

論文内容の要旨

博士論文題目 エネルギー移動に基づくガーネットシンチレータの開発

氏名 中内 大介

(論文内容の要旨)

シンチレータは医療やセキュリティ等において用いられている放射線検出器のメインデバイスであり、放射線を紫外可視光子に即発的に変換する機能を有する。従来のシンチレータは、自身が発光遷移を用いない元素をホストとし、これに発光に関わる電子準位を有する元素を発光中心として微量に加える形であった。本研究では、このホスト部分を敢えて発光遷移を有する元素とすることで、ホストと発光中心間でエネルギー移動を起こさせ、それによってシンチレーション特性の向上を目指したものである。これまでの研究では、一般蛍光体用途では同種の研究が存在するものの、励起エネルギーが一般蛍光体よりも4~5桁大きな放射線励起時におけるエネルギー移動に関する検討は行われてこなかった。

本論文では、「エネルギー移動」のシンチレーションにおける有用性を検証する為、ホストと発光中心の双方に発光に関するエネルギー準位を有する元素を選択し、白色LED等の一般蛍光体用途で広く用いられているガーネット材料($\text{RE}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, RE = 希土類)に着目する事で検討を行った。

本論文は第1章「序論」から第6章「総括」までの全6章で構成される。

第1章では、研究の背景として放射線計測全般に関する事柄をまとめており、第2章では、本論文で用いた実験手法に関して述べている

第3章では、材料探索的なスクリーニングを行い、 $\text{RE}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ のREを周期表に従ってTbからYbまで変化させ、発光中心として1mol%のCeをREサイトに添加した単結晶サンプルを開発した。ここでTbからYbの選択の基準は、発光遷移が可能な電子エネルギー準位を有する事と、ガーネットの単結晶育成が可能な事である。これらを実際に作製し、評価する事で、Tbの場合のみ良好なシンチレーション特性を有する事を示し、Tb-Ce間でエネルギー移動が起きている可能性を示している。

第4章では、前章で示した Tb-Ce 間でエネルギー移動が起きている可能性に基づき、アクセプターとなる Ce 量の最適値を実験的に求めた。Ce 量を 0.3~4% の間で変化させ、シンチレーション特性を評価したところ、Ce 量が 3.0% の際に、ガンマ線照射時の発光量が 73000 ph/MeV で、この物質系において最大となる事を示した。

第5章では、 $Tb_3Al_5O_{12}$ において、Al サイトを 0~80% の間で Ga に置換し、バンドギャップや発光中心元素である Ce 周辺の結晶場を変化させることで、シンチレーション特性に与える影響を評価した。Ga 量を増すにつれシンチレーション発光量は減少していくものの、蛍光減衰時定数の高速化や残光量の低減がなされることを見出した。

第6章では、本論文の内容をまとめると共に、より高特性なシンチレータ開発を目指した今後の指針に関して示している。

本研究を通じて、Ce 添加 $Tb_3Al_5O_{12}$ という新規シンチレータを発見し、その良好なシンチレーション特性はエネルギー移動に基づくことを明らかにした。そのため従来は忌避されてきた発光遷移を有する元素をホストとして用いるアプローチは、今後の関連分野の研究において重要な手法の一つとなると考えられる。

(論文審査結果の要旨)

本論文は、医療やセキュリティ等に用いられている単結晶シンチレータ材料に関する研究であり、希土類をホストとして用いるガーネット系物質に関する系統的な探索を行った。ガーネットは $RE_3Al_5O_{12}$ (RE = 希土類) の組成で表され、単結晶が育成可能でかつエネルギー移動が起きる可能性のある Tb から Yb までを RE とし、発光中心元素として Ce を用いてサンプルの作製、光物性の計測、シンチレーション特性の評価を系統的に行った。結果として見出された Ce 添加 $Tb_3Al_5O_{12}$ は、これまで報告されてきた酸化物シンチレータの最大発光量である 70000 ph/MeV を上回る値を示した。

第一章では、放射線計測全般やシンチレータに関する研究背景や、単結晶に関して概説した後、本研究の目的について述べている。

第二章では、実験方法やデータ解析の手法に関して述べている。

第三章では、材料探索的なスクリーニングを行い、 $RE_3Al_5O_{12}$ の RE を周期表に従って Tb から Yb まで変化させ、これらを実際に作製し、評価する事で、Tb の場合に良好なシンチレーション特性を有する事を示している。

第四章では、RE = Tb とした場合の、発光中心元素である Ce の最適な濃度を実験的に求めており、その値が 3% であることを見出し、ガンマ線照射時の発光量が 73000 ph/MeV と、酸化物シンチレータの中でこれまでで最大の値である事を示した。

第五章では、Ce 添加 $Tb_3Al_5O_{12}$ において、Al サイトを Ga に割合を変えて置換する事で、バンドギャップや結晶場に対する影響を評価した。Ga 量を増やすにつれ発光量は減少していくものの、減衰時定数や残光特性に関しては改良可能な事を示した。

第六章では総括として、本来は発光中心として用いる元素をホストとして使うことで、意図的にエネルギー移動を発現させるというコンセプトが有望である事を述べると共に、今後の展望に関しても述べている。本論文を通じて、有望な新規シンチレータを発見しており、審査委員一同は、学術的な意義を認め、本論文が博士(工学)論文として価値あるものと認めた。