

[19001]

シンチレータにおける LET 効果の制御技術の開拓 Development of controlling technique of LET effects in scintillators

越水正典^{#A)}, 木村敦^{B)}, 倉島俊^{B)}, 田口光正^{B)}, 柳田健之^{C)}, 藤本裕^{A)}, 浅井圭介^{A)}
Masanori Koshimizu^{#A)}, Atsushi Kimura^{B)}, Satoshi Kurashima^{B)}, Mitsumasa Taguchi^{B)}, Takayuki Yanagida^{C)}, Yutaka
Fujimoto^{A)}, Keisuke Asai^{A)}

^{A)} Department of Applied Chemistry, Tohoku University

^{B)} Takasaki Advanced Radiation Research Institute, National Institute of Quantum and Radiological Science and
Technology

^{C)} Nara Institute of Science and Technology

Abstract

The effect of linear energy transfer (LET) on the scintillation properties of Ce-doped $\text{Ca}_3\text{B}_2\text{O}_6$ crystals was analyzed. The rise in the scintillation temporal profile was significantly slower for 20 MeV H^+ irradiation, which had the lowest LET among the experimental conditions considered in this study. Observations of the scintillation temporal profiles at different wavelengths revealed that a fast component in the ultraviolet (UV) region, which is attributed to localized centers such as defects, contributes to the shoulder structure at the rise. The relative contribution of the fast and Ce^{3+} emission components depends on the LET, which results in LET-dependent scintillation temporal profiles. The LET effect on the relative contribution of the two components is explained in terms of the competition between the energy transfer from the host to Ce^{3+} ions or the localized centers, and the quenching owing to the interaction between excited states prior to the energy transfer.

Keyword: linear energy transfer, scintillation, quenching

1. はじめに

凝縮相中で重粒子線は高密度にエネルギーを付与する。そのエネルギー付与密度は粒子の単位飛跡長さ当たりで表されることが多い。即ち、線エネルギー付与 (LET) である。高エネルギー光子や電子と比較すると、重粒子線の LET は高く、これが重粒子線特有の照射効果をもたらす。

放射線計測の観点からは、検出器の応答が LET に依存する。重粒子線による付与エネルギーを測定する場合には、検出器応答の LET 依存性を考慮する必要がある。シンチレーション検出器の場合には、Birks により提示されたシンチレーション収率の LET 依存性についての現象論的な定式化が長く用いられてきた^[1]。これは、時間積分量としてのシンチレーション収率についてのモデルであり、シンチレーション時間プロファイルや励起状態ダイナミクスの観点は含まれていない。このような観点から LET 効果を議論するためには、異なる LET でのシンチレーション時間プロファイルの解析が必要となる。

高 LET でのシンチレーション検出器の応用として重要なものの一つは、核反応を通じた熱中性子の検出である。中性子は電荷をもたないため、それ自身が電離や電子励起を生じることができない。そのため、熱中性子計測のためには、 ^6Li や ^{10}B といった、熱中性子と (n, α) 反応を生じる原子核を多量に含有したシンチレータが必要となる。この核反応による生成物は高い LET を有している。もしシンチレーション時間プロファイルに顕著な LET 依存性があれば、検出信号形状 (≒シンチレーション時間プロファイル) は、熱中性子とガンマ線の検出イベントで顕著

に異なることとなり、検出信号波形に基づいた弁別が可能となる^[2-4]。

これらの重要性を念頭に、我々はシンチレーション時間プロファイルの LET 依存性を解析してきた。自己賦活型シンチレータの一つである $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ では、高い LET での速い立ち上がりを観測し、シンチレーションと、励起状態間相互作用による消光に帰属した^[5]。一方、発光中心としてドーパントの添加されたシンチレータでは、二通りの LET 依存性を観測してきた。Ce 添加 Gd_2SiO_5 ^[6] や Ce 添加 Li ガラスシンチレータ (GS20)^[7] では、高い LET でより速い立ち上がりが観測され、ホストから発光中心へのエネルギー移動と、ホストでの励起状態間相互作用による消光との競合によるものと解釈した。それに対して、Ce 添加 LiCaAlF_6 ^[8] や Ce 添加 $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$ ^[9] では、高い LET で遅い立ち上がりが観測され、これは近隣の発光中心のエネルギー移動の競合によって、より遠い発光中心への移動を余儀なくされる励起状態が生じることによるものとした。これらのいずれの LET 依存性が生じるのかについて、どのような因子がカギを握るのか、まだ明らかにできていない。

