

crystals in VUV wavelength region."
Y. Furuya, H. Tanaka, N. Kawaguchi, K. Fukuda,
Y. Yokota, T. Yanagida, K. Sugiyama, A.
Yoshikawa
*Proceedings of the 21th Symposium of Association
for Condensed Matter Photophysics, Japan, 54-57
(2010)*

(2) 和文論文

1. 「KLiYF₅, KLiLuF₅ および Nd 添加 KLiLuF₅ の作製と真空紫外領域におけるシンチレーション特性評価」IA-13
古谷優貴、田中秀彦、河口範明、福田健太郎、横田有為、柳田健之、杉山和正、吉川 彰
第 21 回光物性研究会論文集 p.54-57 (2010 年 12 月)
2. 「Nd 添加 CaF₂ 単結晶の結晶性と VUV 領域におけるシンチレーション特性及び光学特性との相関」IA-16
田中秀彦、古谷優貴、杉山 誠、藤本 裕、河口範明、横田有為、柳田健之、吉川 彰、川添良幸
第 21 回光物性研究会論文集 p.66-69 (2010 年 12 月)
3. 「改良型マイクロ引き下げ法による CeCl₃, Ce:LaBr₃ 単結晶の結晶育成とその光物性」IA-19
横田有為、吉川彰、柳田健之、山路晃広、河口範明、福田健太郎
第 21 回光物性研究会論文集 p.78-81 (2010 年 12 月)

2. 学会発表

(1) 国際学会

- 1) "Development of new efficient VUV Scintillators."
Y. Furuya, N. Abe, H. Tanaka, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kawaguchi, Y. Fujimoto, Y. Yokota, T. Yanagida, H. Kubo, T. Tanimori, H. Sekiya, M. Nikl, A. Yoshikawa
The 6th International Workshop on Individual Monitoring of Ionizing Radiation, Oarai Japan (November 29, 2010) (Invited)

- 2) "Development of new efficient VUV Scintillators."

Y. Furuya, N. Abe, H. Tanaka, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kawaguchi, Y. Fujimoto, Y. Yokota, T. Yanagida, H. Kubo, T. Tanimori, H. Sekiya, M. Nikl, A. Yoshikawa

The 6th International Workshop on Individual Monitoring of Ionizing Radiation, 2010.11.29-12.1, Oarai, Japan (Invited)(2010)

- 3) "Optical and Scintillation Properties of CeCl₃ and Ce Doped LaBr₃ Single Crystals Grown by Modified Micro-Pulling-down Method"

Y. Yokota, N. Kawaguchi, K. Fukuda, D. Totsuka, T. Yanagida, A. Yoshikawa

IEEE NSS MIC 2010, 2010.10.30-11.6, Tennessee, USA (2010)

(2) 国内学会

- 1) 「Nd 添加 KLiLuF₅ 単結晶の作製と光学特性評価」14a-ZT-2

古谷優貴、田中秀彦、河口範明、柳田健之、横田有為、杉山和正、吉川彰

平成 22 年秋季 第 71 回応用物理学講演会 長崎大学文教キャンパス (2010 年 9 月 14 日)

- 2) 「チョクラルスキー法を用いた VUV シンチレータ用 Nd 添加 CaF₂ 単結晶の作製」14a-ZT-3

田中秀彦、古谷優貴、河口範明、横田有為、柳田健之、川添良幸、吉川彰

平成 22 年秋季 第 71 回応用物理学講演会 長崎大学文教キャンパス (2010 年 9 月 14 日)

- 3) 「Luminescence of modified BaYF:Nd VUV single crystal scintillator」III B-114

J. Pejchal, K. Fukuda, M. Nikl, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, A. Yoshikawa

第 21 回光物性研究会 大阪市立大学 (2009 年 12 月 11 日)

- 4) 「KLiYF₅, KLiLuF₅ および Nd 添加 KLiLuF₅ の作製と真空紫外領域におけるシンチレーション特性評

価」IA-13

古谷優貴、田中秀彦、河口範明、福田健太郎、横
田有為、柳田健之、杉山和正、吉川 彰

第21回光物性研究会 大阪市立大学 (2009年12
月10日)

- 5) 「Nd添加CaF₂単結晶の結晶性とVUV領域におけ
るシンチレーション特性及び光学特性との相関」I
A-16

田中秀彦、古谷優貴、杉山 誠、藤本 裕、河口範
明、横田有為、柳田健之、吉川 彰、川添良幸

第21回光物性研究会 大阪市立大学 (2009年12
月10日)

- 6) 「改良型マイクロ引き下げ法による CeCl₃、
Ce:LaBr₃単結晶の結晶育成とその光物性」IA-19

横田有為、吉川彰、柳田健之、山路晃広、河口範
明、福田健太郎

第21回光物性研究会 大阪市立大学 (2009年12
月10日)

G. 知的財産権の出願・登録状況

1. 発明の名称「フッ化物単結晶、真空紫外発光素子及びシ
ンチレーター」

発明者：福田健太郎、石津澄人、河口範明、吉川彰、ヤ
ンペジャー、柳田健之、横田有為

出願人：トクヤマ、東北大学

出願番号：特願2010-276109、出願日：2010/12/13

2. 発明の名称「真空紫外発光素子及びシンチレーター」

発明者：福田 健太郎、石津 澄人、河口 範明、
古谷 優貴、吉川 彰、柳田 健之、横田 有為

出願人：トクヤマ、東北大学

出願番号：特願2010-059395、出願日：2010/3/16

ハロゲン化物シンチレータの光物性および単素子放射線応答特性の評価

分担研究者 柳田 健之

東北大学・未来科学技術研究センター・准教授

研究要旨

本研究の大目標は次世代X線CT用ハロゲン化物シンチレータを開発し、放射線検出器としてのアセンブリを施すことでそのシグナル検出までを目指すものである。当該分担ではそのうち、光物性の評価、単素子シンチレータを用いての放射線応答の評価までを担った。本年度は昨年度に構築した、真空紫外光を極力減衰させない光物性・放射線応答評価システムを用い、定常的に評価を行った。また昨年度に開発したパルスX線励起型ストリークカメラシステムを用いることで、シンチレータの蛍光寿命プロファイルを詳細に測定した。様々なシンチレーション特性を比較した結果、Nd:LuF₃が最良の特性を示した。

A. 研究目的

当該分担研究分野の目的は、前段の物質設計、合成、結晶性評価後の物質に対して詳細な光物性評価を行い、強い発光が観測されたものに対しては放射線検出器としてアセンブリし、放射線シグナルの検出を目指すことである。光物性に対する具体的な評価項目としては、シンチレータ結晶の透過スペクトル、紫外線励起による発光スペクトル、およびX線励起時における発光スペクトルである。放射線応答の評価に関しては、既存技術である光電子増倍管を用いての発光量、蛍光減衰時定数を評価する。真空紫外用の新規受光素子の開発およびその動作検証が目的であるので、最も発光の強い物質群を用いて、保有する放射線源中で最も励起エネルギーの強い²⁴¹Amからの α 線、もしくは¹³⁷Csからのガンマ線を照射し、そのシグナルの確認を波高値スペクトルにおいて確認することが、本研究分担パートでの目標となる。ここまでが一次スクリーニングであり、ここで良好な試験結果を示した物質に関しては、後段の東大・京大の共同研究者らに送付することで、さらに下流域への研究展開を図る。

これまでの研究においては、合成されたハロゲン化物シンチレータに関する光物性評価および放射線特性評価系を確立し、定常的な評価体制の

構築が確立しているため、これらのシステムを用いることで、恒常的に研究を進めた。

B. 研究方法

B-1. 光物性評価システム

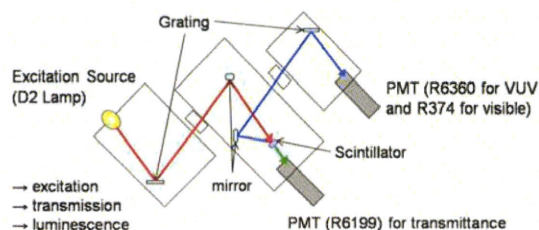


図1 光物性評価システムの概要。

図1に当該研究で用いた真空紫外域まで感度を有する光物性（透過率、PL発光スペクトル、RL発光スペクトル）評価システムの概要を示す。

透過率の評価、Photoluminescenceの評価に関しては励起源として重水素ランプの白色光を用いており、回折格子を用いて波長の単色化を行っている。透過率に関しては真空紫外から可視光までの全波長域に感度を有する浜松ホトニクス社のR6199型

光電子増倍管を用いており、Photoluminescence 用としては真空紫外域に対しては R6360 型、可視光域に対しては R374 型光電子増倍管を用いている。

光物性の評価の後は、図 2 に示すような実験系を用いて、単素子での放射線応答特性の評価を行った。まずサンプル結晶を光電子増倍管 R8778 に、Krytox16350 を用いて光学的に接着した。これに放射線を照射し、波形整形増幅器 ORTEC572 を通してシグナルを増幅し、最後に Pocket MCA を用いて波高値スペクトルを取得した。ここで得られた結晶の発光量は、初年度に開発した Nd:LaF₃ 結晶を標準サンプルとすることで求めた。

