[17004]

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)}, 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

Abstract

We analyzed the linear energy transfer (LET) effects on the scintillation properties of $Bi_4Ge_3O_{12}$ (BGO) with an emphasis on the dynamical aspect, using pulsed beams of 20 MeV H⁺, 50 MeV He⁺, and 220 MeV C⁵⁺. We observed that the rise and the decay of the scintillation temporal profiles are faster at higher LET. The faster decay at higher LET is attributed to the competition between the radiative transition of self-trapped excitons (STEs) localized at Bi³⁺ ions and the quenching caused by the interaction between STEs. The faster rise can be explained in terms of the competition between the quenching caused by the interaction between excited states and the formation of the STEs.

Keyword: ion beam, scintillator, excitation density, linear energy transfer

1. はじめに

固体に入射した重粒子線の飛跡近傍に生じる高密 度の電子励起状態に関する研究は、数多くの対象に ついて、幅広く行われている。励起密度が高い場合 には、トラックと呼ばれる円筒状の損傷領域が形成 することが知られている^[1]。このような高密度な励 起状態における励起状態間相互作用の様相と損傷形 成に関する基礎過程については、いくつかのモデル が提示されている。実験的には、トラック形成の生 じる閾値としての励起密度が着目され、それは線エ ネルギー付与(LET)として表現されることが多い。 この閾値となるLETと、トラック形成の生じる物質 の多様な特性との相関から、基礎過程が議論されて きた。

トラック形成に関する研究に加え、蛍光観測によ る励起状態間相互作用の解析も進められてきた。理 研の木村博士による時間分解蛍光測定による一連の 研究では、多くの絶縁体における励起状態間相互作 用が研究され、自己束縛励起子(STE)間の相互作 用を含む多くの知見が得られている^[2-7]。我々のグル ープでも同様に、半導体^[8, 9]やα-Al₂O₃^[10]についての 励起状態間相互作用に関する知見を提示しており、 さらには他のグループでも、ポリスチレンや液体シ ンチレータ、あるいはナフタレンの応答を調査して いる^[11-13]。

近年、我々のグループでは、時間分解蛍光測定の 対象をシンチレータへと広げてきた。多くの無機シ ンチレータは、絶縁体ホストと発光中心となる添加 元素から構成されている。放射線のエネルギーは、 当初、主にホストに付与される。その後、ホストか ら発光中心への励起エネルギー移動が生じる。これ までに、我々はこのエネルギー移動過程における励 起状態間相互作用の解析を行い、LET に依存したシ

#koshi@qpc.che.tohoku.ac.jp

ンチレーション時間プロファイルの立ち上がりを報告してきた^[14-16]。この LET 効果は、励起状態間相互作用に起因する消光とエネルギー移動の競合で説明された。

本研究では、対象となるシンチレータとして、 Bi₄Ge₃O₁₂ (BGO)を選択した。BGO の密度は高いため、 主に、高エネルギー光子に対して高い検出効率を得 たい場合に使用される。そのシンチレーションは、 発光中心により得られるものではなく、いわば結晶 全体が発光サイトとなりうる^[17]。そのため、発光中 心を添加したシンチレータと対照的に、高い励起密 度では、励起された発光サイトが近接して存在しう る。このことは、励起状態間相互作用の影響が、シ ンチレーション時間プロファイルの減衰挙動に現れ うることを意味する。このような観点から、本研究 では、BGO のシンチレーション時間プロファイルに おける LET 効果を解析した。

2. 実験方法

異なる LET でのシンチレーション時間プロファイ ルの測定には、量子科学研究開発機構の 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^[18]。異なる LET を得るために、20 MeV の H⁺、50-MeV の He²⁺、および 220-MeV C⁵⁺を照射 した。ビーム強度は 10⁴ ions/pulse であり、パルスの 繰り返しは 100 pulses/s 以下であった。試料となる BGO 結晶(1 cm×1 cm×1 mm)は空気中で照射され た。試料から生じたシンチレーションは光電子増倍 管(浜松ホトニクス、R7400U)で検出された。その 検出信号はデジタルオシロスコープ(Tektronix、DPO 7104)で記録され、1000 パルス分の信号として平均 化された。計測系の時間分解能は、半値半幅でおよ そ 2 ns である^[19]。異なるイオンについての測定結果

