

## 論文内容の要旨

博士論文題目

X・ $\gamma$ 線検出用ペロブスカイト型ハフニウム系単結晶シンチレータの開発

氏名 福嶋 宏之

(論文内容の要旨)

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シンチレータは、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。現行のシンチレータの特性を向上させるため、新規材料の探索は現在でも行われており、特に陽電子放出断層撮影 (PET) 用途として Lu 系のシンチレータが多く開発されている。しかし Lu 系のシンチレータは  $^{176}\text{Lu}$  の崩壊によって内在放射線を放出するため、これから開発される PET 用シンチレータは、減衰時定数が短く、発光量が高く、放射性同位体の存在度が小さく、かつ重元素で構成されていることが求められる。

この要求を満たすものとしては Hf 系化合物がある。Hf の原子番号は 72 であり、またその放射性同位元素の存在度は  $^{174}\text{Hf}$  の 0.16% であり、 $^{176}\text{Lu}$  の 2.59% よりも低い。しかし融点が 2400 °C 以上と非常に高いため、単結晶育成が困難であり、単結晶における特性評価がこれまでに殆ど行われていない。

本論文では粉末、不透明セラミックス、透明セラミックス形態において定性的には高い発光量を示すことが報告されている Ce 添加  $M\text{HfO}_3$  ( $M = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$ ) の単結晶をフローティングゾーン法にて育成し、そのシンチレーション特性を評価することで、X・ $\gamma$ 線検出用 Hf 系単結晶シンチレータを開発することを目的とした。

第 1 章の序論、第 2 章の実験方法に続き、第 3 章では、Ce 添加  $\text{CaHfO}_3$  単結晶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について評価した。単結晶の作製条件を様々に工夫し最適化することで、最終的に安定して単結晶が得られるようになった。特性としては、PL およびシンチレーションの両方で 430 nm 付近にブロードな発光バンドが観測され、 $^{137}\text{Cs}$  の  $\gamma$  線照射下における発光量は最大で 7800 photons/MeV 程度であった。

第4章ではCe添加SrHfO<sub>3</sub>単結晶のPLおよびシンチレーション特性について評価した。単結晶の作製条件を様々に工夫し最適化することで、安定して単結晶が得られるようになった。特性としては410 nm付近にブロードな発光バンドがPLおよびシンチレーションスペクトルにおいて観測され、<sup>241</sup>Amからのα線照射下の発光量は最大で400 photons/MeV程度であった。

第5章ではCe添加BaHfO<sub>3</sub>単結晶育成の試みと、そのPLおよびシンチレーション特性評価を行った。様々な条件（原料棒の作製法、回転速度、引き下げ速度）で単結晶育成を試みたが、完全に透明な単結晶サンプルは得られず、X線回折測定よりHfO<sub>2</sub>の異相が結晶に含まれていることが判明した。PLおよびシンチレーションスペクトルでは390 nm付近にブロードな単一ピークが観測され、その発光量は<sup>137</sup>Csのγ線照射下において最大で1600 photons/MeV程度であった。

第6章ではCe添加CaHfO<sub>3</sub>単結晶の発光量を向上させるために、Mgで一部置換したCe添加Mg<sub>x</sub>(Ca<sub>1-x</sub>)HfO<sub>3</sub>単結晶を育成し、そのPLおよびシンチレーション特性評価を行った。PLおよびシンチレーションスペクトルでは、430 nm付近にブロードな発光バンドが観測され、<sup>137</sup>Csのγ線照射下における発光量は最大で9500 photons/MeV程度まで向上した。

本研究では、Ce添加MHfO<sub>3</sub>は、Lu系シンチレータの発光量には及ばないものの、初期に開発されたX・γ線検出用シンチレータであるBi<sub>4</sub>Ge<sub>3</sub>O<sub>12</sub>以上の発光量を示すため、Hf系の材料はX・γ線検出用シンチレータとして、十分利用可能であることが判明した。

(論文審査結果の要旨)

本論文は、X・ $\gamma$ 線といった電離放射線の照射下において蛍光を発するシンチレータに関する研究である。現在はX・ $\gamma$ 線検出用シンチレータとして重元素であるLuを含有したCe添加Lu<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>単結晶が用いられているが、その代替材料としてCe添加MHfO<sub>3</sub> ( $M = \text{Ca, Sr, Ba}$ )単結晶が、利用可能であることを示す事を目的としたものである。

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、合成手法であるフローティングゾーン (FZ) 法、物性やデバイス特性の計測方法に関して述べている。

第三章では、異なるCe添加濃度 (0.3–5%) のCaHfO<sub>3</sub>単結晶を育成し、特性評価を行った結果、3%添加サンプルが最も高い発光量 (~7800 photons/MeV) を示すことを明らかにした。

第四章では、異なるCe添加濃度 (0.3–5%) のSrHfO<sub>3</sub>単結晶を育成し、特性評価を行った結果、3%添加サンプルが最も高い発光量 (~400 photons/MeV) を示すことを明らかにした。

第五章では、異なるCe添加濃度 (0.3–5%) のBaHfO<sub>3</sub>結晶を育成し、特性評価を行った結果、1%添加サンプルが最も高い発光量 (~1600 photons/MeV) を示すことを明らかにした。

第六章では、Ce添加CaHfO<sub>3</sub>単結晶の発光量を向上させるために、3%Ce添加(Mg<sub>x</sub>Ca<sub>1-x</sub>)HfO<sub>3</sub> ( $x = 0.005-0.1$ )単結晶を育成し、特性評価を行った結果、 $x=0.05$ サンプルで発光量が向上した (~9500 photons/MeV)。

第七章では総括として、FZ法を用いることにより初めてCe添加MHfO<sub>3</sub>単結晶育成に成功し、Ce添加(Mg<sub>x</sub>Ca<sub>1-x</sub>)HfO<sub>3</sub>単結晶がX・ $\gamma$ 線検出用シンチレータとして用いることが可能であることを述べている。これまでは定性評価が中心であったMHfO<sub>3</sub>の単結晶育成法の確立および諸特性を定量的に明らかにしたことにより、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。