

JAERI-Tech

98-043



シンチレーション発光のパルス波形測定

1998年9月

八木秀之・伊藤 浩・浅野芳裕・白田重和

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所

シンチレーション発光のパルス波形測定

日本原子力研究所東海研究所エネルギーシステム研究部

八木 秀之・伊藤 浩・浅野 芳裕⁺・臼田 重和⁺⁺

(1998年9月7日受理)

発光スペクトルと減衰時間との相関を含めたシンチレータの応答を得るために実験的研究を行った。シンチレータの正確な発光パルス波形を得るために、簡便で有効な測定方法を考案した。光電子増倍管の出力電流によって充電された積分容量に現れる電圧パルス波形をデジタル・オシロスコープで観測した。シンチレーション発光のパルス波形は電圧パルスデータの算術的差分から得られる。代表的な無機シンチレータについて発光の減衰時間を推定した。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

+ 関西研究所放射光利用研究部

++ 燃料サイクル安全工学部

Pulse Shape Measurements of Scintillation Emission

Hideyuki YAGI, Hiroshi ITOH, Yoshihiro ASANO⁺ and Shigekazu USUDA⁺⁺

Department of Nuclear Energy System
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 7, 1998)

The experimental investigations have been performed for the scintillation response that includes the relation between the emission spectra and the decay time. A simple and useful method was contrived to obtain the accurate pulse shapes of scintillation emission. Voltage pulse shapes appear on an accumulating capacitance charged by the output current of a photo multiplier, and these are observed by the digital oscilloscope. The scintillation emission pulse shapes are obtained by the arithmetic differentiation of the voltage pulse data. The emission decay time constants with multicomponents of the typical inorganic scintillators were estimated.

Keywords : Scintillator, Inorganic Scintillator, Scintillation Emission, Decay Time, Pulse Shape

⁺ Department of Synchrotron Radiation Research, Kansai Research Establishment

⁺⁺ Department of Fuel Cycle Safety Research

目 次

1. まえがき.....	1
2. シンチレーション発光波形の測定.....	2
3. 無機シンチレータの発光波形とその減衰時間.....	9
4. あとがき.....	26
参考文献.....	27

Contents

1. Preface.....	1
2. Measurements of Scintillation Emission Pulse Shape.....	2
3. Emission Pulse Shapes and Decay Time Constants of Inorganic Scintillator.....	9
4. Remarks.....	26
References.....	27

This is a blank page.

1. まえがき

シンチレータの研究は 1950 年代に精力的に行われ、BGO などの複酸化物結晶など一部のものを除いて、現在利用されているシンチレータのほとんどはこの時期に開発されたものである。従って、現在利用できるその特性データもほとんどが当時のものである。ところが、近頃製造されたシンチレータ用の結晶は、材料の純度の向上によって完全性を増し、過去のデータとの間に差異が見られるものが出てきた¹⁾。一方、シンチレーション発光を電気信号に変える光電子増倍管などの光のセンサは、その後の技術的な進歩によって著しく性能が向上している。例えば、光電管の分光感度特性を見ると、入射窓に合成石英を使用したものは 160 nm まで透過し、長波長側の性能では、セシウム活性化ガリウム・ひ素 (GaAs (Cs)) 光電面が開発され、930 nm まで感度が広がった。さらに、当時には無かった半導体光検出器が実用化され、シリコン・フォトダイオードの例では、1000 nm 以上でも大変高い量子効率を示している。これらのことから、新しい光電子増倍管、あるいは半導体光検出器を利用した新しいタイプのシンチレーション検出器を考える時に、シンチレータの発光スペクトルを光電管の分光感度特性を含めて、改めて評価しておくことが必要になった²⁾。さらに、CCD など蓄積型の 2 次元センサを利用した検出器を考えた場合、発光スペクトルとセンサの分光感度特性とのマッチングの問題の他に、波高分布の測定のように速いパルスによる測定では問題にならなかつた減衰時間の長い成分を評価しておくことが重要である。ことに、シンチレータの発光スペクトルを蓄積型の CCD ラインセンサを使用した分光器を用いて測定する場合には、蓄積時間が秒程度であることから、減衰時間の長い成分の寄与を含めて計測される。従って、この方法によって得られた発光スペクトルから算出した相対的発光効率とパルス波高による発光効率とを関係付けるためには、長い成分を含めて減衰時間を正確に測定しておく必要性がある。また、教科書³⁾ あるいは Harshaw 社のカタログ⁴⁾ に述べられていて良く引用されるシンチレーション変換効率比（実際にはパルス波高比）が曖昧なのは、それが発光の減衰時間と回路の時定数との関係で決まるものであるにも係わらずその値が明確にされていないことに因る。