[17004]

を比較する上で、プラスチックシンチレータである BC-400 の時間プロファイルにおけるピーク時間を、 時間軸の原点とした。異なる波長領域の時間プロフ ァイルを取得する際には、光電子増倍管の直前に光 学フィルターを設置した。計測中の照射による試料 特性の変化は観測されなかった。また、シンチレー ションスペクトルについては、マルチチャンネル分 光器 (Ocean Optics、USB-4000)を用いて計測した。

3. 結果と考察

図1に SRIM コードにて推算された LET を示す^[20]。 本研究での照射イオンでは、より重いイオンでより 高い LET となり、2 桁程度異なる LET 範囲がカバー された。



Figure 1. Linear energy transfers estimated with the SRIM code.

図2に50 MeVのHe²⁺照射下でのシンチレーショ ンスペクトルを示す。500 nm 付近に幅広いバンドが 観測され、これは光励起^[17]やX線照射^[21]において観 測されるものと一致した。また、他のイオンでも同 様のスペクトルが観測された。



Figure 2. Scintillation spectrum of BGO under irradiation of 50-MeV He^{2+} .

図3に、各イオンを照射した際のシンチレーショ ン時間プロファイルの、立ち上がりおよび減衰部分 を示す。より高いLETで、立ち上がりが顕著に速か った。この結果は、これまでにリチウムガラス^[14]や CeドープLiCaAlF₆^[15]、あるいはCeドープGd₂SiO₅ ^[16]などで観測されたものと同様であった。また、減 衰挙動についても、高い LET でより高速であった。 特に、220 MeV の C⁵⁺照射の場合では、200 ns 以内に 新たな高速成分が出現した。この結果は、減衰挙動 においては LET 依存性の観測されなかったリチウム ガラスや Ce ドープ LiCaAlF₆とは対照的である。こ の違いは、発光サイトの「濃度」の違いに起因する と推察される。即ち、リチウムガラスや Ce ドープ LiCaAlF₆では、発光中心となる Ce³⁺のみが発光サイ トであるのに対して、BGO では結晶全体が発光サイ



Figure 3. Scintillation temporal profiles under irradiations of 20-MeV H^+ , 50-MeV He^{2+} , and 220-MeV C^{5+} in (a) short and (b) long time range. The profiles are normalized to their peak intensities.

図4に、異なる波長でのシンチレーション時間プ ロファイルの立ち上がり部分を示す。波長領域とし て、シンチレーションスペクトルのピーク付近と、 その短・長波長側の領域を選択した。異なる波長領 域での時間プロファイルでは、有意な差は見られな かった。このことは、図2で観測された幅広いバン ドの発光が、同じ速度論的挙動に従うことを示して いる。

高い励起密度での発光の時間プロファイルは、光 励起について報告されている^[22]。8 K では、1 μs 程 度の時定数を有する成分が、高い励起密度で観測さ れている。残念ながら、この報告では、室温付近で の発光特性については解析されていない。別の論文 では、α線照射下での異なる温度でのシンチレーシ ョン時間プロファイルが報告されている^[23]。光励起 の場合と同様に、6 K では高速減衰成分が報告され ているものの、室温では観測されていない。この結 果は、本研究での 20 MeV の H⁺ および 50 MeV の He²⁺ の照射によるものと一致する。



Figure 4. Scintillation temporal profiles at different wavelengths under irradiation of (a) 20-MeV H^+ , (b)

50-MeV He^{2+} , and (c) 220-MeV C^{5+} .

