

[16007]

多様な放射線源を用いたシンチレーション基礎過程の解析 Analysis of basic scintillation processes using various radiation sources

越水正典^{#,A)}, 柳田健之^{B)}, 倉島俊^{C)}, 岩松和宏^{D)}, 木村敦^{C)}, 田口光正^{C)}, 藤本裕^{A)}, 浅井圭介^{A)}
Masanori Koshimizu^{#,A)}, Takayuki Yanagida^{B)}, Satoshi Kurashima^{C)}, Kazuhiro Iwamatsu^{D)}, Atsushi Kimura^{C)},
Mitsumasa Taguchi^{C)}, Yutaka Fujimoto^{A)}, Keisuke Asai^{A)}
^{A)} Tohoku University
^{B)} Nara Institute of Science and Technology
^{C)} National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology
^{D)} University of Notre Dame

Abstract

We observed the temporal profiles of scintillation of Ce-doped LiCaAlF₆ crystals using pulsed ion beams having different linear energy transfers (LETs). The LET dependence of the temporal profiles has been explained mainly in terms of competition between the energy transfer and quenching owing to excited states interactions.

Keyword: ion beam, scintillator, linear energy transfer

1. はじめに

シンチレーション特性が線エネルギー付与 (LET) に依存することは古くから知られている。 α 線や重粒子線などを対象とした、シンチレーション検出器を用いたエネルギー測定では、この LET 依存性の知見が必須である。これまでに、シンチレータの発光量の LET に対する依存性については、多くの報告がなされており、現象論的なモデル (Birks モデル) が利用されている[1]。

シンチレーション時間プロファイルは、LET 依存性の励起状態ダイナミクスの観点での解析に有用である。時間プロファイルの立ち上がりと減衰の部分はそれぞれ、シンチレーションにおけるエネルギー移動と励起状態の減衰に対応する。また、LET に依存したシンチレーション時間プロファイルは、 γ 線と中性子の検出イベントの波形に基づく弁別を可能とする[2]。これは、熱中性子検出において利用される、 ${}^6\text{Li}(n,\alpha)t$ や ${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$ という核反応により生じる α 線やトリチウム、あるいは ${}^7\text{Li}$ の LET が大きいためである。これまでに、検出信号波形の違いに基づく弁別能が、いくつかのシンチレータで報告されている[3-7]。

本研究では、最近開発された中性子用シンチレータである Ce ドープ LiCaAlF₆ 結晶[8-10]におけるシンチレーションの LET 依存性を解析した。この結晶でも、波形に基づく γ 線と中性子の検出イベント弁別が報告されている[11]。この報告書では、異なる LET でのシンチレーション時間プロファイルを解析し、励起状態間相互作用とダイナミクスの観点から、その原因を考察する。

2. 実験方法

試料として、チョコラルスキー法により育成された Ce ドープ LiCaAlF₆ 単結晶 (トクヤマ社製) を用いた。融液中の Ce 濃度が Ca に対して 2, 3, 4 mol% の結晶を試料とした。偏析係数として 0.021 [12]とい

う値を考慮すると、結晶中での Ce 濃度は 0.04, 0.06, 0.08 mol% であると推算される。結晶のサイズは $1\text{ cm}^2 \times 1\text{ mm}$ であった。これ以降では、融液中の Ce 濃度で試料を区別する。

本研究ではパルスイオンビームを用い、シンチレーション時間分解能の測定を行った。QST 高崎研の TIARA の AVF サイクロトロンから発生するパルスイオンビームを用いた。異なる LET でのシンチレーションを観測するため、20 MeV H⁺、50 MeV He²⁺、および 220 MeV C⁵⁺を照射した。空気中で試料を照射し、試料から発生したシンチレーションを光電子増倍管 (浜松ホトニクス, PMT; R7400U) にて検出し、その検出信号を、照射室外に設置した、帯域 1 GHz のデジタルオシロスコープ (Tektronix DPO 7104) にて記録した。なお、1000 回の検出信号の平均を、時間プロファイルとして得た。測定系全体での時間分解能は、半値半幅で 1.5–2.2 ns である。なお、時間軸の原点については、発光観測以外の手法では決定できない。そのため、同じ測定系でプラスチックシンチレータ (BC-400) での計測結果における時間プロファイルのピークを原点とした。また、マルチチャンネル分光器 (Ocean Optics, USB-4000) を用いてシンチレーションスペクトルの計測も行った。計測中の照射による損傷の影響は無視できる程度であった。なお、測定系の詳細については、文献 13 にて報告している。比較のため、パルス X 線照射でのシンチレーション時間プロファイルも測定した[14]。この場合には、X 線管に 30 kV の高圧を印加し、光電子増倍管を用いて単一光子計数法にて時間プロファイルを得た。

