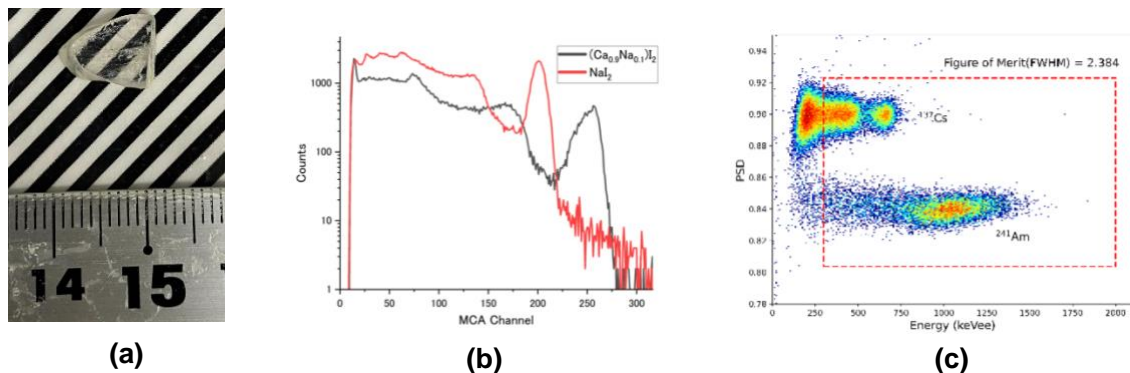


図.1 (a) (Ca_{0.9}Mg_{0.1})I₂ single crystal, (b)Energy spectra of (Ca_{0.9}Mg_{0.1})I₂, NaI₂, (c) PSD plot for (Ca_{0.9}Mg_{0.1})I₂

Reference

- [1] T. Iida, et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 958 (2020) 162629.
- [2] L.A. Boatner, et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 786 (2015) 23–31.

球形シンチレータを用いた光ファイバ型中性子検出器の基礎研究

Basic study on optical-fiber-based neutron detectors using a spherical scintillator

九大工¹ ○齋藤 優太郎¹, 大島裕也¹, 渡辺 賢一¹

Kyushu Univ.¹ ○Yutaro Saito¹, Yuya Oshima¹, Kenichi Watanabe¹

E-mail: saito.yutaro.957@s.kyushu-u.ac.jp

ホウ素中性子捕捉療法 (Boron Neutron Capture Therapy: BNCT) は、新たな放射線治療法の一つとしてがん治療の分野で注目されている。BNCT の治療安全性および効果を確認するためには、中性子計測技術の確立が不可欠である。我々の研究グループでは、発光時定数の短い Li ガラスシンチレータを用いた光ファイバ型中性子検出器の開発を進めている。これまでは、光ファイバの先端に配置する小片シンチレータについては、バルクシンチレータを粉砕し、小片を選別しており形状がランダムであったため、モンテカルロシミュレーションに基づく検出器応答の詳細な評価が困難であった。この課題を解決するため本研究では、シンチレータ形状を球形にすることを試みた。今回は、紙やすりを内面に張り付けた筒内に空気を送り込み、小片を筒内で回転させてシンチレータを研磨する方式を実施した。本方式を採用することで、Li ガラスシンチレータを 250~350 μm の球形に加工することに成功した。加工した直径 270 μm の Li ガラス球の写真を Fig. 1 a) に示す。また、光ファイバ型中性子検出器とするために、Fig. 1 b) に示すように、Li ガラス球を光ファイバ先端に紫外線硬化樹脂を用いて取り付けた。

加工することで発光量に変化が無いかを確認するために、加工した Li ガラス球 10 個を光電子増倍管の入射窓上に配置し中性子検出器とした。Cf-252 中性子源とポリエチレン減

速材を用いて熱中性子照射を行った際に得られた信号波高分布を Fig. 2 に示す。バルクの Li ガラスシンチレータで得られた波高分布と比較し、若干の差異はあるものの、ほぼ同程度のピーク波高値が得られ、本方式で加工を行ってもシンチレーション発光量には、ほとんど影響がないことが確認された。

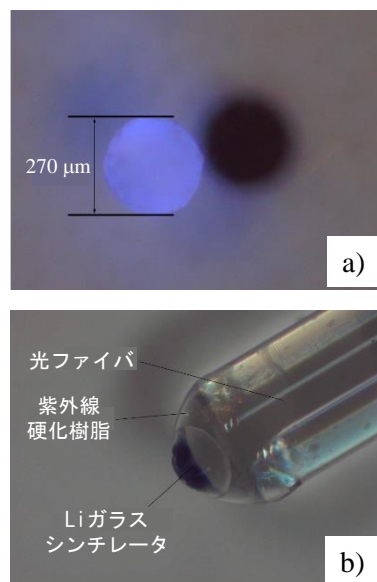


Fig. 1 Enlarged view of Li glass sphere.

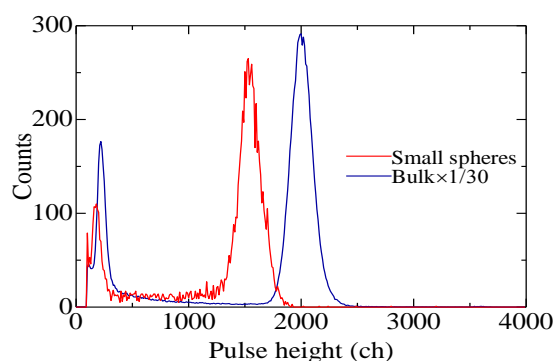


Fig. 2 Pulse height spectra obtained from small spherical and bulk Li glass

光ファイバ型中性子検出器における Li ガラスの自己吸収の評価

Evaluation of Self-Absorption in the Li Glass scintillator Used in Optical-fiber-based Neutron Detectors

九大工¹, ○(D1)大島 裕也¹, 齋藤 優太郎¹, 渡辺 賢一¹
Kyushu Univ.¹, °Yuya Oshima¹, Yutaro Saito¹, Kenichi Watanabe¹
E-mail: Oshima.yuya.140@s.kyushu-u.ac.jp

中性子を用いた新しい放射線治療の一つであるホウ素中性子捕捉療法 (BNCT : Boron Neutron Capture Therapy) において、治療の安全性及び治療効果の確認のためには、照射中性子量の評価が重要である。中性子の計測技術の確立のために、我々の研究グループでは、発光時定数の短い Li ガラスシンチレータを用いた光ファイバ型中性子検出器の開発を進めてきた。しかし、従来使用してきたランダム形状の小片シンチレータでは、モンテカルロシミュレーションのための体系の記述が困難であり、自己吸収の影響を確認できていなかった。これを受けて、光ファイバの先端に配する Li ガラスシンチレータの形状を制御するために、粉末 Li ガラスと紫外線硬化樹脂を混合し成型後に固化させる透明コンポジット法と、研磨紙を内側に張り付けた筒の中で Li ガラスの小片を送風により攪拌して研磨し球状にする空力学的研磨法の2つを提案している。今回は、形状の制御された Li ガラスシンチレータを想定し、放射線挙動を模擬したモンテカルロ計算コードである PHITS を用いて自己吸収の影響を確認した。

自己吸収の影響を確認するための事前の準備として、形状の制御された Li ガラスの直径と密度から、体積、⁶Li の個数を算出した。⁶Li の個数に、熱中性子のエネルギー領域の反応断面積と中性子フラックス (10^9 n/cm²/s) を掛け

ることで、自己吸収の無い場合の反応率 (reactions/s) を求めた。次に、PHITS 上で Li ガラス球、または透明コンポジットシンチレータの半球を再現し、T-interact 機能を用いて熱中性子との反応回数、つまり自己吸収を加味した反応率のシミュレーションを行った。これを、直径 100 - 600 μ m の範囲で行い、自己吸収の影響を評価した。Fig. 1 に、Li ガラス球の直径に対する反応率の依存性を示す。中性子のエネルギーは 25 meV として計算を行った。直径 600 μ m の Li ガラス球では、自己吸収により熱中性子との反応数が計算値に対して 68.7 % まで減少していた。空力学的研磨法による Li ガラス球においては、十分なカウント数が確保でき、自己吸収の影響を抑えられる直径 300 μ m 前後の大きさが中性子検出器として適していると判断した。

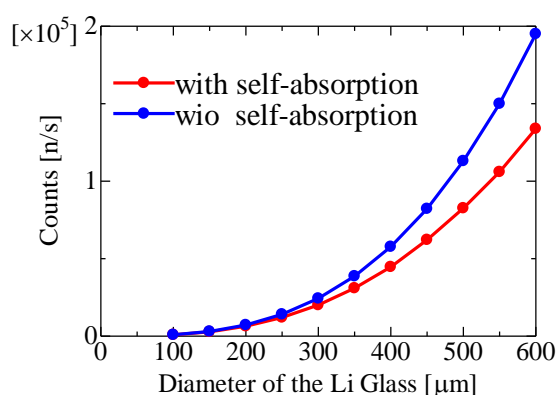


Fig. 1 Dependence of the reaction rate of spherical Li glass scintillator with thermal neutrons on the sphere diameter.

太陽電池型中性子線量計におけるコンバータ膜および太陽電池の影響

Effects of Converter Films and Solar Cells in Solar Cell Neutron Dosimeters

木更津高専¹, 産総研², 理研³

○岡本 保¹, 小林 歩人¹, 栗本 祐司¹, 上川 由紀子², 奥野 泰希³, 小林 知洋³

NIT, Kisarazu Coll.¹, AIST², RIKEN³

○Tamotsu Okamoto¹, Ayuto Kobayashi¹, Yuji Kurimoto¹, Yukiko Kamikawa²,

Yasuki Okuno³, Tomohiro Kobayashi³

*E-mail : okamoto@e.kisarazu.ac.jp

1. まえがき

我々はこれまでに中性子を他の放射線種に変換するコンバータとして B₄C 膜、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜をスクリーン印刷により作製し、太陽電池と組み合わせて中性子束モニタとして使用できることを明らかにしてきた[1]。

今回、コンバータ膜として B₄C 膜、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜を用い、太陽電池として InGaP 太陽電池、CIGS 太陽電池、Si 太陽電池を用いて中性子検出特性を測定し、コンバータ膜および太陽電池の影響を検討したので報告する。

2. 実験方法

B₄C 粉末、LiF 粉末、Gd₂O₃ 粉末およびアクリルバインダ (OLYCOX KC-1700P、共栄社化学㈱) を混合してガラス基板 (Eagle XG) 上にスクリーン印刷し、300°C で 15 分間加熱して B₄C 膜、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜を作製した。B₄C 膜、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜の厚さはそれぞれ 15 μm、30 μm、20 μm である。用いた InGaP、CIGS、Si 太陽電池の光吸収層の厚さはそれぞれ約 1 μm、2 μm、180 μm である。太陽電池表面上に、コンバータ膜を接触させて中性子検出特性を測定した。中性子照射には、理研小型加速器中性子源 RANS を用いた。中性子線は、コンバータ膜内での荷電粒子の自己吸収効果を避けるため、太陽電池側から照射した。

3. 中性子照射試験

Fig.1 に InGaP 太陽電池、CIGS 太陽電池、Si 太陽電池と B₄C 膜、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜を組み合わせた中性子線量計の誘導電流と陽子電流の関係を示す。Si 太陽電池の感度は、InGaP 太陽電池や CIGS 太陽電池の感度に比べ、どのコンバータ膜においても大きかった。特に、Gd₂O₃ コンバータ膜を用いた場合の感度は Si 太陽電池を用いた場合、InGaP 太陽電池に比べて 10 倍以上向上した。また、Si 太陽電池を用いた場合、Gd₂O₃ 膜と組み合わせた場合の感

度は、B₄C 膜と組み合わせた場合と同等であった。これらの結果は、コンバータ膜の中性子吸収によって放出される荷電粒子の飛程 (例えば、InGaP における ¹⁰B から放出される α 粒子および Gd から放出される内部転換電子の飛程はそれぞれ 3 μm、130 μm 程度) に比べて、InGaP 太陽電池と CIGS 太陽電池の光吸収層の厚さが小さいためと考えられる。

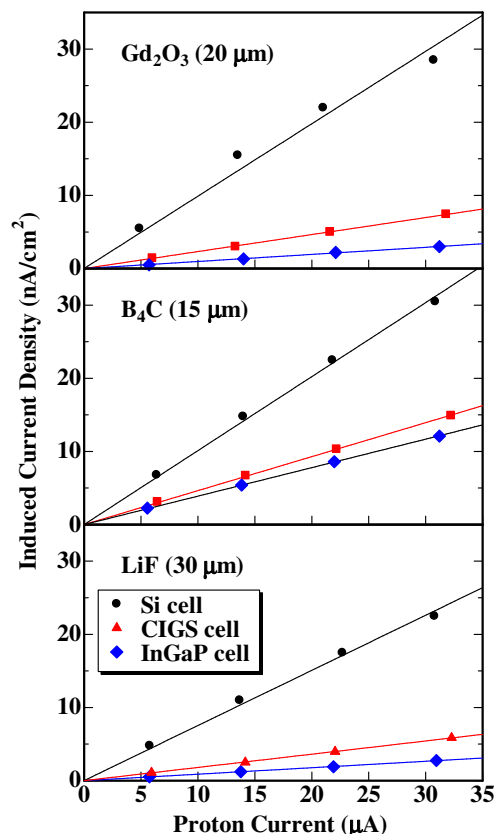


Fig.1 Relationship between induced current and proton current for the solar cell neutron dosimeters.

謝辞 本研究は、英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の一部として実施した。

参考文献

[1] 岡本他, 第 71 回春季応物, 22p-12E-2

TlBr ウエハの結晶性評価

Crystallinity Analysis of TlBr Wafers

東北工大¹, 東北大工², 高輝度光科学研究センター³

○小野寺 敏幸¹, 野上 光博², 人見 啓太郎², 豊川 秀訓³

Tohoku Inst. Tech.¹, Tohoku Univ.², JASRI³

○Toshiyuki Onodera¹, Mitsuhiro Nogami², Keitaro Hitomi², Hidenori Toyokawa²

E-mail: t_onodera@tohtech.ac.jp

1. はじめに

ガンマ線に対して極めて臭化タリウム (TlBr) は、核医学診断やホウ素中性子捕捉療法など先進医療技術を発展させる新たな半導体材料と考えられている。また、TlBr 結晶を用いた 2 次元検出器の開発も進んでおり、医学分野だけでなく学術、産業分野における応用も期待されている。ガンマ線検出器に用いられる TlBr 結晶は、材料精製を経て TMZ 法やブリッジマン法により成長された後にウエハに切り出されデバイス化される。先行研究において 1 枚のウエハから複数の TlBr 検出器の製作が試みられてきたが、一様な電荷輸送特性や抵抗率等の実現には至っていない。また、ウエハから切り出した個々の TlBr 結晶に対する X 線回折測定では、ウエハ内および成長軸方向に亘る結晶性の不均一性が示唆されており、一様なデバイス特性を得るためには TlBr 結晶の詳細な評価とデバイス評価の両立が欠かせない。

本研究では、デバイス用試料を切り出す前の TlBr ウエハの極点図測定および 2 次元ロッギングカーブ測定を行うことで TlBr ウエハ自身が持つ結晶性と成長軸について評価した。

2. 実験

本実験で使用した試料は、ブリッジマン法により成長させた直径 1 インチの TlBr 結晶から成長方向に対して直角に切り出した厚さ約 2 mm の TlBr ウエハである。ウエハは、#2000 の耐水研磨紙による機械研磨と鏡面研磨により表面処理した。結晶評価には、 $\chi\phi$ アタッチメント、XY-20アタッチメントをからなる X 線回折装置を用いた。X 線は、Cu K α 、管電圧、管電流は、40 kV, 50 mA とした。図 1 は、 $2\theta: 31.74^\circ$ (110)において測定範囲を $\alpha: 15-45^\circ$ および $78-90^\circ$ 、 $\beta: 0-360^\circ$ として得られた TlBr ウエハの極点図である。測定の結果、(110)に対応するピークが $\alpha: 82.69^\circ$ 、 $\beta: 240.36^\circ$ に得られており、測定した TlBr 結晶は、成長軸に対して 7.31° 傾斜した(110)成長していることが分かった。ウエハ面内の 75 点から得られた(110)におけるロッギングカーブ測定では、特定の領域において結晶性の境界を含むことを示唆する結果が得られた。

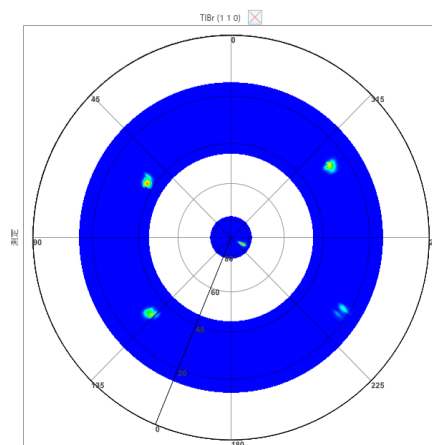


Fig.1. (110) pole figure of a ϕ 1-inch TlBr wafer obtained by X-ray diffraction.

Tl 電極 TlBr 放射線検出器の暗電流に影響する要因について

Factors affecting the dark current of TlBr detectors with Tl electrodes

東北大工¹, 東北工大工², タロ斯拉ボ³

○野島 太郎^{1,3}, 野上 光博¹, 小野寺 敏幸², 人見 啓太郎¹

Tohoku Univ.¹, Tohoku Inst. Tech.², Thallous Labo. Co., Ltd.³

○Taro Nojima^{1,3}, Mitsuhiro Nogami¹, Toshiyuki Onodera², Keitaro Hitomi¹

E-mail: nojima.taro.p1@dc.tohoku.ac.jp

1.はじめに

臭化タリウム (TlBr) を用いた放射線検出器は高感度・高エネルギー分解能を有し、実用化に向け研究が行われている。貴金属電極の課題であるポラリゼーションによる劣化はメタル Tl 電極により抑制可能[1]だが、デバイスの歩留まり改善が課題であった。前報[2]では電極界面の改質を目的としたプラズマ処理により、光分解で TlBr 表面にメタル Tl が生成することを報告した。本研究ではプラズマ処理および樹脂によるモールド後の加熱処理が検出器の暗電流特性に与える影響について検討し、高歩留まりで低暗電流の Tl 電極 TlBr 検出器が製作できたことを報告する。

2.実験・評価方法

プラズマ処理とモールド後加熱の有無の組合せで 4 条件を振り、他は前報と同条件で同一結晶から Tl 電極 TlBr 検出器を製作した。電気特性評価として 0～+10 V の範囲で IV カーブ (ステップ法、20 s 保持) を測定した。連続通電の経時変化を評価するため、保管時は+1.5 V、24℃を維持した。プラズマ処理またはモールド後加熱を実施しない条件 A、B、C では+2 V でも暗電流が 100～600 pA と高く経時変化が認められた。一方、条件 D では n=4 全て+2 V の暗電流は数十 pA と低く、かつ経時変化は認められず製作直後から良好な暗電流特性を維持した。

経時変化観察後 500 V を印加し ¹³⁷Cs の γ 線スペクトルを測定した。条件 D の暗電流はいずれも 1.0 nA 程度を維持し 7 - 14 hr 連続して安定動作した。pixel 電極の 662 keV 光電ピーク半値幅は連続動作中安定しており、その平均値は 1.23、1.32、1.38、1.78 % (アノード立上時間補正) と良好な特性を示した。

Table 1. Fabrication conditions of TlBr detectors

	Plasma treatment	Heat treatment	Number of detectors
A	No	No	1
B	Yes	No	1
C	No	Yes	2
D	Yes	Yes	4

Plasma etching treatment for 45 s with 10 W RF power
Heat treatment at 100℃ for 24 hr in air after molding

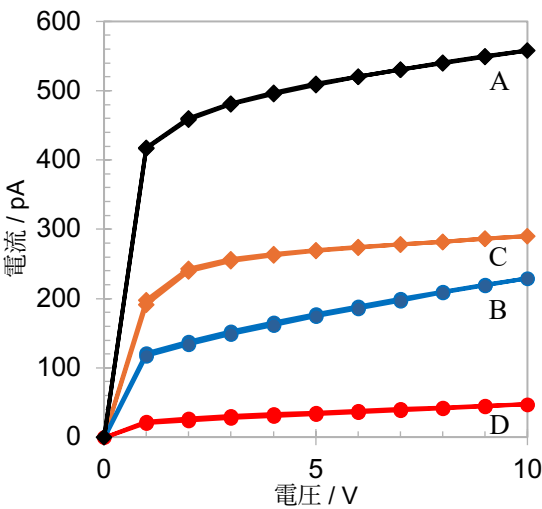


Fig. 1. I-V curve of TlBr detectors

[1] Hitomi K, Shoji T, Niizeki Y, Nucl Instr And Meth A 585: 102-104 (2008)

[2] 野島他, 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 191-A307-2 (2023)

TlBr 半導体の二次元キャリア輸送特性評価可能範囲に関する検討

Study on the measurable region of two-dimensional carrier transport properties of TlBr semiconductors

九州大¹, 東北大² °須貝 優介¹, 渡辺 賢一¹, 長谷川 創大¹, 田中 清志朗¹, 野上 光博²,
人見 啓太朗²

Kyushu Univ.¹, Tohoku Univ.², °Yusuke Sugai¹, Kenichi Watanabe¹, Sota Hasegawa¹,
Seishiro Tanaka¹, Mitsuhiro Nogami², Keitaro Hitomi²

E-mail: sugai.yusuke.031@s.kyushu-u.ac.jp

1. 緒言 ガンマ線検出器材料として実用化が期待される化合物半導体の一つに臭化タリウム(以下、TlBr)がある。TlBr 検出器は広いバンドギャップを有し室温動作が可能であることや、高い原子番号と密度により高い検出効率が期待できるという利点を持つ。高品質かつ大型の検出器を実現するには、電荷輸送特性が均一な結晶を育成することが必要となる。我々のグループでは電荷輸送特性評価の一環として、パルスレーザーを結晶表面に照射して生成した電荷キャリアの移動度を飛行時間法で評価するシステムの構築、改善を重ねてきた。本システムでは、レーザー照射位置を走査することで電荷輸送特性の二次元分布を評価することができる。今回は、照射位置により信号波形の形状に違いが生じる原因について考察し、評価可能範囲についての検討を進めた。

2. 計算による検討 有限要素法ソフトウェア Elmer を用いた電場計算コードとモンテカルロ計算コード EGS5 を組み合わせた検出器応答シミュレータを用い、プレナ型検出器の応答について計算を行った。TlBr 結晶の寸法は $5\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 2.4\text{ mm}$ とし、この $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$ の両面に $4\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ の電極を配置した。また、TlBr 内の移動度は均一で $25\text{ cm}^2/\text{Vs}$ とした。検出器のカソード電極直下の各点に付与するエネルギーは 100 keV とした。カソード電極に負の電圧を印加することで、カソード電極直下で生成された電子正孔対ののうち主として電子の移動によりアノード電極に誘起される信号を計算した。検出器からの信号波形の例を Fig. 1 に示す。また、電子の移動度の二次元分布を計算した結果を Fig. 2 に示す。シミュレーション結果を解析したところ、電極の端付近で生成した電子は中心付近で生成した電子より移動度が低く見積もられることが分かった。

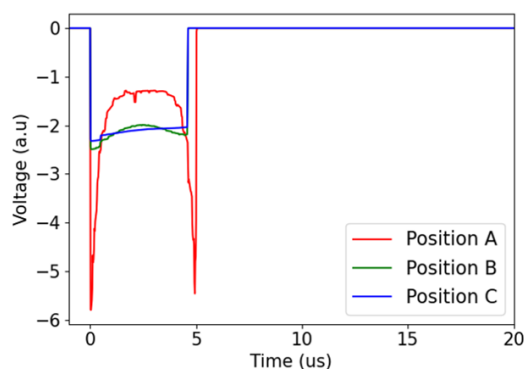


Fig. 1 Signal waveforms induced by electrons transport.

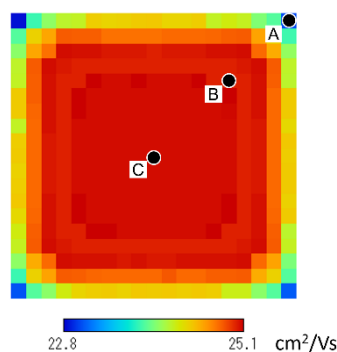


Fig. 2 Two-dimensional distribution map of electron mobility in the TlBr detector.

TlBr 半導体検出器の多変量解析による信号処理

Signal processing of a TlBr semiconductor detector using multivariate analysis

九州大¹, 東北大² °(B)田中 清志朗¹, 須貝 優介¹, 長谷川 創大¹, 渡辺 賢一¹,
野上 光博², 人見 啓太郎²

Kyushu Univ.¹, Tohoku Univ.², °(B)Seishiro Tanaka¹, Yusuke Sugai¹, Sota Hasegawa¹, Kenichi Watanabe¹, Mitsuhiro Nogami², Keitaro Hitomi²

E-mail: tanaka.seishiro.954@s.kyushu-u.ac.jp

1. 緒言 ガンマ線検出器材料として期待される化合物半導体の一つに臭化タリウム(以下、TlBr)がある。TlBr 検出器は広いバンドギャップを有し室温での動作が可能であり、高い原子番号と密度により高い検出効率が期待できる。正孔の移動度は電子の 10 分の 1 以下で非常に低いため、高いエネルギー分解能を得るには、主として電子による誘起信号を用いる単極性電荷有感型検出器として動作させることが必要となる。単極性電荷有感型検出器の一つとして、ガード電極付き単ピクセル検出器が用いられており、高いエネルギー分解能を得られることが報告されているが、有感体積が結晶の極一部に限定されるという問題がある。ガード電極とピクセルアノード間に電位差を設けることで、有感体積を拡大させることができるが、エネルギー分解能が劣化することが問題であった。本研究では、多変量解析に基づく信号波高補正法を適用することで、検出効率とエネルギー分解能の両立を目指す。

2. 実験 ガード電極付き単ピクセル検出器は、ガード電極がピクセルアノードを囲むように配置している。各電極への印加電圧を(V_{anode} , V_{guard} , V_{cathode})=(0 V, 0 V, -500 V)とした際の信号波高分布を Fig. 1 に示す。スモールピクセル効果により高いエネルギー分解能が得られていることが確認できる。有感体積を増加させるために印加電圧を(V_{anode} , V_{guard} , V_{cathode})=(0 V, -200 V, -500 V)にした際の波高分布を Fig. 2 に示す。キャリア電子の軌道が歪み、エネルギー分解能が劣化していることが確認できる。今回は、多変量解析のひとつである主成分分析を用いた信号波高補正を行い、エネルギー分解能が改善していることが確認できた。今後、種々の多変量解析手法を検討し、更なるエネルギー分解能の改善を試みる。

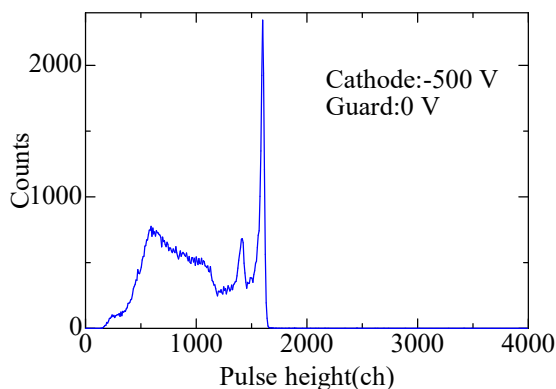


Fig. 1 Pulse height spectrum obtained from the guarded-single-pixel TlBr detector. (V_{anode} , V_{guard} , V_{cathode})=(0 V, 0 V, -500 V)

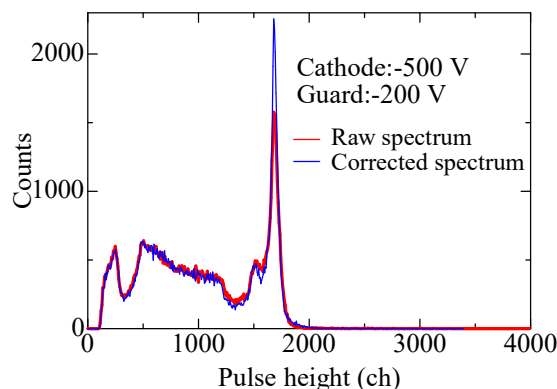


Fig. 2 Pulse height spectrum obtained from the guarded-single-pixel TlBr detector. (V_{anode} , V_{guard} , V_{cathode})=(0 V, -200 V, -500 V).

Direct Conversion Flat Panel Detectors Using 25 μm Thick TlBr Film for X-ray Imaging

Moh Hamdan¹, Donghwan Kim¹, Kenji Shimazoe¹, Hiroyuki Takahashi¹, Mitsuhiro Nogami², Keitaro Hitomi², Shinya Asakura³, Takanori Tsunashima³, and Takashi Nakamura³

The University of Tokyo¹, Tohoku University², Japan Display Inc.³

Email: mohhamdan@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

Direct conversion Flat Panel Detectors (FPDs) have garnered significant attention for X-ray imaging in both medical and industrial fields due to their enhanced image quality. The choice of conversion materials, which directly convert X-rays into electrical charges, is crucial for the performance of these detectors. Thallium Bromide (TlBr) is an attractive material owing to its suitable energy bandgap (2.68 eV), high atomic numbers ($Z_{\text{Tl}} = 81$, $Z_{\text{Br}} = 35$), and high density (7.56 g/cm³). This study aims to develop and characterize a direct conversion FPD using a 25 μm thick TlBr film. The TlBr film, with a thickness of 25 μm and a sensitive area of $29.61 \times 39.48 \text{ mm}^2$, was deposited using the evaporation method. A pixelated sensor matrix, featuring 168×126 pixels with a pixel size of $235 \times 235 \mu\text{m}^2$, was developed using Low-Temperature Polysilicon Thin-Film Transistor (LTPS TFT) technology as shown in Figure 1 (a). Spatial resolution was evaluated using the slanted edge method with the TlBr layer biased at 1.00 V, capturing 100 frames for each experiment. For imaging performance assessment, an anchovy object was imaged with a TlBr bias voltage of 0.75 V, capturing 1000 frames. The X-ray tube was operated at a voltage range of 23.0 kV to 100.0 kV with a current range of 0.25 mA to 2.00 mA. The spatial resolution, determined from the Line Spread Function (LSF) profile in Figure 1 (b) and (c), ranged from 222 to 280 μm Full Width at Half Maximum (FWHM), constrained by the pixel size. The imaging demonstration of the anchovy object clearly discerned its shape and structure, indicating effective image capture by the TlBr FPD. The results show that the TlBr FPD achieves reasonable spatial resolution and detailed imaging, showcasing its potential for practical applications in X-ray imaging.

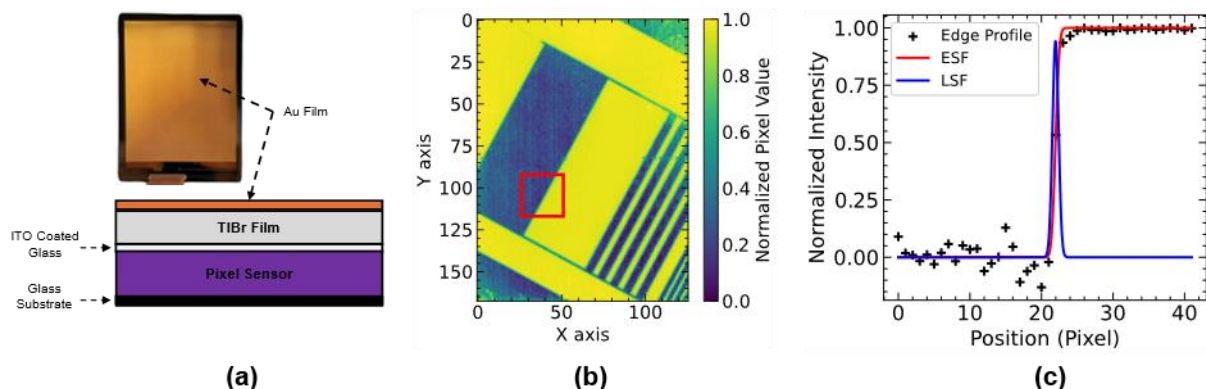


Figure 1. (a) Physical appearance and simplified cross section of TlBr FPD, (b) Projected Image of X-ray test chart, and (c) The ESF and LSF based on slanted edge method.