本報告の減衰時間測定のために考案した方法は、光電子増倍管の出力電流でコンデンサを充電した時にコンデンサの両端に現れる電圧波形が充電電流を積分したものであることから、デジタル・オシロスコープを用いて電圧波形を数値として記録し、算術的にその差分（変分）を取ることによって電流波形を得るものである。この方法ではおよそ 100 マイクロ秒までの減衰時間が測定できる。測定に供したシンチレータは代表的な無機シンチレータで、且つ市販されていて容易に入手できるものに限った。シンチレータの供試体は、光の吸収率特性、発光スペクトル、および発光の減衰時間を 3 点セットにして測定することを考慮して、各々、両面を合成石英で挟んだもの、片面を合成石英、他面をベリリウム窓にしたもの、および裸の結晶の 3 種類を用意した。本報告では発光の減衰時間の測定とその結果に限り、光吸收スペクトルと発光スペクトルの測定については別に報告する。

2. シンチレーション発光波形の測定

放射線の入射によってシンチレータが発光する過程を時間的に見ると、例えば、数百KeV のガンマ線光子が入射した場合には、コンプトン散乱あるいは光電吸収などの効果によって、そのエネルギーの全部または一部を電子に与えて高速の電子を生成し、その電子と構成原子との電気的相互作用（クーロン力による散乱）によってエネルギーを失って行く。その素過程は、プラズモン生成および内殻電子励起である。高速の一次電子が散乱されるごとに十ないし数十 eV の電子が新たに作られ、オージェ過程によってさらに多数の二次電子が生成される。この過程はこれに続く緩和過程に比べると極めて短い時間に完了することから、ここでは問題にしない。多数の励起状態の大部分は熱的な過程を経て緩和されるが、一部分は光子を放出する過程を通じて緩和される。この発光の過程はシンチレータの種類によって異なり、有機シンチレータでは單一分子のエネルギー準位間での遷移によって生じるが、無機シンチレータでは規則的な結晶格子構造がシンチレーション発光過程の基礎になっている。無機シンチレータの場合、生成された多数の電子正孔対の内、正孔は格子位置よりも電離エネルギーの低い活性化物質などによる発光中心にすばやく移動してそれを電離する。一方電子は結晶中を自由に短い時間で移動して電離された活性化物質に出会い、独自の励起エネルギーを持った中性の不純物配位（発光中心）を形成する。個々の励起状態は確率論的な寿命をもって基底状態に遷移し光子を放出する。従ってマクロに見れば、一次電子による励起時点を起点として、生成された多数の発光中心の遷移によって、発光は固有の減衰時間を持って指数関数的に消滅する様に観測される。

発光の減衰時間を測定する方法には、大別して、三つの方法が考えられる。最も一般的な方法は、光電子増倍管の出力電流波形を広帯域の増幅器を通して、オシロスコープで観察するというものであるが、増幅器の高速応答性能によって制限される。光電子増倍管の出力に増幅器を接続した場合の模式的な回路図を 図2.1 に示す。浮遊容量として有限の積分容量 C_s が存在するために、発光の減衰時間に比べて時定数を小さくするには光電子増倍管の陽極の負ア荷抵抗 R_L を小さくする必要がある。その結果、出力に現れる電圧が小さくなり大きい増幅度を必要とするが、G B 積一定なるが故に周波数帯域が制限される。浅田常三郎らは、1957年に Spencer Kennedy の分布増幅器と Tektronix のオシロスコープを用いて、ZnS(Ag) の減衰時間を測定しているが、ガンマ線による 100 ナ秒程度の減衰時間を観測波形から直接に決めるることは出来なくて、陽極の負荷抵抗 R_L を変えて回路の時定数から推定している⁵⁾。

もう一つは、1950 年に、Arne Lundby らによって行われた、Delayed Coincidence 法 と呼ばれる（Single Photon Method とも呼ばれる）もので、発光中心の寿命を確率的な分布として測定するものである⁶⁾。Delayed Coincidence 法の概念図を 図2.2 に示す。この指数関数的な発光を、光の検出効率の高いセンサ（光電子増倍管）でもって発光の起点を得る一方で、一個の放射線に対して（数千個の光子に対して）一個以下の低い効率を持つようにセンサ（シングル・フォトン・カウンティング）を配置し、起点からの時間に対する計数の頻度分布を測定する

