CeF_3 結晶における発光時定数およびα/γ比の測定

中村 奈津子
*
京都大学大学院理学研究科物理学第二教室 高エネルギー研究室

1 Feb. 2000

Abstract

CeF_3 シンチレーターは、さまざまな良い性質を持ち、注目されている。近年安定した供給が可能になってきたこの結晶の発光量、及び発光時間スペクトルの測定を、特にα粒子とγ線に対する反応の違いに注目して行なった。実験の結果、単位エネルギー当たりの発光量のα/γ比は 0.13 ± 0.01 と求まった。また、時定数は $\tau_f(\gamma)=3.4 \pm 0.5$ ns, $\tau_f(\alpha)=2.1 \pm 0.4$ ns, $\tau_s(\gamma)=31 \pm 5$ ns, $\tau_s(\alpha)=24 \pm 5$ ns であり、α線に対してはγ線に対する反応に比べて、発光に占める fast 成分の比率が高くなることがわかった。

目 次

1 序章

電離性放射線の通過により発光する物質、すなわちシンチレータを用いて放射線を計測することは、すでに百年近い歴史を持つ標準的な手段である。ある種のシンチレータは、入射粒子の全エネルギーを ns のオーダーで光に変換することが可能であり、高速エネルギー測定器としても有用である。シンチレータは大別して無機シンチレータと有機シンチレータに分類出来る。このうち無機シンチレータは X 線や γ 線にも感度が高いので、素粒子・原子核実験、宇宙線観測、医療用等様々な分野で応用範囲が広がっている。

こうした分野における様々な技術進歩とともに、近年無機シンチレータに対する性能要求も一段と高くなってきた。例えば医療分野においては、X 線撮像用に発光量が多くかつ発光時間の短い高性能無機シンチレータの開発が要求されている。またこれからの素粒子実験においても、この種の粒子線検出器を欠かすことはできない。測定すべき粒子線のエネルギーが大きくなり、かつ事象頻度が増大することが予想される中で、stopping power が大きく、発光が速く、安定した性質を持つ安価なカロリメータの開発は、この分野の重要な課題である。また粒子弁別などのより機能が高いシンチレータの開発も緊急の課題といえよう。何故ならばハドロン加速器による次世代実験では、高い中性子バックグランド環境が予想され、そうした環境下においても光子検出器として安定して運用できることが求められるからである。より具体的に言えば、K_L の rare decay 実験 ($K_L \to \pi^0 \nu\bar{\nu}$) においてはビーム中の中性子によるバックグランドが問題となるが、gamma/neutron 弁別が可能な光子検出器を用いれば、このような偽のシグナルを低減することが可能となる。また、K^+ の rare decay 実験 ($K^+ \to \pi^+ \nu\bar{\nu}$) におけるようにビーム中のハドロン（主に、パイオンや中性子）による over veto によって測定器のアクセプタンスが低下する場合は、これを改善することも可能となる。以上の例からも分かるように、シンチレ-タの発光特性によって γ 線からの信号と中性子からの信号を分離出来れば、より信頼性の高い実験が可能となるであろう。

この論文では、上記の条件を満たす理想的な無機シンチレータとして期待を集めているフッ化セリウム結晶 ($\mathrm{CeF_3}$) の発光特性について研究を行った。$\mathrm{CeF_3}$ は特にγ線カロリメータとしての関心が高いことから、これまでもγ線に対する発光量、発光時間はさまざまに測定されてきたが、他の粒子線に対する反応は研究が進んでいない。この研究における主たる動機は、$\mathrm{CeF_3}$ 結晶の中性子に対する応答はγ線に対する応答と差異が存在するか、もし異なるならばそれを利用して粒子弁別が可能か、という点にある。しかしながら実際の実験においては中性子の替わりに $^{241}\mathrm{Am}$ からのα線を用いた。理由は以下のとおりである。中性子、特に低エネルギーの中性子は陽子やαを放出することにより発光する。高エネルギーになればパイ粒子の生成など他の過程も発光に関与する。従って複雑な過程を分析する前に素過程である陽子やα線に対する応答を理解することが重要である。このことにより $\mathrm{CeF_3}$ 結晶の発光素過程に対する知見をも深める事が出来ると考えられる。中性子源、特に単色中性子源が手近に無いこともα線ソースを利用した 1 つの理由である。測定物理量としては、最も基本的な量である発光量と発光時間スペクトルに注目した。これらの測定量を $^{22}\mathrm{Na}$ からのγ線に対する反応と比較した。

本論文の構成は以下の通りである。まず第 2章では今日までに知られている、$\mathrm{CeF_3}$ 結晶の発光特性、発光過程等を他の無機シンチレータとも比較しながら説明する。第 3章では実験方法とその結果を詳述する。第 4章では実験結果を述べ、その結果に対して議論を行う。

Density [g/cm^3]	6.16
Radiation length [cm]	1.68
Molière radius [cm]	2.63
Emission peak [nm]	286,300,340
Melting temperature [℃]	1443

表 1: General properties of CeF_3

	density (g/cm^3)	hygroscopic	λ_{max} (nm)	index refr.	photons /MeV	decay time (ns)
NaI(Tl)	3.67	yes	415	1.85	38,000	230
BaF_2	4.89	no	195,220	1.49	1,800	0.8
			310		10,000	630
BGO	7.13	no	480	2.15	700	60
			480	2.15	7,500	300
CsI(Tl)	4.51	no	540	1.80	59,000	800
					5,400	6,000
CsI(pure)	4.51	no	315	1.80	2,300	16
CeF_3	6.16	no	340	1.62	4,200*	27*
			300		200*	3*

*sample によってことなる。

表 2: シンチレータの特性

2 フッ化セリウム結晶

2.1 フッ化セリウムの性質

これからのカロリメータとして要求される特性は、サイズを抑えるために密度が高いこと (> 5g/cm^3)、長い結晶での光量の一様性のために透過率が良いこと、十分高いエネルギー分解能が得られるために光量が多いこと、高い反応レートに対応するため発光時間が短いこと、1 Mrad/yr 近い放射線に耐える耐放射線強度、そして安価であることである。

1989 年、Anderson[3] や Derenzo and Moses[4] が独立に数 cm^3 の小さなサンプル結晶で CeF_3 の発光が速いことを発見した。当時は表 1に示したような一般的特性以外は、CeF_3 についてほとんど知られていなかった。

1990 年、Crystal Clear Collaboration(CCC)[2] が CeF_3 の特性評価研究に着手し、γ線カロリメータとして望ましい種々の性質を持つことを明らかにした。NaI、BaF_2 などの、良く利用される無機シンチレータとの比較を表 2に示す。また、Inagaki [12] による発光波長スペクトルを図 1に示す。CeF_3 はγ線検出器として次のような性質を持つ：

- 密度は 6.16 g/cm^3 であり、非常に大きくそれゆえ放射長が 1.68 cm と短い。常用される無機シンチレータでは BGO を除いて最も重いものである。

- 発光の遅い成分でも $\sim$ 30ns の時定数を持ち、発光が速い。BaF_2（速い成分）を除けば最速の無機

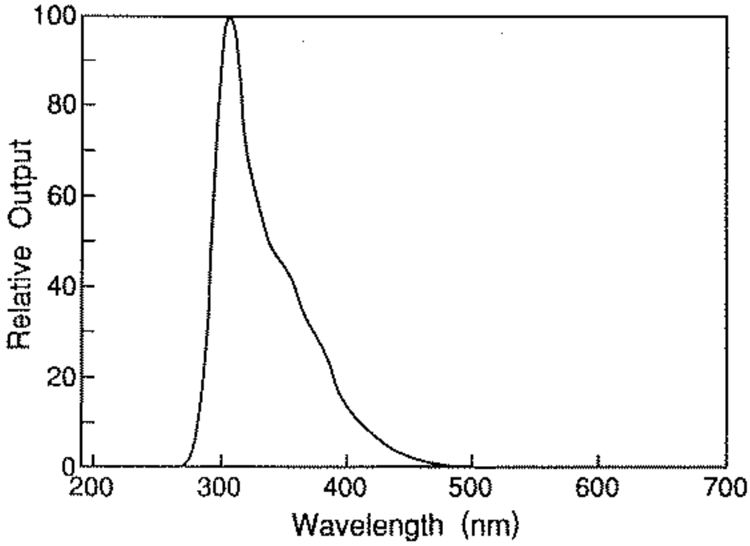


図 1: CeF_3 の発光波長スペクトル。^{137}Cs のγ線による励起の発光。

シンチレータの 1 つといって良い。

- 発光波長がλ~ 300nm であり、石英または UV ガラス・ウィンドウの PMT に対して優れた量子効率が期待できる。
- 加工しやすくて割れにくい。
- Molière radius が小さい。
- 潮解性がない。
- 光量が温度にあまり依存しない。-200 ℃ ~ 100 ℃の範囲で、光量の変化は 0.14 %/deg というほぼ一定の低い値となる。
- 透明度が高い。
- 反射係数が小さいので複数の結晶をつないで使える。

2.2 発光機構

CeF_3 のエネルギーバンド構造を図 2に示す。Core level より上の軌道には、2P(F) に八つ、4f(Ce) に一つの電子がある。

CeF_3 の発光は、Ce^{3+} の 5d level の励起状態から 4f level の基底状態への遷移によって起こる (図 2の a.)。通常のセリウムは 286 nm と 305 nm の emission band に寄与し、摂動状態のセリウムは 340 nm 付近に広がった emission band に寄与する。摂動状態は格子欠陥 (主として F の存在しない格子) や不純物 (酸素等) によっておこるので、結晶の質が発光スペクトルを決めるといえる。

5d と 4f の遷移は光 (通常の Ce^{3+} に対しては 250nm、摂動状態の Ce^{3+} に対しては 286nm) により直接的に励起することが可能で、この方法を用い発光過程の詳細を調べることができる。摂動状態からの発光が少ない結晶においては、通常の Ce^{3+} と摂動状態の Ce^{3+} の直接励起による発光時間スペクトルは

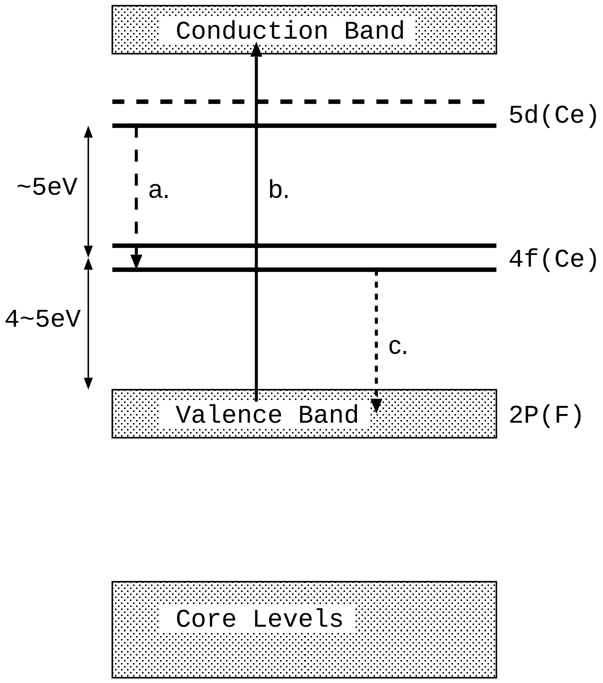


図 2: CeF_3 のエネルギー構造。a. は発光の起こる遷移。b. はフッ素の励起。 c. は b. で 2P(F) に生じた正孔の捕獲。

exponential であり、通常の Ce^{3+} に対しては 20 ns 、摂動状態の Ce^{3+} に対しては 30 ns の時定数を持つ。摂動状態の Ce^{3+} を 250 nm で直接励起すると、通常状態の Ce^{3+} から摂動状態の Ce^{3+} へのエネルギー移行にある時間が必要で、これに対応して無視できない立ち上がり時間が生じる。340 nm に強い発光帯のある結晶では、通常の Ce^{3+} の直接励起に対する崩壊曲線は non-exponential で、平均崩壊時間は数 ns であり温度に強く依存する。これは通常状態から摂動状態の Ce^{3+} への放射を伴わないエネルギー移行によるものであり、イオンの dipole-dipole 相互作用によって起こる。摂動状態の Ce^{3+} を励起すると崩壊曲線は若干 non-exponential で、その平均崩壊時間は ~ 30 ns である。exponential からずれるのは、摂動状態の Ce^{3+} の密度が高いことによる quenching のためである [6]。図 3にこれらの発光過程をまとめた。