[16007]

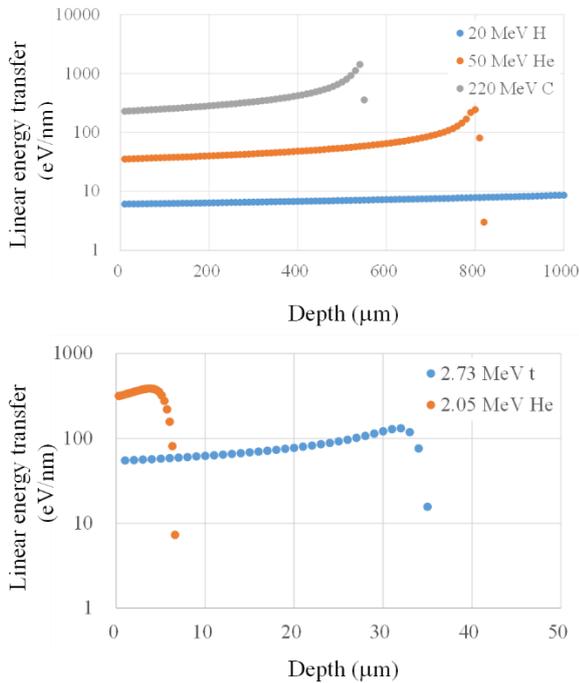


Figure 1. Linear energy transfer estimated using the SRIM code.

3. 結果と考察

図 1 に、本研究で照射したイオンと、 ${}^6\text{Li}(n,\alpha)t$ 反応で生じる生成物について、SRIM コードで計算した LET を示す[15]。本研究での条件では、照射イオンの質量と共に LET は増大し、その範囲は核反応生成物による LET をカバーするものであった。

図 2 に 20 MeV H^+ 照射下でのシンチレーションスペクトルを示す。280 および 310 nm にバンドが見られ、これは既報と一致した[8]。これらは Ce^{3+} の発光に帰属される。他のイオン種の場合でも同様のスペクトルが得られた。

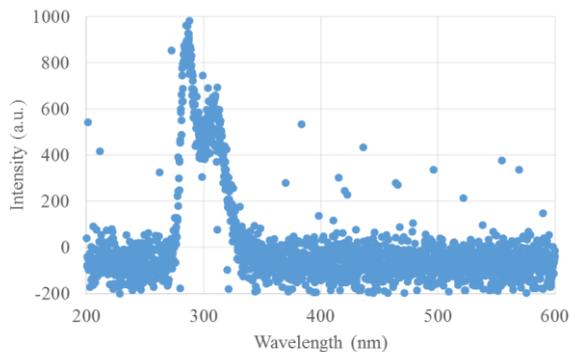


Figure 2. Scintillation spectrum of the 2 mol% Ce sample under 20 MeV H^+ irradiation.

図 3 にパルス X 線照射で観測されたシンチレーション時間プロファイルを示す。高速成分が観測された。我々の以前の研究[16]では、 γ 線照射で観測され

た高速成分をチェレンコフ光であると断じた。しかし、本研究での条件では、X 線のエネルギーは 30 keV 以下であるため、チェレンコフ光は生じない。また、同様の高速成分を、真空紫外光励起で観測し、軟 X 線照射で観測された過去事例[17]との類似性から、ホスト中の欠陥によるものであると帰属した[16]。立ち上がりの遅い成分は、発光中心である Ce^{3+} によるものであると帰属される。遅い立ち上がりは、ホストから Ce^{3+} への遅いエネルギー移動によるものである[18]。

