

図 40 Tm 添加 K_2NaLuF_6 シンチレータの ^{241}Am 照射時の波高スペクトル。

最終年度に至っては、 LuF_3 系シンチレータを発見した。得られたサンプルのうち、最も発光量の大きかった $Nd:LuF_3$ および他の LuF_3 系統の波高値スペクトルを図 41 に示す。こちらの結果から、初年度に開発した $Nd:LaF_3$ を基準に取ること、 $Nd:LuF_3$ 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 $Nd:LuF_3$ 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 $Nd:LaF_3$ 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、 $Nd:LaF_3$ 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。

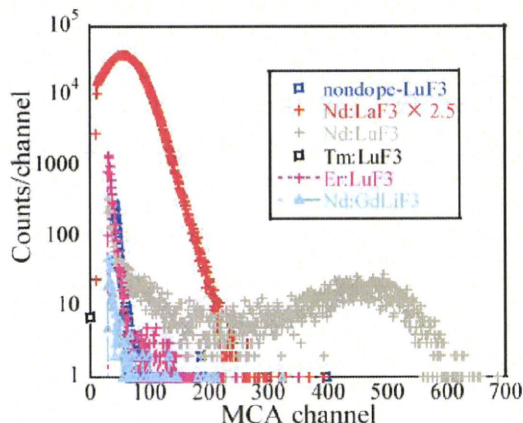


図 41 LuF_3 系、 $Nd:GdLiF_4$ 、 $Nd:LaF_3$ の ^{241}Am 線源を用いた波高値スペクトル。 $Nd:LaF_3$ はゲインが 2.5 倍となっている

C-3. 蛍光減衰時定数の評価

既述のように、我々はピコ秒パルス X 線励起型ストリークカメラシステムを設計開発し、研究室に導入した。既存のシステムは紫外励起型のシステムであり発光中心を直接に励起した事象を追うため、ホストそのものを励起するシンチレーション現象の評価とは大きく異なることが問題であったが、当該システムにより、そのような問題は解決された。また、従来の光物性物理学でのシステムでは複数のミラーを用いる冗長な光学系を使用しており、サンプル室等も真空状態に出来るチャンバーを具備するなど大型化が必須であったが、当該装置は高エネルギー物理学の知見を生かし、X 線管と分光器を出来る限り近づけ、サンプルと分光器の MgF_2 窓を直接光学接着するなどした結果、光学系具備型の数倍も検出効率が向上した。今年度の下期に導入したために、研究期間の大半は装置のキャリブレーション等に費やしたが、多くの結果を得ることが出来た。以下はその結果の一部である。

図 42 は BaF_2 シンチレータのストリーク像を示す。190、210 nm 前後の真空紫外域におけるオージェフリー発光のピークが検出されると共に、サブピコ秒の蛍光減衰時定数が検出された。

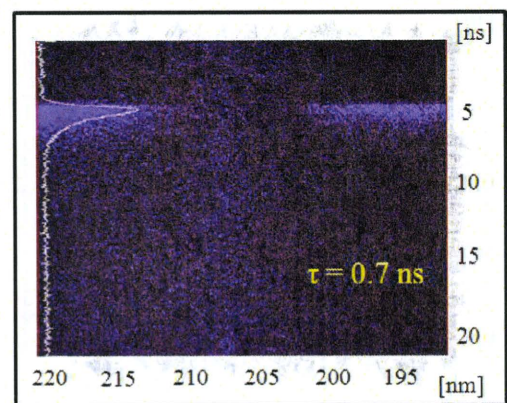


図 42

BaF_2 シンチレータのストリーク像。

図 43 は同じく 140–170 nm の真空紫外域における、 $KMgF_3$ のオージェフリー発光のストリーク像である。当該材料は現存する真空紫外発光材料の中では最短波長の物質であるが、問題なく検出出来ており、3 ns という高速応答も確認出来た。

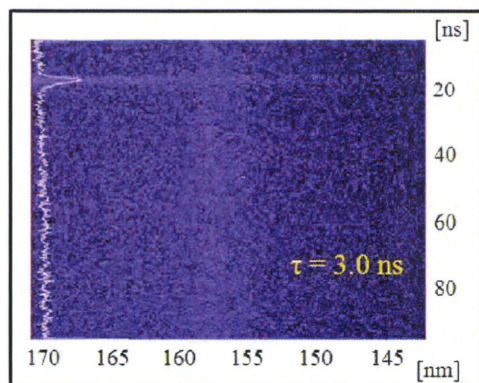


図 43 KMgF₃ のストリーク像。

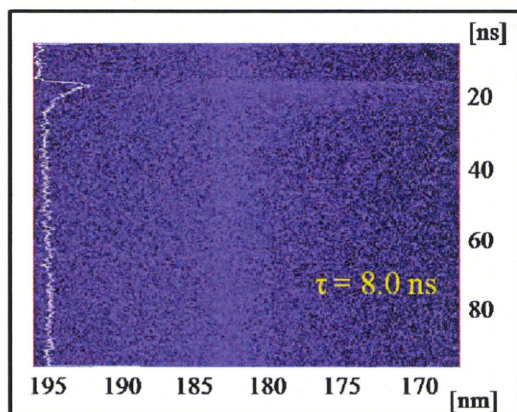


図 44 Nd:LaF₃ のストリーク像。

図 44 は我々が標準試料として用いている Nd:LaF₃ シンチレータのストリーク像である。Nd³⁺ の 5d-4f 遷移に伴う 8 ns 前後の高速な成分が検出されている。図 45 には Nd:LuLiF₄ シンチレータのストリーク像を示した。α線励起時の蛍光寿命の 12 ns に比べ、若干遅い 16 ns という結果が得られた。α線励起の場合は、空間的に高密度なエネルギー付与が行われるためイオン化消光が起きているために、見た目の蛍光寿命が速くなることが知られており、その影響が表れている可能性がある。

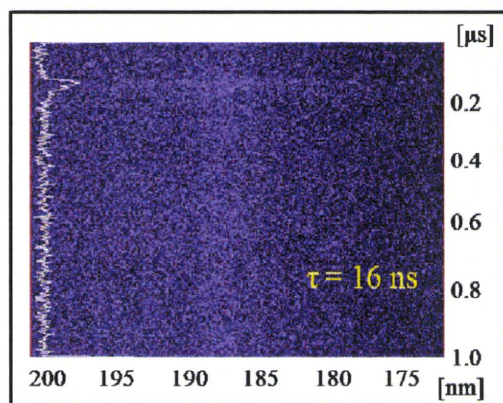


図 45 Nd:LuLiF₃ のストリーク像。

図 46 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のストリーク像を示す。

命ストリーク像を示す。典型的な Nd³⁺ の双曲子遷移と同様、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。