一般の放射線 (γ線や高エネルギー荷電粒子) による発光は、直接励起による発光と異なる特徴を持つ。すなわち、286nm の光は結晶内で吸収されるので観測されない。また、340nm の光は直接励起に比較して大幅に減少する。これは結晶表面 (格子欠陥が多い) の影響が少ないためである。

最近の不純物濃度の極めて低い結晶において、理論の予測では発光を伴わない脱励起 [5] を考慮しても 25,000 photons/MeV の光量があるはずであったが、実測値は表 2にあるようにずっと少ない。考えられる主な理由は二つある。一つ目は、近くにある二つの励起した Ce^{3+} 同士の dipole-dipole 相互作用による quenching である。二つの励起した Ce^{3+} が離れていれば、それぞれが脱励起に際して発光するので 2 つの光子が出る (図 2の a.)。しかし近くにあると

$$(Ce^{3+})^* + (Ce^{3+})^* \rightarrow Ce^{3+} + Ce^{4+} + e^-$$

という、光子をひとつも出さない相互作用をする。この反応で生じた (伝導帯にあがった) 電子が Ce^{4+} の正孔と再結合する確率は非常に低い [9]。

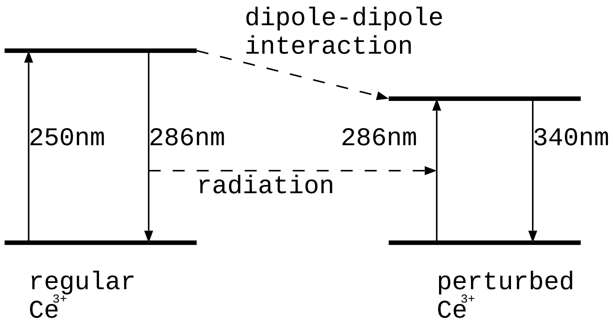


図 3: Ce^{3+} の発光過程。通常の Ce^{3+} の 4f から 5d の励起は、250nm のγ線により起こる。これは 286nm のエネルギーを出して脱励起 (~ 20ns) するが、それと競合して dipole-dipole 相互作用 (数 ns。温度に強く依存する) により摂動状態の Ce^{4+} + e に移行する過程がある。摂動状態の Ce^{3+} の 4f から 5d の励起は、286nm のγ線により起こる。これは 340nm のエネルギーを出して脱励起 (~ 30ns) する

光量が少なくなる理由の二つ目は、Ce の 4f level が F の 2P level より 4 ~ 5 eV ほども高くて、この二つの間の遷移 (図 2の c.) が起こる効率が悪いことによる。CeF_3 の電子がつまっている state の最も高いものは、Ce の 4f 軌道と F の 2P 軌道である。前者には電子がひとつ、後者には八つつまっているので、高エネルギー電子の非弾性散乱によるエネルギー移行は、90 ~ 95 %の確率でフッ素を励起し (図 2の b.)、5 ~ 10 %の確率でセリウムを励起する (5 ~ 9 eV の低いエネルギーの電子では、Ce^{3+} の励起しか起こせないので違った様相を呈する。) 一方 CeF_3 の発光は、Ce^{3+} の 5d level から Ce^{3+} の 4f level への遷移によって起こるから、フッ素の 2P 電子が励起した場合にはここに残された正孔に Ce^{3+} の 4f 電子が脱励起 (図 2の c.) してこなければ発光は起こらない。しかしこの二つの level のエネルギー差が大きいので、そのような遷移が起こる確率は低いのである。

2.3 CeF_3 結晶の課題

CeF_3 結晶については現在のところ次のような課題が存在する。その一つは、大きな結晶を安価に製造することである。寸法としては 3.3cm × 3.3cm × 数十 cm のものが製造可能であるが、10cm 以上の長さの結晶に成長する確率は 30 %ほどしかない [12]。

他の一つは光量である。現在得られる光量は 100MeV 以上程度を対象とする高エネルギー物理学分野においては充分である。しかしもっと低いエネルギーを対象とする宇宙物理や医療応用分野では増光が望ましい。この点では改良の余地がある。

第三の課題はγ線以外の粒子に対する応答を明確にすることである。この課題については現在のところほとんど研究されていない。本論文の目的は、こうした課題に対して部分的にせよ回答を与えることである。

結晶 (ID No.)	形状	大きさ
CeF_3(8,9)	円柱	高さ 1”, 長さ 1”
CeF_3(20)	直方体	1cm × 2cm × 4cm
BaF_2	円柱	高さ 1”, 長さ 1”
NaI	円柱	高さ 1”, 長さ 1”

表 3: 今回の測定で用いた結晶。

3 実験

いくつかの CeF_3 結晶サンプルについて、その発光量及び発光の時間スペクトルをα線とγ線に対して測定した。測定に先だって、使用した PMT の校正を LED で行なった。また、α線源の品質は BaF_2 を用いて確認した。また、発光時間スペクトルの測定は single photo-electron 法により行なった。α線に対しても測定を可能とするために一つの結晶にトリガー用 PMT と測定用 PMT を同時にマウントする方法を採用した。

3.1 実験装置及び方法

3.1.1 結晶サンプル

CeF_3 は、Inagaki ら [12] の開発した結晶成長法により、応用光研工業株式会社が製作したものを用いた。1cm × 2cm × 4cm の直方体のもの (製造時期 1998 年秋) および 1 inch 直径、1 inch 高さの円柱のもの (製造時期 1999 年秋) ふたつを使用し、それぞれに ID No. をつけた。直方体のものが 20、円柱のものが 8 と 9 である。

BaF_2 は応用光研工業株式会社製の 1 inch 直径、1 inch 高さの円柱のものを用いた。

NaI は HORIBA 社製の 1 inch 直径、1 inch 高さの円柱のものを用いた (製造時期 1988 年 10 月。)

各結晶の仕様を、表 3にまとめた。

3.1.2 セットアップ

実験のセットアップを図 4に示す。

図にあるように、γ線を照射して測定する時は、ソースから出てきたγ線が直接 PMT の光電面に入射することのないように 5cm 厚さの鉛ブロックで遮蔽した。結晶は PMT(T) に直接マウントされていて、PMT(T) で観測される発光のプロンプトでトリガーがかかる。

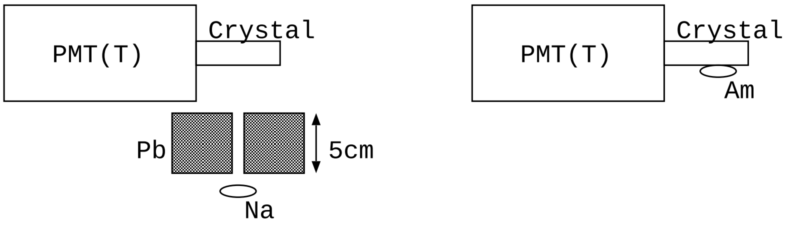
発光時間スペクトルの測定においては結晶をはさんで PMT(T) の向かいにある PMT(S) の前には中央にあなをあけた紙をおき、PMT(S) で観測される光量が single photo-electron level になるようにしてある。このため PMT(S) からのシグナルは、トリガーに対して発光スペクトルに沿った時間分布を示す。

波長分解測定において、PMT(S) の前におかれた BPF はバンドパスフィルターをあらわす。3.1.4節で述べるように、フィルターは傾きのある入射光に対して透過率が変化するので、傾きの正弦が 1/4 以内となるように、結晶の前とフィルターの前にそれぞれ直径が 5mm、20mm のあなのあいた紙をおいた。

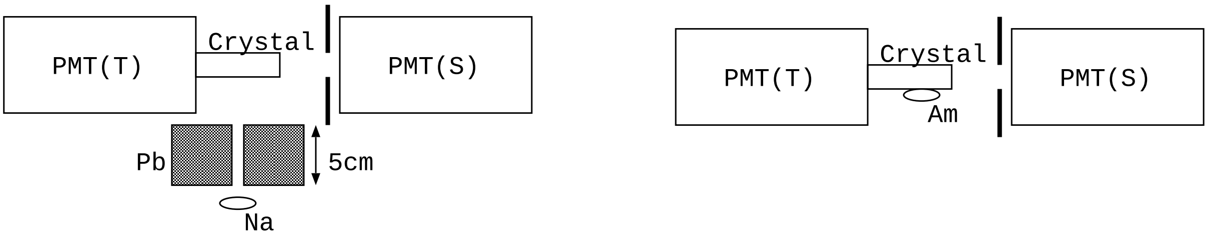
3.1.3 回路

実験に用いた回路を図 5に示す。PMT(T,S) は光電子増倍管のシグナルをあらわす。CFD,ZCD,G.G.,ELR はそれぞれ constant fraction discriminator,zero cross discriminator, gate generator,event lam register で

a.) 発光量測定



b.) 時定数測定



c.) 波長測定

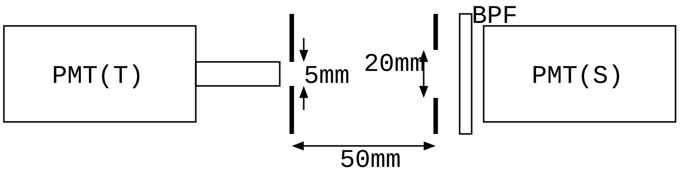


図 4: 実験のセットアップ。上：発光量測定のセットアップ。左はγ線、右はα線に対するもの。中：時定数測定のセットアップ。左はγ線、右はα線に対するもの。下：波長分解測定のセットアップ。線源の配置は図では省いてあるが、他と同様である。

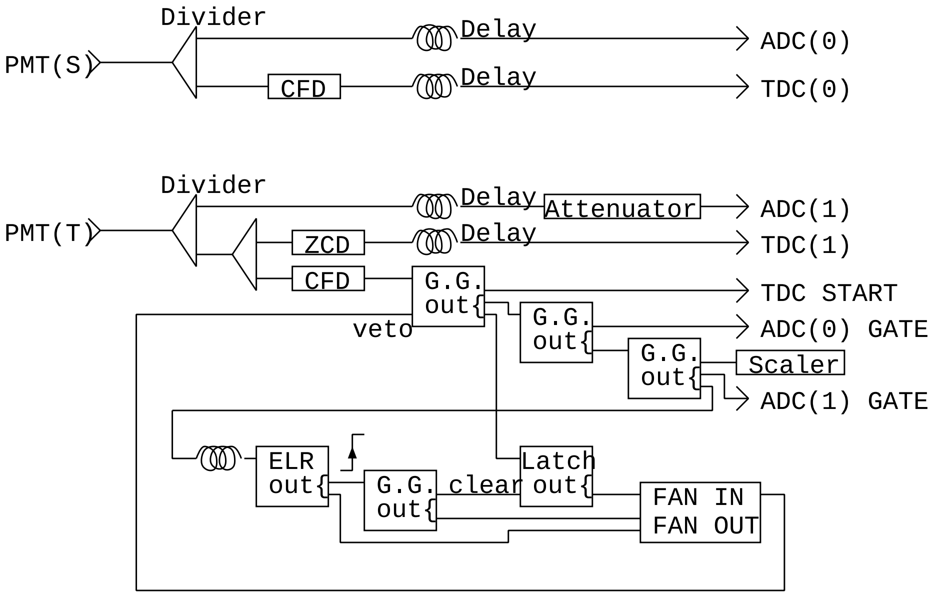


図 5: 回路図

ある。発光量、時定数および波長分解した時間スペクトルの測定においてほぼ共通の回路を用いた。

サンプル結晶を PMT(T) にシリコングリースによってマウントし、放射線源を近接させて発光させた。

PMT(T) のシグナルを divider でわけ、片方を ADC に入れて光量の測定を行なった。このシグナルに対して、ADC の GATE は他の回路を通った分遅れてくるので、適当な Delay によってタイミングを合わせた。またシグナルの強度を ADC の測定限界内に収めるため Attenuator を使った。divider で分けられたもう一方のシグナルは Discriminator によって NIM シグナルに変換され、Gate generator を介して DAQ のトリガー、TDC の START および ADC の GATE に使われた。

PMT(T) と同時に PMT(S) でもシンチレーション光を観測した。ただし PMT(S) の前には穴をあけた紙をおき、観測される光量が single photo-electron レベルになるようにした。このシグナルは、発光量の測定においては不使用だが、時定数および波長分解した時間スペクトルの測定では divider でふたつに分け、ADC と TDC にそれぞれ入れた。