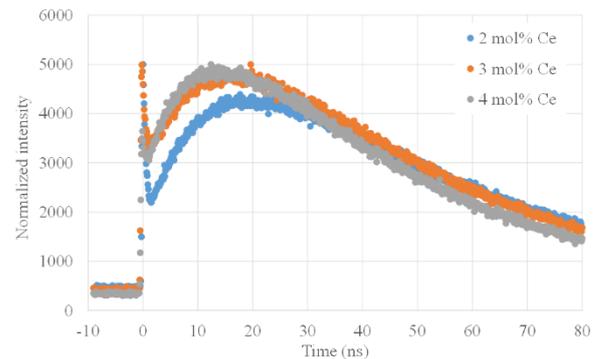


Figure 3. Temporal profiles of scintillation under pulsed X-ray beam irradiation. The profiles were normalized at their maximum.

図 4, 5, および 6 は、それぞれ、Ce を 2, 3, および 4 mol% ドープした LiCaAlF_6 結晶のシンチレーション時間プロファイルである。それぞれのプロファイルは、その最大値で規格化されている。全ての場合において、図 3 で見られたような高速成分は観測されなかった。用いた光電子増倍管の感度の波長依存性はそれほど大きく変わらないため、測定系の問題ではない。そのため、高速成分が観測されなかったことは、LET 効果に帰属される。現段階では、実験的にその原因を決定することは困難である。可能性のある一つの過程は、いわゆる Auger 過程と呼ばれるものである。これは、内殻正孔の減衰における Auger 過程と類似したものであり、一つの励起状態が消滅し、そのエネルギーが近接したもう一つの励起状態へと付与され、励起状態の数が減少する過程である。

技術的な観点からは、この高速成分の消滅は重要である。これは、 γ 線と中性子の検出イベントの弁別が、シンチレーション時間プロファイルの違いに基づいているためである[11]。我々の既往の研究[16]と本研究に基づき、高速成分は、チェレンコフ光と、ホスト中の欠陥での発光に帰属される。中性子検出イベントでは、 ${}^6\text{Li}(n,\alpha)t$ 反応により生じる α 線とトリチウムが高い LET で結晶中にエネルギーを付与する。この場合に高速成分が観測されないことは、以下の 2 つの理由による。一つは、そこから生じる二次電子のエネルギーが低く、チェレンコフ光が生じないためである。もう一つは、高 LET で欠陥での発光が消光するためである。

[16007]

この高速成分の有無に加え、LET が異なると、立

Ce^{3+} イオンへとエネルギー移動する(場合がある)。

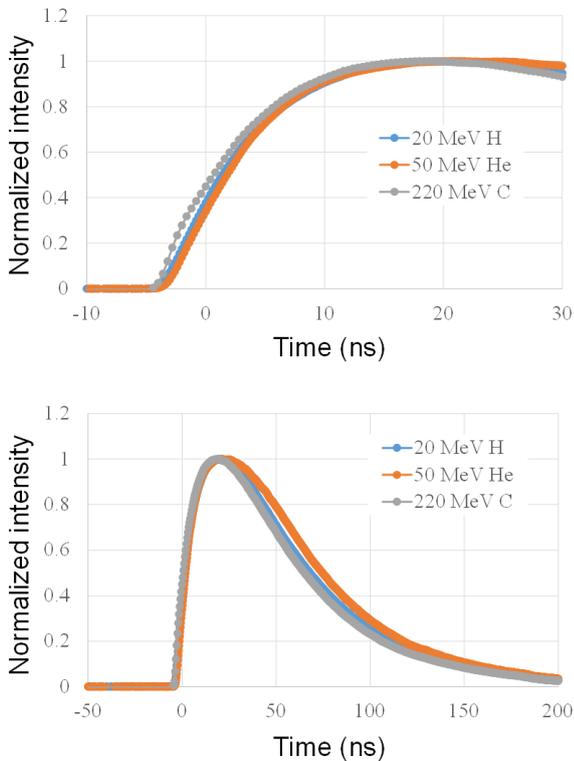


Figure 4. Temporal profiles of scintillation of the 2 mol% Ce sample on different time scales.

