

[15014]

シンチレーションダイナミクスに対する励起密度効果の解析 ANALYSIS OF EXCITATION DENSITY EFFECTS ON THE SCINTILLATION DYNAMICS

越水正典^{#A)}, 岩松和宏^{B)}, 田口光正^{C)}, 倉島俊^{C)}, 木村敦^{C)}, 柳田健之^{D)}, 藤本裕^{A)}, 渡辺賢一^{E)}, 浅井圭介^{A)}
Masanori Koshimizu ^{#A)}, Kazuhiro Iwamatsu ^{B)}, Mitsumasa Taguchi ^{C)}, Satoshi Kurashima ^{C)}, Atsushi
Kimura ^{C)}, Takayuki Yanagida ^{D)}, Yutaka Fujimoto ^{A)}, Kenichi Watanabe ^{E)}, Keisuke Asai ^{B)}

^{A)} Tohoku University

^{B)} University of Notre Dame

^{C)} Japan Atomic Energy Agency

^{D)} Nara Institute of Science and Technology

^{E)} Nagoya University

Abstract

The influence of linear energy transfer (LET) on the scintillation process in a Li-glass scintillator, GS20, is analyzed. The rise was faster at high LET in the temporal profiles of scintillation. The LET effect is explained with the competition between the energy transfer from the glass host to Ce^{3+} ions and quenching owing to interaction between excited states.

Keyword: linear energy transfer, quench, scintillator, thermal neutron detection

1. はじめに

シンチレータにおける線エネルギー付与 (LET) の効果は、技術的には、2つの観点から注目される。一つは、核分裂生成物やイオンビームなど、高エネルギー重粒子の検出に用いられる場合である。もう一つは、熱中性子の検出に関連する。中性子は電荷を持たないため、物質中で電子励起や電離を直接的に生じることができない。そのため、熱中性子の検出においては、核反応により生じる荷電粒子を用いることが多い。 ${}^6\text{Li}$ や ${}^{10}\text{B}$ を含有するシンチレータでは、これらの原子核と熱中性子との核反応により、高エネルギーの ${}^3\text{H}$ や ${}^7\text{Li}$ 、あるいは α 線が生じる。これらの粒子のエネルギーは MeV オーダーであるため、高エネルギー光子や電子線と比較すると、その LET ははるかに高い。もし、LET の違いにより、シンチレーション時間プロファイルの顕著な差が生じる場合、検出信号波形に基づき、熱中性子と γ 線との検出イベントの弁別が可能となる^[1]。シンチレータの材料設計を通じて、このような LET 効果を制御することができれば、熱中性子や高エネルギー重粒子検出技術はより高度なものへと進化する。しかしながら、シンチレーションにおける LET 効果の解析はほとんど進んでいない。

本研究では、リチウムガラスシンチレータ GS20 (あるいは NE905) のシンチレーションにおける LET 効果を解析した。このシンチレータは、Saint Gobain 社から販売されている市販のシンチレータであり、 ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ 反応に基づき、熱中性子検出に使用されている^[2]。Spowart らは、NE905 の基礎特性を報告している^[3-5]。彼らは、5.5 MeV の α 線と熱中性子検出イベントにおいて、時間プロファイルが若干異なることを報告している^[4]。また、いくつかのグループが、検出信号波形に基づく γ 線と熱中性子検出イベントの弁別を報告している^[6-8]。しかし、励起状

態ダイナミクスの観点から、この LET 効果の発現機構は不明である。そこで本研究では、サイクロトロン加速器からのパルスイオンビームを用い、シンチレーション時間プロファイルの観測を通じ、この LET 効果の基礎過程を解明した。