3.1.4 測定器具及び放射線源

光電子増倍管

浜松ホトニクス株式会社製の R2256-02 を用いた。これは 2 inch ヘッドオン型の R329-02 の石英タイプである。H3177-51 も使用してみたが、これだと発光時間スペクトルの測定に際してプロンプトから見て ~ 15ns 後に小さなピークが生じた。これは第一ダイノードで生じた二次電子が内側から光電面を叩くことで発生するアフターパルスらしく、このパルスの遅延時間は PMT の内部構造によって異なる。

PMT の校正は、3.1.3節の回路を組み結晶をマウントしない状態で発光ダイオードを照射して行なった。発光ダイオードは Pulser 電源で光らせ、トリガーは PMT(T) のシグナルの代わりにこの Pulser 電源の出力を用いた。この時 ADC のチャンネル数はポアッソン分布する。

変数 r が平均 n のポアッソン分布をするとき、その分布は

$$P(r) = \frac{n^r e^{-n}}{r!} \tag{1}$$

	PMT(S)	PMT(T)
Gain [ch/1p.e.]	35.6	22.4

表 4: PMT のゲイン: 1 photo-electron あたりの ADC channel 数。

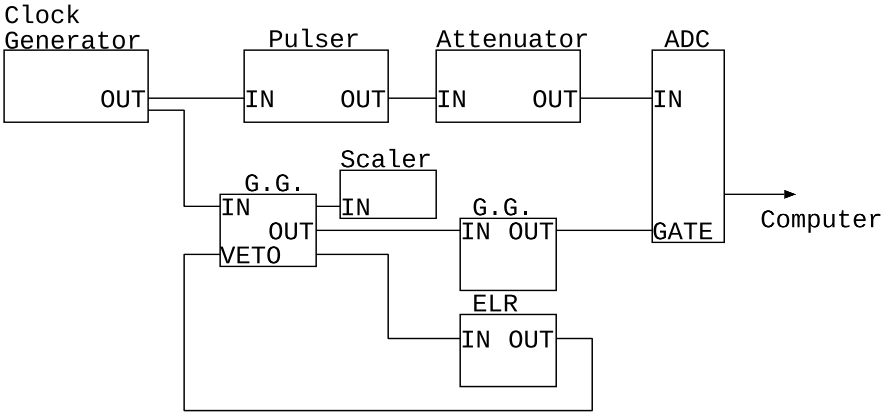


図 6: ADC リニアリティ測定回路

であらわされるので、r=0 となる確率は、

$$P(0) = e^{-n} \tag{2}$$

である。

一方 PMT の single photo-electron level まで光量を絞った発光を PMT で観測し、得られた ADC のヒストグラムのペデスタルのイベント数を全イベント数で割ればそれが photo-electron 数がゼロである確率である。

よってこの時の photo-electron 数の平均 n は

$$e^{-n} = \frac{A}{B} \tag{3}$$

により求まる。ここで A はペデスタルのイベント数、B は全イベント数である。一方、ADC スペクトルの重心は $n\times$ (ゲイン)+(ペデスタル) と表される。従って式 3で得られた n を使うと ADC 分布よりゲインが求まる。

今回の研究で用いた 2 本の PMT(S),PMT(T) について、-2,500V の電圧のもとで以上の方法により校正を行なった。結果、それぞれのゲインが表 4のように求まった。

ADC

株式会社豊伸製の 16ch 12bit のものを用いた。これに関しては図 6の回路を組んでリニアリティを測定した。Clock Generator および Pulser で電気パルスを発生させ、それを ADC で測定した。ADC の前に Attenuator に通し、この Attenuator の設定を変化させることで ADC 入力電気パルスのパルス高を変えていき、それぞれのパルス高で ADC のヒストグラムを観測した。結果は図 7のようになり、用いた ADC が入力に対してすべての範囲において極めてリニアに反応することがわかった。

TDC,Discriminators

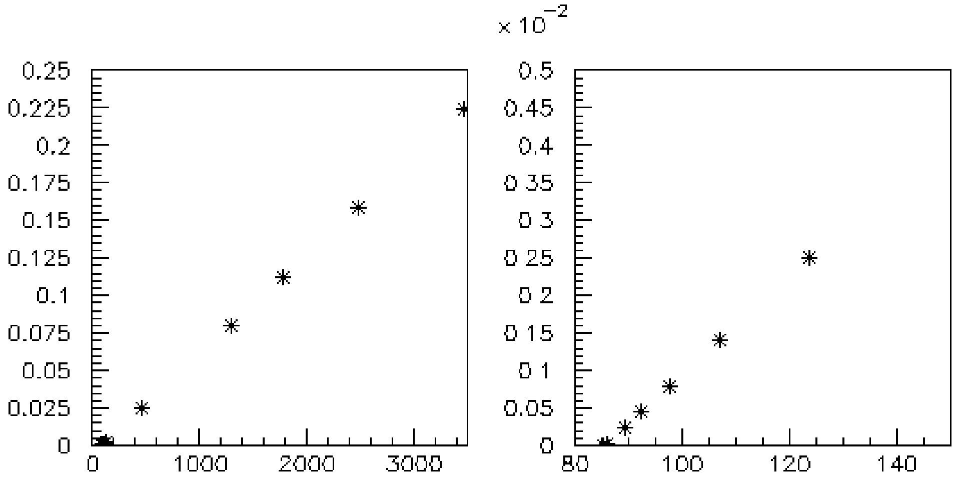


図 7: ADC リニアリティ測定結果。縦軸 : ADC 入力パルス電圧 [V]。横軸 : ADC ヒストグラムピーク値。

TDC は REPIC 社製の RPC-061 を用いた。これは基盤上のスイッチによってフルスケールを変えることが可能で、今回の測定では、フルスケール 500ns/4096ch(分解能 120ps) で使用した。

Discriminator は、高エネルギー加速器研究機構規格の constant fraction discriminator(CFD) および zero cross discriminator(ZCD) を用いた。

leading edge discriminator(LED) と呼ばれる単純な discriminator では、シグナル電圧が threshold を越えた時点を基準にデジタル信号が出力される。この時シグナルの波高によって出力のタイミングがずれる。これを walk といい、CFD,ZCD ともに walk をなくす工夫がされた discriminator である。

ZCD では、入射するシグナルは (delay line shaping などの方法で) 二極パルスに変換され、そのパルスが zero cross するタイミングでトリガーが出る。入射パルスの波形や rise time が同じならば、トリガーのタイミングは波高によらず一致する。

CFD では、入射パルス (V$_a$) はまず二つに分けられる。そのうちの一つは、constant fraction(kV$_a$) からピークに達するまでの時間だけ遅延させる (V$_d$)。もう一つは同じ fraction(k) だけ attenuate し裏返す (V$_c$ = -kV$_a$)。この二つを重ねた二極パルスが zero cross するタイミングでトリガーが出る。入射パルスの rise time が同じならば、波形、波高によらずトリガーのタイミングは一定である。

LED では最高の分解能が 0.4ns くらいとなるためには、入射パルスの電圧の広がりは、1:1.2 までにしないといけない。しかし、ZCD では、1:10 の広がりに対して、0.6ns ほどの分解能が得られ、CFD では 1:100 でも 20ps ほどである。

Gate Generator

ADC の GATE を作るなどの目的で、高エネルギー加速器研究機構規格のものを用いた。ADC GATE は、ADC(0) では 300ns、ADC(1) では 2 μs の幅にした。

結晶と **PMT** の光学的接触、他の面の処置

結晶はトリガー用の PMT(PMT(T)) に、東芝製のシリコングリースでマウントした。PMT に接しない面については、発光量の測定では全面を反射用のテフロンテープで覆った。他の測定では PMT(S) に向く面以外をテフロンテープで覆った。

	BP-300	BP-320	BP-340
T_{max} [%]	15.7	17.8	23.6
λ_{max} [nm]	299.9	318.2	342.2
$\Delta\lambda_{1/2}$ [nm]	19.8	19.8	17.0

表 5: バンドパスフィルターの特性。スペックシートより。

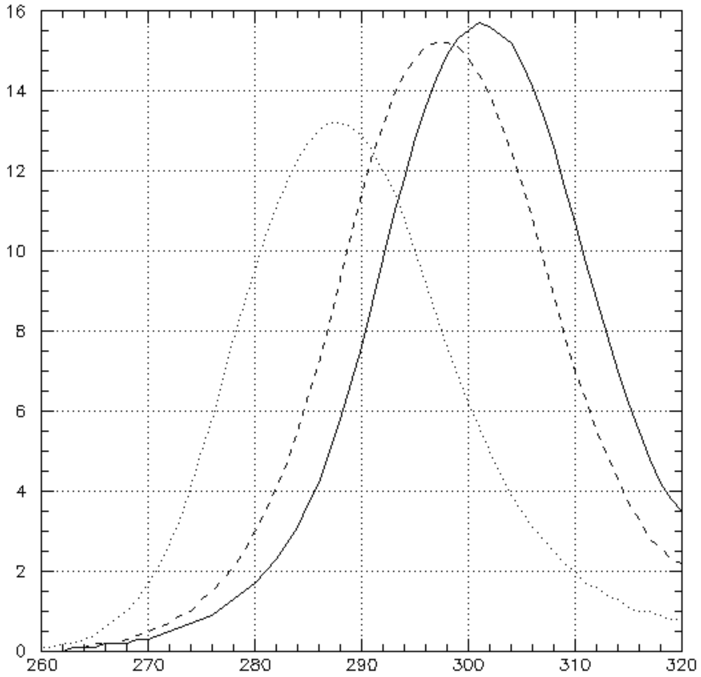


図 8: BP-300 透過率。縦軸：透過率 [%]、横軸：透過光の波長 [nm]。2nm 刻みで測定。実線は垂直な入射光。破線は垂直軸に対して $\theta = \arctan(1/4)$ の傾きで入射した場合。点線は $\theta = \arctan(1/2)$ の場合。

バンドパスフィルター

特定波長のみの光を透過させる干渉フィルターで、今回の測定ではケンコー株式会社製のBP-UV 50mm角を用いた。

使用した3枚のフィルターについて、垂直な入射光に関してのピーク透過率、その時の波長、透過率がピークの半分になる波長の幅を、表5に、傾きのある入射光に対する透過率の測定結果を、例としてBP-300について図8に示す。他のフィルターについても同様であり、各々垂直な入射光の場合のピークからの、$\theta = \arctan(1/4)$ の傾きで入射した光の透過率ピークのずれは、5nm 未満であった。また、各フィルターについて 200nm ~ 800nm の範囲の透過光に対し、サイドバンドがないことを確認した。

PAW

CERN の Olivier Couet 氏作の物理データ解析用コンピュータソフト。Physics Analysis Workstation。データの表示、加工の他、準ニュートン法 (variable metric method)[11] を用いたフィッティングなどが行なえる。

線源

今回の測定では、γ線源としては ^{22}Na 密封線源を用い、α線源としては、1 inch 直径の金属板に ^{241}Am が蒸着された線量 555 Bq のものを用いた。

Particle Data Group によると、^{22}Na は半減期 2.603 年で β^{+} 崩壊と電子捕獲がおこる。その際放出されるγ線は、1.275MeV のものと、対消滅による 0.511MeV のものがある。また、^{241}Am は半減期 432.7 年でα崩壊する。放出されるα線のエネルギーは 13 %が 5.443MeV であり、85 %が 5.486MeV である。

3.2 結晶透過スペクトル

実験に先立って、3 つの CeF_3 結晶について分光光度計 (株式会社 日立製作所 U-2000 型ダブルビーム分光光度計) により透過スペクトルを測定した (図 9)。目的は不純物等の存在を確認すること、及び、吸収係数より結晶の品質を確認することにある。図から、不純物等の存在による吸収準位は存在しない、又は、あるとしても非常に微量であることがわかった。

吸収係数 (absorption coefficient)μ は以下の式で定義される：

$$\mu = \frac{1}{L} \ln \frac{T_0}{T} \tag{4}$$

ここで L は結晶の長さ [m]、T_0 は理論上の透過率、T は実際の透過率である。今回の測定では、T_0 として λ=310nm より長い波長における測定値 T を採用した。この波長帯では結晶表面における反射が透過率を支配すると考えて良い。計算の結果を図 10に示す。