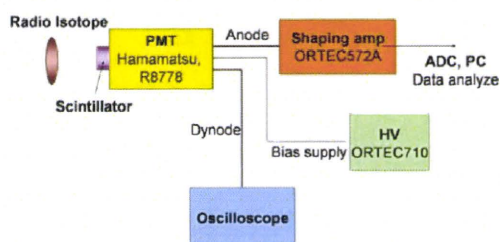


図 2 放射線応答計測システムの概略。

昨年度は詳細な蛍光減衰時定数の評価を可能にすべく、波長 vs 時間 vs 発光強度を一括で取得することが可能となる、パルス X 線励起型ストリークカメラシステムを世界で初めて開発した。図 3 には開発したストリークカメラシステムの概要を示す。

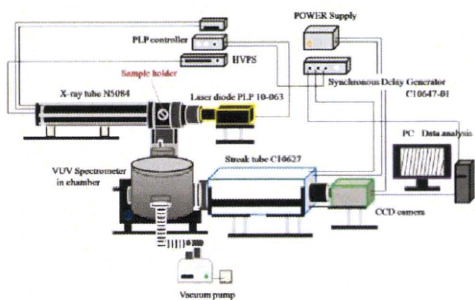


図 3 パルス X 線励起型ストリークカメラシステムの全体図。

光源として用いたのは、浜松ホトニクス社製 N5084 型 X 線管である。本 X 線源はレーザーダイオードによって生じた光子が X 線管の光電面にて

光電吸収され、そこから飛び出した光電子がタングステンターゲットに照射されることによって X 線を発生する。そのためスタートのトリガー情報をレーザーダイオードのタイミングで規定することが可能となる。

X 線発生源の近傍にはサンプルがセットされており、サンプルから生じたシンチレーション光は分光器によって波長分解され、ストリーク管に入射し、最後に CCD によって検出される。従来の光物性的な観点からの計測装置では真空紫外域まで測定する場合、真空状態にサンプルを置くためのチャンバー等が装備されているが、ここは高エネルギー物理学の形式に従い、分光器の入射窓とサンプルは光学グリースを用いて接着した。試験段階では、従来のチャンバーと光学系を用いる検出法よりも数倍検出効率が向上することを確認している。

C. 研究結果

C-1. 光物性の評価結果

昨年度に引き続き、今年度も 100 種類以上の探索合成・特性評価を行った。本項ではそれらのうちで、有意な真空紫外発光が確認出来たものの結果を記す。

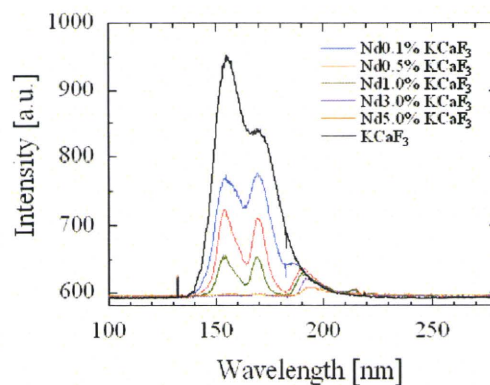


図 4 Nd:KCaF₃ 結晶の X 線励起発光スペクトル。

図 4 には Nd:KCaF₃ シンチレータの X 線励起発光スペクトルを示す。図から分かるように、真空紫外領域において、KCaF₃ ホストからのオージェフリー発光による 150、170 nm の発光ピーク、および Nd³⁺ の 5d-4f 遷移による 190 nm の発光ピークが確認された。当該材料は、密度が小さく、有効

原子番号も大きくないという問題を持つが、高い透過率を有するために、素子の厚みで検出効率を高めることが可能である。

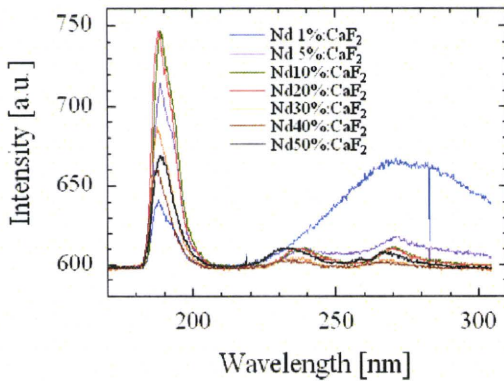


図 5 Nd:CaF₂ 結晶の X 線励起発光スペクトル。

同様の設計指針に基づく材料として、図 5 には Nd:CaF₂ シンチレータの X 線励起発光スペクトルを示す。発光のピークは濃度にもよるが、190 nm 前後で確認された。Nd 濃度を 1-50% まで連続的に変化させたサンプルを合成し、特性を調査したところ、Nd 濃度が 10-20% 前後において最適値を取り、これよりも濃度が濃い場合には濃度消光を起こすことが明らかとなった。学術的な知見としては、Nd 濃度が薄い場合には、300 nm 付近に自己束励起子に伴うブロードな発光が観測されるが、Nd³⁺の添加量を増やすに伴い、この発光を抑制していけることが可能であることが判明した。当該材料も Nd:KCaF₃ シンチレータと同様に高エネルギー光子の吸収確率は必ずしも高くはないが、素子を厚くすることで、その点を補うことが可能である。

既述の二種類のシンチレータは、本質的な問題として高エネルギー光子に対する相互作用断面積が余り大きくない。そこで我々は全く新しい材料として、KLu₂F₇ シンチレータを開発した。当該材料は Lu を含むため、高エネルギー光子の吸収確率が大きく、さらに発光中心として希土類元素を容易に添加することが可能である。図 6 には当該材料の X 線励起発光スペクトルを示す。160 nm、210 nm に強いオージェフリー発光に伴うピークが現れ、さらに可視光域には幾つかのシャープなピークが観測されている。

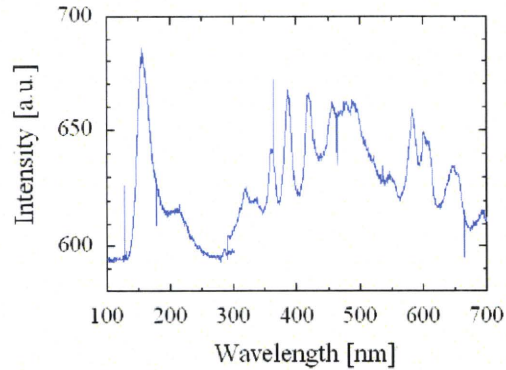


図 6 KLu₂F₇ 結晶の X 線励起発光スペクトル。

KLu₂F₇ シンチレータの発光効率自体は、既述の Nd:KCaF₃ シンチレータに及ばなかったため、我々はこの Lu サイトに希土類イオンを添加することで、人工的に発光中心を付加することとした。図 7 にはその結果を示す。

添加材としては、エネルギー準位的に真空紫外発光が期待できる Nd、Tm、Er を添加した。結果として、それぞれ真空紫外域において発光を呈し、特に Tm³⁺を添加したサンプルからは無添加サンプルを凌駕する発光強度が得られた。

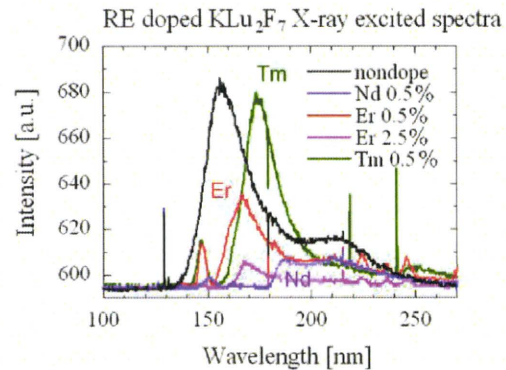


図 7 無添加、Nd、Tm、Er 添加 KLu₂F₇ 結晶の X 線励起発光スペクトル。

Tm:KLu₂F₇ シンチレータに似た組成とした、図 8 に示すように Tm:K₃LuF₆ シンチレータの系統的な探索も行った。こちらの結果からは、Tm 濃度が 20-30% 前後が最適値ということが分かった。

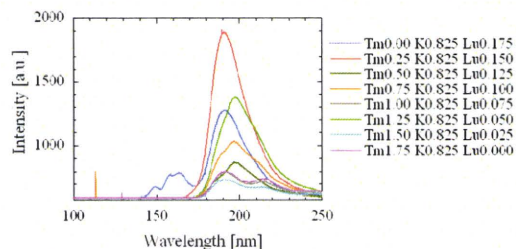


図 8 Tm 添加 K_3LuF_6 結晶の X 線励起発光スペクトル。

Tm: K_3LuF_6 シンチレータは、K サイトを一部、同じ一価陽イオンである Li や Na で置換することが可能である。図 9、図 10 にはこれらの元素置換を行った結果を示す。これらの結果を比較して分かる事は、Li 置換では発光強度が減少してしまう一方で、Na 置換においては発光強度が強まると言う結果が得られた。同様の検討は Nd、Er 等でも行ったが、Tm 添加材料が一番発光強度が高かった。

