

[18001]

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)}, 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 scintillation properties of Ce:Gd₃Al₂Ga₃O₁₂ (GAGG), which are dependent on linear energy transfer (LET). The rise in the scintillation temporal profiles was slow at high LET, whereas the decay did not significantly depend on LET. The slow rise at high LET could be explained as follows. Competition among multiple excited states for energy transfer to a nearby Ce³⁺ ion led to failure in energy transfer for some of the excited states. Subsequent competition occurred among the residual excited states for energy transfer to the Ce³⁺ ions located far from the original position of the excited states, followed by quenching.

Keyword: linear energy transfer, scintillator, energy transfer, quenching

1. はじめに

重粒子線の飛跡近傍における高密度の電子励起状態は、時に、特殊な化学反応や柱状欠陥の形成などの照射効果をもたらす。このような照射効果の原因を解明するために、励起状態間の相互作用の基礎過程についての多様な研究が展開されてきた。また、このような高密度励起状態は、放射線検出器の応答においても、線エネルギー付与 (LET) に依存した応答をもたらす。LET に依存した応答は、シンチレータや熱蛍光体などの、放射線計測用蛍光体において顕著である。シンチレーションの収率については、50 年以上前に、Birks による現象論的な定式化がなされている^[1]。高 LET 放射線へのシンチレーション検出器の応用は、主に次の 2 点で行われる。一つは、加速器からの重粒子線の検出である。もう一つは、 ${}^6\text{Li} + n \rightarrow \alpha + {}^3\text{H}$ などの核反応を通じた中性子検出である。後者の場合には、 α 線やほかの重粒子線がシンチレータへとエネルギーを付与する。このような核反応を用いた中性子検出では、中性子検出の場合には高 LET 放射線によるエネルギー付与が生じ、ガンマ線検出の場合の低 LET 放射線とは異なるシンチレーション時間プロファイルが生じうる。これを用い、検出信号波形に基づいた中性子とガンマ線との弁別も可能となる^[2,3]。用途に応じて、LET に顕著に依存した、あるいはほとんど依存しないシンチレーション特性を有するシンチレータが求められる。しかし、所望の LET 依存性を呈する材料の設計は現状では困難であり、特に高 LET での励起状態間相互作用とダイナミクスに関する知見が不可欠である。

近年、我々は、LET に依存したシンチレーション時間プロファイルの観測を通じ、シンチレーション特性の LET 依存性について、その原因となる励起状態基礎過程を論じている。これまでに、Ce³⁺が発光中心として添加されているシンチレータにおいて、

LET に依存した時間プロファイルにおける立ち上がりを観測してきた。この結果は、ホストから Ce³⁺への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争^[4-6]、あるいは複数の励起状態の近接した Ce³⁺へのエネルギー移動の競合に起因する、高 LET での遅い立ち上がり^[4]が観測された。これに加えて、自己賦活型シンチレータである Bi₄Ge₃O₁₂では、減衰挙動においても LET 依存性が観測され、これは励起状態間相互作用による消光と発光との競合によるものであると結論づけられた^[7]。

本研究では、我々は Ce:Gd₃Al₂Ga₃O₁₂ (GAGG)のシンチレーション特性の LET 依存性を解析した。Ce:GAGG は最近、ガンマ線検出用シンチレータとして開発された^[8,9]。このシンチレータは、ガンマ線計測に適した高い密度とシンチレーション収率を有し、また Ce³⁺への遅いエネルギー移動を反映した遅い立ち上がりを示す。このような遅い立ち上がりは、これまでに顕著な LET 依存性を観測してきた他のシンチレータと共通する点である^[4-6]。また、単結晶と透明セラミクスでシンチレーションの収率が顕著に異なることが報告されており^[9]、両者でのエネルギー移動における効率が異なることが示唆される。このことは、単結晶と透明セラミクスで異なる LET 依存性を呈示する可能性を示唆する。そこで本件級では、これら両者について、LET 依存性を解析した。

2. 実験方法

Ce:GAGG の単結晶および透明セラミクスを試料とした。透明セラミクスは神島化学社製のものである。単結晶および透明セラミクスのサイズはそれぞれ、5 mm × 5 mm × 1 mm と 5 mmφ × 1 mm 厚であった。

シンチレーション時間プロファイルについては、

[18001]

