

様式 C - 7 - 1

## 平成28年度科学研究費助成事業（科学研究費補助金）実績報告書（研究実績報告書）

1. 機関番号 

1	4	6	0	3
---	---	---	---	---

 2. 研究機関名 奈良先端科学技術大学院大学
3. 研究種目名 研究活動スタート支援 4. 研究期間 平成28年度～平成29年度
5. 課題番号 

1	6	H	0	6	9	8	3
---	---	---	---	---	---	---	---
6. 研究課題名 新規中性子用シンチレータの開発

## 7. 研究代表者

研究者番号	研究代表者名	所属部局名	職名
5 0 6 4 2 7 8 2	カワグチ ノリアキ 河口 範明	物質創成科学研究科	准教授

## 8. 研究分担者

研究者番号	研究分担者名	所属研究機関名・部局名	職名

## 9. 研究実績の概要

本研究ではフッ化リチウム（LiF）を母材とした中性子シンチレータの開発を目指している。LiFに蛍光特性を付与するためのドーパントの候補としては、一部の酸化物原料が知られてはいるものの、高い量子効率を有するEu、Ceなどの希土類元素は固溶できない。そのため実現の難易度は高いが、LiFは非潮解性かつ高濃度にLi-6を含有する理想的な化学組成であるため、検出可能な発光量の材料が得られれば革新的な固体中性子シンチレータになる。

平成28年度の検討として1価元素、希土類元素等の各種不純物元素を添加したLiF単結晶の試作、酸化物原料を添加した既知組成のLiF単結晶の評価、放電プラズマ焼結法によるLiFセラミックスの作製条件の検討を実施した。

各種不純物元素を添加したLiF単結晶については多数のサンプルを試作、評価した結果、ほとんどの添加物は発光が得られない結果に終わったが、一部の添加物では、蛍光特性が得られた上、波高分布スペクトルにおいて中性子検出ピークが得られた。現在、結果を精査しているところであるが、高エネルギーフォトン照射により特性が向上する可能性を示唆する結果も得られており、非常に興味深く、今後検討を進めたい。既知組成の酸化物添加LiF単結晶の評価としては酸化タングステンを添加したLiFを評価し、種々の特性を調べた。波高分布スペクトルにおいて中性子検出ピークを得る事には成功したが、その発光量は90 photons/neutronと極めて微弱で、現時点では独自開発した不純物添加サンプルの方が高い発光量が得られている。また、放電プラズマ焼結法によるLiFセラミックスの作製条件を検討し、透明セラミックスサンプルの試作に成功した。今後、特性の評価を進めていくが、LiFの透明セラミックスは世界でも合成された例がほとんどなく、平成29年度に実施予定の評価結果が非常に興味深い。

## 10. キーワード

- |         |            |            |          |
|---------|------------|------------|----------|
| (1) 中性子 | (2) シンチレータ | (3) 単結晶    | (4) フッ化物 |
| (5) 放射線 | (6) 放射線検出器 | (7) 中性子検出器 | (8) 蛍光体  |

## 11. 現在までの進捗状況

(区分)(2) おおむね順調に進展している。

(理由)

平成28年度の検討として1価元素、希土類元素等の各種不純物元素を添加したLiF単結晶の試作、酸化物原料を添加したLiF単結晶の評価、放電プラズマ焼結法によるLiFセラミックスの作製条件の検討を実施したが、各種不純物元素を添加したLiF単結晶については多数のサンプルを試作、評価した結果、一部の添加物では蛍光特性の付与に成功した上に、波高分布スペクトルにおいて中性子検出ピークの取得に成功した。また、現在、結果を精査しているところであるが、高エネルギーフォトンの照射により特性が向上する可能性を示唆する結果も得られており、非常に興味深い。既知組成の酸化物添加LiF単結晶の評価としては酸化タングステンを添加したLiFを評価し、種々の特性を調べた。波高分布スペクトルにおいて中性子検出ピークを得る事には成功したが、その発光量は90 photons/neutronと極めて微弱で、現時点では独自開発した不純物添加サンプルの方が高い発光量が得られていることがわかった。ただし、そもそもLiF:Wの中性子照射かでの発光量を定量的に明らかにしたのは今回の研究が初めてで、極めて興味深い結果のため、現在論文誌に投稿中である。また、放電プラズマ焼結法によるLiFセラミックスについては、作製条件を検討し、結果として透明セラミックスサンプルの試作に成功した。今後、特性の評価を進めていくが、LiF透明セラミックスは世界でも合成された例がほとんどなく、単純に固体化学の観点から見ても非常に興味深い成果で、今後の評価結果が非常に楽しみなどころである。以上述べた通り、現時点で新規で興味深い研究成果が得られているため、本研究課題の進捗としては、おおむね順調に進展していると言える。

## 12. 今後の研究の推進方策

(今後の推進方策)