ち上がりと初期の減衰挙動に違いが生じることが明らかとなった。この挙動は主に、ホストから Ce^{3+} イオンへのエネルギー移動過程を反映する。LET 依存性は全ての試料で類似していた。即ち、立ち上がりと初期の減衰は、50 MeV He^{2+} 照射の場合で最も遅いということである。50 MeV He^{2+} の LET は、照射した 3 種類のイオン種の中で 2 番目に高い。これらの結果は、この系における LET 依存性が非常に複雑であることを示している。この LET 依存性を説明するためには、少なくとも 2 つの要因を想定する必要がある。一つは、高い LET でエネルギー移動を(一見して)加速する要因であり、もう一つは減速する要因である。加速する要因として有力な過程は、エネルギー移動と、励起状態間相互作用による消光との競合である。我々が以前に報告した、リチウムガラスシンチレータのシンチレーションの立ち上がりにおける LET 依存性でも、同様の議論が成立している [19]。一方、本研究で観測された LET 依存性は、この要因のみでは説明できず、高い LET でエネルギー移動を減速する要因が必要である。この要因についての一つの仮説は、既に励起状態となっている Ce^{3+} イオンに対しては、エネルギー移動が不可能であるという因子が、高い励起密度で顕著であるという点である。この過程では、複数の励起状態が、近隣の一つの Ce^{3+} イオンへのエネルギー移動で競合する。競合に「敗れた」励起状態は、より遠くに存在する

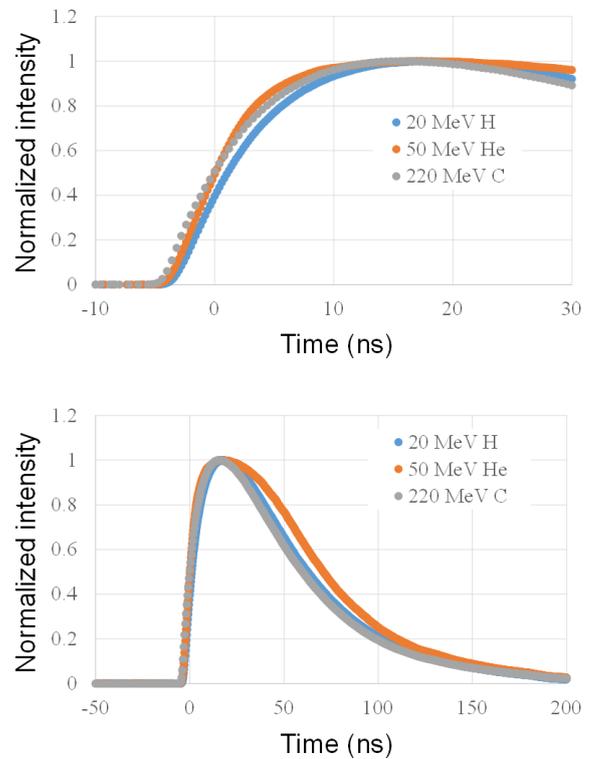


Figure 5. Temporal profiles of scintillation of the 3 mol% Ce sample on different time scales.

図 3 の結果からも、低い Ce^{3+} 濃度で、即ち Ce^{3+} までの距離が最も長い状況で、立ち上がりが遅いことがわかる。これらの要因から、高い LET での遅いエネルギー移動過程が説明される。

参考文献

- [1] J. B. Birks, "The Theory and Practice of Scintillation Counting", Pergamon, New York (1964).
- [2] Y. K. Akimov, Instrum. Experimental Tech., 39 (1996) 313.
- [3] A. Bessiere, P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk, K. W. Krämer, and H. U. Gübel, IEEE Trans. Nucl. Sci., 51 (2004) 2970.
- [4] C. M. Combes, P. Dorenbos, R. W. Hollander, and C. W. E. van Eijk, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 415 (1998) 364.
- [5] S. Normand, B. Mouanda, S. Haan, and M. Louvel, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 484 (2002) 342.
- [6] H. Jacobsen, K. Lieutenant, C. Zendler, and K. Lefmann, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 717 (2013) 69.
- [7] T. Szcześniak, M. Moszyński, A. Syntfeld-Kazuch, Ł. Świdorski, D. Wolski, M. Grodzicka, G. Pausch, J. R. Stein, F. Kniest, M. R. Kusner, P. Schotanus, and C. Hurlbut, IEEE Trans. Nucl. Sci., 57 (2010) 3846.
- [8] A. Yoshikawa, T. Yanagida, Y. Yokota, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Fukuda, T. Suyama, K. J. Kim, J. Pejchal, M. Nikl, K. Watanabe, M. Miyake, M. Baba, and K. Kamada: IEEE Trans. Nucl. Sci. 56 (2009) 3796.
- [9] T. Yanagida, A. Yoshikawa, Y. Yokota, S. Maeo, N. Kawaguchi, S. Ishizu, K. Fukuda, and T. Suyama: Opt. Mater. 32 (2009) 311.