ものである。実際にはマルチ・スケーラ（あるいはタイム・アナライザ）を用いて測定される。タイム・トゥ・パルスハイト・コンバータを用いて、波高分布に置き換える方法もこれと同じことになる。この方法は、光電子増倍管の高速応答を利用するもので、広帯域の増幅器を必要としない、優れた方法であり、分光器と組み合わせて、発光スペクトルとの相関を調べる様な集光性の低い場合に適している。

今回考案した方法は、シンチレーションの発光量に対応する光電子増倍管の出力電流を挿入した積分容量に充電し、その積分された波形をデジタル・オシロスコープで記録し、算術的に差分を取ることによって電流波形を得ようとするものである。この方法の利点は、積分信号であるが故に信号の振幅が大きく、発光の減衰時間に対応できる周波数応答があれば良いことから、増幅器のG B積による制限を避けることができる。光電子増倍管と前置増幅器を含む等価回路を測定に使用した装置の構成と共に 図2.3に示す。今回の測定では、2インチのヘッドオン型光電子増倍管 R 375 を使用した。R 375はマルチ・アルカリ光電面を持ち $160 \sim 850 \text{ nm}$ と広い波長領域にわたる分光感度特性を示す。R 375の立ち上がり応答時間は約 10 n sec である。電子回路は入射放射線のエネルギー波高分布を測定する際に一般的に使われている帰還のない積分型のアンプである。このゲインが 1 のエミッタ・フロー型のアンプはインピーダンス変換の機能を与える。減衰時間の長い成分が測定できるように、光電子増倍管の出力に挿入される積分容量 C_a と負荷抵抗 R_L とによって構成される微分時定数は意図的に大きく設定されている。この回路の速い応答の限界は約 15 n sec である。デジタル・オシロスコープは G P - I B インターフェイスでコンピュータと接続され、コンピュータ側からの指令で起動、データの読み込み、あるいは波形処理が行われ、より完全な波形が得られる様に工夫されている。使用したデジタル・オシロスコープの特性の概要を表 2.1 に示す。

表 2.1 デジタル・オシロスコープ (TEKTRONIX 2440) の特性

垂直 (電圧軸)	
分解能	8ビット (256デジット/フルスケール)
電圧感度	$80 \mu \text{V}/\text{デジット}$
シングル・イベント帯域幅	DC ~ 200 MHz
水平 (時間軸)	
レコード長	1024サンプル
サンプル・レート	500Mサンプル/秒 (2 ns/サンプル)

