Cs₂HfCl₆系単結晶シンチレータの開発と特性評価

Growth and properties of Cs₂HfCl₆-based single crystal scintillators 東北大金研¹,東北大 NICHe²,山形大理³,(株) C&A⁴,チェコ物理研⁵ 〇(M1)小玉 翔平¹,黒澤 俊介^{2,3},山路 晃広¹,大橋 雄二¹,鎌田 圭^{2,4},横田 有為², Martin Nikl⁵,吉川彰^{1,2,4},

IMR Tohoku Univ. ¹, NICHe Tohoku Univ. ², Yamagata Univ. ³, C&A corporation ⁴, CAS Phys ⁵

(M1)Shohei Kodma ¹, Shunsuke Kurosawa ^{2,3}, Akihiro Yamaji ¹, Yuji Ohashi ¹, Kei Kamada ^{2,4}

Yuui Yokota ², Martin Nikl ⁵, Akira Yoshikawa ^{1,2,4}

E-mail: s_kodama@imr.tohoku.ac.jp

高い発光量と良好なエネルギー分解能を有するシンチレータ材料として、バンドギャップエネルギーが小さくなる傾向をもつハロゲン化物が注目されており[1]、近年では高性能型なハロゲン化物シンチレータ Ce:LaBr₃[2] (発光量約 61,000 photons/MeV、662 keV のガンマ線に対するエネルギー分解能約 3%) などが開発されている。しかし大半のハロゲン化物材料は潮解性を有しているため、装置や密封フィルム内に存在する微量の水分による潮解ないしは吸湿による白濁を避けることができず、実用時における経年劣化が問題となっている。

そこでわれわれは、潮解性の無い新規ハロゲン化物シンチレータである Cs_2HfCl_6 [3,4]に注目した。 Cs_2HfCl_6 は、発光量 54,000 photons/MeV、エネルギー分解能 3%前後といった優れた特性を有する。また、実効原子番号が 58 と大きく、 $Ce:LaBr_3$ などで見られる内在放射能が存在しないことから、内在バックグラウンドも低く、高感度のガンマ線検出が期待できる。しかし、蛍光寿命が約 4 μ s と比較的長く、高線量空間では正確な検出を行うことができないといった欠点も併せ持つ。 Cs_2HfCl_6 の優れた特性のさらなる向上や蛍光寿命の改善のため、われわれは賦活剤添加に着目した。本研究では希土類元素を添加したときの Cs_2HfCl_6 の発光波長・発光量・蛍光寿命といった発光特性の変化について調査した。

賦活剤として Eu を選択し、undoped-Cs₂HfCl₆単結晶および Eu:Cs₂HfCl₆単結晶を、垂直ブリッジマン法により育成した。さらに粉末 XRD による相同定を行った結果、異相の出現は見られなかった。育成した undoped-Cs₂HfCl₆は発光量 44,000 光子/MeV、エネルギー分解能 5.2 %であったのに対し、Eu:Cs₂HfCl₆は発光量 36,000 光子/MeV、エネルギー分解能 7.4 %となった。また、蛍光寿命を表 1 に示す。Eu 添加により高速成分が速くなり、その割合も増加したため、蛍光寿命の高速化にしたと結論付けることができる。Eu:Cs₂HfCl₆ については、図 1 に示すように Eu³⁺の 4f-4f 遷移に由来する発光が見られた。本講演ではこれらの結晶育成および評価結果の詳細について報告する。

表1 得られた試料のシンチレーション特性

| サンプル | 蛍光寿命 [μs] | |
|---|--------------|--------------|
| | 高速成分 | 低速成分 |
| Undoped-Cs ₂ HfCl ₆ | 1.00 (39.5%) | 6.89 (60.5%) |
| Eu:Cs ₂ HfCl ₆ | 0.77 (44.5%) | 6.23 (55.5%) |

2.5 2 (ne) 1.5 0 450 500 550 600 650 Wavelength [nm]

図 1 Eu:Cs₂HfCl₆の発光スペクトル (励起波長 320 nm)

参考文献

- [1] P. Dorenbos, Nucl. Instrum. Meth. in Phys. Res. A486 (2002) 208, [2] E. Sakai: IEEE TNS, NS-34 No.1 (1987),
- [3] A. Burger et. al., App. Phys. Lett. 107, 143505 (2015), [4] K. Saeki et al., APEX 9 042602 (2016)