

GPS 焼結体に対する種々の添加物探索とその α 線に対するシンチレーション特性

Search of various additives for the GPS sintered compacts and their scintillation properties for alpha particles

北大院・工¹、日立化成² °皆川 萌¹、金子 純一¹、坪田 陽一¹、樋口 幹雄¹
 西方 真美¹、石橋 浩之¹

Hokkaido Univ.¹, Hitachi Chemical Co., Ltd² °Moyuru Minagawa¹, Junichi H. Kaneko¹, Youichi Tsubota¹,
 Mikio Higuchi¹, Mami Nishikata¹, Hiroyuki Ishibashi²

E-mail: moyuru-minagawa@eng.hokudai.ac.jp

1. 緒言 福島における復旧・除染作業では大量の ^{137}Cs 等 $\beta \cdot \gamma$ 線放出核種が存在する環境において、現場で簡便に核燃料起因の α 線放出核種を検出する装置が求められている。これに答えるため、北海道大学、日立化成工業、JAEA、名古屋大学の 4 機関が協力し、 $\beta \cdot \gamma$ 線の影響を受けにくく、天然に存在するラドン子孫核種からの α 線をエネルギー弁別により識別する装置の開発を進めている。西方らは大発光量と優れたエネルギー分解能、耐久性を持つ $\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7:\text{Ce}$ (GPS:Ce) を SiO_2 をセルフフラックスとして用い、結晶粒径 $100\mu\text{m}$ 程度の焼結体の合成に成功した^[1]。同試料を厚さ数十 μm まで研磨しプレート化することで、結晶粒界でのシンチレーション光の散乱を抑え、単結晶 GPS:Ce 比 82% の集光強度、13% のエネルギー分解能を達成した。しかし結晶粒径 $100\mu\text{m}$ 程度の GPS:Ce 焼結体を合成するためには、一次焼結後に $40\mu\text{m}$ 以下まで粉碎・分級した後再度焼結を行う必要がある。この手間がかなりの負荷となるため、本研究では合成手順の簡素化を目指し、他の添加物の探索を行った。具体的には Eu, Er, Dy, Pr, Tb, Ti を添加し、粒成長の程度と α 線に対するシンチレーション特性を評価した。

2. 実験 原材料として Gd_2O_3 , SiO_2 , CeO_2 粉末を $\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7:\text{Ce}$ (Ce 濃度=2.5%) の組成に Eu_2O_3 , Er_2O_3 , Dy_2O_3 , Pr_6O_{11} , Tb_4O_7 , TiO_2 (濃度= 0.5, 1.0, 2.5 %) を加え混合した。混合粉をペレット状に成形後、大気中で 1670°C 100 時間焼結した。Eu, Er, Dy, Pr, Tb ドープ GPS 焼結体において粒成長は見られなかった。Ti ドープ GPS:Ce 焼結体は結晶粒径 $100\mu\text{m}$ 程度まで粒成長した。図 1a, b に GPS 焼結体と Ti 1.0% ドープ GPS:Ce 焼結体の表面写真を示す。シンチレーション特性を評価するため、焼結体をエポキシで含浸させた後、3mm 厚高透過ガラスに接着させ、焼結体厚 $90\mu\text{m}$ 程度まで研磨を施した。図 1c に Ti 1.0% ドープ GPS:Ce プレートの光学写真を示す。 α 線応答測定には ^{241}Am からの $5.5\text{MeV}\alpha$ 線を用い、比較試料として単結晶 GPS:Ce (Ce 濃度 = 2.5 %) を使用した。

3. 結果 図 2 に Ti 0.5, 1.0, 2.5% ドープ GPS:Ce プレートと単結晶 GPS:Ce に対する α 線応答測定例を示す。集光強度は Ti 1.0% ドープ GPS:Ce プレートで最大となり、単結晶 GPS:Ce 比 41.9%、エネルギー分解能 36.4 % を得た。Ti をフラックスとして添加することにより一度の焼結で単結晶 GPS:Ce の 40% 程度の集光強度をもつプレート作製に成功した。性能的には SiO_2 を使用したセルフフラックス法に及ばないものの、一回の焼結で上述した性能を達成したことから、 α 線に対するエネルギー分解能を要求しないサーベーマータ等の用途では合成方法の一選択肢となりうると考えている。

Reference

[1] M. Nishikata, et al. 2013 IEEE Nuclear Science Symposium, NPO1-23

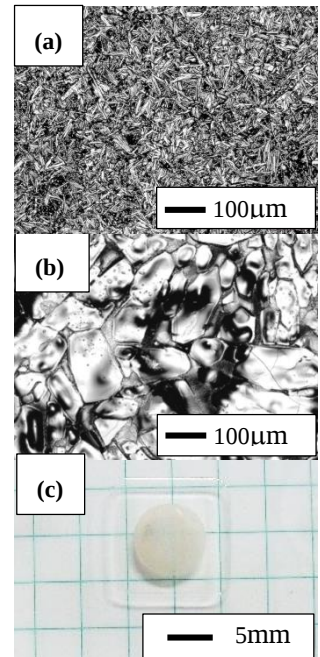


図 1 (a)GPS 焼結体、(b)Ti 1.0% ドープ GPS:Ce 焼結体、(c)Ti 1.0 % ドープ GPS:Ce プレート

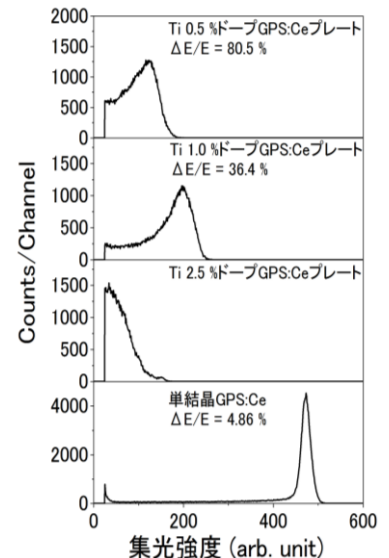


図 2 Ti 0.5, 1.0, 2.5 % ドープ GPS:Ce プレート単結晶 GPS:Ce に対する α 線応答測定例