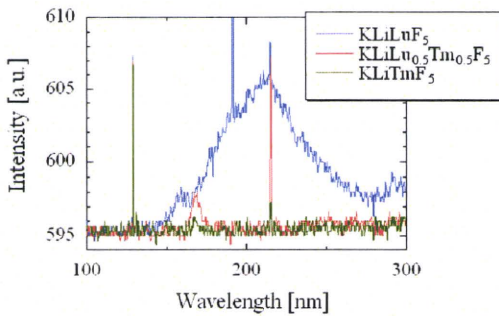


図 9 Tm 添加 $KLuLiF_5$ 系結晶の X 線励起発光スペクトル。

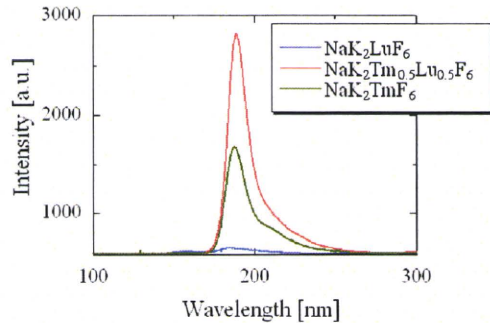


図 10 Tm 添加 NaK_2LuF_6 系結晶の X 線励起発光スペクトル。

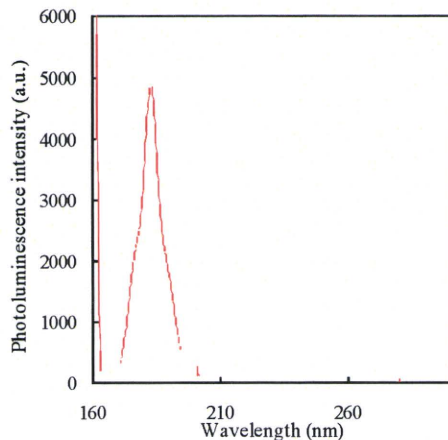


図 11 Nd: $Ca_{0.78}Lu_{0.15}F_2$ の X 線励起発光スペクトル。

図 11 には Nd 1% 添加 $Ca_{0.78}Lu_{0.15}F_2$ の X 線励起発光スペクトルを示す。この組成においては、蛍石構造を取ったまま、Lu のランダムドーピングが可能であるため、Nd: CaF_2 の発光特性を維持しつつ、高エネルギー光子に対する反応断面積のみを高めることが可能である。図より明らかなように、180 nm 近傍に強い発光ピークが観測された。

図 12 には Nd と Gd を共添加した $LuLiF_4$ シンチレータの発光スペクトルを示す。Nd のみ(青)に比較して、Gd を共添加することで、シンチレーション光の発光強度が増大する様子が見て取れる。

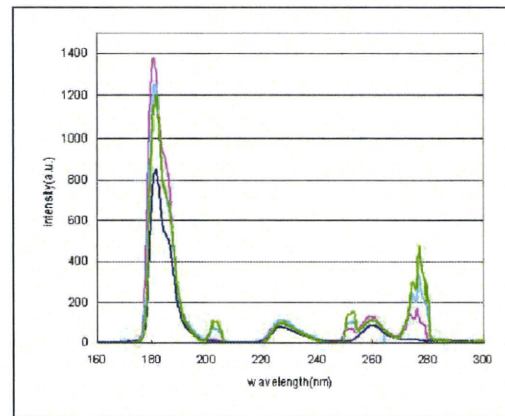


図 12 Nd と Gd を共添加した $LuLiF_4$ シンチレータの X 線励起発光スペクトル。Nd は 1mol% に固定しており、青が Nd のみ、ピンクが Gd 1%、水色が Gd 5%、緑が Gd 10% 共添加を行っている。

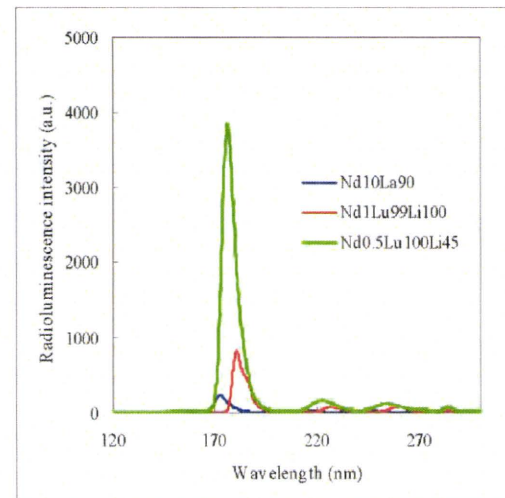


図 13 Nd: LuF_3 シンチレータの X 線励起発光スペクトル。

図 13 には Nd を添加した LuF₃ シンチレータの発光スペクトルを示す。当該材料は作製が困難であるために、これまで開発されてこなかったが、今回、我々はその開発に成功した。X 線照射時の発光スペクトルにおいては、初年度に開発した Nd:LaF₃ シンチレータの二桁上の発光強度を示した。

さらに図 14 には、同じく真空紫外域での発光が期待できる、Tm、Er 添加 LuF₃ の発光スペクトルを示す。どちらのシンチレータからも、160 nm 前後に比較的強い発光を検出することが出来た。

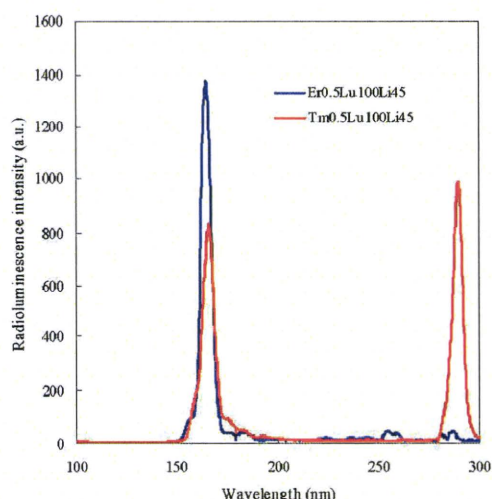


図 14 Tm (赤)および Er(青)を添加した LuF₃ シンチレータの X 線励起発光スペクトル。

これらの開発した結晶のうち、最も強い発光を示し、かつ最も高エネルギー光子に対する反応断面積が大きい、Nd:LuF₃ 結晶は、後段のマイクロピクセルガス検出器とアセンブリして撮像試験を行うために、報告書内の順番は前後するが、チョクラルスキー法でもって大型化の検討も行った。

C-2. 単素子で放射線応答評価結果

得られたサンプルのうち、最も発光量の大きかった Nd:LuF₃ および他の LuF₃ 系統の波高値スペクトルを図 15 に示す。こちらの結果から、初年度に開発した Nd:LaF₃ を基準に取ることで、Nd:LuF₃ においては約 20 倍程度の発光量を示すことが分かった。注意すべき点は、ここで用いた Nd:LuF₃ はマイクロ引き下げ法によって合成したサンプルであるため、基準の Nd:LaF₃ に比べると、自己吸収は少ないと考えられる。また実際にガス

検出器とアセンブリした場合には、Nd:LaF₃ に比べ長波長での発光となるため、検出器として動作させた場合には、数倍程度の発光量の向上になると予想される。

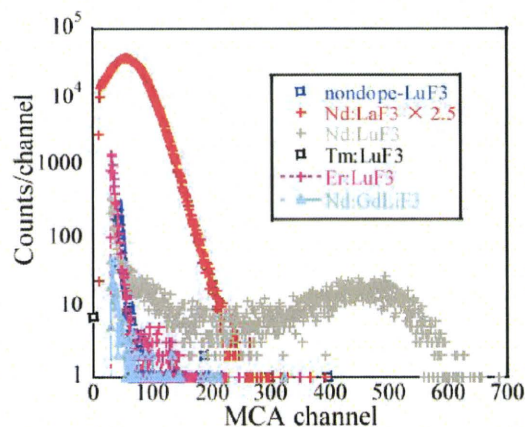


図 15 LuF₃ 系、Nd:GdLiF₄、Nd:LaF₃ の ²⁴¹Am 線源を用いた波高値スペクトル。Nd:LaF₃ はゲインが 2.5 倍となっている

C-3. 蛍光減衰時定数の評価

図 16 には、最も高い発光量を示した Nd:LuF₃ の Nd³⁺ 5d-4f 遷移に伴う発光の波長分解した蛍光寿命ストリーク像を示す。典型的な Nd³⁺ の双光子遷移と同様、10 ns 前後の高速な発光が主成分であった。これはガス検出器の応答に比較して十分早いため、そのメインデバイスとして利用することが可能であることを示している。

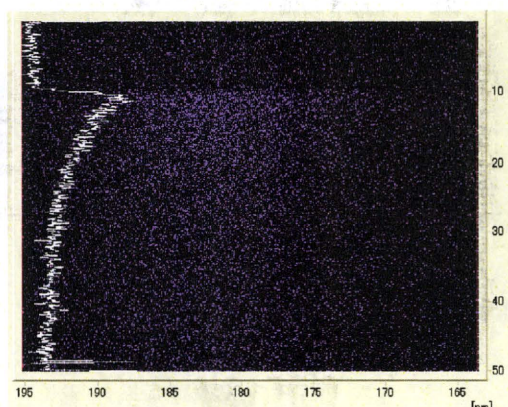


図 16 Nd:LuF₃ の X 線励起時の波長分解した蛍光

寿命のストリーク像。横軸が波長、縦軸が時間 (ns) を表す。

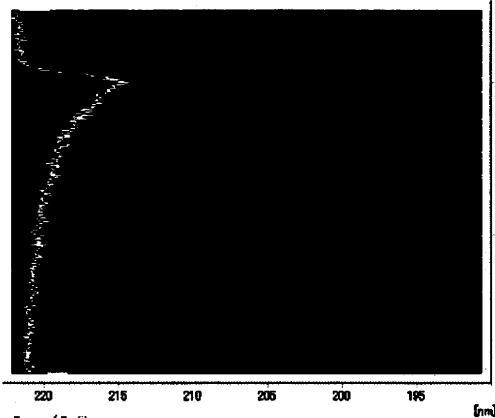


図 17 BaMgF₄ の X 線励起時の波長分解した蛍光寿命のストリーク像。横軸が波長、縦軸が時間 (ns) を表す。

Nd 系以外にも、オージェフリー発光を利用したシンチレータとして、BaMgF₄ の開発も行った。図 17 に示すように、主成分としては 1 ナノ秒程度の非常に早い応答を示した。この材料は結果として、発光波長が 205 nm と少し長目であったために、ガス検出器用のシンチレータとしては利用できないが、自己束縛励起子に伴う遅い発光が存在しないため、Time-of-Flight PET 用のシンチレータとして放射線医学総合研究所よりサンプル提供の要請があった。