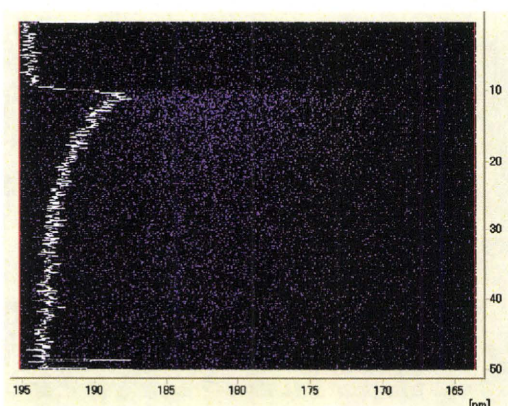


図 46 Nd:LuF₃ の X 線励起時の波長分解した蛍光寿命のストリーク像。横軸が波長、縦軸が時間 (ns) を表す。

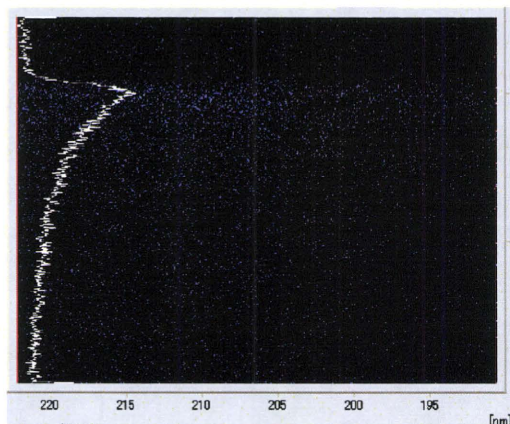


図 47 BaMgF₄ の X 線励起時の波長分解した蛍光寿命のストリーク像。横軸が波長、縦軸が時間 (ns) を表す。

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 47 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、数百種類におよぶ新規真空紫外発光ハロゲン化物シンチレータを合成し、その光物性および放射線応答基礎特性を評価した結果、Nd 添加 LuF_3 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。Nd 添加 LuF_3 シンチレータは初年度に開発した Nd 添加 LaF_3 結晶に比較し、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、 LaF_3 に比較して LuF_3 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。

Nd: LuF_3 系に加え、研究開発二年目に見出した $\text{Tm}:\text{K}_2\text{NaLuF}_6$ も興味深い。本来 Tm^{3+} の 5d-4f 遷移は 160 nm 近傍に発光ピークが出現するはずであるが、当該材料では 190 nm 前後と長波長であり、さらには通常のシンチレータ材料に比べて高濃度に Tm を添加した際に発光が強まるという傾向が見られた。この結果から考察するに、①Tm を含む材料のホスト発光、② Tm^{3+} の $4f^{10}5d-4f^{11}$ のスピン許容遷移による発光の二種類が考えられる。①に関しては、発光ピークがブロードであるなど、一般的なホスト発光の性質を示していることからの予想であり、②は Tm^{3+} の 5d-4f 遷移はハイスピンとロースピンの二種が考えられ、170-225 nm 近辺にその発光ピークが表れているという、他の材料における先行研究が報告されているためである。いずれにせよ、更なる研究が必要である。

E. 結論

三年間の開発を通じ、Nd: LuF_3 シンチレータを見出した。ガス検出器を用いた研究開発の報告項に示すように、画像検出器のメインデバイスとして十分な性能を示した。

F. 研究発表

1. 論文発表

(1) 英文論文

1. T. Yanagida, K. J. Kim, K. Kamada, K. Aoki, N. Kawaguchi, K. Fukuda and A. Yoshikawa, "Measurement of Light Yield of Ce^{3+} Perturbed Emission of CaF_2 Scintillator coupled with Avalanche Photodiode", The Institute of Electrical and Electronics Engineers, Inc. (IEEE NSS/MIC) 2008, N2-357 Conference Record, (2009) 1162-1165.
2. T. Yanagida, Y. Fujimoto, A. Yoshikawa, Y. Yokota, K. Kamada, Jan Pejchal, 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" APEX, accepted (2010).
3. "Study of VUV emission and γ -RAY responses of Nd: BaF_2 scintillator" T. Yanagida, N. Kawaguchi, Y. Yokota, S. Ishizu, K. Fukuda, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl Radiation Measurements, accepted (2009).
4. "Growth and Evaluations of Nd: LuLiF_4 for Different Nd Concentration" T. Yanagida, N. Kawaguchi, S. Ishizu, Y. Yokota, K. Fukuda, T. Suyama, A. Yoshikawa, H. Sekiya, S. Kubo, T. Tanimori, V. Chani IEEE Trans. Nucl. Sci., accepted (2009).
5. "Crystal growth and luminescence properties of Pr doped LiYF_4 and LiCaAlF_6 " T. Yanagida, A. Yoshikawa, Y. Yokota, Y. Fujimoto, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Fukuda, T. Suyama JJAP 48, 085503, (2009).
6. " $\text{Nd}^{3+}:\text{LaF}_3$ as a Step-wise Excited Scintillator for Femtosecond Ultraviolet Pulses" T. Nakazato, M. Cadatal, Y. Furukawa, M. Pham, E. Estacio, T. Shimizu, N. Sarukura, K. Fukuda, T. Suyama, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, F.

Saito

IEEE Trans. Nucl. Sci., accepted (2009).

7. "A new imaging device based on UV scintillators and a large area gas photomultiplier"
H. Sekiya, C. Ida, H. Kubo, S. Kurosawa, K. Miuchi, T. Tanimori, K. Taniue, A. Yoshikawa, T. Yanagida, Y. Yokota, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kawaguchi, T. Suyama
NIM-A, accepted (2009).
8. "Er:LiCAF as Potential Vacuum Ultraviolet Laser Material at 163 nm"
T. Shimizu, M. Cadatal, K. Yamanoi, S. Takatori, M. Pham, E. Estacio, T. Nakazato, N. Sarukura, N. Kawaguchi, K. Fukuda, T. Suyama, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, F. Saito
IEEE Nucl. Trans. Sci., accepted (2009).
9. "Crystal growth and scintillation properties of NdF₃"
Y. Furuya, H. Tanaka, N. Abe, T. Yanagida, Y. Yokota, S. Maeo, J. Pejchal, N. Kawaguchi, K. Fukuda, M. Nikl, A. Yoshikawa
Optical Materials, accepted (2009).
10. "Crystal growth and scintillation properties of Tm:K₂NaLuF₆"
N. Abe, T. Yanagida, Y. Yokota, S. Maeo, J. Pejchal, Y. Fujimoto, Y. Furuya, H. Tanaka, N. Kawaguchi, K. Fukuda, M. Nikl, A. Yoshikawa
Optical Materials 32, issue 5, 589-594 (2009)
11. "Nd concentration dependence on the optical and scintillation properties of Nd doped BaF₂"
N. Kawaguchi, K. Fukuda, T. Suyama, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, M. Nikl
Optical Materials, submitted (2009).
12. H. Sekiya, C. Ida, H. Kubo, S. Kurosawa, T. Tanimori, A. Yoshikawa, T. Yanagida, Y. Yokota, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kawaguchi and T. Suyama
"Development of a large area VUV sensitive gas PMT with GEM/ μ -PIC"
Journal of Instrumentation, accepted (2009).
13. N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl
"Crystal Growth and Scintillation Properties of Tm:BaF₂ Single Crystals"
JJAP 49, 022601 (2009).
14. Y. Yokota, T. Yanagida, Y. Fujimoto, N. Abe, A. Fukabori, M. Nikl, A. Yoshikawa
"Growth and luminescent properties of the Ce, Pr doped NaCl single crystals grown by the modified micro-pulling-down method"
Radiation Measurements, in press (2009)
15. J. Pejchal, M. Nikl, K. Fukuda, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa
"Doubly-doped LaF₃:Er,Nd and BaY₂F₈:Er,Nd VUV scintillators"
Radiation Measurements, in press (2009).
16. N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl
"Evaluation of Gamma-Ray Responses of Tm:BaF₂ Single Crystals"
IEEE. Nucl. Trans. Sci., accepted (2009)
17. N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, K. Fukuda, M. Nikl, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl
"Crystal Growth and Characterization of Nd:K₃LuF₆"
IEEE. Nucl. Trans. Sci., accepted (2009)
18. N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, M. Nikl, K. Fukuda, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl
"Crystal Growth and Scintillation Properties of Tm, Nd co-doped LaF₃ Single Crystals"
IEEE. Nucl. Trans. Sci., accepted (2009)
19. Y. Furukawa, M. Cadatal, K. Yamanoi, S. Takatori, M. Pham, E. Estacio, T. Nakazato, T. Shimizu, N. Sarukura, K. Kitano, K. Ando, K. Uchiyama, Y. Isobe, K. Fukuda, T. Suyama, T. Yanagida, A. Yoshikawa, F. Saito
"Development of Vacuum Ultraviolet Streak Camera System for the Evaluation of Vacuum Ultraviolet

(2) 和文論文

- 1 吉川彰, 柳田健之, 横田有為, 荻野拓, “新規

シンチレータ結晶の開発と放射線検出器としての結実；発光メカニズムの選択から受光素子の選択、アレイ化、アセンブリおよび2次元マップの撮像まで”，日本結晶成長学会誌 35(2) (2008) 17-23.