2. 実験方法

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、シンチレーション時間プロファイルの測定を行った。測定系の詳細については既に報告している^[9]。20 MeV H^+ 、50 MeV He^{2+} 、および 220 MeV C^{5+} のパルスイオンビームを用いた。空气中で GS20 を照射し、そのシンチレーションを光電子増倍管 (R7400U, 浜松ホトニクス) で検出した。デジタルオシロスコープ (Tektronix DPO 7104, 帯域: 1 GHz) にて検出信号を記録した。パルスビーム発生と同期した信号をトリガーとして用いた。1000 回の検出信号の平均を時間プロファイルとして取得した。パルスビームの発生頻度は 100 Hz 以下であり、パルスあたりのイオン数は 10^4 以下であった。また、この系で測定したプラスチックシンチレータ BC400 の時間プロファイルのピーク位置を、時間軸の原点とした。また、マルチチャンネル分光器 (USB-4000, Ocean Optics) を用いてシンチレーションスペクトルを取得した。

3. 結果と考察

3.2 PDF へ変換

GS20 における各イオンの LET を、SRIM コードを用いて見積もった^[10]。20 MeV H^+ 、50 MeV He^{2+} 、および 220 MeV C^{5+} の LET はそれぞれ 5, 40, および 300 eV/nm と見積もられた。 ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ 反応によって発生

[15014]

する粒子である、2.73 MeV ^3H と 2.05 MeV ^4He の LET はそれぞれ 60 および 300 eV/nm と見積もられた。そのため、本研究で用いたイオンビームの LET の範囲は、熱中性子検出において発生する粒子の LET をカバーする。

図 1 に、50 MeV He^{2+} を照射した際の GS20 のシンチレーションスペクトルを示す。他のイオンや X 線を照射した際にも、同様のスペクトルが観測された。このシンチレーションは、 Ce^{3+} イオンの 5d-4f 遷移に帰属される。比較的幅広い発光帯が観測されたのは、ガラス中のランダムポテンシャルによる不均一広がりに帰属される。

図 2 に、シンチレーション時間プロファイルのうち、立ち上がり部分を示す。低い LET である 20 MeV H^+ の場合に顕著に遅い立ち上がりが観測された。一方、図 3 に、減衰部分を示す。立ち上がり部分とは対照的に、減衰挙動は 1 μs 程度まで、LET にそれほど依存していなかった。

観測された LET 依存性を以下で考察する。このシンチレータにおけるシンチレーション機構は、大まかに以下の 3 段階に分かれる。段階 1：ホストガラス中での高密度な励起状態生成、段階 2：ホストガラスから Ce^{3+} へのエネルギー移動、段階 3： Ce^{3+} の 5d-4f 遷移による発光、の 3 段階である。シンチレーション時間プロファイルにおいて、段階 2 と 3 はそれぞれ立ち上がりと減衰部分に対応する。本研究の結果では、LET 効果は立ち上がり部分では観測されたものの、減衰挙動では観測されなかった。そのため、LET 効果は段階 2 で生じたと考えるのが妥当である。即ち、励起状態間相互作用が、ホストガラスから Ce^{3+} へのエネルギー移動過程に影響を与えたということとなる。

高い LET ではより速い立ち上がりが見られた結果について、以下では 2 つの仮説を提示する。一つは、高い LET における励起状態間相互作用により、 Ce^{3+} へのエネルギー移動が促進されたというものである。この場合、発光量は LET とともに増大するはずである。もう一つは、励起状態間相互作用による消光とエネルギー移動とが競合関係にあり、見かけ上、立ち上がりが速くなったというものである。この場合には、発光量は LET とともに減少する。残念ながら、本研究の測定系では、発光量の LET 依存性を正確には評価できない。しかし、GS20 における α/β 比（同一エネルギーの α 線および β 線入射に対する発光量の比）が 0.23 であることを考慮すると^[11]、発光量は LET の減少関数であると推察される。このことに基づくと、後者の仮説が妥当である。即ち、 Ce^{3+} へのエネルギー移動により時間を要する励起状態が、優先的に励起状態間相互作用により消光するため、高い LET では、見かけ上、立ち上がりが速くなるというものである。

この LET 効果の発現機構は、高い LET におけるシンチレーション過程において重要な観点を提示する。即ち、消光がナノ秒程度の時間スケールにおいて生じることである。エネルギー移動に要す

