

博士論文を要約したもの

博士論文題目 X・ γ 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

(要約)

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}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}Hf の 0.16% であり、 ^{176}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 MHfO_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・ γ 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 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}Cs の γ 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 SrHfO₃ 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、²⁴¹Am 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 BaHfO₃ 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 HfO₂ 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 ¹³⁷Cs 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 CaHfO₃ 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_x(Ca_{1-x})HfO₃ 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、¹³⁷Cs 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 MHfO₃ 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 Bi₄Ge₃O₁₂ 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。