

論文内容の要旨

博士論文題目

フローティングゾーン溶融急冷法による重元素系高融点酸化物ガラスシンチレータの開発研究

氏 名 白鳥 大毅

(論文内容の要旨)

蛍光体を用いた放射線検出器は X 線や γ 線に対して高い検出効率を有するため、医療、セキュリティ、資源探査、宇宙物理などの幅広い分野で用いられている。このような様々な用途には種々の材料が選択されて用いられており、現在においても、それぞれの用途に対してより高性能な材料の開発が行われている。放射線計測用蛍光体の材料形態は、単結晶、セラミックス、ガラスが主流で、特に γ 線を検出対象としたシンチレータの場合、相互作用断面積は材料の Z_{eff} と密度に強く依存することから、既存の実用シンチレータのほとんどは重い単結晶である。これに対し、ガラスは高融点な重元素を多量に含有する場合は原料粉末の融点が高くなり、ガラス作製自体が困難になることなどから、これまでに γ 線検出用としては発展してこなかったが、大面積化が可能なことや低コストな点は応用上重要な特性であり、シンチレータにおいても魅力的な材料系である。

本論文では FZ 溶融急冷法を用いた新規重元素系ガラスの開発と、そのシンチレーション特性の考察を行い、高特性ガラスシンチレータ開発のための知見を得ることを目的とした。本研究で得られたガラスについてガラス化範囲の探索を行い、組成による短距離構造の変化やそれに伴う物性についても明らかにすることで、FZ 溶融急冷法により作製されるガラスの多様な光学用途への展開可能性を示すことも本論文の副次的な目的である。

本論文は全 6 章から構成される。第 1 章の序論、第 2 章の実験方法に続き、第 3 章では重元素として Hf に着目し、溶融法にて初めてガラス化することに成功した。特に Ce 添加試料では、 γ 線照射下における発光量は 400 ph/MeV 程度であり、蛍光寿命が数十 ns 程度と短いことから、高速応答が要求される用途においても適用可能であることを示した。

第 4 章では、Ce を添加した $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系ガラスに関して、既報のガラス化範囲外の組成のガラス化に成功し、 γ 線照射下において数百 ph/MeV の発光

量と数 ns の高速発光を示す有望なシンチレータであることを明らかにした。

第 5 章では、4 章の組成を一部改良し、Gd-Ce 間のエネルギー移動型発光による発光量向上を狙い、 $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{-Lu}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系のガラスに着目している。Gd を含まない組成に比べて Gd を含む組成では総じて各種シンチレーション特性が向上することを確認し、特に *LY* が Gd を含まない試料に比べて 67% 程度も向上することを明らかにした。

本研究では FZ 溶融急冷法を用いることにより初めて Hf 及び Lu 重元素と複合した高融点アルミノシリケートガラスの開発に成功し、放射線計測用材料として用いることが可能であることや、従来のガラスシンチレータよりも検出効率及び応答速度の点で凌駕することを明らかにした。さらに従来の融液法では作製が困難であった物質系も、FZ 溶融急冷法によって作製可能であることを明らかにし、シンチレータのみならずガラス材料がカバーする光学分野全般において展開できる可能性も示した。

(論文審査結果の要旨)

本論文は、核医学や高エネルギー物理学、そのほか各種工業用途で幅広く用いられているシンチレータに関する研究であり、特に γ 線検出を想定した用途において、従来は単結晶材料が主に用いられてきたが、賦形性や化学組成において自由度の高いガラスに着目し、特に重元素を含む新規組成の物質に関して検討を行った。

第 1 章では、放射線物理の基礎全般からシンチレータやそれを用いた放射線計測に関する研究背景、及びガラスの基礎知識とガラスシンチレータ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 2 章では、合成手法であるフローティングゾーン (FZ) 熔融急冷法、物性やデバイス特性の計測方法、データ解析の手法に関して述べている。

第 3 章では、 $\text{HfO}_2\text{--Al}_2\text{O}_3\text{--SiO}_2$ 系ガラスに関して初めて熔融法にてガラス化を達成し、新規物質の合成に成功した。また、Ce 及び Sn を添加した際には γ 線で ~ 500 ph/MeV、 α 線で ~ 3000 ph/MeV の高い発光量 (LY) を示すことを明らかにした。

第 4 章では、Ce を添加した $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{--Al}_2\text{O}_3\text{--SiO}_2$ 系ガラスに関して、既報のガラス化範囲外の組成のガラス化に成功し、 γ 線照射下において数百 ph/MeV の LY と数 ns の高速発光を示す有望なシンチレータであることを明らかにした。

第 5 章では、4 章の組成を一部改良し、組成に Gd を含む $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{--Lu}_2\text{O}_3\text{--Al}_2\text{O}_3\text{--SiO}_2$ 系のガラスに着目した。Gd を含まない組成に比べて Gd を含む組成では総じて各種シンチレーション特性が向上することを確認し、特に LY が Gd を含まない試料に比べて 67% 程度向上させることに成功している。

第 6 章では総括として、FZ 熔融急冷法を用いることにより初めて Hf 及び Lu 重元素と複合したアルミノシリケートガラスの開発に成功し、放射線計測用材料として用いることが可能であることや、従来のガラスシンチレータよりも検出効率及び応答速度の点で凌駕することを述べている。さらに従来の融液法では作製が困難であった物質系も、FZ 熔融急冷法によって作製可能であることを明らかにし、シンチレータのみならずガラス材料がカバーする光学分野全般において展開できる可能性も示した。その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。