

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 20 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630426

研究課題名(和文) 超放射を利用したサブナノ秒超高速シンチレータ開発

研究課題名(英文) Development of subnanosecond scintillators using superradiance

研究代表者

浅井 圭介 (Asai, Keisuke)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：60231859

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、超放射を利用することにより、サブナノ秒の減衰時定数を持ちながら、なおかつ高効率な発光を示すシンチレータ材料の開発を目指した。具体的には、既に光励起にて超放射が観測されているテトラセンを用い、その単結晶を育成してシンチレータとした。短パルス電子線励起によるシンチレーション時間プロファイル測定の結果、テトラセン結晶のシンチレーションの減衰時定数は数ナノ秒であり、サブナノ秒という目標は達成されなかったものの、非常に高速な応答の達成に成功した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we aim at developing fast scintillation materials having subnanosecond decay time constant of scintillation using superradiance. We have chosen tetracene as a candidate compound, for which superradiance has been observed under pulsed laser irradiation. We have grown single crystals of tetracene with evaporation method. Temporal profiles of scintillation were measured using a pulsed electron beam as an excitation source. The observed decay time constant of the scintillation of tetracene was on the order of nanoseconds. Unfortunately, subnanosecond decay time constant has not been achieved, fast scintillation was achieved using tetracene.

研究分野：放射線物理化学

キーワード：超放射 サブナノ秒 減衰時定数 電子

1. 研究開始当初の背景

超放射とは、Dicke により 1954 年に提示された概念であり (R.H. Dicke, Phys. Rev., 1954)、複数の分子 (原著論文では原子) に広がるコヒーレントな励起状態からの発光では、その放射寿命が劇的に短縮されるという理論的予見であった。その後、超放射は、色素会合体を初めとする多くの物質系で観測されてきた。

超放射の特徴は、次の 2 点にまとめられる。

(1) 一光子の吸収に対応する励起状態が、複数の分子にコヒーレントに広がる場合、その分子数に応じて放射寿命が短くなる。

(2) (1) の状態の生じうる材料について、励起密度が大きくなると、それに伴って、さらに放射寿命が短くなる。

申請者は、この特徴が、シンチレータ材料開発に利用できるかと着想した。即ち、コヒーレンスの保たれる分子数 (コヒーレント長) の大きい系では、発光寿命の非常に短い材料が開発可能である。さらに、このような系をシンチレータとして利用した場合、特徴 (2) では、励起密度 (あるいは LET) に応じた発光寿命が観測されることとなり、重粒子線や中性子の検出における選択性を生じさせることが可能となる。このような観点から、超放射を用いたシンチレータ材料作製を試みる。

本研究の特長は、超放射という発光機構を、シンチレータ材料開発において利用する点である。通常の発光機構との比較を図 1 に示す。コヒーレントな自発放出過程という発光機構を、シンチレータ開発に導入する点が、本研究の斬新性・チャレンジ性の中心である。現在までに、放射線励起により、コヒーレントな励起状態が生じたとする報告は存在しない。また、放射線励起により、レーザー励起の場合と同様のコヒーレントな励起状態が生成することは、必ずしも自明ではない。これらの不明点があるにも拘わらず、本研究が成功した場合には、飛躍的な応答速度の向上が実現すると期待される。

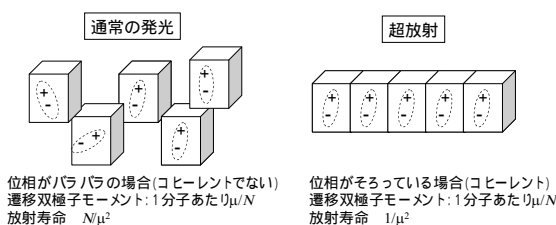


図 1 超放射の模式図

なお、本研究の最終的な目的は下記のものである。発光材料における蛍光の減衰寿命は、通常、放射 (発光による励起状態の減衰) と無放射 (発光せずに減衰) の 2 つの過程による減衰挙動を反映したものである。多くの場合、短寿命発光は顕著な無放射過程に起因する。この事情は、発光材料の一種であるシン

