

非破壊検査用シンチレータの開発

奈良先端大 ○柳田健之
奈良先端大 河口範明
奈良先端大 岡田豪
奈良先端大 河野直樹

非破壊検査 ガンマ線 X線
シンチレータ 単結晶 放射線計測

研究の目的

戦後の復興から高度経済成長期を経て、わが国では多くの建造物が建てられてきた。これらのインフラ設備を含む建造物は建設後に数十年を経た物も数多く存在し、劣化が問題となってきている。従来、建設物の劣化の検知には、一部の部材を取り出して検査するなどの手法が取られてきたが、近年では X 線の後方散乱現象を用いた非破壊検査の研究が進んでいる。X 線を用いた非破壊検査の代表例は空港の手荷物検査であるが、これらは直進する X 線を利用しており、主に重元素に対して高いコントラストを得る事が出来る。一方で、軽元素に X 線を照射した場合には、コンプトン散乱の現象が多く観測され、そのようなコンプトン散乱において X 線が、照射方向と 180 度逆方向に散乱される現象は後方散乱と呼ばれる。X 線を何らかの建設物に照射した場合、建設物はコンクリートや木材などの軽元素が主要構成物であるため、後方散乱 X 線を観測し、非破壊に内部の断裂などを可視化する事が可能となる。後方散乱 X 線を用いた建造物の非破壊検査は、着想自体は以前よりあったものの、実際に研究開発が盛んになってきたのはここ数年である。その理由としては、殊に我が国において、高度成長期までに大量に構築されてきたインフラ設備を中心とする建造物が、当初の保持可能年数に達し、その老朽化が懸念される状況になり、実際の社会ニーズとなってきたためである。

このような非破壊検査を含む放射線計測には広くシンチレータと呼ばれる無機蛍光体が利用されている。シンチレータは不可視な単一の放射線を量子エネルギー切断によって複数の可視光子に変換する機能を有しており、放射線検出器のメインデバイス部を成す。現在までのところ、非破壊検査応用に関しては、既存の空港の手荷物検査器用シンチレータ (CdWO₄ = CWO や CsI 等) を用いて研究が進められているが、既存のシンチレータは積分型検出器と呼ばれる計測手法用に開発されてきたものであり、必ずしも後方散乱 X 線計測に適したものではない。そこで本研究では、今後ますます需要が見込まれる建造物の非破壊後方散乱 X 線計測に適した新規シンチレータの開発を行う。本研究においてはこれまで検討されてこ

なかった、後方散乱 X 線を用いた非破壊検査用の新規シンチレータを開発する。目標としては現状で利用されている CdWO₄ (CWO) シンチレータより高い実効原子番号 ($Z_{\text{eff}} > 65$) と高い発光量 (16000 ph/MeV) 以上である。

研究の内容

本研究ではセキュリティ用途で用いられてきた CWO 結晶シンチレータよりも高い Z_{eff} を有し、高発光量を併せ持つ新規 Hf 系結晶シンチレータの開発を行う。後方散乱 X 線計測においては、計測対象となる後方散乱 X 線のエネルギーが MeV 領域にも達する為、 Z_{eff} の大きなシンチレータが必須であり、かつ十分な解像度を達成するために高発光量が必要となる。そのため具体的には、Re₂Hf₂O₇ (Re = 希土類)、HfSiO₄、HfO₂、AlHfTaO₆ 等の $Z_{\text{eff}} \sim 70$ 程度となる母材に、希土類発光中心を加える形の物質を開発する。

材料設計は NIST の XCOM を用い、質量減弱係数をシミュレーションする事により行った。この評価で CWO と同等もしくはそれ以上の質量減弱係数を示す物質のみを実際の合成や評価の対象とした。図 1 には計算した質量減弱係数の例を示す。

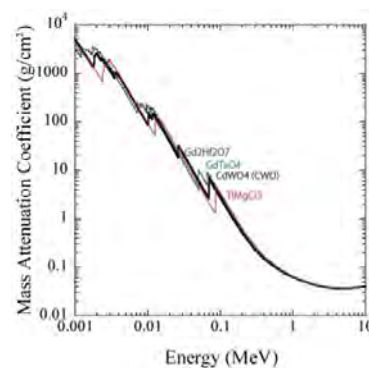


図 4 CWO、GdTaO₄、Gd₂Hf₂O₇、TlMgCl₃ の質量減弱係数の比較。

候補物質は Xe ランプを有する四楕円型のフローティングゾーン (FZ) 法を用いて作製した。また一部の物質は補助的に他の手法を用いて合成した。得られたサンプルは加工研磨し、特性評価に供した。

加工研磨後のサンプルに対し、光学透過率、紫外線励起発光スペクトル (Photoluminescence, PL)、PL 蛍光減衰時定数といった基礎物性を評価した。シンチレーションは物質のバンドギャップを遥かに超えたスケールでの電離・励起現象ではあるが、最終的な発光過程はバンドギャップ内のエネルギー帯域で起きる。そのためバンドギャップ内のエネルギー準位情報を得ておくことは重要である。