- 2 柳田健之, 河口範明, 横田有為, 石津澄人, 福田健太郎, 藤本裕, 阿部直人, 吉川彰, “Ce³⁺およびPr³⁺添加 YLiF₄, BaLiF₃, LiCaAlF₆ 結晶の放射線励起時における発光特性評価”, 第19回光物性研究会論文集 (2008) 286-289.
- 3 柳田健之, 河口範明, 横田有為, 石津澄人, 福田健太郎, 藤本裕, 阿部直人, 吉川彰: “Ce³⁺およびPr³⁺添加 YLiF₄, BaLiF₃, LiCaAlF₆ 結晶の放射線励起時における発光特性評価” 第19回光物性研究会論文集 (2008) 286-289.
2. 学会発表
 - (1)国際学会
 - 2) A. Yoshikawa, M. Kimura, C. Kamada, T. Yanagida, Y. Yokota and F. Saito, “Single Crystal Growth and Optical Properties of Pr-doped K(Y,Lu)₃F₁₀”, Japanese-French Joint Workshop, First Workshop Tohoku University- EMAC- INSA, Ecole des Mines, Albi & INSA, Toulouse, Dec. 1-2. 2008, Albi, France.
 - 3) T. Yanagida, K. J. Kim, K. Kamada, K. Aoki, N. Kawaguchi, K. Fukuda and A. Yoshikawa, “Measurement of Light Yield of Ce³⁺ Perturbed Emission of CaF₂ Scintillator Coupled with APD”, The Institute of Electrical and Electronics Engineers, Inc. (IEEE NSS/MIC) 2008, Oct. 19-25. 2008, Dresden, Germany.
 - 4) T. Yanagida, K. J. Kim, K. Kamada, K. Aoki, N. Kawaguchi, K. Fukuda, A. Yoshikawa and F. Saito: “Absolute Light Yield of Ce³⁺ Perturbed Emission in Calcium Fluoride Scintillator”, Japanese-French Joint Workshop, First Workshop

Tohoku University- EMAC- INSA Ecole des Mines, Albi & INSA, Toulouse, Dec. 1-2. 2008, Albi, France.

- 5) N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, F. Nara, A. Yoshikawa and F. Saito, “Crystal Growth and Scintillation Properties of Tm: BaF₂ Single Crystals”, Japanese-French Joint Workshop, First Workshop Tohoku University- EMAC- INSA, Ecole des Mines, Albi & INSA, Toulouse, Dec. 1-2. 2008, Albi, France.
- 6) K. Fukuda, N. Kawaguchi, T. Yanagida, A. Yoshikawa, M. Nikl and F. Saito, “Crystal growth and scintillation property of Nd:LaF₃ single crystal”, Japanese-French Joint Workshop, First Workshop Tohoku University- EMAC- INSA, Ecole des Mines, Albi & INSA, Toulouse, Dec. 1-2. 2008, Albi, France.
- 7) "Growth and Scintillation Properties of Nd Doped LiCaAlF₆ Scintillator"
T. Yanagida, Y. Yokota, S. Maeo, A. Yoshikawa, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Fukuda
IEEE NSS MIC 2009, N25-96, Orland, US, 2009.10.25-10.31(2009)
- 8) "Study of VUV emission and γ-RAY responses of Nd:BaF₂ scintillator"
T. Yanagida, N. Kawaguchi, Y. Yokota, S. Ishizu, K. Fukuda, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl
7th International Conference on Luminescent Detectors and Transformers of Ionizing Radiation LUMDETR 2009, July 12-17, Krakow, Poland (2009)
- 9) "Growth and Evaluations of Nd:LLF for Different Nd Concentration"
T. Yanagida, N. Kawaguchi, S. Ishizu, Y. Yokota, K. Fukuda, T. Suyama, A. Yoshikawa
Scint 2009, Jeju, Korea, 2009.6.7-6.12(2009).
- 10) "Luminescence Properties of Doubly-doped

- BaY₂F₈:Tm,Nd VUV Scintillator"
- J. Pejchal, M. Nikl, F. Moretti, A. Vedda, K. Fukuda, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa
Frontier 2009, Sendai, Japan, 2009.11.30-12.2 (2009).
- 11) "Crystal Growth and Scintillation Properties of Nd Doped CaF₂ Single Crystal"
H. Tanaka, Y. Furuya, N. Kawaguchi, N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, M. Nikl, K. Kamada, A. Yoshikawa, Y. Kawazoe
IEEE NSS MIC 2009, N25-114, Orland, US, 2009.10.25-10.31 (2009).
 - 12) "Nd concentration dependence on the optical and scintillation properties of Nd doped BaF₂"
N. Kawaguchi, K. Fukuda, T. Suyama, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, M. Nikl
5Th ISLNOM, Pisa, Italy, 2009.9.3-9.5(2009).
 - 13) "Growth and VUV Luminescence of Tm doped BaY₂F₈ single crystal"
Y. Yokota, T. Yanagida, A. Yoshikawa, S. Ishizu, N. Kawaguchi, K. Fukuda, M. Nikl
5Th ISLNOM, Pisa, Italy, 2009.9.3-9.5(2009)
 - 14) "VUV luminescence properties of KMgF₃ and BaF₂"
N. kawaguchi, T. Nagami, N. Iida, K. Fukuda, T. Suyama, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, M. Nikl
5Th ISLNOM, Pisa, Italy, 2009.9.3-9.5(2009)
 - 15) "Growth and luminescent properties of Nd:BaY₂F₈ single crystal for VUV emitting scintillator"
A. Yoshikawa, T. Yanagida, Y. Yokota, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Fukuda, J. Pejchal, V. Babin, M. Nikl
5Th ISLNOM, Pisa, Italy, 2009.9.3-9.5(2009)
 - 16) T. Shimizu, M. Cadatal, K. Yamanoi, S. Takatori, M. Pham, E. Estacio, T. Nakazato, N. Sarukura, K. Fukuda, T. Suyama, T. Yanagida, A. Yoshikawa, F. Saito
"Er:LiCAF as Potential Vacuum Ultraviolet Laser Material at 163 nm"
CLEO/IQEC 09, May 31 June 5, 2009 Baltimore, Maryland, USA (2009)
 - 17) Y. Yokota, T. Yanagida, Y. Fujimoto, N. Abe, A. Fukabori, M. Nikl, A. Yoshikawa
"Growth and luminescent properties of the Ce, Pr doped NaCl single crystals grown by the modified micro-pulling-down method"
7th International Conference on Luminescent Detectors and Transformers of Ionizing Radiation LUMDETR 2009, July 12-17, Krakow, Poland (2009)
 - 18) A. Yoshikawa, T. Yanagida, Y. Yokota, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Fukuda, J. Pejchal, V. Babin, M. Nikl
"Crystal growth and luminescent properties of Nd:BaY₂F₈ single crystal for VUV emitting scintillator"
7th International Conference on Luminescent Detectors and Transformers of Ionizing Radiation LUMDETR 2009, July 12-17, Krakow, Poland (2009)
 - 19) J. Pejchal, M. Nikl, K. Fukuda, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa
"Doubly-doped LaF₃:Er,Nd and BaY₂F₈:Er,Nd VUV scintillators"
7th International Conference on Luminescent Detectors and Transformers of Ionizing Radiation LUMDETR 2009, July 12-17, Krakow, Poland (2009)
 - 20) S. Kurosawa, H. Kubo, T. Tanimori, H. Sekiya, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kawaguchi, T. Suyama, A. Yoshikawa, T. Yanagida, Y. Yokota
"A Novel Position-Sensitive Radiation Detector Using a Gaseous Photomultiplier and an UV Scintillator"
International Workshop on New Photon Detectors