本研究では、Ce 添加 $\text{Ca}_3\text{B}_2\text{O}_6$ の LET 依存性を解析した。希土類添加 $\text{Ca}_3\text{B}_2\text{O}_6$ は LED への応用を想定した蛍光体とし優れた特性が報告されてきた^[10-17]。近年では、希土類をドーブした $\text{Ca}_3\text{B}_2\text{O}_6$ のシンチレーション特性が報告されてきた^[18-20]。 ^{10}B の同位体濃縮結晶を用いれば、これらの結晶は $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ という核反応に基づく中性子計測が可能である。Ce 添加結晶では、発光中心である Ce^{3+} イオンの 5d-4f 遷移に基づくシンチレーションが熱中性子に対しても

[19001]

観測されている^[19]。本稿では、Ce 添加 $\text{Ca}_3\text{B}_2\text{O}_6$ の LET に依存したシンチレーション時間プロファイルの解析結果を報告する。

2. 実験方法

試料として Ce 添加 $\text{Ca}_3\text{B}_2\text{O}_6$ の単結晶を用いた。Ce 濃度は 3 mol% であり、厚さは約 1 mm であった。測定は 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励起源として行われた。LET を変化させるため、20 MeV H^+ 、50 MeV He^{2+} 、および 220 MeV C^{5+} のパルスビームを用いた。これらのイオンでは、重いイオンほど高い LET でエネルギーを付与する。2 種類のチョッパーを用いてパルスビームを構成した^[21]。パルス周波数は 100 Hz 以下とした。パルス当たりの粒子数は 10^4 以下である。

試料は空气中で照射され、その際に生じるシンチレーションは光電子増倍管 (Hamamatsu R7400-U) で検出された。検出信号はデジタルオシロスコープ (Tektronix DPO 7104) で 1000 パルス分平均化され、シンチレーション時間プロファイルとして記録された。特定の波長領域の時間プロファイルの測定では、光電子増倍管の前に分光フィルターを設置した。測定系の時間分解能は、半値半幅で約 2 ns であった^[22]。シンチレーションスペクトルは分光器 (Ocean Optics) により取得した。

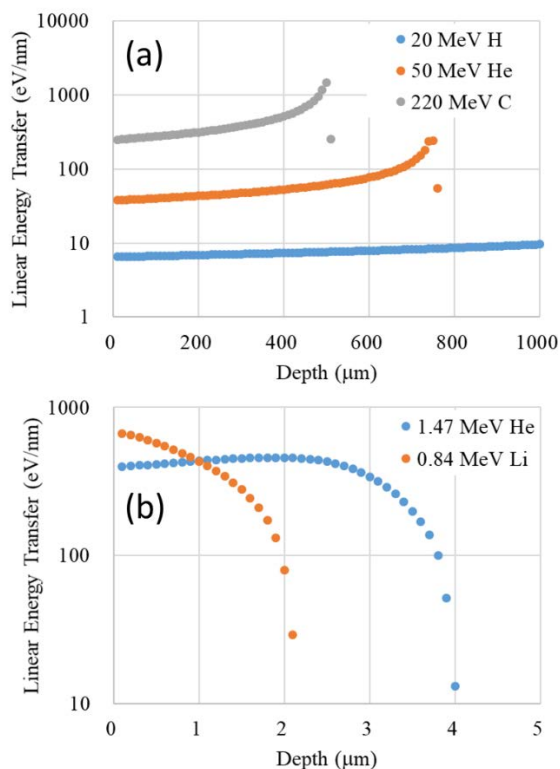


Figure 1. Linear energy transfer of (a) 20 MeV H^+ , 50 MeV He^{2+} , and 220 MeV C^{5+} and (b) 1.47 MeV He and 0.84 MeV ^7Li , estimated using the SRIM code.