D. 考察

以上のように、Nd 添加 LuF₃ シンチレータが、発光量および高エネルギー光子の相互作用断面積の観点から最も良い特性を示した。初年度に開発した Nd 添加 LaF₃ 結晶と比較し、積分型の評価では二桁上、パルス計測型の評価においても 1 桁上の発光量を示した。この理由としては、LaF₃ に比較して LuF₃ ではエネルギーを捕獲してしまう準位が少なく、エネルギー輸送効率が高いためであると考えられる。

E. 結論

今年度の開発においては、新規材料である、Nd 添加 LuF₃ 結晶シンチレータが最も良い特性を示した。当該組成でもってチョクラスキー法による大型化、高品質化を達成し、最終的にガス検出器とのアセンブリを行った。

F. 研究発表

1. 論文発表

1. T. Yanagida, N. Kawaguchi, Y. Fujimoto, M. Sugiyama, Y. Furuya, Y. Yokota, K. Kamada, A. Yoshikawa, V. Chani, "Growth and scintillation properties of BaMgF₄", Nucl. Instr. Meth-A, 621, 473-477 (2010)
2. H. Tanaka, Y. Furuya, N. Kawaguchi, N. Abe, K. Kamada, Y. Yokota, T. Yanagida, Martin Nikl, A. Yoshikawa, Y. Kawazoe, "Crystal growth and scintillation properties of Nd doped CaF₂ single crystal", Opt. Mater., 33(3), 284-287 (2010)
3. K. Fukuda, N. kawaguchi, S. Ishizu, T. Nagami, T. Suyama, T. Yanagida, Y. Yokota, M. Nikl, A. Yoshikawa, "Crystal growth and scintillation characteristics of the Nd³⁺ doped LiLuF₄ single crystals" Opt. Mater., 33(6), 924-927 (2011)
4. K. Fukuda, S. Ishizu, N. kawaguchi, T. Nagami, T. Suyama, T. Yanagida, Y. Yokota, M. Nikl, A. Yoshikawa, "Crystal growth and optical properties of the Nd³⁺ doped LuF₃ single crystals", Opt. Mater., accepted (2011)
5. Y. Furuya, H. Tanaka, K. Fukuda, N. Kawaguchi, Y. Yokota, T. Yanagida, K. Kamada, M. Nikl, A. Yoshikawa, "Scintillation properties of Nd:(Na_{0.5-x} Lu_{0.5+x}) F_{2+2x} and its Comparison with

- Nd:CaF₂ and NdF₃", *Phys. Status. Solidi (c)*, accepted (2010)
6. A. Yoshikawa, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yamaji, Y. Fujimoto, J. Pejchal, V. I. Chani, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Fukuda, T. Suyama, M. Nikl, "Crystal growth and VUV luminescence properties of Er³⁺ and Tm³⁺-doped LiCaAlF₆ for detectors", *Optical Materials* 32(9), (2010) 845-849.
 7. N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Futami, K. Fukuda, T. Suyama, Y. Yokota, A. Yoshikawa, "Nd concentration dependence on the optical and scintillation properties of Nd doped BaF₂", *Optical Materials*, 32(10), 1325-1328 (2010)
 8. Y. Furuya, N. Kawaguchi, N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, M. Nikl, A. Yoshikawa, "Crystal growth and scintillation properties of NdF₃ single crystal", *Optical Materials*, 32(9), 878-881 (2010).
 9. N. Abe, T. Yanagida, Y. Yokota, S. Maeo, J. Pejchal, Y. Fujimoto, Y. Furuya, Hidehiko T., N. Kawaguchi, K. Fukuda, V. Chani, K. Kamada, M. Nikl, A. Yoshikawa, "Crystal growth and scintillation properties of Tm:K₂NaLuF₆", *Optical Materials*, Volume 32, Issue 5, March 2010, Pages 589-594 (2010)
 10. K. Fukuda, N. Kawaguchi, S. Ishizu, T. Yanagida, T. Suyama, M. Nikl, A. Yoshikawa, "Crystal growth and scintillation characteristics of the Nd³⁺ doped LaF₃ single crystal", *Optical Materials*, Volume 32, Issue 9, July 2010, Pages 1142-1145 (2010)
 11. T. Yanagida, Y. Fujimoto, A. Yoshikawa, Y. Yokota, K. Kamada, J. Pejchal, V. Chani, N. Kawaguchi, K. Fukuda, K. Uchiyama, K. Mori, K. Kitano, M. Nikl, "Development and performance test of picosecond pulse X-ray excited streak camera system for scintillator characterization", *Appl. Phys. Express*, 3(5) (2010) 056202
 12. J. Pejchal, M. Nikl, K. Fukuda, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, V. Babin, "Doubly doped BaY₂F₈:Er,Nd VUV scintillator", *Rad. Meas.*, 45 (3-6) (2010) 265-267
 13. T. Yanagida, N. Kawaguchi, Y. Yokota, S. Ishidu, K. Fukuda, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl, V. Babin, H. Sekiya, K. Kamada, "Study of VUV emission and g-ray responses of Nd:BaF₂ scintillaotor", *Rad. Meas.*, Volume 45, Issues 3-6, March-July 2010, Pages 422-425
 14. Y. Yokota, T. Yanagida, Y. Fujimoto, M. Nikl, A. Yoshikawa, "Growth And Luminescent Properties Of The Ce, Pr Doped Nacl Single Crystals Grown By The Modified Micro-Pulling-Down Method Reference", *Rad. Meas.*, 45 (3-6) (2010) 472-474
 15. J. Pejchal, M. Nikl, K. Fukuda, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, V. Babin, "Luminescence Mechanism in Doubly Doped LaF₃:Er,Nd VUV Scintillator", *IEEE. Nucl. Trans. Sci.* 57(3) (2010) 1196-1199.
 16. N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, J. Pejchal, M. Nikl, K. Fukuda, A. Yoshikawa, "Crystal Growth and Scintillation Properties of Tm, Nd Codoped LaF₃ Single Crystals", *IEEE. Nucl. Trans. Sci.* 57(3) (2010) 1278-1281
 17. N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, K. Fukuda, J. Pejchal, M. Nikl,

- A. Yoshikawa "Crystal Growth and Characterization of Rare Earth Doped K_3LuF_6 ", IEEE. Nucl. Trans. Sci. 57(3) (2010) 1320-1324
18. N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, J. Pejchal, F. Nara, N. Kawaguchi, K. Fukuda, M. Nikl, A. Yoshikawa, "Crystal Growth and Luminescence Properties of $Tm:BaF_2$ Single Crystals", Jpn. J. Appl. Phys. 49 (2) (2010) 022601
19. T. Shimizu, M. Cadatal-Raduban, K. Yamanoi, S. Takatori, M. Kouno, M. Pham, E. Estacio, T. Nakazato, N. Sarukura, N. Kawaguchi, K. Fukuda, Y. Suyama, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, F. Saito, "Er:LiCAF as Potential Vacuum Ultraviolet Laser Material at 163 nm", IEEE. Nucl. Trans. Sci. 57(3) (2010) 1204-1207
20. T. Nakazato, M. Cadatal-Raduban, K. Yamanoi, M. Tsuboi, Y. Furukawa, M. Pham, E. Estacio, T. Shimizu, N. Sarukura, K. Fukuda, T. Suyama, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, F. Saito, "Nd³⁺:LaF₃ as a Step-Wise Excited Scintillator for Femtosecond Ultraviolet Pulses ", IEEE. Nucl. Trans. Sci. 57(3) (2010) 1208-1210
21. Y. Yokota, N. Kawaguchi, K. Fukuda, T. Yanagida, A. Yoshikawa, M. Nikl, "Development of modified micro-pulling-down method for bromide and chloride single crystals", J. Cryst. Growth. 318(1) (2011) 908-911
22. Y. Furuya, H. Tanaka, K. Fukuda, N. Kawaguchi, Y. Yokota, T. Yanagida, V. Chani, M. Nikl and A. Yoshikawa, "Crystal growth, Nd distribution and luminescence properties of $(Na_{0.425+x}Lu_{0.575-x-y}Nd_y)F_{2.15-2x}$ single crystals", J. Cryst. Growth., 8(1) (2011) 136-139
23. Y. Furuya, T. Yanagida, Y. Fujimoto, Y. Yokota, K. Kamada, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Uchiyama, K. Mori, Ken K. , M. Nikl, A. Yoshikawa, "Time and wavelength-resolved luminescence evaluation of several types of scintillators using streak camera system equipped with pulsed X-ray source ", Nuclear Inst. and Methods in Physics Research. (2011) (accepted)
24. Y. Furuya, H. Tanaka, K. Fukuda, N. Kawaguchi, Y. Yokota, T. Yanagida, J. Pejchal, V. Chani, M. Nikl and A. Yoshikawa, "Scintillation properties of $(Na_{0.425}Lu_{0.575-x}Nd_x)F_{2.15}$ and its comparison with $(Ca_{1-x}Nd_x)F_{2+x}$ and NdF_3 ", Physica status solidi. (2011) (accepted)
2. 学会発表
 (1) 国際学会
 1. Y. Furuya, H. Tanaka, K. Fukuda, N. Kawaguchi, Y. Yokota, T. Yanagida, K. Kamada, M. Nikl, A. Yoshikawa, "Scintillation properties of $Nd:(Na_{0.5-x}Lu_{0.5+x})F_{2+2x}$ and its Comparison with $Nd:CaF_2$ and NdF_3 "
 The 9th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Materials, 7/11-16, Brisbane, Australia (2010)
 2. J. Pejchal, M. Nikl, F. Moretti, A. Vedda, K. Fukuda, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa
 "LUMINESCENCE MECHANISM AND ENERGY TRANSFER IN DOUBLY-DOPED $BaY_2F_8:Tm,Nd$ VUV

