

ペロブスカイト量子ドットと波長シフト分子を添加した
プラスチックシンチレータの開発Development of Plastic Scintillators Loaded with Perovskite Quantum Dots and
Wavelength Shifting Molecules越水正典^{1,*}, 佐藤敦史², 藤本裕², 浅井圭介²¹静岡大学 電子工学研究所, 〒432-8011 静岡県浜松市中央区城北 3-5-1²東北大学 大学院工学研究科, 〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-07Masanori KOSHIMIZU^{1,*}, Atsushi SATO², Yutaka FUJIMOTO², Keisuke ASAI²¹Research Institute of Electronics, Shizuoka University,

3-5-1 Johoku, Chuo-ku, Hamamatsu, Shizuoka 432-8011, Japan

²Graduate School of Engineering, Tohoku University,

6-6-07 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan

1 はじめに

シンチレータとは放射線入射により即時に蛍光を呈する蛍光体であり、光電子増倍管などの光検出素子と組み合わせられて、シンチレーション検出器という放射線のリアルタイム検出器を構成する。シンチレーション検出器における要求性能として、高いエネルギー分解能、高い時間分解能、および対象となる放射線の高い検出効率が挙げられる。これらの性能はシンチレータの特性と密接に関連している。エネルギー分解能は、シンチレータのシンチレーション収率とその材料内での均一性が高いほど良好となる。また、シンチレータの発光開始時付近における単位時間あたりのシンチレーション収率が高いほど、エネルギー分解能は高くなる。さらに、シンチレータと検出対象の放射線との相互作用確率が高いほど、検出効率が高くなる。現在、単一の材料ですべての特性に優れるものは存在しないため、用途に応じて多様な材料が利用されている。本研究では、このうち、時間分解能に優れた検出器の構築を目標とし、シンチレーションの減衰の速い材料の開発を進めている。

X線やガンマ線の高時間分解能の検出器は、放射光施設における分光分析をはじめ、核医学診断装置の開発や高エネルギー物理学実験における利用など、多岐にわたる分野において需要がある。一般的に、プラスチックシンチレータが高速応答シンチレータとして用いられる。一方で、X線やガンマ線との相互作用確率は、材料の実効原子番号が高いほど高くなるが、プラスチックシンチレータの構成元素(C, H, O, Nなど)の原子番号は小さいため、相互作用確率は低い。このことは、X線やガンマ線の検出効率が低いという結果となる。

我々は、プラスチックシンチレータのこの欠点を克服するため、発光の生じない無機酸化物ナノ粒子をプラスチックシンチレータに装荷し、X線の検出

効率の顕著な増大に成功してきた[1-9]。従来の手法である有機金属化合物の添加と比較すると、装荷に伴うシンチレーション収率の低下も抑制され、市販のPb装荷プラスチックシンチレータであるEJ-256よりも高いシンチレーション収率の実現にも成功してきている。

これまでのアプローチと対照的に、発光性のナノ粒子を添加して、シンチレーション収率の増大も試みた。特に、近年開発されたペロブスカイト量子ドットについては、その主成分としてPbが含有されていることや、蛍光減衰が速いことから、装荷に適していると言える。しかしながら、ペロブスカイト量子ドットを装荷したプラスチックシンチレータでは、そのシンチレーション収率が顕著に低下した[10]。これは、量子ドットの蛍光を他の量子ドットが吸収する、いわゆるシンチレータ内での自己吸収のためであると結論づけられた。本研究では、この自己吸収の影響を抑制するため、波長シフトとなる有機分子を共添加し、高速シンチレータを開発した。

2 実験

450, 480, および 510 nm に蛍光ピークを持つ市販のペロブスカイト量子ドット(それぞれ QD-P450, QD-P480, および QD-P510)を、butyl-PBDを 0.5 mol% 添加したポリスチレンベースのプラスチックシンチレータに装荷した。さらに、波長シフトを、butyl-PBFとの重量比 80:1 で添加した。なお、波長シフトとしては、Coumarin6, 9,10-bis(2-phenylethynyl)anthracene (BPEA), および Nile red をそれぞれ QD-P450, QD-P480, and QD-P510 を装荷したプラスチックシンチレータに添加した。なお、これらの波長シフトの蛍光波長はそれぞれ 510, 540, および 600 nm である。これらの試料をそれぞれ QDS-450, QDS-480, および QDS-510 と呼称する。

3 結果および考察

ペロブスカイト量子ドットを装荷したプラスチックシンチレータのシンチレーション減衰挙動について、複数の指数関数減衰成分の和でフィッティングした各減衰成分の時定数を表1に示す。いずれも、波長シフトとなる分子の添加により、シンチレーション減衰が速くなった。これは、量子ドットの発光と自己吸収が繰り返され、シンチレータ外でのシンチレーションのタイミングが遅くなっていた状況に対し、自己吸収の抑制によって減衰が速くなった結果であると推察される。

表1: シンチレーション減衰時定数

Sample	Decay time constants and relative intensities
Polystyrene + butyl-PBD + QD-P450	11 ns (50%), 40 ns (50%)
QDS-450 (Polystyrene + butyl-PBD + QD-P450 + Coumarin6)	3.3 ns (91%), 20 ns (9%)
Polystyrene + butyl-PBD + QD-P480	12 ns (81%), 53 ns (19%)
QDS-480 (Polystyrene + butyl-PBD + QD-P480 + BPEA)	5.1 ns (100%)
Polystyrene + butyl-PBD + QD-P510	8.6 ns (36%), 45 ns (64%)
QDS-510 (Polystyrene + butyl-PBD + QD-P510 + Nile red)	10 ns (100%)

表2に、波高スペクトル測定により求められたシンチレーション収率を示す。QD-P450を装荷した資料では、波長シフトの添加によりシンチレーション収率が70%ほど増大した。この結果も、自己吸収の抑制によるものと推察される。

表2: シンチレーション収率

Sample	Scintillation light yield (photons/MeV)
Polystyrene + butyl-PBD + QD-P450	2500
QDS-450 (Polystyrene + butyl-PBD + QD-P450 + Coumarin6)	4200
Polystyrene + butyl-PBD + QD-P480	2900
QDS-480 (Polystyrene + butyl-PBD + QD-P480 + BPEA)	-
Polystyrene + butyl-PBD + QD-P510	2900
QDS-510 (Polystyrene + butyl-PBD + QD-P510 + Nile red)	3200

4 まとめ

波長シフトの添加により、量子ドット装荷シンチレータの特性がより良好となった。これは、量子ドット装荷シンチレータにおける自己吸収の抑制が、高性能を実現する上でのカギとなることを明確に示す結果である。

参考文献

- [1] M. Koshimizu, *Funct. Mater. Lett.* **13**, 2030003 (2020).
- [2] M. Koshimizu, *Jpn. J. Appl. Phys.* **62**, 010503 (2023).
- [3] Y. Araya *et al.*, *Sens. Mater.* **27**, 255 (2015).
- [4] Y. Sun *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 174104 (2014).
- [5] K. Kagami *et al.*, *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **31**, 896 (2020).
- [6] F. Hiyama *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 012601 (2018).
- [7] K. Inoue *et al.*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **65**, 1012 (2018).
- [8] F. Hiyama *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 052203 (2018).
- [9] A. Magi *et al.*, *J. Mater. Sci. Electron.* **32**, 7987 (2021).
- [10] A. Magi *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **62**, SB1036 (2022).

* koshimizu.masanori@shizuoka.ac.jp