

HfO₂-SiO₂ マイクロ粒子を添加した PVK ベース プラスチックシンチレータの開発

Development of PVK-based plastic scintillators loaded with HfO₂-SiO₂ microparticles

佐藤敦史¹, 越水正典², 藤本裕¹, 岸本俊二³, 浅井圭介¹

¹ 東北大学大学院工学研究科応用化学専攻

〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-07

² 静岡大学電子工学研究所

〒432-8011 静岡県浜松市中区城北 3-5-1

³ 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所

〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

Atsushi SATO¹, Masanori KOSHIMIZU^{2,*}, Yutaka FUJIMOTO¹, Shunji KISHIMOTO³,
and Keisuke ASAI²

¹Department of Applied Chemistry, Graduate School of Engineering, Tohoku University,
6-6-07 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 989-8579, Japan

²Research Institute of Electronics, Shizuoka University,
3-5-1 Johoku, Naka-ku, Hamamatsu 432-8011, Japan

³Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization,
1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan

1 はじめに

X線に対する高速応答かつ高計数率可能な検出器は、放射光のパルス性を利用した基礎科学における時間分解分光で必要とされているほか、次世代のX線CT装置などへの利用可能性も広がっている。不感時間の短い検出器を構成する場合、アバランシェフォトダイオードは有力な選択肢となるものの、高エネルギーのX線(典型的には数十keV)に対しては、高速応答性を実現する場合には空乏層の厚さが限定されるため、十分な検出効率を得ることが困難である。そのような場合には、検出部の厚さを十分にとることのできるシンチレーション検出器の利用が適しており、中でも、シンチレーションの減衰時定数の短いプラスチックシンチレータが適している。しかしながら、有機物のみで構成されるプラスチックシンチレータでは、その低い有効原子番号のために、やはりX線に対する検出効率は限定的となる。この短所を克服するための一つの有力な手法は、原子番号の大きな分子などをプラスチックシンチレータに装荷する方法である。

この装荷法は二つある。一つは、有機金属錯体などの形態でプラスチックシンチレータのポリマーホストに溶解させる手法である。この場合、検出効率を顕著に向上させることは可能であるものの、有機金属錯体などが多くの場合に高効率な消光剤として機能してしまうため、装荷によりシンチレーション収率を顕著に低下させてしまうことが多い[1,2]。一方で、重元素を酸化物ナノ粒子として添加した場合には、シンチレーション収率を顕著に損なうことな

く、検出効率が向上することを、我々の研究グループなどが明らかにしてきた[3]。本研究では、ナノ粒子に限定されず、マイクロ粒子の場合にも同様に、シンチレーション収率の低下を限定しつつ、X線の検出効率の向上が可能であることを示した[4]。

2 実験

PVKベースのプラスチックシンチレータにおいて、ゾルゲル法を用いてHfO₂-SiO₂マイクロ粒子を析出させた。プラスチックシンチレータとしてはPKVホストとbis-MSBという有機蛍光分子を用いた。HfOCl₂・8H₂OとPhTMOSを原料とし、0.1 M HClを触媒としてゾルゲル反応を進めた。THFを主溶媒として用い、乾燥状態の制御のためにDMFも添加した。Hf:Si=1:1として、Hfの重量濃度として0~20%のシンチレータを作製した。

作製したシンチレータを搭載したシンチレーション検出器について、そのX線に対する検出効率およびシンチレーション収率を見積もるために、Photon FactoryのBL-14Aにおいて、67.4 keVのX線に対する波高スペクトルを取得した。波高スペクトルにおけるカウント数および全エネルギーピークを、既知の試料・検出器と比較することにより、検出効率とシンチレーション収率とを推算した。

3 結果および考察

作製したシンチレータのSEM像の解析およびEDXによる元素分析とマッピングにより、各試料においてHfO₂-SiO₂マイクロ粒子の形成が確認された。

添加量の増大に伴い、マイクロ粒子のサイズも、5 μm 以下から 60 μm へと増大していった。

表 1 に、67.4 keV の X 線に対する検出効率の 1 mm 厚あたりの値と、シンチレーション収率とを示す。市販の鉛添加プラスチックシンチレータである EJ-256 の値も比較のために示す。マイクロ粒子の添加濃度に伴い、検出効率が顕著に増大したことが明らかである。また、12.5 wt% 添加においても、そのシンチレーション収率は、鉛を 5 wt% 添加したプラスチックシンチレータである EJ-256 と同じ程度かやや凌駕するものであり、マイクロ粒子添加が非常に有効な手段であることが明確に示された。

表 1: 1 mm 厚あたりの X 線の検出効率とシンチレーション収率

Sample	1 mm 厚あたりの 検出効率 (%)	シンチレーション 収率 (光子/MeV)
0 wt%	1.2	9900
2.5 wt%	2.1	7300
5.0 wt%	2.8	6400
7.5 wt%	3.4	6500
10 wt%	3.7	6000
12.5 wt%	4.7	5500
15 wt%	6.6	3800
20 wt%	8.8	4200
EJ-256	2.3	5200

4 まとめ

これまでに我々のグループが実証してきた、重金属酸化物ナノ粒子添加の手法に加えて、マイクロ粒子添加においても、シンチレーション収率の低下を抑制しながら、X 線の検出効率を顕著に向上可能な方策であることが実証された。

参考文献

- [1] M. Koshimizu et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 102202 (2015).
- [2] A. Sato et al., *RSC Adv.* **11**, 15581 (2021).
- [3] For review, see M. Koshimizu, *Funct. Mater. Lett.* **13**, 2030003 (2020).
- [4] A. Sato et al., *J. Mater. Sci. Electron.* **32**, 28807 (2021).

成果

1. 佐藤敦史、第 12 回日本セラミックス協会マテリアル・ファブリケーション・デザイン研究会キャラクターゼーション奨励賞「異なる重金属添加手法を用いた新規重金属添加 PVK ベースプラスチックシンチレータの開発」(佐藤敦史、間木ありさ、越水正典、藤本裕、浅井圭介、岸本俊二)、第 12 回日本セラミックス協会マテリアル・ファブリケーション・デザイン研究会、令和 3 年 3 月 1~2 日、オンライン。
2. 佐藤敦史、第 17 回次世代先端光科学研究会若手奨励賞「ゾルゲル法による $\text{Hf}_x\text{Si}_{1-x}\text{O}_2$ 粒子

添加 PVK ベースプラスチックシンチレータの開発」(佐藤敦史、越水正典、藤本裕、浅井圭介)、極限的励起状態の形成と量子エネルギー変換研究グループ 第一回研究会、2021 年 4 月 20 日、仙台・オンライン開催。

3. 佐藤敦史、セラミックス協会 2021 年年会優秀ポスター発表賞「ゾルゲル法による Hf 添加 PVK ベースプラスチックシンチレータの作製および高エネルギー光子検出特性」(佐藤敦史、間木ありさ、越水正典、藤本裕、浅井圭介)、セラミックス協会 2021 年年会、2021 年 3 月 23 日~25 日、オンライン開催。
4. 佐藤敦史、第 82 回応用物理学会秋季学術講演会 Poster Award「凝集誘起発光を用いた新規有機結晶シンチレータの開発」(佐藤敦史、越水正典、藤本裕、浅井圭介)、第 82 回応用物理学会秋季学術講演会、2021 年 9 月 10~13 日、21~23 日、オンライン開催。

* koshimizu.masanori@shizuoka.ac.jp