レーザー駆動イオン加速実験用水素クラスターターゲットの特性解析 Characterization of hydrogen cluster targets in laser-driven ion acceleration experiments

神大院海事¹, 量研関西研², 株式会社 EX-Fusion³

○(M2) 豊永 啓太¹, 尾崎 玲於奈¹, 山内 知也¹, 福田 祐仁², 杉本拓也³, 金崎 真聡¹

Kobe Univ.¹, QST-KPSI², EX-Fusion Corp. ○Keita Toyonaga¹, Reona Ozaki¹,

Tomoya Yamauchi¹, Yuji Fukuda², Takuya Sugimoto³, Masato Kanasaki¹

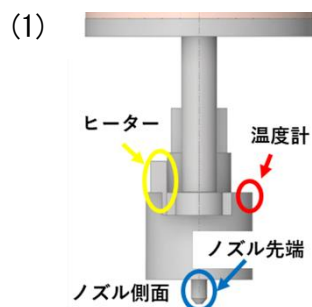
E-mail: 235w319w@stu.kobe-u.ac.jp

【緒言】

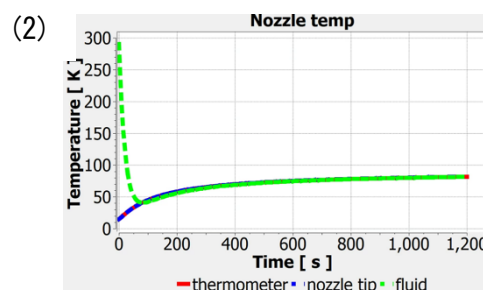
我々のグループでは、レーザー駆動陽子線加速実験のターゲットとして用いられるクライオターゲットの開発に取り組んでいる。本研究では、クライオターゲットの中でも水素クラスターターゲットに着目し、その特性を明らかにすることを目的とした。水素クラスターは、極低温に冷却したノズルから高圧の水素ガスを真空中に噴射することで生成されるが、クラスターサイズはノズル温度に依存する。レーザー駆動で加速される陽子線のエネルギーはクラスターサイズに依存するため、ノズル温度の制御は重要課題である。そこで、熱流体シミュレーションソフト ANSYS Fluent を使用し、クラスターノズル内部の水素ガスの状態をシミュレーションし、ヘリウム冷凍機からクラスターノズルにかけての温度分布について分析した。

【結果と考察】

クラスター発生装置のヒーターと温度計、クラスターノズル先端の位置関係を図1に示す。図の上部はヘリウム冷凍機に接続されており、ヒーターの出力を調節してノズル温度を制御している。装置内部に常温の水素を充填した場合の温度変化をシミュレーションした。結果の一例を図2に示す。一定時間経過後に、温度計付近とノズル先端の温度がおおよそ一致することが分かった。即ち、現在のノズル温度制御方法で、クラスターターゲット生成に問題がないことが確認できた。一方で、水素ガスの流れを考慮できていないことから、水素ガスが所定の温度に到達するために必要な冷却時間は正確には求められていないが、実験ではレーザーショットの時間間隔についても考慮する必要があることが分かった。



図(1). クラスター発生装置のヒーターと温度計、ノズル先端の位置関係



図(2). ヒーターと温度計、ノズル先端の温度変化

高強度レーザーと水素クラスターターゲットの相互作用における レーザープレパルスが陽子線加速に及ぼす効果-II

Effect of laser prepulses on proton acceleration

in the interaction of intense laser pulses with hydrogen cluster targets II

神大院海事¹, 量研関西研² ◯(M2) 前川 馨¹, 尾崎 玲於奈¹,

豊永 啓太¹, 山内 知也¹, 福田祐仁², 金崎 真聡¹

Kobe Univ.¹, QST-KPSI.², ◯Kaoru Maekawa¹, Reona Ozaki¹, Keita Toyonaga¹, Tomoya Yamauchi¹,

Yuji Fukuda², Masato Kanasaki¹

E-mail: 238w326w@cloud.kobe-u.jp

我々グループでは、量子科学技術研究開発機構関西光量子科学研究所の高強度レーザーJ-KAREN-P のレーザー光とクラスターターゲットの相互作用によるレーザー駆動イオン加速実験を行っている。高強度レーザーには、メインパルスの数 ps 前にプレパルスと呼ばれる強度の弱い光がノイズとして存在するが、これがレーザーメインパルス到達前にクラスターターゲットを破壊してしまうという問題があった。そこで、プレパルスを除去する手段の一つとしてプラズマミラーシステムが導入されており、プレパルスを低減することに成功している。しかしその効果について統計的に検証された例は少ない。我々のグループでは、プラズマミラーシステムが陽子線加速へ与える効果をより明確にすることを目的とし、水素クラスターターゲットを用いたレーザー駆動イオン加速実験のイオン計測データについて統計的に解析を行なっている。昨年は、水素クラスターターゲットから加速される陽子線の最大エネルギーと粒子数に着目した統計解析を行った。その結果、プラズマミラー無しの場合に比べてプラズマミラーによりプレパルスが低減されている方が、陽子線の最大エネルギーが高いという結果が得られた。一方で、加速される陽子線の数については、プラズマミラーの有無で有意差があるとは言えないという結果が得られた。これらについて、昨年度の講演会にて報告した。今回は、プレパルスが陽子線加速に与えている影響についてより詳しく調べるために、レーザー光とクラスターターゲットの相互作用により発生する第二高調波について解析を行なった。第二高調波は、非線形光学媒質にレーザー光を入射すると、基本波の半分の波長の光が放出される現象である。本研究では、レーザーの集光点付近から発生する第二高調波のイメージングを行い、プラズマミラーの有無による第二高調波の輝度について統計解析を行なった。その結果、プラズマミラー有りの場合に、無しの場合に比べてより集光点に近いところから第二高調波が発生していることがわかったが、プラズマミラーの有無で集光点の位置が変化していることが明らかとなった。発表では、統計解析の結果と集光位置の変化に関する考察について発表を行う。

レーザー加速アルゴンイオンのピンホールイメージング

Pinhole imaging of Ar ions generated from the interaction region

between the intense laser pulses and Ar cluster targets

神大院海事¹, 量研関西研² ○(M1) 苅谷 有哉¹, 尾崎 玲於奈¹, 豊永 啓太¹,

前川 馨¹, 合原 輔佑太¹, 山内 知也¹, 福田 祐仁², 金崎 真聡¹

Kobe Univ.¹, QST KPSI² ○Yuya Ichigotani¹, Reona Ozaki¹, Keita Toyonaga¹,

Kaoru Maekawa¹, Shuta Gohara¹, Tomaya Yamauchi¹, Yuji Fukuda², Masato Kanasaki¹

E-mail: 240w305w@stu.kobe-u.ac.jp

【緒言】

レーザー駆動イオン加速は新しいイオンの加速手法として注目されており、加速器の小型化・低コスト化に繋がる技術として期待されている。神戸大学は量子技術研究開発機構関西光量子科学研究所（量研関西研）との共同研究において、クラスターターゲットを用いたレーザー駆動イオン加速実験を行っている。クラスターターゲットは、ガスと固体の中間の密度を実現可能なため、レーザーのエネルギー吸収効率が低いという利点がある。しかしながら、高強度レーザーは、メインパルスの数ps前にプレパルスと呼ばれる強度の低いノイズ成分が存在し、このプレパルスがメインパルスの到達前にクラスターを破壊してしまうという問題が生じていた。その対策として、量研関西研の高強度レーザーJ-KAREN-Pではメインパルスのみを反射するプラズマミラーを導入することでプレパルスを低減し、イオン加速の高エネルギー・高品質化を目指した研究が実施されている。本研究では、アルゴンクラスターターゲットを用いたレーザー駆動イオン加速実験において、レーザープレパルスの影響を調べることを目的とし、固体飛跡検出器 CR-39 を用いて集光点付近から発生するイオンのピンホールイメージングを行った。

【結果と考察】

レーザー進行方向に対して 90 度方向から集光点付近を 2.8 倍拡大する体系でピンホールイメージングを実施した。ピンホール通過後のイオンは CR-39 で検出し、エッチピットをマッピングした。その結果を Fig. 1 に示す。プラズマミラー有りの場合 (Fig. 1(a)) は、集光点付近のエッチピット数が少なく、プラズマミラー有りの方が集光点付近から多くのイオンが加速されていることが分かった。即ち、プラズマミラー有りの場合において、より集光強度の高い集光点付近での相互作用が行われていないという予想とは反する結果が得られた。

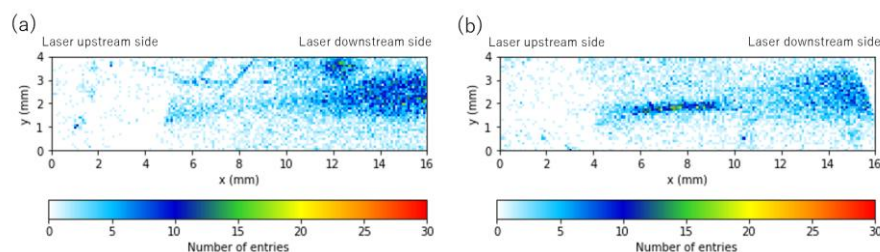


Fig. 1 Etch pits distributions on the pinhole imaging ((a) with plasma mirror, (b) without plasma mirror)

固体飛跡検出器を用いたレーザー加速陽子線及び重イオンのエネルギー spektrometers の開発

Development of an energy spectrometer for laser-accelerated protons and heavy ions using solid-state nuclear track detectors

神大院海事¹, 量研関西研² ○(M2)尾崎 玲於奈¹, 豊永 啓太¹, 前川 馨¹,

苺谷 有哉¹, 合原 輔佑太¹, 山内 知也¹, 金崎 真聡¹, 福田 祐仁²

Kobe Univ.¹, QST KPSI², °Reona Ozaki¹, Keita Toyonaga¹, Kaoru Maekawa¹,

Yuya Ichigotani¹, Shuta Gohara¹, Tomoya Yamauchi¹, Masato Kanasaki¹, Yuji Fukuda²

E-mail: 233w306w@stu.kobe-u.ac.jp

【緒言】

固体飛跡検出器は、X 線や電子線がイオンと同時に発生するレーザー駆動イオン加速実験において最も信頼性の高いイオンの検出器として用いられてきた。近年、レーザー加速イオンは、高エネルギー化が進んでおり、100 MeV 近くの陽子線加速が可能になっている。それに伴い、固体飛跡検出器の検出閾値をはるかに上回るエネルギーのイオンを検出することが求められている。また、固体ターゲットから陽子線と同時に加速される重イオンについても、エネルギースペクトルを計測することが求められている。本研究では、レーザー加速陽子線及び重イオンのエネルギースペクトルを計測することを目的として、種々の固体飛跡検出器を用いたスタック型検出器の設計を行った。

【結果と考察】

レーザー加速陽子線の計測を行うために、図 1 に示すような固体飛跡検出器 CR-39 と減速材のテフロンを積層したスタック型検出器を、粒子・重イオン輸送汎用モンテカルロコード PHITS を用いて設計した。このスタック型検出器では、10~220 MeV までの陽子線をおよそ 10 MeV 刻みで計測することができる。次に、レーザー加速重イオンの計測を行うために、固体飛跡検出器として Al イオン以上の重イオンが計測可能なポリイミド、ポリエチレンテレフタレート (O イオン以上)、ポリカーボネート (C イオン以上) を組み合わせたスタック型検出器の設計を行った。阻止能の大きな重イオンは検出器上流側で計測し、同時加速される陽子線については先述のスタック型検出器と同様、テフロンを減速材としておよそ 10 MeV 刻みで計測可能なスタック型検出器を設計した。これらを用いた計測結果については、発表にて詳細を述べる。

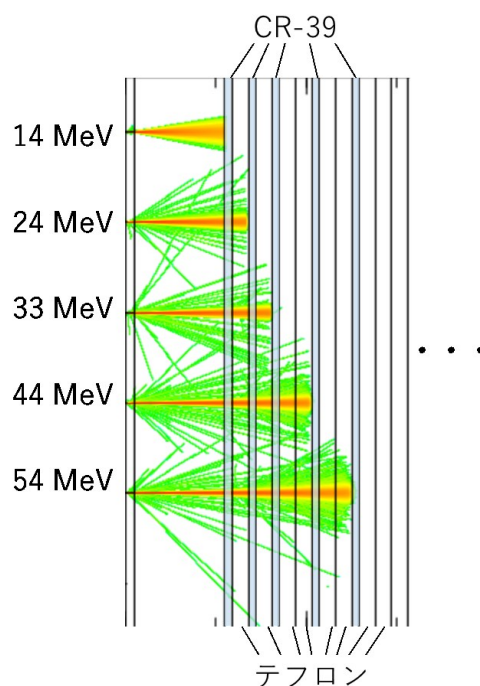


図 1 レーザー加速陽子線計測用スタック型検出器

Cu, Ni, Zr 試料中にトラップされた He-3 検出手法の開発

Development of the detection method for He-3 trapped in CuNiZr Materials

神大院海事, [○](M2) 東 柊斗¹, 勢一 隼人¹, 山内 知也¹, 金崎 真聡¹

Kobe Univ.¹, [○]Shuto Higashi¹, Hayato Seichi¹, Tomoya Yamauchi¹, Masato Kanasaki¹

E-mail: 231w324w@stu.kobe-u.ac.jp

【緒言】

水素の凝縮系核反応エネルギーによる異常発熱、いわゆるナノ金属水素エネルギー (Metal Hydrogen Energy, MHE) は、ここ数年の研究の進展により、高い再現性が確認されている。その発熱のメカニズムとして、4つの水素原子の正四面体凝縮 (Tetrahedral Symmetric Condensate, 4H/TSC) モデル理論による核変換メカニズムが提唱されている。4H/TSC モデルでは、核反応後に陽子と He-3、もしくは、2つの陽子と1つの重陽子が生成するとされている。4H/TSC 反応実証のためには、生成物のうち地球上にほとんど存在しない He-3 を検出することが最も確実な方法であるが、これまでに MHE の実験体系からは He-3 は検出されておらず、4H/TSC モデルは実験的には実証されていない。その理由として考えられるのは、これまでの MHE では発熱量が少なく、反応生成物が検出可能なレベルに達していなかったこと、MHE 反応試料として用いている Cu, Ni, Zr 材料内に He-3 がトラップされておりガスとして放出されていなかったことなどが考えられる。上述の通り、近年の MHE 反応実験では、十分な発熱が高い再現性で確認されており、生成すると考えられる He-3 の量も検出下限を上回ると考えられる。本研究では、異常発熱反応後の Cu, Ni, Zr 試料から He-3 を検出することで 4H/TSC 反応を実証することを目的とし、昇温脱離分析法及び核反応法による He-3 検出手法を開発した。

【昇温脱離分析法】

一般に、He は Cu や Ni 等の金属に常圧の状態ではほとんど溶解せず、金属材料中で生成された He は格子欠陥にトラップされ、数百℃程度では金属材料から容易に放出されないと考えられる。そこで、過剰発熱反応後の He-3 がトラップされていると期待される Cu, Ni, Zr 試料を融点近くまで加熱して放出されるガスを分析する昇温脱離分析法を導入した。

【核反応法】

本手法では He-3 と重陽子との核融合反応を利用し、放出される 14.7 MeV の陽子線を計測することで Cu, Ni, Zr 試料内の He-3 を検出するものである。重陽子ビームの照射には神戸大学タンデム加速器を利用する。ビームラインに接続された真空チャンバー内に Cu, Ni, Zr 試料を設置し、重陽子ビームを照射することにより放出される陽子線を固体飛跡検出器 CR-39 で計測する体系を構築した。

2 放射線 | 一般セッション(口頭講演): 2.2 放射線物理一般・放射線応用・発生装置・新技術

[20a-D62-1~11] 2.2 放射線物理一般・放射線応用・発生装置・新技術

[20a-D62-1]

TOF-SIMSを用いたヌクレオチドの照射後解析

○大田 哲郎^{1,2}、浅原 千鶴²、土田 秀次¹ (1.京大院工、2.東レリサーチセンター)

[20a-D62-2]

超音波エコーを利用した水中における重粒子線飛跡可視化の研究

○小林 正規¹、奥平 修¹、鹿園 直哉²、寺沢 和洋³、小平 聡⁴、岡田 長也⁵ (1.千葉工大惑星研、2.量研関西、3.慶応大医、4.量研放医研、5.本多電子株式会社)

[20a-D62-3]

フォトンカウンティング CT を用いて測定した H, C, O の線減弱係数

○長橋 龍河¹、古川 修平¹、星 和志¹、長谷部 有希¹、鈴木 宏輔¹、取越 正己²、櫻井 浩¹ (1.群馬大理工、2.量研)

[20a-D62-4]

PHITSシミュレーションを用いたフォトンカウンティングCT画像の解析

○江坂 怜¹、星 和志¹、長谷部 有希¹、鈴木 宏輔¹、松村 彰彦²、取越 正己³、櫻井 浩¹ (1.群大院理、2.群大重粒、3.量研機構)

[20a-D62-5]

3DX線CTによるアルミダイキャスト内部構造の複合現実化

○加瀬 裕貴^{1,2}、西澤 潤一^{2,3,5}、都木 克之²、Ajith Bandarad⁴、渦永 裕介⁴、曾我 夏人^{3,4}、青木 徹^{1,2,3} (1.静岡大情、2.静岡大電子研、3.静岡大光医工、4.中央発明研究所、5.浜松医大Nx-CEC)

[20a-D62-6]

検出器応答パターンに基づくイメージング手法におけるイメージャーのジオメトリの最適化検討

○北山 佳治^{1,2}、野上 光博²、人見 啓太郎² (1.原子力機構、2.東北大工)

[20a-D62-7]

超重元素実験用シリコン半導体検出器の開発

○門叶 冬樹¹、森本 幸司²、加治 大哉²、ピエール ブリヨッテ²、武山 美麗¹、倉本 紘大¹、加藤 紘大¹、小杉 和正³、間嶋 拓也⁴、安田 啓介⁵ (1.山形大理、2.理研仁科加速器研究センター、3.浜松ホトニクス、4.京大院工、5.京府大)

[20a-D62-8]

重金属中に隠匿された核物質の現場検知技術に関する研究

○田辺 鴻典¹、米田 政夫²、藤 暢輔²、土屋 兼一¹、三澤 毅³、北村 康則³、相楽 洋⁴ (1.科警研、2.JAEA、3.京大、4.東工大)

[20a-D62-9]

J-PARC リニアックL3BTにおけるビームロスの研究

○中野 秀仁¹、守屋 克洋¹、宮尾 智章²、不破 康裕¹、劉 勇²、大谷 将士²、森下 卓俊¹ (1.原子力機構、2.高エネ研)

[20a-D62-10]

レーザー照射焦電結晶を用いた高強度小型中性子源設計のためのシミュレータ開発

○大上 楓真¹、阿保 智¹、若家 富士男¹、増澤 智昭²、三村 秀典² (1.阪大院基礎工、2.静大電研)

[20a-D62-11]

⁹⁰Sr分析に向けた酸化ストロンチウムの赤外域振動回転遷移の観測

○寺林 稜平¹、宮部 昌文²、望月 拓海³、富田 英生³、島添 健次¹、長谷川 秀一¹ (1.東大、2.JAEA、3.名大)

TOF-SIMS を用いたヌクレオチドの照射後解析

Post-irradiation analysis of a nucleotide by using TOF-SIMS

京大院工¹, ㈱東レリサーチセンター², [○]大田 哲郎^{1,2}, 浅原 千鶴², 土田 秀次¹Kyoto Univ.¹, Toray Research Center², [○]Tetsuro Ohta^{1,2}, Chizuru Asahara², Hidetsugu Tsuchida¹

E-mail: ohta.tetsuro.37c@st.kyoto-u.ac.jp

粒子線がん治療において、高速イオンビームが生体分子にどのような損傷を与えるかを理解することは極めて重要である。この損傷を調べるために、FT-IR などの分光学的手法を用いた生体分子標的の照射後解析が行われてきた。[1] FT-IR や XPS を用いた結合状態解析は、イオンビーム照射による生体分子の化学構造変化を局所的に明らかにすることができる。一方で DNA のような巨大分子の損傷においては DNA の単位構造であるヌクレオチドのうち、リン酸、糖、塩基の部位に分けた損傷の解析が望まれる。そこで本研究では、イオンビーム照射実験と有機材料の表面分析によく用いられる TOF-SIMS 法を組み合わせることで、イオンビーム照射後の生体分子損傷を解明するための新しいアプローチを実施した。

実験では、ヌクレオチド分子の試料としてウリジン-5'-リン酸 (UMP) を用いた。試料は UMP ニナトリウム塩粉末試薬を油圧プレスでペレット化することにより作製した。4 MeV の C^{2+} イオンをペレトロン加速器で発生させ、真空中で試料に照射した。4 MeV C^{2+} イオンビーム照射後、試料を搬送して TOF-SIMS 測定を実施した。TOF-SIMS 測定では、一次イオンとして加速電圧 30 kV で加速した Bi_3^{2+} をペレット試料に照射し、放出された二次イオンを飛行時間型質量分析計で質量分析した。

Fig.1 は、4 MeV C^{2+} イオンビーム照射後または未照射の領域において測定した、TOF-SIMS による負イオンの二次イオン質量スペクトルである。縦軸の収量は一次イオン数で規格化した。質量スペクトルの特徴として、リン酸や塩基に由来するフラグメントが強く、一方、糖に由来するフラグメントの強度は比較的弱く検出された。いずれのフラグメントにおいても照射後のピーク強度は減少しているが、未照射領域における各フラグメントのピーク強度に対する減少率はフラグメントの種類毎に異なっており、例えば、 PO_3^- と $C_4H_3N_2O_2^-$ を比較すると $C_4H_3N_2O_2^-$ の減少率が高く、高速イオンビームによる損傷がより起きやすい可能性が示唆された。

[1] C. Mejia *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. B* **534**, 11 (2023).

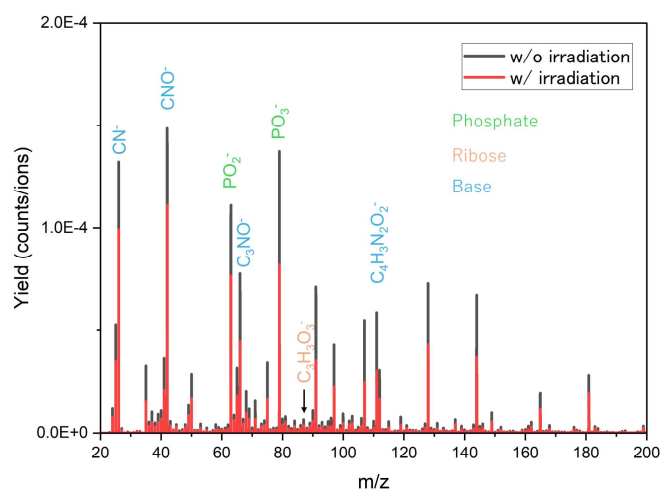


Fig. 1 Negative ion mass spectrum. Black: without irradiation, Red: with 4 MeV C^{2+} 1.0×10^{13} ions/cm²

超音波エコーを利用した水中における重粒子線飛跡可視化の研究

Ultrasonographic visualization of heavy ion particle track in water

千葉工大惑星研¹, 量研関西², 慶応大医³, 量研放医研⁴, 本多電子(株)⁵

○小林 正規¹, 奥平 修¹, 鹿園 直哉², 寺沢 和洋³, 小平 聡⁴, 岡田 長也⁵

Chiba Institute of Technology¹, QST-KPSI², Keio Univ.³, QST-NIRS⁴, Honda Electronics Co., Ltd.⁵,

○Masanori Kobayashi¹, Osamu Okudaira¹, Naoya Shikazono², Kazuhiro Terasawa³,

Satoshi Kodaira⁴, Nagaya Okada⁵

E-mail: kobayashi.masanori@it-chiba.ac.jp

本研究では、水中に重粒子線を照射した際、超音波エコーによって可視化される現象についてその機序について解明するために実験を行ってきた。

医学物理の分野では水ファントム(水を入れた水槽)に粒子線を照射して、そのブラッグピークの位置から発生する「音響波」を検出・測定する研究が国内外で活発に行われている。一方本研究では、粒子線が照射された水中で「音響波」ではなく、「音響波」を発している部分を検出しようという試みである。これは粒子線が水中でエネルギーを損失することで局所的な温度の上昇や密度の変化があるとすれば、音響伝播的に変化が見られるのではないかという発想からきている。

これまでに量研HIMACの共同利用研究のマシントイムを利用してFe500MeV/n ビームを照射した水槽を超音波診断装置と同等の装置を使って照射位置をモニターした。その実験の様子と、得られた超音波画像の例を Fig.1 に示す。本講演では、研究の経緯やこれまでに得られた結果を報告する。水中の粒子線の飛跡を可視化することは医療分野にも大きなインパクトがあり、将来の応用に向けた研究の意義は高い。また、「水」と「超音波エコー」という組み合わせで粒子線の飛跡を可視化する新しいタイプの放射線検出器を開発できる可能性もある。

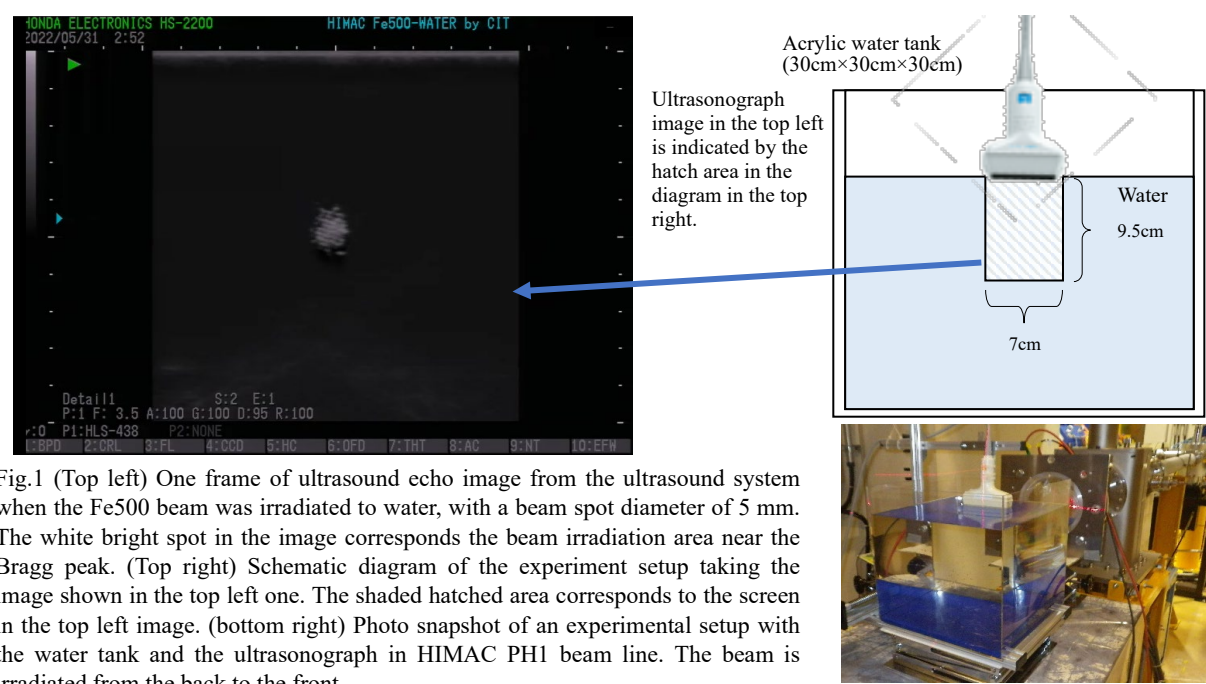


Fig.1 (Top left) One frame of ultrasound echo image from the ultrasound system when the Fe500 beam was irradiated to water, with a beam spot diameter of 5 mm. The white bright spot in the image corresponds the beam irradiation area near the Bragg peak. (Top right) Schematic diagram of the experiment setup taking the image shown in the top left one. The shaded hatched area corresponds to the screen in the top left image. (bottom right) Photo snapshot of an experimental setup with the water tank and the ultrasonograph in HIMAC PH1 beam line. The beam is irradiated from the back to the front.

フォトンカウンティング CT を用いて測定した H, C, O の線減弱係数

Linear attenuation coefficient of H, C, O measured by photon counting CT

群馬大院理工¹, 量子科学技術研究開発機構² ◯(M1)長橋 龍河¹, 古川 修平¹, 星 和志¹,
長谷部 有希¹, 鈴木 宏輔¹, 取越 正己², 櫻井 浩¹

Gunma University¹, QST² ◯Ryuga Nagahashi¹, Syuhei Furukawa¹, Kazushi Hoshi¹,
Yuki Hasebe¹, Kosuke Suzuki¹, Masami Torikoshi² and Hiroshi Sakurai¹

E-mail: t241d039@gunma-u.ac.jp

高エネルギーの X 線は透過率が高いため、現在では医療診断、非破壊検査、セキュリティ検査の分野で利用されている。従来の X 線イメージング技術では、強度情報を利用して形状の測定をすることは可能ではあるが、物質の種類を特定することは困難である^[1]。しかし、フォトンカウンティング CT を用いて物質の線減弱係数スペクトルを測定することによって、物質の特定が可能となる可能性がある。我々は、フォトンカウンティング CT を用いて、水、エタノール、酢酸およびそれらの混合溶液の線減弱係数スペクトルを測定・解析することによって、H, C, O など軽元素の組成が定量できることを報告した^[2]。ここで、解析における fitting の基底関数として H, C, O など軽元素の線減弱係数スペクトルが必要であるが、実験的に求めた H, C, O の軽元素の線減弱係数スペクトルを用いると定量精度が向上することを見出した。そこで本研究では H, C, O の線減弱係数スペクトルについて、測定と NIST の XCOM データベース^[3]の値と比較することを目的とする。

Fig.1 は実験で求めた H, C, O の減弱係数と NIST の XCOM データベースとの比較である。C、O 減弱係数スペクトルでは、概ね測定と XCOM データベースは一致する。一方、H の減弱係数は低エネルギー側で測定値が大きい。

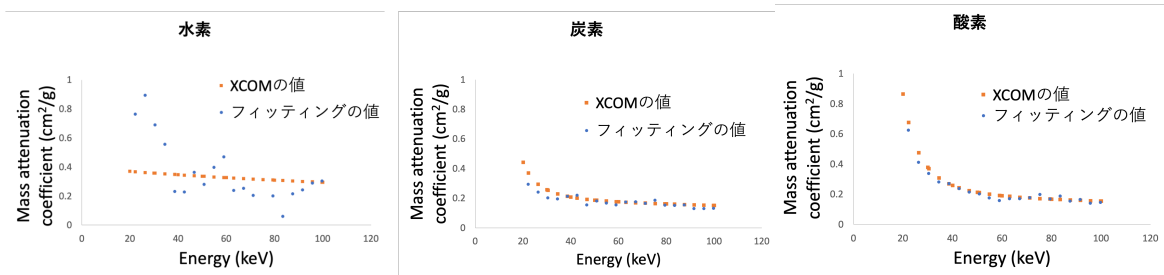


Fig.1 Comparison of H, C, O attenuation coefficients with the XCOM database

[1]R. E. Alvarez and A. Macovski, Energy selective reconstructions in x-ray computerized tomography, Phys. Med. Biol. 21, 733-744 (1976).
[2]古川 修平、長橋 龍河、長谷部 有希、星 和志、鈴木 宏輔、取越 正己、櫻井 浩, [25p-12E-9]フォトンカウンティング CT を用いた元素分離, 2024 年第 71 回応用物理学会春季講演会、2024 年 3 月、東京都市大学
[3] M. J. Berger, J. H. Hubbell, S. M. Seltzer, J. Chang, J. S. Coursey, R. Sukumar, D. S. Zucker and K. Olsen, (2010), NIST Standard Reference Database 8 (XGAM) [<https://www.nist.gov/pml/xcom-photon-cross-sections-database>]

PHITS シミュレーションを用いた フォトンカウンティング CT 画像の解析

Analysis of Photon-Counting CT Images Using PHITS Simulation

群大院理¹, 群大重粒², 量研機構³ ○(M1) 江坂 怜¹, 星 和志¹, 長谷部 有希¹, 鈴木 宏輔¹,
松村 彰彦², 取越 正己³, 櫻井 浩¹

Gunma Univ.¹, GHMC², QST³, ○Ren Ezaka¹, Kazushi Hoshi¹, Yuki Hasebe¹, Kosuke Suzuki¹,
Akihiko Matsumura², Masami Torikoshi³, Hiroshi Sakurai¹

E-mail: t241d008@gunma-u.ac.jp

X 線 CT 画像におけるカップリングアーチファクトの原因は、X 線が物体を透過する際に起こるビームハードニング効果であり、フォトンカウンティング CT(PCCT)を用いればその効果は軽減されると考えられている。我々は PCCT を用いた測定から、Binning 幅 4.1 keV 程度まで狭くすればカップリングアーチファクトが軽減されることを報告した[1]。そこで、本研究では、PHITS(Ver.3.32)シミュレーションを用いて CT 画像を生成し Binning 幅 4.1 keV および Binning 幅 14.6 keV におけるカップリングアーチファクトを検討した。さらに、単色 X 線におけるカップリングアーチファクトを検討した。Fig.1 は直径 5 mm の Al 円柱を想定して PHITS シミュレーションを用いて生成した CT 画像である。入射 X 線が

20 keV 以上 (22.1 keV) においては、Binning 幅 14.6 keV (Fig.1(a)) では中心付近の線減弱係数が減少するカップリングアーチファクトが見られる。Binning 幅 4.1 keV(Fig.1(b)) ではカップリングアーチファクトが見られない。これは、実験[1]を再現する。さらに、入射 X 線が 14.5 keV(Fig.1(c))になると、Binning 幅 4.1 keV でもカップリングアーチファクトが見られる。実験[1]でも同様の結果であった。そこで、入射 X 線を 14.0 keV の単色 (Fig.1(d)) として CT 画像を求めるとカップリングアーチファクトがみられることがわかった。入射 X 線の光子数を増加さ

せてシミュレーションするとカップリングアーチファクトが軽減することから、試料を透過する光子数が少ない場合はカップリングアーチファクトが生じると考えられる。

[1] 石崎 賢弥, 星 和志, 古川 修平, 長谷部 有希, 松村 彰彦, 取越 正己, 櫻井 浩, フォトンカウンティング CT におけるビームハードニング効果の検討 (オンライン), 2023 年第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 2023 年 9 月, 熊本大学

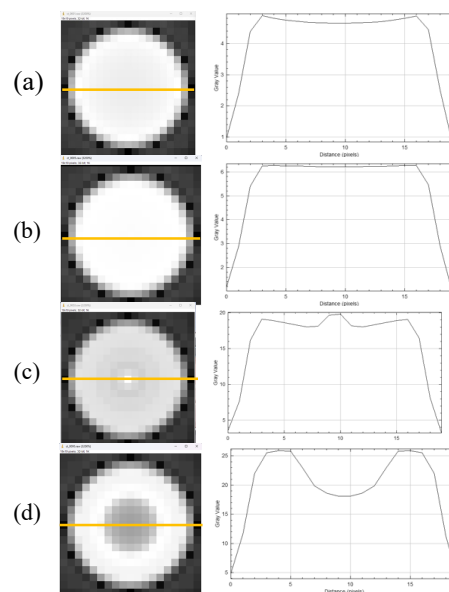


Fig.1 Simulated CT images of Al pillar. (a)CT image at 22.1 keV with a binning width of 14.6 keV. (b)CT image at 22.6 keV with a binning width of 4.1 keV. (c)CT image at 14.5 keV with a binning width of 4.1 keV. (d)CT image using 14.0 keV monochromatic X-rays.

3D X線 CT によるアルミダイキャスト内部構造の複合現実化

Mixed Reality Visualization of Internal Structures in Aluminum Die Castings Using 3D X-ray CT

静岡大情¹, 静岡大電子研², 静岡大光医工³, 中央発明研究所⁴, 浜松医大 Nx-CE0⁵

○加瀬 裕貴^{1,2}, 西澤 潤一^{2,3,5}, 都木 克之², Ajith Bandarad⁴, 湯永 裕介⁴, 曾我 夏人^{3,4},
青木 徹^{1,2,3}

Shizuoka Univ. Info.¹, Shizuoka Univ. R.I.E², Shizuoka Univ. M.P³, Chuo Hatsumei Inst.⁴,
Hamamatsu Univ. S.M.⁵

○Hiroki Kase^{1,2}, Junichi Nishizawa^{2,3,5}, Katsuyuki Takagi², Ajith Bandarad⁴, Yusuke Katanaga⁴,
Natsuhito Soga^{3,4}, Toru Aoki^{1,2,3}

E-mail: kase.hiroki@shizuoka.ac.jp

工業向け 3DX 線 CT を用いた検査は、欠陥検出、組立解析、計測、故障解析、リバースエンジニアリングなどへの手段として有効である。特に近年ではフォトンカウンティング X 線 CT によるエネルギー情報を使用した特性評価や組成情報に応じてセグメンテーションを行うなど、新たな評価方法が確立されている。一方で、アルミダイキャスト部品における欠陥部分などの形状は、図 1 に示されるように従来の多断面再構成(MPR)像やサーフェスレンダリングを使用した場合でも、中に空洞があるようなモデルの場合、各軸方向からの欠陥の構造は把握可能であるが、モデルの内部にある欠陥の三次元構造について全体を把握することが難しい。我々の研究では、これまでに 3DX

線 CT で撮像された物体の内部構造を複合現実(MR)にて表現し、空間再現ディスプレイとモーションキャプチャーを組み合わせ、立体視をしながらも直感的な操作で内部構造が空間的に把握できるようなシステムを提案してきた。本研究では、工業向け 3DX 線 CT にて撮像された部品について欠陥部分の構造を、MR を用いて容易に空間的に表現することを試みる。アルミダイキャスト部品のサンプルを用意し、表層部分・内部のクラックの表示に適した閾値を設定した二種類のモデルを用意し、図 2 のように半透明に色分けをして重ね合わせた上で断面に DICOM から生成した MPR 像を断面の位置・角度に応じて貼り付けることで内部構造が把握できるようなシステムを提案した。

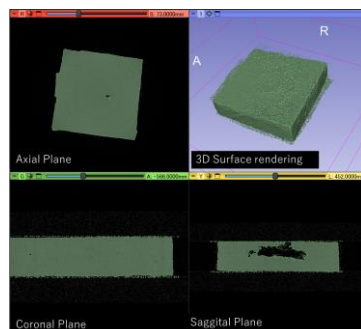


Fig1. Representation of data from 3D X-ray CT imaging of aluminum die-cast components

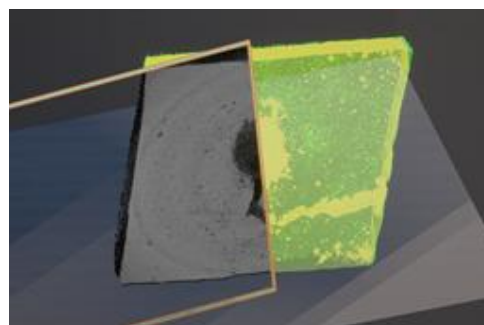


Fig2. Surface-rendered models and boundary surfaces represented in mixed reality.