3. 結果と考察

図 1 (a) に SRIM コード^[23]により推算された、20 MeV H^+ 、50 MeV He^{2+} 、および 220 MeV C^{5+} の試料中での LET を示す。重いイオンでより高い LET となった。図 1 (b) に $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}^*$ という核反応により生じる 1.47 MeV He と 0.84 MeV ^7Li の LET を示す。本研究での LET の範囲は、これらの核反応生成物の LET をカバーするものとなっている。

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。390 nm に明瞭に観察されたピークは、 Ce^{3+} イオンの 5d-4f 遷移に帰属される^[19]。同様のスペクトルが、50 MeV He^{2+} および 220 MeV C^{5+} の照射でも観測された。この結果より、試料でのシンチレーションは、ホストで生じた励起状態が発光中心となる Ce^{3+} に移動し、その後に発光が生じることが示された。

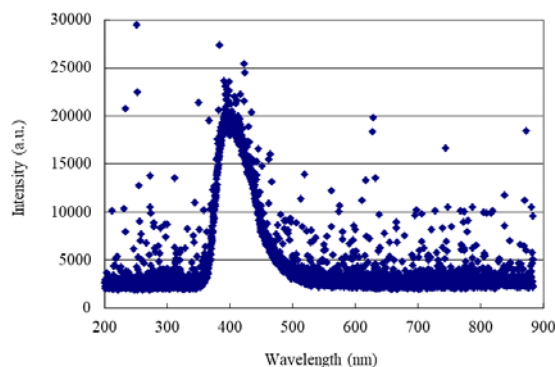


Figure 2. Scintillation spectrum of $\text{Ca}_3\text{B}_2\text{O}_6:\text{Ce}$ under 20 MeV H^+ irradiation.

図 3 (a) および (b) に、立ち上がりおよび減衰部分のシンチレーション時間プロファイルをそれぞれ示す。シンチレーションは Ce^{3+} イオンの 5d-4f 遷移として得られているので、時間プロファイルは励起 Ce^{3+} イオンの分布の時間発展となる。そのため、立ち上がりは、時間経過に伴う励起 Ce^{3+} イオンの増大を示す。この増大は、ホストから Ce^{3+} イオンの励起エネルギー移動によるものである。一方で、減衰は、放射失活による励起 Ce^{3+} イオンの現象に対応する。この減衰は、光励起の場合と比較して顕著に遅い^[19]。これはホストから Ce^{3+} へのエネルギー移動の遅さを反映したものである。立ち上がりは 20 MeV H^+ 照射の場合で、他のイオン照射の場合よりも顕著に速かった。さらに、小さいショルダーが立ち上がりの箇所を観測された。一方で、減衰挙動における違いはほとんど見られなかった。図 4 は異なる波長でのシンチレーション時間プロファイルである。凡例に示されている波長はバンドパスフィルターの中心波長である。図 2 に示されているシンチレーションスペクトルのピーク波長 (390 nm) と、短波長 (360 nm) および長波長 (450 nm) 側の領域を一つずつ選択した。360

[19001]

nm での時間プロファイルはその他の波長のものと顕著に異なり、高速減衰成分が観測された。その時定数は数 ns 以下であり、 Ce^{3+} の発光には帰属されず、おそらくホスト中の格子欠陥などによるものと推察される。この高速成分の寄与は、高い LET で低くなった。