量研機構の TIARA に設置している AVF サイクロトロンを用いて測定を行った。20 MeV H⁺、50 MeV He²⁺、および 220 MeV C⁵⁺ のパルスビームを空气中で試料に照射した^[10]。本研究の実験条件では、重いイオンほど LET が高い。ビーム強度は 10⁴ ions/pulse 以下であり、パルス間隔は 1 ms 以上であった。試料からのシンチレーションを光電子増倍管 (Hamamatsu R7400-U) で検出し、デジタルオシロスコープ (Tektronix DPO 7104) で記録した。加速器からのタイミング信号をデジタルオシロスコープへのトリガー信号とした。1000 パルスに渡る検出信号を平均してシンチレーション時間プロファイルとした。同じ測定系にて、プラスチックシンチレータ BC-400 の計測を行い、その時間プロファイルにおけるピークを、計測データの時間原点とした。計測系の時間分解能は、立ち上がり側の半値幅幅でおよそ 2 ns である^[11]。特定の波長領域の時間プロファイルの測定においては、光学フィルターを光電子増倍管の前に設置した。また、シンチレーションスペクトルの測定には、マルチチャンネル検出器 (Ocean Optics, USB-4000) を用いた。

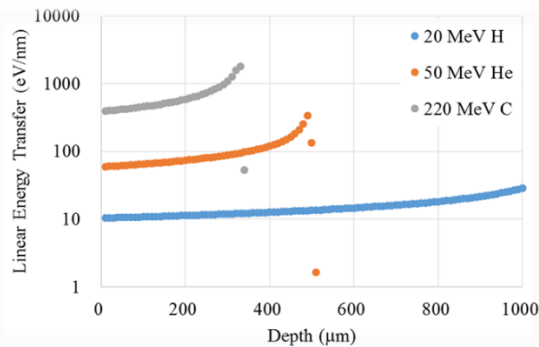


Figure 1. LETs for 20 MeV H⁺, 50 MeV He²⁺, and 220 MeV C⁵⁺ estimated using the SRIM code.

3. 結果と考察

図 1 に SRIM コード^[12]で推算した 20 MeV H⁺、50 MeV He²⁺および 220 MeV C⁵⁺の LET を示す。本研究で選択したイオン種では、おおよそ 2 桁、LET の異なる状況での照射を行ったこととなる。

図 2 に、50 MeV He²⁺照射下での単結晶および透明セラミックスのシンチレーションスペクトルを示す。Ce³⁺の 5d-4f 遷移に帰属される明瞭なピークが 550 nm 付近に観測された^[8,9]。同様のスペクトルが、他の照射イオンについても観測された。この結果から、シンチレーションは最終的に Ce³⁺の 5d-4f 遷移により生じることがわかる。

図 3 および図 4 に、単結晶および透明セラミックスのシンチレーション時間プロファイルをそれぞれ示す。高 LET での遅い立ち上がりが観測された。この挙動は、単結晶と透明セラミックスとで同様であった。特に、20 MeV H⁺を照射した場合の立ち上がりが顕著

に速かった。この LET 依存性は、これまでに Ce:Gd₂SiO₅ [4]、Ce:LiCaAlF₆ [5]、およびリチウムガラスシンチレータ [6] の場合とは逆である。一方で、減衰挙動においては、LET 依存性は顕著ではなかった。

。単結晶の方が透明セラミックスよりも減衰の速いという結果は、ガンマ線照射の場合と一致している^[8,9]。また、異なる波長域で観測した結果、観測された LET 依存性は、全ての波長域で一致していた。

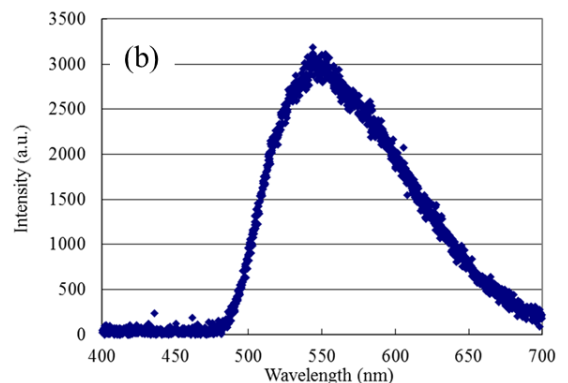
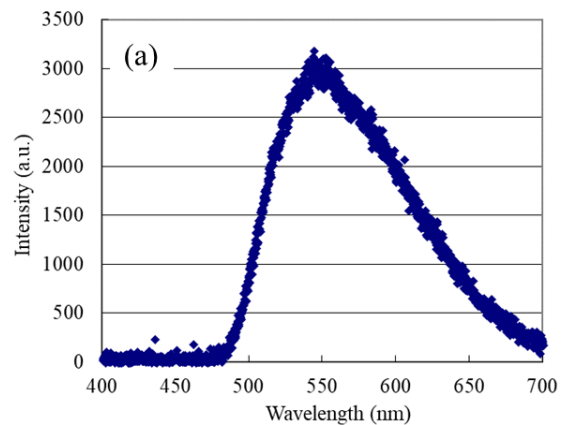


