

## 論文要旨 Dissertation Abstract

令和 5年 3月 7日

Date (YY/MM/DD):

専攻 Major	人工環境専攻	学籍番号 Student ID	20TG005	氏名 Name	松本 昭源
論文題目 Dissertation Title	高速化学気相析出法を用いて合成した $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 系厚膜蛍光体のシンチレーション特性				
<p>放射線を用いたイメージング技術は、研究開発や医学診断での非破壊検査、地層診断や除染現場での放射線モニターといった広く利用されている。放射線は不可視であり、通常の光検出器では検出が困難であることから、シンチレータと呼ばれる放射線誘起蛍光体を用いられる。従来、シンチレータには液相法や焼結プロセスによって育成された数ミリスケールの結晶が利用されてきた。シンチレータの厚みを大きくすると、放射線阻止能が向上する一方で、結晶中の光散乱や光吸収により、イメージングの空間分解能やシンチレータ発光の効率が低下する。これら理由から、放射線を利用した超高分解能イメージングや、原発の除染現場での <math>\alpha</math> 線ダストイメージング装置に対しては、マイクロスケール厚の厚膜シンチレータが好適とされている。従来法では、熔融凝固法といった液相プロセスを経て育成した数センチメートル以上のバルク結晶から、切削や精密な研磨を経てこれらマイクロスケール厚のシンチレータを得ている。しかし、これら従来法では、膨大なコストと加工時間が必要となる問題があり、代替手法が求められていた。</p> <p>気相プロセスは、原料ガスの反応を利用して、基材上へコーティングとして材料合成する手法であり、後加工を必要とせず被膜形状で材料合成できることから、厚膜シンチレータを合成する手法として期待できる。気相プロセスの代表的なものに、物理気相蒸着 (PVD) や化学気相析出 (CVD) 方があるが、これら手法は成膜速度が一般に単位時間当たり 1 マイクロメートル以下と遅いため、厚膜シンチレータの合成手法には適していない。そこで筆者は、レーザー加熱を援用した CVD 法に着目した。当手法は、他の気相法と比べて成膜速度が数百倍と早く、マイクロスケールの厚膜を高速で作製できることから、上記の高分解能イメージングや <math>\alpha</math> 線環境モニター向け撮像素子の新たな合成法として期待できる。しかし、これら気相法でのシンチレータ合成例はほとんどなく、そのシンチレーション特性も全く明らかになっていないという課題があった。本研究論文では、高速化学気相析出法を利用することで、<math>\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3</math> 系厚膜蛍光体を合成し、ホスト材料や添加元素、膜厚がそのシンチレーション特性に及ぼす影響を調査した。本研究論文は、全 6 章から成る。以下に、各章の概要を述べる。</p> <h3>第 1 章「序論」</h3> <p>放射線イメージングの歴史や原理について説明し、放射線の種類によって、求められるシンチレータの形状が異なっている理由について整理した。さらに、近年の高分解能イメージングや <math>\alpha</math> 線ダストモニターについての需要の高まりについて述べ、これら用途に必要な 5-30 <math>\mu\text{m}</math> 厚さを有するシンチレータの製造法は、現状では大型バルク結晶の加工というトップ-ダウン式の手法が主流となっており、多量のエネルギーや多大なる時間とコストを消費することが課題となっていることを抽出した。また、それらの解決として開発された化学液相法で育成された厚膜シンチレータは、フラックスからの遷移金属混入により満足な感度が得られていないという副次的な課題も抽出した。</p>					

(続葉) (Continued)

これらの課題を受けて本論文では、バルク育成法や溶液法を経ない、レーザー加熱を援用した高速エピタキシャル成膜法による厚膜シンチレータの合成法を提案した。これらを通じて得られた厚膜シンチレータの特性を、その膜厚や添加濃度との影響について包括的に調査し、従来法で育成された結晶と比較、相違点を明らかにすることも目的とした。

## 第2章「合成方法および評価方法」

レーザー加熱を援用した熱反応型の CVD 法を用いて、透明セラミックス厚膜を合成する方法について述べた。また、合成した厚膜シンチレータに対しての相同定、微細構造、基礎光学特性、シンチレーション特性評価法を説明した。

## 第3章「化学気相析出法を利用した $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 擬二元系厚膜の合成とその基礎光学特性評価」

CVD 法を用いて  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ 、 $\text{LuAG-Al}_2\text{O}_3$  および  $\text{LuAG}$  厚膜の合成を行い、X 線回折による結晶相同定に加えて、フォトルミネッセンス特性評価を通じて  $\text{Eu}^{3+}$  イオン由来の発光に対する対称性比を算出し、添加元素が置換されている結晶相の相同定を行う。また、微細構造観察を通じて膜厚の測定を行うことで、成膜速度の算出を行った。

## 第4章「 $\text{Ce}^{3+}$ 添加 $\text{LuAG}$ 系厚膜における粒子線を励起源としたシンチレーション特性」

合成した  $\text{Ce}^{3+}:\text{LuAG}$  膜および  $\text{Ce}^{3+}:\text{LuAG-Al}_2\text{O}_3$  膜に対して、X 線および  $\alpha$  線を用いたシンチレーション特性評価を行う。得られたシンチレーション特性について、モンテカルロシミュレーションコードを用いた線量算出を併せて行い、発光量増減に対する要因を調査する。また、従来法で育成されたバルク結晶体との比較については、放射光施設での極端紫外光実験を通じたバンド構造評価を行い、その相違点について明らかにした。

## 第5章「 $\text{Ce}^{3+}$ 添加 $\text{LuAG}$ 厚膜における電磁波を励起源としたバンド構造評価およびシンチレーション特性評価」

$\text{Ce}^{3+}:\text{LuAG}$  厚膜を用いた X 線イメージング試験を行う。撮像対象として市販の記憶媒体や微小金属線を用いた。また、X 線励起後の残光特性評価を行う。これら特性を従来法で育成されたバルク単結晶およびそれらを研磨して作成された厚膜シンチレータと比較し、その撮像特性について明らかにした。

## 第6章「総括」

以上の第3章、第4章、第5章での検討により、化学気相析出法を利用した新しい厚膜シンチレータの合成方法を確立し、その優れたシンチレーション特性も実証した。これにより、現在の発光量が低いシンチレータを代替する高性能シンチレータ結晶を育成できる唯一の技術として実用化、並びにその研究開発の加速や製造コストと納期の大幅な削減が期待できる。本論文で提案、実証した気相プロセス技術は、既存の CVD 法に熱源としてレーザー加熱を追加するだけで実現できることから、産業への技術移転が容易である。また、本手法は、シンチレータ結晶の育成に限らず、その低温かつ高速な製造プロセスを活かして、これまで高融点や融点不一致のために結晶育成が困難であり、その材料特性が未解明であった難合成の材料群を含めた、機能性セラミックス結晶のラピッドプロトタイピングといった材料研究への展開も期待できる。

4000字以内 (Within 4000 words in Japanese, or 2000 words in English)