- (PD09) Jun 24-26, 2009, Shinshu Univ., Japan
(2009)
- 21) M. Cadatal, T. Shimizu, K. Yamanoi, S. Takatori, M. Pham, E. Estacio, T. Nakazato, N. Sarukura, K. Fukuda, T. Suyama, T. Yanagida, A. Yoshikawa, and F. Saito
"Er:LiCAF as Vacuum Ultraviolet Scintillator for F₂ Laser"
Scint 2009, Jeju, Korea, 2009.6.7-6.12(2009)
 - 22) J. Pejchal, M. Nikl, K. Fukuda, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa
"Luminescence Mechanism in Doubly-doped LaF₃:Er,Nd VUV Scintillator"
Scint 2009, Jeju, Korea, 2009.6.7-6.12(2009)
 - 23) N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl
"Evaluation of Gamma-Ray Responses of Tm:BaF₂ Single Crystals"
Scint 2009, Jeju, Korea, 2009.6.7-6.12(2009)
 - 24) N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, K. Fukuda, M. Nikl, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl
"Crystal Growth and Characterization of Nd:K₃LuF₆"
Scint 2009, Jeju, Korea, 2009.6.7-6.12(2009)
 - 25) N. Abe, Y. Yokota, Yanagida, N. Kawaguchi, M. Nikl, K. Fukuda, A. Yoshikawa, J. Pejchal, M. Nikl
"Crystal Growth and Scintillation Properties of Tm, Nd co-doped LaF₃ Single Crystals"
Scint 2009, Jeju, Korea, 2009.6.7-6.12(2009) T. Yanagida, N. Kawaguchi, Y. Fujimoto, M. Sugiyama, Y. Furuya, Y. Yokota, K. Kamada, A. Yoshikawa, V. Chani
 - 26) "Growth and scintillation properties of BaMgF₄", Nucl. Instr. Meth-A, 621, 473-477 (2010)
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)
 - 27) 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., accepted (2011)
 - 28) 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)
 - 29) 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)
 25. 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 (2010) 845-849.
 26. 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)
 27. 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).

28. 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)
29. 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)
30. 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
31. 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
32. 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 scintillator", *Rad. Meas.*, Volume 45, Issues 3-6, March-July 2010, Pages 422-425
33. 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 (2010) 472-474
34. 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.
35. 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
36. N. Abe, Y. Yokota, T. Yanagida, N. Kawaguchi, K. Fukuda, J. Pejchal, M. Nikl, A. Yoshikawa "Crystal Growth and Characterization of Rare Earth Doped K₃LuF₆", *IEEE. Nucl. Trans. Sci.* 57(3) (2010) 1320-1324
37. 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:BaF₂ Single Crystals", *Jpn. J. Appl. Phys.* 49 (2) (2010) 022601
38. 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
39. 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

40. 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. (2011) (accepted)
41. 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 $(\text{Na}_{0.425+x}\text{Lu}_{0.575-x-y}\text{Nd}_y)\text{F}_{2.15-2x}$ single crystals", J. Cryst. Growth. (2011) (accepted)
42. 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)
43. Y. Furuya, H. Tanaka, K. Fukuda, N. Kawaguchi, Y. Yokota, T. Yanagida, J. Pejchal, V. Chani, M. Nikl and A. 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 ", Physica status solidi. (2011) (accepted)

(2) 国内学会

- 3) 柳田健之, 横田有為, 鎌田圭, 河口範明, 福田健太郎, 吉川彰, “シンチレータおよびその発光波長に適合した受光素子の開発”, 第 69 回応用物理学関係連合講演会 (秋季大会), 2008 年 9 月 2 日～5 日, 春日井, 中部大学 (シンポジウム: 招待講演) .
- 4) 中里智治, 古川裕介, Marilou Cadatal, 清水俊彦, 猿倉信彦, 柳田健之, 福田健太郎, 須山敏尚, 吉川彰, 斎藤文良, “2 光子吸収過程を利用した

$\text{Nd}^{3+} : \text{LaF}_3$ からの真空紫外光発生と蛍光寿命評価”, 第 69 回応用物理学関係連合講演会 (秋季大会), 2008 年 9 月 2 日～5 日, 春日井, 中部大学.

- 5) 阿部直人, 横田有為, 柳田健之, 金敬鎮, 河口範明, 奈良郁子, 吉川彰, “Tm 添加 BaF_2 単結晶の作製及びシンチレーション特性評価”, 第 69 回応用物理学関係連合講演会 (秋季大会), 2008 年 9 月 2 日～5 日, 春日井, 中部大学.
- 6) 柳田健之, 河口範明, 横田有為, 石津澄人, 福田健太郎, 藤本裕, 阿部直人, 吉川彰, “ Ce^{3+} および Pr^{3+} 添加 YLiF_4 , BaLiF_3 , LiCaAlF_6 結晶の放射線励起時における発光特性評価”, 第 19 回 光物性研究会, 2008 年 12 月 5、6 日, 大阪市立大学.
- 7) "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"
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
第 57 回応用物理学会関係連合講演会 20a-G-12 @ 東海大学 3/17-20 (2010)
- 8) "シンチレーション現象の評価を志向したパルス X 線ストリークカメラの開発"
柳田健之, 藤本 裕, 吉川 彰, 河口範明, 横田有為, 前尾修司, 石津澄人, 福田健太郎, Jan Pejchal, 鎌田 圭, 阿部直人, 田中秀彦, 古谷優貴, 深堀明博, 内山公朗, 森 邦芳, 北野 謙
第 20 回 光物性研究会 @ 大阪市立大学 II B-73 12/11-12 (2009)
- 9) "GEM/uPIC を用いた真空紫外イメージング検出器 III"
関谷洋之, 窪秀利, 黒澤俊介, 谷上幸次郎, 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
日本物理学会 第 65 回年次大会 23pBE-6 @ 岡山大学 3/20-23 (2010)