CCC グループでは、$\mu = 10\text{m}^{-1}$ の吸収係数に対応する波長 λ_0 をもって、結晶の品質の一つの指標にしている。この波長が短いほど純度の高い良い結晶である。我々が使用した結晶は、図 10からわかるように λ_0=292 ~ 293nm に対応する。CCC グループの使用した結晶では λ_0=293 ~ 294nm であるので、今回使用した結晶は CCC グループのものと比較しても遜色のないものと結論できる。

3.3 発光量の測定

CeF_3 を用いた測定に先立ち、BaF_2 を用いてα/γ比の測定を行なった。目的はシステム全体の動作確認であるが、特にα線源についてはα線源の substate によるエネルギー損失が大きくないことを確認するためである。

測定の結果、図 11のようなピークが観測された。図 11の左が Na の 0.511MeV のγ線によるピーク、右が Am の 5.48MeV のα線によるピークである。PAW によるフィッティングから、それぞれのピーク位置は 764、2406 ともとまり、ペデスタル (88.9) を引いて入射粒子のエネルギーで割るとそれぞれのゲインは、γ線に対しては $1.49 \times 10^{\ 3}$ ch/MeV、α線に対しては $4.39 \times 10^{\ 2}$ ch/MeV となった。これよりα/γ=0.29 であり、Murakami[10] らの測定結果 (0.33 程度) と一致し、正しく機能していると判断した。

次に、CeF_3(ID No.8) と NaI を用いてγ線に対する発光量を測定した。測定結果を図 12に示す。図 12の左が NaI、右が CeF_3 の 0.511MeV のγ線によるピークである。使用した回路は共通であるが、光量の違いから Attenuator の設定は異なり、NaI の場合が 40dB、CeF_3 の場合が 10dB である。PAW によるフィッティングから、それぞれのピーク位置は 751、1401 ともとまり、ペデスタル (82.5、105.1) を引いてエネルギー (0.511MeV) で割るとそれぞれのγ線に対してのゲインは、NaI では $1.31 \times 10^{\ 3}$ ch/MeV(10bB に換算すると 4.14×10^{4} ch/MeV)、CeF_3 では 2.54×10^{3} ch/MeV となった。これらの測定値より発光量の比を求めるには、二つの結晶に対する (1) 集光効率の差、及び、(2) 発光波長の違いに起因する光電子増倍管の量子効率を考慮しなければならない。このうち前者に関しては、結晶の形と大きさが等しく発光位置も揃えたので集光効率は同じである、と見なせる。従って、量子効率を無視した発光量の比は CeF_3/NaI(Tl) = **6.1** %である。さて、PMT(R2256-02) の量子効率は、NaI の発光 (~ 415nm) に対しては約 25 %であ

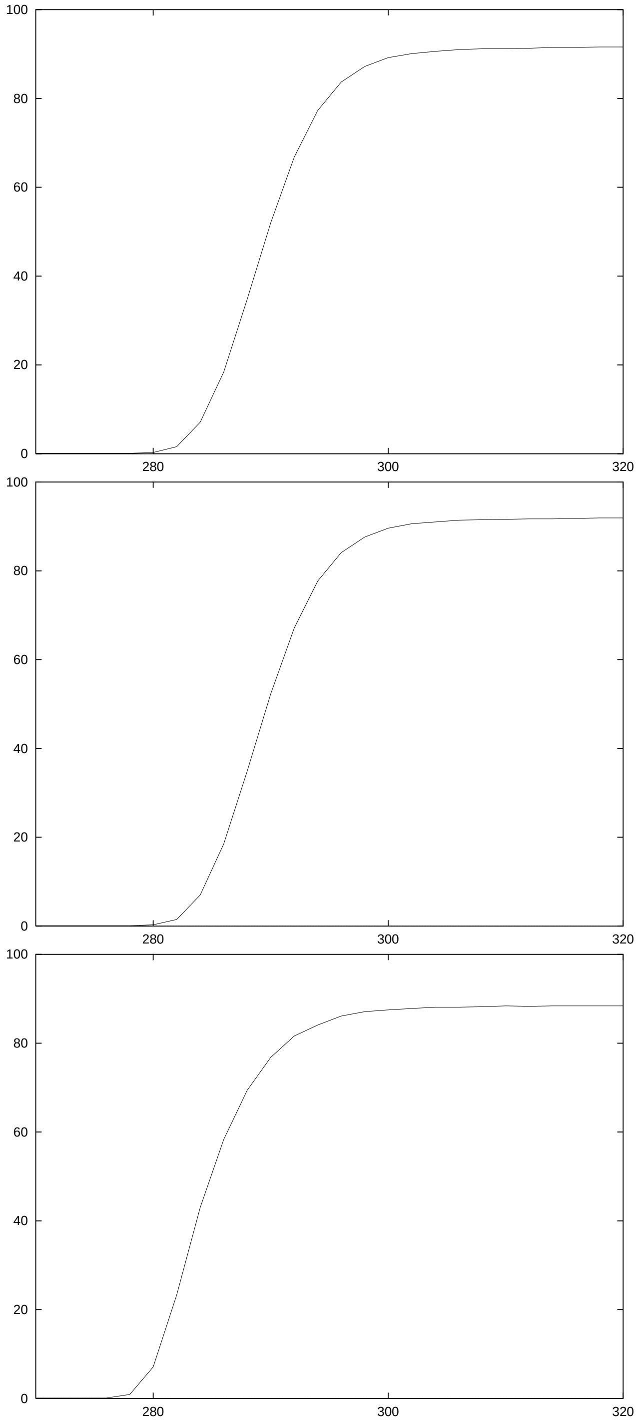


図 9: 使用した各サンプル結晶の透過率。縦軸 : 透過率 [%]。横軸 : 透過光の波長 [nm]。2nm きざみで測定。上から ID=8,9,20 のもの。ID=8,9 は、円柱型サンプルの長さ (1 inch = 2.54cm) 方向の透過率で、ID=20 については、1cm 厚の厚み方向の透過率。

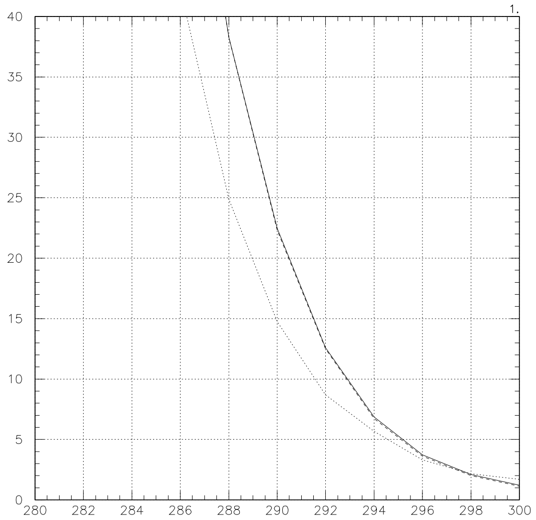


図 10: 使用した各サンプルの absorption coefficient。縦軸 : coefficient μ [m^{-1}]、横軸 : 透過光の波長 [nm]。実線は ID No.8、破線は ID No.9、点線は ID No.20 のもの。ここで、8 と 9 はグラフが近接していて、ほぼ重なっている。

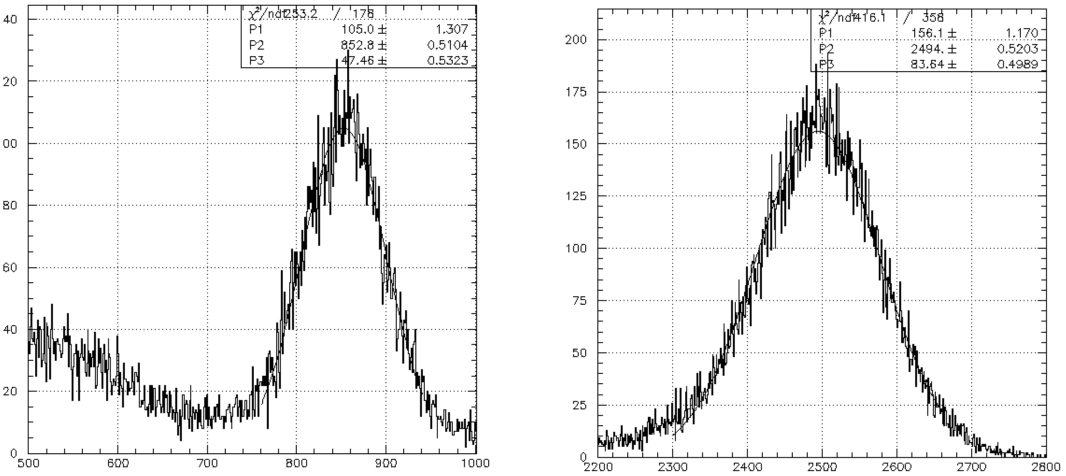


図 11: γ線 (左図)、α線 (右図) を照射した時の BaF_2 の発光。縦軸：イベント数、横軸：ADC チャンネル数。どちらもペデスタルは 88.9 であった。フィッティング関数にはガウシアンを用いた。

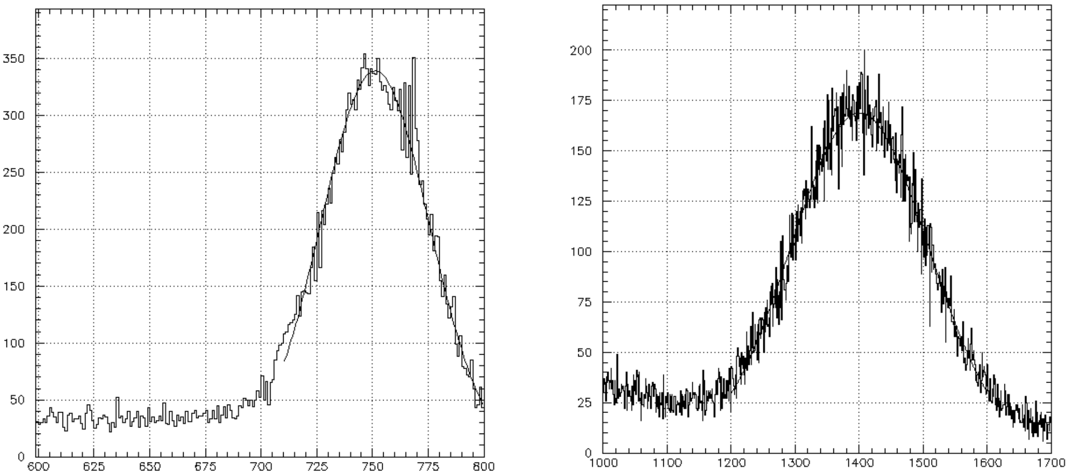


図 12: γ線を NaI(左図)、CeF$_3$ (右図) に照射した時の発光。縦軸：イベント数、横軸：ADC チャンネル数。Attenuator の設定は、NaI の場合が 40dB、CeF$_3$ の場合が 10dB である。ペデスタルは NaI の方が 82.5、CeF$_3$ の方が 105.1 であった。フィッティング関数にはガウシアンを用いた。

ID No.	8	9	20
Gain [ch/MeV] for γ	2.30×10^3	2.42×10^3	1.75×10^3
Gain [ch/MeV] for α	2.95×10^2	3.20×10^2	2.41×10^2
α/γ ratio	0.128	0.132	0.138

表 6: CeF$_3$ の各サンプルにおける発光量のα/γ比。

り CeF$_3$ の発光 (~ 300nm) に対しては約 20 %である。よって量子効率補正後の CeF$_3$ の NaI に対する発光量は、**7.6** %と求まる。

次にα線に対する発光量を測定した。直方体の CeF$_3$ ID No.20 に対しては図 4に示したようにγとαで発光位置が同じになるようにしたが、ID No.8、9 ではその形状から図 4に示したようなソースとの接触が困難だったために、ソースは結晶の PMT と反対の平らな面に密着させ、全体をテフロンテープで覆った。測定結果を図 13に示す。PAW によるフィッティングでピーク位置を出し、ペデスタルを引いてエネルギーで割ることにより計算したゲインとそのα/γ比は表 6のように求まり、α/γ比はサンプルによらず **0.13 ± 0.01** で一定であることがわかった。誤差に関しては BaF$_2$ における結果、及び個体差を考慮して評価した。この表において ID No.20 が、他の二つに比べてゲインが悪いが、それは形状の違いから来る集光効率の違いによると思われる。また、この結晶については同じ理由から NaI との光量の比較はできない。