- SCINTILLATOR"
Europhysical Conference on Defects in Insulating Materials (EURODIM 2010), 7/12-16, Pecs, Hungary (2010)
3. Y. Furuya, H. Tanaka, K. Fukuda, N. Kawaguchi, Y. Yokota, T. Yanagida, M. Nikl, A. Yoshikawa
"Growth and luminescence properties of Nd doped $(\text{Na}_{0.5-x}\text{Lu}_{0.5+x})\text{F}_{2+2x}$ single crystal"
The 16th International Conference on Crystal Growth (ICCG-16), 8/8-13, Beijing, China (2010)
 4. Y. Furuya, H. Tanaka, K. Fukuda, N. Kawaguchi, Y. Yokota, T. Yanagida, M. Nikl, A. Yoshikawa
"Crystal growth, dependence of Nd segregation on Na concentration and luminescence properties of Nd doped $(\text{Na}_{0.425-x}\text{Lu}_{0.575+x})\text{F}_{2.15+2x}$ single crystal"
The 16th International Conference on Crystal Growth (ICCG-16), 8/8-13, Beijing, China (2010)
 5. Y. Yokota, A. Yoshikawa, N. Kawaguchi, K. Fukuda, D. Totsuka, T. Yanagida, S. Maeo, M. Nikl
"Development of modified micro-pulling-down method for bromide and chloride single crystals"
The 16th International Conference on Crystal Growth (ICCG-16), 8/8-13, Beijing, China (2010)
 6. T. Yanagida, Y. Fujimoto, Y. Yokota, N. Kawaguchi, K. Kamada, J. Pejchal, V. Chani, K. Fukuda, D. Totsuka, K. Uchiyama, K. Mori, K. Kitano, M. Nikl, A. Yoshikawa
" Development of Pulsed X-Ray Tube Equipped Streak Camera System to Study Scintillation Phenomenon"
IEEE NSS MIC 2010, 2010.10.30-11.6, Tennessee, USA (2010)
 7. Y. Yokota, N. Kawaguchi, K. Fukuda, D. Totsuka, T. Yanagida, A. Yoshikawa
" Optical and Scintillation Properties of CeCl₃ and Ce Doped LaBr₃ Single Crystals Grown by Modified Micro-Pulling-down Method"
IEEE NSS MIC 2010, 2010.10.30-11.6, Tennessee, USA (2010)
 8. Y. Furuya, N. Abe, H. Tanaka, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kawaguchi, Y. Fujimoto, Y. Yokota, T. Yanagida, H. Kubo, T. Tanimori, H. Sekiya, M. Nikl, A. Yoshikawa
"Development of new efficient VUV Scintillators."
The 6th International Workshop on Individual Monitoring of Ionizing Radiation, 2010.11.29-12.1, Oarai, Japan (2010)
 9. Y. Furuya, T. Yanagida, Y. Fujimoto, Y. Yokota, K. Kamada, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Uchiyama, K. Mori, K. Kitano, M. Nikl, A. Yoshikawa
"Time and Wavelength-resolved Luminescence Evaluation of Several Types of Scintillators using Streak Camera System Equipped with Pulsed X-ray Source."
29th International Congress on High-Speed Imaging and Photonics (ICHSIP-29), 9/20-24, Morioka, Japan (2010)

(2)国内学会

1. 谷上幸次郎、黒澤俊介、窪秀利、谷森達、関谷洋之、柳田健之、横田有為、吉川彰、福田健太郎、石津澄人、河口範明、須山敏尚
"GEM/ μ PIC を用いた真空紫外イメージング検出器Ⅲ"
日本物理学会第 65 回年次大会, 3/20-23, 岡山, 岡山大学(2010)
2. 谷上幸次郎、黒澤俊介、窪秀利、谷森達、関谷洋之、柳田健之、横田有為、吉川彰、福田健太郎、石津澄人、河口範明、須山敏尚
"GEM/ μ PIC を用いた真空紫外イメージング検出器Ⅳ"
日本物理学会秋季大会, 9/11-14, 福岡, 九州工業大学(2010)
3. 上坂浩司, 益川陽平, ザムリ ユソブ, 市川洋, 種村眞幸, 小野晋吾, 河口範明, 長見知史, 石津澄人, 福田健太郎, 須山敏尚, 横田有為, 柳田健之, 吉川彰
"KMgF₃ 薄膜を用いた電界放出型真空紫外発光素子"
第 71 回応用物理学会学術講演会, 9/14-17, 長崎, 長崎大学(2010)
4. 田端一善, 小野晋吾, 市川洋, 河口範明, 福田健太郎, 須山敏尚, 横田有為, 柳田健之, 吉川彰
"パルスレーザー堆積法により作製したフッ化物薄膜の光伝導特性評価と真空紫外線センサ応用"
第 71 回応用物理学会学術講演会, 9/14-17, 長崎, 長崎大学(2010)
5. 古谷優貴, 田中秀彦, 河口範明, 柳田健之, 横田有為, 杉山和正, 吉川彰
"Nd 添加 KLiLuF₅ 単結晶の作製と光学特性評価"
第 71 回応用物理学会学術講演会, 9/14-17, 長崎, 長崎大学(2010)
6. 田中秀彦, 古谷優貴, 河口範明, 横田有為, 柳田健之, 川添良幸, 吉川彰
"チョクラルスキー法を用いた VUV シンチレータ用 Nd 添加 CaF₂ 単結晶の作製"
第 71 回応用物理学会学術講演会, 9/14-17, 長崎, 長崎大学(2010)
7. 柳田健之, 藤本裕, 横田有為, 前尾修司, 古谷優貴, 阿部直人, 田中秀彦, 深堀明博, Pejchal Jan, 吉川 彰, 河口範明, 石津澄人, 福田健太郎, 須山敏尚, 内山公朗, 森邦芳, 北野謙
"パルス X 線励起型ストリークカメラシステムの開発及び性能評価"
第 57 回応用物理学関係連合講演会, 3/17-20, 神奈川, 東海大学(2010)
8. 横田有為, 柳田健之, 前尾修司, 河口範明, 福田健太郎, 吉川彰
"改良型 μ -PD 法による吸湿性ハロゲン化合物単結晶の結晶作製と発光特性評価"
第 57 回応用物理学関係連合講演会, 3/17-20, 神奈川, 東海大学(2010) 山路晃広, 柳田健之, 河口範明, 藤本裕, 横田有為, 吉川彰
"Ce Eu 添加 LiSrAlF₆ 単結晶製作及びシンチレーション特性評価"
第 21 回光物性研究会, 12/10-11, 大阪, 大阪市立大学(2010)
9. 横田有為, 吉川彰, 柳田健之, 山路晃広, 河口範明, 福田健太郎
"改良型マイクロ引き下げ法による CeCl₃, Ce:LaBr₃ 単結晶の結晶育成とその光物性 "
第 21 回光物性研究会, 12/10-11, 大阪, 大阪市立大学(2010)
10. 田中秀彦, 古谷優貴, 杉山誠, 藤本裕, 河口範明, 横田有為, 柳田健之, 吉川彰, 川添良幸

"Nd添加CaF₂単結晶の結晶性とVUV領域におけるシンチレーション特性及び光学特性との相関"

第21回光物性研究会, 12/10-11, 大阪, 大阪市立大学(2010)

11. 古谷優貴, 田中秀彦, 河口範明, 福田健太郎, 横田有為, 柳田健之, 杉山和正, 吉川彰

"KLiYF₆, KLiLuF₆ および Nd 添加 KLiLuF₆ の作製と真空紫外領域におけるシンチレーション特性評価"

第21回光物性研究会, 12/10-11, 大阪, 大阪市立大学(2010)

12. 吉川彰, 横田有為, 柳田健之, 福田健太郎, 河口範明, 石津澄人, 須山敏尚

"Nd:LuF₃の単結晶成長とその光学特性"

第5回日本フラックス成長研究発表会, 12/3, 長野, 信州大学(2010)