検出器応答パターンに基づくイメージング手法における
イメージャーのジオメトリの最適化検討

Optimization Study on Imager Geometry in Imaging Methods Based on
Detector Response Patterns

原子力機構¹, 東北大工² °北山 佳治^{1,2}, 野上 光博², 人見 啓太郎²

JAEA.¹, Tohoku Univ.², °Yoshiharu Kitayama^{1,2}, Mitsuhiro Nogami², Keitaro Hitomi²

E-mail: kitayama.yoshiharu@jaea.go.jp

我々は、複数の検出器の応答強度パターンから、ガンマ線の入射方向を推定する手法に関する研究を続けている。本手法は空間に複数配置した遮蔽体と検出器で構成される全方位視野を持ったガンマ線イメージング技術である。見る角度によって、遮蔽体と検出器の奥行構造が異なるため、ガンマ線の入射方向によって測定される検出応答パターンが異なる。そのため、測定された検出器応答パターンからガンマ線の入射方向をアンフォールディングによって逆推定できる。

これまでのシミュレーションと実験によって得られた結果から、図 1 に示すように、ガンマ線の入射方向によってイメージング精度に大きな差が生じていることが分かってきた。ガンマ線源の位置によって、得られた結果の信頼性に違いが生じることになるため、結果の正確な解釈に支障をきたす。イメージング精度に影響を与える要因を検討した結果、イメージャーの遮蔽体と検出器の配置（ジオメトリ）が強く影響していることがわかってきた。特に、検出器の応答パターンのコントラストが低下するような方向においてイメージング精度が極端に悪化していることが分かった。そこで本研究では、イメージャーのジオメトリを、検出器の応答パターンのコントラストという観点から修正し、その結果イメージング精度の向上が確認されたことを報告する。

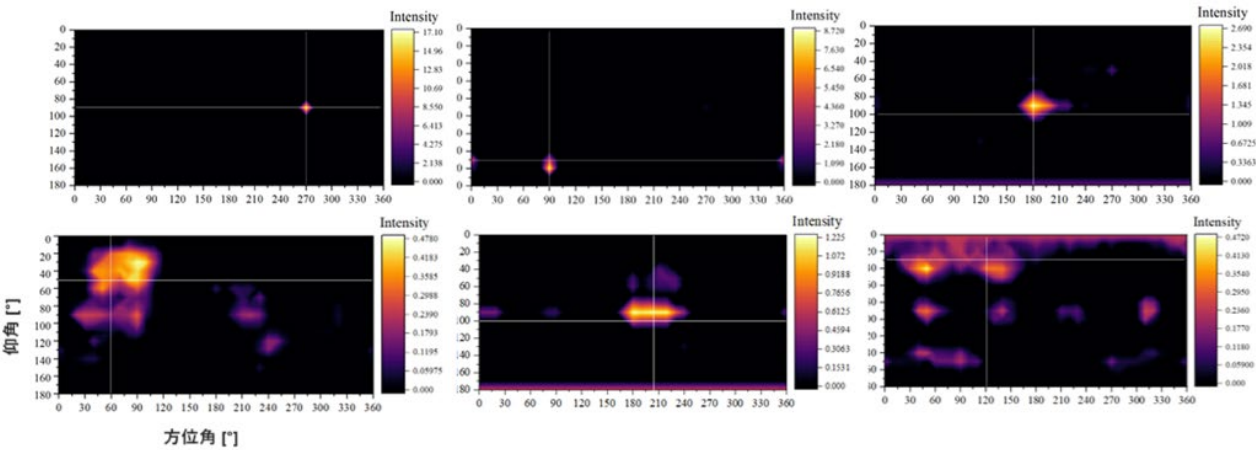


図1. 線源位置によるイメージング精度の違いを示したイメージングシミュレーションの結果。
二本の直線の交点が真の線源位置。

超重元素実験用シリコン半導体検出器の開発

Development of silicon solid-state detectors for super heavy element experiment

○門叶 冬樹¹、森本 幸司²、加治 大哉²、Pierre Brionnet²、武山 美麗¹、倉本 幸作¹、

加藤 紘大¹、小杉 和正³、間嶋 拓也⁴、安田 啓介⁵

山形大理¹、理研仁科加速器研究センター²、浜松ホトニクス³、京大院工⁴、京府大⁵

°Fuyuki Tokanai¹, Kouji Morimoto², Daiya Kaji², Pierre Brionnet², Mirei Takeyama¹,

Kosaku Kuramoto¹, Koudai Kato¹, Kazumasa Kosugi³, Takuya Majima⁴, Keisuke Yasuda³

Yamagata Univ.¹, RIKEN Nishina Center for Accelerator-Based Science²,

Hamamatsu Photonics K. K.³, Kyoto Univ.⁴, Kyoto Pref. Univ.⁵

E-mail: tokanai@sci.kj.yamagata-u.ac.jp

原子番号が 103 より大きい元素は超重元素と呼ばれる。理化学研究所では、入射ビームと標的との核融合反応により生成された超重元素を気体充填型反跳分離機 (GARIS-II, III : 図 1 左) を用いて入射ビームや副生成粒子から分離し、焦点面に設置された検出器によって収集する手法を用いて超重元素の研究が行われている[1,2]。GARIS の焦点面検出器は飛行時間検出器と両面シリコンストリップ検出器(DSSD)およびその側面を 4 台のピクセル型 Si 半導体検出器(pixel-SSD)で囲んだ Si-Box で構成されている (図 1 右)。DSSD では、DSSD に打ち込まれた超重元素やその連鎖 α 崩壊および自発核分裂事象の位置、時間、エネルギー情報が観測される。pixel-SSD は、崩壊の際に DSSD から飛び出した α 粒子や核分裂片といったエスケープ事象を検出し、超重元素の核種同定の精度を高める役目を担っている。

我々は、超重元素の核種同定の精度向上を目的に、Si-box の DSSD およびそれを取り囲む全ての pixel-SSD に、不感層の薄い新しい Si 半導体検出器を導入する。DSSD は 123 mm×60 mm の有効面積を持ち、X 方向に 1.9 mm ピッチで 64 本、Y 方向に 0.94 mm ピッチで 64 本の電極がそれぞれ構成されている。側面用の pixel-SSD は 60 mm×60 mm の有効面積を持ち、16 チャンネル (4×4) にピクセル化された電極を持つ。上下面用の pixel-SSD は 123 mm×60 mm の有効面積を持ち、その電極は 32 チャンネル (8×4) にピクセル化されている。本発表では超重元素実験用シリコン半導体検出器開発の現状について報告する。

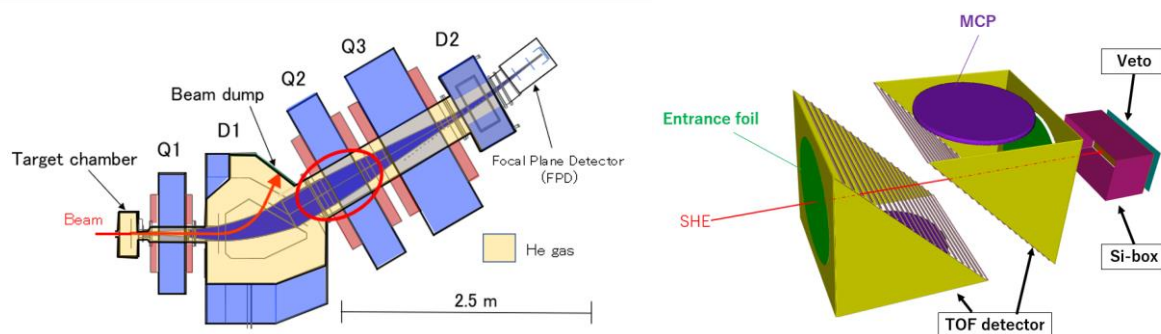


Fig.1 Schematic view of GARIS-III (left) and a focal plane detection system for GARIS-II and GARIS-III (right).

参考文献

[1] H. Sakai, H. Haba, K. Morimoto and N. Sakamoto, Eur. Phys. J. A 58, 238 (2022).

[2] D. Kaji, K. Morimoto, N. Sato, A. Yoneda and K. Morita, Nucl. Instrum. Meth. B 317, 311 (2013).

重金属中に隠匿された核物質の現場検知技術に関する研究

Study of on-site detection technique for nuclear materials concealed in heavy metals

科学警察研究所¹, 日本原子力研究開発機構², 京都大学³, 東京工業大学⁴ ○田辺 鴻典¹,

米田 政夫², 藤 暢輔², 土屋 兼一¹, 三澤 毅³, 北村 康則³, 相楽 洋⁴

Natl. Res. Inst. of Police Sci.¹, JAEA², Kyoto Univ.³, Tokyo Tech.⁴ Kosuke Tanabe¹, Masao Komeda²,

Yosuke Toh², Ken'ichi Tsuchiya¹, Tsuyoshi Misawa³, Yasunori Kitamura³, Hiroshi Sagara⁴

E-mail: tanabe@nrips.go.jp

近年、CBRNE テロに代表される国際テロリズムの脅威の高まりを背景に、核セキュリティ体制強化へ向けた流れが世界的に加速している。核物質の不法移転の検知を目的として、各国で核物質の非破壊測定 (NDA) 技術の開発が進められているが、依然として重金属中に隠匿された核物質の現場レベルでの検知は困難な状況にある。高濃縮化することで大量破壊兵器として用いられる可能性が高い ^{235}U は、自発核分裂が少なく、放出されるガンマ線のエネルギーも低いため、簡単な遮蔽を施されるだけでパッシブ型の NDA 装置による検知が不可能となる。

アクティブ型の NDA 手法は、隠匿された核物質の検知に適しており、パッシブ法に比べ感度も高い有望な手法であるが、非常に高価で重厚かつ大型な装置を必要とする上、現場運用に適した外部放射線源も存在しないことから、計量管理等を目的とした据置型の利用に適用範囲が限られていた。そこで我々は、回転照射法と呼ばれる新たなアクティブ中性子法を提案し、本手法による核物質検知を実証した¹⁾。回転照射法による核物質検知装置は、主に中性子線源を回転させる回転照射装置と中性子検出器で構成される。3.7 MBq の ^{252}Cf 線源 (表示付認証機器) の使用を想定しているため、測定感度向上には高い検出効率を有する中性子検出器の使用が必須となる。我々は、中性子検出用の物質として水に着目し、回転照射法に特化した水チェレンコフ中性子検出器 (WCND) を新たに開発した。ガンマ線との弁別には波高弁別法を採用し、従来の ^3He 検出器に対して、低コストかつ高感度な中性子検出を実現した²⁾。本研究では、鉛板で遮蔽された濃縮ウラン試料に対して、WCND を用いた回転照射法を適用し、核物質検知可否の検証を行った (Fig. 1)。最も高いガンマ線検出感度を有するパッシブ型検出器の一つである可搬型ゲルマニウム半導体検出器による測定も実施し、両手法の比較も行ったので、結果を報告する。

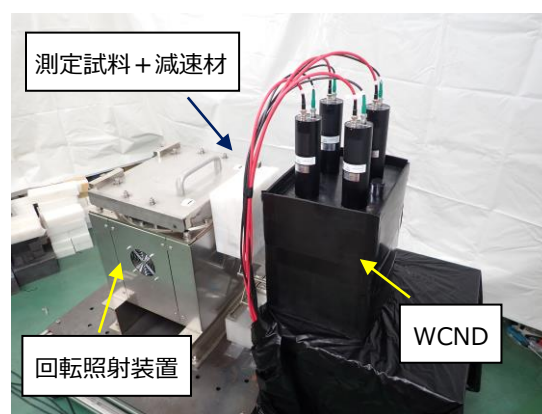


Fig. 1 実験セットアップ

【謝辞】本研究は JSPS 科研費 JP20K15213, JP24K17638 の助成を受けたものです。

1) M. Komeda, Y. Toh, K. Tanabe et al., Ann. Nucl. Energy, **159** 108300, 2021.

2) K. Tanabe, M. Komeda, Y. Toh et al., J. Nucl. Sci. Technol., **60**(7) 769-781, 2022.

J-PARC リニアック L3BT におけるビームロスの研究

Study of Beam Losses at J-PARC Linac L3BT

原子力機構¹, 高エネ研²,

○中野 秀仁¹, 守屋 克洋¹, 宮尾 智章², 不破 康裕¹, 劉 勇², 大谷 将士², 森下 卓俊¹

JAEA¹, KEK²,

○Hideto Nakano¹, Katsuhiko Moriya¹, Tomoaki Miyao², Yasuhiro Fuwa¹, Yong Liu², Masashi Otani²,

Takatoshi Morishita¹

E-mail: hnakano@post.j-parc.jp

大強度陽子加速器施設 (J-PARC) は、素粒子・原子核物理、物性物理などの最先端の基礎研究、産業利用を目的とした研究施設である。ほぼ光速まで加速した世界屈指の大強度の陽子ビームから、中性子、ミュオン、ニュートリノ、K 中間子などの多彩な二次粒子ビームを作り出し、多種多様な実験を行っている。計測精度の向上、稀な現象の発見、実験の効率化に向けて更なる大強度化に対する要求が高まっている。中性子、ミュオン実験に用いる新しい核破碎中性子源では既設中性子源と併せて 1.5MW、放射性廃棄物の核変換に期待されている加速器駆動未臨界炉では 30MW と、1MW 超のビーム出力が要求されている。加速器の大強度化にあたって、陽子ビーム輸送中にロスした粒子が加速器内部の壁との接触で発生する放射線が大きな障壁の一つになる。具体的な問題としては、機器の放射化と構成機材の劣化が挙げられる。J-PARC の初段加速器にあたるリニアックでは、リニアックから後段の加速器である 3GeV シンクロトロンへの輸送ライン L3BT(Linac to 3GeV Synchrotron Beam Transport line) が特に残留放射能が多い場所の 1 つである。正しく加速されなかった粒子や粒子間の相互作用などにより電氣的に中性になってしまった粒子など、様々な要因で後段のビームラインに輸送されない粒子が存在する。これらの粒子のほとんどは、リニアックの直線部から最初にビームが曲げられる箇所である L3BT で、ビームパイプ等の構成機器に衝突し放射化を引き起こす。

本研究では J-PARC リニアック L3BT におけるビームロスを評価するために、残留線量の調査と PHITS による粒子輸送シミュレーションを行った。具体的には、上流から数えて 1 台目の偏向電磁石周辺で調査を行った。リニアック L3BT の中でもビームが曲げられる最初の箇所である。残留線量の調査では 1 週間毎に実施されるメンテナンス日に、1 週間のビーム運転による放射化を測定し線量分布を調査した。PHITS でのシミュレーションではビームラインを模した体系で陽子ビームを発生させ、ビームパイプ等との相互作用により発生した 2 次粒子を計算した。本講演ではこれらの結果について報告、議論する。

レーザー照射焦電結晶を用いた高強度小型中性子源設計のためのシミュレータ開発

Simulator for designing high-intensity small neutron source using pyroelectric crystal heated by laser light

阪大院基礎工¹, 静大電研² ○大上 楓真¹, 阿保 智¹, 若家 富士男¹, 増澤 智昭², 三村 秀典²

Osaka Univ.¹, Shizuoka Univ.², ○F. Ooue¹, S. Abo¹, F. Wakaya¹, T. Masuzawa², H. Mimura²

E-mail: u959364c@ecs.osaka-u.ac.jp

我々のグループでは焦電結晶を用いた超小型中性子源実現に向けて研究を行っている [1,2]。Fig. 1 にこの中性子源の構造を示す。D₂ ガスを導入したチャンバー内に電極板二枚を平行に設置し、一方の電極板内側に焦電結晶を取り付け、他方の電極に D-polymer を塗布した。これまでに、中性子の発生は確かめられているが、発生強度が小さいことが問題である [2]。様々なパラメータで実験したが、高強度化の最適条件は見つかっていない。中性子発生までに多くのプロセスを経ており、それぞれのプロセスの内部状態を測定できないためである。そこで、本研究では、高強度化の最適な条件を見つけることを目的として、中性子発生数を計算するシミュレータの開発を行った。

想定している中性子発生までのプロセスは次の通りである。1. 焦電結晶をレーザーで加熱することで分極が減少。2. 焦電結晶表面の補償電荷が過剰になり電界が発生。3. 過剰な補償電荷 (X⁺) の一部が電界により脱離。4. X⁺ と D₂ が散乱して D⁺ が発生。5. 発生した D⁺ も電界により加速。6. D⁺ が高エネルギーで D-polymer と衝突し、D-D 反応で中性子が発生。この中性子源内の粒子の数は非常に多く、計算すべき体積も大きいので、すべての粒子の運動を計算することは難しい。そこで、1 から 3 のプロセスは実験結果からモデル化、4 と 5 のプロセスはモンテカルロ法、6 は核反応断面積を用いた計算法、これらを組み合わせて中性子発生数を計算するシミュレータを開発した。時間のかかるモンテカルロ計算を事前に行い発生電圧毎のイオン散乱回数を求めデータベース化することで、実験では 1 条件の計測に数時間を要していたのに対して、本シミュレータを用いることで数秒で中性子発生数を計算することが可能になった。今後は開発したシミュレータを用いて、条件を変えながら中性子発生数を計算して高強度化のための最適な条件を求める。

【謝辞】 本研究の一部は、生体医歯工学共同研究拠点の支援を受けたものです。

[1] 阿保他, 第 69 回春季応用物理学会, 22p-E304-5 (2022)

[2] 大上他, 第 33 回日本 MRS 年次大会, F-O14-012 (2023)

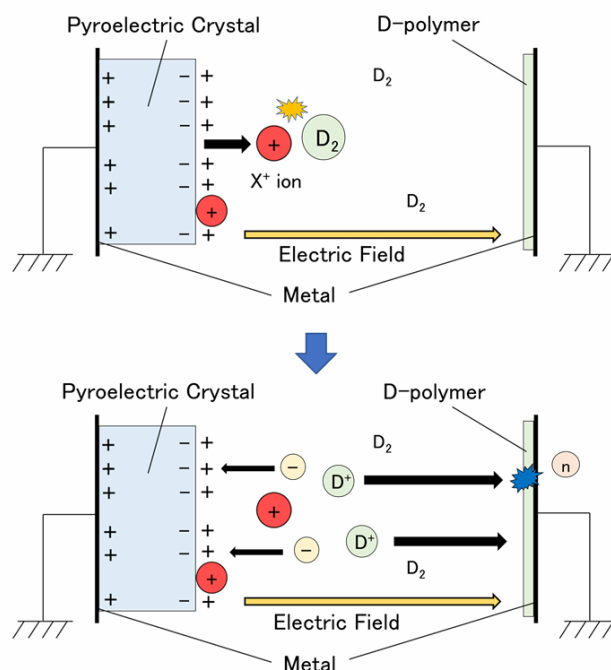


Fig. 1: Neutron source structure and principle of neutron generation

^{90}Sr 分析に向けた酸化ストロンチウムの赤外域振動回転遷移の観測

Observation of rovibrational transitions in the infrared region of strontium oxide for ^{90}Sr analysis

東大¹, JAEA², 名大³ ○寺林 稜平¹, 宮部 昌文², 望月 拓海³, 富田 英生³, 島添 健次¹,
長谷川 秀一¹

UTokyo¹, JAEA², Nagoya Univ.³, ○Ryohei Terabayashi¹, Masabumi Miyabe², Takumi Mochizuki³,
Hideki Tomita³, Kenji Shimazoe¹, Shuichi Hasegawa¹

E-mail: terabayashi@tokai.t.u-tokyo.ac.jp

1. 諸言 ストロンチウム 90 (^{90}Sr) は半減期 28.8 年の β 崩壊核種であり、福島第一原子力発電所事故で環境中に放出された主要な放射性核種の一つある。放射線計測や質量分析に基づく分析法に対し、本研究ではより簡便・迅速かつ現場に近いところで分析が可能な新たな ^{90}Sr 分析法の開発を目指し、光共振器により感度を強化した高感度レーザー吸収分光であるキャビティリングダウン分光法 (Cavity Ring-Down Spectroscopy: CRDS) に基づく手法の開発を進めている。 ^{90}Sr 原子に対する分光に対し、 ^{90}Sr を含む安定な分子を対象にしたレーザー分光が行えれば、分子由来の大きな同位体シフトを利用し、超高真空系を必要としない系での ^{90}Sr 分析実現が期待できる。そこで本研究では一酸化ストロンチウム (SrO) の赤外域遷移 (A-X バンド) に着目し、 ^{90}SrO の吸収を CRDS により選択的に分析する手法を提案する。このための基礎検討として、安定 SrO の A-X バンド帯吸収を観測し、得られた吸収スペクトルを計算と比較したうえで、 ^{90}SrO 吸収スペクトルを予測した。

2. SrO A-X(1,0)バンド吸収遷移の観測

SrO の A-X バンド遷移のうち、振動量子数 $v=0$ から $v=1$ に変化する遷移: (1,0)バンド (870 nm 帯) をターゲットとし、870 nm 帯で CRDS の実験体系を構築した。CRDS のガスセル内で直流グロー放電により SrO を生成、気体状化し SrO 吸収スペクトルを観測する実験を行った。得られた結果のうち、A-X(1,0)バンドヘッド領域について、ダンハム展開による遷移計算により予測されたスペクトルとともに図 1 に示す。 $^{88}\text{SrO} \cdot ^{87}\text{SrO} \cdot ^{86}\text{SrO}$ の各遷移について、 SrO 試料がセル内にある場合のみ試料なしの場合には観測されなかった特異なピークが得られ、その位置は計算とおおむね一致した。一方、最も存在量の少ない ^{84}SrO 遷移や上述した分子種の一部の回転遷移については、試料を導入していない場合にも見られた大きなバックグラウンドピークに埋もれ、観測することができなかった。これは直流グロー放電により生成された何らかの物質に由来するものであると考えられるが、その同定には至っていない。今後、由来の同定を進めるとともに、直流グロー放電に代わる SrO 分子源の開発を進める計画である。また、実験結果をもとに ^{90}SrO の吸収について計算により予測することができた。今後、 ^{90}Sr 試料を用いた実験により、 ^{90}SrO 吸収の観測を目指す。

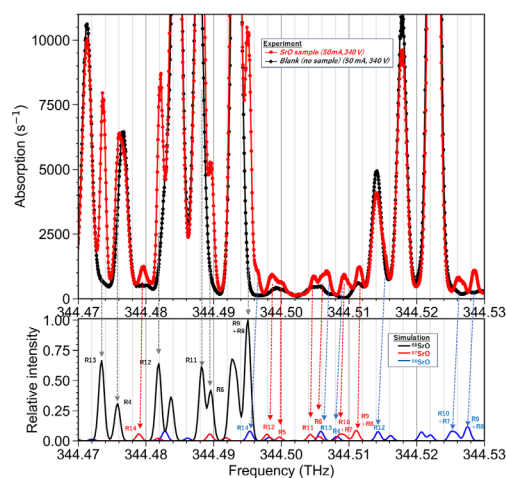


Fig. 1 A-X(1,0)バンドヘッド領域

謝辞: 本研究は、JSPS 科研費・学術変革領域研究 B (22H05021) の助成を受けたものです。また本成果の一部には中部電力公募研究 (R3-R4 年度) の成果を含みます。

2 放射線 | 一般セッション(口頭講演): 2.4 医用応用

[17a-D62-1~7] 2.4 医用応用

[17a-D62-1]

コンプトンカメラを用いた ^{177}Lu オキシドトレオチドに含まれる $^{177\text{m}}\text{Lu}$ の同定○溝口 孝大¹、渡辺 宝¹、加納 大輔²、榎本 良治¹、片桐 秀明³、加賀谷 美佳⁴、塚本 ひかり¹、福本 仁也¹、村石 浩¹ (1.北里大院医、2.国がん東病院、3.茨城大、4.仙台高専)

[17a-D62-2]

回転型全方向コンプトンカメラにおけるML-EM画像再構成：広がった線源のイメージング

○福本 仁也¹、村石 浩¹、榎本 良治¹、片桐 秀明²、加賀谷 美佳³、渡辺 宝¹、坂口 和也¹、溝口 孝大¹、塚本 ひかり^{1,4}、加納 大輔⁵ (1.北里大院医、2.茨城大理、3.仙台高専、4.東海大病院、5.国がん東病院)

[17a-D62-3]

Lu-177放射能汚染イメージングのための高感度コンプトンカメラの開発

○(D)塚本 ひかり^{1,5}、村石 浩¹、榎本 良治¹、片桐 秀明²、加賀谷 美佳³、渡辺 宝¹、加納 大輔⁴、溝口 孝大¹、福本 仁也¹、渡邊 祐介¹ (1.北里大院医、2.茨大理、3.仙台高専、4.国がん東病院、5.東海大病院)

[17a-D62-4]

ゲル線量計を用いた4次元線量分布評価の予備的実験

○(DC)成田 亮介¹、神戸 正雄²、林 慎一郎³、櫻井 良憲⁴ (1.京大院工、2.阪大産研、3.広国大、4.京大複合研)

[17a-D62-5]

肝疾患評価を目指したフォトンカウンティングCTによる脂肪肝ラットの生体外イメージング

○(M2)供田 崇弘¹、有元 誠¹、佐藤 大地²、Fitri Lucyana¹、伊藤 優希¹、大島 美礼¹、古田 優¹、川嶋 広貴¹、小林 聡¹、奥村 健一郎¹、片岡 淳³、皆川 遼太郎³、寺澤 慎祐⁴、塩田 諭⁴ (1.金沢大学、2.東北大学、3.早大理工、4.プロテリアル)

[17a-D62-6]

MPPCを用いたフォトンカウンティングCTによるプラチナ系抗がん剤評価

○(B)古田 優¹、有元 誠¹、供田 崇弘¹、Fitri Lucyana¹、大島 美礼¹、伊藤 優希¹、川嶋 広貴¹、小林 聡¹、奥村 健一郎¹、小野田 輝²、田中 海成²、田中 智博²、上田 真史²、片岡 淳³、皆川 遼太郎³、佐藤 大地⁴、寺澤 慎裕⁵、塩田 諭⁵ (1.金沢大、2.岡山大、3.早稲田大、4.東北大、5.プロテリアル)

[17a-D62-7]

Preliminary evaluation of dynamic imaging results of contrast agent sample using a 2-dimensional MPPC-based photon counting CT detector system

○(M2)Fitri Lucyana¹、Makoto Arimoto¹、Takahiro Tomoda¹、Minori Oshima¹、Yu Furuta¹、Hiroki Kawashima¹、Satoshi Kobayashi¹、Kazuhiro Murakami¹、Kenichiro Okumura¹、Jun Kataoka²、Ryotaro Minagawa²、Daichi Sato³、Shinsuke Terazawa⁴、Satoshi Shiota⁴ (1.Kanazawa Univ., 2.Waseda Univ., 3.Tohoku Univ., 4.Proterial Ltd.)

コンプトンカメラを用いた ^{177}Lu オキシドトレオチドに含まれる $^{177\text{m}}\text{Lu}$ の同定

Identification of $^{177\text{m}}\text{Lu}$ in ^{177}Lu -oxodotreotide using Compton camera

北里大院医¹, 国がん東病院², 東大宇宙線研³, 茨大理⁴, 仙台高専⁵, 東海大病院⁶

○溝口 孝大¹, 渡辺 宝¹, 加納 大輔², 榎本 良治^{1,3}, 片桐 秀明⁴,

加賀谷 美佳⁵, 塚本 ひかり^{1,6}, 福本 仁也¹, 村石 浩¹

Kitasato Univ.¹, NCCHE², Univ. of Tokyo ICRR³, Ibaraki Univ.⁴,

NIT, Sendai Col.⁵, Tokai Univ. Hosp⁶

○Takahiro Mizoguchi¹, Takara Watanabe¹, Daisuke Kano², Ryoji Enomoto³, Hideaki Katagiri⁴,

Mika Kagaya⁵, Hikari Tsukamoto^{1,6}, Masaya Fukumoto¹, Hiroshi Muraishi¹

E-mail: mizoguchi.takahiro@st.kitasato-u.ac.jp

2021年に薬事承認を取得して以来、ルテチウムオキシドトレオチド(^{177}Lu)によるRI内用療法が盛んに実施されている。日本では、 ^{177}Lu の放射性廃棄物はクリアランスレベル以下であることを確認し、一般廃棄物として廃棄できる。しかし、実際の臨床現場ではクリアランスレベル以下まで放射能が減少せずに廃棄できない問題が生じている。我々は先の学会で ^{177}Lu の放射性廃棄物に $^{177\text{m}}\text{Lu}$ が含まれる可能性を示した。本研究では3.5 cm角CsI(Tl)オクタヘドロン型コンプトンカメラを用いて、300 keV以上の γ 線を測定することで放射性廃棄物に含まれる ^{177}Lu 以外の核種について調査した。測定対象として、納品後85日経過している薬剤を準備した。線源-検出器間距離を25 cmとし、73分間測定した。 ^{177}Lu の測定に倣って、208 keV γ 線の画像再構成を実施すると薬剤方向と一致するピークを確認した。続いて、先の学会で指摘した $^{177\text{m}}\text{Lu}$ の存在を調査するために378, 419 keVの画像再構成を実施すると、両者とも薬剤方向と一致したピークを示した(Fig. 2)。 ^{177}Lu (半減期: 6.7日)の精製過程で $^{177\text{m}}\text{Lu}$ (半減期: 160日)が約0.1%混入することをもとに計算すると、およそ70日経過時点で $^{177\text{m}}\text{Lu}$ の割合が ^{177}Lu を上回り、85日時点では $^{177}\text{Lu} : ^{177\text{m}}\text{Lu} = 1:5$ で存在する。さらに $^{177\text{m}}\text{Lu}$ も208 keV γ 線を放出することが知られている。以上のことから、画像再構成を実施した γ 線のほとんどは $^{177\text{m}}\text{Lu}$ に起因しており、その存在が示された。本結果より、廃棄物にも $^{177\text{m}}\text{Lu}$ が存在する可能性が高い。今後、実際の廃棄物を測定予定であり、その結果についても報告する予定である。

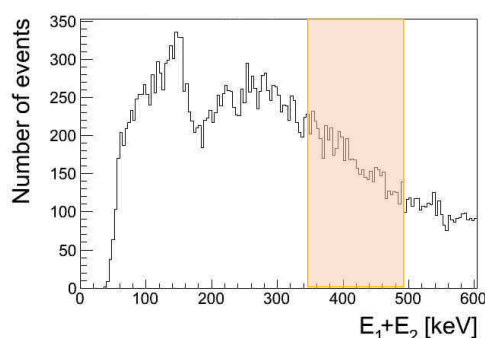


Fig.1 Energy Spectrum

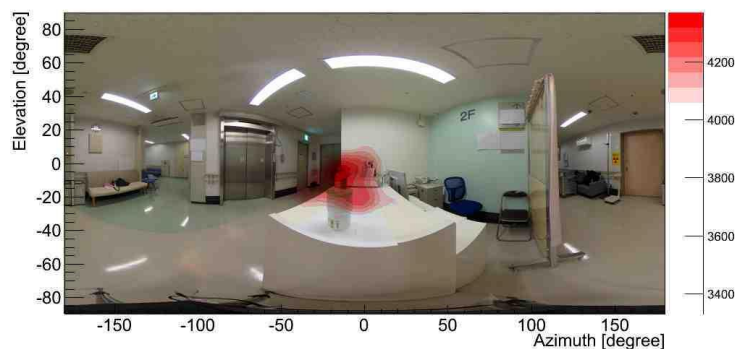


Fig.2 419 keV gamma-ray image superimposed on optical image

回転型全方向コンプトンカメラにおける ML-EM 画像再構成 : 広がった線源のイメージング

ML-EM image reconstruction in a rotating omnidirectional Compton camera

: Extended radiation source imaging

北里大院医¹, 茨城大理², 仙台高専³, 東海大病院⁴, 国がん東病院⁵

○(M2) 福本 仁也¹, 村石 浩¹, 榎本 良治¹, 片桐 秀明², 加賀谷 美佳³,

渡辺 宝¹, 坂口 和也¹, (D2) 溝口 孝大¹, (D1) 塚本 ひかり^{1,4}, 加納 大輔⁵

Kitasato Univ.¹, Ibaraki Univ.², NIT Sendai College³, Tokai Univ. Hospital⁴, NCCHE⁵

○(M2) Masaya Fukumoto¹, Hiroshi Muraishi¹, Ryoji Enomoto¹, Hideaki Katagiri², Mika Kagaya³,

Takara Watanabe¹, Kazuya Sakaguchi¹, (D2) Takahiro Mizoguchi¹,

(D1) Hikari Tsukamoto^{1,4}, Daisuke Kano⁵

E-mail: fukumoto.masaya@st.kitasato-u.ac.jp

福島原発事故で飛散した ^{137}Cs の汚染箇所の可視化や核医学施設等の低線量放射能汚染測定を目的として、我々ガンマアイグループでは、安価でカスタマイズ可能な回転型全方向コンプトンカメラ技術を提案し、3.5 cm 角 CsI(Tl)を6個用いたオクタヘドロン型コンプトンカメラの開発に成功した(Muraishi H, et al., JJAP, 2020)。本手法の特徴として、検出器を回転させながら測定し、鮮鋭化手法(X線CT等の再構成法の一つであるフィルタ補正逆投影法の応用)により、BG領域をゼロレベルに抑えたシフトインバリエントな画像取得が可能である。先の学会では、新たに反復的画像再構成手法として知られているコンプトンカメラ版の LM ML-EM (List-Mode Maximum-Likelihood Expectation-Maximization) (Wilderman et al., IEEE-NS, 2001)を本測定技術に適用し、点線源に対してコントラストの高い画像取得ができることを報告した。今回は、実際の環境モニタリングで想定される広がった線源のシミュレーション実験を遂行し、従来法と LM ML-EM の線源サイズの再現性やノイズ特性について評価を実施した。

本研究では、これまでに発表してきたシミュレーション体系(Geant4(v.10.7))に、任意の位置と形状の線源を設置可能とする機能を追加した。Fig. 1 は、検出器から1 m離れた位置に直径100 cmの円板状線源(662 keV- γ 線)を仮定したシミュレーションで得られた再構成画像である。ここで、黒線で示す円の半径は、点線源による再構成画像から得られた角度分解能 σ を表している。これより、(a)鮮鋭化手法($\sigma = 12$ 度)と(b)LM ML-EM($\sigma = 8$ 度)の両者において、点線源より広がった γ 線強度分布を得ることに成功し、更に(b)ではノイズレベルを抑えたコントラストの高い画像となった。

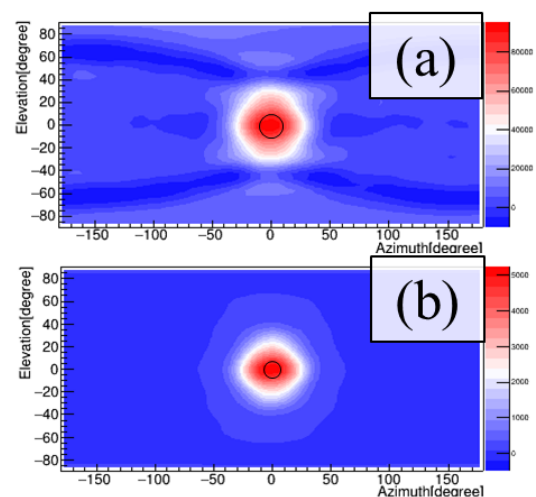


Fig. 1 Omnidirectional gamma-ray image of a 100 cm diameter circular source of 662 keV.
(a) Image sharpening technique.
(b) LM ML-EM (20 iterations).

Lu-177 放射能汚染イメージングのための高感度コンプトンカメラの開発

Development of high-sensitivity Compton camera for Lu-177

radioactive contamination imaging

北里大院医¹, 茨城大理², 仙台高専³, 国がん東病院⁴, 東海大病院⁵

○(D)塚本 ひかり^{1,5}, 村石 浩¹, 榎本 良治¹, 片桐 秀明², 加賀谷 美佳³, 渡辺 宝¹,

加納 大輔⁴, 溝口 孝大¹, 福本 仁也¹, 渡邊 祐介¹

Kitasato Univ.¹, Ibaraki Univ.², NIT, Sendai College³, NCCHE⁴, Tokai Univ. Hosp⁵,

○(D)Hikari Tsukamoto^{1,5}, Hiroshi Muraishi¹, Ryoji Enomoto¹, Hideaki Katagiri², Mika Kagaya³,

Takara Watanabe¹, Daisuke Kano⁴, Takahiro Mizoguchi¹, Masaya Fukumoto¹,

Yusuke Watanabe¹

E-mail: tsukamoto.hikari.g@tokai.ac.jp

2021年にルテチウムオキシドトレオチド (Lu-177) が日本で初めて製造販売承認された。本薬剤は1回投与量が7.4 GBqであり、投与後48時間以内に高レベルの放射能が尿路排泄される。そのため、医療従事者の職業被ばくが懸念されており、汚染対策が急務とされている。我々はCsI(Tl)結晶と光電子増倍管 (PMT) を用いて、1 μ Sv/h 程度以下の低線量 γ 線源分布を遠隔から短時間で可視化可能な「回転機能付きオクタヘドロン型高感度コンプトンカメラ (Muraishi, et al., JJAP, 2020.)」の開発に成功している。先の学会では、このコンプトンカメラの応用可能性を Geant4 によるモンテカルロシミュレーション実験にて評価し、2.5 cm 角以上の $\text{CaF}_2(\text{Eu})$ 結晶が 100-200 keV γ 線イメージングに優れていることを報告した。今回の学会では、実際にオクタヘドロン型コンプトンカメラを製作し、放射能が既知の Lu-177 線源を用いた性能評価を遂行した。

今回は 3.5 cm 角 $\text{CaF}_2(\text{Eu})$ 結晶を採用し、オクタヘドロン型コンプトンカメラを製作した (Fig. 1)。Fig. 2 は、例として Lu-177 非密封線源 (43 MBq) を (Azimuth, Elevation) = (0°, 0°) 方向、距離 100 cm に配置し、10 分間測定を行った際の 208 keV 再構成画像と光学写真の合成画像を示している。再構成画像の CNR (Contrast-to-Noise Ratio) は 14、角度分解能は $\sigma \sim 11^\circ$ であり、シミュレーションと同等の値を示した。絶対感度は 0.49 cps/MBq であった。

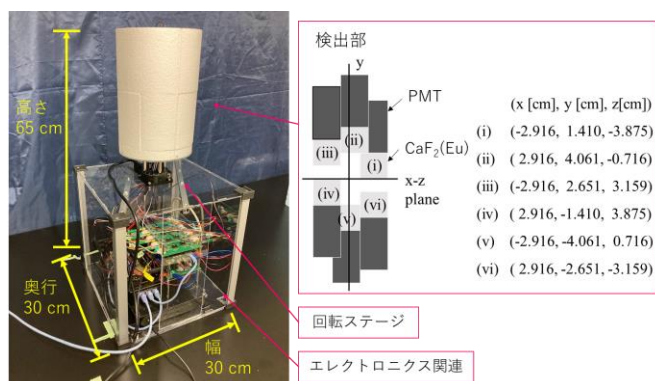


Fig.1 Photograph of a developed Compton camera with the detector rotation function (left) and schematic view of the counters (right).

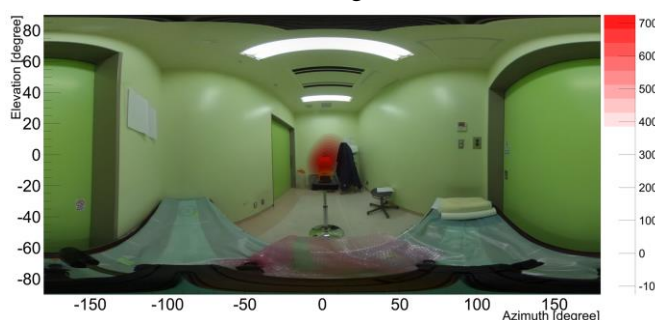


Fig.2 208 keV gamma-ray image superimposed on optical image. In this figure, more than 60% of the signal value is colored red.