Figure 2. Scintillation spectra of the single crystal and transparent ceramics of Ce:GAGG under 50 MeV He²⁺ irradiation.

時間プロファイルにおける LET 依存性を論じるために、シンチレーション収率の LET 依存性を見積もった。図 3 および図 4 の結果に基づいて見積もると、付与エネルギーあたりのシンチレーション強度としての収率は、20 MeV H⁺、50 MeV He²⁺、および 220 MeV C⁵⁺に対して、単結晶について 1:0.55:0.096、透明セラミックスについては 1:0.30:0.067 であった。単結晶と透明セラミックスについて同様の比であった。この結果から、高 LET での過程では、励起状態間相互作用に基づく消光を含むと推察される。

Ce:GAGG におけるシンチレーションでは、励起状態は 3 段階の過程を経る。放射線入射直後、ほとん

[18001]

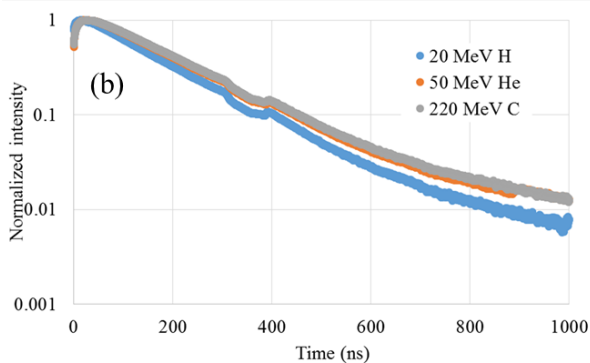
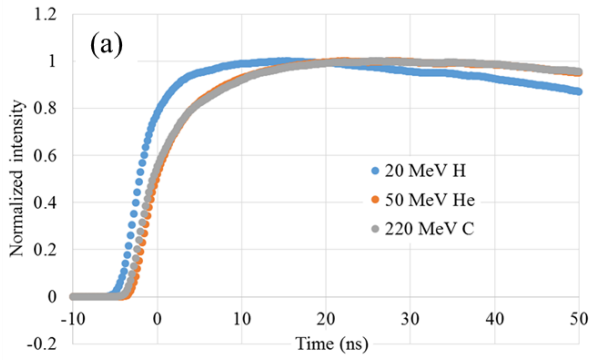


Figure 3. Scintillation temporal profiles of the single crystal of Ce:GAGG: (a) rise and (b) decay parts.

どの励起状態は、GAGG ホストで形成される。その後、ホストから発光中心である Ce^{3+} イオンへと励起エネルギーが移動する。最終的に、 Ce^{3+} での放射遷移によりシンチレーションが生じる。これらの段階の中で、エネルギー移動過程が立ち上がり、 Ce^{3+} での電子遷移過程が減衰に対応する。そのため、高 LET での消光も考慮すると、高 LET での遅い立ち上がりは、速いエネルギー移動成分が優先的に消光されたことに対応する。この過程の原因として考えられるのは、複数の励起状態からの近傍への Ce^{3+} のエネルギー移動過程の競合である。この競合により、励起状態の一部は、その Ce^{3+} へのエネルギー移動が不可能となる。そのため、遠くの Ce^{3+} へのエネルギー移動が生じる。高 LET ほど、近隣へのエネルギー移動の競合が激しくなるため、立ち上がりが遅くなる。また、近隣への移動の際には、励起状態間相互作用による消光も顕著であると考えられるため、速い立ち上がりの成分はより抑制される。同様の LET 依存性については、部分的に、Ce 添加 LiCaAlF_6 で観測された^[5]。他方、異なる LET 依存性が他の多くの Ce 添加シンチレータで観測されてきている^[4-6]。現状では、いずれの LET 依存性が生じるのかについて、材料特性との関連付けができておらず、これは今後の課題となる。