太郎, 河口範明, 須山敏尚, 窪秀利, 谷森達, 関谷洋之

出願人: 東北大学, トクヤマ

出願番号: 特願 2010-203515

出願日: 2010.9.10

4. 発明の名称: 「フッ化物単結晶、シンチレーター及びフッ化物単結晶の製造方法」

発明者: 吉川彰, 柳田健之, 藤本裕, 福田健太郎, 河口範明, 須山敏尚

出願人: 東北大学, トクヤマ

出願番号: 特願 2010-207696

出願日: 2010.9.16

5. 発明の名称: 「金属フッ化物結晶及び発光素子」

発明者: 吉川彰, 柳田健之, 藤本裕, 古谷優貴, 福田健太郎, 河口範明, 須山敏尚, 渡辺賢一

出願人: 東北大学, トクヤマ, 名古屋大学

出願番号: 特願 2010-246711

出願日: 2010.11.12

6. 発明の名称: 「フッ化物単結晶、真空紫外発光素子及びシンチレーター」

発明者: 吉川彰, 柳田健之, 横田有為, 福田健太郎, 石津澄人, 河口範明, 須山敏尚

出願人: 東北大学, トクヤマ

出願番号: 特願 2010-276109

出願日: 2010.12.10

G. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得

1. 発明の名称: 「放射線検出器」

発明者: 吉川彰, 柳田健之, 横田有為, 福田健太郎, 河口範明, 須山敏尚, 高橋弘充, 米谷光生, 松岡正之, 深沢泰司

出願人: 東北大学, 広島大学, トクヤマ

出願番号: 特願 2010-164360

出願日: 2010.7.21

2. 発明の名称: 「フッ化物結晶、放射線検出用シンチレーター及び放射線検出器」

発明者: 吉川彰, 柳田健之, 藤本裕, 福田健太郎, 河口範明, 須山敏尚

出願人: 東北大学, トクヤマ

出願番号: 特願 2010-191462

出願日: 2010.8.27

3. 発明の名称: 「放射線画像検出器」

発明者: 吉川彰, 柳田健之, 藤本裕, 福田健

2. 実用新案登録

該当なし。

3. その他

該当なし。

厚生労働科学研究費補助金（医療機器開発推進研究事業）
分担研究報告書

二次元イメージング

分担研究者 窪 秀利
京都大学・大学院理学研究科・助教

分担研究者 関谷 洋之
東京大学・宇宙線研究所・助教

研究要旨

本研究の最終目標は、次世代X線CT用ハロゲン化物シンチレータを開発し、放射線検出器としてのアセンブリを施すことで、そのシグナル検出までを目指すものである。該分担ではそのうち、シンチレータとガス検出器を組み合わせ、二次元イメージングを取得するまでを担う。本年度は、ガス検出器（ $10 \times 10 \text{ cm}^2$ の μPIC とGEM）およびCsI光電面を蒸着した MgF_2 からなる真空紫外イメージング検出器に、開発されたNd:LuLiF₄結晶、及びNd:LuF₃結晶を組み合わせ、評価を行った。また、CsI光電面をGEMに蒸着した反射型光電面タイプの検出器の製作、および最終形態である、 MgF_2 の代わりにシンチレータ結晶を直接窓材として使用した検出器の製作および評価を行った。位置分解能、放射線検出効率ともに、昨年度までの試作機から大幅に向上させることに成功し、放射線二次元イメージング検出器としての動作を確立した。

A. 研究目的

当該分担研究分野の目的は、近年発展が目覚ましいGEM (Gas Electron Multiplier) や μPIC (Micro Pixel Gas Chamber)といった大面積マイクロパターンガス検出器と、真空紫外光に感度のあるCsI光電面、および開発された真空紫外発光シンチレータを組み合わせ、放射線二次元イメージング検出器としての動作検証および性能評価を行うことである。

今年度は、昨年度までに実現した検出器の性能向上をめざし、新たに開発されたNd:LuLiF₄およびNd:LuF₃結晶との組み合わせを評価すること、およびガス増幅の最適化、光電面の量子効率向上による検出効率の向上を図った。さらに、シンチレータ自体を窓として、検出器に組み込む最終形態での位置分解能の評価を行い、実用的な二次元イメージング検出器への基礎の確立を目的とした。

B. 研究方法

B-1. 光源としてのNd:LuLiF₄とNd:LuF₃結晶の評価

本検出器を評価するに当たり、使用するNd:LuLiF₄およびNd:LuF₃シンチレータの光源としての評価を実施した。 $10 \times 10 \times 5 \text{ mm}^3$ の結晶に5.5MeV α 線源で

ある²⁴¹Am (8kBq)を直接取り付け、結晶での発光を真空紫外に感度が高い浜松ホトニクス社のR8778型光電子増倍管にて測定した。この際、真空紫外光を通すグリースとしてKrytox®16350を使用し、光電子増倍管および²⁴¹Am以外の面にはテフロン®を反射材として用いた。

B-2. ガス増幅最適化のための性能評価システム

次に、放射線検出効率向上のために、ガス検出器内部でのCsI光電面からの電子が最も効率的に取得できるような電場構造の最適化を行った。そのセットアップを図1に示す。 μPIC ($10 \times 10 \text{ cm}^2$)と2枚のGEMを組み合わせ、フォトンフィールドバックやイオンフィールドバックを抑えるような構造にすることで、高ゲインでの電子増幅を可能とする。GEMは、サイエナジー社で製作された $10 \times 10 \text{ cm}^2$ サイズ、厚さ $100 \mu\text{m}$ の液晶ポリマーで、 $70 \mu\text{m}$ 径の穴を $140 \mu\text{m}$ のピッチで空けたものを使用した(図2)。 μPIC については、 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ サイズで、アノード256本、カソード256本の $400 \mu\text{m}$ ピッチのストリップ読み出しの標準品を用いているが(図3)、本測定に際しては、アナログ性能を評価するために微細な読み出しは必要ないため、64chずつまとめ、アノード4ch、

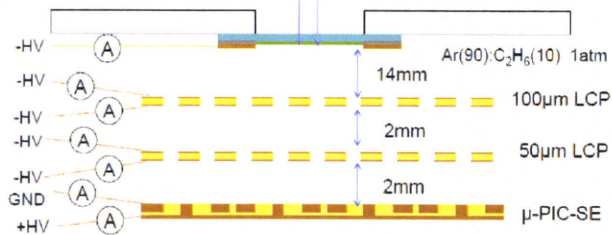


図1 ガス検出器部分のフォトンカウンティング性能をみるためのセットアップ概略。

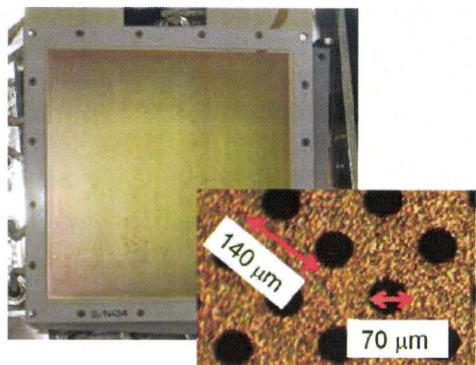


図2 10×10 cm² のガス電子増幅器 GEM (左) および拡大写真 (右)。

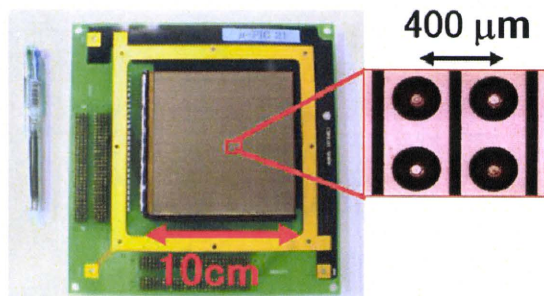
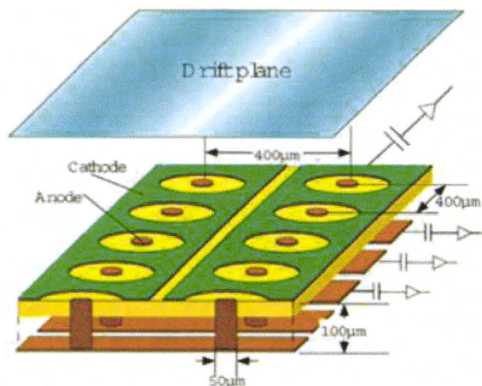


図3 ガス増幅検出器 µPIC の構造図 (上) および 10×10 cm² の µPIC の写真 (下)

カソード 4ch とした。MgF₂ の窓は 54 mm の径で、

厚さは 5 mm であり、これの中心 34 mm 径の部分に、CsI をおよそ 10 nm 厚蒸着して光電面を形成している。外周部 10 mm には Al を蒸着して、銅リングを通じて高電圧を印加する際の電極とした (図4)。また、初段 GEM との間に銅製の電場整形用のリングを挿入し、光電面から飛び出す電子が初段 GEM まで一様にドリフトされるようになっている。

これらの構成要素を、ステンレス製の容器 (図5) に組み立てた後、測定用のガスであるアルゴン (90%) とエタン (10%) の混合ガスを 1 気圧封入した。その後、(図6) のようにドリフトへの高電圧供給部分などに電流計を設置し、電流の様子からガス内部での電子・イオンの流れを推定し、最適な電場を決定した。

