

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630485

研究課題名(和文)3Dプリンタを用いたシンチレーション式放射線検出器製造の検討

研究課題名(英文)Development of a method to create a plastic scintillator with 3D printer

研究代表者

金 政浩 (Kin, Tadahiro)

九州大学・総合理工学研究科(研究院)・助教

研究者番号：80450310

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：光造形方式の3Dプリンタで放射線計測用シンチレータを造形する手法の開発を行った。この方式の3Dプリンタでは造形材としてUV硬化樹脂が用いられる。シンチレータとして動作させるために必要な素材の選定と最適な配合比を決定した。また、試作したシンチレータを用いた線源測定の結果、市販のプラスチックシンチレータと比較しても十分な性能があることを確認した。さらに、実際に3Dプリンタで開発したUV硬化樹脂を造形し、造形したものがシンチレータとして動作することも確認した。市販品との比較の結果、同等の性能を示すこともわかった。

研究成果の概要(英文)：The method to create a plastic scintillator with a 3D printer had been developed. The 3D printed scintillator had almost same characteristics compared with a commercial one.

研究分野：放射線計測、原子核物理

キーワード：プラスチックシンチレータ 3Dプリンタ 放射線計測

### 1. 研究開始当初の背景

放射線計測分野においては、しばしば独自の形状や構造の検出器が必要となることがあり、加工が容易なプラスチックシンチレータが広く用いられている。しかしながら、これらはオーダーメイドで作成する必要があり、コストや製作期間を費やしてしまうという問題がある。また、しばしば非常に困難な形状については、仕様を簡易的な物に変更せざるを得ない場合もある。

### 2. 研究の目的

近年 3D プリンタの普及に伴い、複雑な形状の造形物を高精度に作成できるようになってきた。造形物を光ファイバーとして用いる例(文献 )なども存在し、光学系の素材として用いられる事も多くなってきた(文献 )。もし 3D プリンタの造形物としてシンチレータが得られれば、放射線計測分野において非常に有用である。そこで我々は、市販の 3D プリンタで造形可能な、シンチレーション光を発する UV 硬化樹脂の開発を目的とした。なお、今回は一般的な光造形方式の 3D プリンタとして MiiCraft(文献 )を採用した。

### 3. 研究の方法

シンチレータとして用いるためには、造形物が透明でなくてはならない。現状、容易に透明な造形物が製作可能な 3D プリンタは「光造形方式」が代表的なものである。この方式の 3D プリンタでは、造形材(通常のプリンタで言えば「インク」にあたるもの)として、UV 硬化樹脂が用いられる。

通常の UV 硬化樹脂は、主に(1)ベースとなる樹脂、(2)光開始剤、から構成されている。我々は、さらに放射線を受けて蛍光を発する(3)発光剤と、その蛍光を光検出器の感度の高い波長に変換する(4)波長変換剤を添加し、「シンチレーション UV 硬化樹脂」を開発した。

これらの素材について、様々な種類のものを色々な配合比で調合し、最適な条件を探した。

また、作成したシンチレーション UV 硬化樹脂の性能を確認するため、ガンマおよびベータ線源を用いて、市販のプラスチックシンチレータとの比較をおこなった。

さらに、実際にシンチレーション UV 硬化樹脂を 3D プリンタの造形剤として用いた造形テストを行い、緻密な構造を精度よく造形できることを確認した。

### 4. 研究成果

まず、吸収および発光波長を考慮し、最も放射線に対して蛍光効率が高いと考えられるいくつかの素材を選んだ。ベース樹脂 4 種、光開始剤 4 種、波長変換剤 2 種を選択した。発光剤については、有機シンチレータとして伝統的に用いられている 1 種のみを選択した。

ベータ線源を用いた発光量調査を行いながら、(1)は東亜合成製 M-211B、(2)はチバ・ジャパン製 Irgacure TPO、(3)は PPO (2,5-Diphenyloxazole)、(4)は Bis-MSB (1,4-Bis(2-methylstyryl)benzene) を最適な組み合わせとして選択した。図 1 に選択した素材の発光、吸収波長曲線を示す。今回対象としている市販の 3D プリンタ MiiCraft では 400nm 程度の UV 光が硬化に使用されており、光開始剤として Irgacure TPO を用いることが出来ることわかる。また、Irgacure TPO は、放射線によって生じる PPO からの発光波長付近の吸収強度が弱い。そのため、光開始剤による蛍光の自己吸収を低く抑えることが可能となっている。さらに、波長変換剤の Bis-MSB の吸収波長は、PPO の発光波長と一致しており、効果的に波長変換を行うことができる。波長変換後の蛍光は、Irgacure TPO による自己吸収の影響をほとんど受けない。

