

# Cz 法による 1 インチ径 $\text{Li}(\text{Ca}_{0.73}\text{Sr}_{0.25}\text{Eu}_{0.02})\text{AlF}_6$ 中性子シンチレータ 単結晶の育成とシンチレーション特性

## Growth and scintillation properties of 1 inch $\text{Li}(\text{Ca}_{0.73}\text{Sr}_{0.25}\text{Eu}_{0.02})\text{AlF}_6$ neutron scintillator single crystal by Cz method

東北大金研<sup>1</sup>、東北大 NICHe<sup>2</sup>、山形大理<sup>3</sup>、C&A<sup>4</sup>

○(M1)折口和也<sup>1</sup>、横田有為<sup>2</sup>、吉野将生<sup>1</sup>、山路晃広<sup>1</sup>、大橋雄二<sup>2</sup>、黒澤 俊介<sup>2,3</sup>、鎌田圭<sup>2,4</sup>、  
吉川彰<sup>1,2,4</sup>

(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, NICHe, Tohoku Univ.<sup>2</sup>, Yamagata Univ.<sup>3</sup>, C&A<sup>4</sup>,

○Kazuya Origuchi<sup>1</sup>, Yuui Yokota<sup>2</sup>, Masao Yoshino<sup>1</sup>, Akihiro Yamaji<sup>1</sup>, Yuji Ohashi<sup>2</sup>,  
Shunsuke Kurosawa<sup>2,3</sup>, Kei Kamada<sup>2,4</sup>, Akira Yoshikawa<sup>1,2,4</sup>

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

**【緒言】** セキュリティ用途を中心とした近年の世界的な中性子検出器の需要拡大と従来の中性子検出器に用いられてきた  $^3\text{He}$  ガスの大幅な供給量減少により、 $^3\text{He}$  ガスに替わる新たな中性子検出器用の材料開発が求められている。その候補材料として無機シンチレータ結晶が注目されており、これまでの我々の研究により、新たな中性子シンチレータ材料として、Eu 添加  $\text{Li}(\text{Ca},\text{Sr})\text{AlF}_6$  [Eu:LiCSAF] 単結晶を開発した[1,2]。Eu:LiCSAF は中性子捕獲断面積の大きい  $^6\text{Li}$  を含有する中性子シンチレータであり、中性子励起下で高い発光量(20,000~30,000 photons/neutron)を示すことから有望な中性子シンチレータ結晶として期待されている。マイクロ引き下げ法を用いた先行研究により、Eu:LiCSAF 単結晶は Sr 濃度が 25% で最大の発光量を示すことが明らかとなっている[2]。これを実用化するためには、結晶の大型化が必要であるが、本材料ではこれまで大型化の取り組みがされていない。そこで、我々はチョクラルスキー(Cz)法を用いて 1 インチ径 Eu:LiCSAF 単結晶を育成し、その相分析、組成分析およびシンチレーション特性評価を行った。

**【実験方法】** 出発原料として、 $\text{LiF}$ ( $^6\text{Li}$  50% 含有、4N)、 $\text{CaF}_2$ (4N)、 $\text{SrF}_2$ (3N)、 $\text{AlF}_3$ (4N)および  $\text{EuF}_3$ (3N) 粉末を  $\text{Li}(\text{Ca}_{0.73}\text{Sr}_{0.25}\text{Eu}_{0.02})\text{AlF}_6$  の仕込組成で秤量・混合し、Pt 坩堝を用いて高周波誘導加熱型の Cz 法により Eu2%:LiCSAF 単結晶を育成した。種結晶として LiCAF 単結晶を用い、育成中は回転速度 10 rpm、引き上げ速度~0.5 mm/h とした。育成雰囲気は、微量の  $\text{CF}_4$  と高純度 Ar の混合ガスとした。育成した結晶は、粉末 X 線回折(XRD)測定による相同定を行い、電子線マイクロアナライザ(EPMA)および誘導結合プラズマ(ICP)発光分光分析による組成分析を行った。さらに、切断・研磨した試料において発光およびシンチレーション特性の評価を行った。

**【結果・考察】** Cz 法によって作製した 1 インチ径  $\text{Li}(\text{Ca}_{0.73}\text{Sr}_{0.25}\text{Eu}_{0.02})\text{AlF}_6$  単結晶を図 1 に示した。as-grown 結晶は揮発成分が表面に付着したことで不透明であったが、結晶内部は透明であった。また、僅かなクラックが生じたものの多くの部分で透明な試料を得ることができた。

育成した Eu:LiCSAF 単結晶の肩部、直胴部、テール部の粉末 XRD 測定を行った結果を図 2 に示す。肩部、直胴部とも全ての回折ピークをコルキライト型構造で同定することができ、Eu:LiCSAF の単相であることが確認できた。一方、テール部に関しては、コルキライト型構造由来の回折ピーク以外に、不純物相である  $\text{EuF}_3$  からの回折ピークが現れた。また、コルキライト型構造の回折ピークは、結晶育成が進むに従って低角側へシフトしており、育成方向に Sr の偏析が生じたことで格子定数が増加したことが示唆された。詳細な結晶育成および特性評価の結果に関しては当日報告する。

[1] T. Yanagida, A. Yoshikawa et al., Opt. Mater. 33 (2011) 1243.

[2] Y. Yokota, A. Yoshikawa, et al., J. Cryst. Growth 490 (2018) 71.

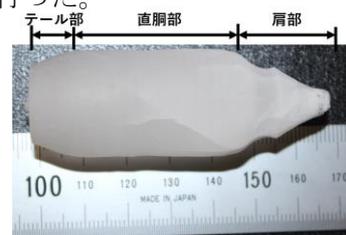


図 1 Cz 法で作製した 1 インチ径  $\text{Li}(\text{Ca}_{0.73}\text{Sr}_{0.25}\text{Eu}_{0.02})\text{AlF}_6$  単結晶。

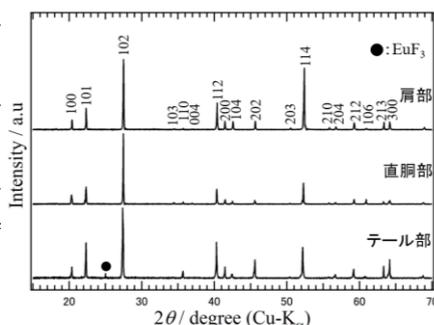


図 2  $\text{Li}(\text{Ca}_{0.73}\text{Sr}_{0.25}\text{Eu}_{0.02})\text{AlF}_6$  単結晶の粉末 XRD パターン。