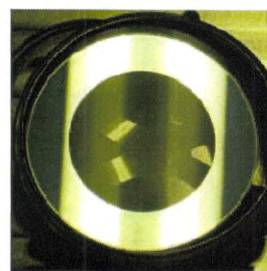


図4 CsI 光電面および Al 電極を蒸着した MgF₂。



図5 図1のガス封入容器外観。

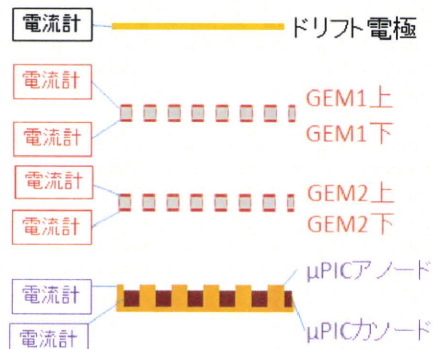


図6 電場最適化時のセットアップ。

B-3. 透過型光電面二次元イメージングシステム

透過型二次元イメージングを行った際のセットアップを図7、図8に示す。フォトンカウンティングによるアナログ性能評価のセットアップと同様、µ

PIC と 2 枚の GEM を使用しているが、GEM の材質は、ポリイミドで厚さは 50 μm である。アノード 256ch、カソード 256ch から読み出される電荷は、専用 IC である ASD チップ (SONY CXA3653Q) により 0.7V/pC に電圧変換されたのち、7 倍のゲインで増幅される。そして ASD チップ内のコンパレータによって閾値を超えた波高シグナルのデジタル化を行う。デジタル化されたシグナルは、100MHz のクロックで動作する FPGA ベースの位置演算装置へ送られ、そこで、(x, y) の実際の二次元位置情報へ変換される (図 9)。

本年度は、Nd:LaF₃ の紫外線自己吸収を考慮し、昨年度よりもサイズの小さい 10×10×1 mm³ の結晶、および Nd:LuLiF₄ および Nd:LuF₃ 結晶を用いて、性能評価を実施した。

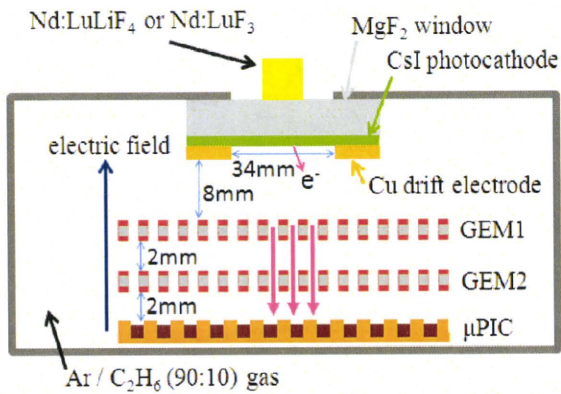


図 7 ガス検出器部分のイメージング性能をみるためのセットアップ概略。



図 8 図 7 のセットアップをガス封切容器に取り付けた様子。

B-4. 受光窓へのシンチレータの導入

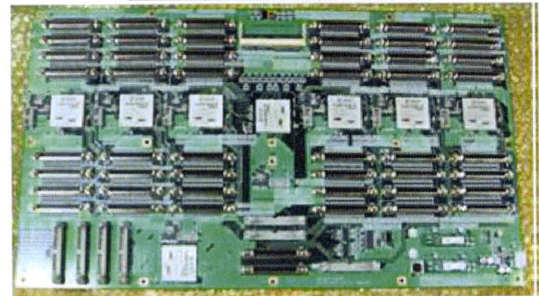
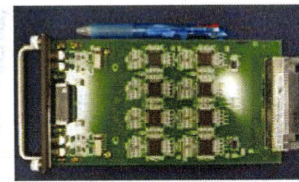
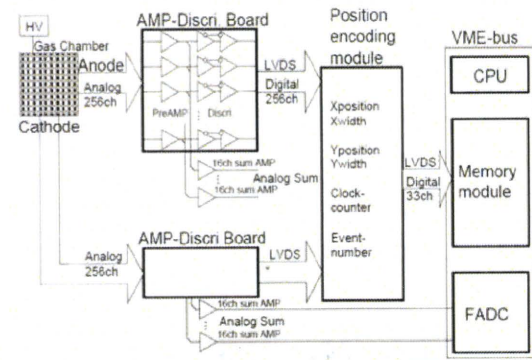


図 9 二次元イメージング処理回路。(上) ブロック図。(中) μPIC から信号を増幅する専用 IC を搭載した基板。(下) リアルタイム位置演算用 FPGA 搭載基板。

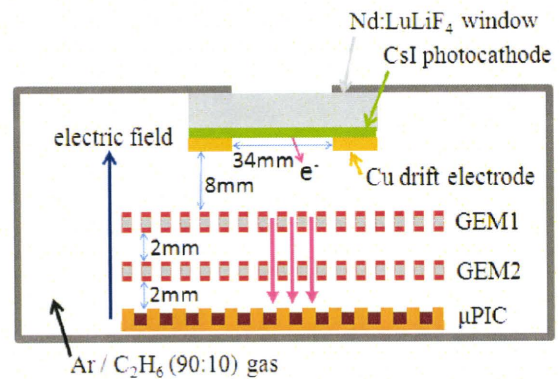


図 10 Nd:LuLiF₄ シンチレータ受光窓を用いたセットアップ概略。

検出効率向上のために、図 10 のように、MgF₂ の代わりに Nd:LuLiF₄ シンチレータ結晶を直接窓材として使用した検出器の製作および評価を行った。Nd:LuLiF₄ のサイズは直径 54 mm、厚さ 5 mm で光電面 CsI を約 10nm 厚蒸着した。

B-5. 反射型光電面二次元イメージングシステム

原理的に光電面を厚くできる反射型は、透過型より高い量子効率を得られることから、反射型光電面を用いた二次元イメージングを行った。そのセットア

ップを図11に示す。ここで、CsI光電面は、ドリフト側のGEMに蒸着させて、紫外線を電子に変換させている。読み出し回路等は透過型と同一である。

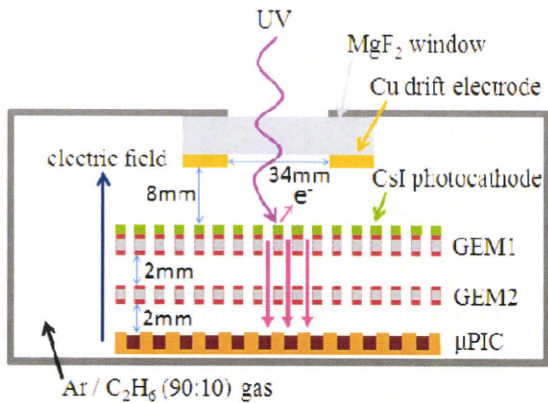


図11 反射型光電面を用いたセットアップ概略。

B-6 X線イメージング

上記ではシンチレータに α 線源 ^{241}Am (5.5 MeV)を照射させて紫外線を発生させていたが、本研究の目的である次世代X線CTへの応用に向けて、既出の3種のシンチレータそれぞれとガス検出器を組み合わせた検出器に ^{57}Co 線源からのX線(122keV)を照射させた。そして、イメージング能力や検出効率について評価を行った。

C. 研究結果

C-1. 光源としてのNd:LuLiF₄とNd:LuF₃結晶の評価

図12に、得られた同一サイズ(10×10×1 mm³)の結晶の光量分布を示す。この値をもとに以下の評価を行った。昨年度に測定したNd:LaF₃結晶にくらべてNd:LuLiF₄およびNd:LuF₃結晶の光量がそれぞれ2.1倍

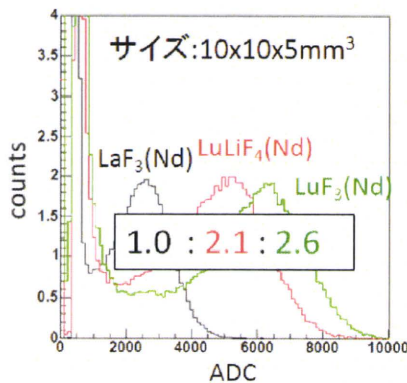


図12 Nd:LaF₃、Nd:LuLiF₄ および Nd:LuF₃ 結晶の 5.5 MeV α 線に対する光量分布 (光電子増倍管で測定)。

および2.6倍向上した。

C-2. ガス増幅最適化のための性能評価システム

図13のようにドリフト面とGEM1上面間(ドリフト領域)の電場を変化させてゆくと、おおよそ0.1kV/cmからドリフト面(光電面)の電流が0からマイナスに転じた。このことからイオンフィードバックが顕著に発生したことが分かった。一方、電場を弱くすると、 μ PICアノードに流れる電流が小さく、電子の収集効率が下がることが分かった。これらのことから、ドリフト電場の最適な値を0.25kV/cmとした。同様に、GEM1とGEM2の間の電場およびGEM2と μ PICアノードの間の電場についても電場依存性を測定し、それぞれ1kV/cmおよび3kV/cmを最適値とした。

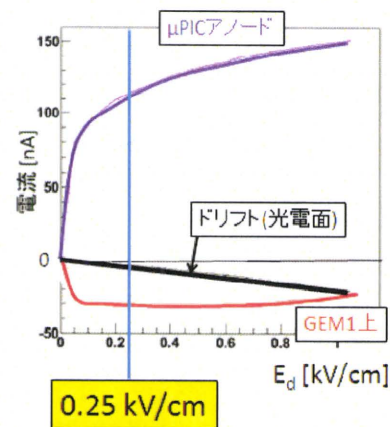


図13 各電極に流れる電流のドリフト電場依存性。

C-3. 透過型二次元イメージング性能評価の結果

透過型光電面によるイメージング時の検出効率は、18×21×20 mm³ Nd:LaF₃結晶の使用時にくらべて、10×10×1 mm³で1.8倍、また Nd:LuLiF₄およびNd:LuF₃結晶それぞれ2.9倍および34倍になった。

