

2025 年 9 月 5 日

報道関係者各位

国立大学法人筑波大学

国立大学法人東北大学

放射線の種類で変化する Eu 添加 CaF_2 結晶の発光特性を発見

シンチレータは放射線のエネルギーを光に変換する物質です。その一つである、Eu（ユウロピウム）添加 CaF_2 結晶に α 線を照射すると、X 線を照射したときよりも長い波長の光が多く発生することを世界で初めて発見しました。これにより、波長を使って放射線の種類を識別できる可能性があります。

シンチレータは放射線のエネルギーを光へ変換する物質で、医療やセキュリティなど幅広い分野で利用されています。中でも Eu（ユウロピウム）添加 CaF_2 （フッ化カルシウム）結晶は、高い発光量（約 2 万光子/MeV）を示し、優れた光学的透明性と化学的安定性を備えたシンチレータです。

これまでシンチレータの発光波長と放射線の種類は関係がないと考えられてきましたが、本研究では、 CaF_2 結晶に対してユウロピウム（Eu）の添加濃度を変えたものを複数作製し、 α 線と X 線をそれぞれ照射して発光の色（波長）と強さを詳しく調べました。その結果、 Eu^{2+} による波長約 420 nm の発光と、 Eu^{3+} による波長 590–695 nm の発光の比が、照射する放射線の種類によって異なることを発見しました。また、同一試料において Eu^{2+} 発光を一定とした場合、 Eu^{3+} 発光は、 α 線照射時に X 線照射時の約 2 倍となることが確認されました。すなわち、光の色の違いにより放射線の種類を識別できる可能性を示唆しており、例えば、原子力施設の解体現場など複雑な環境での線量測定に応用できる可能性があると考えられます。

本研究成果は、新しい粒子識別法および次世代の放射線検出技術の開発につながると期待されます。今後は、レンズを用いた光学系との組み合わせにより、放射線が通った飛跡をカラーで記録する技術を開発し、 α 線や X 線などの粒子種を色で識別できる手法の確立を目指します。

研究代表者

筑波大学数理物質系

飯田 崇史 助教

東北大学金属材料研究所

吉野 将生 特任准教授

研究の背景

シンチレータは、高エネルギー放射線を紫外から可視光へと変換する材料であり、基礎研究から医療診断、環境放射線監視、セキュリティなど幅広い分野で利用されています。その中でも Eu (ユウロピウム) 添加 CaF_2 (フッ化カルシウム) 結晶^{注1)} は、高い発光効率 (約 2 万光子/MeV) および優れた光学透明性と化学的安定性を備え、さらに高純度かつ大型単結晶の合成が可能であることから、ダークマター探索など希少事象実験の有望候補とされてきました。しかし、こういった実験で一般的に用いられるパルス波形弁別法では、放射線粒子種の識別性能が十分ではなく、実際の利用には制限がありました。本研究グループはこれまでに、波形ではなく発光波長に基づく新しい粒子識別法を提案し、 LiCaI:Eu (Eu 添加ヨウ化リチウム-ヨウ化カルシウム) 結晶でその有効性を実証しました。本研究では、これまでの知見を基に Eu 濃度を変化させた Eu 添加 CaF_2 結晶を用い、X 線および α 線照射下における発光特性を詳細に調べました。

研究内容と成果

本研究では、純度 99% の CaF_2 および EuF_3 粉末を、 $(\text{Ca}_{1-x}\text{Eu}_x)\text{F}_2$ ($x=0\sim0.05$) の組成で、内径 26 mm、高さ 87 mm の円筒形カーボンるつぼに充填し、高周波誘導加熱により溶融させた後、 CF_4 と高純度 Ar (3:7) の混合雰囲気下で結晶を成長させ、十分に混合した溶融物を徐冷することで、Eu 濃度 0~5% の Eu 添加 CaF_2 単結晶を得ました。得られた結晶は所定の形状に加工し、鏡面研磨を施して評価試料としました (参考図上)。

