

Yb 添加 KSr_2X_5 ($\text{X} = \text{Cl}, \text{Br}$) 結晶の発光及びシンチレーション特性

Photoluminescence and scintillation properties of Yb^{2+} -doped KSr_2X_5 ($\text{X} = \text{Cl}, \text{Br}$) crystals

東北大院工¹, 奈良先端大² ○(M2) 関根大¹, 藤本裕¹, 中内大介², 越水正典¹,
柳田健之², 浅井圭介¹

Tohoku Univ.¹, NAIST², ○Dai Sekine¹, Yutaka Fujimoto¹, Daisuke Nakauchi², Masanori Koshimizu¹,
Takayuki Yanagida², Keisuke Asai¹
E-mail: dai.sekine.q6@dc.tohoku.ac.jp

放射線検出器の一つであるシンチレーション検出器は、医療イメージングシステムやセキュリティ検査装置等に広く応用されている。シンチレータの実用化に際しては、高い発光量、短い蛍光寿命、優れたエネルギー分解能等の兼備が求められる。これに応えるための主たる方途の一つが、ハロゲン化物母材中への希土類元素蛍光中心の導入であり、そこからの 5d–4f 遷移発光の利用である。この蛍光中心として頻繁に利用されているのは Ce^{3+} や Eu^{2+} であり、 $\text{LaBr}_3:\text{Ce}^{3+}$ [1] 及び $\text{SrI}_2:\text{Eu}^{2+}$ [2] では、それぞれ高い発光量(63,000, 80,000 photons/MeV)と優れたエネルギー分解能(<4%)が得られている。5d–4f 遷移を示す他の蛍光中心としては Yb^{2+} が挙げられる。 Yb^{2+} のシンチレーション特性に関して、母材料に SrI_2 [3,4] や CsBa_2I_5 [4] を用いた事例が報告されており、いずれも高い発光量を示す(~56,000 ph/MeV)。 Yb^{2+} の 5d–4f 遷移発光として、スピン許容遷移発光とスピン禁制遷移発光の 2 つが観測されうるが、両発光を制御する母材属性については未解明である。以上を踏まえ、本研究では、Eu 添加で高発光量を呈する KSr_2I_5 [5] に着目し、 Yb^{2+} 添加 KSr_2X_5 ($\text{X} = \text{Cl}, \text{Br}$) 結晶を作製して、その蛍光及びシンチレーション特性を調査した。

試料作製には KX (99.9%), SrX_2 (99.9%), 及び $\text{YbX}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (99.9%) を出発原料に用いた。これらを量論比で混合し、真空中で 200–400°C に加熱して 24 h 脱水した後、石英アンブル管に封入して Bridgman 法で結晶育成を行った。得られた結晶を切断・研磨した後、PL スペクトル、X 線ラジオリミネセンス(XRL)スペクトル、UV 励起発光及びシンチレーション減衰プロファイル、及び ^{137}Cs - γ 線照射波高スペクトルを測定した。

Fig.1 に、 KSr_2Cl_5 及び KSr_2Br_5 の両結晶 (共に Yb 添加) の PL&PLE スペクトルを示す。いずれにおいても 430 nm 付近にピークを有する強い発光帯が確認された。この発光について減衰時定数を算出したところ、それぞれ 22 μs と 43 μs であった。よって、両発光はいずれもスピン禁制遷移に由来すると考えられる。両発光について温度依存性を調査すると、Yb 添加 KSr_2Cl_5 においては低温でスピン許容遷移発光とみられる発光帯が観測されたが、Yb 添加 KSr_2Br_5 では観測されなかった。この結果から配位子の共有結合性が増加することで項間交差が起こりやすくなる可能性が示唆された。Fig.2 に ^{137}Cs - γ 線照射波高スペクトルを示す。NaI:Tl との比較により発光量を推算すると、 KSr_2Cl_5 及び KSr_2Br_5 でそれぞれ約 12,900 及び 7,700 photons/MeV であった。

- [1] E. V. D. van Loef et al., Nucl. Instr. Methods A, **486** (2002) 254.
- [2] N. J. Cherapy et al., Appl. Phys. Lett. **92** (2008) 083508.
- [3] M. S. Alekhin et al., Opt. Mater., **37** (2014) 382.
- [4] E. Rowe et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., **60** (2013) 1057.
- [5] L. Stand et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **780** (2015) 440

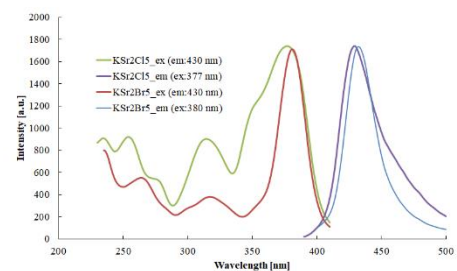


Fig. 1 PL&PLE spectra of Yb-doped KSr_2Cl_5 and KSr_2Br_5 crystals.

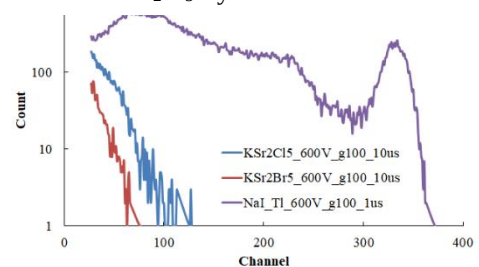


Fig. 2 Pulse-height spectra for NaI:Tl and Yb-doped KSr_2Cl_5 and KSr_2Br_5 crystals for 662-keV gamma-ray from ^{137}Cs .