C-4. 受光窓へのシンチレータの導入

MgF₂の代わりにNd:LuLiF₄シンチレータ結晶を直接窓材として使用したときの検出効率は、MgF₂窓とNd:LaF₃シンチレータを組み合わせたときに比べて、11倍になった。以上のことから、結晶をNd:LuF₃にし、窓に用いることで、昨年度のMgF₂窓とNd:LaF₃シンチレータを組み合わせたときよりも効率は129倍上がると期待されることが分かった。

C-5. 反射型二次元イメージングシステム

反射型導入により、10×10×1 mm³ Nd:LuF₃結晶

使用時で、透過型に比べて量子効率が 1.5 倍向上したことが分かった。

C-6. X線イメージング

X線は α 線よりも透過するため、122keV X線の場合、結晶サイズが $18 \times 21 \times 20 \text{ mm}^3$ Nd:LaF₃結晶の時に比べて、 $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ を透過型ガス検出器と組み合わせた場合の検出効率は0.5倍と小さくなった。しかし $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ Nd:LaF₃結晶の時に比べて、Nd:LuLiF₄およびNd:LuF₃結晶それぞれ同サイズのときには2.4倍および23倍と向上した。また、MgF₂の代わりにNd:LuLiF₄シンチレータ結晶を直接窓材として使用したときの検出効率は、MgF₂窓とNd:LaF₃シンチレータを組み合わせたときに比べて、23倍になった。

Nd:LuLiF₄シンチレータ入射窓使用時のイメージングは図14に示し、 α 線源使用時と同様のイメージをX線でも取得できることが示せた。

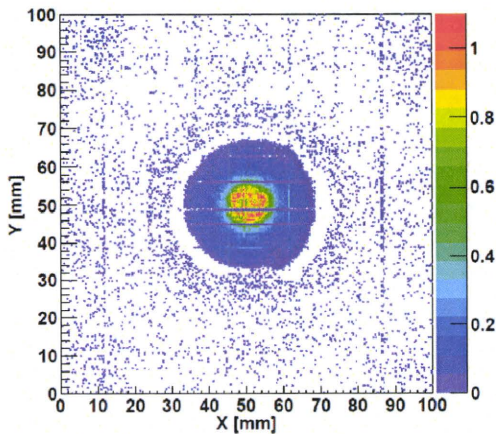
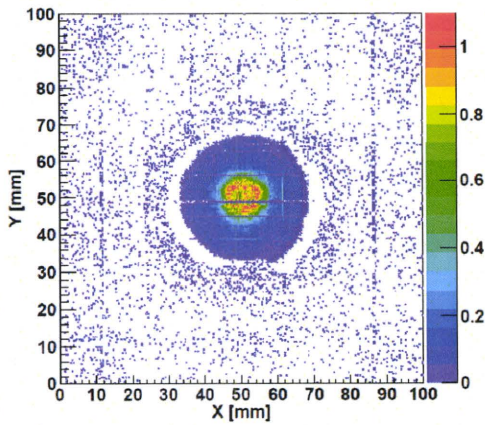


図14 Nd:LuLiF₄シンチレータによる入射窓に α 線源²⁴¹Am (5.5 MeV) (上図) および X線源⁵⁷Co (122 keV) (下図) を照射したときの2次元イメージ

D. 結論

本年度の研究目標は、

- ① 昨年度用いた Nd:LaF₃ よりも光量が多い Nd:LuLiF₄ および Nd:LuF₃ 結晶とガス検出器を組み合わせたイメージング検出器の開発
- ② ガス増幅の最適化、光電面の量子効率向上および結晶の最適化による検出効率の向上

であった。

既述の通り、①、②ともに、目標を達成し、最終的に昨年度に比べて100倍を超える検出効率の向上が期待できることが分かった。なお、各改良によって、表1のように検出効率が向上した。

(表1) 検出効率の向上

受光面に接続した結晶とそのサイズ	受光窓	昨年度からの向上比
Nd:LaF ₃ 18×21×20 mm ³	MgF ₂ 窓 (非シンチレータ)	1倍 (昨年度)
Nd:LaF ₃ 10×10×1 mm ³	同上	1.8倍
Nd:LuLiF ₄ 10×10×1 mm ³	同上	2.9倍
Nd:LuF ₃ 10×10×1 mm ³	同上	34倍
なし	Nd:LuLiF ₄ シンチレータ結晶受光窓の導入	11倍

E. 健康危険情報

特に無し。

F. 研究発表

1. 論文発表 (1) 英文論文

- 1) H. Sekiya, C. Ida, H. Kubo, S. Kurosawa, T. Tanimori, A. Yoshikawa, T. Yangida, Y. Yokota, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kaeguchi, T. Suyama “A new imaging device based on UV scintillators and a large area gas photomultiplier”, To be appear in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A (2011), DOI:10.1016/j.nima.2010.06.114

(2) 和文論文

なし

2. 学会発表 (1) 国際学会

- 1) H. Sekiya, “Review of photo-sensor R&D for future

water Cherenkov detectors 11th International Workshop on Next generation Nucleon Decay and Neutrino Detectors (NNN10) December 13 - 16, 2010 Toyama, Japan

(2) 国内学会

- 1) 関谷洋之, 窪秀利, 黒澤俊介, 谷上幸次郎, 谷森達, “GEM/ μ PIC を用いた真空紫外イメージング検出器”, 第7回MPGD研究会, 2010年11月29日, 山形大学.
- 2) 谷上幸次郎, 窪秀利, 黒澤俊介, 関谷洋之, 谷森達, 柳田健之, 横田有為, 吉川彰, 福田健太郎, 石津澄人, 河口範明, 須山敏尚, “GEM/ μ PIC を用いた真空紫外イメージング検出器 IV”, 日本物理学会

2010年秋季大会, 2011年9月11日, 北九州工業大学.

G. 知的財産権の出願・登録状況

- 1) 発明の名称: 「放射線画像検出器」
発明者: 福田健太郎, 石津澄人, 河口範明, 須山敏尚, 吉川彰, 柳田健之, 横田有為, 窪秀利, 黒澤俊介, 谷上幸次郎, 谷森達, 関谷洋之
出願人: トクヤマ, 東北大学, 京都大学, 関谷洋之
出願番号: 特願 2010-203515
出願日: 2010年9月10日

研究成果の刊行に関する一覧表

雑誌

発表者氏名	論文タイトル名	発表誌名	巻号	ページ	出版年
Y. Yokota, A. Yoshikawa, N. Kawaguchi, K. Fukuda, D. Totsuka, T. Yanagida, S. Maeo, M. Nikl	Development of modified micro-pulling-down method for bromide and chloride single crystals	<i>J. Cryst. Growth.</i>	318(1)	908-911	2011
Yuki Furuya, Hidehiko Tanaka, Kentaro Fukuda, Noriaki Kawaguchi, Yuui Yokota, Takayuki Yanagida, Valery Chani, Martin Nikl and Akira Yoshikawa	Crystal growth, Nd distribution and luminescence properties of $(\text{Na}_{0.425+x}\text{Lu}_{0.575-x-y}\text{Nd}_y)\text{F}_{2.15-2x}$ single crystals	<i>J. Cryst. Growth.</i>	318(1)	791-795	2011
Yuki Furuya, Hidehiko Tanaka, Kentaro Fukuda, Noriaki Kawaguchi, Yuui Yokota, Takayuki Yanagida, Valery Chani and Akira Yoshikawa	Growth and luminescence properties of Eu-doped $(\text{Na}_{0.425-x}\text{Lu}_{0.575+x})\text{F}_{2.15+2x}$ single crystals	<i>J. Cryst. Growth.</i>	318(1)	549-552	2010
Yuki Furuya, Hidehiko Tanaka, Kentaro Fukuda, Noriaki Kawaguchi, Yuui Yokota, Takayuki Yanagida, Jan Pejchal, Valery Chani, Martin Nikl and Akira Yoshikawa	Scintillation properties of $(\text{Na}_{0.425}\text{Lu}_{0.575-x}\text{Nd}_x)\text{F}_{2.15}$ and its comparison with $(\text{Ca}_{1-x}\text{Nd}_x)\text{F}_{2+x}$ and NdF_3	<i>Physica status solidi.</i>	8(1)	136-139	2011
Y. Furuya, H., Tanaka, N., Kawaguchi, K., Fukuda, Y., Yokota, T., Yanagida, K., Sugiyama, A., Yoshikawa	Crystal growth and scintillation properties of KLiYF_5 , KLiLuF_5 , and Nd doped KLiLuF_5 single crystals in VUV wavelength region	<i>Proceedings of the 21th Symposium of Association for Condensed Matter Photophysics</i>		54-57	2010
古谷優貴、田中秀彦、河口範明、福田健太郎、横田有為、柳田健之、杉山和正、吉川 彰	KLiYF_5 , KLiLuF_5 および Nd 添加 KLiLuF_5 の作製と真空紫外領域におけるシンチレーション特性評価	第21回光物性研究会論文集		54-57	2010