最後にデバイス特性評価として、シンチレーション検出器を試作し、放射線応答特性の評価を行った。評価項目は放射線照射時の発光波長 (シンチレーション発光スペクトル)、シンチレーション蛍光減衰時定数、検出器プロトタイプをアセンブリしての MeV エネルギー光子 (X、 γ 線) に対する発光量とエネルギー分解能評価、アフターグロー特性評価である。特に X 線や γ 線に対する発光量はデバイス化する上で重要な指標となる。

研究の成果、新知見

図 2 には開発したサンプルの例を示す。FZ 法で合成した場合のサンプルは、図 2 左のように焼結されたセラミックス棒上に結晶が成長したような形態を有する。これを育成方向に垂直に切断し、その上下面を研磨する事で図 2 右のようなサンプルが得られる。

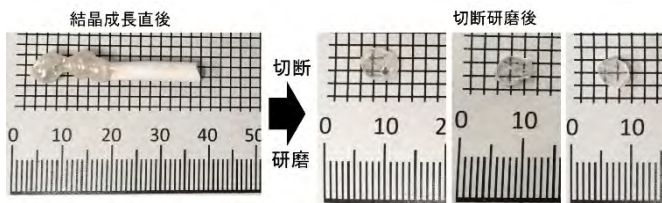


図 2 育成直後の結晶シンチレータ (左) および加工研磨後のサンプル (右)。

今回は酸化物シンチレータ中心に探索を行い、 HfO_2 、 HfSiO_4 、 $(\text{Y, Gd, Lu})\text{TaO}_4$ 、 $(\text{Y, La, Gd, Lu})_2\text{Hf}_2\text{O}_7$ 等を作製した。どのサンプルの作製においても、化学組成における難易度差はあったが、全てから図に示した程度の大きさの票かサンプルを得る事が出来た。

X 線を照射した際のシンチレーション発光スペクトルを観測したところ、開発したほぼ全てのサンプルからシンチレーション光を観測し、シンチレータとしての機能を有する事を明らかにした。 HfO_2 系は 470 nm、 HfSiO_4 系は 470 nm、 AlHfTaO_6 系は 400 nm、 $(\text{Y, Gd, Lu})\text{TaO}_4$ 系は 550 nm、 $(\text{Y, La, Gd, Lu})_2\text{Hf}_2\text{O}_7$ 系は 500 nm のピーク波長となった。これは一般的なシンチレーション検出器で利用される光電変換素子である光電子増倍管や Si フォトダイオードの感度波長域であるため、デバイスとしても利用しやすいと考えられる。なお希土類発光中心として 0.5 mol% の Ce を添加したサンプルも作製したが、現状、どのサ

ンプルにおいても無添加サンプルの方が発光量が高く、 Ce^{3+} の 5d-4f 遷移に起因する発光が観測されていない、もしくは観測されても非常に弱い状況である。今後は還元雰囲気での作製等を行う事で、 Ce^{3+} の発光も発現するのではないかと考えている。

シンチレーション発光スペクトルにおいて発光強度が大きかったサンプルをいくつか選び、光電子増倍管とアセンブリしてシンチレーション検出器を試作し、 ^{137}Cs からのガンマ線を照射して、デバイス特性を調査した。幾つかの新規シンチレータからは光電吸収ピークが観測され、最も発光量の大きなものは市販の T1 添加 NaI と同等の大きなシンチレーション発光量が得られた。これにより、現状で利用されている CWO シンチレータより高い実効原子番号 ($Z_{\text{eff}} > 65$) と高い発光量 (16000 ph/MeV) 以上でという目標は達成された。

主な新知見を以下にまとめる。

- Xe-FZ 法を用いて HfO_2 、 HfSiO_4 、 $(\text{Y, Gd, Lu})\text{TaO}_4$ 、 $(\text{Y, La, Gd, Lu})_2\text{Hf}_2\text{O}_7$ 等の単結晶シンチレータの開発に成功した。これらは従来の結晶育成法では開発が困難な物質であり、基礎科学的な側面から単結晶科学分野において初の成果となる。

- これらの物質から PL 発光を観測した。これはそもそもサンプルを作製する事が出来なかったため光物性分野において初の成果となる。

- 上記の物質からシンチレーション光を観測した。これも放射線計測分野において初の成果となる。

Hf を主成分とする酸化物重元素系シンチレータという未開拓領域に先鞭をつける事が出来たという点において、本プロジェクトは大きな意味を有している。

今後の予定

半年間と言う短期間での研究であったため、粗い部分が多々残っている。例えば現状では Ce を添加した際に、 Ce^{3+} の 5d-4f 遷移がほとんど観測されていない。これは Ce^{3+} の励起状態である 5d 準位が開発した物質のコンダクションバンドに埋もれているという電子物性的な理由なのか、それとも合成条件によるものなのかは全く詰められていない。この部分を詰める事が望まれる。加えて Ce 以外の発光中心元素を添加する事で、よりシンチレーション機能を高められる可能性も残る。そのような詳細を詰める研究を行っていく予定である。

現状では応用物理学会における国内学会発表一件の成果しかないため、今後はまとまった部分から学会発表を行うと共に、インパクトファクター付の国際誌での論文発表を行う。

謝辞

本研究は大成学術財団の支援のもとで行われました。ここで深く謝意を表します。