ID No.9 については、そのゲインが ID No.8 の約 1.1 倍と読みとれるから、NaI に対する発光量の比は約 7 ~ 8 %と概算できる。

3.4 時定数の測定

発光時定数は図 4(b.) に示されるセットアップを用いて測定された。本研究における特徴は、α線よりの時定数を測定可能にするため、被測定対象となるシンチレータ自身をトリガーに用いたことである。

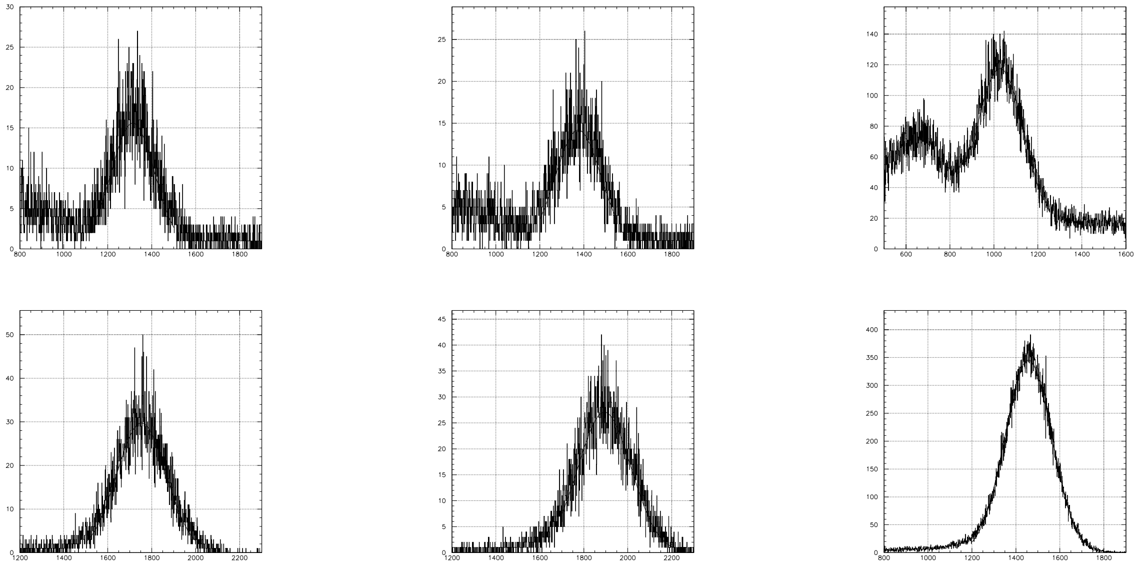


図 13: CeF_3 の各々のサンプルの発光量のα/γ比。上段が 0.511MeV γ、下段が 5.48MeV α。左が ID No.8、中央が ID No.9、右が ID No.20 のもの。ペデスタルは ID No.8、9 については 43.5、ID No.20 では 102 であった。フィッティング関数にはガウシアンを用いた。

3.4.1 $\mathbf{BaF_2}$ 時定数の測定

CeF_3 による測定に先立ち、測定方法自身をチェックするために BaF_2 に対する発光時間スペクトルを、^{22}Na ソースを用いて測定した。結果を図 14に示す。図中の事象には以下のカットが施されている：

- トリガー用 PMT の信号 (ADC(1)) は 0.511MeV の光電ピークに対応すること。
- single photo-electron 用 PMT の信号 (ADC(0)) は、1.9 photo-electron level 以下であること。

これらのカットの意義については CeF_3 の項で記述する。

図 14より発光時定数を得るため、PAW によるフィッティングを行なった。フィッティングには以下の関数を用いた。

$$f(x) = b + A_f \exp((x - x_0) i_f g) + A_s \exp((x - x_0) i_s g) \qquad (5)$$

ここで、$g = -500/4096$ は時間 [ns] と TDC のチャンネル数の比例係数であり、$b, A_f, x_0, i_f, A_s, i_s$ はフィッティングパラメーターである。x_0 は TDC STOP が TDC START より確実に遅れてくるように挿入した Delay に依存するスペクトルのオフセットである。b はバックグラウンドレベルである。A_f, A_s はそれぞれ速い成分と遅い成分の寄与に対する重みである。i_f, i_s はそれぞれ速い成分と遅い成分の時定数の逆数であり、これを求めるのがこのフィッティングの目的である。フィッティングの範囲は図 14において 1170 ~ 3000ch である。この結果、時定数は $\tau_f = 0.83 \pm 0.02$ ns 及び $\tau_s = 0.60 \pm 0.02 \mu$s と求まった。これは Particle Data Group の採用する標準値 $\tau_f = 0.7$ ns 及び $\tau_s = 0.62 \mu$s によく一致している。但し速い成分に関しては図 14 からもわかるように、ほぼ左右対称なガウス型であり、実験装置の時間分解能も考慮すべきことを示唆している。この結果より、測定手法は正しく時間分解能も充分高い (< 1ns) と判断した。

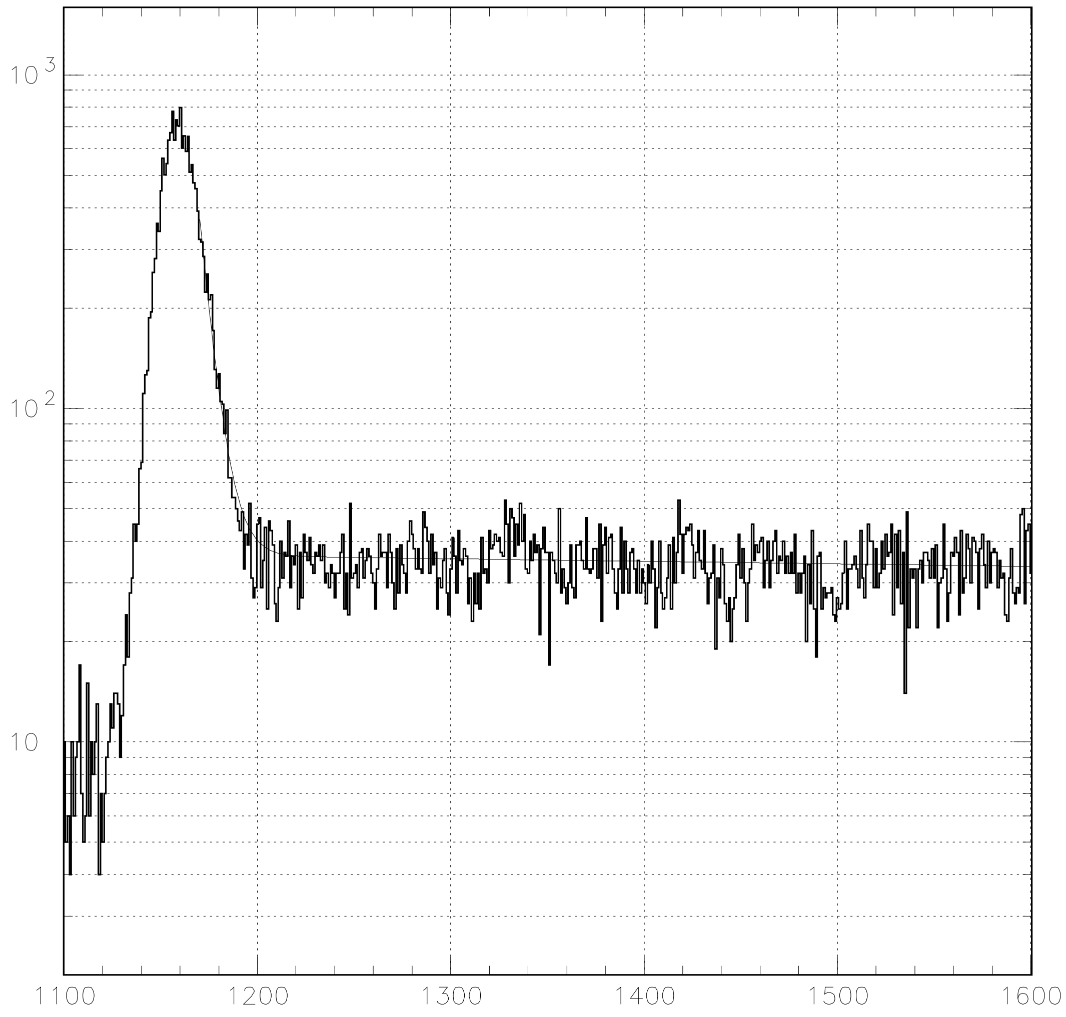


図 14: BaF_2 のγ線に対する発光時間スペクトル測定結果。縦軸：イベント数、横軸：TDC チャンネル数 (500ns/4096ch。)

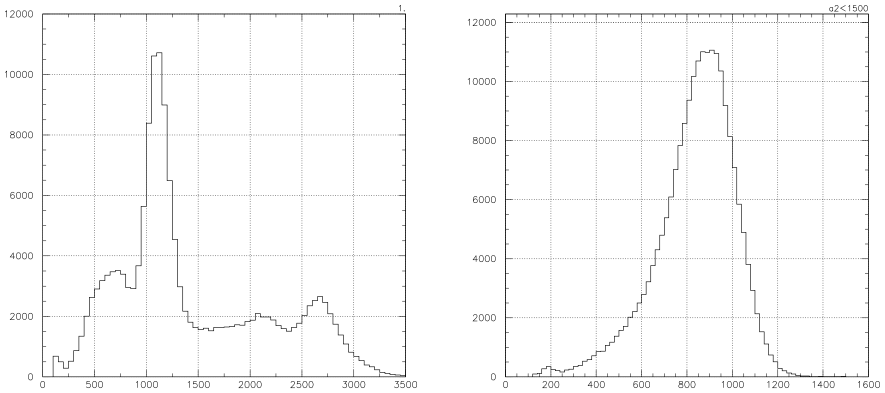


図 15: 発光時間スペクトルの測定における ADC(1) ヒストグラム。左がγ、右がαに対するもの。縦軸：イベント数、横軸：ADC チャンネル数。

3.4.2 CeF_3 時定数の測定

次に CeF_3 に対する発光時間スペクトルを測定した。用いた結晶は ID No.20 である。図 15はトリガー用 PMT で得られた波高分布である。入射粒子が各々α線及びγ線であることを保証するために ADC(1) に対してカットを施した。具体的にはα線に対しては 600ch $<$ ADC(1) $<$ 1100ch 、γ線に対しては 950ch $<$ ADC(1) $<$ 1300ch であることを要求した。

図 16は TDC で得られた発光時間スペクトルである。図中実線はα線を、破線はγ線をあらわす。図からわかるようにαの場合の方がはるかに速い成分の比率が高い。

次に single photo-electron 用 PMT の波高分布 (ADC(0)) を図 17に示す。図中、左はγに対するもの、右はαに対するもので、広く高いピークは single photo-electron のピークに対応する。その左側にある狭いピークはペデスタルであり、ADC(0) の GATE 以外の timing(早く、または遅く) で到着した事象である。時間スペクトル測定においては single photo-electron であること、及び、ランダムな雑音イベント (noise event) が存在しないことを保証しなければならない。前者に対しては ADC(0) に対してカットを施すことにより、multi photo-electron 事象を除去することができる。具体的なカット位置、及びその安定性については後に述べる。後者に関してはフィットの際の constant background としてその影響を採り入れた。この constant background の項は TDC 分布の主ピークより早い時間領域に平坦な分布としてあらわれる。我々はこの平坦な部分を平均して、式 5 に取り込んだ。

ADC(0) カット .
ADC(0) に関しては、具体的には次の三つのカットを行ない、その結果を比較した：
a.) カットなし
b.)ADC(0) $<$ 350(これは 1.9 photo-electron に対応する。)
c.)290 $<$ ADC(0) $<$ 350
これらの事象に対して式 5を用いたフィッティングを行なった。時間スペクトルの様子を図 18に、結果の値を表 7に示す。 これからもわかるように、カット (a.) は multi-photo-electron の影響で寿命 τ_s 及び τ_f ともに幾分異なる値を示している。カット (c.) はカット (b.) の結果と一致し、予想通りペデスタル事象は単に ADC(0) GATE の外側にある事象で結果に影響しない。この結果から、(b.) のカットの位置を採用

