

令和 3 年 4 月 26 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H03468

研究課題名(和文)透明コンポジットシンチレータを用いた高効率・高精細・大判中性子シンチレータの実現

研究課題名(英文)High efficiency, fine and large area neutron scintillator using transparent composite scintillator

研究代表者

渡辺 賢一 (Watanabe, Kenichi)

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号：30324461

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：中性子検出を目的としたシンチレータとして、透明コンポジットシンチレータという形態の中性子シンチレータ開発を進めた。透明コンポジットとして、中性子コンバータであるLiF粉末とEu:CaF₂シンチレータ粉末を混合して透明樹脂で固めたもの、およびLiガラスシンチレータ粉末を透明樹脂で固めたものが有力な候補となったが、再現性、歩留まりという観点からは、後者に優位性があるという結論に至った。これにより大判中性子シンチレータを実現する見通しを得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで、高精細、高効率かつ大面積を有する中性子シンチレータを実現することは困難であった。これを、透明コンポジット、特にLiガラス粉末を透明樹脂で固めたものを用いることで実現できる見通しが得られた。混合樹脂を固めるという製造工程であるため、大判化のみならず、薄膜化、小型化と、比較的自由に形状を制御可能である。中性子イメージングや医療分野における中性子計測等への応用が期待できる。

研究成果の概要(英文)：We developed the transparent composite scintillators for neutron detection. As the promising candidates, the transparent composites containing mixed powder of LiF neutron converter and Eu:CaF₂ scintillator, and the transparent composite containing Li glass scintillator powder were developed. From the viewpoint of reproducibility and production yield, the Li glass scintillator powder composite was concluded to be the most promising candidate. As a future work, we will produce a large area and highly efficient neutron scintillator sheet using the transparent composite containing Li glass scintillator powder.

研究分野：放射線計測

キーワード：中性子 シンチレータ 混合粉末 透明コンポジット

1. 研究開始当初の背景

大型加速器パルス中性子源 J-PARC の本格的な稼働に伴い、中性子科学の物質科学分野等への応用展開に対する期待はますます大きくなってきており、中でも中性子イメージング法の有効活用が、さらなる中性子利用分野の拡大に向けた課題の一つとなっている。パルス中性子イメージングを用いた分析手法の一つに熱外中性子共鳴吸収分析法がある。熱外中性子を検出するには、 ${}^6\text{Li}(n,t)$ あるいは ${}^{10}\text{B}(n,\alpha)$ 反応を用いるものが有力候補となるが、これらの中性子に対する断面積は中性子速度 v に対して $1/v$ 則に従うため、熱中性子よりエネルギーの高い熱外中性子に対する検出効率は低くなる。現在、用いられている中性子イメージング検出器は、LiF-ZnS:Ag 混合シンチレータシートを用いたもの、B コンバータを有する GEM 検出器等があるが、いずれも熱外中性子に対し十分な検出効率を有していない。熱外中性子イメージングの実用化に向け解決すべき問題は、如何にして検出効率の高い中性子検出器を実現するかということに集約されていると言っても過言ではない。

2. 研究の目的

当該課題では、透明コンポジットシンチレータの利用を提案する。従来用いられてきた LiF-ZnS:Ag では各々の粒子間に、これらより屈折率の極端に低いバインダ物質が存在するため、界面で屈折が起こってしまう。そこで、粒子間に粒子と屈折率が近い透明物質を充填することで、全体としては透明なコンポジット材料を構成する。屈折率のマッチングの良い、中性子コンバータ、シンチレータ、バインダの組み合わせを検討し、高効率、高精細、大判化を実現すべく、成型の自由度の高い、樹脂型透明コンポジット中性子シンチレータの開発を行い、中性子イメージング検出器用シンチレータとしての見通しを得ることを目的とする。

3. 研究の方法

具体的な実施項目としては、1) 微粒子コンバータ・シンチレータおよび透明材の充填方法・比率の最適化、2) 新規シンチレータ材の探索、3) 大判シンチレータの試作・評価が挙げられる。これらを実施することで、高効率、高精細、大判化が可能な、成型の自由度の高い、樹脂型透明コンポジット中性子シンチレータを実現する。

4. 研究成果

ここでは、上述の実施項目について、得られた成果を詳述する。

1) 微粒子コンバータ・シンチレータおよび透明材の充填方法・比率の最適化

充填法の検討として、油圧プレス法を試行したが、粉体によっては、発光を示さなくなる、固まりずらい等の問題があり、現状では当該手法には適さないと判断し、粉体への透明液体樹脂滴下法を採用することとした。単なる混合粉体は乱反射により白色を呈するが、水や透明液体を浸透させることで全体として半透明になりシンチレーション光を効率よく収集できることが分かった。透明液体としては、液体ガラスが有力候補であることが分かった。比率に関しては、LiF-Eu:CaF₂ 混合粉体について最適比率に関する検討を進めた結果、現状では、質量比で LiF:Eu:CaF₂ = 1:2 が最も良い結果を示すこととなった。また、単に混合比率だけでなく、粉体の粒径を制御することが混合粉体含有透明樹脂を形成するのに重要であることが分かった。このことは、粒径制御により、最適な混合比率も変わり、Li の含有量、つまり中性子感度をさらに向上できる可能性があることを示している。