シンチレーション測定のため、Czerny-Turner 型分光器 (Shamrock163) と科学用 CCD カメラ (iDus420) を組み合わせたシステムを構築し、X 線照射にはタングステンターゲット (40 kV, 30 mA)、 α 線照射には 3 MBq の密封²⁴¹Am 線源を使用しました。試料からの発光は光ファイバーで導出し、分光、記録しました。その結果、 CaF_2 無添加試料では発光が弱くノイズが大きいものの、280 nm 付近に広いバンドが確認され、既報と一致しました。また、Eu 添加試料では、 Eu^{2+} による 424 nm 付近の発光と、 Eu^{3+} による 590-695 nm の発光が観測されました。さらに Eu 濃度が高まると、 Eu^{3+} 発光の比率が増加することを確認しました。同一試料においても、X 線励起と α 線励起では $\text{Eu}^{3+}/\text{Eu}^{2+}$ 発光強度比が大きく異なり、例えば Eu 3% 試料では、 Eu^{2+} 発光を基準とした場合、 Eu^{3+} 発光は α 線照射時に X 線照射時の約 2 倍となりました (参考図左下)。この 2 倍という値は、Eu の濃度が 1% 以上の場合、Eu 濃度に依らず一定であること (参考図右下) や、結晶の厚みを変えても変わらないことが分かりました。

今回の実験で得られた $\text{Eu}^{3+}/\text{Eu}^{2+}$ ^{注2)} 発光強度の違いは、放射線種による電離密度の違いに起因する可能性が考えられますが、詳細な機構は未解明であり今後の検討課題として残されています。

今後の展開

本研究により、 $\text{Eu}^{3+}/\text{Eu}^{2+}$ 発光強度比が入射放射線の種類を識別するスペクトルマーカーとなり得ることを初めて示しました。これは、シンチレーション検出における発光特性に基づく放射線識別の新しい手法として有望で、原子力施設の廃止措置現場や放射線医療の現場など複雑な環境での線量分布測定に応用が期待されます。今後は、レンズを組み合わせた光学系を導入することで、放射線飛跡を事象ごとにカラーで記録し、 α 線や β 線などの粒子種を色により識別する新しい検出技術の構築を目指します。さらに、他のシンチレータ結晶に対する同様の測定や新規材料の探索、広い dE/dX 領域^{注3)} をカバーする重イオン照射実験、シンチレーション波形や α/β 光収率比^{注4)} の解析等を通じて、発光機構の解明を進めていきます。

参考図

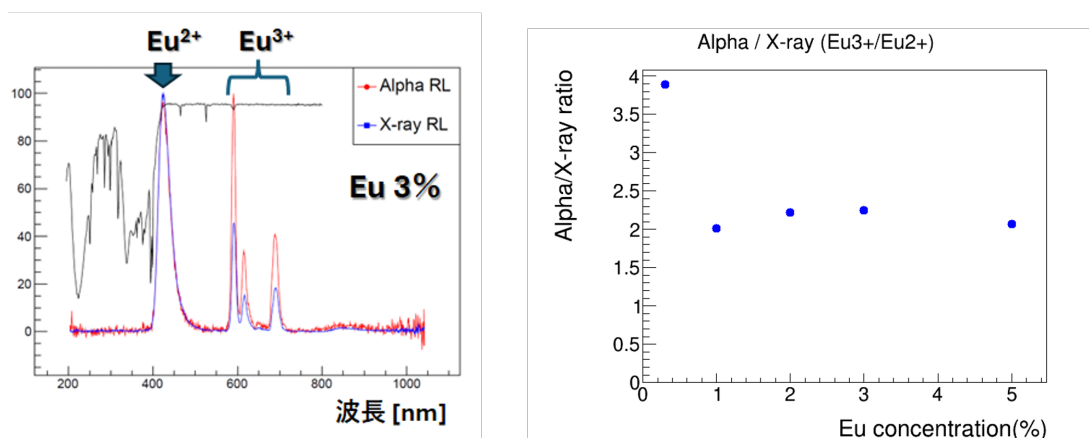
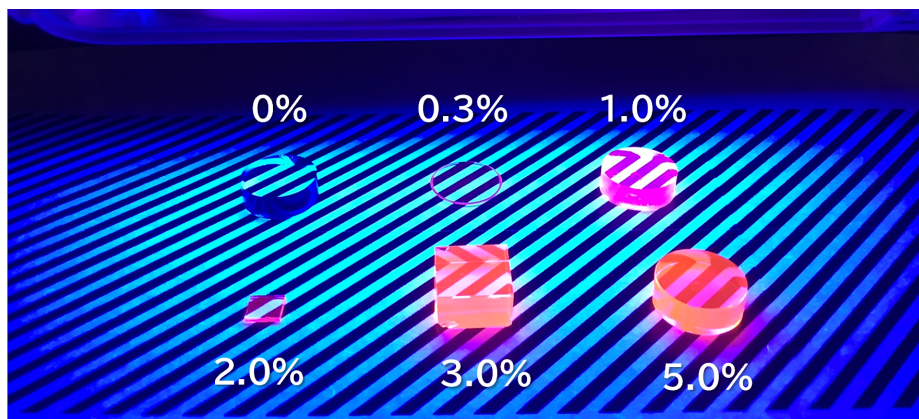