チレータにおいて当てはまる。即ち、短い発光寿命と大きな発光量とが望まれるシンチレータでは、この 2 つの性能指標にはトレードオフが存在することとなる。

本研究が成功した場合、シンチレータの放射寿命の大幅な短縮が可能となる。これは、上記のトレードオフが克服され、短い発光寿命と大きな発光量とが両立することを意味する。本研究では色素会合体などを主要な研究対象とし、光励起下でのその発光寿命は数十~数百ピコ秒である。同様の発光寿命がシンチレーションでも期待されるため、サブナノ秒の寿命を持ちながら発光量の大きなシンチレータ材料開発が可能となる。これは、シンチレーション検出器を用いた時間分解測定において、時間分解能の飛躍的向上につながる。さらに、励起密度に応じた発光寿命の変化が観測されれば、重粒子線や中性子によるイベントを検出信号波形に応じて弁別可能となり、関連分野への波及効果は非常に大きい。

2. 研究の目的

研究期間内に明らかにし、達成することは、次の 2 点である。

(1) 放射線励起による超放射の観測

光励起の場合と放射線励起の場合、および低 LET と高 LET の場合について、それぞれ発光特性を比較し、放射線励起で生じる超放射の特徴と励起密度依存性を抽出する。

(2) サブナノ秒の発光寿命を持つ超高速シンチレータ開発

超放射による発光に基づくシンチレータ材料を、色素会合体単結晶という形で開発する。既往の色素会合体の発光特性に関する研究では、発光寿命として数十~数百ピコ秒が報告されている例が多い。そのため、サブナノ秒のシンチレーション寿命が予見される。

3. 研究の方法

これまでに、光励起下での超放射の報告のあるテトラセンを対象として研究を行った。その単結晶の作製手順を以下に示す。

(1) 50 ml スクリュー管瓶にて、テトラセン粉末を DMF 溶媒中に溶かし飽和溶液を作製、アルミ箔で全体を覆った。

(2) ウォーターバスで 40 から 5 /hr で 10 まで徐冷し、10 で一晩保持した。

(3) 50 ml スクリュー管瓶にて、テトラセン粉末をトルエン溶媒中に溶かし、飽和溶液を作製、アルミ箔で全体を覆った。

(4) (2) の手順で得られた単結晶を取り出し、(3) の飽和溶液中に入れ、(3) の手順と同様にウォーターバスで 40 から 5 /hr で 10 まで徐冷し、10 で一晩保持することにより結晶成長させた。

溶液中における単結晶は溶媒選択により結晶の形状が異なり、以前の実験で DMF 溶媒により作製した単結晶は針状、トルエン溶媒により作製した単結晶は膜状に析出した。測定に際しては、サイズの大きい単結晶が望ましいため、針状の単結晶を種結晶として、太くする目的で、トルエン溶液中で結晶成長させた。

作製した単結晶について電子線励起シンチレーションプロファイルを測定した。測定は東京大学大学院工学研究科付属原子力工学研究施設の電子線形加速器を用いた。実験装置の概略図を図 2 に示す。