既報[17]によると、BGOにおける 500 nm 付近の発 光は、Bi³⁺イオンに局在した自己束縛励起子(STE) によるとされている。その蛍光の温度依存性につい ては、3 準位モデルにて説明されている[22]。この蛍 光モデルに従うと、本研究での結果は次のように説 明される。即ち、高い LET でのより速い減衰は、STE の放射緩和と STE 間相互作用による消光により説明 される。この消光が 2 つの STE 間で生じると過程す ると、その有力な過程のひとつは、いわゆるオージ ェ過程である。この過程では、ひとつの STE のエネ ルギーがもうひとつの STE へと付与されるものであ り、このような消光は、光励起された PbWO₄^[24]や ZnWO₄^[25]で報告されている。一方で、高い LET で のより速い立ち上がりについては、STE 形成と消光 との競合により説明される。

参考文献

- [1] D. A. Young, Radiat. Meas. 27 (1997) 575.
- [2] K. Kimura and J. Wada, Phys. Rev. B 48 (1993) 15535.
- [3] K. Kimura, K. Mochizuki, T. Fujisawa, and M. Imamura, Phys. Lett. 78A (1980) 108.
- [4] K. Kimura and W. Hong, Phys. Rev. B 58 (1998) 6981.
- [5] K. Kimura, J. Kaneko, S. Sharma, W. Hong, and N. Itoh, Phys. Rev. B 60 (1999) 12626.
- [6] K. Kimura, S. Sharma, and A. I. Popov, Radiat. Meas. 34 (2001) 99.
- [7] K. Kimura, S. Sharma, and A. I. Popov, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 191 (2002) 48.
- [8] M. Koshimizu, K. Asai, and H. Shibata, J. Lumin., 94-95 (2001) 407.
- [9] M. Koshimizu, K. Asai, and K. Kimura, Nucl. Instrum. Methods B, 212 (2003) 376.
- [10] Masanori Koshimizu, Kazuie Kimura, Yutaka Fujimoto, and Keisuke Asai, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 365 (2015) 540.
- [11] N. Kouchi, Y. Aoki, H. Shibata, S. Tagawa, H. Kobayashi, and Y. Tabata, Radiat. Phys. Chem. 34 (1989) 759.
- [12] H. Shibata, Y. Yoshida, S. Tagawa, Y. Aoki, and H. Namba, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A 327 (1993) 53.
- [13] M. Taguchi, Y. Aoki, H. Namba, R. Watanabe, Y. Matsumoto, and H. Hiratsuka, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 132 (1997) 135.
- [14] M. Koshimizu, K. Iwamatsu, M. Taguchi, S. Kurashima, A. Kimura, T. Yanagida, Y. Fujimoto, K. Watanabe, and K. Asai, J. Lumin., 169 (2016) 678.
- [15] Takayuki Yanagida, Masanori Koshimizu, Satoshi Kurashima, Kazuhiro Iwamatsu, Atsushi Kimura, Mitsumasa Taguchi, Yutaka Fujimoto, and Keisuke Asai, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 365 (2015) 529.
- [16] T. Yanagida, M. Koshimizu, Y. Fujimoto, S. Kurashima, K. Iwamatsu, A. Kimura, M. Taguchi. G. Okada, and N. Kawaguchi, submitted to Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.
- [17] M. J. Weber and R. R. Monchamp, J. Appl. Phys., 44 (1973) 5495.
- [18] S. Kurashima, N. Miyawaki, H. Kashiwagi, S. Okumura, M. Taguchi, and M. Fukuda, Rev. Sci. Instrum., 86 (2015) 073311.
- [19] M. Koshimizu, S. Kurashima, M. Taguchi, K. Iwamatsu, A. Kimura, and K. Asai, Rev. Sci. Instrum., 86 (2015) 013101.
- [20] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark, "The Stopping and Range of Ions in Solids," Pergamon Press, New York (1984).
- [21] O. H. Nestor and C. Y. Huang, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS22 (1975) 68.
- [22] M. Itoh and T. Katagiri, J. Phys. Soc. Jpn., 79 (2010) 074717.
- [23] J. Gironnet, V. B. Mikhailik, H. Kraus, P. de Marcillac, and N. Coron, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 594 (2008) 358.
- [24] M. Itoh, M. Horimoto, and M. Fujita, J. Phys: Condens. Matter 15 (2003) 193.

[17004]

[25] M. Itoh, T. Katagiri, T. Aoki, and M. Fujita, Radiat. Meas. 42 (2007) 545.