2) 新規シンチレータ材の探索

新しい混合粉体として LiF-GAGG, LiF-Tl:CsI 混合粉末シンチレータを作製し、その中性子応答を評価した。LiF-GAGG に関しては、明瞭な中性子応答を示すことを確認すると共に、従来高い中性子検出能力を示す Eu:LiCaAlF₆ シンチレータと比べ、短い発光減衰時定数を示すことがわかった。

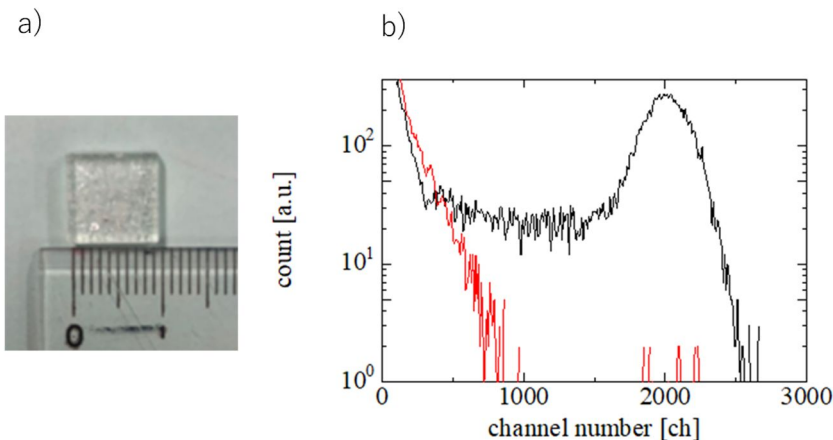


図1 製作した TRUST Li ガラスシンチレータの a) 外観写真および b) 得られた信号波高分布

LiF-Tl:CsI についても、明瞭な中性子応答を示し、かつ Eu:LiCaAlF₆ と比べ、高い発光量を示すことが分かった。LiF-Eu:CaF₂ については比較的高い光透過率を示し、波高分布中に中性子に起因するピークあるいは肩構造を示すことが分かった。また、TRUST (透明樹脂型) Eu:LiCaAlF₆ の代替材料として透明シンチレータと透明樹脂の組み合わせについても、再度検討を進めることとした。事前検討として、集光効率の悪い光ファイバ集光光学系と比較的発光量の低い Li ガラスシンチレータの組み合わせについても試験を行い、中性子ピークを示すことがわかった。この知見を基に、TRUST Li ガラスシンチレータを製作した。屈折率の近い透明樹脂を採用することで、信号波高分布中に、明確な中性子ピークを形成することを確認するとともに、高いガンマ線抑制能力を示すことが確認された。

3) 大判シンチレータの試作・評価

最終的な大判シンチレータをじつげんできる候補としては、屈折率のマッチングがより容易な組み合わせが望ましいという結論に至った。中性子コンバータ、シンチレータ、透明樹脂の三者の屈折率のマッチングを図り、透明度を保つことは困難であると判断し、中性子コンバータ含有シンチレータおよび透明樹脂の二者で、透明コンポジット中性子シンチレータを構成することとした。この材料の候補としては、高速発光を示し、多くの紫外線硬化樹脂と比較的屈折率の近い Li ガラスシンチレータを採用することとした。

Li ガラスシンチレータを粉砕、微小粉末化し、これを紫外線硬化樹脂と混合、脱気後、硬化した。

外観は、半透明であるが透光性のあるものとなった。Li ガラスと紫外線硬化樹脂の混合割合は 2:1 とした。製作した粉末 Li ガラス透明コンポジット中性子シンチレータを光電子増倍管の光電変換面に設置、反射材、遮光を施すことで中性子検出器とした。検出器信号をデジタル MCA に接続することで、信号波高分布を得た。Cf-252 中性子源、

Cs-137、Co-60 ガンマ線で照射した際の信号波高分布を図 2 に示す。中性子照射の際に、ピーク構造が形成されていることが確認され、シンチレータとして十分な透光性が得られていることが確認できる。中性子ピークが形成されることで、シンチレータ検出器としての、中性子感度を明確に定義できるようになる。ガンマ線に対する応答を見ると、エネルギーの高い Co-60 線源で照射した際により高い信号波高値を示していることが確認された。形状、寸法と制御することで、ガンマ線の信号波高を抑制することは可能である。最後にバルクの Li ガラスシンチレータとの発光量の比較を行った結果、発光量はおおよそ 1/5 になっていることが確認された。粉末と樹脂の混合割合、シンチレータ厚等を調整することで、発光量は制御できる可能性はある。