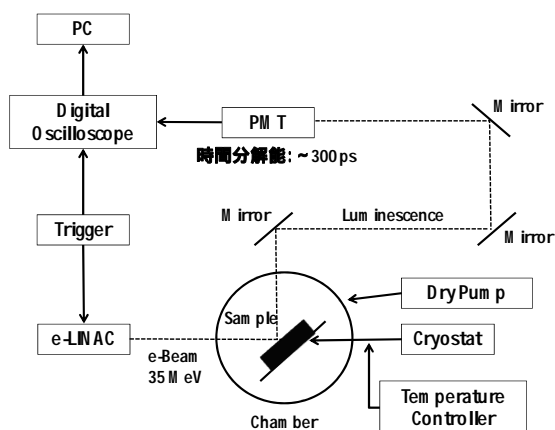


図 2 電子線形加速器を用いたシンチレーション時間プロファイル測定系の模式図

電子線加速器 (e-LINAC) を用いてパルス幅約 30ps (含む jitter) に圧縮した約 60pC のパルス電子線を励起源とし、そこから発射された 35MeV の電子線により発光が起こった。この電子線誘起発光を立ち上がり時間約 300ps の光電子増倍管 (浜松ホトニクス社の R3809U-50) で計測した。光電子増倍管からの信号は、帯域 1.5GHz のデジタルオシロスコープ (HP 社製, infinium 54845-A) で直接保存した。

4. 研究成果

テトラセン結晶の蛍光スペクトルを図 3 に示す。既報の蛍光スペクトルと比較しても、エキシマー発光を示唆するピークが観測されなかったため、今回作製した単結晶では、エキシマー発光は蛍光に寄与していないことが分かる。

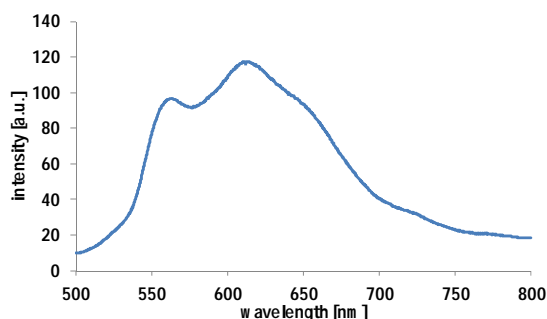


図 3 テトラセン結晶の蛍光スペクトル

次に、テトラセンの電子線励起シンチレーション時間プロファイルを図 4 に示す。

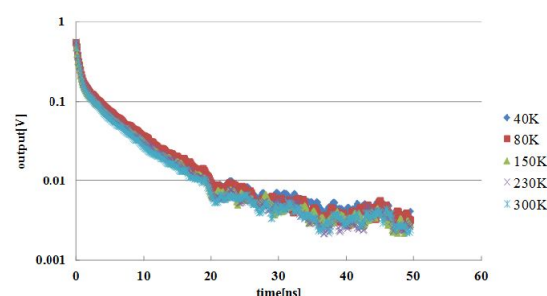


図 4 テトラセンの電子線励起シンチレーション時間プロファイル

ナノ秒程度の非常に高速な成分と、数ナノ秒の減衰時定数と見積もられる成分とが観測された。ここでは、電子線のエネルギーが 35 MeV と非常に高く、物質中ではチェレンコフ光が発生する条件での実験となっている。そのため、高速成分 (特に 5 ns 以下のデータ) については、チェレンコフ光の混入による影響が不可避であると判断されるため、5 ~ 50 ns の範囲で単一指数関数的な減衰挙動に基づいてフィッティングを行い、減衰時定数を求めた。テトラセンの各温度における減衰時定数を以下の表 1 に示す。

表 1 各温度での減衰時定数

温度 [K]	減衰時定数 [ns]
40	7.1
80	6.8
150	5.7
230	5.6
300	5.9

ナノ秒程度の非常に高速な減衰時定数が、どの温度でも得られた。光励起による蛍光の減衰時定数の既報のデータでは、蒸着法により作製した固体薄膜多結晶では 55 ns、トルエン溶液中でのテトラセン単量体では 4.2 ns であった。したがって今回作製した単結晶は単量体と似た発光挙動を示すと言える。現状では残念ながら、サブナノ秒の減衰時定数を

得ることはできず、また超放射であることを示す明確なデータも得られなかったものの、高速な減衰挙動を示す材料開発の有力な指針となりうることは確認されたといえる。

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)

[雑誌論文](計2件)