- 10) "蛍石型構造をもつ希土類添加 $\text{Na}_{0.4}\text{Lu}_{0.6}\text{F}_{2.2}$ 単結晶の作製と光学特性評価"
古谷優貴, 田中秀彦, 福田健太郎, 河口範明, 阿部直人, 柳田 健之, 横田有為, 杉山和正, 吉川 彰
第 57 回応用物理学会関係連合講演会 17a-TV-2 @東海大学 3/17-20 (2010)
- 11) "改良型 μ -PD 法による吸湿性ハロゲン化物単結晶の結晶作製と発光特性評価 "
横田有為, 柳田 健之, 前尾修司, 河口範明, 福田健太郎, 吉川 彰
第 57 回応用物理学会関係連合講演会 17p-TV-1 @東海大学 3/17-20 (2010)
- 12) "Nd 添加 CaF_2 単結晶の作製とシンチレーション特性の評価"
田中秀彦, 古谷優貴, 河口範明, 阿部直人, 鎌田圭, 横田有為, 柳田 健之, Martin Nikl, 吉川 彰, 川添良幸
第 20 回 光物性研究会 @大阪市立大学 I A-7 12/11-12 (2009)
- 13) "Tm, Nd 共添加 LaF_3 単結晶の作製及びエネルギー遷移の評価"
阿部直人, 横田有為, 柳田 健之, 藤本 裕, 河口範明, Jan Pejchal, 福田健太郎, Martin Nikl, 前尾修司, 鎌田 圭, 吉川 彰
第 20 回 光物性研究会 @大阪市立大学 II B-75 12/11-12 (2009)
- 14) " NdF_3 単結晶の光学特性及び放射線応答の評価"
古谷優貴, 田中秀彦, 河口範明, 阿部直人, 横田有為, 柳田 健之, 鎌田 圭, Martin Nikl, 吉川 彰
第 20 回 光物性研究会 @大阪市立大学 II B-76 12/11-12 (2009)
- 15) " KMgF_3 結晶の真空紫外線発光特性"
前尾修司, 河口範明, 柳田 健之, 横田有為, 福田健太郎, 吉川 彰
第 20 回 光物性研究会 @大阪市立大学 II B-109 12/11-12 (2009)
- 16) "GEM/ μ PIC を用いた真空紫外イメージング検出器 II"
谷上幸次郎, 黒澤俊介, 井田知宏, 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
2009 年秋季 物理学会 11aSB-5
- 17) GEM/ μ PIC を用いた真空紫外イメージング検出器 I"
関谷洋之, 井田知宏, 窪秀利, 黒澤俊介, 谷上幸次郎, 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
2009 年秋季 物理学会 11aSB-4
- 18) "改良型 μ -PD 法による希土類添加 NaCl 単結晶の結晶作製と発光特性評価"
横田有為, 藤本 裕, 柳田 健之, 前尾修司, 河口範明, 福田健太郎, 吉川 彰
2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会 8p-N-9
- 19) "Doubly-doped $\text{BaY}_2\text{F}_8:\text{Tm}, \text{Nd}$ VUV scintillator"
Pejchal, Martin Nikl, Federico Moretti, Ana Vedda, 福田健太郎, 河口範明, 柳田 健之, 横田有為, 吉川彰
2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会 8p-N-7
- 20) "希土類添加 K_3LuF_6 単結晶の作製及びシンチレーション特性評価"
阿部直人, 横田有為, 柳田 健之, Jan Pejchal, Martin Nikl, 河口範明, 福田健太郎, 吉川 彰, 前尾修司
2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会 8p-N-6
- 21) "マイクロ引下げ法を用いた NdF_3 単結晶の作製及びその特性評価"
古谷優貴, 河口範明, 阿部直人, 柳田 健之, 横田有為, 吉川 彰
2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会 8p-N-5

- 22) "Nd 添加 CaF_2 単結晶の作製とシンチレーション特性の評価"
- 田中秀彦, 河口範明, 阿部直人, 横田有為, 柳田 健之, 川添良幸, 吉川 彰
- 2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会 8p-N-4 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/uPIC 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)
- 23) 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/uPIC 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)
- 24) 上坂浩司, 益川陽平, ザムリ ユソプ, 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)
- 25) 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)
- 26) 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 KLiLuF_6 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)
- 27) 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 CaF_2 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)
- 28) 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)
- 29) 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 LiSrAlF_6 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)
- 30) 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 CeCl_3 , Ce:LaBr_3 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)
- 31) 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 CaF_2 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)

- 32) 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
"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 "

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

- 33) 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ลักス成長研究発表会, 12/3, 長野, 信州大学(2010)

G. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得

- 2) 発明の名称: 「真空紫外発光素子」
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
出願人: トクヤマ, 東北大学
出願番号: 特願 2008-240552
出願日: 2008 年 9 月 19 日
- 3) 発明の名称: 「放射線検出装置及び放射線の検出方法」
発明者: 吉川彰, 柳田健之, 横田有為, 河口範明, 福田健太郎, 横田嘉宏, 橘武史
出願人: 東北大学, トクヤマ, 神戸製鋼所
出願番号: 特願 2009-298231
出願日: 2009 年 1 月 28 日
- 4) 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

- 5) 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

- 6) 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

- 7) 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

- 8) 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

- 9) 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

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った。本研究事業においては、まずガス検出器（ $10 \times 10 \text{ cm}^2$ の μPIC とGEM）およびCsI光電面を蒸着した MgF_2 入射窓からなる真空紫外イメージング検出試作器と開発されたNd:LaF₃結晶を組み合わせ、性能評価を行った。 ^{241}Am からの5.5 MeVの α 線を照射することで、1光電子レベルのシグナル検出ができる性能を確認したのち、目標であった結晶の二次元イメージの取得に成功した。さらにNd:LaF₃結晶よりも高光量を有する結晶として開発されたNd:LuLiF₄、およびNd:LuF₃結晶の導入や入射窓のNd:LuLiF₄シンチレータ化を行い、二次元イメージングの検出効率を当初よりも100倍程度向上させることに成功した。

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。

初年度は主に、合成されたフッ化物シンチレータNd:LaF₃とアルゴンベースのガス検出器を組み合わせ、一光電子レベルのアナログ性能（フォトンカウンティング）評価および、2次元読み出し回路と組み合わせたイメージングの評価を行った。

また次年度は新たに構成されたNd:LuLiF₄およびNd:LuF₃結晶との組み合わせ評価すること、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:LaF₃結晶の評価

本検出器を評価するに当たり、まず使用するNd:LaF₃シンチレータの光源としての評価を行った。15×15×15 mm³の結晶に、3 kBqの ^{241}Am を直に取り付け、5.5 MeVの α 線を照射し、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 ^{241}Am 以外の面にはGORE-TEX®を反射材として用いた。

B-2. アナログ性能評価システム

次に、フォトンカウンティングを行うため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、フォトンフィードバックやイオンフィー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、 $70 \mu\text{m}$ 径の穴が $140 \mu\text{m}$ のピッチで空けたものを使用した（図2）。 μPIC に

