

高エネルギーX線用サブナノ秒・ナノ秒発光シンチレータの開発 Development of scintillators with sub-nanosecond or nanosecond decay for high-energy X-ray detection

岸本 俊二^{1,*}

¹高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所, 放射光科学研究施設
〒305-0801 つくば市大穂 1-1

Shunji Kishimoto^{1,*}

¹Photon Factory, IMSS, KEK, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

1 はじめに

我々はこれまで高エネルギーX線領域での放射光核共鳴散乱法に用いる時間検出器の開発を進めてきた。核共鳴散乱実験で標準的な検出器であるシリコン・アバランシェフォトダイオード (Si-APD) では0.1-1 ナノ秒時間分解能が達成されているが、高エネルギー領域では APD がシリコン製で 0.1mm 程度の厚みのため検出効率に限界がある。30keV を超えるエネルギー領域でも十分な検出効率をもち、時間分解能に優れ 10⁷cps を超える高計数率まで使用できる高速検出器の開発を、発光寿命がサブナノ秒・ナノ秒の高速シンチレータの開発によって達成しようと考えた。新しいシンチレータを製作し、その性能を放射光 X 線ビームを使って評価する実験を行ってきた。

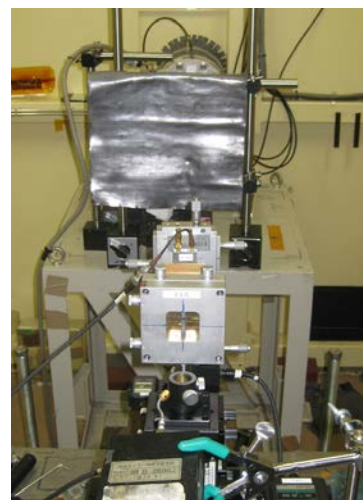
以下の 2 種の新規シンチレータ開発をめざした。

1) 研究課題 2010G179、2012G062 では発光寿命 1.7ns の鉛添加 (5 wt %) プラスチック・シンチレータ (発光効率 ~10% (NaI:Tl 比)) を使って高速検出器を開発してきた[1]。厚さ 10mm なら 67.4keV の X 線での固有検出効率は 29% に達したが、多素子配置・試料近接配置に有利にするために数 mm 以下の厚さで同等の検出効率を得られるように重元素組成比を増加させたい。そのため、シンチレーション光が透過しやすい酸化物ナノ粒子を使って重元素 (Zr, Hf, Bi が候補) 組成比を引き上げる工夫 (ゾルゲル法などで製作) を行い、検出する X 線エネルギー領域で吸収の大きな重元素を添加した数種類のプラスチック・シンチレータ複合体の製作と特性評価を進め、高検出効率かつ発光寿命が 2 ナノ秒以下の高速シンチレータを実現する。また 2) 無機ハロゲン化物で観測されるオージェフリー発光 (AFL: 価電子帯と最も外側の内殻準位間遷移) は発光寿命がサブナノからナノ秒でこれが発光の主成分となる無機シンチレータを開発する。BaF₂ や CsCl₂ は AFL 物質として知られているが、短寿命の AFL は紫外域にあり他の機構による長寿命発光の割合が大きいという問題を有する。このような既存シンチレータの欠点を補うために、これらの組成をベースに、2012G062

で製作を始めた Cs₂ZnCl₄ のような 3 元素系物質で結晶を製作して、発光メカニズムも含めてその特性を系統的に調べ、短寿命、高発光効率の新しいシンチレータ実現をめざした。

2 実験

X線エネルギーはNi-61の原子核励起準位である 67.41 keV を使用した。新しく製作したシンチレータをメタルパッケージ光電子増倍管 (PMT) 型シンチレーション検出器に装着して波高分布を測定、PMT (浜松ホトニクスR7400) への印可電圧を同じとして特性が良く知られたYAP:Ceや鉛5wt%添加プラスチック・シンチレータ (NE-142) の波高分布と比較を行った。BL-14Aではシングルバンチまたはハイブリッドモード運転を利用して、AR-NE7Aではシングルバンチモード (常時) を利用して時間スペクトル測定を行った。また、シンチレータ/受光素子間距離を十分に離して (数10mm以上)、X線 1 光子入射によるシンチレータからの発光を 1 光子以下の確率で検出する配置 (1光子配置) により発光時間スペクトルを測定した。図 1 にAR-NE7Aでの実験の様子を示す。二結晶モノクロメータの下流、実験ハッチ上流部にSi(111)アナライザー結晶を置いて散乱線を