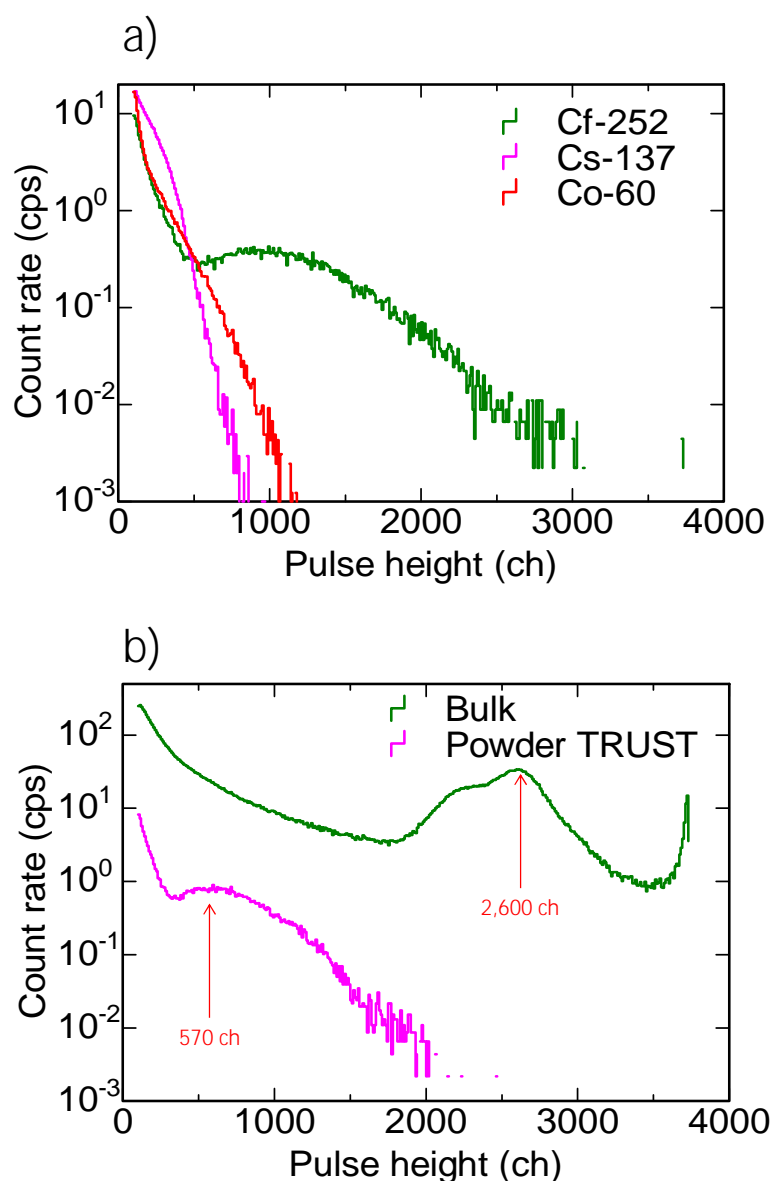


図 2 粉末 Li ガラス透明コンポジット中性子シンチレータで得られた a)信号波高分布および b)バルク Li ガラスシンチレータとの比較

以上、成形が容易で、自由度の高い粉末混合透明コンポジット中性子シンチレータの製造方法を見出し、大判・高効率中性子シンチレータの実現に向けた見通しが得られたと言える。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Watanabe Kenichi, Minniti Triestino, Sato Hirotaka, Tremsin Anton S., Kockelmann Winfried, Dalglish Robert, Kiyonagi Yoshiaki	4. 巻 944
2. 論文標題 Cross-sectional imaging of quenched region in a steel rod using energy-resolved neutron tomography	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment	6. 最初と最後の頁 162532 ~ 162532
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nima.2019.162532	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Ishikawa Akihisa, Yamazaki Atsushi, Watanabe Kenichi, Yoshihashi Sachiko, Uritani Akira, Sakurai Yoshinori, Tanaka Hiroki, Ogawara Ryo, Suda Mitsuru, Hamano Tsuyoshi	4. 巻 32
2. 論文標題 Development of Optical-fiber-based Neutron Detector Using Li-glass Scintillator for an Intense Neutron Field	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Sensors and Materials	6. 最初と最後の頁 1489 ~ 1489
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.18494/SAM.2020.2748	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Watanabe Kenichi, Mitsuboshi Natsumi, Ishikawa Akihisa, Yamazaki Atsushi, Yoshihashi Sachiko, Uritani Akira, Kawaguchi Noriaki, Yanagida Takayuki, Fukuda Kentaro	4. 巻 in press
2. 論文標題 Basic study on a LiF-Eu:CaF ₂ mixed powder neutron scintillator	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment	6. 最初と最後の頁 in press
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nima.2018.09.079	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Watanabe Kenichi, Yoshihashi Sachiko, Ishikawa Akihisa, Honda Shogo, Yamazaki Atsushi, Tsurita Yukio, Uritani Akira, Tsuchida Kazuki, Kiyonagi Yoshiaki	4. 巻 168
2. 論文標題 First experimental verification of the neutron field of Nagoya University Accelerator-driven neutron source for boron neutron capture therapy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Radiation and Isotopes	6. 最初と最後の頁 109553 ~ 109553
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apradiso.2020.109553	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ishikawa Akihisa, Yamazaki Atsushi, Watanabe Kenichi, Yoshihashi Sachiko, Uritani Akira, Tsurita Yukio, Tsuchida Kazuki, Kiyonagi Yoshiaki	4. 巻 133
2. 論文標題 A comparison between simulation and experimental results for depth profile of ⁶ Li reaction rate in a water phantom of BNCT using a small ⁶ Li-based scintillator neutron detector with an optical fiber	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Radiation Measurements	6. 最初と最後の頁 106270 ~ 106270