LiF中性子シンチレータの性能の最大化を目指し、下記方法により、新規組成及び新規形態のLiFサンプルを鋭意開発し、研究を継続する。

(1) サンプルの合成：単結晶の合成は申請者が開発してきたマイクロブリッジマン法、透明セラミックスの開発は放電プラズマ焼結 (SPS) 法を用いる。前者は融液成長法であり、後者は固相反応法であるが、どちらも部材はカーボン材料を用い、また得られる材料の主として欠陥特性に差が生じるために、比較検討を行う事で効率の良い開発が可能である。

(2) 組成・相分析：粉末X線回折法により、サンプルの組成が単相になっているか否かの確認を行う。透明セラミックスに関しては電子顕微鏡を用いた測定も行う。BEI (Back Scattered Electron Image) 法では粒界での不純物分布の有無等を精査し、同時に粒径の均一性の評価も行う。

(3) 光物性評価：透過・反射率、ラマンスペクトル、真空紫外から近赤外域までの広い波長域における Photoluminescence (PL)、PL 蛍光減衰時定数評価を行い、基礎物性を把握する。少なくとも PL で発光が見いだせないものは、シンチレータとしても期待できない。

(4) シンチレーション特性評価：研究室の保有する 252Cf 中性子線源を用い、中性子照射時の発光量及び蛍光減衰時定数を詳細に評価する。合わせてガンマ線やX線と言った高エネルギー光子に対しても同様の評価を行い、137Cs線源や60Co線源を用いバックグラウンドガンマ線に対する感度も評価する。更に輝尽・熱蛍光特性を評価する事で、欠陥準位や量を把握する。特性の良い材料を見出した場合には、微量添加元素の最適値探索、もしくは共添加等を試行する事で更なる発光の高特性化を行う。

## 13. 研究発表 (平成 28 年度の研究成果)

〔雑誌論文〕 計 (5) 件 / うち査読付論文 計 (5) 件 / うち国際共著論文 計 (0) 件 / うちオープンアクセス 計 (0) 件

著者名		論文標題				
G. Okada, T. Kojima, J. Ushizawa, N. Kawaguchi, T. Yanagida		Radio-photoluminescence Observed in Non-doped Mg <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> Single Crystal				
雑誌名	査読の有無	巻	発行年	最初と最後の頁	国際共著	
Current Applied Physics	有	17	2   0   1   7	422-426	-	
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)						
10.1016/j.cap.2017.01.004						
オープンアクセス						
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難						

著者名		論文標題				
S. Hirano, G. Okada, N. Kawaguchi, H. Yagi, T. Yanagitani, T. Yanagida		Scintillation Properties of Ce-doped (Gd <sub>0.32</sub> Y <sub>0.68</sub> ) <sub>3</sub> AlO <sub>12</sub> Transparent Ceramics				
雑誌名	査読の有無	巻	発行年	最初と最後の頁	国際共著	
Opt. Mater.	有	66	2   0   1   7	410-414	-	
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)						
10.1016/j.optmat.2017.02.047						
オープンアクセス						
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難						

著者名		論文標題				
M. Mori, D. Nakauchi, G. Okada, Y. Fujimoto, N. Kawaguchi, M. Koshimizu, T. Yanagida		Scintillation and Optical Properties of Ce <sup>3+</sup> -doped CaGdAl <sub>3</sub> O <sub>7</sub> Single Crystals				
雑誌名	査読の有無	巻	発行年	最初と最後の頁	国際共著	
J. Lumin.	有	186	2   0   1   7	93-97	-	
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)						
10.1016/j.jlumin.2017.01.035						
オープンアクセス						
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難						

(課題番号: 16H06983)

(注)・印刷に当たっては、A4判(縦長)・両面印刷すること。

(3/8)

著者名		論文標題				
F. Nakamura, T. Kato, G. Okada, N. Kawaguchi, K. Fukuda, T. Yanagida		Scintillation and Dosimeter Properties of CaF <sub>2</sub> Transparent Ceramic Doped with Eu <sup>2+</sup>				
雑誌名	査読の有無	巻	発行年	最初と最後の頁	国際共著	
Ceram. International	有	43	2017	604-609	-	
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)						
10.1016/j.ceramint.2016.09.201						
オープンアクセス						
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難						

著者名		論文標題				
T. Igashira, M. Mori, G. Okada, N. Kawaguchi, T. Yanagida		Optical and radiation-induced fluorescence Properties of Ce: (Gd <sub>8</sub> X <sub>2</sub> )(SiO <sub>4</sub> ) <sub>6</sub> O <sub>2</sub> (X=Mg,Ca,Sr,Ba) crystals				
雑誌名	査読の有無	巻	発行年	最初と最後の頁	国際共著	
Opt. Mater.	有	64	2016	239-244	-	
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)						
10.1016/j.optmat.2016.12.013						
オープンアクセス						
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難						

〔学会発表〕 計(10)件/うち招待講演 計(2)件/うち国際学会 計(5)件

発表者名		発表標題	
河口 範明, 岡田 豪, 柳田 健之		非潮解性中性子シンチレーターの開発	
学会等名	発表年月日	発表場所	
第11回次世代先端光科学研究会 (招待講演)	2016年12月20日	静岡県浜松市、静岡大学	

