

様 式 C - 7 - 1

令和 2 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）

所属研究機関名称		奈良先端科学技術大学院大学	機関番号	1 4 6 0 3
研究 代表者	部局	先端科学技術研究科		
	職	特別研究員(DC1)		
	氏名	木村 大海		

1．研究種目名

特別研究員奨励費

2．課題番号

19J22091

3．研究課題名

複合アニオン透光性セラミックスを用いた放射線計測用蛍光体の開発

4．研究期間

令和元年度～令和 3 年度

5．領域番号・区分

-

6．研究実績の概要

これまでの放射線計測用蛍光体の材料形態には単結晶や不透明セラミックスが多く用いられているが、近年では新たな材料形態として透光性セラミックスが注目されている。透光性セラミックスは単結晶と比較して特性面での優位性について報告されているが、既往研究のほとんどは酸化物であり、ハロゲン化物、特に塩・臭・ヨウ化物透光性セラミックスの報告は少ない。そこで本研究ではセシウム複合アニオン化合物の透光性セラミックスを開発し、アニオン比率を系統的に変化させることによるバンドギャップや光学特性、シンチレーション・ドシメータ特性の変化の挙動を明らかにすることを目的とした。今年度は放電プラズマ焼結 (SPS) 法を用いることによりCs(Br, I)透光性セラミックスの開発を行った。作製条件において焼結時間、昇温速度、圧力などのパラメータを調整することにより透光性セラミックスの開発に成功した。その後Cl:Br比を25%ずつ系統的に変化させた試料を作製し、系統的に物性評価を行った。さらに発光中心として様々な添加物を導入したCs(Br, I)透光性セラミックスの作製および特性評価を同様に行った。一例としてEuを添加したCs(Br, I)透光性セラミックスの特性を調査したところ、Iの比率が増加するにつれOSL強度が減少したが、シンチレーション発光強度は増加する結果となり、シンチレーションと蓄積型蛍光の反相関性を確認した。これらの成果に基づき、第12回日本セラミックス協会MFD研究会にて学会発表を行ったところマテリアルデザイン奨励賞を受賞した。

7．キーワード

透光性セラミックス 放射線計測用蛍光体 シンチレーション 光刺激蛍光 熱刺激蛍光 フォトルミネッセンス

8．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
本研究ではセシウム複合アニオン化合物の透光性セラミックスを開発し、アニオン比率を変化させることによるバンドギャップや光学特性、シンチレーション、ドシメータ特性を系統的に評価することを目的とした。
初年度では、Cs(Cl, Br) およびEu添加Cs(Cl, Br)透光性セラミックスの開発に成功し、シンチレーションおよびドシメータ特性を評価した。今年度はCs(Br, I)透光性セラミックスを開発するため、手始めに放電プラズマ焼結法によってCsBr:CsI比が1:1におけるCs(Br, I)透光性セラミックス作製条件を模索し、焼結時間、昇温速度、圧力などのパラメータを調整することにより透光性セラミックスの開発に成功した。その後Br:I比を25%ずつ系統的に変化させた試料を作製し、透過率、フォトルミネッセンス(PL)測定、PL蛍光寿命などの光学特性から発光起源を把握し、その後シンチレーション特性としてシンチレーション発光スペクトルおよびシンチレーション蛍光寿命、残光、パルス波高スペクトルを測定し、さらにドシメータ特性としてTSLおよびOSLの調査を行った。さらに発光中心としてEuを導入したCs(Br, I)透光性セラミックスの開発に成功し、同様に評価した。以上のように当初の計画通り研究が進展している。

2 版

9. 今後の研究の推進方策

1. 2年目に得られた知見を活かしてCs(Cl, I)透光性セラミックスの作製条件を模索する。SPS法を用いた場合、透光性セラミックスは融点の6-8割の焼結温度にすると得られやすいことが私の所属するグループで経験的に分かっているため、手始めにCsClとCsIの融点の約7割の温度である450 で焼結条件を検討する。さらに圧力をかけながら焼結することにより緻密なセラミックスが作製でき、光の散乱源となる気孔の軽減が可能であるため、圧力と焼結温度を調整する。その他のパラメータとして焼結時間、昇温速度や雰囲気制御をすることで最も透光性の高いセラミックスの作製条件を確立する。またこれまでと同様に無添加及び発光中心を導入した複合アニオン透光性セラミックスを作製し評価する。3年間で蓄積した系統的な実験結果からアニオン比によるバンドギャップやシンチレーションおよびドシメータ特性の変化の挙動を明らかにする。さらにアニオン及び発光中心の最適な組み合わせを決定することで、優れたシンチレーション及びドシメータ特性を見出す。最終的にこれまでの成果を体系化してまとめる。

