

## パルス計数測定を企図した Yb<sup>2+</sup>添加ハロゲン化物結晶 シンチレータの開発

Development of Yb<sup>2+</sup>-doped halide crystalline scintillators for pulse counting measurements

東北大院工<sup>1</sup>, 奈良先端大<sup>2</sup>, <sup>○(M1)</sup>溝井航平<sup>1</sup>, 荒井美紀<sup>1</sup>, 藤本裕<sup>1</sup>, 中内大介<sup>2</sup>, 越水正典<sup>1</sup>,  
柳田健之<sup>2</sup>, 浅井圭介<sup>1</sup>

Tohoku Univ.<sup>1</sup>, NAIST<sup>2</sup>, <sup>○(M1)</sup> Kohei Mizoi<sup>1</sup>, Miki arai<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Daisuke Nakauchi<sup>2</sup>,  
Masanori Koshimizu<sup>1</sup>, Takayuki Yanagida<sup>2</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup>

E-mail: kohei.mizoi.p5@dc.tohoku.ac.jp

パルス計数測定に用いられるシンチレータには、高い発光量や短い蛍光寿命等の諸性能の兼備が求められる。この要求に応える有効な方途の一つとして、ハロゲン化物を母材とした、5d-4f 遷移発光を呈する希土類元素蛍光中心の添加がある。すでに Ce<sup>3+</sup>や Eu<sup>2+</sup>のような 3 価または 2 価のランタノイドが、この種の蛍光中心として頻りに利用されている。これら同様に有用であるものと期待される Yb<sup>2+</sup>は、5d-4f 遷移によるスピン許容発光および禁制発光の二つの発光を示すことが知られている。パルス計数用シンチレータへの応用という観点では、シンチレーションにおいて短寿命のスピン許容遷移発光が観測されることが望まれる。Yb<sup>2+</sup>添加 CsMX<sub>3</sub> (M = Ca, Sr; X = Cl, Br, I) 結晶を母材に用いた先行研究では[1,2], 室温でスピン許容遷移発光を示す例が報告されているが、シンチレーションにおける報告はない。そこで本研究では、パルス計数用シンチレータとしての応用を企図し、作製が比較的容易である Yb<sup>2+</sup>添加 CsMX<sub>3</sub> (M = Ca, Sr; X = Cl, Br) 結晶を作製して、PL およびシンチレーション特性を解析した。

試料作製では、CsCl および MX<sub>2</sub> (M = Ca, Sr; X = Cl, Br) を 1:1 で混合し、さらに YbCl<sub>3</sub> および YbBr<sub>3</sub> を 1 mol% で添加し、単純固法で結晶育成を行った。これらを試料として、フォトルミネッセンス(PL)スペクトル, X 線ラジオリミネッセンス(XRL)スペクトル, シンチレーション減衰プロファイル, および  $\gamma$  線照射波高スペクトルを測定した。

Fig. 1 に各試料の XRL スペクトルを示す。すべての試料において、440–450 nm 付近に単一の Yb<sup>2+</sup> 発光ピークが見られる。また、CsCaBr<sub>3</sub>:Yb<sup>2+</sup> において 400 nm 付近にショルダーが見られる。各試料におけるシンチレーション減衰時定数および Gd<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce (GSO) との比較により推算した発光量を Table 1 に示す。シンチレーションにおいて、CsCaCl<sub>3</sub>:Yb<sup>2+</sup> および CsSrCl<sub>3</sub>:Yb<sup>2+</sup> ではスピン禁制遷移発光のみが観測されたのに対し、CsCaBr<sub>3</sub>:Yb<sup>2+</sup> および CsSrBr<sub>3</sub>:Yb<sup>2+</sup> ではスピン禁制遷移発光に加えスピン許容遷移発光が観測され、これらは既報の PL の結果と一致する[1, 2]。また、臭化物結晶において発光量の増大が認められる。以上の結果より、三元系結晶において、パルス計数用シンチレータへの応用には、重いアニオンで構成される臭化物結晶が好ましいことが示唆される。

[1] Markus Suta et al. Phys. Chem. Chem. Phys., **19** (2017) 7188.

[2] M. Suta, W. Claudia, Adv. Funct. Mater., **17** (2017) 1602783.

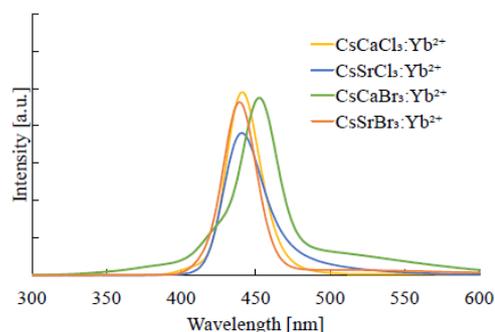


Fig. 1 XRL spectra of CsMX<sub>3</sub>:Yb<sup>2+</sup> (M = Ca, Sr; X = Cl, Br) crystals.

Table 1 Scintillation decay time constants and light yields of CsMX<sub>3</sub>:Yb<sup>2+</sup> (M = Ca, Sr; X = Cl, Br).

	Decay time constants		Light yields [photons/MeV]
	Spin-allowed [ns]	Spin-forbidden [ $\mu$ s]	
CsCaCl <sub>3</sub> :Yb <sup>2+</sup>	-	180	2700
CsSrCl <sub>3</sub> :Yb <sup>2+</sup>	-	65	2900
CsCaBr <sub>3</sub> :Yb <sup>2+</sup>	210	390	5500
CsSrBr <sub>3</sub> :Yb <sup>2+</sup>	64	57	3500