発表者名	発表標 題	
河口 範明, 加藤 匠, 岡田 豪, 柳田 健之	Eu添加MgO透明セラミックスのシンチレーション特性	
学 会 等 名	発表年月日	発 表 場 所
第64回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)	2017年03月14日 ~ 2017年03月17日	神奈川県横浜市西区、パシフィコ横浜

発表者名	発表標 題	
中内 大介, 越水 正典, 岡田 豪, 古場 祐介, 福田 健太郎, 藤本 裕, 河口 範明, 浅井 圭介, 柳田 健之	Ce:LiCaAlF6単結晶の熱蛍光におけるLET依存性	
学 会 等 名	発表年月日	発 表 場 所
第64回応用物理学会春季学術講演会	2017年03月14日 ~ 2017年03月17日	神奈川県横浜市西区、パシフィコ横浜

発表者名	発表標 題	
柳田 健之, 福田 健太郎, 岡田 豪, 渡辺 賢一, 瓜谷 章, 河口 範明	Mn添加LiCaAlF6結晶のシンチレーションおよびドシメータ特性	
学 会 等 名	発表年月日	発 表 場 所
第64回応用物理学会春季学術講演会	2017年03月14日 ~ 2017年03月17日	神奈川県横浜市西区、パシフィコ横浜

発表者名	発表標 題	
岡田 豪, 河口 範明, 柳田 健之, 福田 健太郎	中性子シンチレータ応用を目的としたLiCaAlF6:Eu2+セラミックスの合成とその特性	
学 会 等 名	発表年月日	発 表 場 所
日本セラミックス協会 2017年年会	2017年03月17日 ~ 2017年03月19日	東京都千代田区、日本大学

発表者名	発表標 題	
N. Kawaguchi, G. Okada, T. Yanagida	Thermal Neutron Response of Tungsten Doped Lithium Fluoride Single Crystal	
学 会 等 名	発表年月日	発 表 場 所
PRiME 2016 (国際学会)	2016年10月02日 ~ 2016年10月07日	米国・ハワイ州ホノルル、ハワイコンベンションセンター

発表者名	発表標 題	
N. Kawaguchi, G. Okada, T. Yanagida	Radioluminescence Properties of Europium Doped Strontium Aluminum Borate Glass	
学 会 等 名	発表年月日	発 表 場 所
PRiME 2016 (国際学会)	2016年10月02日 ~ 2016年10月07日	米国・ハワイ州ホノルル、ハワイコンベンションセンター

発表者名	発表標 題	
D. Nakauchi, M. Koshimizu, G. Okada, Y. Koba, K. Fukuda, Y. Fujimoto, N. Kawaguchi, K. Asai, T. Yanagida	Linear energy transfer effects on the thermally stimulated luminescence properties of Ce:LiCaAlF <sub>6</sub> crystals	
学 会 等 名	発表年月日	発 表 場 所
20th International Conference on Ion Beam Modification of Materials (国際学会)	2016年10月30日 ~ 2016年11月04日	ニュージーランド・ウェリントン市、テ・パバ国立博物館

発表者名	発表標 題	
N. Kawaguchi, T. Kato, G. Okada, T. Yanagida	Alpha-particle imaging with Eu <sup>3+</sup> ions doped 35SrO-15Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -50B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> glass scintillator	
学 会 等 名	発表年月日	発 表 場 所
The 12th International Workshop on Ionizing Radiation Monitoring (IWIRM12) (国際学会)	2016年12月03日 ~ 2016年12月05日	日本・茨城県大洗市、千代田テクノ大洗事業所

発表者名	発表標題	
F. Nakamura, T. Kato, G. Okada, K. Fukuda, N. Kawaguchi, T. Yanagida	Scintillation and Dosimeter Properties of CaF <sub>2</sub> Transparent Ceramic Doped with Eu <sup>2+</sup>	
学会等名	発表年月日	発表場所
The 10th Asian Meeting on Electroceramics (AMEC-10, 2016) (国際学会)	2016年12月04日 ~ 2016年12月07日	台湾・台北市、GIS TAIPEI TECHコンベンションセンター

〔図書〕 計(0)件

著者名	出版社		
書名	発行年	総ページ数	

## 14. 研究成果による産業財産権の出願・取得状況

〔出願〕 計(0)件

産業財産権の名称	発明者	権利者	産業財産権の種類、番号	出願年月日	国内・外国の別

〔取得〕 計(0)件

産業財産権の名称	発明者	権利者	産業財産権の種類、番号	取得年月日	国内・外国の別
				出願年月日	

## 15. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計(0)件

国際研究集会名	開催年月日	開催場所

16. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

( 1 ) 国際共同研究 : -

17. 備考

Noriaki KAWAGUCHI - Homepage  
<http://mswebs.naist.jp/LABS/yanagida/kawaguchi/index.htm>  
研究成果に関するwebページ