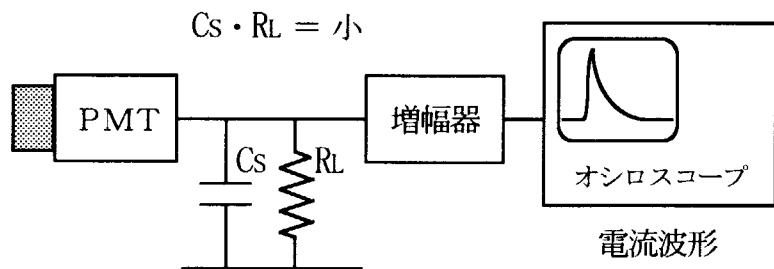


図 2.1 光電子増倍管の出力電流波形を広帯域の増幅器を通して、
オシロスコープで観察する場合の回路構成の概略

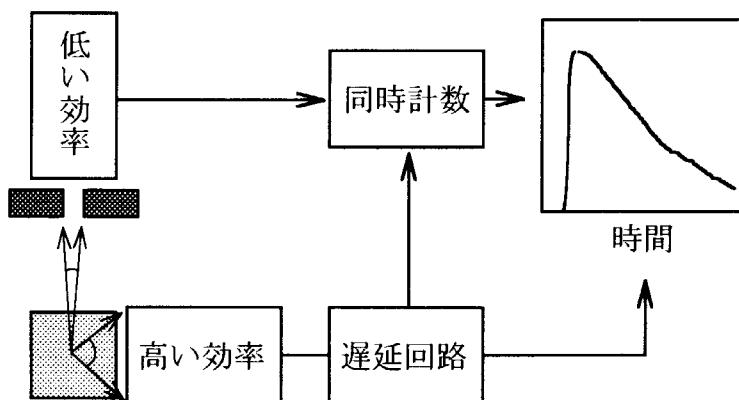


図 2.2 Delayed Coincidence 法の概念図

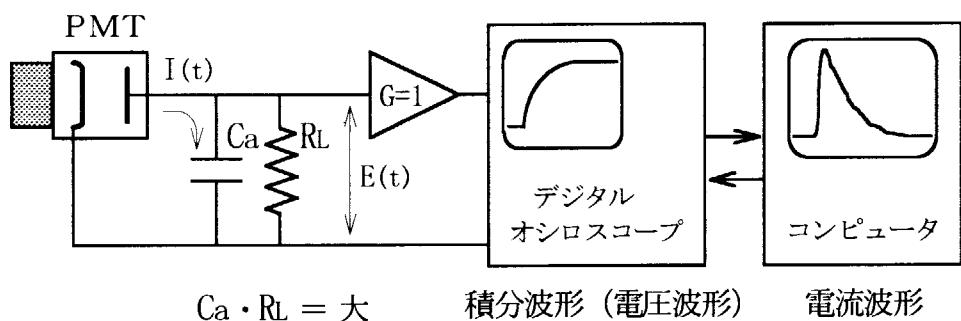


図 2.3 積分波形を観測記録して演算処理によって電流波形を得る
本方法の概略と機器構成

波形処理の過程は、波高弁別、波形弁別、および平均化の三段階に別れている。第一の段階で行われる波高弁別は、1掃引時間中のパルス波形の振幅の最大値が電圧軸最大値の60%～80%に入る信号だけを採用するように設定した。パルス波高を一定範囲に制限することによって、一定電圧で与えられるトリガ・レベルによるパルス波形の始点の時間的変動を小さく押さえる効果が得られる。次の段階ではパイルアップを除くために、波形弁別を行った。波形弁別の方法は、正しいと思われる波形をモデルとして与えて置き、取り込んだ波形をモデルと比較し、相似であればモデルに加えモデルを更新し、これを繰り返す方法である。実際の手順は、まず、デジタル・オシロスコープに取り込まれた波形から、実験者が目視によって正しいと思われるパイルアップの無い一つの波形をモデルに選ぶ。次に、取り込まれた波形の振幅をモデルのもので規格化した後にモデルと比較し、ノイズによる「ゆらぎ」を越えてモデルから外れたものをパイルアップがあったものとして捨てた。モデルとの比較によってパイルアップが無かったと判定されたものを採用し、モデルに加え、モデルを更新する。この操作によって、100回、200回と更新されたモデルは、結果的に平均化された波形となる。パルス波形をデジタル・オシロスコープからコンピュータに取り込む際のコンピュータの画面上への表示例を 図2.4 に示す。図2.4 の (a) と (b) にはパイル・アップが起こり、データが排除された様子を示す。各々のモデルとした変動の少ない滑らかな曲線は、31回、87回と平均化され波形である。(c)には正常にデータを取り込んだ様子を示す。

図2.3の等価回路において、発光の減衰時間定数を τ_e とすると、光の減衰波形に相当するコンデンサ C_a に流れる電流は、次式で表される。

$$I(t) = I_0 \cdot (\exp(-t/\tau_e)) \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

この時に、コンデンサの両端に現れる電圧は、次式で表される。

$$E(t) = A \cdot (1 - \exp(-t/\tau_e)) \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

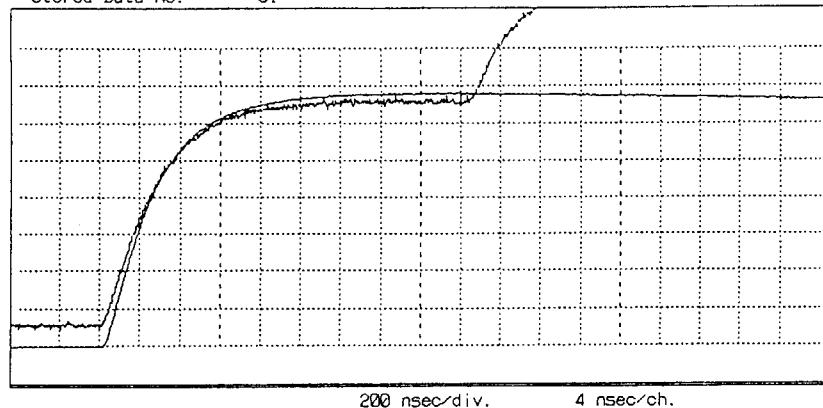
コンデンサ C_a に充電された電荷は抵抗 R_L によって放電されるので、この微分時定数を τ_d と書くと、出力の電圧波形は、次式で表される。

$$E(t) = A \cdot \tau_d / (\tau_d - \tau_e) \cdot (\exp(-t/\tau_d) - \exp(-t/\tau_e)) \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