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.radmeas.2020.106270	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Watanabe Kenichi, Matsumoto Kio, Unitani Akira, Hitomi Keitaro, Nogami Mitsuhiro, Kockelmann Winfried	4. 巻 32
2. 論文標題 Crystalline Characterization of TlBr Semiconductor Detectors Using Wavelength-resolved Neutron Imaging	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Sensors and Materials	6. 最初と最後の頁 1435 ~ 1435
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.18494/SAM.2020.2744	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Akihisa ISHIKAWA, Atsushi YAMAZAKI, Kenichi WATANABE, Sachiko YOSHIHASHI, Akira URITANI, Yukio TSURITA, Kazuki TSUCHIDA, Yoshiaki KIYANAGI
2. 発表標題 Experimental Evaluation of Thermal Neutron Distribution in Water Phantom in BNCT Irradiation Field Using an Optical Fiber-Based Neutron Detector
3. 学会等名 The 19th International Conference on Solid State Dosimetry (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kenichi Watanabe, Akihisa Ishikawa, Yuho Hirata, Atsushi Yamazaki, Sachiko Yoshihashi, Akira Uritani
2. 発表標題 Response Evaluation of LiF-CsI Mixed Powder Neutron Scintillators
3. 学会等名 The 19th International Conference on Solid State Dosimetry (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石川諒尚, 山崎淳, 渡辺賢一, 吉橋幸子, 瓜谷章
2. 発表標題 新規中性子検出器開発に向けた混合粉末シンチレータに関する基礎研究
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Akihisa ISHIKAWA, Atsushi YAMAZAKI, Kenichi WATANABE, Sachiko YOSHIHASHI, Akira URITANI
2. 発表標題 Basic Study on Scintillation Properties of Mixed Powder Neutron Scintillators
3. 学会等名 IEEE NSS-MIC 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石川諒尚, 山崎淳, 渡辺賢一, 吉橋幸子, 瓜谷章
2. 発表標題 光ファイバ型中性子検出器の計数率特性
3. 学会等名 第15回次世代先端光科学研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kenichi Watanabe, Yoshinori Shiota, Shinsuke Nishiura, Hiroshi Arata, Yoshiaki Kiyonagi
2. 発表標題 Study on non-destructive inspection of HIP diffusion bonding interface based on energy-resolved neutron imaging
3. 学会等名 AOCNS2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Watanabe, N. Mitsuboshi, A. Ishikawa, A. Yamazaki, S. Yoshihashi, A. Uritani, N. Kawaguchi, T. Yanagida
2. 発表標題 Basic study on a LiF-Eu:CaF ₂ mixed power neutron scintillator
3. 学会等名 2018 Symposium on Radiation Measurements and Applications (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Watanabe, M. Kataoka, N. Mitsuboshi, A. Yamazaki, S. Yoshihashi, A. Uritani, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Ikeda, K. Fukuda
2. 発表標題 Transparent mixed powder neutron scintillator
3. 学会等名 IEEE Nuclear Science Symposium 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	山崎 淳 (Yamazaki Atsushi) (10436537)	名古屋大学・工学研究科・助教 (13901)	
研究分担者	柳田 健之 (Yanagida Takayuki) (20517669)	奈良先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授 (14603)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------