

## 論文内容の要旨

博士論文題目 高線量場計測を想定した近赤外発光シンチレータ材料の開発

氏名 赤塚 雅紀

(論文内容の要旨)

シンチレータとは keV~GeV オーダーのエネルギーを持つ放射線を数千から数万の紫外・可視・近赤外域の光子に即発的に変換する機能性材料である。このような機能を持つシンチレータはセキュリティ、油田探査、核医学など様々な分野に応用されている。近年では、バイオイメーjingを中心とした生物分野や、廃炉などの高線量場計測での応用が期待されている近赤外発光を示すシンチレータの研究が行われつつある。しかしながら、近赤外発光シンチレータの研究は、散発的にしか行われてきておらず、系統的な研究に関する余地が極めて大きい。そのため従来の紫外可視発光シンチレータに比して、材料のみならず、計測法も含めてほぼ未開拓である。そこで本研究では高線量場を想定した近赤外発光シンチレータ材料の開発を目的とした。

本論文は第一章「序論」から第五章「総括」までの全五章で構成される。

第一章では、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、第二章では、サンプルの作製法や基本的な光学およびシンチレーション特性の計測に加え、新たな近赤外シンチレーションの計測法を述べた。

第三章では希土類添加  $\text{MAIO}_3$  ( $M=\text{Y, Gd}$ ) 単結晶の近赤外シンチレーション特性について評価を行った。X線を照射した際のシンチレーションスペクトルは  $\text{Pr:GdAlO}_3$  サンプルを除いた希土類添加  $\text{YAlO}_3$  および希土類添加  $\text{GdAlO}_3$  サンプルにおいて、目的とする希土類イオンの 4f-4f 遷移に由来する発光を近赤外域で観測することができた。また全サンプルにおいて線量率応答特性を測定したところ、Nd、Yb、Er、Tm 添加  $\text{YAlO}_3$  と Nd、Yb、Er 添加  $\text{GdAlO}_3$  サンプルにおいて、InGaAs 半導体受光素子と組み合わせた際には 0.006 Gy/h-60 Gy/h の範囲で良好な感度を示しており、これまでの近赤外発光シンチレータのチャンピオンデータである Pr 添加  $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}$  と Si 半導体受光素子を組み合わせた結果の 0.8 Gy/h-7.2 Gy/h という結果と比較すると、測定下限を二桁程度超える感度を有し

ていた。これら評価したシンチレータのうち、Nd:GdAlO<sub>3</sub>の近赤外シンチレーション特性が発光波長や密度の観点から最も良好であると結論づけた。

第四章では第三章で得た知見を元に、発光中心をNdに固定し、ペロブスカイト化合物よりバンドギャップが小さく、シンチレーション発光量の向上が期待できるバナデート化合物MVO<sub>4</sub> (M=La, Gd, Lu) を作製し、近赤外シンチレーション特性を調査した。X線を照射した際のシンチレーションスペクトルではNd添加GdVO<sub>4</sub>、Nd添加LuVO<sub>4</sub>においてVO<sub>4</sub><sup>3-</sup>からNd<sup>3+</sup>へのエネルギー移動を確認することが出来、X線を照射した際の線量率応答特性を測定したところ、Nd添加GdVO<sub>4</sub>、Nd添加LuVO<sub>4</sub>をInGaAs半導体受光素子と組み合わせた際に、0.006 Gy/h-60 Gy/hの範囲で良好な感度を示すことを確認した。

第五章では、本論文の内容をまとめると共に、近赤外発光シンチレータの実用化に至るための今後の指針に関して示している。

本研究を通じて、近赤外域で発光が期待できる希土類元素を添加したペロブスカイト化合物の近赤外シンチレーション特性を系統的に評価し、Nd添加GdVO<sub>4</sub>、Nd添加LuVO<sub>4</sub>においてはVO<sub>4</sub><sup>3-</sup>からNd<sup>3+</sup>へのエネルギー移動によりシンチレーション効率が高くなることを明らかにした。さらに受光素子としてInGaAs半導体検出器を用いることで、これまでは利用されてこなかった近赤外シンチレーション光を検出でき、測定下限を従来よりも二桁以上向上させることに成功した。これらの得られた結果は今後の近赤外発光シンチレータの材料設計や検出器開発にも影響を与えると考えられる。

(論文審査結果の要旨)

本論文は、医療やセキュリティ分野で用いられているシンチレータに対し、廃炉や放射線治療といった新しい応用が求められていることを鑑み、高線量場計測用の新しいシンチレータや検出器を論じている。従来のシンチレーション検出器は、紫外可視発光のシンチレータと Si 半導体受光素子を用いているが、本研究では近赤外発光シンチレータと InGaAs 半導体受光素子に着目している。

第一章では、放射線計測全般や高線量場計測、さらにはこれまでの近赤外発光シンチレータや、読み出し受光素子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、近赤外発光が期待できる希土類発光中心元素を  $YAlO_3$ 、 $GdAlO_3$  に添加し、どの発光中心元素が最も良い近赤外シンチレーション検出器特性を示すかを検討したところ、 $Nd^{3+}$  の発光が想定する応用を考えただけでは最も良いと結論付けている。

第四章では前章の結果をもとに発光中心を  $Nd^{3+}$  に固定し、 $LaVO_4$ 、 $GdVO_4$ 、 $LuVO_4$  母材に対し、0.1~10%の  $Nd^{3+}$  を添加することで、最適な添加濃度を近赤外シンチレーション検出器特性の観点から見出した。

第五章では総括として、これまでの当該研究におけるチャンピオンデータは、20年以上前の Pr 添加  $Gd_2O_2S$  と Si 半導体受光素子を組み合わせた結果の 0.8 Gy/h~7.2 Gy/h の測定範囲であったが、Nd、Yb、Er、Tm 添加  $YAlO_3$  と Nd、Yb、Er 添加  $GdAlO_3$ 、Nd 添加  $GdVO_4$ 、Nd 添加  $LuVO_4$  を InGaAs 半導体受光素子と組み合わせた際には 0.006 Gy/h~60 Gy/h の範囲で、照射線量とシグナル強度の線形性を確認した。これは特に計測が困難な測定下限側に着目した際、従来のチャンピオンデータを二桁以上、上回る成果となる。以上のように新しいシンチレータ材料の開発、新しいシンチレーション検出器の開発、最終的に二桁以上の検出器感度向上を成し遂げたため、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。