ゲル線量計を用いた 4 次元線量分布評価の予備的実験

A preliminary study of the 4D dose distribution estimation using gel dosimeter



京大工¹, 阪大産研², 広国大³, 京大複合研⁴, ^{○(DC)}成田 亮介¹, 神戸 正雄²,
林 慎一郎³, 櫻井 良憲⁴

Grad. Sch. Engineering, Kyoto Univ.¹, SANKEN, Osaka Univ.², Hiroshima International Univ.³,
KURNS, Kyoto Univ.⁴, ^{°(DC)}Ryosuke Narita¹, Masao Gohdo², Shin-ichiro Hayashi³,
Yoshinori Sakurai⁴

E-mail: narita.ryosuke.23c@st.kyoto-u.ac.jp

1. 背景・目的：

放射線治療の品質保証においては、広範囲かつ高解像度での線量分布評価のために 3 次元での評価手法が求められている。さらに、我々は、線量率の経時的变化を評価するために、リアルタイム評価を加えた 4 次元線量分布評価手法の構築を検討している。本研究では、ゲル線量計を用いる 4 次元評価手法について、予備的実験による可能性検討を行った。

2. 材料・方法：

放射線感受性色素に leucocrystal violet (LCV) を用いたラジオクロミックゲル線量計を作成した。ゲル線量計は、光学スキャナ装置での測定を目的として、内寸 $100 \times 100 \times 10 \text{ mm}^3$ のアクリル容器に封入し、7 枚を重ねて積層した。

積層ゲル線量計は外寸 $200 \times 200 \times 200 \text{ mm}^3$ の水ファントム中に設置し、大阪大学産業科学研究所の Co-60 ガンマ線照射設備においてガンマ線照射を行った。吸収線量は熱ルミネセンス線量計(TLD)を用いて測定した。照射中のゲルの着色のリアルタイムモニタリングと時間情報取得のためにファントム側面にカメラを配置した(Photo 1)。照射

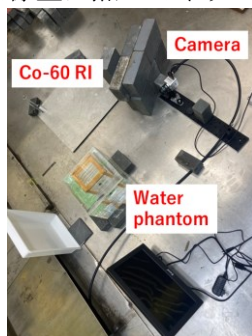


Photo 1. Irradiation system

したゲル線量計の各層については、自作した光学スキャナ装置を用いて、暗条件下で白色光の透過光を撮像した(Figure 1)。得られた画像および映像

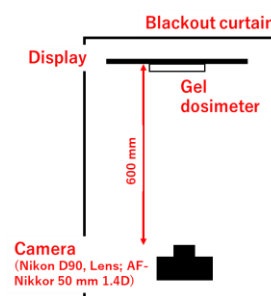


Figure 1. Measurement system

データから吸光度を算出し、線量に換算した。ゲル線量計によって得られた線量分布の検証にはモンテカルロ計算コードPHITSを用いた。

3. 結果・考察：

各層のゲル線量計の 2 次元画像データから 3 次元的な空間情報を構築し、深部、水平、垂直方向の線量分布を推定した。深部方向の実験結果は計算結果とほぼ一致したが、実験データのばらつきが大きかった。水平および垂直方向の実験結果は計算結果と良い一致を示した。経時的变化については、直線的な着色変化が確認された。ただし、外光の僅かな変化が影響するため、今後の改善が必要である。

4. 結論：

ラジオクロミックゲル線量計を用いた 4 次元線量分布評価の可能性が示された。

5. 謝辞：

この研究は JST SPRING (Grant No. JPMJSP2110)の支援によるものである。

肝疾患評価を目指したフォトンカウンティング CT による 脂肪肝ラットの生体外イメージング

Ex vivo imaging of fatty liver rats using photon-counting CT for evaluation of liver disease

金沢大学 (Kanazawa Univ.)¹, 東北大学 (Tohoku Univ.)², 早大理工 (Waseda Univ.)³,
プロテリアル (Proterial Ltd.)⁴

○供田 崇弘¹, 有元 誠¹, 佐藤 大地², 伊藤 優希¹, 大島 美礼¹, 古田 優¹, Fitri Lucyana¹,
川嶋 広貴¹, 小林 聡¹, 奥村 健一郎¹, 片岡 淳³, 皆川 遼太郎³, 寺澤 慎祐⁴, 塩田 諭⁴

°Takahiro Tomoda¹, Makoto Arimoto¹, Daichi Sato², Yuki Ito¹, Minori Oshima¹, Yu Furuta¹,
Fitri Lucyana¹, Hiroki Kawashima¹, Satoshi Kobayashi¹, Kenichiro Okumura¹, Jun Kataoka³,
Ryotaro Minagawa³, Shinsuke Terazawa⁴, Satoshi Shiota⁴,

E-mail: tk1115@stu.kanazawa-u.ac.jp

X 線 CT (Computed Tomography) は、被写体内部を非破壊で調べる技術である。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、X 線を光子単位で検出することで X 線のエネルギー情報を含めた CT 画像を提供できる。これにより、物質の同定や密度の定量的な評価が可能となり、医療において新たな診断法の提案や治療効果の可視化が期待されている。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 PC-CT を開発した。本研究では、開発した PC-CT を用いてラットの肝疾患を評価する実験を行った。具体的には、健常な肝臓と脂肪肝のそれぞれを有するラットに対し、健常肝細胞に選択的に集積するガドリニウム造影剤(Gd-EOB)を注射し、肝臓を摘出して生体外で CT イメージングを行った。この造影剤は、肝疾患評価のために MRI (Magnetic Resonance Imaging)で一般的に使用されている。その結果、健康なラットではガドリニウム造影剤が肝臓全体に蓄積した (1-5 mg/ml) (Figure 1) が、脂肪肝のラットでは有意な蓄積は見られなかった (< 1 mg/ml)。これは Gd-EOB を用いた肝臓疾患の評価における PC-CT の有用性と将来 MRI を利用できない患者に対しても PC-CT で MRI と同等な診断を提供する可能性を示している。さらに、軟部組織と脂肪の減弱係数のエネルギー依存性を解析することにより、脂肪肝における脂肪率を推定した (Figure 2)。その結果、脂肪率は約 56%であり、典型的な値とほぼ一致した。PC-CT によるこのような脂肪率推定は、肝疾患の進行評価と疾患メカニズムの理解に役立つ、革新的な診断に貢献する。本発表では、実験の概要とその結果について報告する。

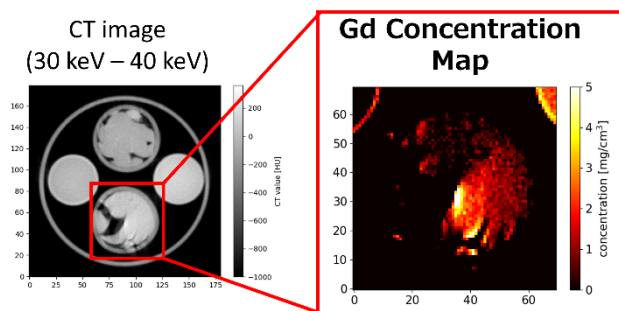


Figure 1: (Left): CT image of healthy liver and fatty liver with Gd-EOB (30-40 keV). (Right): Concentration map of gadolinium in healthy liver.

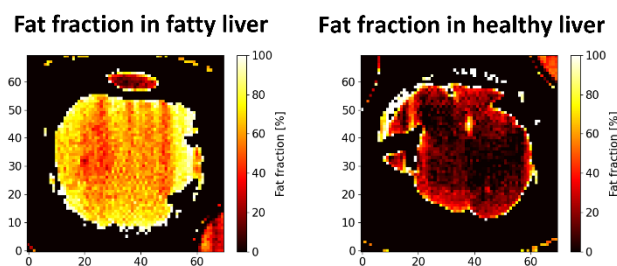


Figure 2: Maps of fat fraction in each liver.
(Left): The fat fraction in fatty liver.
(Right): The fat fraction in healthy liver.

MPPC を用いたフォトンカウンティング CT による プラチナ系抗がん剤評価

Evaluation of Platinum-Based Anticancer Drugs Using Photon-Counting CT with MPPCs

金沢大学 (Kanazawa Univ.)¹, 岡山大院医歯薬 (Okayama Univ.)²,

早大理工 (Waseda Univ.)³, 東北大学 (Tohoku Univ.)⁴, プロテリアル (Proterial Ltd.)⁵

○古田 優¹, 有元 誠¹, 供田 崇弘¹, Fitri Lucyana¹, 大島 美礼¹, 伊藤 優希¹, 川嶋 広貴¹,
小林 聡¹, 奥村 健一朗¹, 小野田 輝², 田中 海成², 田中 智博², 上田 真史², 片岡 淳³,
皆川 遼太郎³, 佐藤 大地⁴, 寺澤 慎祐⁵, 塩田 諭⁵

○Yu Furuta¹, Makoto Arimoto¹, Takahiro Tomoda¹, Minoru Oshima¹, Fitri Lucyana¹, Yuki Ito¹,
Hiroki Kawashima¹, Satoshi Kobayashi¹, Kenichiro Okumura¹, Hikaru Onoda², Kaisei Tanaka²,
Tomohiro Tanaka², Masashi Ueda², Jun Kataoka³, Ryotaro Minagawa³, Daichi Sato⁴, Shinsuke
Terazawa⁵, Satoshi Shiota⁵

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

X 線 CT (Computed Tomography) とは、被写体内部を非破壊的に可視化する技術であり、医療分野など様々な分野で利用されている。本研究で扱う光子計数型 CT は、X 線を光子単位で検出することで X 線のエネルギー情報を取得でき、被写体内部に存在する物質元素の種類同定や密度の推定が可能である。そのため、医療分野において光子計数型 CT を利用した新たな診断や治療方法の提案などが期待されている。例えば、体内に分布する抗がん剤の集積を可視化することで、抗がん剤の効用を評価することができる。それにより、個々の患者に対して最適な診断を提案することが可能である。また、近年では患者のクオリティオブライフを著しく低減させないために抗がん剤を腫瘍部のみに作用させるドラッグデリバリーシステムが注目を集めており、光子計数型 CT はドラッグデリバリーシステムに貢献できると期待されている。

私たちは、高速シンチレータ (YGAG:Ce) と光半導体素子である Multi Pixel Photon Counter (MPPC) を組み合わせた光子計数型 CT を開発した。本研究では、開発した光子計数型 CT を用いて、抗がん剤治療に使われているプラチナ系抗がん剤であるカルボプラチン (Pt 濃度 1.8 mg/ml, 1.6 mg/ml) とオキサリプラチン (Pt 濃度 1.0 mg/ml) をカプセル (リポソーム) で包み込み、薬剤の評価を行った。それぞれ卵巣がんと大腸がんの治療薬として使用されている。実験の結果、カルボプラチンリポソーム及びオキサリプラチンリポソームの白金濃度をおおむね誤差範囲内で正しく推定することができた (Figure 1)。本発表では実験の概要及び、濃度推定の定量化に関して述べる。

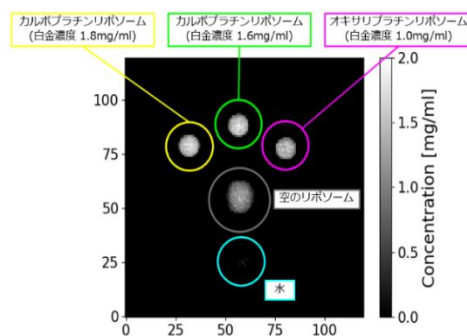


Figure 1 : Concentration maps of Carboplatin liposomes (Pt concentration 1.8 mg/ml and 1.6 mg/ml) and Oxaliplatin liposomes (Pt concentration 1.0 mg/ml).

Preliminary evaluation of dynamic imaging results of contrast agent sample using a 2-dimensional MPPC-based photon counting CT detector system

Kanazawa Univ.¹, Waseda Univ.², Tohoku Univ.³, Proterial Ltd.⁴,

°Fitri Lucyana¹, Makoto Arimoto¹, Takahiro Tomoda¹, Minori Oshima¹, Yu Furuta¹, Hiroki

Kawashima¹, Satoshi Kobayashi¹, Kazuhiro Murakami¹, Kenichiro Okumura¹, Jun Kataoka²,

Ryotaro Minagawa², Daichi Sato³, Shinsuke Terazawa⁴, and Satoshi Shiota⁴

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

Photon counting (PC) detectors revolutionize medical CT imaging with their capability to count individual photons while simultaneously measuring their energy. This capability enables customized multi-energy imaging, which is crucial for identifying specific materials based on their unique energy signatures [1]. Consequently, PC-CT significantly advances the benefits of medical diagnostics and treatment. The development of an established PC-CT system, integrating a multi-pixel photon counter (MPPC) array with a yttrium-gadolinium-aluminum-gallium garnet (YGAG) scintillator array, needs to expand from a 1-dimensional to a 2-dimensional detector to enhance temporal image resolution [2, 3, 4].

In this presentation, we report on the preliminary evaluation of dynamic imaging using a 2-dimensional PC-CT system to assess object flow within specific time intervals, demonstrated as a simplified model for vascular system dynamics. The established 2-dimensional PC-CT utilizes a 256-channel pixel array (16×16 channels) with four large-scale integrated (LSI) circuit boards, each handling signals from 64 channels across six energy thresholds [5]. The X-ray generator was set to 100 kV and 0.1 mA, with energy thresholds set at 27 keV, 33 keV, 50 keV, 65 keV, 80 keV, and 90 keV and took 6 minutes for one imaging time. We injected an Iodine 5 mg/mL substance sample via a syringe pump with an injecting rate of 3.7 mL/h. The CT images obtained in the cross-sectional view shown in Fig. 1, reveal an increased flow in the substance filling the tube at 6-minute intervals. Due to the 2-dimensional detector spanning the top half of the sample tube, the substance was observed after 24 minutes. Ideally, in a sample tube with an inner diameter of 10 mm, the surface of the substance will rise by 4.71 mm within 6 minutes. This is confirmed in the distribution of the linear attenuation coefficients in the energy range of 23–33 keV at different time intervals for each detector height, as shown in Fig.2. We will briefly report the result of the detailed evaluation.

[1] M. J. Willemink et al., Radiology, **289** (2018), 293-312

[2] M. Sagisaka et al., Nucl. Inst. Met. A, **1045** (2023), 167580

[3] D. Sato et al., Nucl. Inst. Met. A, **1048** (2023), 167960

[4] D. Sato et al., Nucl. Inst. Met. A, **1064** (2024), 169337

[5] M. Arimoto et al., Nucl. Inst. Met. A, **1047** (2023), 167721

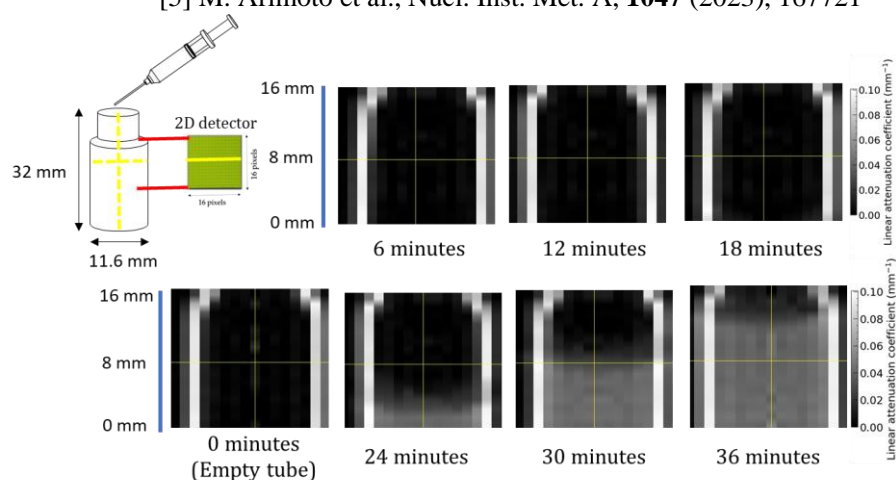


Figure. 1. Cross-sectional CT images displayed over time intervals.

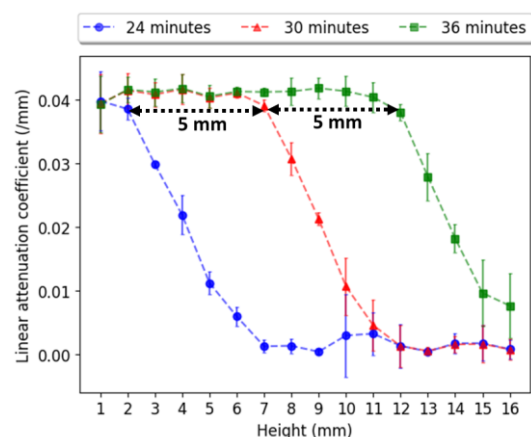


Figure. 2. The distributions of the linear attenuation coefficients in the energy range of 23–33 keV.

2 放射線 | 一般セッション(口頭講演): 2.4 医用応用

[18a-D62-1~6] 2.4 医用応用

[18a-D62-1]

[第56回講演奨励賞受賞記念講演] 薄膜型ダイヤモンド検出器を用いたマルチオン照射の線エネルギー付与分布測定

○青木 勝海¹、米内 俊祐¹、武居 秀行¹、松本 卓己²、牧野 高紘¹、松本 真之介³、加田 渉² (1.量研機構、2.東北大、3.東京都立大)

[18a-D62-2]

Evaluating Radiation Modulation Capabilities of 3D Printed PLA, ABS, and TPU with Different In-fill Densities and Phase Angles for Nuclear Medicine Applications

○(D)ToniBeth Guatato Lopez^{1,2,4}, James Harold Cabalhug², Emmanuel Arriola^{1,2,4}, Marynella Laica Afable², Ranier Jude Wendell Lorenzo², Alvie Asuncion Astronomo³, Fred Liza², Robert Dizon², Gil Nonato Santos⁴ (1.Department of Science and Technology, 2.Metals Industry Research and Development Center, 3.Philippine Nuclear Research Institute, 4.De La Salle University)

[18a-D62-3]

直交積層型PET検出器によるスケーラブルTOF-DOI検出器の提案

○大田 良亮¹ (1.浜ホト中研)

[18a-D62-4]

重粒子線治療の飛程検証PETによる腫瘍診断の可能性：ラット実証実験

○寅松 千枝¹、田島 英朗¹、脇坂 秀克¹、須藤 仁美¹、関 千江¹、生駒 洋子¹、菅野 巖¹、山谷 泰賀¹ (1.量子科学技術研究開発機構)

[18a-D62-5]

Design of a sub-0.5 mm resolution mouse brain PET

○(P)HanGyu Kang¹, Hideaki Tashima¹, Taiga Yamaya¹ (1.QST)

[18a-D62-6]

[第30回放射線賞受賞記念講演] 「核医学応用物理」の実践：革新的PET装置のBench-to-Clinical研究

○山谷 泰賀¹、高橋 美和子¹、田島 英朗¹、吉田 英治¹、寅松 千枝¹、赤松 剛¹、錦戸 文彦¹、浜戸 アクラム¹、Kang Han Gyu¹、田久 創大¹、岩男 悠真¹、黒澤 俊介²、鎌田 圭²、吉川 彰²、羽石 秀昭³、菅 幹生³、川村 和也³、石橋 真理子⁴、今井 陽一⁵ (1.量研機構、2.東北大、3.千葉大、4.日本医大、5.獨協医大)

薄膜型ダイヤモンド検出器を用いたマルチイオン照射の 線エネルギー付与分布測定

Measurement of linear energy deposition distribution with diamond membrane detector in multi-ion beam therapy

量研機構¹, 東北大², 東京都立大³

○青木 勝海¹, 米内 俊祐¹, 武居 秀行¹, (D)松本 卓己², 牧野 高紘¹, 松本 真之介³, 加田 渉²

National Institutes for Quantum Science and Technology (QST)¹,
Tohoku University², Tokyo Metropolitan University³

○Katsumi Aoki¹, Shunsuke Yonai¹, Hideyuki Takei¹, Takumi Matsumoto²,
Takahiro Makino¹, Shinnosuke Matsumoto³, and Wataru Kada²

E-mail: aoki.katsumi@qst.go.jp

QST では 2023 年 11 月から、炭素のみではなく酸素やネオンを使ったマルチイオン照射による臨床研究が開始された(骨軟部マルチイオン、jRCTs032220609)。炭素より線エネルギー付与(Linear Energy Transfer: LET) が大きい酸素やネオンを併用することで、腫瘍中心部の線量平均 LET を上げることができ生物効果が高くなる。この治療照射法の品質保証・品質管理(QA/QC)においては、従来の電離箱を用いた線量評価だけでなく LET の評価も重要である。現在 QST では、SOI (Silicon-On-Insulator) 半導体検出器を用いた測定・評価を進めている(A. Rosenfeld, *Nucl. Instr. Meth.* **809**, 156-170, 2016) が、マルチイオン治療の症例数を増加させる上では、放射線損傷による性能劣化の観点から放射線耐性に優れた検出器の開発が望まれる。本研究は、SOI 半導体検出器に比べ放射線耐性が高く、生体深度における LET 分布を取得できる検出器を開発することが目的である。

Si に比べて放射線耐性が高いダイヤモンド半導体検出器(250 μm \times 50 μm の検出領域、層厚 50 μm)を用いて、HIMAC (Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba) の治療室にて測定を実施した(図 1)。2024 年春の学術講演会では、3 つの入射強度(強度 ID: 5/15/30)で測定した結果から強度を上げていくことでパイルアップの傾向が強くなることを報告した[1]。また、治療の最小強度(強度 ID: 30)においてもパイルアップの傾向が強いことから、パイルアップが少なく測定できるように検出器サイズを小さくする必要がある。強度をさらに下げて測定を行い、パイルアップがより少なくなる強度を調査し、それぞれの強度における LET 分布を比較した(図 2)。今回はさらに、ビーム強度に対するダイヤモンド検出器の応答依存性について調べ、検出器サイズの最適化に向けた検討を行った。

【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] 青木 勝海 他, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, [25p-12E-2], 2024 年 3 月 25 日.

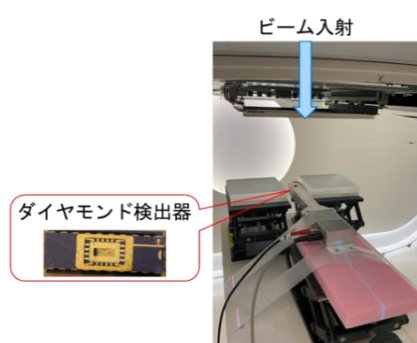


図 1. ダイヤモンド検出器と測定の様子

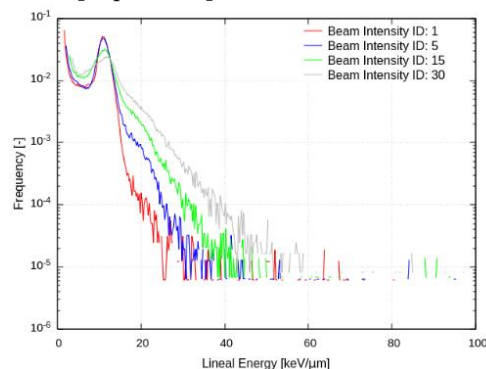


図 2. 350 MeV/u 炭素を、4 つの入射粒子強度で照射した時のそれぞれのスペクトル

Evaluating Radiation Modulation Capabilities of 3D Printed PLA, ABS, and TPU with Different In-fill Densities and Phase Angles for Nuclear Medicine Applications

Toni Beth Guatato-Lopez^{a,b,d}, James Harold P. Cabalhug^b, Emmanuel R. Arriola^{a,b,d}, Marynella Laica B. Afable^b, Ranier Jude Wendell R. Lorenzo^b, Alvie Asuncion-Astronomo^c, Fred P. Liza^b, Robert O. Dizon^b, Gil Nonato C. Santos^d

E-mail: tblopez@mirdc.dost.gov.ph

Abstract: The application of 3D printing technologies in the field of radiotherapy presents a novel approach to developing custom-tailored devices for radiation shielding and modulation. This study investigates the effects of varying in-fill densities and design structures on the empirical density and radiation attenuation properties of three common 3D printing materials: polylactic acid (PLA), acrylonitrile butadiene styrene (ABS), and thermoplastic polyurethane (TPU).

Using the water displacement method, we measured the empirical density of 3D printed samples with different in-fill patterns and densities. The results were used to assess the correlation between in-fill density and material density. Furthermore, mass attenuation coefficients were calculated using the XCOM and EpiXS software programs to determine the effectiveness of each sample in attenuating radiation. Varying printing infill densities and phase angles were included to also investigate the resulting attenuation characteristics of the material. These were all part of the DOE incorporated to fully understand the interaction of varied in-fill densities and phase angles.

The findings demonstrate that manipulating the in-fill density and design significantly impacts the density and, consequently, the radiation attenuation properties of the printed materials. PLA, ABS, and TPU samples with higher in-fill densities showed improved attenuation characteristics, making them potentially effective for use in radiotherapy applications where precise dose modulation is critical.

This study highlights the importance of optimizing 3D printing parameters to enhance the functional properties of printed materials for medical applications, paving the way for personalized and efficient radiotherapy solutions.

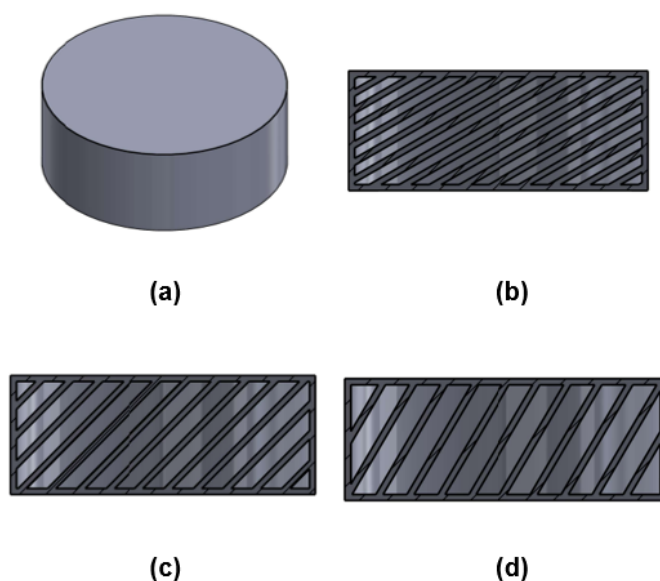


Figure 1: CAD Model of a Cylindrical Sample with varying Phase Angles at (b) 30 degrees, (c) 45 degrees and (d) 60 degrees.

直交積層型 PET 検出器によるスケーラブル TOF-DOI 検出器の提案

Proposal of scalable TOF-DOI detectors using orthogonally stacked 1D PET detectors

浜ホト中研¹ °大田 良亮¹

Hamamatsu Photonics K.K.¹, °Ryosuke Ota¹

E-mail: ryosuke.ota@crl.hpk.co.jp

陽電子断層撮像装置 (PET) は被写体内から放出される電子-陽電子対消滅ガンマ線を同時計数することで被写体内の薬剤の分布を可視化する装置である。PET 計測において、同時計数されたイベントに対して付加的な情報として検出器間のガンマ線の飛行時間差 (TOF) を計測することで画像のシグナルノイズ比が向上し、検出器内の相互作用深さ (DOI) を計測することで画像の均一性が向上するため、TOF-DOI の両情報を取得できる検出器が望まれる。特に TOF 性能として、同時計数時間分解能 (CTR) で半値全幅が 100 ps となるような検出器が今後求められている。通常 PET 検出器はシンチレータと光検出器で構成されるが、ガンマ線に対する十分な阻止能を確保するためには LSO のようなシンチレータで 20 mm 程度の厚みが必要となる。しかし、20 mm もの厚みを持つシンチレータの場合、シンチレーション光が光検出器に到達するまでの時間のばらつきが TOF 性能を律速し、CTR = 100 ps を達成するのが困難である。シンチレータ厚を短くすればシンチレータ内での光の拡散は抑制でき、CTR = 100 ps は可能であるが、今度は検出効率が低下するというトレードオフが存在する。

本発表では、下図にあるようなシンチレータの長手方向の一面に反射材を巻かないような 1 次元 PET 検出器を 2 個用意し、それらを直交に積層する検出器を提案する。この検出器構成により、検出器を積層させることで検出効率を損なうことなく、シンチレータ厚を 13 mm 以下程度まで低減することが可能になり、結果として TOF 性能が向上することが期待される。更にはシンチレータピッチに応じた DOI 情報も取得可能であり、高 TOF-DOI PET 検出器が実現される。本発表では検出器の基礎的な特性として、エネルギー分解能、xy 空間分解能、CTR 等を報告する。

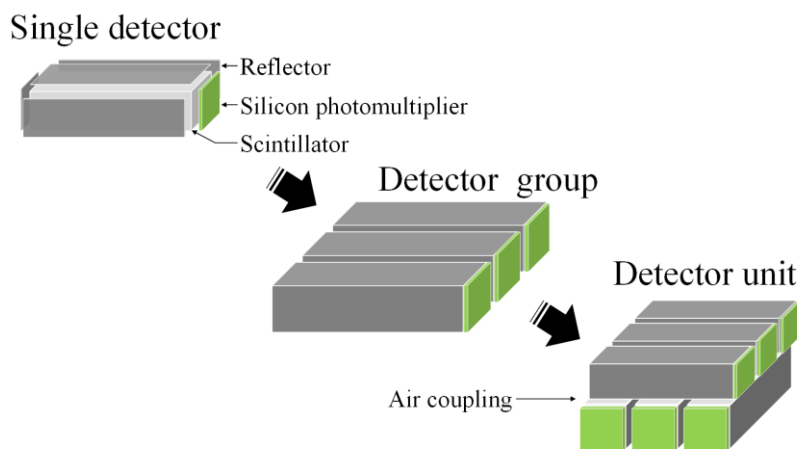


Fig. 1. A concept of the proposed detector.

重粒子線治療の飛程検証 PET による腫瘍診断の可能性：ラット実証実験

Feasibility of tumor diagnosis by means of range-verification PET in carbon-ion therapy: A rat demonstration

量子科学技術研究開発機構¹, °寅松 千枝¹, 田島 英朗¹, 脇坂 秀克¹, 須藤 仁美¹, 関 千江¹,
生駒 洋子¹, 菅野 巖¹, 山谷 泰賀¹

National Institutes for Quantum Science and Technology¹, °Chie Toramatsu¹, Hideaki Tashima¹,
Hidekatsu Wakisaka¹, Hitomi Sudo¹, Chie Seki¹, Yoko Ikoma¹, Iwao Kanno¹, Taiga Yamaya¹

E-mail: toramatsu.chie@qst.go.jp

In carbon ion therapy, tumor hypoxia imaging is required to optimize treatment plans for frequently changing tumor conditions, but it is impractical to execute hypoxia PET for every treatment fraction. Therefore, our idea is to use range-verification PET for tumor diagnosis. The range-verification PET visualizes positron emitters produced through nuclear fragmentation reactions in the patient body, and we expect that the biological washout speed of such positron emitters will reflect the tumor vascular conditions. In this work, we aimed at demonstrating the feasibility of this concept in a tumor model rat. Glioma cells were injected into the thigh of a rat. Two weeks later, magnetic resonance angiography (MRA) was performed as the standard of truth to determine the intratumoral vascular conditions. Then, the rat tumor was irradiated using the ^{12}C beam (~8 Gy) in the Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba (HIMAC). Immediately after the irradiation, range-verification PET was performed by using our original total-body small-animal PET system. In the range-verification PET measured for 10 min (Figure. 1-a, b). Figure 2-a shows the obtained PET image (10 min summed image), and heterogenous intensity region was observed in irradiated target tumor tissue. Difference in washout speed was clearly observed (Figure .2-b), and a high

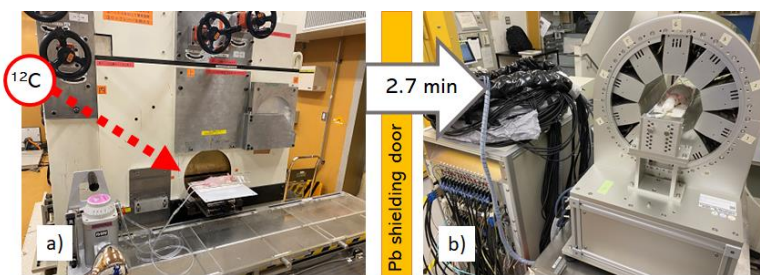


Fig.1 a) ^{12}C Irradiation to the tumour. b) Range-verification PET by TBS-PET

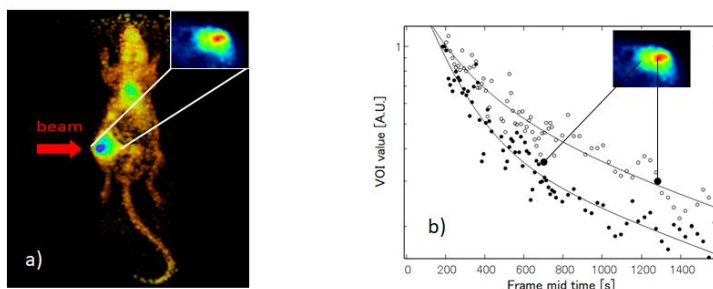


Figure 2. a) 10 min summed PET image. b) The time activity curves depends on region.

activity region corresponded to a poorly vascularized region in the MRA image. Different time activity curves were obtained depending on the high and low activity regions, which supported the feasibility of the use of range-verification PET for tumor diagnosis

Design of a sub-0.5 mm resolution mouse brain PET

[○]Han Gyu Kang¹, Hideaki Tashima¹, Taiga Yamaya¹

QST¹, E-mail: hangyookang@gmail.com

Spatial resolution is the most important factor for mouse brain dedicated positron emission tomography (PET). Previously, we obtained 0.55 mm resolution with small animal PET, however our original goal of sub-0.5 mm resolution was not realized because of the unoptimized crystal layer design. Here we proposed a mouse brain PET design with an optimized crystal layer design that can achieve sub-0.5 mm resolution. The newly proposed mouse brain PET design consists of a staggered 3-layer DOI detector using 0.8 mm crystal pitch. The geometry has a 48 mm ring diameter and 23.4 mm axial FOV. The PET has 2 rings each of which has 16 DOI detectors. We conducted GATE simulations to optimize the crystal layer design which can provide the best spatial resolution throughout the field-of-view. Three different crystal layer designs were used: (A) 4+4+7 mm, (B) 3+4+4 mm, and (C) 3+3+5 mm. To evaluate the spatial resolution, four NEMA ²²Na sources (D=0.25 mm) with spacing of 5 mm in the radial direction were used. With the optimized crystal layer design, we evaluated the imaging performance with a resolution phantom having six different rod diameters (0.45, 0.50, 0.55, 0.6, 0.7, and 0.8 mm). The PET images were reconstructed by using an OSEM algorithm. An energy window of 440-560 keV was used for the image reconstruction. Design (C) (3+3+5 mm) showed the best spatial resolution (0.42 mm at the center and 0.46 mm at the 5 mm radial offset) among the three. The 0.45 mm rods of the resolution phantom could be resolved with a valley-to-peak ratio of 0.573 ± 0.062 , which is under the Rayleigh criterion (0.735). In conclusion, our proposed mouse brain PET with the optimized crystal layer design provided sub-0.5 mm resolution. In the future, we plan to develop a prototype mouse brain PET scanner to validate the simulation results.

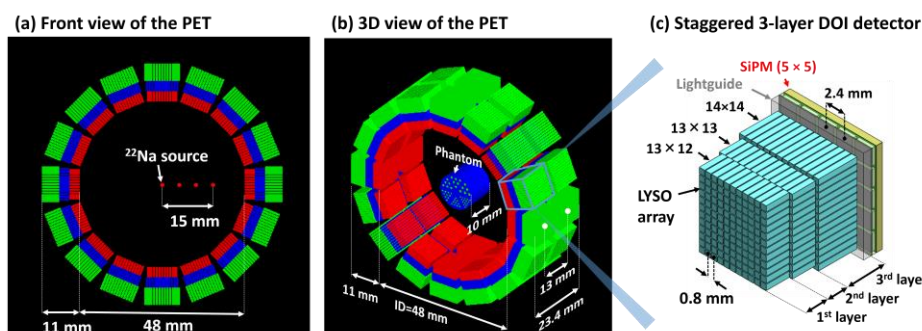


Fig. 1. (a) The front view (a) and 3D view of the proposed mouse brain PET system and (b) the developed small animal PET scanner.