[16007]

- [10] J. Iwanowska, L. Swiderski, M. Moszynski, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa, K. Fukuda, N. Kawaguchi, and S. Ishizu: Nucl. Instr. and Meth. A 652 (2011) 319.
- [11] A. Yamazaki, K. Watanabe, A. Uritani, T. Iguchi, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Fujimoto, Y. Yokota, K. Kamada, K. Fukuda, T. Suyama, and A. Yoshikawa: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 652 (2011) 435.
- [12] K. Shimamura, S. L. Baldochi, N. Mujilatu, K. Nakano, Z. Liu, N. Sarukura, and T. Fukuda, J. Cryst. Growth, 211 (2000) 302.
- [13] M. Koshimizu, S. Kurashima, M. Taguchi, K. Iwamatsu, A. Kimura, and K. Asai, Rev. Sci. Instrum., 86 (2015) 013101.
- [14] T. Yanagida, Y. Fujimoto, T. Ito, K. Uchiyama, and K. Mori, Appl. Phys. Express, 7 (2014) 062401.
- [15] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark, "The Stopping and Range of Ions in Solids," Pergamon Press, New York (1984).
- [16] M. Koshimizu, T. Yanagida, Y. Fujimoto, A. Yamazaki, K. Watanabe, A. Uritani, K. Fukuda, N. Kawaguchi, S. Kishimoto, and K. Asai, Appl. Phys. Express, 6 (2013) 062601.
- [17] N. Shiran, A. Gektin, S. Neicheva, M. Weber, S. Derenzo, M. Kirm, M. True, I. Shpinkov, D. Spassky, K. Shimamura, and N. Ichinose: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 537 (2005) 266.
- [18] Masanori Koshimizu, Takayuki Yanagida, Yutaka Fujimoto, Kentaro Fukuda, Noriaki Kawaguchi, and Keisuke Asai, submitted.
- [19] M. Koshimizu, K. Iwamatsu, M. Taguchi, S. Kurashima, A. Kimura, T. Yanagida, Y. Fujimoto, K. Watanabe, and K. Asai, J. Lumin., 169 (2016) 678.

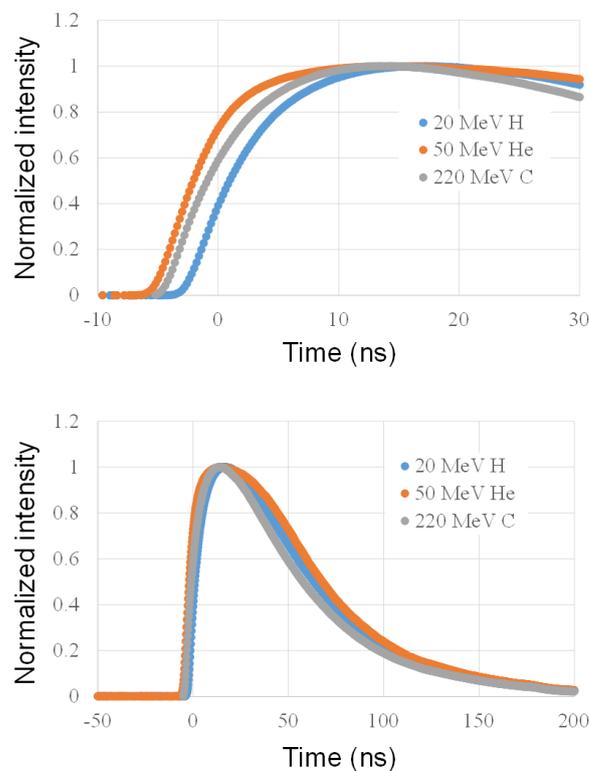


Figure 6. Temporal profiles of scintillation of the 4 mol% Ce sample on different time scales.