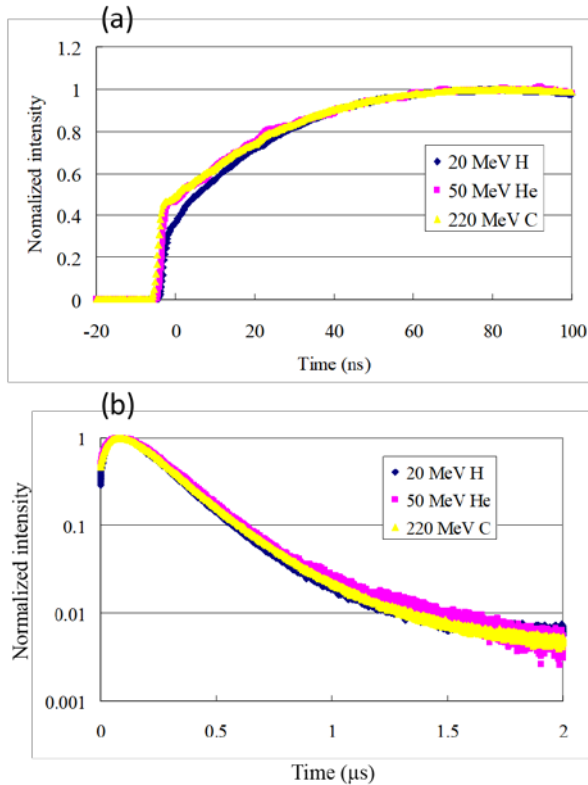


Figure 3. (a) Rise and (b) decay parts of the scintillation temporal profiles of Ce-doped $Ca_3B_2O_6$, under irradiations of 20 MeV H^+ , 50 MeV He^{2+} , and 220 MeV C^{5+} .

これらの結果に基づいて、LET 依存性の原因について考察する。図 3 (a)で観測された立ち上がりにおけるショルダーは、図 4 で 360 nm で観測された高速減衰成分に対応する。20 MeV H^+ で観測された立ち上がり形状の違いは、異なる LET でこの高速減衰成分の寄与が異なるためである。一般的に、LET 効果は励起状態間相互作用による消光の観点で議論される。当初ホストに生じた励起状態は、時間とともに、発光中心である Ce^{3+} イオンや、高速減衰成分の原因となる格子欠陥などに移動する。移動後には、励起状態間相互作用による消光は生じない。これは、LET に依存しない減衰挙動という結果に表れている。我々の以前での報告^[6,7]と同様に、消光は励起エネルギー移動前にホストで生じていると考えられる。高速減衰成分の速い立ち上がりを考慮すると、励起状態の一部は即座に格子欠陥に捕獲される。一方で、 Ce^{3+} への移動はより遅い過程であるため、その前には高い

LET で顕著に消光される。これらの競合過程により、観測された LET 依存性が説明される。

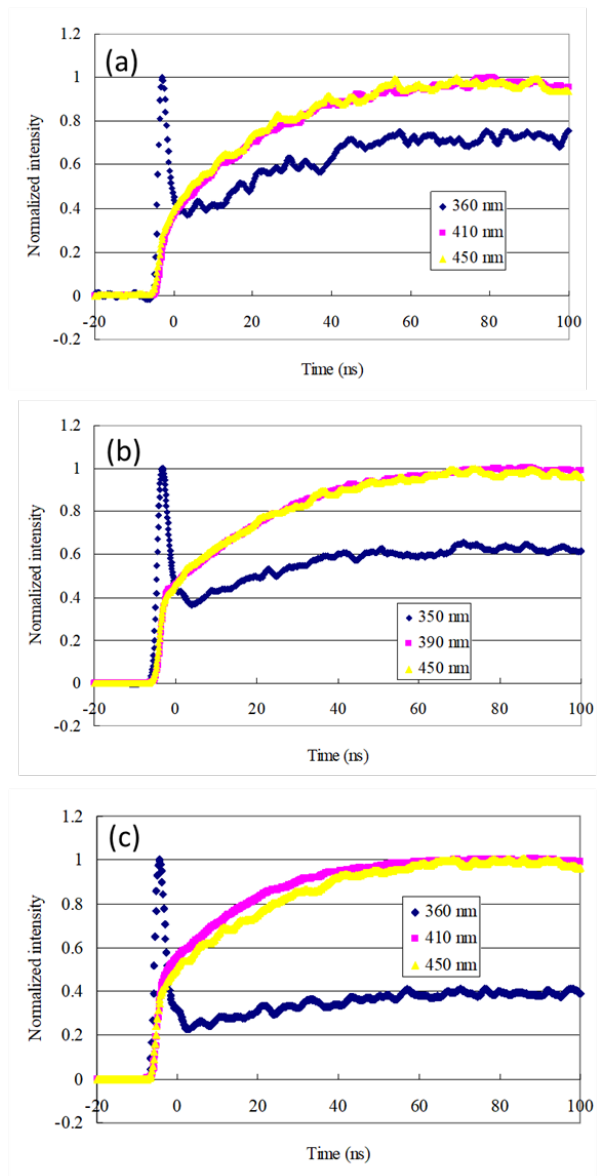


Figure 4. The scintillation temporal profiles of Ce-doped $Ca_3B_2O_6$ under (a) 20 MeV H^+ , (b) 50 MeV He^{2+} , and (c) 220 MeV C^{5+} , for different wavelengths.