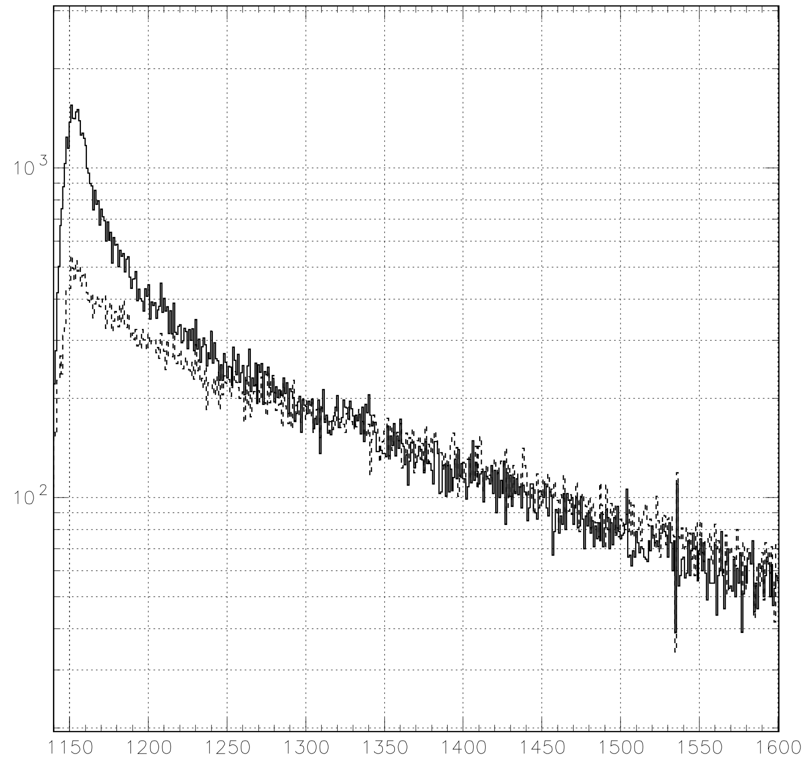


図 16: 発光時間スペクトルの測定結果。縦軸：生のデータのイベント数。ノーマライズはしていない、横軸：TDC チャンネル数 (500ns/4096ch)。実線はα、破線はγに対する反応。

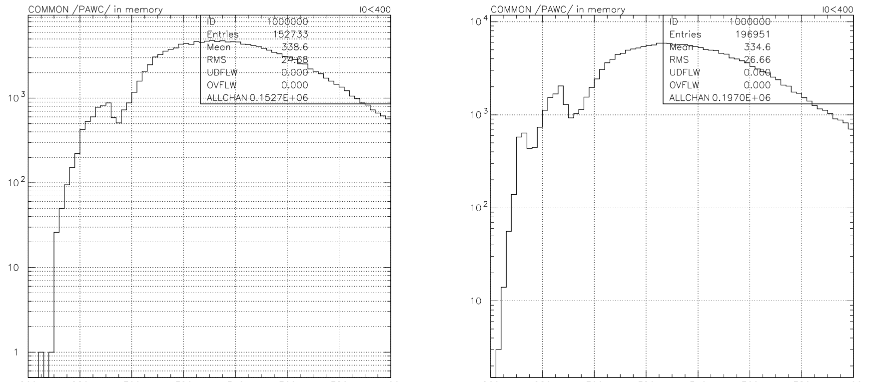


図 17: 発光時間スペクトル測定時の ADC(0) のヒストグラム。左がγ、右がαに対するもの。縦軸：イベント数、横軸：ADC チャンネル数。TDC がオーバーフローしないイベントのみプロットした。

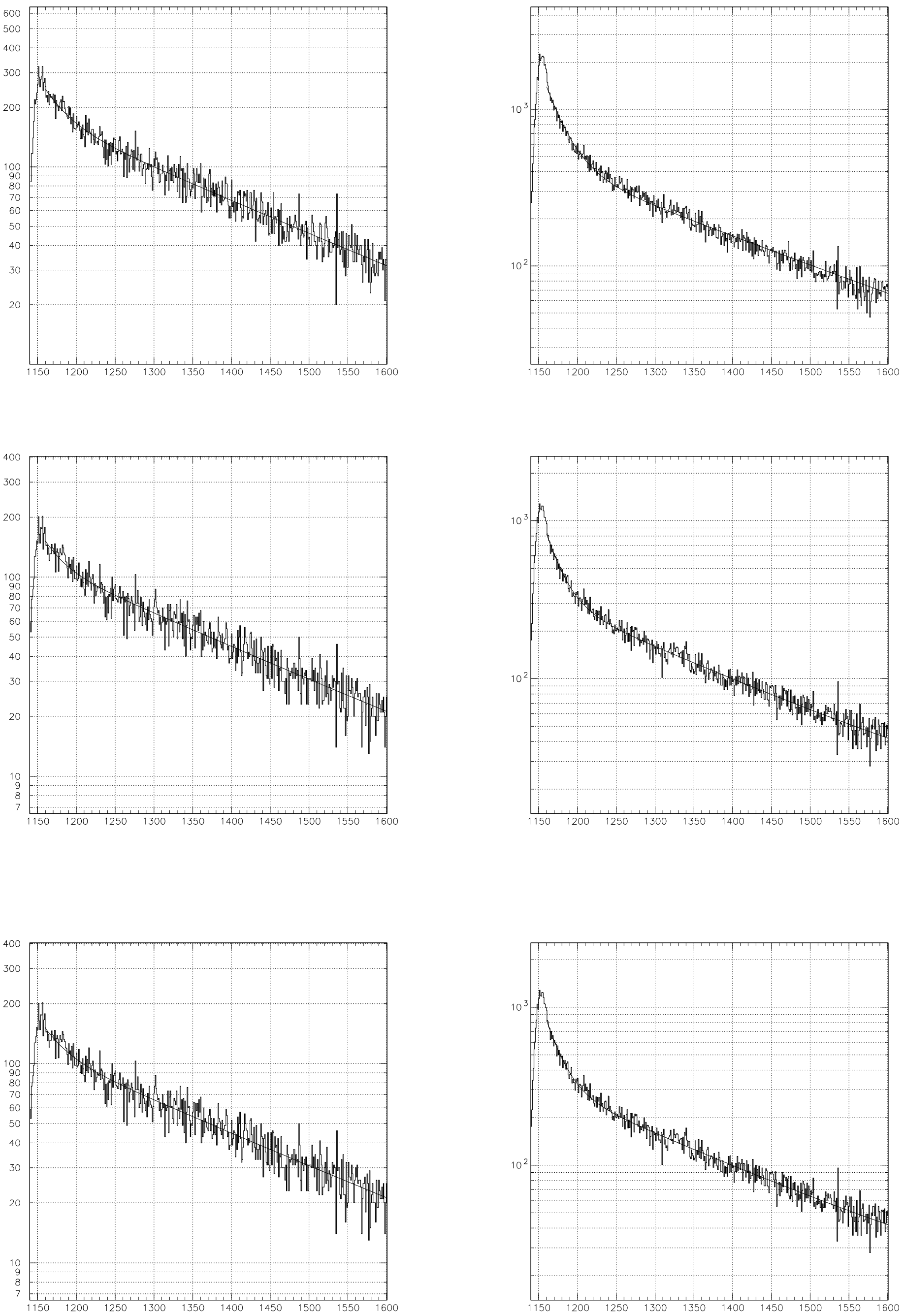


図 18: 発光スペクトルに対するフィッティング。縦軸：イベント数、横軸：TDC チャンネル数。左がγ、右がαに対するスペクトル。上段はカットのない TDC 、中段は ADC(0) < 350 の TDC、下段はさらに ADC(0) のペデスタルイベントを除いた TDC。

	τ_f	τ_s	A_f/A_s	χ^2/n
γ (a.)	3.57 ± 0.40	31.0 ± 0.2	0.574 ± 0.047	0.988
γ (b.)	2.95 ± 0.57	30.8 ± 0.9	0.463 ± 0.072	1.45
γ (c.)	3.37 ± 0.05	31.2 ± 0.7	0.446 ± 0.050	1.45
α (a.)	2.91 ± 0.05	27.1 ± 0.2	2.95 ± 0.06	1.76
α (b.)	2.40 ± 0.08	24.0 ± 0.3	2.43 ± 0.07	1.46
α (c.)	2.41 ± 0.08	24.0 ± 0.3	2.42 ± 0.08	1.45

表 7: フィッティングパラメータの計算結果と、時定数 [ns]。a. はカットのない TDC ヒストグラム、b. は ADC(0) < 350 のイベントのみ切り出した TDC ヒストグラム、c. は b. のうち、さらに ADC(0) がペデスタルでないイベントのみ切り出した TDC ヒストグラムに対するフィッティングから得られた値。

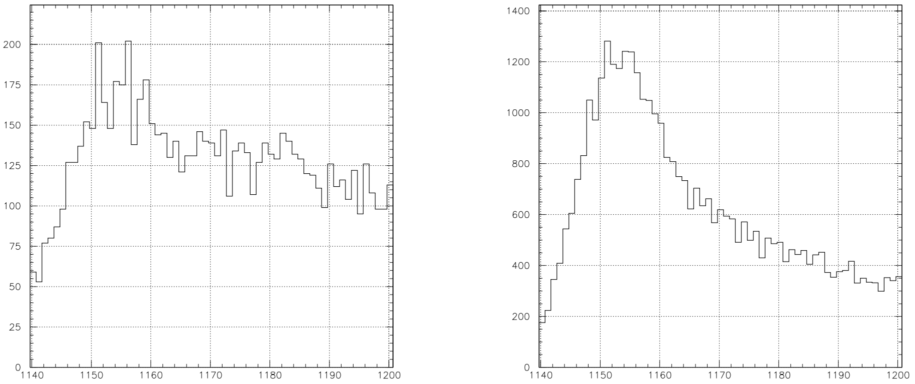


図 19: 発光スペクトルのプロンプト部分。縦軸：イベント数、横軸：TDC チャンネル数。左がγ、右がαに対するスペクトル。

することにした。これらのフィットにおいては
a.)1160ch < TDC < 4000ch
b.)1160ch < TDC < 2000ch
c.)1160ch < TDC < 2000ch
をフィッティング範囲とした。

フィッティング範囲の変化による安定性　.
フィッティングの範囲を変化させると、求める結果は変化する。表 8はフィッティング範囲のうち左側 (早い時刻) のリミットを変化させた時の τ_f, τ_s、及び、A_f, A_s の変化を示している。フィッティングの範囲を定める明確な基準を決めるのは困難であるが、図 19から考えて表 8に示す領域以外では明らかに適切ではない。領域をさらに左側に拡大すると、立ち上がり部分までフィットに包含するようになる。また、領域をさらに右側に移動すると速い成分を切り落とすことになる。この表中での変化は系統誤差であるとみなした。フィットの範囲は 1157 < TDC < 2000 を標準とした。

	τ_f	τ_s	A_f/A_s	χ^2/n
γ (1155 ~)	2.84 ± 0.15	31.0 ± 0.6	0.532 ± 0.047	1.46
γ (1157 ~)	3.37 ± 0.42	31.3 ± 0.6	0.464 ± 0.053	1.45
γ (1160 ~)	2.95 ± 0.57	30.8 ± 0.9	0.463 ± 0.072	1.45
α (1155 ~)	1.96 ± 0.05	23.2 ± 0.3	2.89 ± 0.07	1.52
α (1157 ~)	2.11 ± 0.07	23.5 ± 0.3	2.71 ± 0.08	1.50
α (1160 ~)	2.40 ± 0.08	24.0 ± 0.3	2.43 ± 0.07	1.46

表 8: フィッティングパラメータの計算結果と、時定数 [ns]。ADC(0) < 350 のイベントを切り出した時の TDC ヒストグラムに対するフィッティングの結果と、そこから計算した時定数。括弧内はフィッティングの範囲。

3.5 波長分解

図 4の c. のセットアップを用いてシンチレーション光の波長分解測定を行なった。用いたサンプルは CeF_3 ID No.20 である。得られたデータを二つの視点より解析した：

(1) 発光時定数、及び成分比 (速い成分と遅い成分の比) に波長依存性はあるのか？

(2) α/γ発光比に波長依存性はあるのか？

以下に、各々について解析の方法と結果について述べる。

3.5.1 発光時定数の波長依存性

図 20は、各波長における時間スペクトルである。但し、ADC カットに対しては前節で得られた標準値を採用している。即ち、ADC(0) < 1.9 photo-electron level 、650 < ADC(1) < 1000(0.511MeV for γ)、及び、1000 < ADC(1) < 1500(5.48MeV for α) である (図 21参照)。