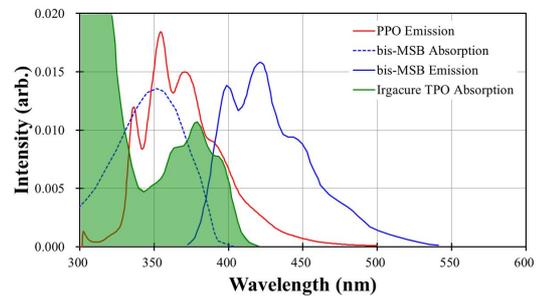


図 1 選択した素材の発光・吸収波長曲線

また、これらの配合比についても同様に  $^{90}\text{Sr}$  ベータ線源を用いた発光量調査で最適化を行った。発光量は、ベータ線の最大エネルギーに対応するエンドポイントの位置から評価した。様々な濃度のサンプルを液体シンチレーションカウンティング用のガラスバイアルに満たし、光電子増倍管(PMT) (浜松ホトニクス H6410)にオプティカルグリスでカップリングして計測を行った。図 2 に得られた波高分布スペクトルを示す。

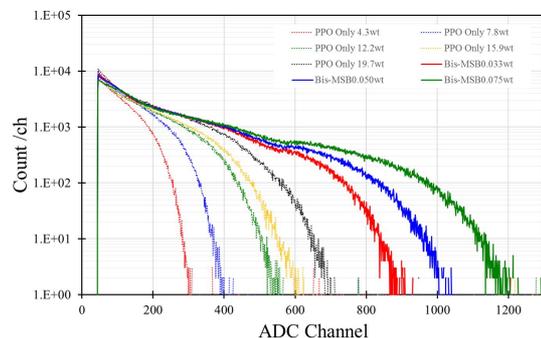


図 2  $^{90}\text{Sr}$  線源からのベータ線波高分布

PPO は室温(約 20 度)において、M-211B に

対して 20wt%まで溶解させることができる。この図からわかるように、飽和濃度まで発光量が増加していくことが確認された。また、図 2 の実線は 20wt%の PPO を M-211B に溶解させたサンプルに、Bis-MSB を溶解させた結果である。こちらについても飽和濃度である 0.1wt%まで発光量が増加することが確認できた。

以上の結果を元に、PPO および Bis-MSB はともに飽和濃度まで溶解させることが有効であるとわかった。また、Irgacure TPO は、放射線起因の蛍光吸収を最小限に抑えるため、硬化に必要な最低量である 0.05wt%を採用した。決定した配合比を表 1 に、試作したプラスチックシンチレータの写真を図 3 に示す。

表 1 開発した UV 硬化樹脂の素材と配合比

M-211B	Irgacure TPO	PPO	Bis-MSB
80 wt%	0.05 wt%	20 wt%	0.1 wt%

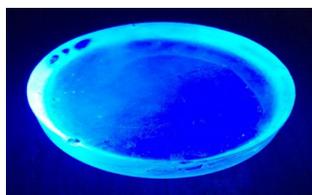


図 3 開発した UV 硬化樹脂を UV ライトで照射した様子

次に、市販品との比較のため、作成したシンチレータとジーテック社製のプラスチックシンチレータ(いずれもφ55mm×10mm<sup>3</sup>)を用いた線源計測を行った。各々のシンチレータは、PMT (浜松ホトニクス H6410)にオプティカルグリスでカップリングした。なお、線源としては、ガンマ線源として <sup>60</sup>Co および <sup>137</sup>Cs を、ベータ線源として <sup>90</sup>Sr を用いた。

まず、PMT から出力される両者の信号波形をオシロスコープで観測した。図 4 にその結果を示す。

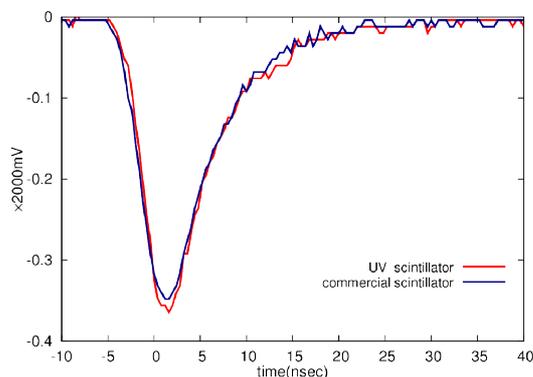


図 4 両シンチレータに対する PMT からの波形

両者のパルス信号について、立ち上がり時間と減衰時間はほぼ同等であり、市販品と遜色ない性能を持っていることがわかった。

次に、放射線による付与エネルギーと発光量の関係を市販品と比較した。ガンマ線源についてはコンプトン端のエネルギー、ベータ線源については最大付与エネルギー(ベータ線最大エネルギー)を用いた発光量調査を行った。なお、ベータ線源については PMT の遮光などに伴う減衰の影響をなくすため、図 5 の様に、シンチレータ上部に直接配置した。ガンマ線源については減衰の影響はほとんど無視できるため、PMT の遮光の外に配置した。計測で得られた波高分布を図 6 に示す。