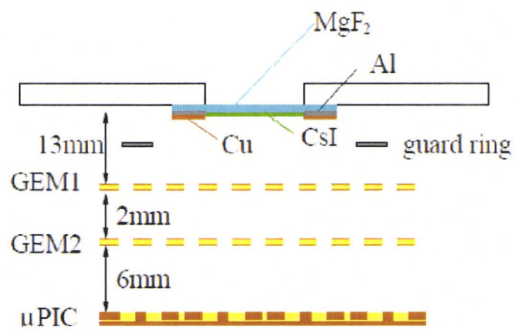


図1 ガス検出器部分のフォトンカウンティング性能をみるためのセットアップ概略。

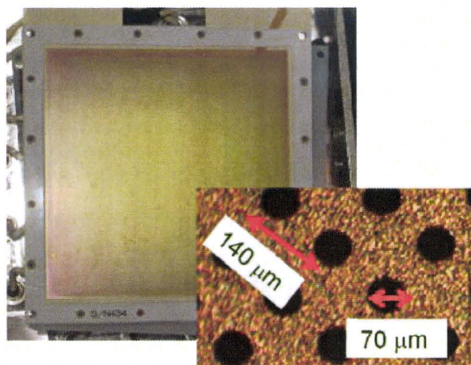


図2 10×10 cm² のガス電子増幅器 GEM (左) および拡大写真 (右)。

については、10×10 cm² サイズで、アノード 256 本、カソード 256 本の 400 μm 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、カソード 4ch とした。フッ化マグネシウムの窓は 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に (図 5)、窒素をパージしたグローブボックス内で組み立てた後、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。

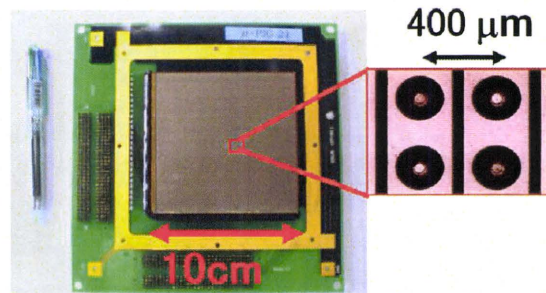
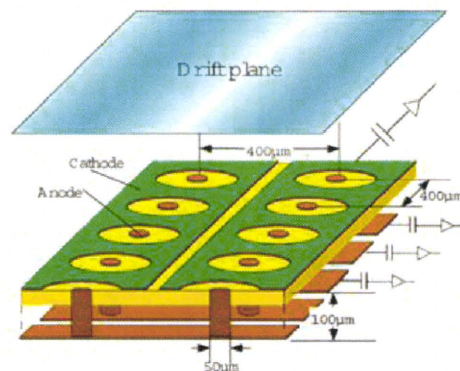


図3 ガス増幅検出器 μ PIC の構造図 (上) および 10×10 cm² の μ PIC の写真 (下)

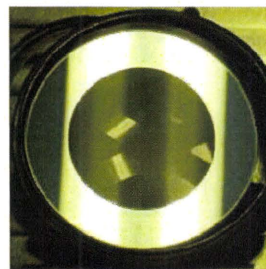


図4 CsI 光電面および Al 電極を蒸着した MgF_2 。

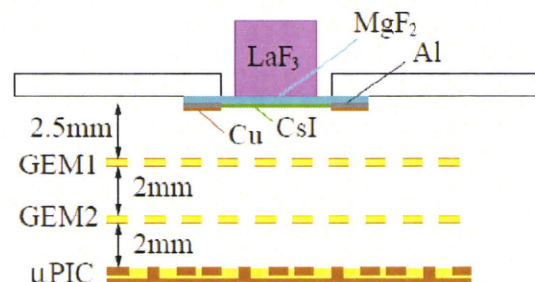


図6 ガス検出器部分のイメージング性能をみるためのセットアップ概略。

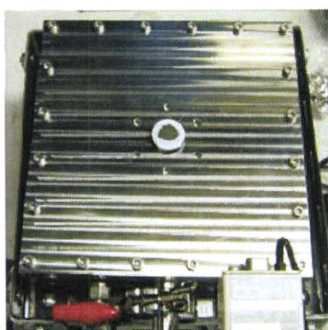


図5 図1のガス封入容器外観。

B-3. 二次元イメージングシステム

二次元イメージングを行った際のセットアップを図6、図7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 μ m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8)。



図7 図6のセットアップをガス封切容器に取り付け。

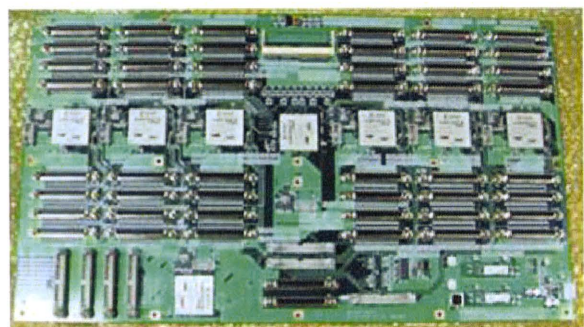
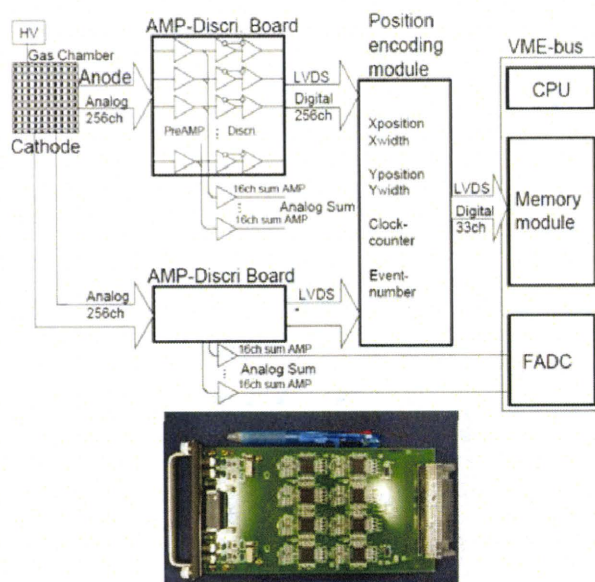


図8 2次元イメージング処理回路。(上)ブロック図。(中) μ PICからの信号を増幅する専用ICを搭載した基板。(下)リアルタイム位置演算用FPGA搭載基板。

B-4. ガス増幅最適化のための性能評価システム

2年次には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。(図9)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。

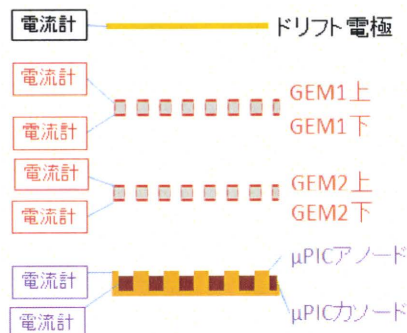


図9 電場最適化時のセットアップ。

B-5. 光源としてのNd:LuLiF₄とNd:LuF₃結晶の評価

次に検出器に組み合わせる結晶としてNd:LuLiF₄およびNd:LuF₃シンチレータの開発導入を行い、両結晶の光源としての評価を実施した。10×10×5 mm³ の結晶に5.5MeV α線源である²⁴¹Am (8kBq)を直接取り付け、Nd:LaF₃と同様の測定 (B-1参照) を実施した。

B-6. 透過型光電面二次元イメージングシステム

初年度と同様のセットアップ (B-3参照) で、Nd:LaF₃の紫外線自己吸収を考慮し、初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。

B-7. 受光窓へのシンチレータの導入

検出効率向上のために、図 1 0 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。

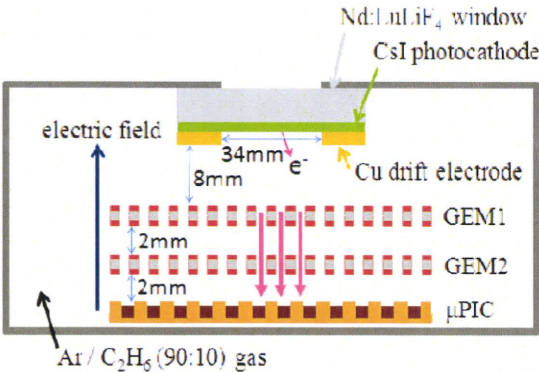


図 1 0 Nd:LuLiF₄ シンチレータ受光窓を用いたセットアップ概略。

B-8. 反射型光電面二次元イメージングシステム

原理的に光電面は、透過型よりも反射型のほうが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 1 1 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。