10. 研究発表（令和2年度の研究成果）

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件／うち国際共著論文 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kimura Hiromi, Kato Takumi, Yamamoto Shin-ichi, Nakauchi Daisuke, Kawaguchi Noriaki, Yanagida Takayuki	4. 巻 32
2. 論文標題 Influence of Yb doping on optical and upconversion photoluminescence properties of Yb-, Er-co-doped Y2O3 transparent ceramics prepared by SPS	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Materials Science: Materials in Electronics	6. 最初と最後の頁 6304 ~ 6311
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10854-021-05346-2	査読の有無 有
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	国際共著 -

1. 著者名 Kimura Hiromi, Kato Takumi, Nakauchi Daisuke, Kawaguchi Noriaki, Yanagida Takayuki	4. 巻 478
2. 論文標題 Effect of Tl doping on optical, TSL and OSL properties of Tl-doped RbBr transparent ceramics synthesized by SPS	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 137 ~ 141
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nimb.2020.06.010	査読の有無 有
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	国際共著 -

1. 著者名 Kimura Hiromi, Kato Takumi, Akatsuka Masaki, Nakauchi Daisuke, Okada Go, Kawaguchi Noriaki, Yanagida Takayuki	4. 巻 135
2. 論文標題 TSL and OSL properties of SPS-derived CsBr transparent ceramics doped with various concentrations of Eu	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Radiation Measurements	6. 最初と最後の頁 106367 ~ 106367
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.radmeas.2020.106367	査読の有無 有
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	国際共著 -

1. 著者名 Takahashi Kentaro, Kimura Hiromi, Nakauchi Daisuke, Kato Takumi, Kawaguchi Noriaki, Yanagida Takayuki	4. 巻 59
2. 論文標題 TI-concentration dependence of scintillation properties in TI-doped CsBr single crystals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 122005 ~ 122005
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abca50	査読の有無 有
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	国際共著 -

1. 著者名 Ito Gota, Kimura Hiromi, Shiratori Daiki, Nakauchi Daisuke, Kato Takumi, Kawaguchi Noriaki, Yanagida Takayuki	4. 巻 226
2. 論文標題 Optical and scintillation properties of Ce-doped 20CsCl-20BaCl ₂ -60ZnCl ₂ glasses	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optik	6. 最初と最後の頁 165825 ~ 165825
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijleo.2020.165825	査読の有無 有
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	国際共著 -

1. 著者名 Takahashi Kentaro, Kimura Hiromi, Nakauchi Daisuke, Kato Takumi, Kawaguchi Noriaki, Yanagida Takayuki	4. 巻 59
2. 論文標題 Photoluminescence and scintillation properties of Ce-doped CaBr ₂ crystals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 102002 ~ 102002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abb5c0	査読の有無 有
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	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 木村大海, 加藤匠, 中内大介, 河口範明, 柳田健之
2. 発表標題 Eu添加Cs(Br, I)透光性セラミックスの輝尽性蛍光特性
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

2 版

1．発表者名 木村大海，篠崎健二，加藤匠，中内大介，河口範明，柳田健之
2．発表標題 CeF3-GdF3-Al2O3-Ga2O3-B2O3ガラスの光学およびシンチレーション特性
3．学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4．発表年 2021年

1．発表者名 木村大海，赤塚雅紀，加藤匠，中内大介，河口範明，柳田健之
2．発表標題 Pr添加BaTi4O9単結晶の近赤外シンチレーション特性
3．学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4．発表年 2021年

1．発表者名 木村大海，加藤 匠，中内大介，河口範明，柳田健之
2．発表標題 複合アニオン透光性セラミックスの作製および特性評価
3．学会等名 第12回MFD研究会
4．発表年 2021年

1．発表者名 木村大海，加藤匠，中内大介，河口範明，柳田健之
2．発表標題 透光性セラミックスを用いた放射線計測用蛍光体の開発
3．学会等名 応物関西支部 2020年度第一回+第2回合同講演会
4．発表年 2020年

1. 発表者名 木村大海, 岡田豪, 加藤匠, 中内大介, 河口範明, 柳田健之
2. 発表標題 銀添加塩化セシウム透明セラミックスのラジオフォトルミネッセンス特性
3. 学会等名 第40回電子材料研究討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木村大海, 加藤匠, 中内大介, 河口範明, 柳田健之
2. 発表標題 SPS法により作製したCsF透明セラミックのシンチレーション特性
3. 学会等名 セラミックス協会 第33回秋季シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木村大海, 加藤匠, 越水正典, 中内大介, 河口範明, 柳田健之
2. 発表標題 Cs(Br, I)透明セラミックのシンチレーションおよびドシメータ特性
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

1 1. 研究成果による産業財産権の出願・取得状況

計0件（うち出願0件／うち取得0件）

1 2. 科研費を使用して開催した国際研究集会

計0件

1 3. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

-

1 4. 備考

-