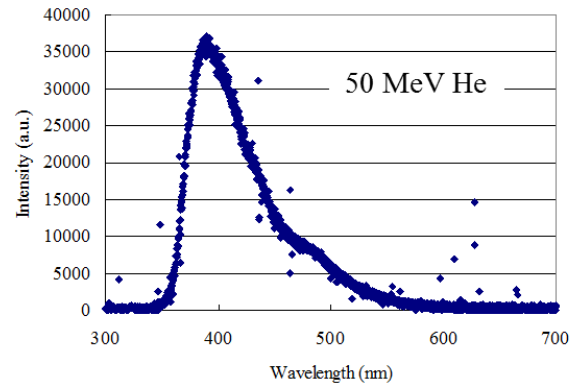


Figure 1. Scintillation spectrum of GS20 under irradiation of 50 MeV He^{2+} .

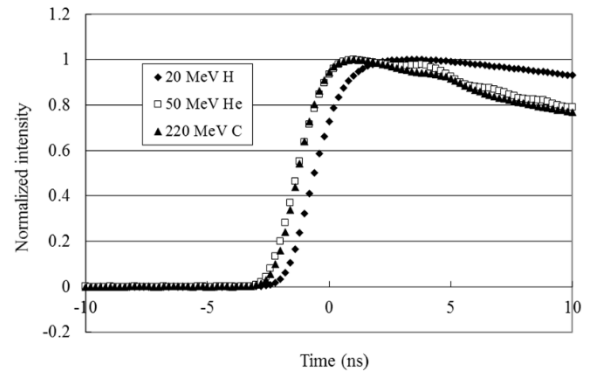


Figure 2. Rise part of the temporal profiles of scintillation under irradiation of different ions.

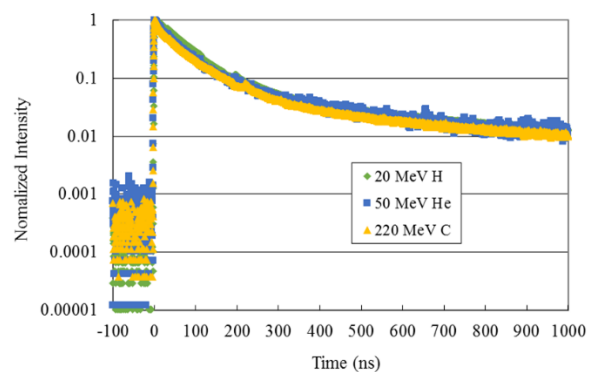


Figure 3. Decay part of the temporal profiles of scintillation under irradiation of different ions.

る時間がかかる短い系においては、高い LET における消光が抑制される可能性が高い。例えば、GS20 と類似した組成の系において、 Ce^{3+} 濃度を高くする

[15014]

ことによりエネルギー移動速度を向上させた場合、LET 効果を抑制することが可能となると推察される。これらの結果と議論から、例えばドーパント濃度を通じた LET 効果の制御性が予見される。

参考文献

- [1] J.B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, New York, 1964.
- [2] A.R. Spowart, *Nucl. Instrum. Methods*, 75 (1969) 35.
- [3] A.R. Spowart, *Nucl. Instrum. Methods* 135 (1976) 441.
- [4] E.J. Fairley and A.P. Spowart, *Nucl. Instrum. Methods* 150 (1978) 159.
- [5] A.R. Spowart, *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 12 (1979) 3369.
- [6] C. Coceva, *Nucl. Instrum. Methods*, 21 (1963) 93.
- [7] R.A. Winyard, J.E. Lutkin, and G.W. McBeth, *Nucl. Instrum. Methods*, 95 (1971) 141.
- [8] S. Sakamoto, *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. A*, 299 (1990) 182.
- [9] M. Koshimizu, S. Kurashima, M. Taguchi, K. Iwamatsu, A. Kimura, and K. Asai, *Rev. Sci. Instrum.*, 86 (2015) 013101.
- [10] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark, "The Stopping and Range of Ions in Solids," Pergamon Press, New York (1984).
- [11] Lithium Glass scintillator, Saint-Gobain data sheet:
<http://www.crystals.saint-gobain.com/uploadedFiles/SG-Crystals/Documents/Glass%20Scintillators.pdf>