

論文内容の要旨

博士論文題目 Ce 添加 ASiO_3 (A=Ca, Sr, Ba) 単結晶の作製
および放射線誘起蛍光特性の評価

氏 名 中村 文耶

(論文内容の要旨)

これまでのシンチレータの研究において、優れたシンチレーション特性を示す材料は、ヨウ化物等のハロゲン化物が多く、それらは激しい潮解性を示すなど化学的安定性に欠点があった。一方で酸化物は化学的安定性の高いものが多く、また近年では、 $\text{Gd}_3(\text{Al, Ga})_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ をはじめとする化学的安定性の高い酸化物において、ハロゲン化物に匹敵する高発光量を持つシンチレータが発見されつつある。しかしながら、これまでに開発された化学的に安定かつ優れたシンチレーション特性を示す酸化物は、母材に希土類元素を含んでいるものがほとんどであり、一般的に高価である。

これらの理由から、母材に希土類元素を含んでおらず、かつ化学的安定性の高い A-(Al, Si)-O (A = Ca, Sr, Ba) 系材料がシンチレータの母材として注目され、研究が盛んに行われている。しかしながら、それら先行研究は発光中心としては Eu^{2+} を用いるものがほとんどであり、Ce 添加の報告は僅少である。 Ce^{3+} の 5d-4d 遷移による発光は減衰時定数が Eu よりも小さく、高計数率の応用において優位である。加えて、A-(Al, Si)-O 系材料の中でも特に、Ce 添加 A-Si-O 系材料の研究例は数少なく、シンチレーション以外の放射線誘起蛍光特性を含めても、報告されているのは $\text{CaSiO}_3:\text{Ce}$ 粉末の熱蛍光 (TSL) 特性のみである。

本論文では、「 $\text{ASiO}_3:\text{Ce}$ の放射線誘起蛍光特性を明らかにする」ことを目的として、 $\text{ASiO}_3:\text{Ce}$ 単結晶を作製し、それら単結晶サンプルのシンチレーションおよびドシメータ特性を系統的に調査した。これまでいくつかの材料系で、TSL のようなドシメータ特性はシンチレーション特性と反相関性を持つ事が発見されている。したがって、対象とする物質の放射線誘起蛍光特性を包括的に理解するために、シンチレーションおよびドシメータ特性の両方を評価する事は重

要である。

本論文は第1章「緒言」から第6章「総括」までの全6章で構成される。

第1章で研究背景を、第2章で実験および解析方法を述べたのち、第3章、第4章、第5章では、それぞれ $\text{BaSiO}_3\text{:Ce}$ 、 $\text{SrSiO}_3\text{:Ce}$ 、 $\text{CaSiO}_3\text{:Ce}$ 単結晶を作製し、それらサンプルシンチレーションおよび TSL 特性を評価した。その結果、全てのサンプルが Ce^{3+} の 5d-4f 遷移に起因する発光を示すことを確認した。また各種密封線源を用いたパルス波高スペクトルの結果から、 BaSiO_3 は X 線および γ 線用シンチレータ、 SrSiO_3 は低エネルギー X 線および α 線用シンチレータ、 CaSiO_3 は α 線用シンチレータとして利用可能であることを明らかにした。加えて、 $\text{CaSiO}_3\text{:Ce}$ サンプルは TSL ドシメータ特性においても非常に良好な結果を示し、ドシメータ材料としても利用可能であることを明らかにした。これらの評価結果全般を俯瞰し、放射線誘起蛍光特性全般の観点からは、 $\text{BaSiO}_3\text{:Ce}$ 、 $\text{SrSiO}_3\text{:Ce}$ 、 $\text{CaSiO}_3\text{:Ce}$ の各系で、シンチレーションと TSL の反相関性を確認した。

さらにこれらの Ca から Ba までのアルカリ土類金属の系統的な調査を通じて、 $\text{ASiO}_3\text{:Ce}$ サンプル全体の母材のアルカリ土類金属サイトの変化に伴う系統的な比較も行い、各サンプルの A^{2+} のイオン半径と Ce^{3+} のイオン半径の差が放射線誘起蛍光特性に影響を与えることを明らかにした。これらの結果から、本論文の目的である「 $\text{ASiO}_3\text{:Ce}$ の放射線誘起蛍光特性を明らかにする」ことは達成されたと考えられる。

(論文審査結果の要旨)

放射線誘起蛍光体は医療やセキュリティなど、広範な応用に供されている蛍光体材料である。従来、優れた特性を示す材料は、ハロゲン化物が多く、それらは激しい潮解性を示すなど化学的安定性に欠点があった。一方で酸化物は化学的安定性の高いものが多いものの、優れた特性を示す材料は、母材に希土類元素を含んでいるものがほとんどであり、一般的に高価であった。そこで本論文では、母材に希土類元素を含んでおらず、かつ化学的安定性の高い ASiO_3 ($A = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$) 系単結晶に着目し、これに Ce^{3+} を発光中心として添加することで、シンチレーションや熱蛍光 (TSL) 機能を付与し、それらの放射線誘起蛍光特性を明らかにすることを目的とした。

第一章では、放射線計測および放射線誘起蛍光体全般やに関する研究背景や、 $A\text{-Si-O}$ 系材料の既往研究に関して概説し、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、 Ce 添加 BaSiO_3 単結晶を作製し、そのフォトルミネッセンス、シンチレーション、TSL 特性に関して調査し、当該材料は γ 線や X 線用シンチレータに適用可能であることを結論付けた。

第四章では、 Ce 添加 SrSiO_3 単結晶を作製し、そのフォトルミネッセンス、シンチレーション、TSL 特性に関して調査し、当該材料は X 線やアルファ線用シンチレータに適用可能であることを結論付けた。

第五章では、 Ce 添加 CaSiO_3 単結晶を作製し、そのフォトルミネッセンス、シンチレーション、TSL 特性に関して調査し、当該材料はアルファ線用シンチレータや TSL ドシメータに適用可能であることを結論付けた。

第六章では総括として、 ASiO_3 ($A = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$) 系単結晶は放射線計測用途に適用可能であり、特に A^{2+} のイオン半径と Ce^{3+} のイオン半径の差が放射線誘起蛍光特性に影響を与えることを述べた。材料として新規であり、さらにその各種発光特性や放射線誘起蛍光特性も初の報告となるため、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。