これらに対して前節と同じフィッティングを試みた。この際時定数 τ_f 及び τ_s は、波長依存性の有無を確認するために自由パラメータとした。BP-340(340 nm) に関しては、図 20からもわかるように、時間スペクトルは non-exponential であり、式 5による関数ではフィットしなかった。そこで遅い方の発光成分にポンプアップ (時定数 τ_p) の機構があると想定して、

$$f(x) = b + A_f \exp((x - x_0)i_f g) + (1 - \exp((x - x_0)i_p g))A_s \exp((x - x_0)i_s g) \tag{6}$$

でのフィッティングを試みた。ここで i_p は τ_p の逆数であり、他のパラメータは前節と同じである。こうして得られたパラメータの値を表 9に示す。表 9より、次のような結論を導くことができる。

340 nm のスペクトルに関しては、ポンプアップの機構によりフィットは改善される。しかし、得られた値 $\tau_p = 149 \pm 23$ (for γ)、及び、$\tau_p = 20.6 \pm 1.1$(for α) はαとγで大きく異なり、物理的に考えて自然とはいえない。従って「何らかの機構で non-exponential である。」と結論するのが妥当である。

300 nm 及び 320 nm の波長に関しては、成分 (τ_f or τ_s) や粒子 (α or γ) に係わらず 320 nm の方がやや大きい時定数を示す。特に τ_s にこの傾向が顕著である。しかしフィットにおける系統誤差まで含めると、この研究のみで結論づけるのは困難である。

成分の大きさの比 A_f/A_s に関しては、

- αとγを比べると、300 nm 、320 nm 共にαの方が大きい。即ちαの方が速い成分の比率が大きい。これは図 16からも一目瞭然である。

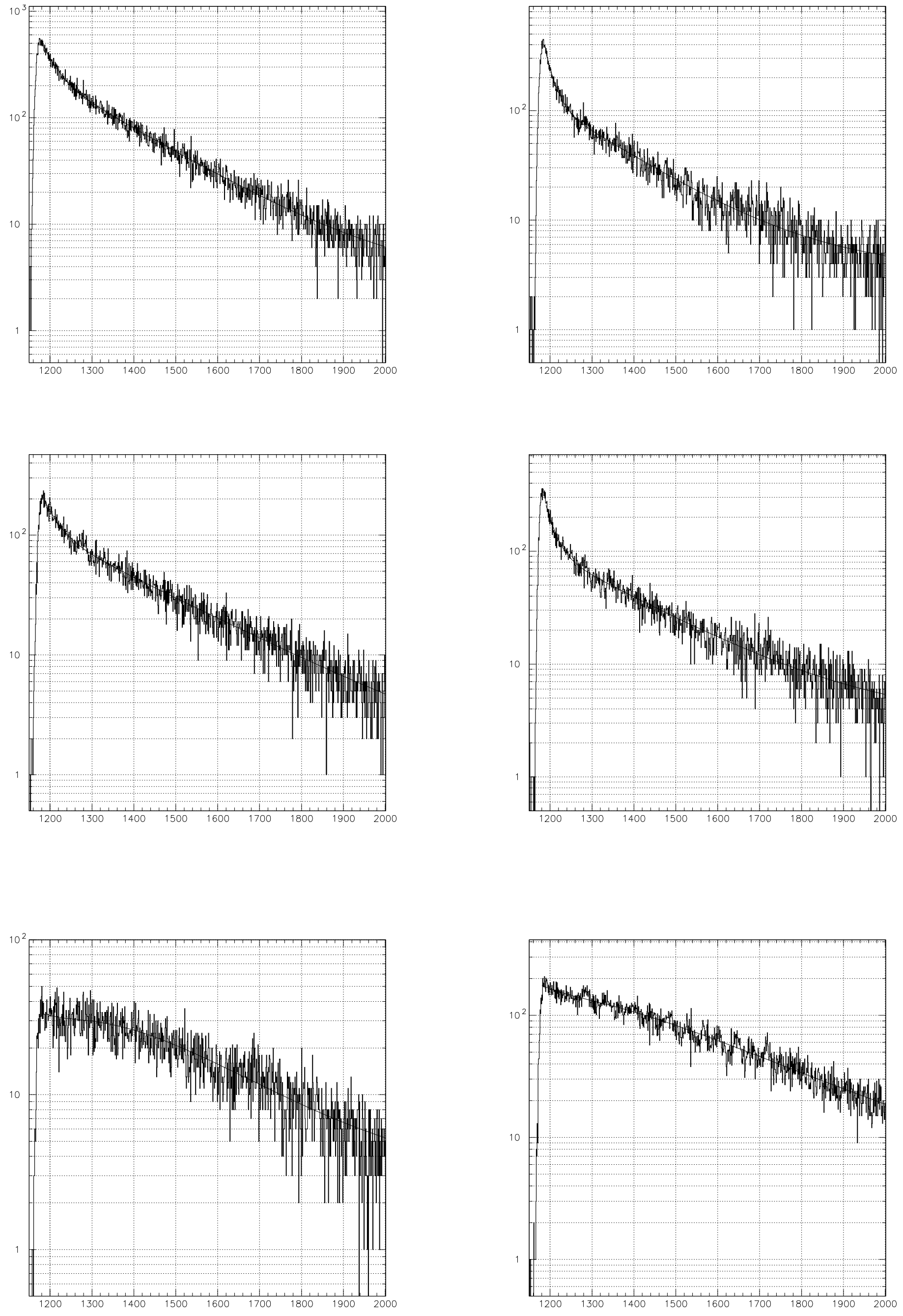


図 20: 波長分解した発光時間スペクトルに対するフィッティングの様子。縦軸：イベント数、横軸：TDCチャンネル数 (500ns/4096ch)。左がγ、右がαに対するスペクトル。上段は BP-300、中段は BP-320、下段は BP-340 に対するスペクトル。

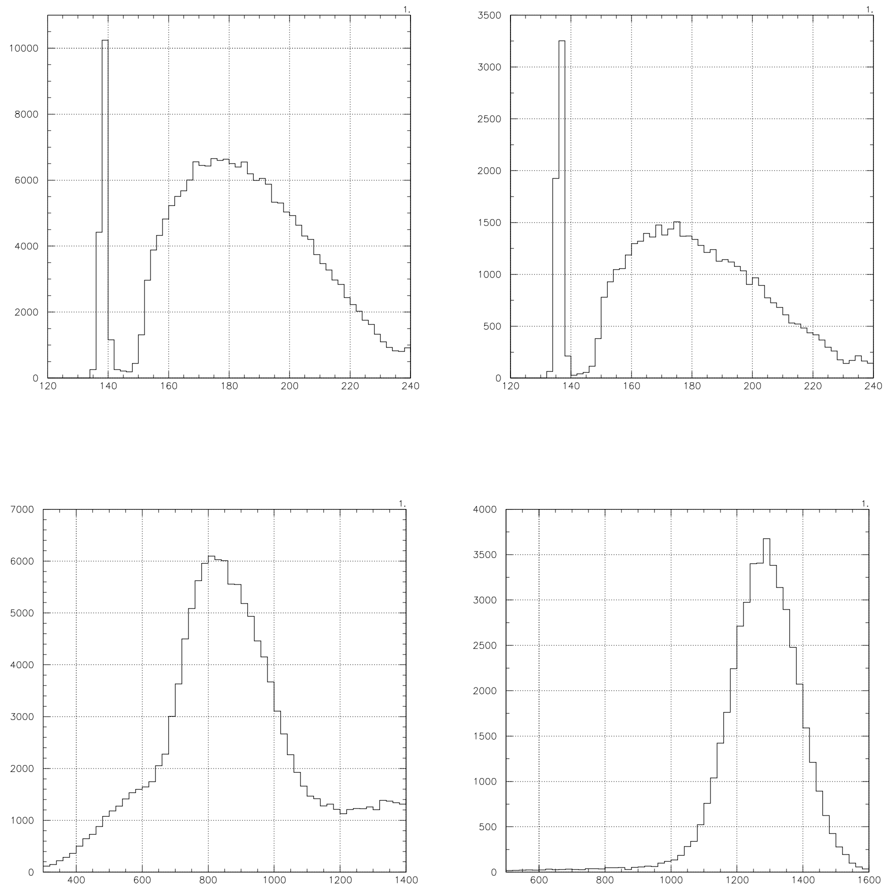


図 21: 波長分解発光時間スペクトルの測定におけるADCヒストグラム。縦軸：イベント数、横軸：ADCチャンネル数。上段 : ADC(0)、下段 : ADC(1)。左がγの0.511MeVのピーク、右がαの5.48MeVのピーク。ADC(0)については、いずれもペデスタルのピークから上70chまでを切り出し、さらにADC(1)について650 ~ 1000ch(for γ)、1000 ~ 1500ch(for α)のイベントを切り出した。例としてBP-300での測定に際して得られたものをあげたが、他もほぼ同じであった。

	τ_f	τ_p	τ_s	A_f/A_s	χ^2/n
γ (BP-300)	3.83 ± 0.16		23.1 ± 0.4	1.08 ± 0.0359	1.47
γ (BP-320)	4.07 ± 0.24		30.4 ± 0.8	1.07 ± 0.0493	1.43
γ (BP-340)	7.88 ± 1.05	149 ± 23	21.8 ± 0.4	0.0678 ± 0.0109	1.49
α (BP-300)	2.32 ± 0.07		21.8 ± 0.5	3.11 ± 0.14	1.62
α (BP-320)	2.64 ± 0.12		26.3 ± 0.6	2.54 ± 0.13	1.50
α (BP-340)	9.13 ± 0.65	20.6 ± 1.1	34.3 ± 0.5	0.613 ± 0.023	1.81

表 9: 発光時間スペクトルの波長分解測定に対するフィッティングパラメータの計算結果と、時定数 [ns]。

波長 [nm]	300	320	340
α/γ	0.081	0.13	0.13

表 10: α/γ比の波長依存。

- 340 nm ではα及びγ共に小さい。但しフィットにポンプアップ項を追加したので、この点の考慮が必要である。
- αにおいては 300 nm の方が 320 nm より若干大きい値である。

これらの結果から考えて、αに関しては ionization 段階で発光しない競合過程が生まれ、単位エネルギー当たりの光量が減少し、かつ時定数が短くなったと考えられる。

3.5.2 α/γ比の波長依存性

同じ数の入射粒子に対してのヒストグラムを得る目的で、時間スペクトルに対して以下の方法でノーマライズを行なった。まず、ADC(1) にカットを入れてそれぞれ入射粒子のエネルギーが E(γ) ~ 0.511MeV、E(α) ~ 5.48MeV のピークを切り出した。このイベント数を A(γ、α) とする。こうやって抽出したデータのうち、ADC(0) が single photo-electron level の範囲にあるものを取り出した。つまり、ADC(0) のペデスタルイベントやチャンネル数が大きいところにあるイベントを除去した。このイベント数を B(γ、α) とすると、

$$B(\gamma,\alpha)=k\times n(E,(\gamma,\alpha))\times A(E(\gamma,\alpha)) \tag{7}$$

である。ここで k は、1 個の光子についてそれが PMT(S) に入射し、ADC(0) が single photo-electron level の範囲に入る確率であり、今回の測定では発光位置をそろえてあるので、エネルギーにも入射粒子にもよらないとした。また n(E,(γ, α)) はエネルギー E の粒子が入射した時に結晶内でできる光子数の平均である。r(γ, α) を単位エネルギー当たりの発光効率 photons/MeV とすると、n=r × E だから、

$$B(\gamma)=k\times r(\gamma)\times 0.511\times A(E(\gamma)\sim 0.511) \tag{8}$$

$$B(\alpha)=k\times r(\alpha)\times 5.48\times A(E(\alpha)\sim 5.48) \tag{9}$$

となる。発光量のα/γ比は

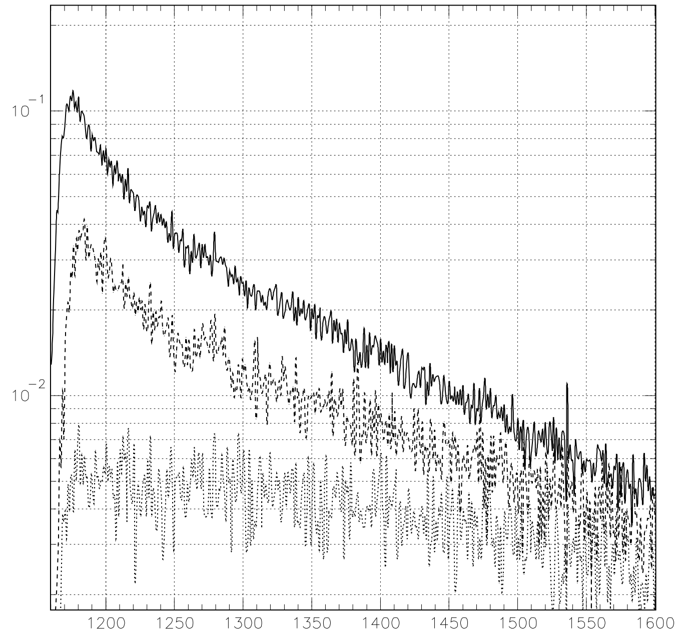
$$r(\alpha)/r(\gamma)=\frac{B(\alpha)/5.48/A(E\sim 5.48)}{B(\gamma)/0.511/A(E\sim 0.511)} \tag{10}$$

