

(Y, Gd)<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 系単結晶シンチレータの高温環境下での発光特性評価Scintillation properties under high-temperature environment of (Y,Gd)<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Ce single crystal scintillators北大院工<sup>1</sup>、日立化成<sup>2</sup> ○坪田陽一<sup>1</sup>、金子純一<sup>1</sup>、樋口幹雄<sup>1</sup>、石橋浩之<sup>2</sup>、皆川 萌<sup>1</sup>Hokkaido Univ.<sup>1</sup>, Hitachi Chemical<sup>2</sup>, ○Youichi Tsubota<sup>1</sup>, Junichi H. Kaneko<sup>1</sup>, Mikio Higuchi<sup>1</sup>,Hiroyuki Ishibashi<sup>2</sup>, Moyuru Minagawa<sup>1</sup>

E-mail: y\_tsubota@eng.hokudai.ac.jp

1. 結言 石油・ガス井探査では高温環境下での $\gamma$ 線検層が行われ、シンチレーション検出器が用いられている。生産性の観点からは石油の汲み上げを停止せずに測定が可能な小径のプロブが好ましい。そのため冷却装置の省略が可能な高温での発光量減少が少ないシンチレータが要求される。検層用シンチレータとして現在 Gd<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce (GSO) が利用されているが、423K では室温の半分程度まで発光量が低下し、今後の大深度石油探査等への適用は困難である<sup>1</sup>。北海道大学と日立化成では GSO と同様の構成元素でピロケイ酸塩組成を持つ Gd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Ce (GPS) 系単結晶シンチレータの開発を進めており、斜方晶 GPS (Ce=2.5%) が市販の NaI:Tl (4B4、応用光研) を超える発光量を得るに至った<sup>2</sup>。さらに斜方晶 GPS は 573K においても室温での GSO の発光量と比較して 2 倍以上の発光量を有する。同様の希土類ピロケイ酸塩シンチレータとしては Y<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub> の存在が報告されており、GPS より発光量は劣るものの斜方晶構造をとるため高温での発光特性が優れていることが期待された。本発表では斜方晶構造をもつ希土類ピロケイ酸塩の系統的な研究として (Y,Gd)<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 系単結晶の高温環境下における  $\gamma$  線に対する発光特性について報告する。結晶は Top seeded solution growth (TSSG) および Floating Zone(FZ)法で合成し、室温から 573K の範囲で測定を行った。

2. 結晶合成と評価 4N 純度の Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, CeO<sub>2</sub>の粉末を (Y<sub>x</sub>Gd<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Ce (x=0, 0.25, 0.75) の比率で混合し大気中 1700℃で 10 時間焼結した。Ce

濃度は全希土類中 2.0 mol% とした。集光加熱型 FZ

炉を使用し、窒素雰囲気中で成長速度:2mm/h、回

転数:3-5rpm で合成を行った。また RF 加熱型チョ

クラルスキー炉を使用し、(Y<sub>0.5</sub>Gd<sub>0.5</sub>)<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>

(Ce=2.5%) 結晶を TSSG 法により合成した。合成後

の試料に対し、窒素雰囲気中 1200 °C で 12 時間の

アニールを行った。発光特性評価のため結晶の一部から

5×3×1 mm 程度の部分を切り出し、光取り

出し面と対面に光学研磨を施した。同試料を真空

チャンバー内で最大 573K まで加熱し、<sup>137</sup>Cs からの 662 keV  $\gamma$  線に対するスペクトル測定を行った。

シンチレーション光は石英ライトガイドを通じて

光電子増倍管 (H7195、浜松ホトニクス) に導光し、ディレイラインアンプ (460、Ortec)、ストレ

ッチャー (542、Ortec)、マルチチャンネルアナライザ (WE7562、横河電子) によりパルス波高分布を取

得した。比較試料として Ce 濃度 1% の GSO (日立化成) および斜方晶 GPS (Ce=2.5%) を使用した。

## 3. 高温での発光特性評価結果

図 1 に Y-GPS 系シンチレータの室温から 573K までの発光量の温度依

存性を示す。縦軸は GSO の室温における発光量を 100 とした相対値である。GSO と比較して Y-GPS

は全ての温度範囲で高い発光量を示した。室温での発光量比較においては Gd 濃度の上昇とともに

発光量が上昇する傾向にあった。温度上昇に伴う発光量の減少率は Y 濃度が高い Y-GPS ほど低く、

573K より高温では Y-GPS が斜方晶 GPS よりも高い発光量を示す可能性がある。TSSG 法で合成し

た Y50-GPS は室温での発光量が FZ 法で合成した Y75-GPS とほぼ同等である。TSSG 法では FZ 法

と比較して Ce の偏析係数が低いことが予想されるため、今後 Ce 偏析係数の定量が必要になる。

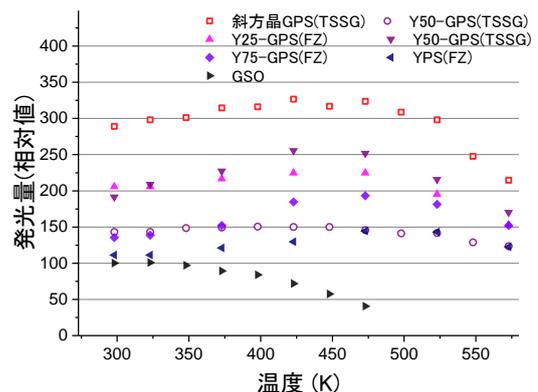


図 1 Y-GPS 系シンチレータの発光量の温度依存性。温度上昇に伴う発光量の減少率は Y 濃度が高いほど低い。

<sup>1</sup>Y. Tsubota, et al., IEEE NSS/MIC conference record pp.1923-1926 (2011).

<sup>2</sup>Y. Tsubota, et al., IEEE NSS/MIC 2013, N4-2.