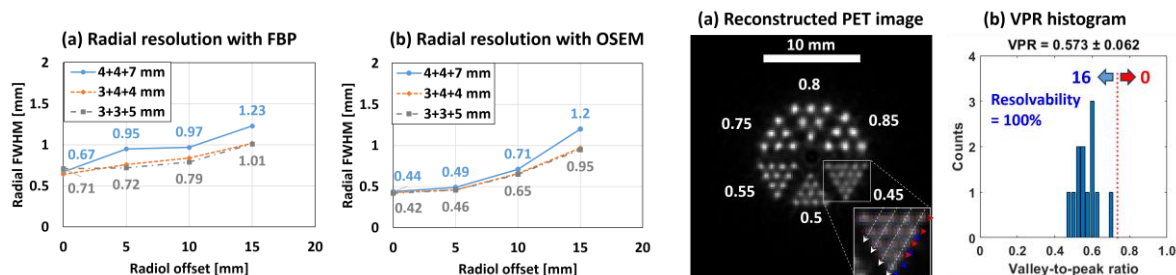


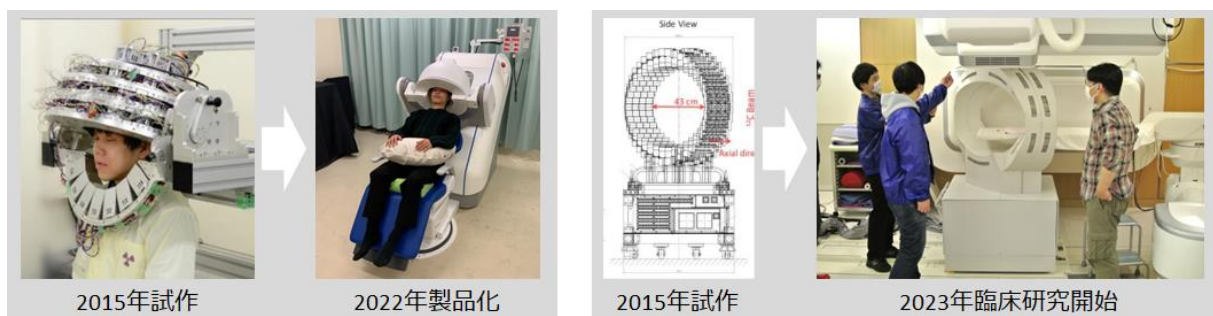
Fig. 2. The radial spatial resolutions of three difference crystal layer designs (a) Reconstructed PET image with the OSEM and (b) valley-to-peak ratio histogram of the 0.45 mm rod structures.

「核医学応用物理」の実践：革新的 PET 装置の Bench-to-Clinical 研究 Practicing “applied physics in nuclear medicine”: Bench-to-clinical research on PET

QST¹, 東北大², 千葉大³, 日本医大⁴, 獨協医大⁵ ○山谷泰賀¹,
高橋美和子¹, 田島英朗¹, 吉田英治¹, 寅松千枝¹, 赤松剛¹, 錦戸文彦¹, 浜戸アクラム¹,
Han Gyu Kang¹, 田久創大¹, 岩男悠真¹, 黒澤俊介², 鎌田圭², 吉川彰², 羽石秀昭³,
菅幹生³, 川村和也³, 石橋真理子⁴, 今井陽一⁵

QST¹, ○Taiga Yamaya¹, et al. E-mail: yamaya.taiga@qst.go.jp

放射線計測研究が盛んな日本であるが、PET 装置の約 9 割を輸入に頼っており、核医学応用では世界に出遅れている。新技術による臨床課題の解決が切望されている中、応用物理学が果たすべき役割は大きい。そこで我々は、臨床に繋がる応用物理研究、すなわち Bench to Clinical (B2C) を意識した研究を実践することを目的に、中谷医工計測技術振興財団の助成のもと未来 PET 創造研究ユニットを立ち上げた。現在の PET は、体外に放出された放射線の数%しか検出できていない。世界的には主流の、検出器のトンネルを長くして立体角を高めるアプローチは、装置が高価格になるだけでなく、角度揺動による解像度劣化をさらに進めてしまう。そこで QST では、来る認知症 PET 時代に備えて、最も理想的な頭部専用 PET 装置を発明した。これは、世界初の半球状検出器配置を特徴とする PET 装置であり、従来の円筒型 PET 装置と比べ、最も少ない検出器数でも高い感度を維持し、角度揺動の影響を最小化できる。本装置は、(株)アトックスとの共同研究を経て、2022 年 1 月に「Vrain」として製品化に成功した。我々はこの成功体験を、これまでの PET の範囲を超えた新しい医学応用や技術進歩に繋げようとしている。具体的には、粒子線治療の照射野を可視化する OpenPET や、PET にコンプトンカメラ法を融合する Whole Gamma Imaging (WGI)、術中リンパ節診断のための鉗子型ミニ PET である^[1]。物理を応用「しようとする」と「する」には決定的な違いがあると思う。核医学応用物理研究は患者に届いてこそ意味を持つ^[2]。



革新的研究成果を患者に届ける Bench-to-Clinical の実例：ヘルメット型 PET (左) と OpenPET (右)

[1] 次世代 PET 研究報告書 <https://www.nirs.qst.go.jp/usr/medical-imaging/ja/study/main.html>

[2] 山谷泰賀, “健康長寿社会の未来は応用物理学会放射線分科会の本気度にかかっている!,” 放射線 (in press)

2 放射線 | 一般セッション(口頭講演): 2.5 放射線誘起蛍光体

[16a-D62-1~6] 2.5 放射線誘起蛍光体

[16a-D62-1]

Eu添加NaGd(WO₄)₂単結晶の放射線誘起蛍光特性に対するEu濃度の影響

○牧野 滉大¹、木村 大海²、市場 賢政³、白鳥 大毅¹、藤原 健²、加藤 英俊²、福地 裕¹、柳田 健之³ (1. 東京理科大学、2.産総研、3.奈良先端大)

[16a-D62-2]

(OHC_nH_{2n}NH₃)₂PbBr₄ (n = 2, 3, 4) の放射線応答性

○(M1)坪川 虎ノ介¹、河野 直樹¹、岡崎 魁²、市場 賢政²、加藤 匠²、中内 大介²、國方 俊彰²、西川 晃弘²、宮崎 慧一郎²、柳田 健之² (1.秋田大院理工、2.奈良先端大)

[16a-D62-3]

Nd³⁺添加BaO-BaCl₂-TeO₂ガラスの放射線応答性

○(M1)鈴木 翼¹、宗田 駿太郎¹、河野 直樹¹、中内 大介²、加藤 匠²、岡崎 魁²、市場 賢政²、西川 晃弘²、宮崎 慧一郎²、篠崎 健二³、柳田 健之² (1.秋田大院理工、2.奈良先端大、3.産総研)

[16a-D62-4]

Er₂O₃-TeO₂-TiO₂-La₂O₃結晶化ガラスの放射線応答特性

○(M2)宗田 駿太郎¹、河野 直樹¹、中内 大介²、加藤 匠²、岡崎 魁²、市場 賢政²、國方 俊彰²、西川 晃弘²、宮崎 慧一郎²、加賀谷 史¹、篠崎 健二³、柳田 健之² (1.秋田大、2.奈良先端大、3.産総研)

[16a-D62-5]

ラジオフォトルミネッセンスを用いたリアルタイム中性子測定技術の開発

○岡田 豪¹、越水 正典²、眞正 浄光³、渡辺 賢一⁴、南戸 秀仁¹ (1.金沢工大、2.静岡大、3.東京都立大、4.九州大)

[16a-D62-6]

Tb添加SrTa₂O₆単結晶のシンチレーション特性

○富永 雄太^{1,2}、加藤 匠²、西川 晃弘²、宮崎 慧一郎²、中内 大介²、河口 範明²、柳田 健之² (1.福岡大工、2.奈良先端大)

Eu 添加 NaGd(WO₄)₂ 単結晶の放射線誘起蛍光特性に対する Eu 濃度の影響

Eu-concentration Dependence on Radiation-induced Scintillation Properties of Eu-doped NaGd(WO₄)₂ Single Crystals

東京理科大¹, 産総研², 奈良先端大³, [○](B)牧野 滉大¹, 木村 大海², 市場 賢政³,
白鳥 大毅¹, 藤原 健², 加藤 英俊², 福地 裕¹, 柳田 健之³

TUS¹, AIST², NAIST³, Kodai Makino¹, Hiromi Kimura², Kensei Ichiba³, Daiki Shiratori¹,
Takeshi Fujiwara², Hidetoshi Kato², Yutaka Fukuchi¹, Takayuki Yanagida³

E-mail: 4324556@ed.tus.ac.jp

シンチレータは、放射線のエネルギーを吸収し、即発的に紫外線や可視光に変換する特性を持つ蛍光材料であり、医療やセキュリティ分野における放射線検出に広く使用されている。近年、非破壊検査の対象が拡大し、高エネルギーX線を用いた検査が増加に伴い、高い検出効率を持つ重元素を含むシンチレータの開発が要求されている[1]。NaGd(WO₄)₂ は単結晶の作製が可能で、高い実効原子番号 ($Z_{\text{eff}}=67$) と密度 (7.2 g/cm³) を有するため、これらの用途に適したシンチレータ材料となり得る。本研究では、異なる濃度の Eu を添加した NaGd(WO₄)₂ 単結晶を Floating Zone 法により作製し、その光学・シンチレーション特性について評価・解析を行った。

Figure 1 に 0.1%Eu 添加 NaGd(WO₄)₂ の PL 励起・蛍光スペクトルを示す。360~400 nm の紫外光励起下において、610 nm および 700 nm 付近に鋭い発光が観測された。これは Eu³⁺ の 4*f*-4*f* 遷移に起因する典型的な発光である[2]。Figure 2 に 0.1% の Eu を添加した試料のシンチレーションスペクトルを示す。PL スペクトル同様に、610 nm および 700 nm 付近の発光に加え、580 nm、660 nm 付近に鋭い発光を観測した。これらは全て Eu³⁺ の 4*f*-4*f* 遷移に起因する典型的な発光であると考えられる。本講演では、Eu 添加濃度の変化に伴う Eu:NaGd(WO₄)₂ 単結晶の光学・シンチレーション特性の変化について詳細に報告する。

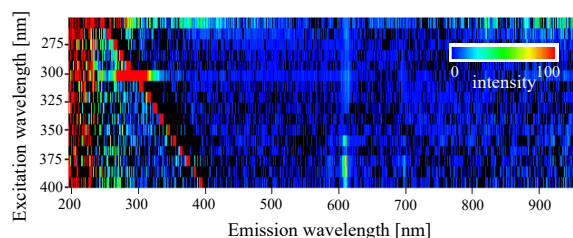


Figure 1 PL excitation/emission spectra of 0.1% Eu-doped NaGd(WO₄)₂ single crystal.

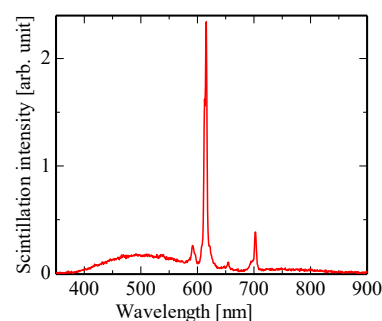


Figure 2 X-ray induced scintillation spectra of 0.1% Eu-doped NaGd(WO₄)₂ single crystals.

参考文献

- [1] Y. Douguchi, *et al.*, Radiat. Prot. Dosimetry, **84**, 143 (1999).
- [2] K. Ichiba, *et al.*, J Lumin., **266**, 120327 (2024).

$(\text{OHC}_n\text{H}_{2n}\text{NH}_3)_2\text{PbBr}_4$ ($n = 2, 3, 4$) の放射線応答性

Radiation response properties of $(\text{OHC}_n\text{H}_{2n}\text{NH}_3)_2\text{PbBr}_4$ ($n = 2, 3, 4$)

秋田大学¹, 奈良先端科学技術大学院大学²

○坪川 虎ノ介¹, 河野 直樹¹, 岡崎 魁², 市場 賢政², 加藤 匠²,
中内 大介², 國方 俊彰², 西川 晃弘², 宮崎 慧一郎², 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²

○Toranosuke Tsubokawa¹, Naoki Kawano¹, Kai Okazaki², Kensei Ichiba², Takumi Kato²,

Daisuke Nakauchi², Toshiaki Kunikata², Akihiro Nishikawa²,

Keiichiro Miyazaki², Takayuki Yanagida²

E-mail: m8024215@s.akita-u.ac.jp

【緒言】量子井戸構造を有する有機無機ペロブスカイト型化合物は量子閉じ込め効果に起因する高速な発光を示すことが知られており、高速応答シンチレータとしての応用が期待される。これまでの研究で、ベンゼン誘導体や直鎖炭化水素アミン等の多種多様な有機アミンを導入した化合物のシンチレーション特性が評価されてきた。その結果、 $(\text{C}_6\text{H}_5\text{C}_2\text{H}_4\text{NH}_3)_2\text{PbBr}_4$ が 14000 photons/MeV の大きな発光量、11 ns の短い寿命を示すことがわかった[1]。近年、置換基を有する直鎖炭化水素モノアミンを導入した当該化合物の合成が可能であることがわかった[2]。置換基の導入により無機層結晶構造に歪みが誘発されることで、励起子発光強度が向上する可能性がある。そこで本研究では、ヒドロキシル基を導入した $(\text{OHC}_n\text{H}_{2n}\text{NH}_3)_2\text{PbBr}_4$ ($n = 2$ (C2OH), 3 (C3OH), 4 (C4OH))を作製し、その放射線応答性を調べた。

【実験方法】 $\text{OHC}_n\text{H}_{2n}\text{NH}_2$ ($n = 2, 3, 4$)と PbBr_2 を化学量論比通りに臭化水素酸に溶解後、100 °C で 6 時間加熱還流を行った。その後、溶液を 20 °C まで徐冷することで結晶を得た。

【結果】図 1 にシンチレーションスペクトルを示す。発光ピークが 444 nm (C2OH)、435 nm (C3OH)、448 nm (C4OH)に観測された。これらは無機層の励起子由来の発光ピークと示唆された [1]。

図 2 に ^{241}Am 由来の α 線励起下パルス波高スペクトルを示す。 ^6Li -glass(GS20)を用いて発光量を算出した[3]。発光量はそれぞれ 380 (C2OH)、2000 (C3OH)、1900 (C4OH) photons/5.5MeV- α であり、C3OH が最も高い発光量を示した。

【参考文献】

- [1] N. Kawano et al., Sci. Rep. 7 (2017) 14754.
- [2] A. Lemmerer et al., Cryst. Eng. Comm. 12 (2010) 1290.
- [3] D Shiratori et al., Sens. Mater. 35 (2023) 439.

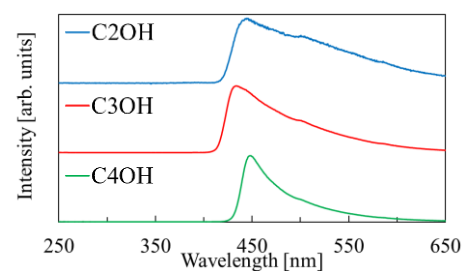


図 1 シンチレーションスペクトル。

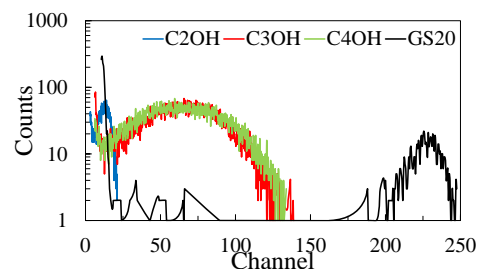


図 2 α 線励起下パルス波高スペクトル。

Nd³⁺添加 BaO–BaCl₂–TeO₂ ガラスの放射線応答性Scintillation properties of Nd³⁺-doped BaO–BaCl₂–TeO₂ glasses秋田大学¹、奈良先端科学技術大学院大学²、産業技術総合研究所³○鈴木 翼¹、宗田 駿太郎¹、河野 直樹¹、中内 大介²、加藤 匠²、岡崎 魁²、市場 賢政²、西川 晃弘²、宮崎 慧一郎²、篠崎 健二³、柳田 健之²Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²National Institute of Advanced Industrial Science and Technology³○Tsubasa Suzuki¹, Shuntaro Muneta¹, Naoki Kawano¹, Daisuke Nakauchi², Takumi Kato²,Kai Okazaki², Kensei Ichiba², Akihiro Nishikawa², Keiichiro Miyazaki², Kenji Shinozaki³,Takayuki Yanagida²E-mail: m8024210@s.akita-u.ac.jp

【緒言】高線量場の遠隔線量モニタリングやバイオイメージングへの応用可能性から、近赤外領域で発光を示すシンチレータに注目が集まっている。これまでに、希土類元素(Er³⁺、Nd³⁺)を添加した単結晶やガラスを用いた当該シンチレータの研究が行われており、なかでも Nd³⁺添加テルライトガラス(1Nd₂O₃–10La₂O₃–10TiO₂–79TeO₂)の最低検出線量が 5 mGy/h であり、非常に低い値であることがわかった[1]。本研究では、発光量向上に向けて、酸化物よりも格子振動エネルギーが小さい塩化物を導入したハライドテルライトガラス[xNd₂O₃–(20-x)BaO–20BaCl₂–60TeO₂ (x = 0.1, 0.5, 1.0, 3.0)]を作製し[2]、その放射線応答性を評価した。

【実験方法】原料粉末(Nd₂O₃、BaCO₃、BaCl₂、TeO₂)を混合後、混合物をプラチナ坩堝中に入れ、800 °C で 20 分間加熱した。その後、300 °C で急冷することでガラスを得た。

【実験結果】図 1 にシンチレーションスペクトルを示す。発光ピークが 903、1058、1335 nm に観測された。これらは Nd³⁺の 4f-4f 遷移に由来する。作製した試料の中で、Nd₂O₃ 1.0%添加ガラスが最大強度を示した。

図 2 にシンチレーション時間プロファイルを示す。第 2 成分の減衰時定数は 180 μs (Nd₂O₃ 0.1%)、162 μs (Nd₂O₃ 0.5%)、125 μs (Nd₂O₃ 1.0%)、28 μs (Nd₂O₃ 3.0%)であった。これらは Nd³⁺の 4f-4f 遷移に由来すると推察される[1]。本講演では当該ガラス試料のシンチレーション特性の詳細について議論する。

【参考文献】

[1] S. Muneta et al., 第 71 回応用物理学会春季学術講演会講演予稿集。

[2] 角野広平, New Glass, 21 (2006) 50.

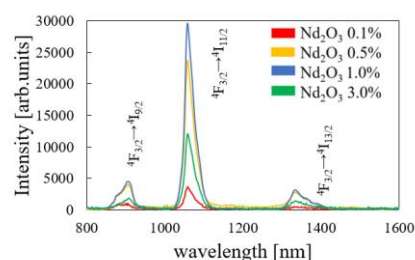


図 1 シンチレーションスペクトル。

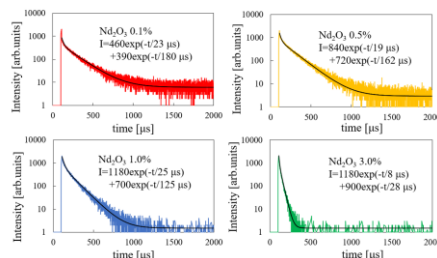


図 2 シンチレーション時間プロファイル。

Er₂O₃-TeO₂-TiO₂-La₂O₃ 結晶化ガラスの放射線応答特性

Radiation response properties of Er₂O₃-TeO₂-TiO₂-La₂O₃ glass ceramics

秋田大学¹, 奈良先端科学技術大学院大学², 産業技術総合研究所³

○宗田 駿太郎¹, 河野 直樹¹, 中内 大介², 加藤 匠², 岡崎 魁², 市場 賢政²,
國方 俊彰², 西川 晃弘², 宮崎 慧一郎², 加賀谷 史¹, 篠崎 健二³, 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²,

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology³

○Shuntaro Muneta¹, Naoki Kawano¹, Daisuke Nakauchi², Takumi Kato², Kai Okazaki²,

Kensei Ichiba², Toshiaki Kunikata², Akihiro Nishikawa², Keiichiro Miyazaki², Fumito Kagaya¹,

Kenji Shinozaki³, Takayuki Yanagida²

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

【緒言】近年、加工の容易さや生産コストの低さなどの産業的利点の観点から、シンチレータ材料として新たにガラスが注目されている。これまで我々はTeO₂ガラスに着目した研究を行っており、中でも1Er₂O₃-3BaO-20Nb₂O₅-76TeO₂ガラスにおける近赤外発光の観測に必要な最低検出線量が非常に低い値(0.5 mGy/h)であることが判明した[1]。そこで本研究では、当該最低検出線量をさらに減少させるために、新たに0.5Er₂O₃-79.5TeO₂-10TiO₂-10La₂O₃ガラスおよびその結晶化ガラスを作製し、その放射線応答性を評価した。

【実験方法】原料粉末(Er₂O₃, TiO₂, La₂O₃, TeO₂)を混合し、900℃で1時間加熱した後、熔融物を300℃で急冷し、ガラス(PG)を得た。さらに、PGに対してそれぞれ480℃、490℃で24時間の熱処理を施すことで、結晶化ガラス(GC480、GC490)を作製した。

【実験結果】図1にX線励起シンチレーションスペクトルを示す。全ての試料で981 nm、1530 nmにEr³⁺の4f-4f遷移由来のピークが観測された[1]。作製した試料のうち、最大強度がGC490で観測された。

図2にX線励起シンチレーション減衰曲線を示す。第2成分の減衰時定数が25.8 μs (PG)、22.3 μs (GC480)、26.8 μs (GC490)であった。これらは、Er³⁺の4f-4f遷移に由来すると推察される[1]。本講演では当該ガラスおよび結晶化ガラスの放射線応答特性について詳細に議論する。

【参考文献】

[1] N. Kawano et al, Jpn. J. Appl. Phys. 62(7) (2023) 072002.

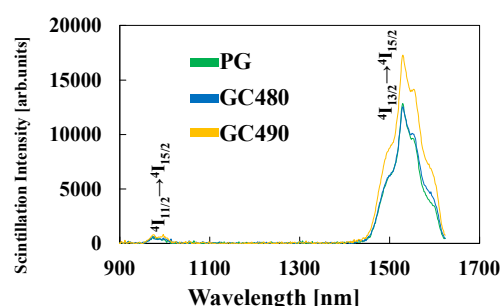


図1 シンチレーションスペクトル。

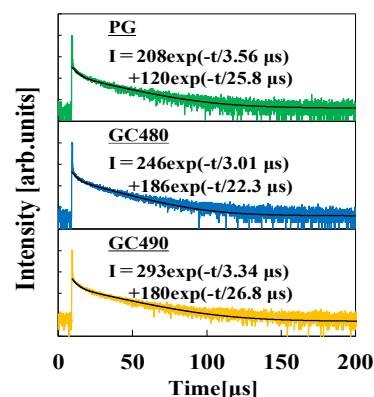


図2 シンチレーション減衰時間曲線。

ラジオフォトルミネッセンスを用いた リアルタイム中性子測定技術の開発

Development of Real-time Neutron Measurement by using Radiophotoluminescence

金沢工大¹, 静岡大², 東京都立大³, 九州大³ ○岡田 豪¹, 越水 正典², 眞正 浄光³,
渡辺 賢一⁴, 南戸 秀仁¹

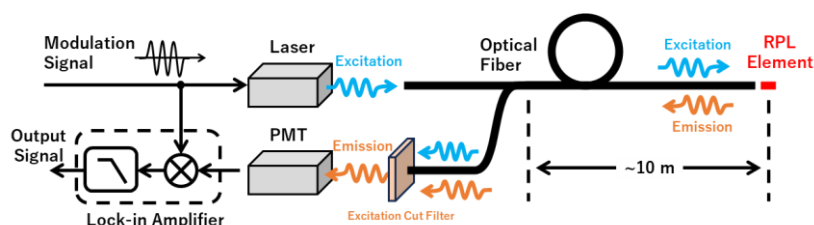
Kanazawa Inst. of Tech.¹, Shizuoka Univ.², Tokyo Metropol. Univ.³, Kyushu Univ.⁴,

○Go Okada¹, Masanori Koshimizu², Kiyomitsu Shinsho², Kenichi Watanabe², Hidehito Nanto²

E-mail: go.okada@neptune.kanazawa-it.ac.jp

ラジオフォトルミネッセンス (RPL) は被ばく線量計における放射線検出素子として 2000 年より千代田テクノルにより事業化されて以降、個人被ばく線量モニタリングサービス、環境放射線測定などに利用されている。また近年では蛍光飛跡検出器としての応用も期待され、各国で取り組みが活発化している。

本研究では新たな RPL の応用として、中性子場のリアルタイム測定技術を開発することを目的とした。Fig. 1 にそのコンセプトを示す。



中性子に感度を持つ RPL 素子
Fig. 1 Concept diagram of real-time neutron detection system using RPL.
子を光ファイバの先端に固定し、レーザーからの励起光を受けて発光を示す。この発光強度は積算中性子量に比例し、蛍光信号は光ファイバを通して光電子増倍管 (PMT) で検出される。さらに、励起光に変調をかけることにより RPL 蛍光体からの信号以外のノイズ成分を除去することが可能となる。この手法は読取側から能動的に変調をかける事ができ、かつ読み取りにより記録情報が失われない RPL であるからこそ可能であり、RPL の独自性が生かされている。

中性子に感度を持つ RPL 材料の候補のひとつとして Eu 添加 LiCaPO₄ が挙げられる。Fig. 2 に同材料の蛍光スペクトルを示す。X 線照射線量に比例して蛍光スペクトルが増加する事が認められる。同変化は前駆体である Eu³⁺が電離した電子を捕獲し、Eu²⁺が形成される事により生じたものと考えられる。中性子においても ⁶Li(n,α)³H 反応により同様の効果が期待される。

謝辞 本研究は中部電力原子力安全技術研究所の支援を受けて実施された。

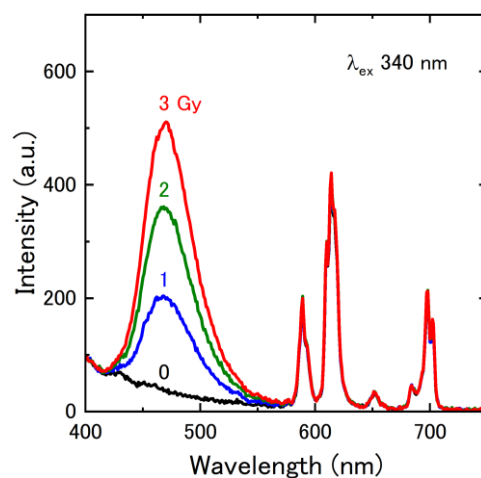


Fig. 2 Photoluminescence spectrum of Eu-doped LiCaPO₄ as a function of accumulated X-ray dose.

Tb 添加 SrTa₂O₆ 単結晶のシンチレーション特性

Scintillation properties of Tb-doped SrTa₂O₆ single crystals

福岡大工¹, 奈良先端大² (D) 〇富永雄太^{1,2}, 加藤匠², 西川晃弘², 宮崎慧一郎², 中内大介²,
河口範明², 柳田健之²

Fukuoka Univ.¹, NAIST.², 〇Yuta Tominaga^{1,2}, Takumi Kato², Akihiro Nishikawa²,
Keiichiro Miyazaki², Daisuke Nakauchi², Noriaki Kawaguchi², Takayuki Yanagida²

E-mail: y.tominaga.fo@fukuoka-u.ac.jp

シンチレータは電離放射線を照射した際に蛍光を生じる物質であり、光電子増倍管や Si フォトダイオードなどの光検出器と組み合わせることで医療、環境測定、セキュリティ等に用いられている。シンチレータ材料に求められる特性は高い発光量、短い蛍光寿命、低い残光レベル、高い実効原子番号、化学的安定性など様々であり、すべての条件を満たす理想的な既存材料は無い。そのため、現在も新規の材料探索が行われている。本研究では SrTa₂O₆ 単結晶に注目した。SrTa₂O₆ は 3.8~4.4eV のバンドギャップを持つ化合物であり [1]、水分子を H₂ 分子と O₂ 分子に分解するための光触媒や高周波回路等で使用されている [2,3]。シンチレータ応用に関しては、Ta に由来する高い実効原子番号 (66.2) を有すること、また Sr のイオン半径は発光中心として用いる希土類イオンに近いことから希土類イオンを添加できる利点があることから、シンチレータ材料として適していると考えられる。本研究では SrTa₂O₆ 単結晶に Tb を 0.1%、0.3%、1.0%、3.0% 添加した試料を Floating Zone 法を用いて作製し、シンチレーション特性の評価を行った。

Fig. 1 に Tb: SrTa₂O₆ 単結晶のシンチレーションスペクトルを示す。各試料において、495、550、590、630nm 付近に発光が確認された。この発光は Tb³⁺ の 4f-4f 遷移に由来する発光と考えられる [4]。Fig. 2 に Tb: SrTa₂O₆ 単結晶のシンチレーション減衰曲線を示す。減衰曲線は二成分の指数関数で近似され、減衰時定数はミリ秒オーダーの値を示した。

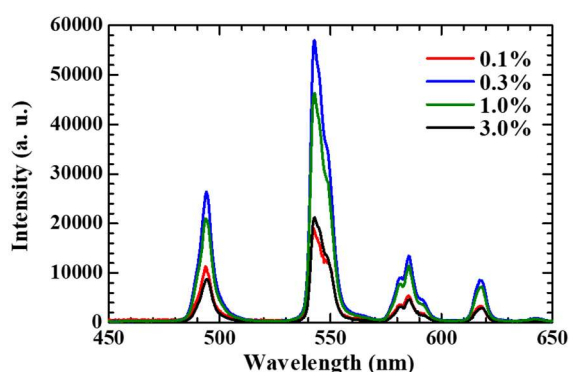


Fig. 1 Scintillation spectra of Tb-doped SrTa₂O₆ single crystals.

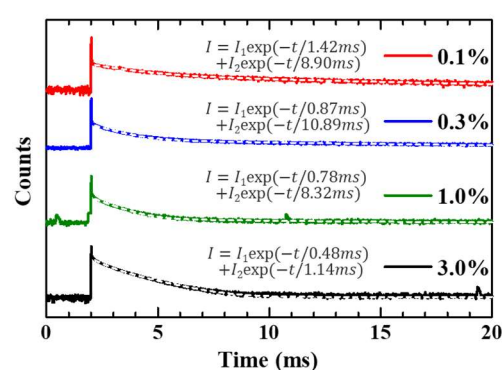


Fig. 2 Scintillation decay curves of Tb-doped SrTa₂O₆ single crystals.

参考文献

- [1] E. Lee *et al.*, J. Solid. State. Chem., **191**, 232-238 (2012). [2] K. Yoshioka *et al.*, J. Catal., **232**, 102-107 (2005).
[3] L. Lu *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., **51**, 03CB05 (2012). [4] Y. Endo *et al.*, Solid State Sciences., **145**, 107333 (2023).

2 放射線 | 一般セッション(口頭講演): 2.5 放射線誘起蛍光体

[16p-D62-1~17] 2.5 放射線誘起蛍光体

[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)

[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)

[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)

[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)

[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)

[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、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[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、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.九州大)

[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)

[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)

[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、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[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、河口 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)

[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 (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)

[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、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[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、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[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、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[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、河口 範明¹ (1.奈良先端大)

[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な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。

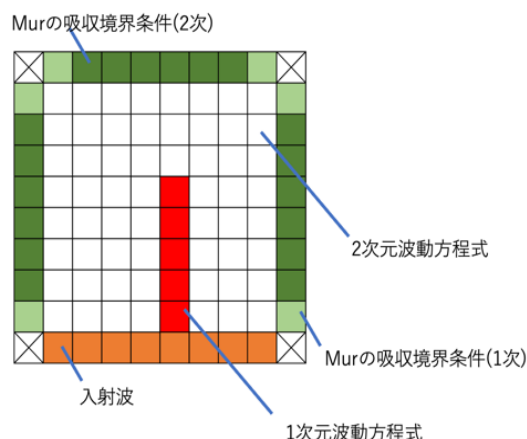


Fig. 1 Calculation conditions at each mesh

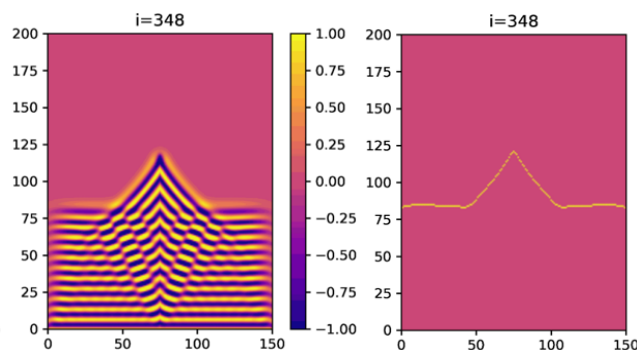


Fig. 2 Simulation using wave equation for a proton.

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℃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 中もたらす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。

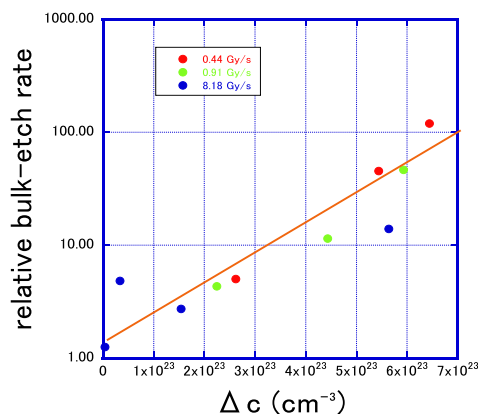


Fig. 1 Change in hydroxyl groups due to gamma irradiation.

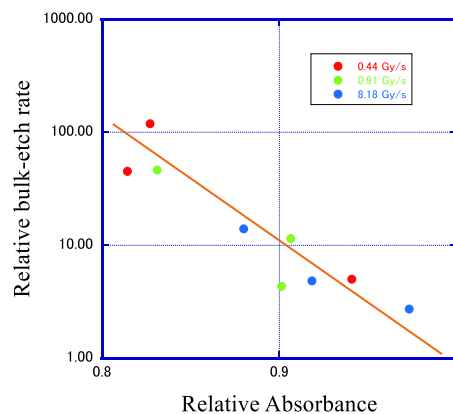


Fig. 2 Change in ether groups due to gamma irradiation.

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との関係を 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との関係を 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。

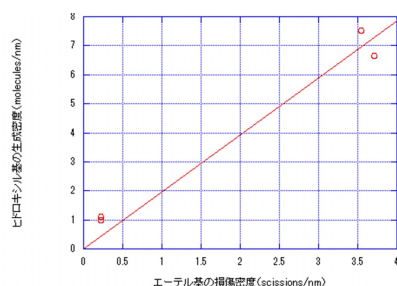


Fig.1 損傷密度と生成密度の相関 (プロトン)

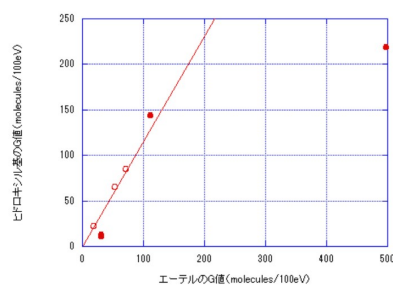


Fig.2 G 値の相関 (ガンマ線)

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 Ngono-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 Ngono-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られている。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。

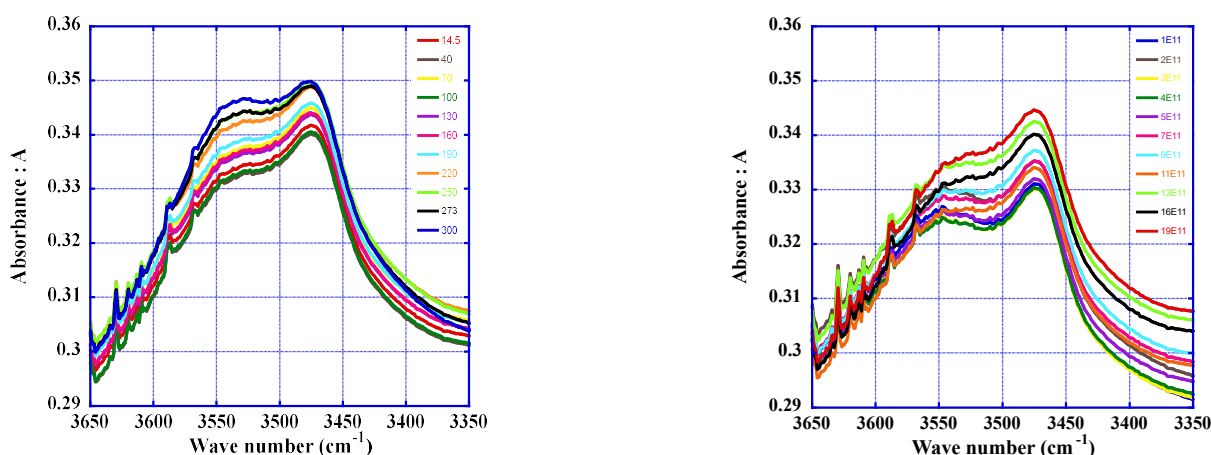


Fig1. Changes of OH groups in IR spectrum with fluence and temperature

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 ($\sim 16,000$ ph/MeV) が得られ、これは市販の Bi $_4$ Ge $_3$ O $_{12}$ 単結晶 ($\sim 7,000$ 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。

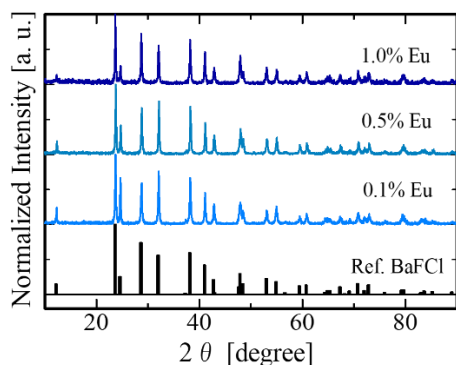


Fig. 1. XRD patterns of the prepared Eu:BaFCl samples and reference pattern of BaFCl (COD 9013891).