Yuki Araya, Masanori Koshimizu, Rie Haruki, Fumihiko Nishikido, Shunji Kishimoto and Keisuke Asai, "Enhanced Detection Efficiency of Plastic Scintillators upon Incorporation of Zirconia Nanoparticles", *Sensors and Materials*, 27 (2015) 255-261. 査読有
<http://myukk.org/SM1063.html>

Yan Sun, Masanori Koshimizu, Natsuna Yahaba, Fumihiko Nishikido, Shunji Kishimoto, Rie Haruki and Keisuke Asai, "High-energy X-ray detection by hafnium-doped organic-inorganic hybrid scintillators prepared by sol-gel method", *Appl. Phys. Lett.*, 104 (2014) 174104. 査読有
doi: 10.1063/1.4875025

[学会発表](計7件)

平田 智之、野口 多紀郎、相田 努、高見 誠一、阿尻 雅文、越水 正典、藤本 裕、柳田 健之、錦戸 文彦、春木 理恵、岸本 俊二、浅井 圭介、プラスチックシンチレータへの添加を目的とした有機修飾ハフニアナノ粒子の作製、化学工学会第80年会、平成27年3月20日~21日、芝浦工業大学(東京)

小田切 泰海、越水 正典、藤本 裕、柳田 健之、浅井 圭介、中性子検出用 Li 含有型プラスチックシンチレータの開発、第62回応用物理学会春季学術講演会、平成27年3月12日、東海大学湘南平塚キャンパス(平塚)

平田 智之、野口 多紀郎、越水 正典、岸本 俊二、春木 理恵、錦戸 文彦、柳田 健之、藤本 裕、相田 努、高見 誠一、阿尻 雅文、浅井 圭介、ハフニアナノ粒子含有プラスチックシンチレータのX線検出特性、第62回応用物理学会春季学術講演会、平成27年3月12日、東海大学湘南平塚キャンパス(平塚)

近野 唯、越水 正典、錦戸 文彦、春木 理恵、岸本 俊二、柳田 健之、藤本 裕、孫 彦、浅井 圭介、Hf ナノ粒子含有プラスチックシンチレータの高エネルギーX線検出特性評価、第62回応用物理学会春季学術講演会、平

成27年3月12日、東海大学湘南平塚キャンパス(平塚)

Yasumi Odagiri, Masanori Koshimizu, Yutaka Fujimoto, Takayuki Yanagida, Keisuke Asai, Development of Li-loaded plastic scintillators for neutron detection, The 10th International Workshop on Ionizing Radiation Monitoring, 平成27年3月1日、Technol Convention Center - Hosoda Hall (大洗)

Yui Konno, Masanori Koshimizu, Fumihiko Nishikido, Rie Haruki, Shunji Kishimoto, Takayuki Yanagida, Yutaka Fujimoto, Yan Sun, Keisuke Asai, High-energy X-ray detection capability of Hf-nanoparticle-loaded plastic scintillators synthesized by sol-gel method, The 10th International Workshop on Ionizing Radiation Monitoring, 平成27年3月1日、Technol Convention Center - Hosoda Hall (大洗)

Tomoyuki Hirata, Takio Noguchi, Masanori Koshimizu, Shunji Kishimoto, Rie Haruki, Fumihiko Nishikido, Takayuki Yanagida, Yutaka Fujimoto, Tsutomu Aida, Seiichi Takami, Tadafumi Adschiri, Keisuke Asai, X-Ray detection properties of plastic scintillators loaded with supercritical water synthesized HfO2 nanoparticles, The 10th International Workshop on Ionizing Radiation Monitoring, 平成27年3月1日、Technol Convention Center - Hosoda Hall (大洗)

[その他]

ホームページ等

<http://www.qpc.che.tohoku.ac.jp/~qpc/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

浅井 圭介 (ASAI, KEISUKE)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：60231859

(2) 研究分担者

越水 正典 (KOSHIMIZU, MASANORI)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：40374962

(3) 連携研究者

()

研究者番号：