

Ce³⁺, Pr³⁺共添加 Lu₂Si₂O₇の単結晶成長および Ce³⁺/Pr³⁺比の最適化

Single crystal growth of Ce³⁺, Pr³⁺ co-doped Lu₂Si₂O₇

and optimization of Ce³⁺/Pr³⁺ ratio

東北大工¹, 東北大金研², 東北大 NICHe³ ○(M2)阿部 柚佳^{1,2}, 堀合 毅彦^{2,3}, 横田 有為^{2,3},

吉野 将生^{2,3}, 村上 力輝斗², 花田 貴², 山路 晃広^{2,3}, 佐藤 浩樹^{2,3}, 大橋 雄二^{2,3},

黒澤 俊介^{2,3}, 鎌田 圭^{2,3}, 吉川 彰^{2,3}

Grad. Sch. of Eng., Tohoku Univ.¹, IMR, Tohoku Univ.², NICHe, Tohoku Univ.³, °Yuka Abe^{1,2},

Takahiko Horiai^{2,3}, Yuui Yokota^{2,3}, Masao Yoshino^{2,3}, Rikito Murakami², Takashi Hanada²,

Akihiro Yamaji^{2,3}, Hiroki Sato^{2,3}, Yuji Ohashi^{2,3}, Shunsuke Kurosawa^{2,3}, Kei Kamada^{2,3},

Akira Yoshikawa^{2,3}

E-mail: yuka.abe.p5@dc.tohoku.ac.jp

【背景】 Ce³⁺添加 Lu₂Si₂O₇ (Ce:LPS) シンチレータは、高い発光量 (26,300 photons/MeV) と速い減衰時間 (~38 ns) などの有望な特性を有している [1]。Ce:LPS はこれらの優れた特性、および高温においても安定した発光効率を示すことから、陽電子放出断層撮影や石油探査装置などへの応用が期待されている。特性改善に向けて、既存のシンチレータにおいて発光中心の共添加に関する研究が広く行われており、Ce:LPS においても Pr³⁺を共添加することでシンチレーション特性が向上する傾向があることが報告されている [2]。そこで本研究では Ce³⁺/Pr³⁺比の最適化を目的とし、Ce³⁺と Pr³⁺の比を系統的に変化させた Pr³⁺共添加 Ce:LPS 単結晶の育成および評価を行った。

【実験方法】 出発原料として CeO₂、Pr₂O₃、Lu₂O₃、SiO₂粉末を用い、マイクロ引下げ法により結晶育成を行った [3]。種結晶として LPS 単結晶を使用し、Ar + 2% O₂ 雰囲気下において 0.03 mm/min の引下げ速度で育成を行った。なお、Ce³⁺/Pr³⁺比の最適化に向けて、(Ce_x Pr_y Lu_{1-x-y})₂Si₂O₇ の x/y 比を系統的に変化させた。作製した試料は粉末 X 線回折測定、フォトルミネッセンス(PL)測定、発光量、および減衰時間などの結晶構造、光学特性、シンチレーション特性を評価した。

【実験結果】 マイクロ引下げ法により、(Ce_x Pr_y Lu_{1-x-y})₂Si₂O₇ ((x, y) = (0.005, 0.000), (0.002, 0.005), (0.005, 0.005), (0.010, 0.005), (0.000, 0.005))の組成で透明な結晶の育成に成功した。共添加試料において、Pr³⁺ 4f-5d 遷移に由来する励起ピーク波長で励起 (λ_{ex} = 247 nm)したときに、Ce³⁺ 5d-4f 遷移に由来の発光が確認され、Pr³⁺ 5d 準位から Ce³⁺ 5d 準位へのエネルギー遷移が起こっていることが明らかになった。さらに、Pr³⁺ 5d-4f 遷移に由来する発光の PL 蛍光寿命測定から、蛍光寿命には Ce³⁺/Pr³⁺比との濃度依存性があることが明らかになった。

[1] L. Pidol et al., J. Phys.: Condens. Matter, 15 (2003) 2091–2102.

[2] H. Feng et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., 61 (2014) 271–275.

[3] A. Yoshikawa et al., Opt. Mater., 30 (2007) 6–10.

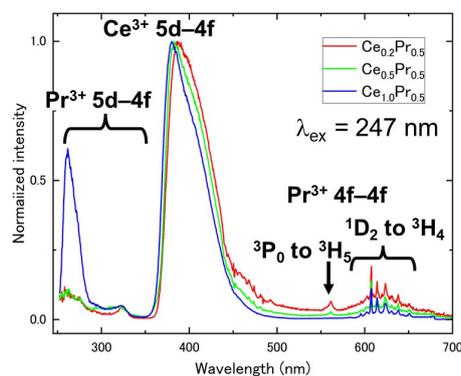


Fig. 1 PL spectra of (Ce_x Pr_y Lu_{1-x-y})₂Si₂O₇ samples.