図 5 ベータ線源測定の際の実験体系

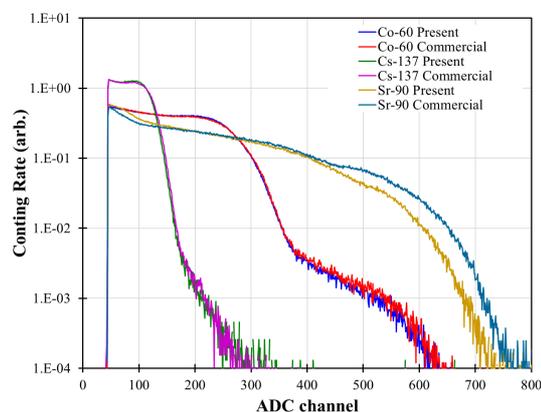


図 6 作成したシンチレータと市販品との比較

まず、図 6 におけるガンマ線計測の結果に着目する。両者はコンプトン端の位置がほぼ完全に一致していることが確認できた。次にベータ線源の結果を比べると、最大発光量が市販品より若干劣ることがわかった。ベータ線源は図 5 の様に配置されており、その飛程の短さより、シンチレータの上部で蛍光が生成し、PMT までシンチレータ内部を伝播することになる。つまり、シンチレータの透明度に差があれば、PMT に到達する光子の数に差が出ることになる。今回の実験結果より、作成したシンチレータは透明度において、市販品より若干劣ることが示唆された。しかしながら、その影響は 10mm あたり 7%未満であり、市販の安価な 3D プリンタの最大造形サイズを考慮すると、使用に耐えうるものであると言える。

最後に、開発した樹脂を用いて、実際に 3D プリンタによるシンチレータの造形を行った。造形物を図 7 に示す。



図 7 3D プリントによる造形テスト

積層ピッチ 50 ミクロンによって、造形を行い、このような高精度な形状を造形できることが確認された。当初の目的である 3D プリントでのシンチレータ造形は達成できたと言える。

今後の展望として、より透明度の高くなる UV 硬化樹脂の開発が考えられる。現状では、図 1 からわかるように、各素材の発光・吸収波長が完璧にマッチングしているわけではなく、最善の状態であるにすぎない。とくに光開始剤の吸収が問題となっている可能性が高く、様々な増感剤を添加することによって、より少量の光開始剤で硬化が行えるよう、開発を進めるべきである。他に、本シンチレータは市販品に比べ、波形弁別による中性子とガンマ線の弁別能が高いと考えられる。近年、中性子計測に用いられる事ができる固体の検出器として、新たなプラスチックシンチレータの開発が行われている例が多くなってきている。本課題の成果物であるシンチレータで、本領域への挑戦を引き続き行っていく計画である。

#### <引用文献>

K. Willis et al., Proc. of the 25th ann. ACM symp. on User int. soft. and tech. (2012) 589.

LUXeXceL 社 ホーム ページ、  
<https://www.luxexcel.com/>

システムクリエイイト社ホームページ内  
Mi iCraft の製品紹介ページ、  
<http://www.systemcreate-inc.co.jp/products/3dprinter/miicraft.html>

#### 5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表](計 2 件)

金 政浩、中村 嵩之、渡辺 幸信、  
3D プリントによるシンチレータ造形のための UV 硬化樹脂の開発、日本原子力学会

2016 年春の年会、2016 年 3 月 26 日、東北大学川内キャンパス(仙台市)

中村 嵩之、金 政浩、渡辺 幸信、  
3D プリントに応用可能な UV 硬化性プラスチックシンチレータの開発、日本原子力学会九州支部第 34 回研究発表講演会、2015 年 12 月 5 日、九州大学西新プラザ(福岡市) ポスター講演賞受賞

#### 6 . 研究組織

##### (1)研究代表者

金 政浩 (KIN, Tadahiro)

九州大学・大学院総合理工学研究院・助教  
研究者番号 8 0 4 5 0 3 1 0