

論文内容の要旨

博士論文題目 Pyrosilicate single crystals for ionizing radiation detection

氏名 Kantuption Prom

(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 X・ γ 線計測用のシンチレータとして希土類元素を発光中心として含んだ物質の研究が盛んに行われている。

そういったシンチレータ候補材料の一つとして、パイロシリケート系単結晶が挙げられる。2000年代前半、希土類パイロシリケートの一種である Ce 添加 $\text{Lu}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ (LPS) が優れたシンチレーション特性を示すことが見出され、近年では Ce 添加 $\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ (GPS) が LPS の特性を凌駕し、一部市販化されるに至っている。しかしながらこれまで、他の希土類パイロシリケートや、GPS や LPS においても Ce 以外の発光中心は試行されておらず、研究の余地が大きい。

こういった背景の下、本論文では希土類パイロシリケート単結晶に着目した。母材としては $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ (YPS)、 $\text{La}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ (LaPS)、GPS、LPS の四種を候補とし、発光中心としては Ce^{3+} (3章)、 Pr^{3+} (4章)、 Tb^{3+} (5章)を選定した。

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 YPS および LaPS 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。YPS に関しては Ce 濃度依存性が調査されておらず、結果として 2% で最大の発光量 (17200 ph/MeV) を示した。Ce 添加 LaPS に関しては新規物質であり、各種光学およびシンチレーション特性が初めて明らかとなった。

第4章では Pr 添加 YPS、LaPS、GPS、LPS 単結晶を作製し、PL およびシンチレーション特性の Pr 濃度依存性について評価した。どのサンプルからも 15~20 ns の高速な蛍光寿命が得られ、特に LPS は高い発光量 (9700 ph/MeV) を示すことが分かった。また YPS、GPS、LPS に関しては初めて濃度依存性が明らかとな

り、Pr 添加 LaPS は新規物質であるため、その光学およびシンチレーション特性が初めて示された。

第 5 章では Tb 1% 添加 YPS、LaPS、GPS、LPS 単結晶の作製と PL およびシンチレーション特性評価を行った。これらは全て新規物質であり、中でも Pr 添加 GPS が既存材料と比べても非常に大きな発光量 (95600 ph/MeV) を示すことを明らかにした。

本研究では、Ce、Pr、Tb 添加 $RE_2Si_2O_7$ (RE=Y, La, Gd, Lu) を系統的に作製し、光学およびシンチレーション特性に関して調査した。高速応答の観点からは Pr 添加 $RE_2Si_2O_7$ が優れており、発光量の観点からは Tb 添加 GPS が望ましく、Ce2% 添加 YPS がこれらの中庸な性能を示すことを明らかにした。総じて希土類パイロシリケート単結晶がシンチレータとして有用である事を示した。

(論文審査結果の要旨)

本論文は、 $X \cdot \gamma$ 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。本研究は特に、 $X \cdot \gamma$ 線検出用シンチレータ用のシンチレータ開発を目的とし、パイロシリケート単結晶 $RE_2Si_2O_7$ (RE :希土類 = Y, La, Gd, Lu) に着目している。

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 添加濃度の $Y_2Si_2O_7$ (YPS) および $La_2Si_2O_7$ (LaPS) 単結晶を育成し、特性評価を行った結果、2%添加 YPS が既報を大きく上回る高い発光量 (17200 photons/MeV) を示すことを明らかにし、Ce 添加 LaPS の諸特性を初めて明らかにした。

第四章では、異なる Pr 添加濃度の YPS、LaPS、 $Gd_2Si_2O_7$ (GPS)、 $Lu_2Si_2O_7$ (LPS) 単結晶を育成し、各種特性の Pr 濃度依存性を明らかにするとともに、高速応答が要求される応用には Pr 添加パイロシリケートが望ましい事を示した。

第五章では、Tb を 1% 添加した YPS、LaPS、 $Gd_2Si_2O_7$ 、 $Lu_2Si_2O_7$ 結晶を育成し、特性評価を行った結果、GPS が最も高い発光量 (95600 photons/MeV) を示すことを明らかにした。

第六章では総括として、高速応答が求められる応用には Pr 添加パイロシリケートが、高発光量が求められる場合には Pr 添加 GPS が相応しいと結論づけられている。作製した単結晶の多くが新規物質である事、さらには高速応答性や発光量の観点から十分な特性を有していることが示されたため、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。