参考文献

- [1] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, New York, 1964.
- [2] S. Marrone, D. Cano-Ott, N. Colonna, C. Domingo, F. Gramegna, E.M. Gonzalez, F. Gunsing, M. Heil, F. Käppeler, P. F. Mastinu, P. M. Milazzo, T. Papaevangelou, P. Pavlopoulos, R. Plag, R. Reifarh, G. Tagliente, J.L. Tain, K. Wisshak, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 490 (2002) 299.
- [3] P. -A. Söderström, J. Nyberg, R. Wolters, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 594 (2008) 79.

[19001]

- [4] 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.
- [5] M. Koshimizu, S. Kurashima, A. Kimura, M. Taguchi, T. Yanagida, Y. Fujimoto, K. Asai, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 409 (2017) 19.
- [6] 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.
- [7] M. Koshimizu, K. Iwamatsu, M. Taguchi, S. Kurashima, A. Kimura, T. Yanagida, Y. Fujimoto, K. Watanabe, K. Asai, J. Lumin., 169 (2016) 678.
- [8] 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.
- [9] M. Koshimizu, S. Kurashima, A. Kimura, M. Taguchi, T. Yanagida, H. Yagi, T. Yanagitani, Y. Fujimoto, K. Asai, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B in press.
- [10] X. Y. Sun, J. C. Zhang, X. G. Liu, L. W. Lin, Physica B 406 (2011) 4089.
- [11] X. Y. Sun, J. C. Zhang, X. G. Liu, L. W. Lin, Ceram. Int. 38 (2012) 1065.
- [12] Q. Liu, Y. Liu, F. Yang, B. Han, H. Feng, Q. Yu, Funct. Mater. Lett. 7 (2014) 1450033.
- [13] X. Zhang, Q. Lian, J. Zhang, P. Cai, S. I. Kim, H. J. Seo, Ceram. Int. 41 (2015) 3469.
- [14] M. Manhas, V. Kumar, O. M. Ntwaeaborwa, H. C. Swart, Mater. Res. Express 2 (2015) 075008.
- [15] M. Manhas, V. Kumar, O. M. Ntwaeaborwa, H. C. Swart, Ceram. Int. 42 (2016) 5743.
- [16] M. Shi, C. Zhu, M. Lu, X. Meng, M. Wei, J. Am. Ceram. Soc. 101 (2018) 5461.
- [17] A. N. Yerpude, S. J. Dhoble, N. S. Kokode, Optik 179 (2019) 774.
- [18] Y. Fujimoto, Y. Futami, T. Yanagida, S. Kurosawa, N. Kawaguchi, K. Fukuda, D. Totsuka, A. Yoshikawa, Key Eng. Mater. 508 (2012) 235.
- [19] Y. Fujimoto, T. Yanagida, H. Tanaka, Y. Yokota, N. Kawaguchi, K. Fukuda, D. Totsuka, K. Watanabe, A. Yamazaki, A. Yoshikawa, J. Cryst. Growth 318 (2011) 784.
- [20] Y. Fujimoto, T. Yanagida, Y. Yokota, N. Kawaguchi, K. Fukuda, D. Totsuka, K. Watanabe, A. Yamazaki, V. Chani, A. Yoshikawa, Phys. Status Solidi b 248 (2011) 444.
- [21] S. Kurashima, N. Miyawaki, H. Kashiwagi, S. Okumura, M. Taguchi, M. Fukuda, Rev. Sci. Instrum. 86 (2015) 073311.
- [22] M. Koshimizu, S. Kurashima, M. Taguchi, K. Iwamatsu, A. Kimura, K. Asai, Rev. Sci. Instrum. 86 (2015) 013101.
- [23] J. F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, The Stopping and Range of Ions in Solids, Pergamon Press, New York, 1984.