

TSSG 法による GPS:Ce 単結晶シンチレータの合成とそのシンチレーション特性

Growth of a GPS:Ce single crystal scintillator by a TSSG method and its scintillation properties
 北大院工¹、日立化成² °坪田陽一¹、金子純一¹、樋口幹雄¹、石橋浩之²、西山修輔¹

嶋岡毅紘¹、東井宏平¹

Hokkaido Univ.¹, Hitachi Chemical² °Youichi Tsubota¹, Junichi H. Kaneko¹, Mikio Higuchi¹,
 Hiroyuki Ishibashi², Shusuke Nishiyama¹, Takehiro Shimaoka¹, Kouhei Toui¹

E-mail: y_tsubota@eng.hokudai.ac.jp

緒言: 核医学診断装置用途や地下資源探索の要請から、大発光量、高検出効率、高速減衰の無機シンチレータが求められている。我々は現在 PET 用シンチレータとして使用されている $\text{Gd}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ (GSO:Ce)と元素組成比の異なり、より発光量が多い酸化物である $\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7:\text{Ce}$ (GPS:Ce)の開発を進めている。我々は SPECT 装置や地下資源探査への応用を目指した GPS:Ce の大型単結晶合成のため、溶融挙動の検証^[1]と Top Seeded Solution Growth (TSSG) 法による単結晶合成を行ってきた^[2]。本発表では低 Ce 濃度の GPS:Ce 単結晶を TSSG 法で合成した結果とアニールによるシンチレーション特性の改善について報告する。

実験: Gd_2O_3 、 SiO_2 (純度 5N)、 CeO_2 (純度 4N)の粉末を $\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7:\text{Ce}$ (Ce=2.5 mol%)の組成で混合した。アパタイト相の晶出抑制のため原料中の SiO_2 の比率を量論組成より 1.3 mol% 過剰とした。混合した原料を大気中 1650℃で 6 時間焼結した後、酸化物単結晶引き上げ装置 (TA-0261; テクノサーチ)を用いて合成を行った。種結晶には GPS:Ce 単結晶を用い、引き上げ速度は 0.3-0.5mm/h とした。るつぼからの SiO_2 蒸発抑制のため、窒素に微量の酸素を添加した雰囲気を選択した。合成後の結晶全体に黄色い着色が見られたため管状炉を用いて窒素雰囲気中 1200℃で 12 時間のアニールを行った。同試料に対して光励起、蛍光スペクトル測定、透過スペクトル測定、 ^{137}Cs からの 662keV γ 線に対する応答測定を行った。

実験結果: TSSG 法により直径 30mm 程度、引き上げ長 40mm 程度の GPS:Ce を得た。引き上げ開始から 30mm 程度までは透明であり、下部には組成的過冷却による白濁が見られた。As Grown 時に見られる黄色い着色は窒素中アニールによりほぼ消失した。合成結晶から 5×5×5 mm 程度の小片を切り出し、全面光学研磨を施した。透過スペクトルの比較により、発光に影響する 400nm 近傍の吸収がアニールにより減少することを確認した。図 1 に 662keV γ 線入射時のパルス波高スペクトルを示す。正確な発光量測定のため光電子増倍管からの信号を直接オシロスコープで記録し、積分したところ GPS:Ce は 市販の NaI:Tl (応用光研、パイレックス透過窓) 比 1.6 倍の発光量を示した。今後は回転数制御による白濁抑制と石油資源探索のための高温特性評価を行っていく。また応用として焼結法により合成した結晶を膜厚 100 μm 程度のプレート状に加工し、位置検出器と組み合わせたアルファ線検出器、中性子検出器開発を進めている。

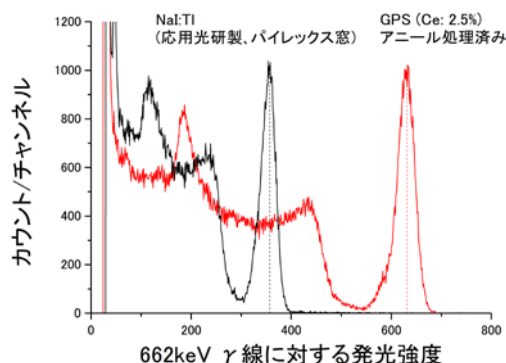


図 1. 662keV γ 線に対する各シンチレータのパルス波高スペクトル測定例。GPS:Ce は実使用に近い条件で NaI:Tl 比 1.6 倍の発光量を示した。

本研究は、(独)科学技術振興機構 (JST) 平成23年度「A-STEPシーズ顕在化タイプ AS2211650C」によって行われたものである。

[1] S. Kawamura, et al., Crystal Growth and Design, Vol. 9, No. 3, 2009

[2] Y. Tsubota, et al., IEEE NSS/MIC conference record pp.1923-1926 (2011)