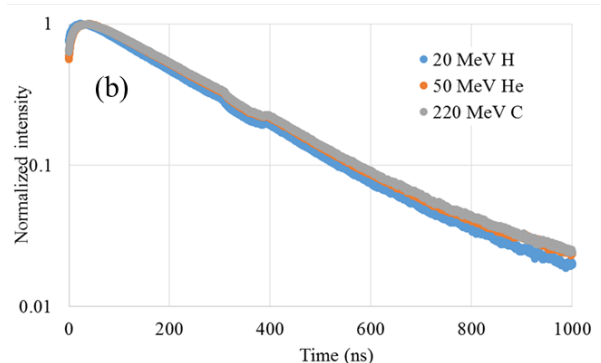
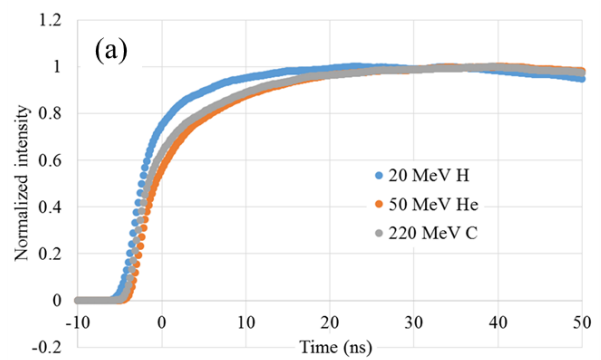


Figure 4. Scintillation temporal profiles of the transparent ceramics of Ce:GAGG: (a) rise and (b) decay parts.

4. 結論

本研究では、Ce:GAGG のシンチレーション特性の LET 依存性を解析した。異なる LET でのシンチレーション時間プロファイルに基づいて解析した。高 LET ほど遅い立ち上がりが観測された一方、減衰については、顕著な LET 依存性は観測されなかった。立ち上がりは、ホストから発光中心である Ce^{3+} へのエネルギー移動過程に対応している。そのため、高 LET での遅い立ち上がりは、複数の励起状態の、近隣の Ce^{3+} へのエネルギー移動の競合と、そのエネルギー移動過程と励起状態間相互作用による消光との競合により説明される。残った励起状態が遠くの Ce^{3+} へとエネルギー移動を行うことにより、高 LET で遅い立ち上がりが観測されたと推察される。

参考文献

- [1] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, New York, 1964.
- [2] C. Coceva, *Nucl. Instrum. Methods* 21 (1963) 93.
- [3] A. Yamazaki, K. Watanabe, A. Uritani, T. Iguchi, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Y. Fujimoto, Y. Yokota, K. Kamada, K. Fukuda, T. Suyama, A. Yoshikawa: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., A* 652 (2011) 435.

[18001]

- [4] T. Yanagida, M. Koshimizu, Y. Fujimoto, S. Kurashima, K. Iwamatsu, A. Kimura, M. Taguchi, G. Okada, N. Kawaguchi, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 409 (2017) 27.
- [5] T. Yanagida, M. Koshimizu, S. Kurashima, K. Iwamatsu, A. Kimura, M. Taguchi, Y. Fujimoto, K. Asai, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 365 (2015) 529.
- [6] M. Koshimizu, K. Iwamatsu, M. Taguchi, S. Kurashima, A. Kimura, T. Yanagida, Y. Fujimoto, K. Watanabe, K. Asai, J. Lumin., 169 (2016) 678.
- [7] M. Koshimizu, S. Kurashima, A. Kimura, M. Taguchi, T. Yanagida, Y. Fujimoto, K. Asai, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 409 (2017) 19.
- [8] K. Kamada, T. Yanagida, J. Pejchal, M. Nikl, T. Endo, K. Tsutsumi, Y. Fujimoto, A. Fukabori, and A. Yoshikawa, IEEE Trans. Nucl. Sci. 59 (2012) 2112.
- [9] T. Yanagida, K. Kamada, Y. Fujimoto, H. Yagi, T. Yanagitani, Opt. Mater. 35 (2013) 2480.
- [10] S. Kurashima, N. Miyawaki, H. Kashiwagi, S. Okumura, M. Taguchi, M. Fukuda, Rev. Sci. Instrum. 86 (2015) 073311.
- [11] M. Koshimizu, S. Kurashima, M. Taguchi, K. Iwamatsu, A. Kimura, K. Asai, Rev. Sci. Instrum. 86 (2015) 013101.
- [12] J. F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, The Stopping and Range of Ions in Solids, Pergamon Press, New York, 1984.