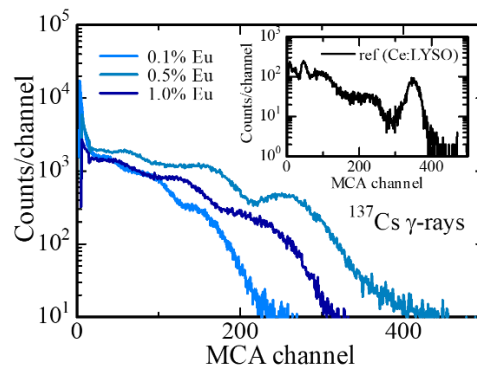


Fig. 2. Pulse height spectra of the samples under ^{137}Cs γ -ray (662 keV) irradiation. The inset indicates that of the Ce:(Lu,Y) $_2$ SiO $_5$ single crystal.

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。

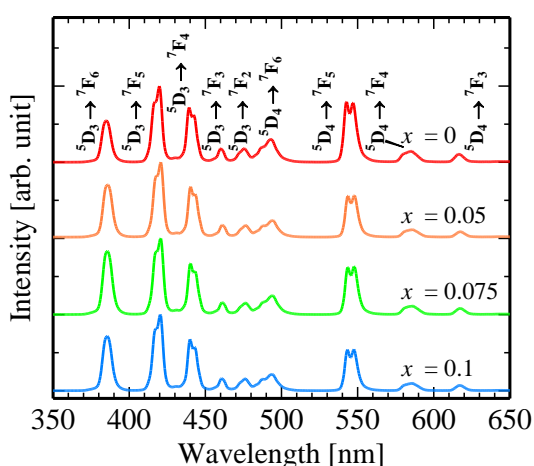


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of the Tb:Ca_{1-x}Mg_xHfO₃.

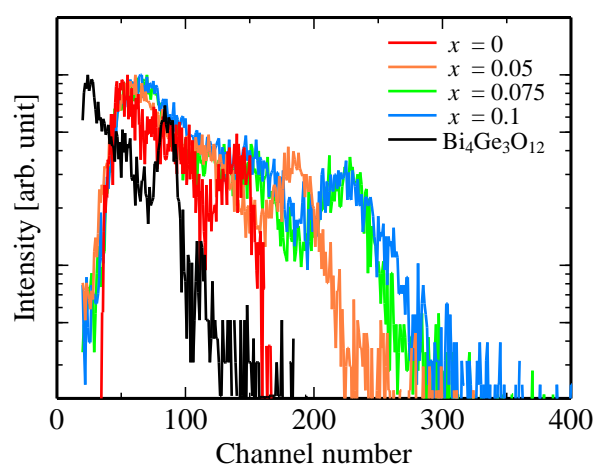


Fig. 2 Pulse height spectra of the Tb:Ca_{1-x}Mg_xHfO₃ and Bi₄Ge₃O₁₂ under γ -ray irradiation from ¹³⁷Cs (662 keV).

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]。

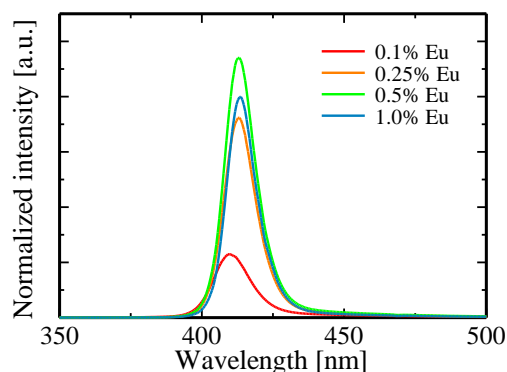


Fig. 1. X-ray-induced scintillation spectra of the SrCl₂:Eu transparent ceramics.

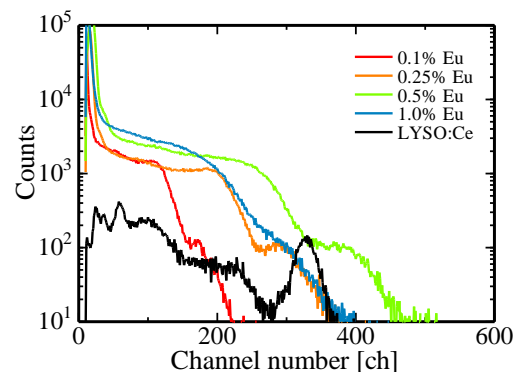


Fig. 2. Fig.2 Pulse height spectra of the SrCl₂:Eu and LYSO:Ce under ¹³⁷Cs γ-ray (662 keV) irradiation.

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 亙太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。

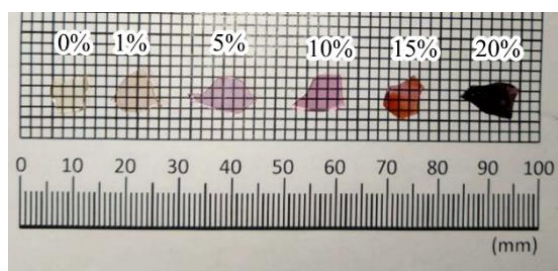


Figure 1 Picture of glass samples doped with 0, 1, 5, 10, 15, and 20% Nd from left to right.

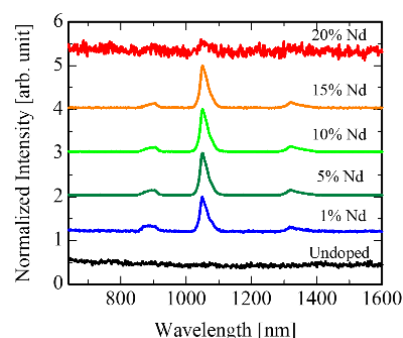


Figure 2 Scintillation spectra of Nd-doped BaO-Bi₂O₃-P₂O₅ glass samples.

<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。

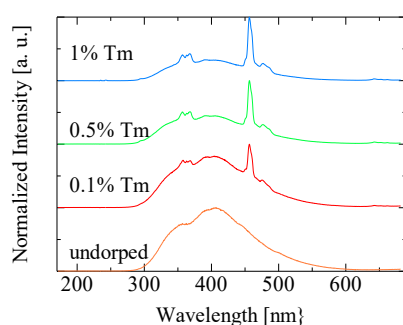


Fig. 1. X-ray-induced scintillation spectra of undoped and Tm-doped CTGS.

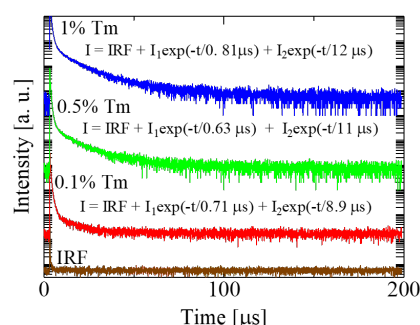


Fig. 2. X-ray-induced scintillation decay curves of Tm-doped CTGS.

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 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 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 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 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 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (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 Mn^{2+} の ${}^4\text{T}_1 \rightarrow {}^6\text{A}_1$ 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。

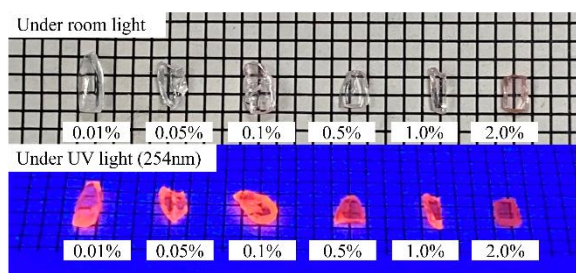


Fig 1. Appearances of the Mn:YAG single crystals Under room light (top) and under UV light (254nm) (bottom).

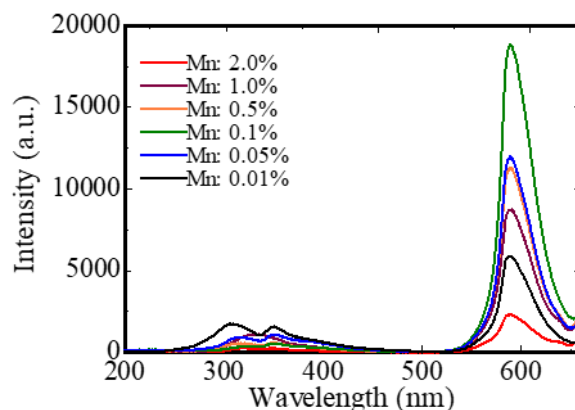


Fig 2. X-ray induced scintillation spectra of Mn:YAG single crystals

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 $\text{Gd}_3(\text{Al,Ga})_5\text{O}_{12}$ 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 $\text{Gd}_3(\text{Al,Ga})_5\text{O}_{12}$ 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

シンチレーター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。シンチレーター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ー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ー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ーも検討されている[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 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG)[2]、 $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$ (GAGG)[3]、 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (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 $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$ が X・ γ 線検出に適した高い実効原子番号($Z_{\text{eff}}=54$)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 シンチレーターの性能向上を目的として、異なる Al/Ga 比を有する $\text{Gd}_{2.85}\text{Eu}_{0.15}\text{Al}_x\text{Ga}_{5-x}\text{O}_{12}$ ($x=0, 1, 2, 3, 4$)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 $\text{Gd}_{2.85}\text{Eu}_{0.15}\text{Al}_x\text{Ga}_{5-x}\text{O}_{12}$ ($x=0, 1, 2, 3, 4$) 単結晶の X 線回折パターンを示す。 $\text{Gd}_{2.85}\text{Eu}_{0.15}\text{Al}_x\text{Ga}_{5-x}\text{O}_{12}$ ($x=0, 1, 2, 3$) においては $\text{Gd}_3\text{Al}_3\text{Ga}_2\text{O}_{12}$ のリファレンスパターンと回折ピークが一致した。 $\text{Gd}_{2.85}\text{Eu}_{0.15}\text{Al}_4\text{GaO}_{12}$ 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 $\text{Gd}_{2.85}\text{Eu}_{0.15}\text{Al}_x\text{Ga}_{5-x}\text{O}_{12}$ ($x=0, 1, 2, 3$)単結晶及び市販の $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (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、 $\text{Gd}_{2.85}\text{Eu}_{0.15}\text{Al}_3\text{Ga}_2\text{O}_{12}$ 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。

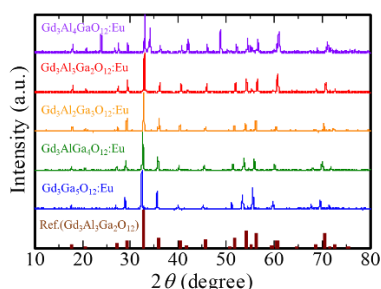


Fig 1. XRD patterns of the GAGG:Eu single crystals

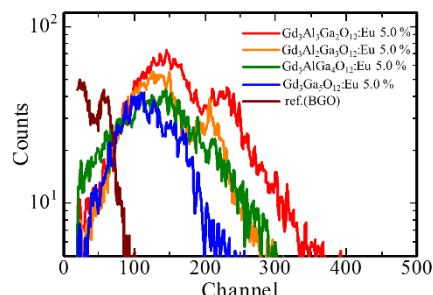


Fig 2. Pulse height spectra (γ -ray irradiation from ¹³⁷Cs) of the reference BGO and the Eu:GAGG single crystals.

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 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 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.tq6@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キ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 $4f \rightarrow 4f$ 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。

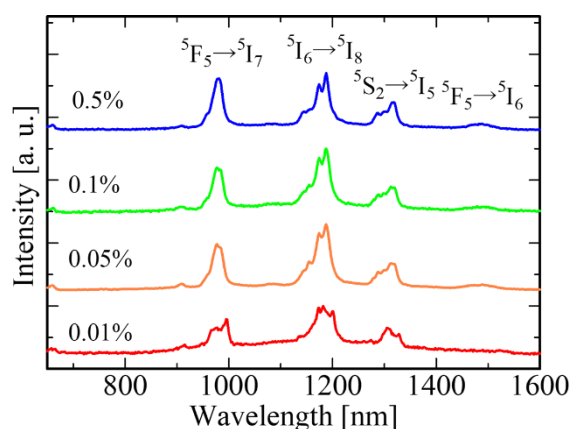


Figure 1 Scintillation spectra of Ho-doped CsI single crystals under X-ray irradiation.

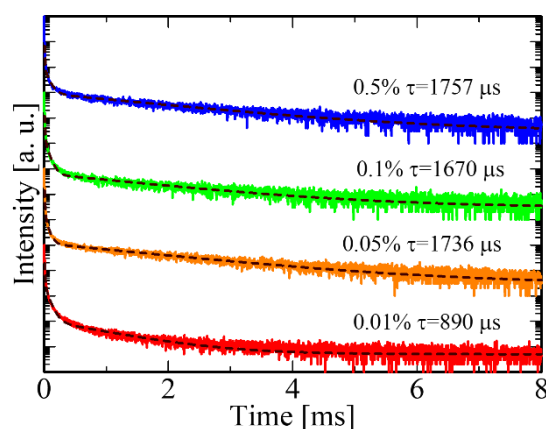


Figure 2 Scintillation decay curves of Ho-doped CsI single crystals under X-ray irradiation.

<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 Yanagida

E-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 $4f^65d-4f^7$ ($^8S_{7/2}$) 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 $4f^65d-4f^7$ ($^8S_{7/2}$) 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。

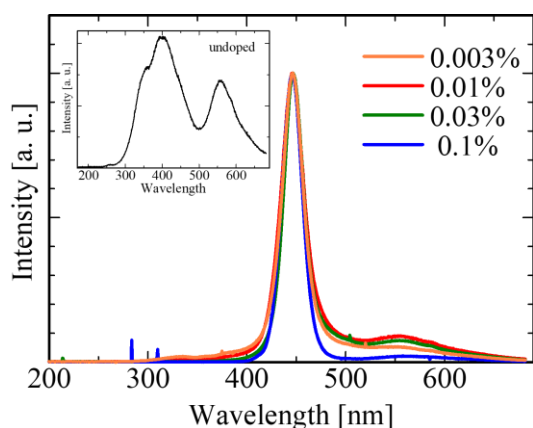


Fig. 1 Scintillation spectra of Eu-doped LiBr single crystals under X-ray irradiation.

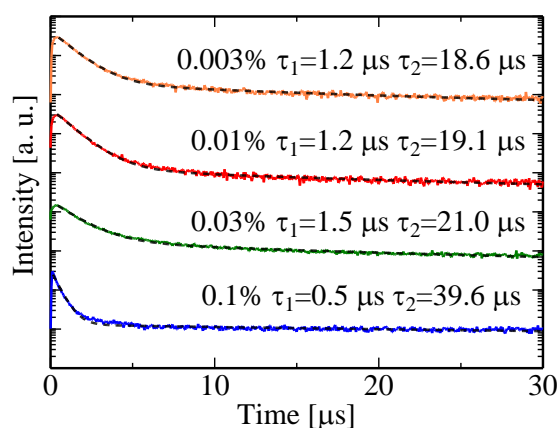


Fig. 2 Scintillation decay curves of Eu-doped LiBr single crystals under X-ray irradiation.

<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]。

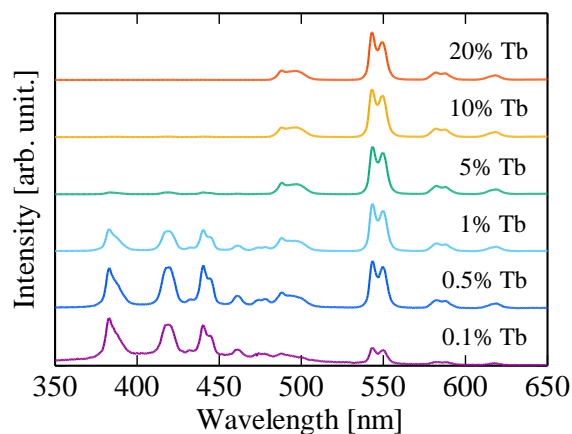


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of Tb-doped $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ crystals.

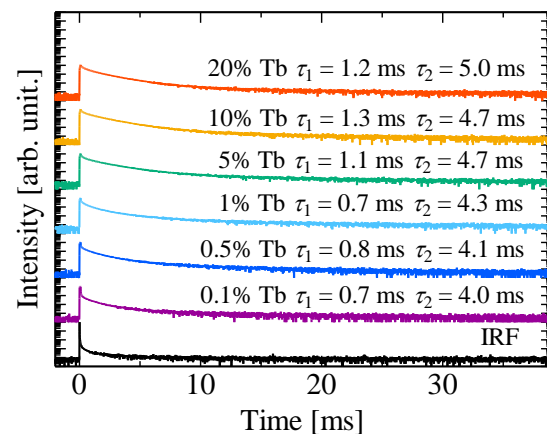


Fig. 2 X-ray-induced scintillation decay curves of Tb-doped $\text{Sr}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ crystals.

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。

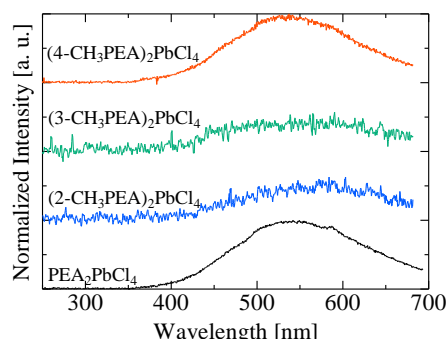


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of (n-CH₃PEA)₂PbCl₄ crystals.

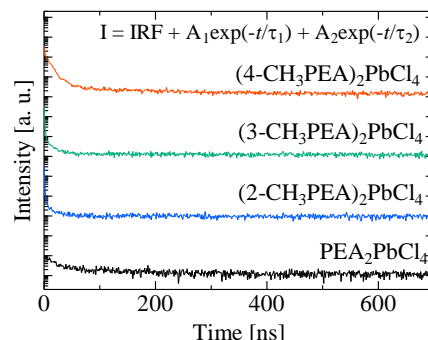


Fig. 2 X-ray-induced scintillation decay curves of (n-CH₃PEA)₂PbCl₄ crystals.

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

2 放射線 | 一般セッション(口頭講演): 2.5 放射線誘起蛍光体

[17a-B5-1~7] 2.5 放射線誘起蛍光体

[17a-B5-1]

中性子検出用Ce添加 $\text{BPO}_4\text{-Al}(\text{PO}_3)_3\text{-CsPO}_3$ ガラスシンチレータの開発○長谷川 洸¹、渡邊 晶斗¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[17a-B5-2]

赤色発光シンチレータ $\gamma\text{-CuI}$ 単結晶の耐水性及び紫外線耐性評価○藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[17a-B5-3]

Au添加ソーダ石灰ガラスにおけるラジオフォトルミネッセンス

○川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[17a-B5-4]

 α 線検出用スピネル単結晶のシンチレーション特性評価○竹渕 優馬¹、手塚 慶太郎¹、市場 賢政²、加藤 匠²、中内 大介²、河口 範明²、柳田 健之² (1.宇都宮大、2.奈良先端大)

[17a-B5-5]

Ce: $\text{Na}_2\text{O-Gd}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ ガラスのシンチレーション特性における組成依存性○王 晨陽¹、白鳥 大毅¹、木村 大海²、西川 晃弘³、福地 裕¹、柳田 健之³ (1.東京理科大、2.産総研、3.奈良先端大)

[17a-B5-6]

[第3回極限的励起状態の形成と量子エネルギー変換研究グループ論文賞受賞記念講演] SPS法によるEu: BaFBr 透光性セラミックスの光学および輝尽性蛍光特性○木村 大海¹、加藤 匠²、藤原 健¹、田中 真人¹、岡田 豪³、中内 大介²、河口 範明²、柳田 健之² (1.産総研、2.奈良先端大、3.金沢工大)

[17a-B5-7]

[第3回極限的励起状態の形成と量子エネルギー変換研究グループ論文賞受賞記念講演] 希土類配位ポリマー結晶の形態変化とその光機能

○中西 貴之¹、平井 悠一²、許 健²、武田 隆史¹、渡邊 俊祐³、安盛 敦雄³、袴田 翔⁴、北川 裕一^{4,5}、長谷川 靖哉^{4,5} (1.物材機構、2.物材機構-ICYS、3.東理大先進工、4.北大院工、5.北大 WPI-ICReDD)

中性子検出用 Ce 添加 $\text{BPO}_4\text{-Al(PO}_3)_3\text{-CsPO}_3$ ガラスシンチレータの開発

Development of Ce-doped $\text{BPO}_4\text{-Al(PO}_3)_3\text{-CsPO}_3$ glass scintillators for neutron detection

東北大院工, °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 ^3He ガスの枯渇危機を受け, ^3He 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 ^6Li や ^{10}B 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り, またこの原料であるリチウムは, リチウムイオンバッテリー原料としての需要増大に伴い, 今後さらなる価格の高騰が予想される. そこで, 熱中性子捕獲反応を生じる元素として, より安価であり, ^6Li よりも熱中性子捕獲反応断面積の大きさに勝る ^{10}B に着目した. 本研究では, B 含有リン酸塩ガラスである Ce 添加 $\text{BPO}_4\text{-Al(PO}_3)_3\text{-CsPO}_3$ ガラスを製出し, その蛍光およびシンチレーション特性を調査した.

【実験方法】原料には, $\text{BPO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (78.9%), $\text{Al(PO}_3)_3$ (99.999%), CsH_2PO_4 (99%), 及び CeBr_3 (99.99%) を用いた. これらをそれぞれ $\text{BPO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O} : \text{Al(PO}_3)_3 : \text{CsH}_2\text{PO}_4 : \text{CeBr}_3 = 0.5 : 1 : 1.5 : x$ ($x = 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$) の割合で混合し, 真空中 1000°C で熔融後, 水中にて急冷した. これを試料として, X 線励起発光 (XRL) スペクトル, ^{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. また, 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認められ, 放射線励起での 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. $x=0.3$ を除く全試料において熱中性子由来のピークが観測され, 当該ガラスは熱中性子検出能を有することが示唆された. また, GS20 のピークチャンネル数との比較によって算出した発光量は $x = 0.5$ において最大となり, その値は 390 photons/neutron であった. こうして, Ce 添加 $\text{BPO}_4\text{-Al(PO}_3)_3\text{-CsPO}_3$ ガラスの新規中性子シンチレータとしての応用可能性が実証された.

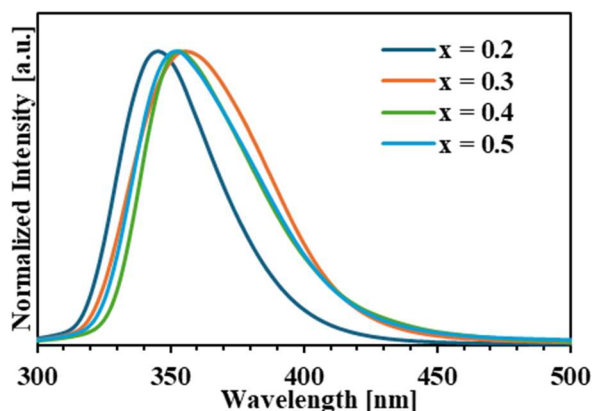


Fig. 1 XRL spectra.

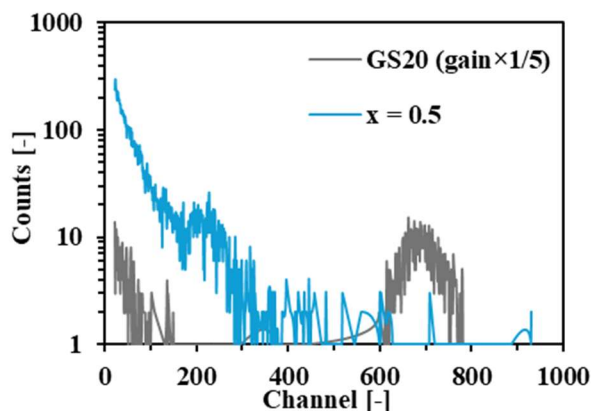


Fig. 2 ^{252}Cf -neutron-irradiated pulse-height spectra.

赤色発光シンチレータ γ -CuI 単結晶の耐水性及び紫外線耐性評価 Water and UV light resistance test of a red-emitting scintillator: γ -CuI single crystal

藤本 裕、川本 弘樹、浅井 圭介 (東北大院工)

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

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

【緒言】

不可視な放射線を検出・測定する技術の一つに、シンチレータと光センサを組み合わせた固体検出器が挙げられる。一般に、この光センサには、高い SN と室温での安定した動作から光電子増倍管(PMT)が用いられ、また、その最高感度波長領域が 300–450 nm であることから、これらと組み合わせるシンチレータも、この波長領域で発光する材料が自動的に選ばれる。しかしながら近年、バイオイメージングや、半導体及び太陽電池評価技術の発達に伴い、Si 系のフォトダイオード(PD)やアバランシェフォトダイオード(APD)などの長波長領域(500–1000 nm)に感度を持つ検出器が著しい進歩を見せている。そこで我々は、PD や APD との波長マッチングが良好な赤色発光型の新規シンチレータ開発を着想した。近年我々は、アセトニトリル溶液から育成したヨウ化銅半導体結晶において、深いドナー準位からの赤色発光を確認し、 ^{137}Cs -662 keV のガンマ線励起下で約 80,000 光子 MeV^{-1} の高いシンチレーション発光量を達成した[1]。本研究では、当該シンチレータの実用性の検証として、耐水性及び紫外線耐性の評価を行った。

【実験内容と考察】

評価用の γ -CuI 単結晶は、アセトニトリルを溶媒に用いた昇温結晶化法により作製した。耐水性の評価は、スクリュ管瓶に入れた超純水に試料を浸し、1 時間保持したものについてシンチレーション波高スペクトルを測定し、その影響について検証した。本測定の励起源には ^{241}Am の 59.5 keV ガンマ線を使用した。図 1 に波高スペクトル測定の結果を示す。どちらも 59.5 keV のガンマ線に起因した光電吸収ピークが 80 channel 付近に確認された。この結果より、少なくとも 1 時間程度、水に浸したくらいでは、シンチレーション発光量の低下は見られず、高い耐水性があることが示唆された。これは、結晶の外観の変化が全く見られないこととも一致し、水に対するヨウ化銅の溶解度が小さい($\sim 0.00042 \text{ g}/100 \text{ mL}@25^\circ\text{C}$)ことが大きな要因と推察される。

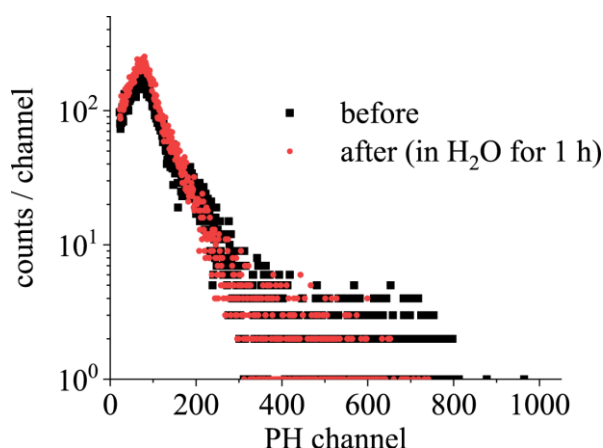


Fig. 1 Pulse height spectra of the γ -CuI single crystal before and after water immersion.

参考文献

Y. Fujimoto and K. Asai, Jpn. J. Appl. Phys. 62 010605 (2023).

Au 添加ソーダ石灰ガラスにおけるラジオフォトルミネッセンス

Radiophotoluminescence in Au-doped soda-lime glasses

東北大院工¹, °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】ラジオフォトルミネッセンス (RPL) とは、放射線照射により形成される新たな蛍光中心 (RPL 中心) の光励起による蛍光現象である。RPL 強度は吸収線量に対して線形に増加するため、積算型線量計の動作原理として利用されている。1960 年代から現在まで、RPL 能を示す銀添加リン酸塩ガラスが個人被ばく線量計の素子として市販されている。当該素子が長年用いられ続けていることは、銀添加リン酸塩ガラスの優れた性能を示すとともに RPL 材料開発の進展が遅々としていることも示している。そこで本研究では、新規 RPL 材料開発を目的として、銀と同族元素である金に着目した。金添加ソーダ石灰ガラスにおける放射光照射による新たな蛍光帯の現出が報告^[1]されているため、我々は当該材料の RPL 線量計への応用を企図するに至った。本研究では新規 RPL 線量計材料の開発を目的として、金添加ソーダ石灰ガラスにおける RPL 特性を調査した。

【実験内容】 SiO_2 , CaCO_3 , Na_2CO_3 及び $\text{AuCl}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ の粉末試薬を用いて、 $69.3\text{SiO}_2\text{--}9.9\text{CaO--}19.6\text{Na}_2\text{O--}1\text{AuCl}_3$ ガラスを融液急冷法により作製した。試料に X 線を 1–1000 Gy 照射し、各線量における蛍光 (励起波長: 330 nm) 及び励起スペクトル (蛍光波長: 810 nm) を測定した。

【結果と考察】Figure 1 に蛍光及び励起スペクトルの線量依存性を示す。線量増大に伴って、300–320 nm の励起帯及び 650–900 nm の蛍光帯の強度増強が観測された。既報^[1]に基づくと、この励起及び蛍光帯は金の二量体に帰属されている。これらの結果から、金添加ソーダ石灰ガラスは金の二量体を RPL 中心とする RPL を生じることが示された。Figure 2 に 650–900 nm における蛍光強度の線量依存性を示す。

RPL 強度は 100 Gy まで線量に対して線形に増加した。また、 3σ 法に基づいて得られた検出下限は 1.71 Gy であることから、金添加ソーダ石灰ガラスの計測可能な線量範囲は 1.71–100 Gy であることが分かった。

【参考文献】[1] M. Eichelbaum, et. al., Nanotechnology, **19**, 135701 (2008).

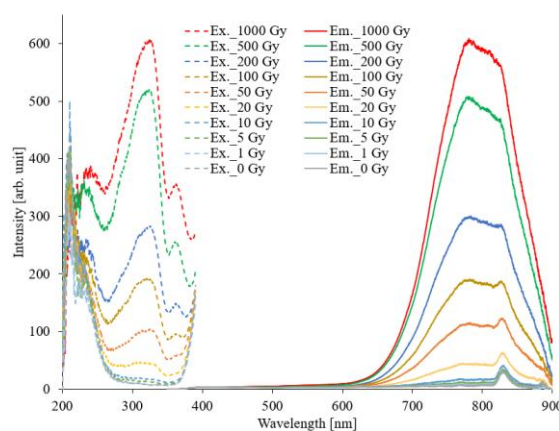


Fig. 1 Dose dependences of the photoluminescence emission and excitation spectra

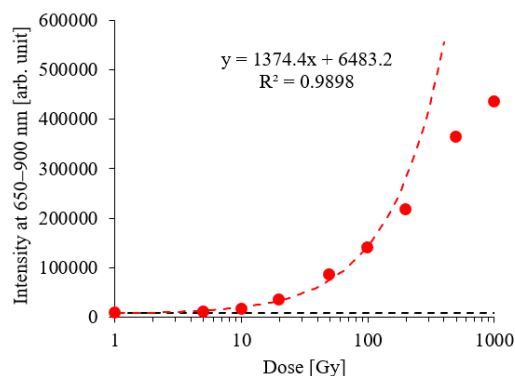


Fig. 2 Dose dependence of the emission intensity

α 線検出用スピネル単結晶のシンチレーション特性評価

Evaluation of scintillation properties of spinel single crystals for α -ray detection

宇都宮大¹, 奈良先端大² ◯竹淵 優馬¹, 手塚慶太郎¹, 市場賢政², 加藤 匠²,

中内 大介², 河川 範明², 柳田 健之²

Utsunomiya Univ.¹, NAIST² ◯Yuma Takebuchi¹, Keitaro Tezuka¹, Kensei Ichiba², Takumi Kato¹,

Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: takebuchi@a.utsunomiya-u.ac.jp

従来の α 線検出器には主に Ag 添加 ZnS が利用されている。Ag 添加 ZnS は高い発光量を持つ一方で不透明材料であり、検出効率が低いという課題がある。そのため高い透光性を有する α 線用シンチレータの開発が求められている。スピネル化合物はその光学特性や放射線耐性の高さからシンチレータとして有望な材料であり、先行研究において MgGa_2O_4 および ZnGa_2O_4 の γ 線照射下でのシンチレーション特性が報告されている [1]。上記のスピネル化合物は実効原子番号が ZnS と同程度であり、 α 線用シンチレータとしての応用に検討の余地がある。また他のスピネル化合物においてもシンチレーション特性検討の余地がある。本研究では MgAl_2O_4 、 MgGa_2O_4 、 ZnAl_2O_4 、 ZnGa_2O_4 単結晶を作製し、光学およびシンチレーション特性の評価を行った。

図 1 に MgAl_2O_4 、 MgGa_2O_4 、 ZnAl_2O_4 、 ZnGa_2O_4 単結晶の X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。各サンプルはそれぞれ 380、400、300、350 nm 付近に酸素欠陥由来と考えられる発光ピークを呈した [2]。また 500–520 nm 付近に不純物である Mn^{2+} 由来と考えられる発光ピークを呈した [3]。図 2 に各サンプルの ^{241}Am の α 線照射下におけるパルス波高値スペクトルを示す。各サンプルは明瞭な全吸収ピークを示し、 MgAl_2O_4 、 MgGa_2O_4 、 ZnAl_2O_4 、 ZnGa_2O_4 単結晶の発光量はそれぞれ 200、4300、700、5700 ph/5.5MeV- α であった。

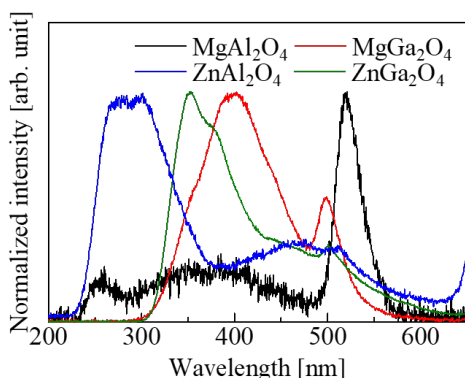


Fig. 1. X-ray-induced scintillation spectra of spinel single crystals.

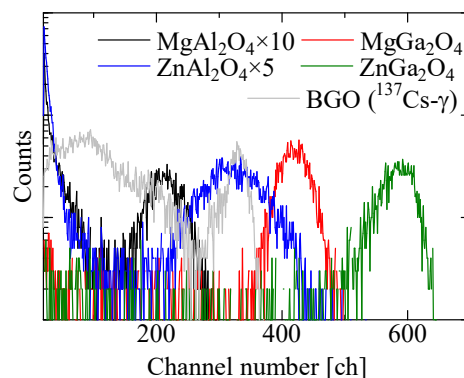


Fig. 2. ^{241}Am - α irradiated pulse height spectra of spinel single crystals.

参考文献

- [1] A. Bachiri et al., Opt. Mater. Express, **13**, 1345 (2023). [2] B. Jiang et al., J. Appl. Phys., **124**, 063101 (2018). [3] A. Lucchekko et al., Opt. Mater., **78**, 502 (2018).

Ce:Na₂O-Gd₂O₃-P₂O₅ ガラスのシンチレーション特性における組成依存性

Composition dependence in the scintillation properties of Ce: Na₂O-Gd₂O₃-P₂O₅ glasses

東京理科大¹, 産総研², 奈良先端大³ ◯(M)王 晨陽¹, 白鳥 大毅¹, 木村 大海²,

西川 晃弘³, 福地 裕¹, 柳田 健之³

TUS.¹, AIST.², NAIST.³, ◯Chenyang Wang¹, Daiki Shiratori¹, Hiromi Kimura²,

Akihiro Nishikawa³, Yutaka Fukuchi¹, Takayuki Yanagida³

E-mail: 4324507@ed.tus.ac.jp

現在実用化されている電磁放射線をターゲットとしたシンチレータのほとんどは単結晶であるが、単結晶は作製コストが高く、成形も難しいため用途に制限があるなどの欠点を有する。これに対して、ガラス材料は優れた加工性を有していることから、用途によってはガラス材料が有効である一方、ガラスシンチレータも発光量や密度が結晶のそれに比べて低いなどの欠点を抱えている。こうした障壁のブレイクスルーを目指し、我々は NaGd(PO₃)₄ ガラスに着目した。当該ガラスにおいては、Ce を添加した際に約 1100 ph/MeV 程度の高い発光量を示すことが明らかとなり、本成果は前回の講演会にて報告した。本研究では、NaGd(PO₃)₄ ガラス組成中の Gd と P の含有比を調整した、NaGd_(1.2-x)(PO₃)_(3.8+x) ($x = 0, 0.1, 0.2, 0.45, 0.7$) ガラス試料を作製し、その光学およびシンチレーション特性を評価した。

図 1 は X 線照射下におけるシンチレーションスペクトルであり、組成中の Gd/P 比の異なるガラス試料を比較している。Gd 含有量の増加により、発光ピーク位置が長波長シフトする傾向が観測され、発光強度は $x=0$ のときに最大であった。図 2 は ¹³⁷Cs の γ 線 (662 keV) を用いて測定した各試料のパルス波高スペクトルである。発光量が既知である BGO 単結晶の光電吸収ピーク位置 (~8600 ph/MeV) を基準とし、各試料の光電吸収ピークとの相対位置から発光量を算出したところ、 $x=0$ の試料で最も高い発光量が得られ、その値は約 2000 ph/MeV 程度であった。本公演では、組成比の変化による各種光学・シンチレーション特性の変化について詳細に報告する。

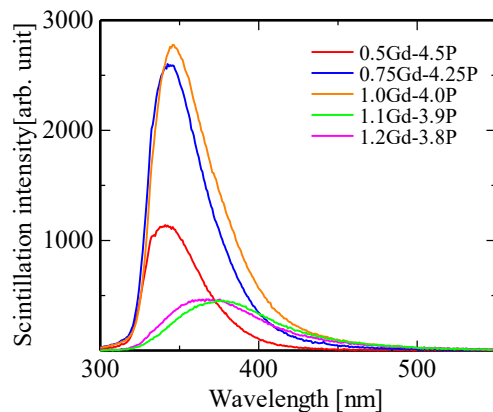


Figure 1 Scintillation spectra of Ce-doped NaGd(PO₃)₄ glasses with different Gd/P ratios.