なので、TDC と ADC のカットをいれた TDC ヒストグラムを B/E/A でノーマライズすれば、その面積の比が発光量のα/γ比となる。ただしバンドパスフィルターの透過率がフィルター毎に異なるので、さらにフィルターの透過率で割ってノーマライズした。ノーマライズした結果を図 22に示す。

ノーマライズ後の TDC ヒストグラムの面積は、

波長 [nm]	300	320	340
γ	10.7	5.87	2.60
α	0.871	0.758	0.335

となった。波長ごとの発光量の比はそれゆえ、表 10 のように計算された。α/γ比は 300 nm で若干小さい値を示している。しかしながら、現時点の結論はα/γ比の波長依存性は例え存在するとしても小さい。これについては更に詳細な研究が必要である、と考える。



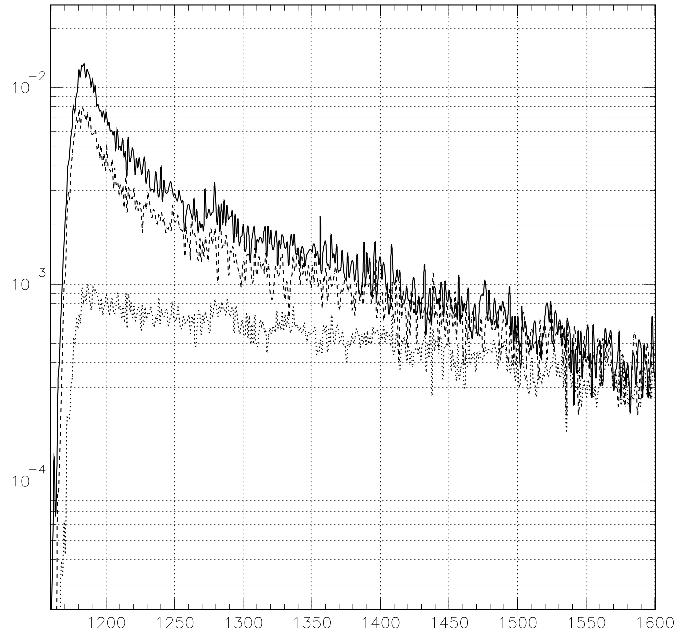


図 22: 波長分解した発光時間スペクトル。上：γ、下：α。縦軸：イベント数 (発光量の比較ができるようにノーマライズ)、横軸：TDC チャンネル数 (500ns/4096ch)。実線は BP-300、破線は BP-320、点線は BP-340 に対するスペクトル。

γ線	速い成分の時定数	τ_f	=	3.4	± 0.5
	遅い成分の時定数	τ_s	=	31	± 5
	速い成分と遅い成分の発光量の比	$A_f \tau_f / A_s \tau_s$	=	0.050	± 0.02
α線	速い成分の時定数	τ_f	=	2.1	± 0.4
	遅い成分の時定数	τ_s	=	24	± 5
	速い成分と遅い成分の発光量の比	$A_f \tau_f / A_s \tau_s$	=	0.24	± 0.02

表 11: 発光時間スペクトルから得られた時定数及び発光量の比。

3.5.3 発光時定数及び発光量成分比のまとめ

波長分解しない場合の発光時定数及び発光量成分比は表 7及び表 8に示した。また波長分解した場合は表 9にその結果を示した。ここではそれらの結果を考慮して、統一的な結果を表 11にまとめる。時定数に関しては波長に依存していない (もしくは依存しているとしても本研究の精度を超えている) と考え、波長分解しない場合の発光時定数を採用した。但し誤差に関しては、統計に起因するものよりも様々な条件における結果のばらつき (系統誤差) が圧倒的に大きいのでそれを考慮した。

さて寿命 τ を持った成分が振幅 A で記述されるとき、その全光量は、$A\exp(-t/\tau)$ を積分して、$A\tau$ とあらわされる。表中の各段第 3 行は速い成分と遅い成分の発光量比を表している。これから分かるようにα線とγ線の発光成分比は著しい違いがある。α線はγ線に比較しておよそ 5 倍ほど速い成分が多い。

4　結果と考察

前章で得られた測定結果をまとめ、それを考察する。

4.1　結果のまとめ

4.1.1　発光量

CeF_3 の発光量の NaI に対する比は 7.6 % (相対誤差　10 %) である。(もし量子効率の違いを補正しなければ、この比は 6.1 %である。) 但しこの値は ^{22}Na からの 0.511 MeV γ線により得られた。CeF_3 のαとγに対する単位エネルギー当りの光量比は 0.13 ± 0.01 と非常に小さい。

4.1.2　発光時定数

CeF_3 には最低 2 つの異なる発光成分が存在する。これらは発光時定数が異なり、遅い成分と速い成分に分類できる。γ線を照射したときの発光時定数は、各々、$\tau_f=3.4 \pm 0.5$ ns 及び $\tau_s=31 \pm 5$ ns であった。またα線を照射したときの発光時定数は、各々、$\tau_f=2.1 \pm 0.4$ ns 及び $\tau_s=24 \pm 5$ ns と求まった。α線とγ線では発光時定数に差があるように見えるが、本研究の範囲で断定する事は可能ではない。遅い成分の比と速い成分の光量比は、γ線に対し $\tau_f A_f/\tau_s A_s=0.05 \pm 0.02$ であり、α線に対し $\tau_f A_f/\tau_s A_s=0.24 \pm 0.02$ である。明らかにα線においては速い成分の相対的寄与が大きい。

4.1.3　波長分解

CeF_3 のシンチレーション光を波長分解した結果は、図??に示したように、速い発光 (300nm,320nm) と遅い発光 (340nm) に明確にわかれた。300nm と 320nm の発光時定数及び成分比に顕著な差は見られない。340nm の発光は non-exponetial であり、他の波長領域と大いに異なる。表 10より、α/γ比の波長依存性は小さい。

4.2　考察

4.2.1　Quehching 機構

α線に対する発光はγ線に対する発光に比べて 13 %ほどの光量であり、極めて低い。この原因は、ionization 段階における quenching である可能性が高い。この quenching 機構としては次のようなプロセスが考え得る。ionization による電子エネルギー分布が、何らかの理由でα線とγ線では異なり、γが Ce^{3+} の励起を起こしやすく、αでは F^- の励起を起こしやすためであるとする。後者の過程は発光する過程に結び付きにくい。

今一つの考え方は ionization density に注目する立場である。良く知られているように考察しているエネルギー領域ではγ線に比べてα線の ionization density は非常に大きい。これにより dipole-dipole 相互作用による発光に寄与しない過程が増加し、286 nm の光による、摂動状態 Ce^{3+} の励起過程が抑制される。こうして相対的に速い成分が大きくなると考えられる。この考えでは時定数も変化する (小さくなる) と予想されるがデーター―はこの傾向を支持していいる。

本研究の範囲内ではα/γ比が小さい原因や、quenching を起こす競合過程を特定するのは困難で、更なる研究が必要である。

4.2.2 発光量と発光機構

NaI の light yield は表 2により、およそ 38,000 photons/MeV であるから、この CeF_3 では 2.3 $\times 10^3$ photons/MeV だと考えられる。ここで、ID No.8 の吸収端 (absorption coefficient μ が 10 m^{-1} となる波長) は図 10より、$\lambda \sim 292$ nm である。Auffray[1] らの得た各種サンプルに対する light yield(L[photons/MeV]) と吸収端 (k[nm]) の関係はいずれも、

$$L = -45k + 14600 \tag{11}$$

の直線付近にあるようだったが、今回の測定で得た結果でははるかに光量が多かった。

これに関しては次のような 2 つの可能性がある：

(a) どちらかのグループの測定が誤っている、または測定条件が異なる。

(b) 今回の結晶は何らかの理由で吸収係数が同じであるにも係わらず光量が大きい。

本研究では 1 個の NaI 結晶しか用意できなかった。複数のサンプルで再チェックが望ましい。より興味深いのは (b) の可能性である。新しい製造方法が光量に影響を与えているか否かはぜひ確認すべき今後の課題である。

4.2.3 中性子弁別

α線の速い成分の比率はγ線に比べて非常に大きい。この事実を利用すると粒子弁別は原理的には可能である。中性子の弁別に関しては次のような事柄を考慮する必要がある。実際の中性子の入射ではα以外に陽子やγ線も発光に寄与する。しかも中性子エネルギーに依存して粒子の種類やエネルギー分布も複雑に変化する。従って中性子自身 (出来れば単色の) を使った実際的なテストが必要不可欠である。また速い成分は数 nsec と非常に速く、これだけを取り出すには回路上の工夫が必要であろう。いわゆる「Double Gate」法ではなく「Waveform Digitizer」を使う事が望ましい。

4.3 まとめと将来への展望

第 2 章において、CeF_3 結晶に関しては 3 つ程度の課題があると述べた:

(1) 結晶製造の問題 (大きな物を安価に製造する)。

(2) 発光量の問題 (実際の発光量と理論予想が食い違う。)

(3) 荷電粒子に対する応答 (γ線以外に研究がなされていない。)

本研究ではα線を用いて CeF_3 結晶の発光量と時定数を測定した。その結果 (2) と (3) の課題に関する一定の知見を提供した。

今後の研究方針は様々な視点が考えられる。高エネルギー素粒子実験の立場からは (1) の課題が最も重要である。低エネルギーでの応用においては (2) と (3) が重要となろう。(2) について言えば Ce^{3+} の励起を他のイオンに移す事によりエネルギーの有効利用 (発光量の増加) を目論む事が考えられている。(実際 La を注入する試みもなされているが成功したとは言えない。) この観点からも発光機構や quench 機構を理解する事が必要ではないだろうか？そのためにも光による励起と共に荷電粒子による研究も非常に有効である。

CeF_3 結晶は非常に有望な無機シンチレーターであるがより一層の研究が待たれる。

参考文献

[1] E.Auffray et al., “Extencive studies on CeF_3 crystals, a good candidate for electromagnetic calorimetry at future accelerators,” Nucl.Instr.and Meth.in Phys.Res.A383(1996)367-390.

[2] Crystal Clear Collaboration,CERN/DRDC P27/91-15(1991).

[3] D.F.Anderson,IEEE Trans.Nucl.Sci.NS-36(1989)137.

[4] W.W.Moses and S.E.Derenzo,Nucl.Instr.and Meth.A 299(1990)51.

[5] M.Nikl et al.,J.Phys.Cond.Matter 7(1995)6355.

[6] M.Nikl and C.Pédrini,Sol.State Comm. 90(1994)155.

[7] C.Pédrini,B.Moine,J.C.Gacon and B.Jacquier, J.Phys.Cond.Matter 4(1992)5461.

[8] C.Pédrini,B.Moine,D.Boutet and P.Martin, Heavy scintillators for Scientific and Industrial Applications, eds.F.De Notaristefani,P.Lecoq and M.Schneegans (Editions Frontiéres,1993)p.187. J.Phys.Cond.Matter 4(1992)5461.

[9] A.J.Wojtowicz,M.Balcerrzyck,E.Bennan and A.Lempicki, Phys.Rev.B49(1994)14880.

[10] T.Murakami,J.Kasagi,H.Tachibanaki,K.Yoshida and Y.Shibata, “Properties of BaF2 Scintillatos in Charged Particle Detection,” Nucl.Inst.and Methods in Phys.Research A253(1986)163-165.

[11] Fletcher.R.,”A New Approach to Variable Metric Algorithms,” Computer Journal, Vol. 13, pp.317-322, 1970.

[12] T.Inagaki and Y.Yoshimura,”Development of CeF_3 Crystal for High-Energy Electromagnetic Calorimetry,” KEK Preprint 98-191(1998)H.