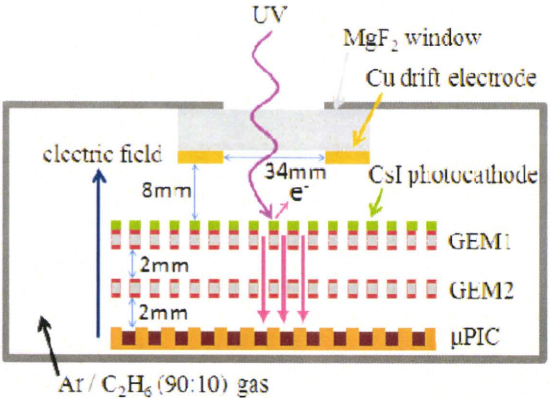


図 1 1 反射型光電面を用いたセットアップ概略。

B-6 X線イメージング

上記ではシンチレータにα線源²⁴¹Am (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⁵⁷Co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:LaF₃結晶の評価結果

図 1 2 に得られた光量スペクトルを示す。R8778の172 nmでの量子効率は30%であることから、結晶からの発光量は、およそ100 photonということが分かった。この値をもとに以下の評価を行った。

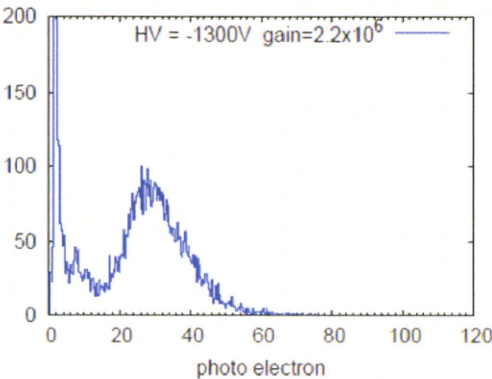


図 1 2 Nd:LaF₃ 結晶の 5.5 MeV α 線に対する応答 (光電子増倍管で測定した光電子数分布)。

C-2. アナログ性能の評価結果

図12の光量のシンチレータを Krytox®16350 を用いて、図1のセットアップへ組み合わせて得られるシグナルから、検出器のアナログ性能を評価した。光電面から、初段 GEM までのドリフト電場は 0.3 kV/cm、2 枚の GEM 間の電場は 1 kV/cm に設定し、 μ PIC のアノードには 465V、GEM 間には 422V を印可することで、 2.6×10^5 のゲインを達成した。64ch をまとめた μ PIC カソードをクリアパルス社製プリアンプ CP581 で 1V/pC に変換して、オシロスコープで記録した典型的な波形を図13に示す。この波高値とゲインから計算される光電子数は 2.9 個である。

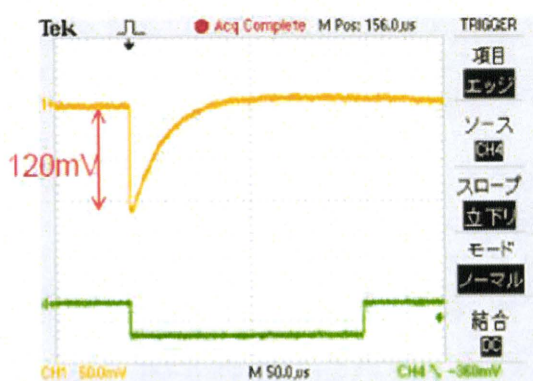


図13 μ PIC カソードから得られた典型的な波形

得られた光電子数のスペクトルを図14に示す。 α 線で励起されたシンチレータからの光をガス増幅検出器で捉えられており、これによって、放射線検出器としての原理を検証できた。

また、光源の発光量は 100 photon であったので、この検出器の量子効率、約 1% であることが分かった。

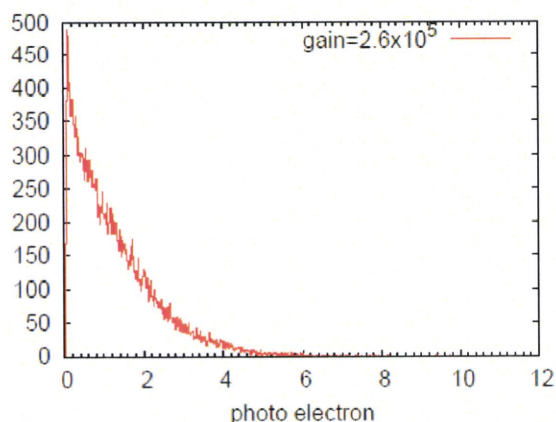


図14 ガス検出器の電子増幅率 2.6×10^5 で得られた光電子数スペクトル

C-3. 二次元イメージング性能評価の結果

イメージング性能を評価するために、 $18 \times 21 \times 20 \text{ mm}^3$ の $\text{Nd}:\text{LaF}_3$ 結晶を、図15に示すように、平行および斜め方向に配置し、画像を取得した。この測定では、結晶の $18 \times 21 \text{ mm}^2$ の一面を、 MgF_2 窓に当て、その対面から、2.6 MBq ^{241}Am からの 5.5 MeV の α 線を照射した。結晶の中央 $5 \times 5 \text{ mm}^2$ の部分は、 α 線照射用に GORE-TEX® が巻かれていないため、中心部分の検出強度が大きくなっている。両方の画像で、同じ位置に、ホットスポットとコールドスポットが何点か見られるが、光電面および読み出し回路のノイズが原因と思われる。

得られた画像は、結晶の形状を鮮明に映しているが、画像の大きさは、実際の大きさよりも大きくなっており、光電面と初段 GEM 間の電場、および MgF_2 窓によって拡大されていると思われる。拡大率および位置感度を評価するために、 $2 \times 15 \text{ mm}^2$ のスリットを 2 か所開けた、100 μm 厚のポリビニールテープを結晶と MgF_2 の間に、縦および横方向に挟み、画像を取得した (図16)。X および Y 方向への射影図 (図13) から、画像は、均一に 1.6 倍拡大されていることが分かった。