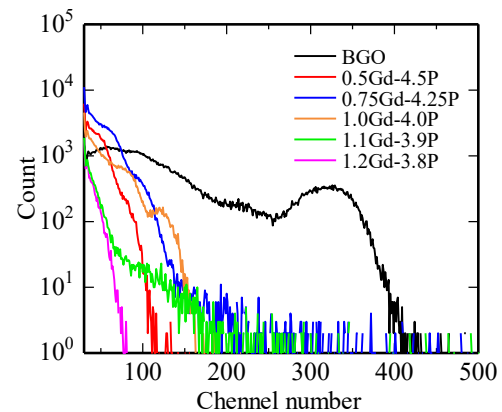


Figure 2 Pulse height spectra of Ce-doped NaGd(PO₃)₄ glasses with different Gd/P ratios.

SPS 法による Eu:BaFBr 透光性セラミックスの 光学および輝尽性蛍光特性

Optical and Photostimulated Luminescence Properties of Eu:BaFBr Translucent Ceramics Synthesized by SPS

産総研¹, 奈良先端大², 金沢工大³, ○木村 大海¹, 加藤 匠², 藤原 健¹, 田中 真人¹,
岡田 豪³, 中内 大介², 河口 範明², 柳田 健之²

AIST¹, NAIST², KIT³ ○Hiromi Kimura¹, Takumi Kato², Takeshi Fujiwara¹, Masahito Tanaka¹,
Go Okada³, Daisuke Nakauchi², Noriaki Kawaguchi², Takayuki Yanagida²

E-mail: h.kimura@aist.go.jp

輝尽性蛍光体とは入射放射線のエネルギーの一部を蓄積し、その後光刺激により発光 (PSL) する物質である。PSL 強度は入射放射線量と比例関係にあるため、個人被ばく線量計やイメージングプレート (IPs) の素子として利用されている [1]。特に Eu 添加 BaFBr (Eu:BaFBr) をベースとした輝尽性蛍光体は高い X 線吸収特性および PSL 強度を示すため、富士フイルム社製 IPs に用いられている。これまで IPs 用の蛍光体は溶液法にて合成された粉末を用いていたが、近年では放電プラズマ焼結 (SPS) 法により合成した透光性セラミックスは他の合成法や材料形態と比較して良好な PSL 特性を有することが報告されている [2]。そこで本研究では SPS 法により Eu:BaFBr 透光性セラミックスを開発し、光学および PSL 特性を調査した。また Eu:BaFBr の透光性セラミックス化は密度や光取り出し効率の観点から、IPs の高感度化につながる可能性が高い。

Fig. 1 に X 線照射後における Eu:BaFBr 透光性セラミックスの PSL および刺激スペクトルを示す。450–650 nm 付近の刺激光下において、390 nm 付近に Eu^{2+} の 5d-4f 遷移由来のブロードな PSL を観測した [3]。また刺激スペクトルは 500 および 600 nm 付近にピークを有しており、それぞれ F(F) および F(Br) 中心に起因するものであると考えられる [3]。Fig. 2 に合成した Eu:BaFBr および市販の IPs の線量応答特性を示す。0.5% Eu:BaFBr の PSL 応答は線量に対して線形であることが確認され、市販の IPs より高感度であることを明らかにした。本講演では光学特性やデバイス特性についても評価を行ったので併せて発表を行う。

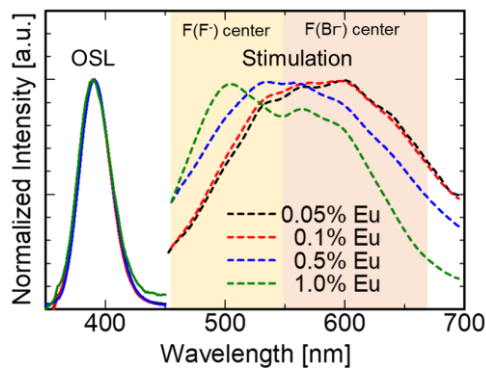


Fig. 1 PSL and stimulation spectra of Eu-doped BaFBr translucent ceramics after X-ray irradiation (1 Gy).

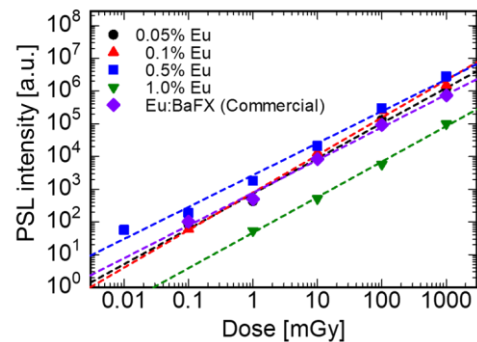


Fig. 2 PSL dose response functions of Eu:BaFBr translucent ceramics and a commercial IP (Fujifilm, HR-BD).

参考文献 [1] Y. V. Zorenko, *et al.*, J. Lumin., **106** (2004) 313–320. [2] H. Kimura, *et al.*, Optik, **157**, (2018) 421–428. [3] H. Seggern, *et al.*, Braz. J. Phys., **29** (1999) 254–268.

希土類配位ポリマー結晶の形態変化とその光機能

Structural Metamorphosis and the Photophysical Properties of Nano- and Microcrystalline Lanthanide Polymer with Flexible Coordination Chains

物材機構¹, 物材機構-ICYS², 東理大先進工³, 北大院工⁴, 北大 WPI-ICReDD⁵

○中西 貴之¹, 平井 悠一², 許 健², 武田 隆史¹, 渡邊 俊祐³, 安盛 敦雄³,
袴田 翔⁴, 北川 裕一^{4,5}, 長谷川 靖哉^{4,5}

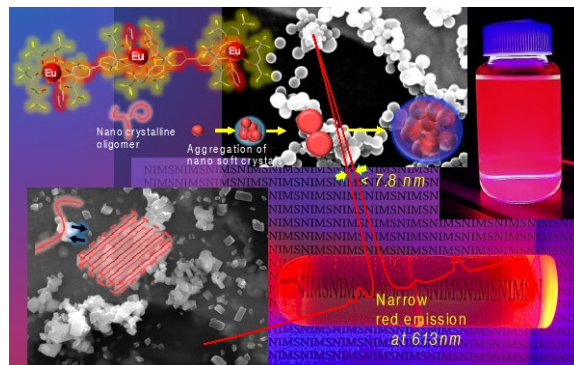
NIMS¹, NIMS-ICYS², Tokyo Univ. Sic.³, Hokkaido Univ.^{4,5}

○Takayuki Nakanishi^{1*}, Yuichi Hirai², Jian Xu², Takashi Takeda¹, Shunsuke Watanabe³,
Atsuo Yasumori³, Shou Hakamada⁴, Yuichi Kitagawa⁴, Yasuchika Hasegawa⁴

E-mail: NAKANISHI.Takayuki@nims.go.jp

本発表では応用物理学会 第3回「極限的励起状態の形成と量子エネルギー変換研究グループ」論文賞の受賞講演として *Sci. Tech. Adv. Mat. (STAM)*, 24 [1] (2023) 2183711 に掲載された投稿論文「Structural metamorphosis and photophysical properties of thermostable nano- and microcrystalline lanthanide polymer with flexible coordination chains」の内容を中心に記載させて頂く。

希土類イオンと強い光吸収能力を有する共役有機配位子で構成される『希土類配位蛍光体』は発光線幅 10 nm を切るピュアな色純度と光増感による強い発光が両立できる分子性蛍光体である。特に発光性ランタニド(*i.e.*, Eu, Tb, Yb. Etc.)が架橋して構造フレキシブルな形態性を有する配位化合物の高分子の結晶 (Lanthanide coordination polymer crystals: LCPC) は、その構造安定かつユニークな光機能性により実用材料としての関心が高まっている。本発表ではその代表組成として、耐熱性ユーロピウム配位高分子結晶 $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{dpbp})]_n$ (hfa: ヘキサフルオロアセチルアセトナート, dpbp: 4,4'-ビス(ジフェニルホスホリル)ビフェニル) を選択した。結果としてこの $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{dpbp})]_n$ の結晶形態は、反応時間や条件により調整することができ、ナノサイズやマイクロサイズの球形、草状、ブロック状、岩状の形状が得られている (下図: $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{dpbp})]_n$ の形態変化)。特にナノおよびマイクロサイズの球形では高い溶媒分散/制御性を実証でき線幅の狭い発光 (FWHM=7.8nm) を有する新規赤色蛍光体が実現できた。本講演では、得られたユニークな構造の発光性 LCPC を X 線回折 (XRD)、走査型透過電子顕微鏡 (STEM)、動的光散乱 (DLS) 測定、熱重量分析によって特性評価しその光機能特性についてご紹介する。これらの材料の構造可変性に関する知見は、結晶性ランタニド配位蛍光体のナノスケール材料の合成技術開発に広く利用されることが期待される。



2 放射線 | 一般セッション(口頭講演): 2.5 放射線誘起蛍光体

[17p-B5-1~16] 2.5 放射線誘起蛍光体

[17p-B5-1]

Eu添加AES(AE = Ca, Sr, Ba)透光性セラミックスのシンチレーション特性

○木村 大海¹、藤原 健¹、加藤 英俊¹、加藤 匠²、國方 俊彰²、河口 範明²、柳田 健之² (1.産総研、2.奈良先端大)

[17p-B5-2]

Tb添加SrF₂透明セラミックスのドシメータ特性○河野 直樹¹、加藤 匠²、Robin Conner³、Luiz Jacobsohn³、中内 大介²、岡崎 魁²、市場 賢政²、竹 渕 優馬⁴、柳田 健之² (1.秋田大院理工、2.奈良先端大、3.クレムソン大学、4.宇都宮大)

[17p-B5-3]

蛍光特性におけるEu³⁺添加CaO-Al₂O₃-B₂O₃ガラスのEu濃度依存性○福嶋 宏之¹、坪内 廉²、松浦 徹¹、米田 知晃¹、柳田 健之² (1.福井高専、2.奈良先端大)

[17p-B5-4]

Sm添加CaX₂単結晶シンチレータの開発○中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[17p-B5-5]

Dy添加Al₂O₃-SiO₂ガラスのドシメータ特性○西川 晃弘¹、白鳥 大毅²、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、2.東京理科大)

[17p-B5-6]

低潮解性K₂Cu(Cl, Br)₃混晶のシンチレーション特性評価○山林 恵士¹、岡崎 魁¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[17p-B5-7]

Er添加CaWO₄単結晶の近赤外シンチレーション特性評価○岡崎 魁¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[17p-B5-8]

LiF/(K, Rb)₂CuCl₃コンポジット中性子シンチレータの特性評価○河口 範明¹、山林 恵士¹、岡崎 魁¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[17p-B5-9]

Tb 添加 K₂O-B₂O₃-SiO₂ ガラスのドシメータ特性の評価○林 志勇¹、西川 晃弘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)

[17p-B5-10]

Tb添加CaSiO₃単結晶の蛍光およびドシメータ特性におけるTb濃度依存性○藤井 愛朗¹、宮崎 慧一郎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)

[17p-B5-11]

Dy添加LuVO₄単結晶シンチレータの開発

○市場 賢政¹、渡辺 賢一²、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、2.九州大)

[17p-B5-12]

Dy添加Ba₃Y(PO₄)₃単結晶のドシメータ特性

○江澤 喜朗¹、竹淵 優馬²、岡崎 魁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、2.宇都宮大)

[17p-B5-13]

Cr添加Al₂O₃透明セラミックスの放射線誘起蛍光特性

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

[17p-B5-14]

Mn添加ZnAl₂O₄透明セラミックスの光刺激蛍光特性

○本條 悟史¹、市場 賢政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)

[17p-B5-15]

金添加K₂O-Al₂O₃-P₂O₅ガラスが示すラジオフォトルミネッセンス現象

○白鳥 大毅¹、市場 賢政²、中内 大介²、福地 裕¹、柳田 健之² (1.東京理科大、2.奈良先端大)

[17p-B5-16]

Ag:NaCaPO₄セラミックスにおけるドシメータ特性の評価

○早乙女 倭斗¹、白鳥 大毅¹、木村 大海²、福地 裕¹、柳田 健之³ (1.東京理科大、2.産総研、3.奈良先端大)

Eu 添加 AES ($AE = \text{Ca, Sr, Ba}$) 透光性セラミックスの シンチレーション特性

Scintillation Properties of Eu-doped AES ($AE = \text{Ca, Sr, Ba}$) Translucent Ceramics

産総研¹, 奈良先端大², [○]木村 大海¹, 藤原 健¹, 加藤 英俊¹, 加藤 匠²,

國方 俊彰², 河口 範明², 柳田 健之²

AIST¹, NAIST², [○]Hiromi Kimura¹, Takeshi Fujiwara¹, Hidetoshi Kato¹, Takumi Kato²,

Toshiaki Kunikata², Noriaki Kawaguchi², Takayuki Yanagida²

E-mail: h.kimura@aist.go.jp

シンチレータは放射線のエネルギーを吸収し、即発的に低エネルギーの光子へと変換する材料であり、光検出器と組み合わせることで放射線のリアルタイム計測が可能である。これまで用途に応じて多種多様なシンチレータが開発されてきたが、中でも Ag 添加 ZnS や Tb 添加 $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}$ 等の硫化物シンチレータは高い発光強度を示すことから、 α 線や X 線検出用のシンチレータとして用いられてきた [1]。一方で硫化物は高温で原材料の分解や蒸発が起こるため、融液成長での良質な結晶育成が困難であり、シンチレータとしての検討は限られてきた。そこで我々は低温で合成可能かつ透明体が得られる透光性セラミックスに着目し、蛍光体として報告例がある Eu 添加 AES ($AE = \text{Ca, Sr, Ba}$) の透明セラミックス化を試みた [2]。本研究では放電プラズマ焼結法により合成した Eu 添加 AES 透光性セラミックスの光学およびシンチレーション特性を評価した。

Fig. 1 に 0.05% Eu 添加 AES ($AE = \text{Ca, Sr, Ba}$) 透光性セラミックスのフォトルミネッセンス励起/蛍光マップを示す。合成した Eu:AES ($AE = \text{Ca, Sr, Ba}$) は 400-600 nm の励起光下において、それぞれ 650、600、800 nm 付近にブロードな発光ピークを観測した。得られた励起および発光スペクトル形状は既報の Eu 添加 AES 焼結体と一致し、Eu:CaS および Eu:SrS の発光起源は Eu^{2+} の 5d-4f 遷移に、Eu:BaS は欠陥に起因するものであると考えられる[2]。Fig. 2 に放射線照射下における発光特性を示す。Eu:AES はフォトルミネッセンスと同様の発光が観測された。本講演では上記に加え、光学およびシンチレーション特性についても詳細に報告する。

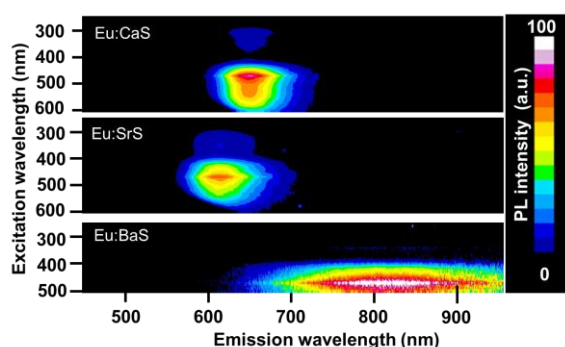


Fig. 1 Photoluminescence excitation and emission maps of the 0.05% Eu-doped AES ($AE = \text{Ca, Sr, Ba}$) translucent ceramic.

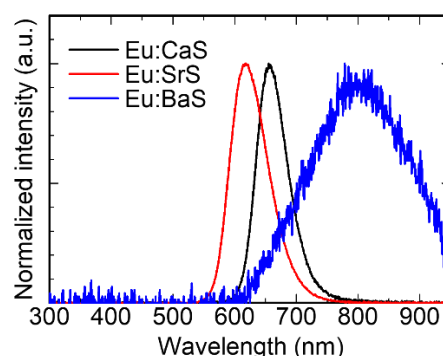


Fig. 2 Scintillation spectra of the 0.05% Eu-doped AES ($AE = \text{Ca, Sr, Ba}$) translucent ceramic.

参考文献

[1] Y. Morishita, *et al.*, Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A, **764** (2014) 383. [2] P. F. Smet, *et al.*, Phys. Rev. B, **78** (2006) 035207.

Tb 添加 SrF₂ 透明セラミックスのドシメータ特性

Dosimetric Properties of Tb-doped SrF₂ Translucent Ceramics

秋田大学¹, 奈良先端科学技術大学院大学², クレムソン大学³, 宇都宮大学⁴

○河野 直樹¹, 加藤 匠², Robin Conner³, Luiz Jacobsohn³, 中内 大介²,

岡崎 魁², 市場 賢政², 竹渕 優馬⁴, 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²,

Clemson University³, Utsunomiya University⁴

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

Kai Okazaki², Kensei Ichiba², Yuma Takebuchi⁴, Takayuki Yanagida²

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

【緒言】ドシメータに使用される発光材料は、放射線エネルギーを一部、吸収・蓄積した後、外部刺激（熱や光等）を加えることで発光する材料であり、環境放射線線量測定等の様々な用途で利用されている。これまでに、我々は当該材料開発のために、放電プラズマ焼結(SPS)法を用いた透明セラミックスの作製を行っており、合成したフッ化物の透明セラミックス(CaF₂、MgF₂等)が優れた熱蛍光および輝尽蛍光特性を示す傾向があることがわかった[1-3]。本研究では、新たに Tb 添加 SrF₂ 透明セラミックスを SPS 法で作製し、そのドシメータ特性を調べた。

【実験方法】SrF₂ 及び TbF₃ をモル比通りに混合後、カーボンダイスに充填した。その後、100 MPa 下で 1080 °C、20 分間焼成することで透明セラミックスを得た。得られた透明セラミックスについて、熱蛍光グロー曲線を測定した。

【実験結果】図 1 に、X 線照射後(100 mGy)の TbF₃ 添加 SrF₂ 透明セラミックスの熱蛍光グロー曲線を示す。0.1%TbF₃ 添加 SrF₂ ではおもに 440 °Cにおいてグローピークが観測された。0.1%TbF₃ 添加 SrF₂ が作製した試料の中で最大強度を示し、TbF₃ 濃度増加により、発光強度が減少した。

図 2 に、X 線照射後(10 Gy)の TbF₃ 添加 SrF₂ 透明セラミックスの熱蛍光スペクトルを示す。Tb³⁺の 4f→4f 遷移に由来するピークが観測され、熱蛍光の発光中心が Tb³⁺であることがわかった。本講演では、当該物質の熱蛍光特性及び輝尽蛍光特性の詳細について議論する。

【参考文献】

1. F. Nakamura et. al., Ceram. Int. 43 (2017) 604–609.
2. F. Nakamura et. al., Ceram. Int. 43 (2017) 7211–7215.

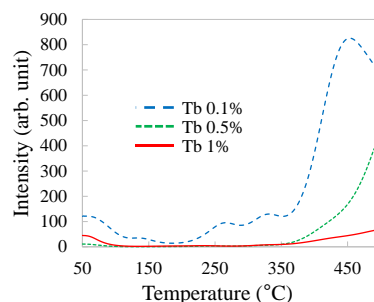


図 1 熱蛍光グロー曲線。(昇温速度 1°C/h)

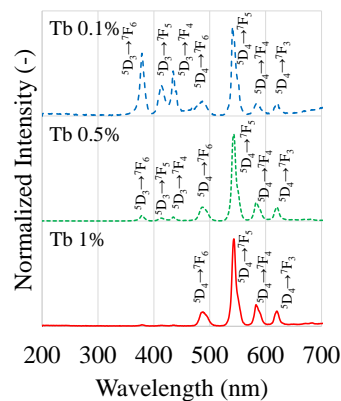


図 2 熱蛍光スペクトル。

蛍光特性における Eu^{3+} 添加 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスの Eu 濃度依存性

Eu concentration dependence of Eu^{3+} -doped $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ glasses for luminescence.

福井高専¹, 奈良先端大² ○福嶋 宏之¹, 坪内 廉², 松浦 徹¹, 米田 知晃¹, 柳田 健之²

NIT-Fukui¹, NAIST² ○Hiroyuki Fukushima¹, Ren Tsubouchi², Toru Matsuura¹, Tomoaki Yoneda¹,

Takayuki Yanagida²

E-mail: fukushima@fukui-nct.ac.jp

シンチレータとは電離放射線のエネルギーを吸収し、即時的に蛍光を発する材料であり、光検出器と組み合わせることで放射線検出器として利用されている。シンチレータの応用先としては、医療画像診断や非破壊検査などがあり、利用されているシンチレータとしては、 Tl 添加 NaI 単結晶や Ce 添加 Lu_2SiO_5 単結晶などである。これらのシンチレータは非常に高性能であるが、 Tl 添加 NaI は潮解性があり、 Ce 添加 Lu_2SiO_5 は高価であるため、工業的なデメリットがある。これらの問題を解決するべく、近年ガラスシンチレータの研究が行われており、比較的高密度なガラスにおいても数千 photons/MeV 程度の発光量が得られてきている¹。その一方で、ガラス組成は自由度が高いため、高発光量または高強度な発光を呈するガラスシンチレータの開発の余地がある。本研究では、 Eu 添加 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスを溶融急冷法によって合成し、その蛍光およびシンチレーション特性評価を行った。

作製したガラスの Eu 濃度は 0.1, 1, 5, 10% である。図 1 に Eu 添加 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスに X 線を照射した際のシンチレーションスペクトルを示す。全てのサンプルで 600 nm 付近にシャープなピークが観測され、0.1% Eu 添加サンプルにおいてのみ、400 nm 付近を中心にブロードな発光が観測された。図 2 に Eu 添加 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスに X 線を照射した際のシンチレーション減衰曲線を示す。得られた減衰曲線は 2 成分の指数関数の和で近似できた。1 成分目は装置由来の信号 (IRF) と考えられる。全てのサンプルの 2 成分目の減衰時定数は ~ 1.2 ms であり、図 1 に示すシンチレーションスペクトルの結果も考慮すると、600 nm 付近の発光の起源は Eu^{3+} の $4f\text{-}4f$ 遷移であると考えられる²。本発表では、これらの結果に加えて、詳細な蛍光およびシンチレーション特性について発表予定である。

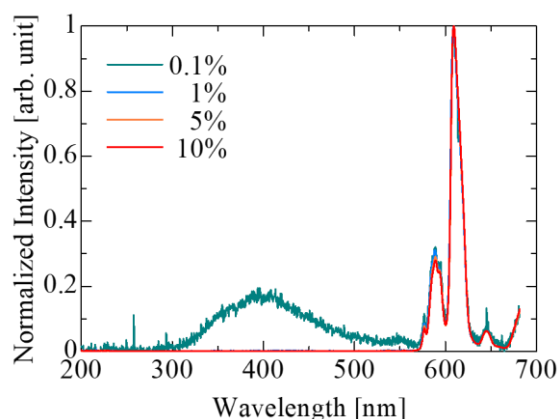


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of Eu-doped $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ glasses.

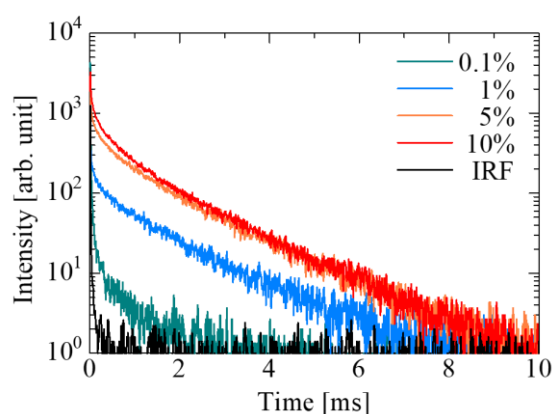


Fig. 2 X-ray-induced scintillation decay curves of Eu-doped $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ glasses.

1) Y. Nakabayashi et. al., J. Lumin., **266**, 120283 (2024). 2) I. I. Kindrat, et. al., Opt. Mater., **77**, 93 (2018).

Sm 添加 CaX₂ 単結晶シンチレータの開発

Evaluation of Sm-doped CaX₂ crystal scintillators

奈良先端大 °中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之

Nara Institute of Science and Technology

°Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: nakauchi@ms.naist.jp

シンチレータは放射線照射時に光子を発する放射線計測用蛍光体であり、医療・セキュリティ・資源探査などの分野における産業の発展に伴い、シンチレータ材料の需要が高まりつつある。Ce や Pr などの発光中心は 5d-4f 遷移由来のブロードな発光を示し、Ce:GAGG や Pr:LuAG に代表されるようにシンチレータとして盛んに検討がなされてきた有用な賦活剤である。Sm²⁺もまた 5d-4f 遷移由来の発光を示すが、シンチレータとして Sm²⁺発光に着目した報告は非常に少ない [1,2]。Sm²⁺は赤色から近赤外域に強い発光を示すことから Si 系の光検出器と相性が良いことやチェレンコフ光との区別が容易である点で今後有用となり得る発光中心である。我々は新たな発光中心として Sm²⁺に着目し、Sm:CaX₂ (X=Cl, Br, I) 結晶を垂直ブリッジマン法で結晶育成を行い、その蛍光およびシンチレーション特性の評価を行った。

Fig. 1 には X 線照射時の Sm:CaCl₂ および CaI₂ 単結晶の発光スペクトルを示す。それぞれ 740 および 890 nm 付近に単一のブロードな発光が観測され、Sm²⁺の 5d-4f 遷移として典型的なスペクトル形状を示している。CaCl₂ は一部が 3 価として残存していたが、ホスト発光と Sm²⁺発光が支配的であった。Fig. 2 には ¹³⁷Cs の γ 線照射下における Sm:CaCl₂ 単結晶の波高分布スペクトルを示す。明確な光電吸収由来のピークが観測され、計測に十分な発光量とエネルギー分解能を示すことを見出した。本研究ではフォトルミネセンススペクトル、蛍光寿命測定、残光特性などの諸特性についても併せて発表する。

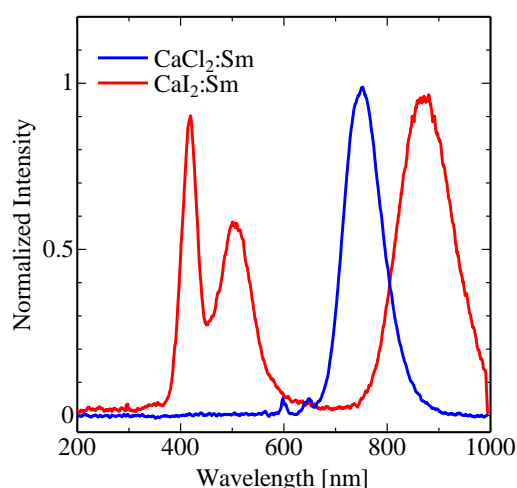


Fig.1. Scintillation spectra under X-ray irradiation.

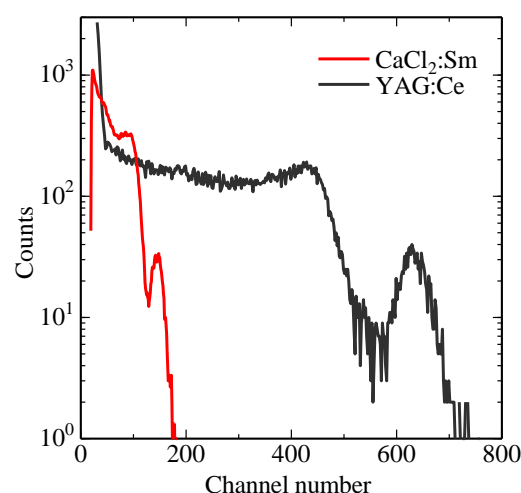


Fig. 2. Pulse height spectrum of ¹³⁷Cs γ-rays measured using Sm:CaCl₂ single crystal.

- [1] L.C. Dixie, A. Edgar, C.M. Bartle, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 753 (2014) 131.
- [2] L.C. Dixie, A. Edgar, M.C. Bartle, J. Lumin. 149 (2014) 91.

Dy 添加 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスのドシメータ特性

Dosimetric properties of Dy-doped $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ glasses

奈良先端大¹, 東京理科大² 西川 晃弘¹, 白鳥 大毅², 加藤 匠¹, 中内 大介¹, 河口 範明¹,
柳田 健之¹

NAIST¹, TUS² Akihiro Nishikawa¹, Daiki Shiratori², Takumi Kato¹, Daisuke Nakauchi¹,

Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: nishikawa.akihiro.nc6@ms.naist.jp

蓄積型蛍光体とは電離放射線のエネルギーを一時的に蓄積し、外部刺激を加えることで低エネルギーの光子として放出する蛍光体の一種であり、加える外部刺激や発光メカニズムの差異によって、光刺激蛍光(OSL)材料や熱刺激蛍光(TSL)材料、ラジオフォトルミネッセンス(RPL)材料に大別される。いずれの蓄積型蛍光体においても、その発光強度は吸収された放射線量と比例関係にあるため線量計測や医療イメージング用途で利用されている。また、線量計測に応用される蓄積型蛍光体には、高い発光強度、広いダイナミックレンジ、少ないフェーディング等の特性が要求され、特に個人被ばく線量計として応用される場合には人体等価性も求められる。蓄積型蛍光体には一般的に単結晶やセラミックス、ガラスなどの材料形態が用いられるが、本研究では高い透明性、生産コストの低さ、加工の容易さ、組成の自由度といった点で他の材料形態より優れるガラスに着目した。

$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスは、高い機械的強度と化学的安定性を有する材料であり、レーザや光ファイバ増幅器への応用に向けて様々な希土類を添加した光学特性が報告されている [1]。また比較的実効原子番号が低く、個人被ばく線量計としての応用も期待できる。しかし、ドシメータ特性についての報告は少ないのが現状である。そこで本研究では希土類である Dy を発光中心として $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスに添加しドシメータ特性を調査した。また Dy 濃度を母材に対して 0.1, 0.3, 1.0, 3.0% となるように添加し、ドシメータ特性の Dy 濃度依存性についても評価した。

図 1 に各濃度の Dy 添加 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスにおける TSL グローカーブを示す。いずれの濃度においても広い温度範囲で TSL を示すことが明らかになった。グローカーブの強度は Dy 濃度 0.3% 試料で最大となった。図 2 に各濃度の Dy 添加 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスにおける、各濃度の最適な刺激温度での TSL スペクトルを示す。すべての試料で、480, 570, 660, 750 nm に発光を確認した。発光波長より Dy^{3+} の 4f-4f 遷移に由来する発光であると考えられる [2]。これらの特性に加えフォトルミネッセンス特性や線量応答特性についても報告する。

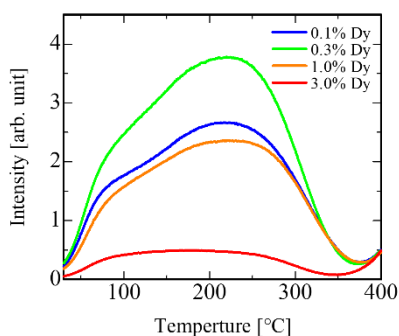


Figure 1 TSL glow curves of Dy-doped 10 Al_2O_3 -90 SiO_2 glasses.

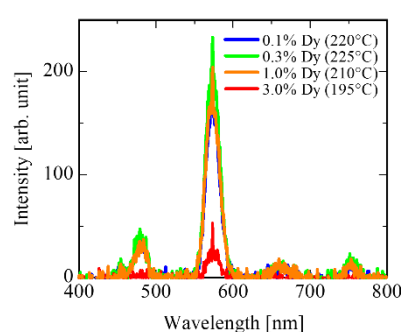


Figure 2 TSL spectra of Dy-doped 10 Al_2O_3 -90 SiO_2 glasses.

[1] Y. Wang et al., J. Am. Ceram. Soc. 103 (2020).

[2] L. Nagli et al., J. Non. Cryst. Solids. 217 (1997) 208-214.

低潮解性 $K_2Cu(Cl, Br)_3$ 混晶のシンチレーション特性評価Evaluation of scintillation properties of $K_2Cu(Cl, Br)_3$ mixed crystals奈良先端大¹, [○]山林 恵士¹, 岡崎 魁¹, 中内 大介¹,加藤 匠¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹NAIST¹, [○]Keishi Yamabayashi¹, Kai Okazaki¹, Daisuke Nakauchi¹,Takumi Kato¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹E-mail: yamabayashi.keishi.yh2@ms.naist.jp

シンチレータは電離放射線のエネルギーを紫外・可視・近赤外線光に変換する蛍光体であり、光電子増倍管等の光検出器と組み合わせられ、シンチレーション検出器として放射線計測に利用されている。応用は医療・セキュリティ・資源探査・宇宙物理等の幅広い分野に及ぶが、X線を検出対象とする場合は、S/N比の向上につながる高い発光量や低い残光を有し、潮解性が低く化学的に安定であることが求められる。我々はこれまで温度降下法を用いて作製した潮解性の低い $(K, Rb)_2CuBr_3$ および $(K, Rb)_2CuCl_3$ 混晶のシンチレーション特性を調査し、連続固溶体 $(K_{0.75}Rb_{0.25})_2CuBr_3$ と $(K_{0.75}Rb_{0.25})_2Cl_3$ において発光特性が向上することを明らかにした [1, 2]。同様にシンチレーション特性のさらなる向上を目的とし、ハロゲン部分を置換させた低潮解性 $K_2Cu(Cl, Br)_3$ 混晶を同手法により作製し、フォトルミネセンス・シンチレーション特性を調査した。

Figure 1 に $K_2Cu(Cl, Br)_3$ 混晶の X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。作製した全ての試料において 380–400 nm 付近に自己束縛励起子 (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 [3]、 $K_2Cu(Cl_{0.5}, Br_{0.5})_3$ 混晶において大きな発光ピークのシフトが観測された。Figure 2 に $K_2Cu(Cl, Br)_3$ 混晶の X 線誘起シンチレーション減衰曲線を示す。得られたすべての減衰曲線は装置由来の IRF を除いた 1 成分の指数関数により近似することができ、既報と同程度の時定数が算出されたことからシンチレーションの起源は STE の再結合に由来することが考えられる [3]。

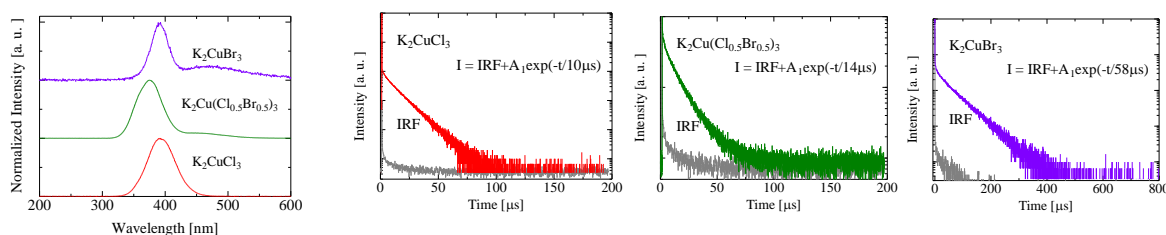


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of crystals.

$K_2Cu(Cl, Br)_3$ mixed crystals.

参考文献:

- [1] K. Yamabayashi, et al., *Radiat. Phys. Chem.* **214** (2024) 111292. [2] K. Yamabayashi, et al., *J. Lumin.* **275** (2024) 120729. [3] T. D. Creason, et al., *Chem. Mater.* **32** (2020) 6197.