図 本研究の概要

(上) 本研究に用いた Eu 添加 CaF₂ 結晶。数字は Eu 濃度を示す。UV ライト照射下で、Eu の発光が確認できる。Eu 濃度が低い場合、結晶は Eu²⁺ から紫色光を発し、Eu 濃度が高い場合、Eu³⁺ からの赤色発光が優勢となる。サイズは参考として Eu3% の結晶が 11.5 mm 角、6.5 mm 厚であるが、Eu³⁺/Eu²⁺ の比を取るため結晶の形状やサイズは影響しないと考えられる。

(左下) Eu 添加 CaF₂ (濃度 3%) 結晶の発光スペクトル測定結果。赤線は α 粒子照射下のスペクトル、青線は X 線照射下のスペクトル、黒線は結晶の光学的透過率を示す。

(右下) Eu 濃度 (横軸) に対する α 線照射下と X 線照射下における Eu³⁺/Eu²⁺ 発光強度比の比。すなわち縦軸は、Eu²⁺ の高さをそろえた場合の Eu³⁺ の発光強度の α 線/X 線の割合の違いを表す。 α 線による Eu³⁺ 発光が X 線の 2 倍大きいという結果は、Eu 濃度が 1% を超えるとほぼ一定に保たれている。

用語解説

注 1) CaF₂ 結晶

フッ化カルシウム単結晶。Eu を発光中心として添加することでシンチレータとして利用される。

注 2) Eu²⁺, Eu³⁺

CaF₂ 結晶内に存在する Eu 原子のイオン結合状態。Eu²⁺ は二価、Eu³⁺ は三価のイオンを指す。

注 3) dE/dX

放射線が単位距離当たりに落とすエネルギーのことで、放射線の種類や粒子に依存する。

注 4) α/β 光収率比

シンチレータにおいて、 α 線と β 線では同じエネルギーでも発光量が異なり、その比率を表す。

研究資金

本研究は、科研費による研究プロジェクト（23K17685, 25K22021）および、コニカミノルタ画像科学奨励賞（放射線粒子の色を見る！革新的シンチレーション検出器の開発）の一環として実施されました。

掲載論文

【題 名】 Emission Characteristics of Eu^{2+} and Eu^{3+} under X-Ray and Alpha Irradiation in Eu-Doped CaF_2 Crystals.

(Eu 添加 CaF_2 結晶における X 線, α 線照射時の Eu^{2+} , Eu^{3+} 発光特性)

【著者名】 Takashi Iida, Masao Yoshino, Kyoung Jin Kim, and Kei Kamada

【掲載誌】 *Scientific Reports*

【掲載日】 2025 年 9 月 1 日

【DOI】 10.1038/s41598-025-17570-5

問い合わせ先

【研究に関すること】

飯田 崇史（いいた たかし）

筑波大学 数理物質系 助教

URL: <https://hep-www.px.tsukuba.ac.jp/>

【取材・報道に関すること】

筑波大学 広報局

TEL: 029-853-2040

E-mail: kohositu@un.tsukuba.ac.jp

東北大学 金属材料研究所 情報企画室広報班

TEL: 022-215-2144

E-mail: press.imr@grp.tohoku.ac.jp