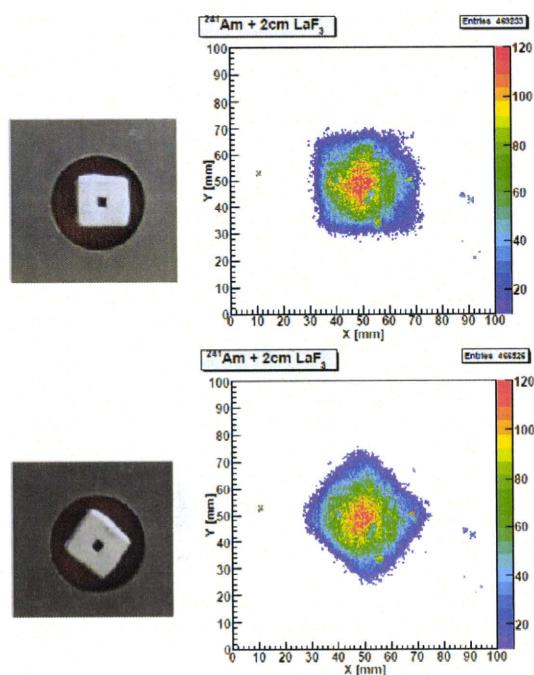


図15 (左) MgF_2 上に置いた $\text{Nd}:\text{LaF}_3$ 。(右) シンチレータに α 線を照射し、得られた画像。

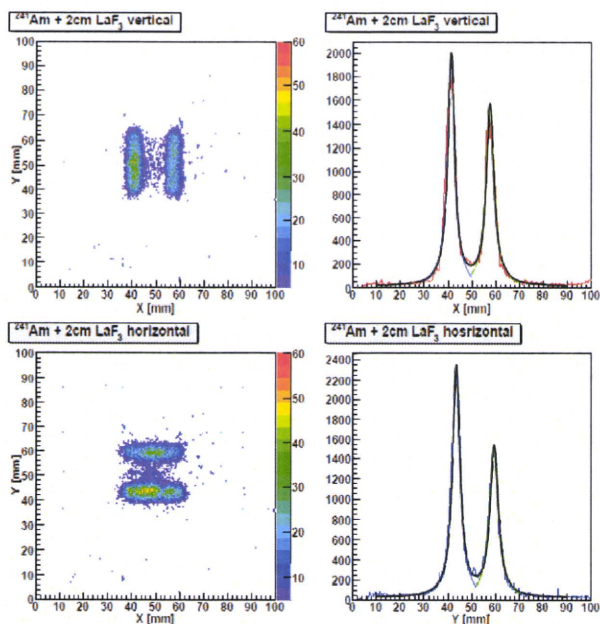


図 16 スリットを置いて得られた画像（左）と射影（右）。

C-4. ガス増幅最適化のための性能評価システム

図 17 のようにドリフト面と GEM 1 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。

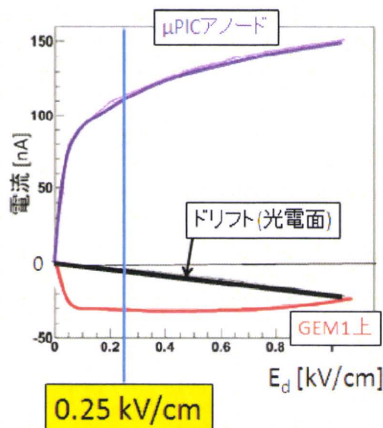


図 17 各電極に流れる電流のドリフト電場依存性。

C-5 光源としての Nd:LuLiF₄ と Nd:LuF₃ 結晶の評価

図 18 に、得られた同一サイズ ($10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$) 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。初年度に測定した 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 倍および 2.6 倍向上した。

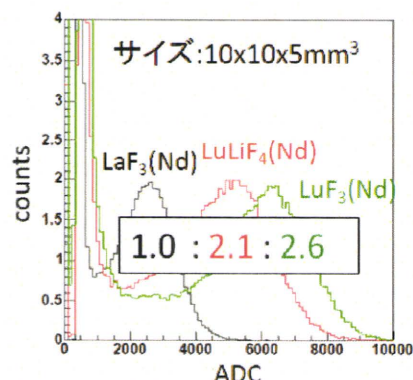


図 18 Nd:LaF₃、Nd:LuLiF₄ および Nd:LuF₃ 結晶の 5.5 MeV α 線に対する光量分布（光電子増倍管で測定）。

C-6. 透過型光電面二次元イメージングシステム

透過型光電面によるイメージング時の検出効率は、 $18 \times 21 \times 20 \text{ mm}^3$ Nd:LaF₃ 結晶の使用時にくらべて、 $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ 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-7. 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、初年度の 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-8. 反射型二次元イメージングシステム

反射型導入により、 $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ 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-9. 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 結晶の時にくらべて、 $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ 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19に示し、 α 線源使用時と同様のイメージングをX線でも取得できることが示せた。

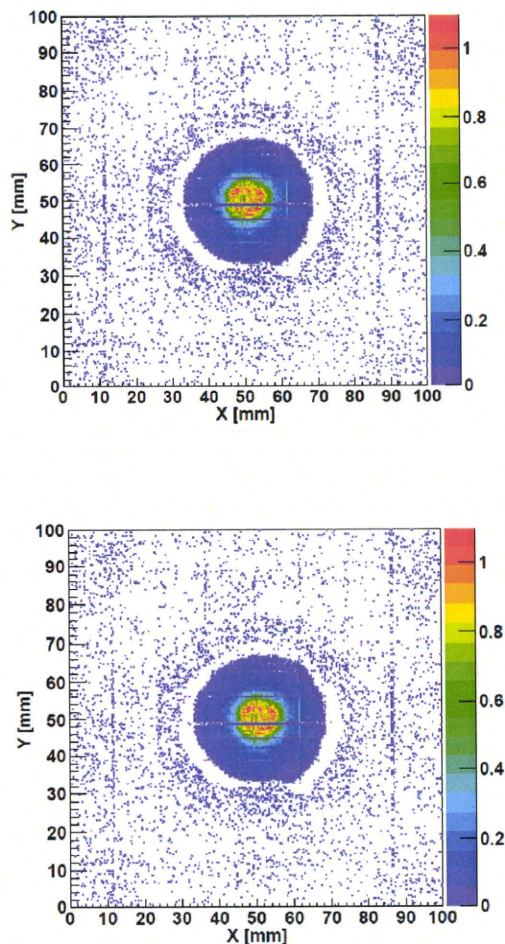


図19 Nd:LuLiF₄ シンチレータによる入射窓に α 線源 ^{241}Am (5.5 MeV) (上図) および X 線源 ^{57}Co (122 keV) (下図) を照射したときの2次元イメージ

D. 結論

本研究の研究目標は、

- ③ ガス検出器と光電面を用いた真空紫外2次元イメージングシステムの確立
- ④ 真空紫外線発光シンチレータと①のシステムを組み合わせた、放射線2次元イメージングシステムの確立および検出効率の向上

であった。

既述の通り、①、②ともに、目標を達成した。

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

- 2) H. Sekiya, C. Ida, H. Kubo, S. Kurosawa, T. Tanimori, A. Yoshikawa, T. Yangida, Y. Yokota, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kaeaguchi, T. Suyama “Development of a large area VUV sensitive gas PMT with GEM/ μPIC ”, Journal of Instrumentation, 4 P11006 (2009)
- 3) Shunsuke Kurosawa, Hidetoshi Kubo, Toru Tanimori, Kojiro Taniue, Hiroyuki Sekiya, Akira Yoshikawa, Takayuki Yanagida, Yuui Yokota, Kentaro Fukuda, Sumito Ishizu, Noriaki Kawaguchi, Toshihisa Suyama, “A Novel Position-Sensitive Radiation Detector Using a Gaseous Photomultiplier and an UV Scintillator”, Proceedings of Science, PD09, 011 (2009)
- 4) H. Sekiya, C. Ida, H. Kubo, S. Kurosawa, T. Tanimori, A. Yoshikawa, T. Yangida, Y. Yokota, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kaeaguchi, 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

- 30) H. Sekiya, C. Ida, H. Kubo, S. Kurosawa, T. Tanimori, A. Yoshikawa, T. Yangida, Y. Yokota, K. Fukuda, S. Ishizu, N. Kaeaguchi, T. Suyama, “A novel imaging device based on UV scintillators and a large area gas photomultiplier”, 11th The International Workshops on Radiation Imaging Detectors, June 28 - July 2, 2009, Prague, Czech Republic.