Er 添加 CaWO_4 単結晶の近赤外シンチレーション特性評価

Evaluation of near-infrared scintillation properties of Er-doped CaWO_4 single crystals

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

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

E-mail: okazaki.kai.of0@ms.naist.jp

シンチレータは電離放射線のエネルギーを吸収し、即時に低エネルギー光に変換する蛍光材料であり、医療、宇宙、セキュリティ、資源探査など様々な分野で利用されている。シンチレータは光検出器と組み合わせて使用されるため、従来の検出器の感度に適する紫外可視発光材料が主に開発されてきた。しかし近年、近赤外領域に感度を有する検出器の開発に伴い近赤外光を呈するシンチレータの開発が注目を集め始めている。近赤外光は紫外可視光と比較して生体軟組織に対する透過性が高いため生体イメージングや放射線治療時の照射線量モニタリング等での利用に優位性を有する [1, 2]。本研究では近赤外発光シンチレータの開発を目的として、X・ γ 線と比較的高い相互作用確率を有する CaWO_4 に Er^{3+} を発光中心として添加した 単結晶の合成を行い、フォトルミネッセンス (PL) 及びシンチレーション特性評価を行った。

Figure 1 に 0.5% Er 添加 CaWO_4 単結晶の PL 励起 / 蛍光スペクトルを示す。250–300 nm の励起光下、350–600 nm 付近にブロードな発光が観測され、複数の励起光下、1500 nm 付近においても発光が観測された。520 nm の励起光下、近赤外領域をモニタした際の量子収率を計測したところ、87.9%と得られた。Figure 2 に Er 添加 CaWO_4 単結晶の X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。850、1000、1100、1500 nm 付近にシャープな発光が観測された。これらは Er^{3+} の 4f–4f 遷移に典型的な発光である [2]。本講演では、光学および放射線応答特性の詳細な評価結果を報告する。

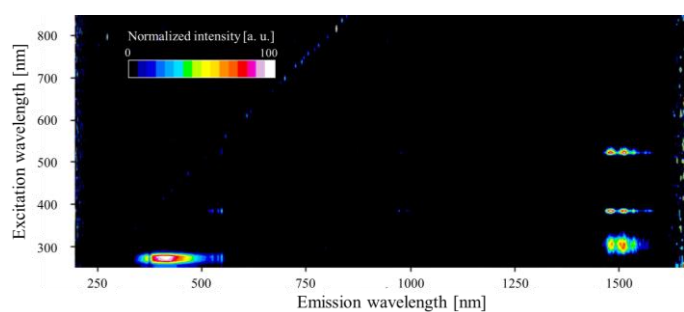


Figure 1. PL excitation and emission spectra of 0.5% Er: CaWO_4 .

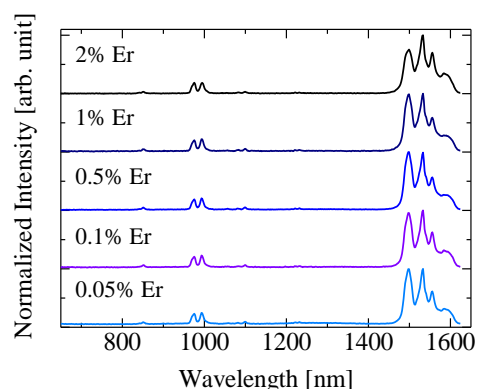


Fig. 2. X-ray-induced scintillation spectra of Er: CaWO_4 in NIR ranges.

[1] L. Archambault et al., Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys. 78 (2010) 280.

[2] Xue et al., ACS Appl. Mater. Interfaces. 9 (2017) 22132.

[3] M. Akatsuka et al., Sens. Mater., 32 (2020) 1373.

LiF/(K, Rb)₂CuCl₃ コンポジット中性子シンチレーターの特性評価

Characterization of the LiF/(K, Rb)₂CuCl₃ composite neutron scintillator

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

NAIST, °Noriaki Kawaguchi, Keishi Yamabayashi, Kai Okazaki, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi,

Takayuki Yanagida

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

中性子検出器は国境検査、資源探査、非破壊検査等に応用される。従来は主に ³He ガス比例計数管が用いられてきたが、³He は希少元素で核兵器の副産物として供給されてきたことから核軍縮に伴いその不足が顕著になってきており、⁶Li 含有固体中性子シンチレーターへの置き換えが進んでおり、特に国境検査のような単純な用途では低コストな LiF/ZnS:Ag コンポジットが用いられている。LiF/ZnS:Ag は、中性子と反応して高エネルギー粒子線を放出する中性子コンバーターの LiF と、粒子線で励起されて発光する蛍光部の ZnS:Ag の複合体で ZnS:Ag は優れた性能を有するものの、高純度 ZnS は毒性の高い硫化水素ガスを用いるなどして作製する必要があるため、蛍光部の代替材料についても大変興味深い。

本研究ではコンポジット中性子シンチレーターの蛍光部として(K, Rb)₂CuCl₃ 系結晶に着目した。我々のグループではこれまでに、(K, Rb)₂CuCl₃ 系、(K, Rb)₂CuBr₃ 系連続固溶体のシンチレーション特性について研究しており、(K_{0.75}, Rb_{0.25})₂CuCl₃ [1]、(K_{0.75}, Rb_{0.25})₂CuBr₃ [2]の組成においてそれぞれ ¹³⁷Cs による γ 線照射時の発光量が最大となり、その値が 16000、7400 photons/MeV となることを報告している。これらは塩化物や臭化物の中では希少な大気中で安定な物質であったことから、特に発光量が高かった(K_{0.75}, Rb_{0.25})₂CuCl₃ と LiF のコンポジットサンプルを作製、評価した。Fig.1 はサンプルの X 線照射時の発光スペクトルで、コンポジット化した場合も(K_{0.75}, Rb_{0.25})₂CuCl₃ に由来する発光のみが確認された。Fig.2 はサンプルの波高分布スペクトルで、²⁵²Cf とポリエチレン減速材により熱中性子を照射した際の発光量は、⁶⁰Co による γ 線照射時の発光量よりも十分に高く、サンプルが中性子シンチレーターとして使用できることを確認した。

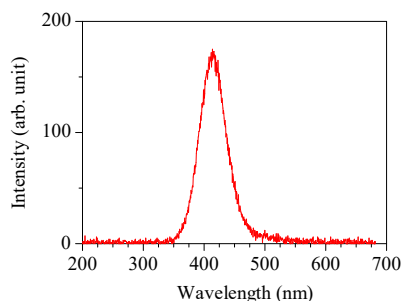


Fig. 1. The X-ray excited scintillation spectrum of the LiF/(K_{0.75}Rb_{0.25})₂CuCl₃ composite.

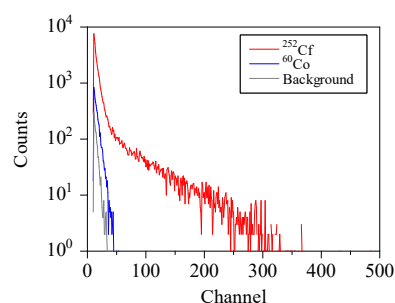


Fig. 2. The pulse height spectrum of the LiF/(K_{0.75}Rb_{0.25})₂CuCl₃ composite.

参考文献 [1] K. Yamabayashi et al., J. Lumin. 275, 120729 (2024).

[2] K. Yamabayashi, et.al., Radiat. Phys. Chem. 214, 111292 (2024).

Tb 添加 $K_2O-B_2O_3-SiO_2$ ガラスのドシメータ特性の評価

Evaluation of dosimetric properties of Tb-doped $K_2O-B_2O_3-SiO_2$ glasses

奈良先端大 ○(M2) 林 志勇, 西川 晃弘, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, ○Shiyu Rim, Akihiro Nishikawa, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi,

Takayuki Yanagida

E-mail: rim.shiyu.rv8@ms.naist.jp

ドシメータ材料は電離放射線のエネルギーを吸収、蓄積し、外部刺激を加えることで発光を呈する蛍光体の一種である。その発光は加える外部刺激の種類によって大別され、光を利用するものは光刺激蛍光 (OSL)、熱を利用するものは熱刺激蛍光 (TSL) と呼ばれる。これらの発光強度は照射した電離放射線の線量と比例関係にあるため、個人被ばく線量計や医療イメージングなど様々な分野で応用されている。

先行研究において、我々は化学的安定性や人体組織等価性の高さから個人被ばく線量計として応用が期待される Tb 添加 $Na_2O-B_2O_3-SiO_2$ ガラスの TSL 特性を調査した。その結果、線量応答特性では 0.1 mGy–10 Gy の範囲で良好な直線性が得られることを確認した [1]。本研究では、より TSL 強度を向上させるべく、X 線相互作用確率の観点から Na を K に置き換えた Tb 添加 $K_2O-B_2O_3-SiO_2$ ガラスを熔融急冷法により作製し、そのドシメータ特性の調査を行った。

Fig. 1 に Tb の添加濃度を変化させた $20K_2O-20B_2O_3-60SiO_2$ ガラスの TSL グローカーブを示す。すべてのサンプルで 65 °C 付近にピークが観測され、0.1% Tb 添加サンプルが最も高い発光強度を示した。Fig. 2 に Tb 添加サンプルの TSL スペクトルを示す。すべての Tb 添加サンプルで 500–600 nm 付近にシャープなピークを観測した。これらは Tb^{3+} の 4f-4f 遷移によるものであると考えられる [2, 3]。

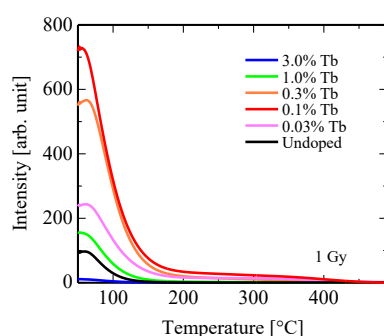


Fig. 1 TSL glow curves of $20K_2O-20B_2O_3-60SiO_2$ glasses after X-ray irradiation of 1 Gy.

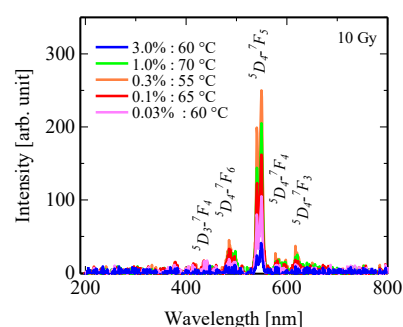


Fig. 2 TSL spectra of Tb-doped samples after X-ray irradiation of 10 Gy.

参考文献

- [1] S. Rim et al., Solid State Sci., **149**, 107450. (2024). [2] N. Kawano et al., Radiat. Meas., **124**, 69 (2019). [3] D. Geng et al., Dalton. Trans., **41**, 3078 (2012).

Tb 添加 CaSiO_3 単結晶の蛍光およびドシメータ特性における Tb 濃度依存性
Tb-concentration dependence of photoluminescence and dosimetric properties in Tb-doped CaSiO_3 single crystals

奈良先端大 ○藤井 愛朗, 宮崎 慧一郎, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之
 NAIST, °Airo Fujii, Keiichiro Miyazaki, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi,
 Takayuki Yanagida

E-mail: fujii.airo.ex4@naist.ac.jp

ドシメータ材料は被ばく線量を測定するために使用される蛍光体である。ドシメータ材料に電離放射線が照射された際、そのエネルギーを一時的に蓄積し、光や熱などの刺激により発光が生じる。光と熱の刺激による発光は、それぞれ光刺激蛍光 (OSL) と熱刺激蛍光 (TSL) と呼ばれる。ドシメータ材料に求められる特性として、人体軟組織に近い実効原子番号 (Z_{eff}) を有していること、X 線照射線量に対して発光強度が比例関係にあること、フェーディングが小さいことなどが挙げられる。 CaSiO_3 はペロブスカイト構造を有する化合物の中で Z_{eff} が 16.9 と比較的低い。さらに高効率の蛍光を示すことから、白色 LED 用の蛍光材料として注目を集めている [1]。これまで、Ce 添加の CaSiO_3 のドシメータ特性は報告されているが [2]、Tb 添加 CaSiO_3 のドシメータ特性の報告例はない。そこで本研究では、ドシメータ材料の母材として CaSiO_3 を選択し、Tb を発光中心として添加した CaSiO_3 単結晶を作製し、蛍光およびドシメータ特性の評価を行った。

Fig. 1 に 1%Tb 添加 CaSiO_3 単結晶の PL 励起スペクトルおよび蛍光スペクトルを示す。230 nm の励起で 390、420、440、495、545、590、620 nm に蛍光ピークが観測された。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 [3]。Fig. 2 に 1%Tb 添加 CaSiO_3 単結晶の 1000 mGy の X 線照射後の TL グローブカーブを示す。その結果から、120°C 付近にピークが観測された。本発表では、蛍光およびドシメータ特性における Tb 濃度依存性について報告する。

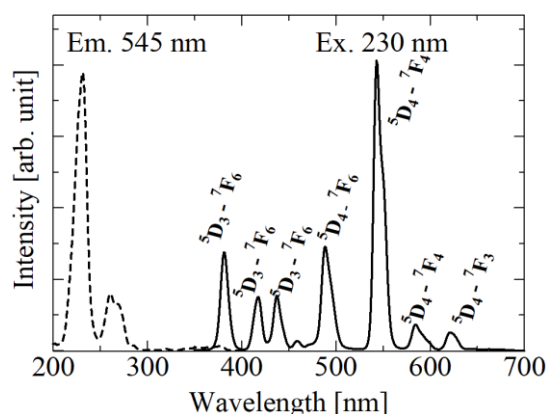


Fig. 1 PL spectra of 1% Tb-doped CaSiO_3 single crystals.

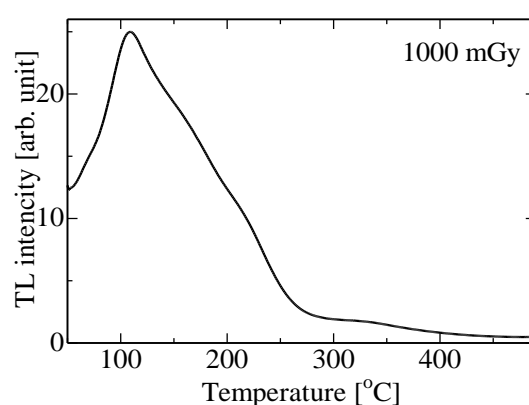


Fig. 2 TL glow curves of 1% Tb-doped CaSiO_3 single crystals after X-ray irradiation (1000mGy).

<参考文献>

- [1] Z. Chui *et al.*, J. Lumi., **132**, 153 (2012).
- [2] N. Fumiya *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., **60**, 122005 (2021).
- [3] S. Rimu *et al.*, Solid State Sci., **149**, 107450 (2024).

Dy 添加 LuVO₄ 単結晶シンチレータの開発

Development of Dy-doped LuVO₄ Single Crystal scintillators

1 奈良先端大 2 九州大 ○(D2) 市場 賢政¹, 渡辺 賢一², 中内 大介¹, 加藤 匠¹,
河川 範明¹, 柳田 健之¹

1 NAIST, 2 Kyushu University: ○¹Kensei Ichiba, ²Kenichi Watanabe, ¹Daisuke Nakauchi,
¹Takumi, Kato, ¹Noriaki Kawaguchi, ¹Takayuki Yanagida

E-mail: ichiba.kensei.if7@ms.naist.jp

シンチレータとは高エネルギーである放射線のエネルギーを吸収し、低エネルギーの光子に変換する材料である。Si フォトダイオードや光電子増倍管といった光検出器と組み合わせて放射線検出器として利用されており、空港の手荷物検査や X 線コンピュータ断層撮影、フラットパネルディテクタなどの応用例が挙げられる。シンチレータに求められる特性は、低い残光レベル、大きな実効原子番号 (Z_{eff})、高い発光量、高い密度、が挙げられる。既存の材料ではこれらの特性を全て満たすものは存在せず、現在でも盛んに新規の材料探索が行われている。

本研究では LuVO₄ に着目した。LuVO₄ は高い化学的安定性や熱安定性から蛍光体やレーザー材料、偏光素子の母材としての利用・研究がされている [1]。また比較的大きな実効原子番号と高い密度を有しているためシンチレータとしての研究も行われており、無添加 LuVO₄ 単結晶において市販シンチレータの Bi₄Ge₃O₁₂ 単結晶の発光量を上回る 10300 photons/MeV の発光量が報告されている [2]。本研究では更なる発光量向上を目指し、発光波長が Si フォトダイオードの波長感度と一致する Dy を添加した LuVO₄ 単結晶を作製し、そのシンチレーション特性の評価を行った。

Fig. 1 に 1.0% Dy 添加 LuVO₄ 単結晶のシンチレーションスペクトルを示す。470、480、570、660 nm に Dy³⁺ の 4f-4f 遷移に由来する発光ピークと 400-500 nm に V⁵⁺ から O²⁻ への電荷移動遷移に起因するブロードな発光バンドを確認した [2,3]。図 2 に 0.05% Dy 添加 GdVO₄ 単結晶のシンチレーション減衰曲線を示す。減衰曲線は二成分の和で近似することができた。得られた時定数は 5 μ s、151 μ s であり、それぞれ V⁵⁺ から O²⁻ への電荷移動遷移、Dy³⁺ の 4f-4f 遷移に由来する値である [2, 4]。

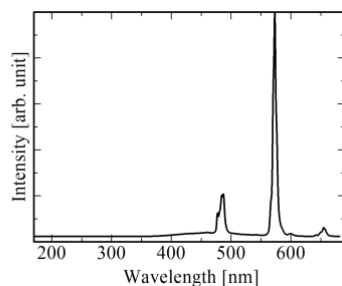


Fig. 1 Scintillation spectrum of 0.05% Dy-doped LuVO₄ single crystal

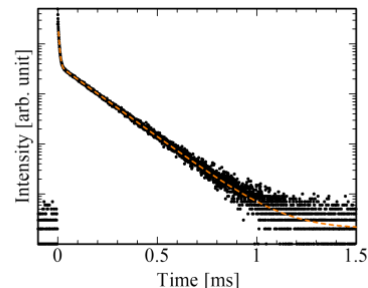


Fig. 2 Scintillation decay time profiles of 0.05% Dy-doped LuVO₄ single crystal.

参考文献[1] H. Thakur et al., Mater. Res. Express, **8** 026201 (2021). [2] Y. Fujimoto et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect.A, **635** 1 (2011). [3] K. Ichiba et al., Jpn. J. Appl. Phys., **61** 062006 (2022).

Dy 添加 Ba₃Y(PO₄)₃ 単結晶のドシメータ特性

Dosimetric properties of Dy-doped Ba₃Y(PO₄)₃ Single Crystals

奈良先端科学技術大学院大学¹, 宇都宮大学² [○]江澤 喜朗¹, 竹淵 優馬², 岡崎 魁¹,

加藤 匠¹, 中内 大介¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, Utsunomiya university², [○]Haruaki Ezawa¹, Yuma Takebuchi², Kai Okazaki¹, Takumi Kato¹,

Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: ezawa.haruaki.ec6@ms.naist.jp

放射線測定に使用されている素子であるドシメータ材料は吸収した放射線のエネルギーを一時的に蓄積する機能を有する。Ba₃Y(PO₄)₃(BYPO)は優れた光学的・化学的特性を有するため、光学材料として注目されている [1]。そのため、Tb³⁺、Ce³⁺、Dy³⁺ などのさまざまな希土類元素を発光中心として添加した BYPO の蛍光特性が数多く報告されている [2]。しかし、我々の知る限り、BYPO におけるドシメータ特性の報告は我々の先行研究 1 例しかない [3]。この先行研究において、Tb を添加した BYPO 単結晶が市販品と同等のドシメータ特性を示すことを確認した [3]。そこで本研究では、発光中心として Dy を添加した BYPO 単結晶ドシメータ特性を評価した。

Fig. 1 に X 線を 10 Gy 照射した後の Dy 添加 BYPO サンプルの熱刺激蛍光 (TSL) スペクトルを示す。Dy 添加サンプルでは 480、580、670、760 nm に Dy³⁺ の 4f-4f 遷移に起因すると考えられる発光を観測した [4]。Fig. 2 に X 線を 100 mGy 照射した後の Dy 添加サンプルの TSL グローカーブを示す。0.1% Dy 添加とほかの Dy 添加サンプルはそれぞれ 65 と 75–85 °C 付近にピークを示した。

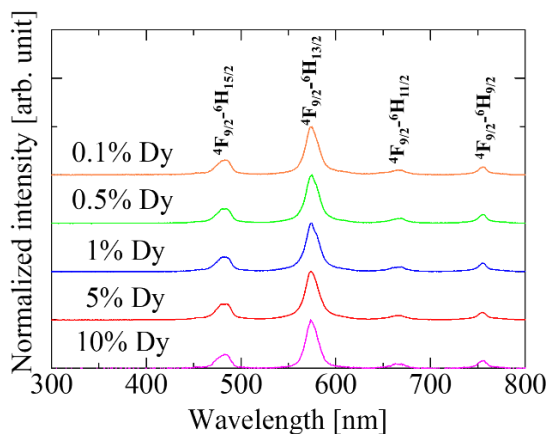


Fig. 1. TSL spectra of Dy-doped Ba₃Y(PO₄)₃ after X-ray irradiation of 10 Gy.

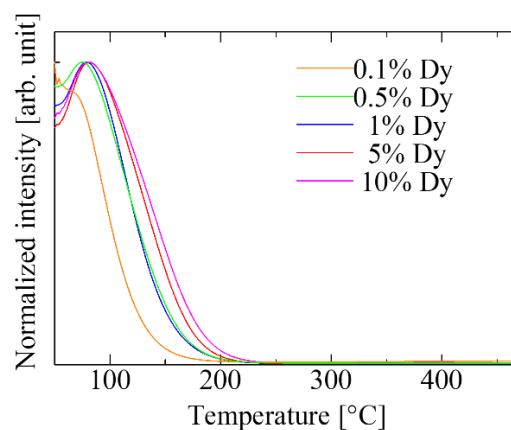


Fig. 2. TSL glow curves of Dy-doped Ba₃Y(PO₄)₃ after X-ray irradiation of 100 mGy.

参考文献

- [1] F. Yang et al., J. Solid State Chem., 225, 19-23 (2015). [2] K. Li et al., Inorg. Chem., 55, 7593 (2016). [3] H. Ezawa et al., Opt. Mater., 147, 114665 (2024). [4] T. Kato et al., Opt. Mater. 132, 112785 (2022).

Cr 添加 Al_2O_3 透明セラミックスの放射線誘起蛍光特性

Radiation-induced Luminescence Properties of Cr-doped Al_2O_3 Transparent Ceramics

奈良先端大, °加藤 匠, 市場 賢政, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, °Takumi Kato, Kensei Ichiba, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: kato.takumi.ki5@ms.naist.jp

シンチレータやドシメータ材料は放射線計測に利用される蛍光体の一種である。シンチレータが放射線と相互作用すると即発的に発光する。一方、ドシメータ材料が放射線と相互作用すると一時的に放射線のエネルギーを蓄積し、その後外部刺激を与えることで遅発的に発光する。これらの蛍光体に要求される特性は検出対象とする放射線の種類やその用途によって大きく異なる。日本国内で実用されている個人被ばく線量計の一つに長瀬ランダウア社のルミネスバッジがある。ルミネスバッジには $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 単結晶粉末がドシメータ材料として使用されており、これは光刺激蛍光を呈する [1]。また、海外では Al_2O_3 単結晶は熱刺激蛍光 (TSL) ドシメータとしても実用化されている。一方、セラミックス作製技術の発達により、透明性の高い Al_2O_3 セラミックスが作製可能となっている [2]。

本研究では、Cr 添加 Al_2O_3 (Cr: Al_2O_3) 透明セラミックスのシンチレーション特性および TSL 特性を調査した。Cr: Al_2O_3 は 693 nm に Cr^{3+} の ${}^2\text{E}-{}^4\text{A}_2$ 遷移に起因した発光ピークを示すことが知られており、その発光効率は非常に高いため [3]、シンチレータやドシメータ材料への応用が検討されている [4, 5]。試料作製のため、原料粉末として住友化学社製の超微粒アルミナ (NXA-100, 4N) および放電プラズマ焼結装置を使用した。Cr 濃度を 0.1–1.0 mol% まで変化させた試料を作製し、試料表面に光学研磨を施した。シンチレーション特性として、シンチレーションスペクトル・減衰曲線・線量率応答特性、TSL 特性として TSL グローカーブ・スペクトル・線量応答特性などを評価した。

図 1 に直線透過スペクトルを示す。700 nm より長波長領域における直線透過率は 60% 以上を示した。700 nm よりも短波長領域には三つの吸収帯が観測され、これらは Cr^{3+} によるものと考えられる。図 2 は X 線を照射した際のシンチレーションスペクトルである。いずれの試料においても 693 nm に Cr^{3+} に起因した発光ピークが検出された。本発表では、シンチレーション特性およびドシメータ特性における Cr 濃度依存性について報告する。

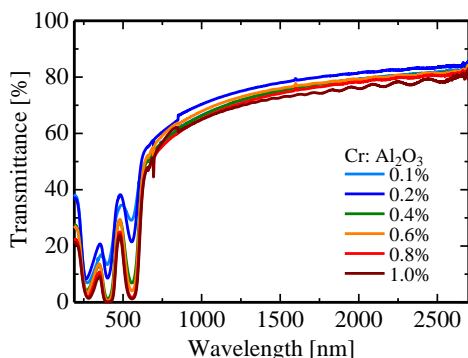


Fig. 1 In-line transmittance spectra.

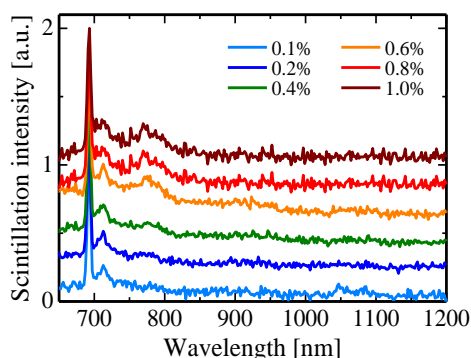


Fig. 2 Scintillation spectra.

参考文献

- [1] S. W. S. McKeever et al., Rad. Prot. Dosi., 84 (1999) 163-168. [2] N. Roussel et al., J. Am. Ceram. Soc., 96 (2013) 1039-1042. [3] T.M. Hensen et al., J. Appl. Phys., 88 (2000) 5142-5147. [4] S. Kodama et al., Appl. Phys. Express, 13 (2020) 047002. [5] K. Shinsho et al., Sens. Mater., 30 (2018) 1591-1598.

Mn 添加 ZnAl_2O_4 透明セラミックスの 光刺激蛍光特性

Optically Stimulated Luminescence Properties of Mn-doped ZnAl_2O_4 Transparent Ceramics

奈良先端大 ○(M1)本條 悟史, (D)市場 賢政, 加藤 匠, 中内 大介,

河川 範明, 柳田 健之

NAIST, ○Satoshi Honjo, Kensei Ichiba, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi,
Takayuki Yanagida

E-mail: honjo.satoshi.hp8@naist.ac.jp

蓄積型蛍光体は電離放射線のエネルギーを一時的に蓄積し、熱や光などの外部刺激によって発光を呈する材料であり、個人被ばく線量計やイメージプレートなどに応用されている。蓄積型蛍光体の要求特性は、高い発光強度、少ないフェーディングなどが挙げられる。従来、蓄積型蛍光体の材料形態は主に不透明セラミックスが利用されてきた。一方、近年新たな材料形態として透明セラミックスが注目されている。透明セラミックスは不透明なセラミックスと比較して光散乱が低いため、試料内部からの発光の読み出しが可能となる。それゆえ不透明なセラミックスに比べて高い発光強度が実現できる可能性がある。

スピネル型構造を持つ ZnAl_2O_4 は、高い化学的安定性および機械的特性を有するため、蛍光体としての研究も行われている[1]。特にフォトルミネッセンス特性として、Mn 添加 ZnAl_2O_4 は一般的な光電子増倍管との波長感度と一致する 510 nm 付近に発光ピークを示すことが報告されている[2]。一方で、そのドシメータ特性は報告されていない。そこで我々は Mn 添加 ZnAl_2O_4 透明セラミックスを放電プラズマ焼結 (SPS) 法により作製し、そのドシメータ特性を評価した。

Fig. 1 に無添加、0.5%Mn 添加 ZnAl_2O_4 透明セラミックスにおける拡散透過スペクトルを示す。両サンプルにおいて 300 および 240 nm 付近に吸収帯が観測された。300 nm 付近の吸収は酸素欠陥に起因し[3]、240 nm 付近の吸収は母材に由来すると考えられる[4]。Fig. 2 に 0.5%Mn 添加サンプルに X 線を 1 Gy 照射した後、560 nm の刺激光を照射した際の光刺激蛍光 (OSL) スペクトルを示す。その結果、520 nm において発光ピークが確認でき、その発光起源は Mn^{2+} の 3d-3d 遷移であると考えられる。

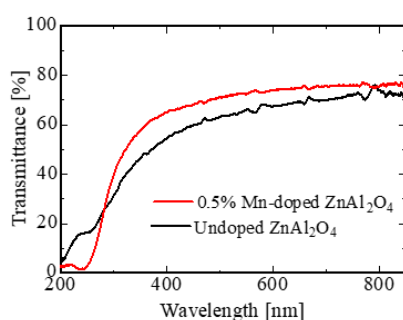


Fig. 1 Diffuse transmittance spectra of undoped and 0.5% Mn-doped ZnAl_2O_4 transparent ceramics.

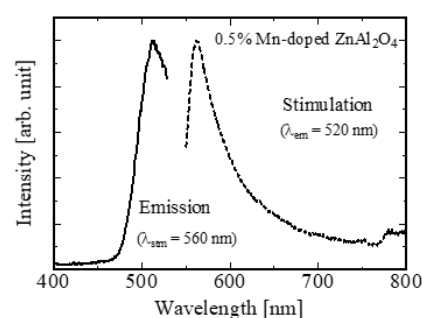


Fig. 2 OSL spectrum of 0.5% Mn-doped ZnAl_2O_4 transparent ceramics after X-ray irradiation of 1 Gy.

<参考文献>

[1] A.V. Belyaev et al., *J. Eur. Ceram. Soc.*, **37**, 2747-2751 (2017). [2] D. Zhang et al., *J. Lumin.*, **136**, 1529-1531 (2012). [3] B. Kim et al., *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **122**, 784-787 (2014). [4] S. Sommer et al., *J. Solid State Chem.*, **256**, 45-52 (2017).

金添加 $\text{K}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ ガラスが示すラジオフォトルミネッセンス現象

Radio-photoluminescence phenomena in Au-doped $\text{K}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ glasses

東京理科大¹, 奈良先端大² °白鳥 大毅¹, 市場賢政², 中内大介², 福地 裕¹, 柳田 健之²

TUS¹, NAIST²,

°Daiki Shiratori¹, Kensei Ichiba², Daisuke Nakauchi², Yutaka Fukuchi¹, Takayuki Yanagida²

E-mail: shiratori@rs.tus.ac.jp

蛍光体は多岐に渡る用途で利用されているが、その一つとして放射線の線量計測がある。こうした用途において、シンチレーション、熱刺激蛍光、光刺激蛍光、ラジオフォトルミネッセンス (RPL) は、電離放射線によって誘起される発光現象としてよく知られている。なかでも RPL を示す材料は放射線量計測用途だけにとどまらず、光記憶素子や高解像度放射線イメージングなど、幅広い応用が可能な現象として注目されている。一方で RPL を発現する材料の報告例はさほど多くはなく、より優れた特性を示す材料探索を行う余地がある。近年、我々は Au が示す RPL 現象について調査を進めており、以前の講演会では Au 添加 CsCl 透明セラミックスにおける RPL 特性をについて報告した。本研究では、Au を微量添加した $\text{K}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ ガラスが新たに顕著な RPL 現象を示すことを見出したので、その RPL 特性についての検討・評価の結果を報告する。

Figure 1 は作製したガラス試料の X 線照射前後における 340 nm 光励起下での PL スペクトル示している。Figure 2 は X 線を照射した際の各照射線量に対する発光スペクトルである。X 線未照射試料では 430 および 600 nm 付近にピークを有する発光が観測できる。試料に X 線を照射した後の PL スペクトルでは、430 nm 付近の発光ピークが顕著に増加するが、一方で、600 nm 付近の発光強度は減少した。これらの発光の変化は RPL 現象に特徴的な挙動であり、本試料が RPL 現象を示すことを示唆している。Figure 2 は 1 Gy の X 線を照射後、一定の温度で熱処理を施した後の PL スペクトルの変化を示している。200 °C の熱処理後のスペクトルではビルドアップの挙動が観測され、それ以上の温度で熱処理を施すと 430 nm 付近のピークは減少する。本講演ではこの発光起源や X 線照射時の挙動について詳細に報告する。

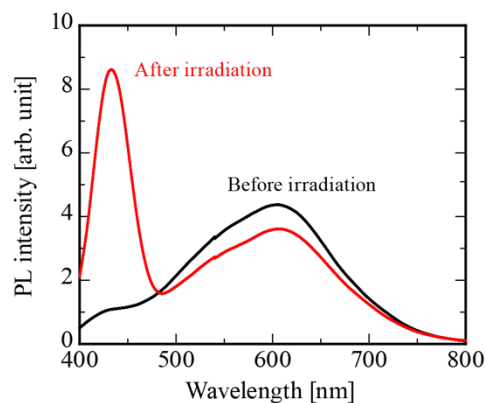


Figure 1 PL spectra of each Au-doped $\text{K}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ glass before and after X-rays irradiation of 1 Gy.

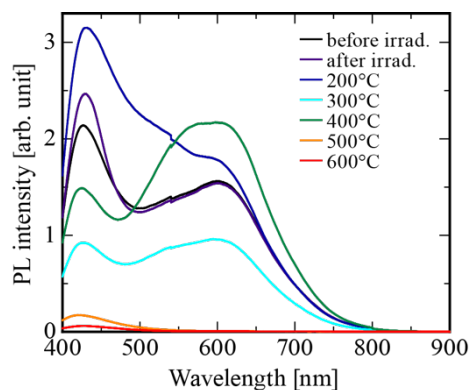


Figure 2 Changes in PL spectra with different heat treatment temperatures of Au-doped $\text{K}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ glass after 1 Gy of X-ray irradiation.

Ag:NaCaPO₄ セラミックスにおけるドシメータ特性の評価

Evaluation on Dosimetric Properties of Ag:NaCaPO₄ ceramics

東京理科大¹, 産総研², 奈良先端大³

○早乙女 倭斗¹, 白鳥 大毅¹, 木村 大海², 福地 裕¹, 柳田 健之³

TUS¹, AIST², NAIST³,

○Yamato Saotome¹, Daiki Shiratori¹, Hiromi Kimura², Yutaka Fukuchi¹, Takayuki Yanagida³

E-mail: 4324524@ed.tus.ac.jp

蛍光体を用いたドシメータは個人被ばく線量計やイメージングプレートとして広く利用されており、放射線業務従事者の被曝管理や医療分野において重要なデバイスである。ドシメータはその発光機構の違いから、熱刺激蛍光 (TSL)、光刺激蛍光 (OSL)、ラジオフォトルミネッセンス (RPL) などに分類され、いずれにおいても発光量が照射線量と相関することが重要である。我々は ABPO₄ (A:アルカリ金属、B:アルカリ土類金属) セラミックスに着目して、そのドシメータ特性に関する調査を行ってきた。リン酸塩蛍光体は、優れた熱安定性、良好な発光性能、低コスト、簡便な合成が可能であることから、重要な発光材料の一つとなっている。なかでも NaCaPO₄ は発光材料のホストとして白色 LED への応用が推奨されている有望な蛍光体材料の一つであり、優れた発光特性が期待できる。前回の講演会では Eu:NaCaPO₄ が RPL を発現する材料であることを示し、その RPL 特性について報告した。本研究では、Ag を添加した NaCaPO₄ セラミックスにおいて、Ag 濃度を変化させた際の発光特性の変化について検討・評価を行ったので報告する。

Figure 1 は Ag を 0.1% 添加した試料の PL 励起および発光スペクトルである。230 nm の光励起下において 300 nm 付近に Ag⁰ に起因すると思われるブロードな発光を観測した。Figure 2 には試料の X 線照射線量に対する発光強度の変化を示す。数十 mGy 程度以上の線量を照射すると、照射線量の増加に伴って 300 nm 付近の発光強度がわずかに増加するが、さらに照射線量を増加していくと、逆に発光強度が減少したことからラジオクロミック現象の発現が示唆された。本講演では、その他ドシメータ特性についての Ag 濃度依存性について詳細に報告する。

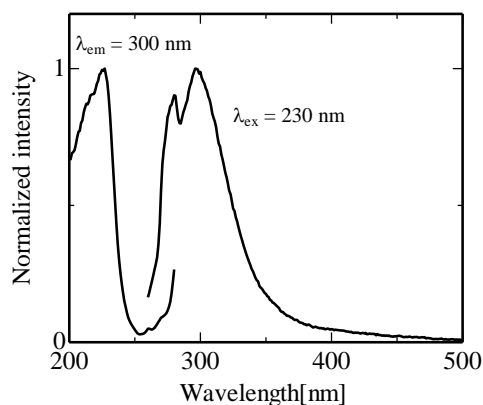


Figure 1 PL excitation/emission spectra of 0.1% Ag-doped NaCaPO₄ ceramics.

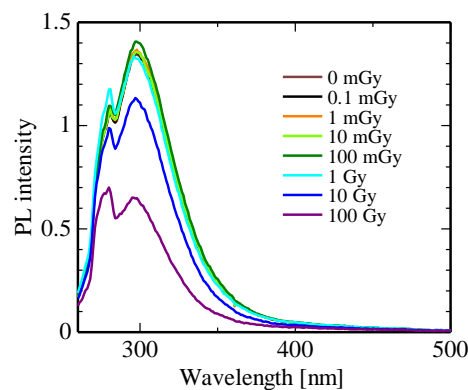


Figure 2 PL emission spectra of 0.1% Ag-doped NaCaPO₄ ceramic irradiated with different doses of X-rays.