できる限り低減しようとした。アナライザーからの 67.41 keV の X 線ビームを鉛遮蔽板の穴を通して下流側に導いた。

図 1: AR-NE7A での実験配置。奥に鉛の遮蔽板が見えている。

3 結果および考察

ハフニウム(Hf)酸化物ナノ粒子を 10wt% 添加したプラスチック・シンチレータをゾルゲル法にて製作した[2]。蛍光体は b-PBD を使った。Hf 酸化物が最大でも 300nm 径のナノ粒子であることを透過電子顕微鏡によって確認した。~5×5 mm、厚さ 0.6 mm のシンチレータを PMT 受光窓に光学グリースによって装着、反射材としてテフロン・テープで覆って 67.41keV の X 線に対する波高分布測定を行った結果、図 2 のように市販の NE142 (厚さ: 1mm) と比べて 1.2 倍の発光量、1.9 倍の固有検出効率 (4.6%) が得られた。発光スペクトル測定の結果から発光寿命は 2.5 ns と求められ、NE142 の 2.1 ns と比べて遜色ないことを確認した。ビスマスを 10wt% 含む同様なプラスチック・シンチレータについてもテストを行った [3]。

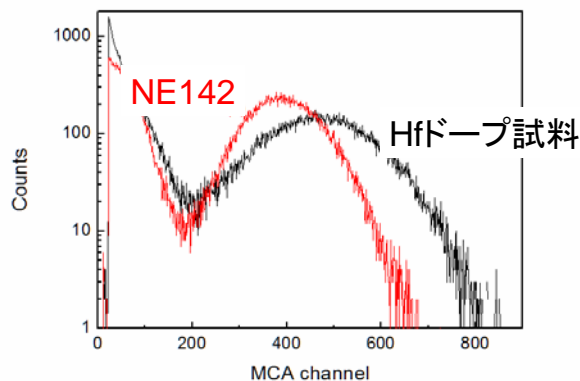


図 2: 67.41keV の X 線による波高分布:
Hf ナノ粒子 10wt% 添加プラスチックシンチ
レータと NE142 (市販) との比較

オージェフリー発光を伴う無機ハロゲン化物シンチレータとして大きさ $5 \times 5 \times 2.2 \text{ mm}^3$ の Cs_2ZnCl_4 を使って 67.41 keV の X 線に対する応答を調べた。BL-14A にて測定した時間スペクトルから全発光量の 95% 成分として時定数 1.8 ns、2.5% が 10 ns の成分、残りは長寿命 (μs 以上) の成分と評価できた。発光量は YAP:Ce (4300 photons/MeV) と比較して 630 photons/MeV と求められた。厚さ 2.2 mm の場合、検出効率は高く、85% となった[4]。

4 まとめ

実験課題: 2014G085 において、1) ハフニウム酸化物ナノ粒子を 10wt% 添加したプラスチック・シンチレータを製作し 67.41keV の X 線ビームを使ってシンチレータ特性を調べた、その結果、発光量、検出効率が市販の鉛添加 (5wt%) プラスチック・シンチレータよりも上回る性能を得ることができた。2) オージェフリー発光を伴う無機ハロゲン化物シンチ

レータ: Cs_2ZnCl_4 を製作し、発光量は低いものの、プラスチック・シンチレータと同等な高速発光が得られることを確認した。

今後、ハフニウムだけでなくビスマス酸化物ナノ粒子などを添加したプラスチック・シンチレータの開発や、発光量を十分維持したまま重元素組成を増やす製法の開発を目指す。無機ハロゲン化物シンチレータについては発光量をできる限り大きくすること、高感度の受光素子との組み合わせによる実用化をめざしたい。

参考文献

- [1] S. Kishimoto, *Hyperfine Interact.* **204**, 101 (2012).
- [2] Y. Sun et al., *Appl. Phys. Lett.* **104**, 174104 (2014).
- [3] 越水ら、応用物理学会 2015 年 3 月ポスター発表.
- [4] N. Yahaba, et al., *Appl. Phys. Express* **7**, 062602 (2014).