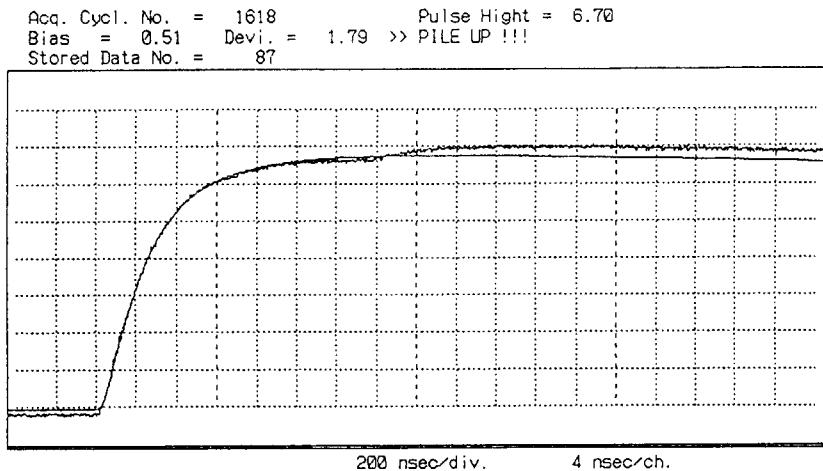
測定された電圧波形は、この(3)式に相当するものである。ここで、 τ_d は、 τ_e に比べて十分に大きいとすると、(3)式の右辺は $\exp(-t/\tau_d)$ で割ることによって(2)式の形に戻すことが出来る。この τ_d の補正を行ったデータの差分を取ると、(1)式に相当する電流波形が得られる。なお、この微分時定数 τ_d ($= C_a \cdot R_L$) は、予め LD による光パルスを用いて実験的に正確に求めた結果、164マイクロ秒であった。得られた波形(3)式をチェックする

Acq. Cycl. No. = 726 Pulse Height = 6.22
 Bias = 6.07 Devi. = 135.78 >> PILE UP !!!
 Stored Data No. = 31

(a)



(b)



(c)

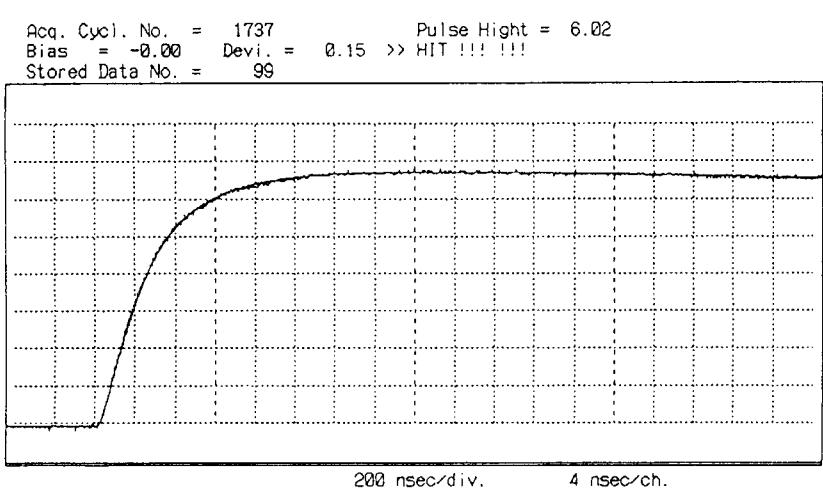


図2.4 デジタル・オシロスコープからデータを取り込む際のコンピュータ画面上の表示を示す。(a)及び(b)はパイル・アップが起こり、データが排除された様子を示す。(c)には正常にデータを取り込んだ様子を示す。

ために、 τd で補正された波形（(2)式）、その差分から得られる電流波形（(1)式）をコンピュータの画面上に表示できる様にした。Na I (Tl) についての一例を 図2.5に示す。デジタル・オシロスコープからのデータの取り込み、波高弁別、波形弁別、平均化、波形の差分、スマージング、および表示など、一連の処理を行うプログラムはBASIC言語で約300行程度のものである。

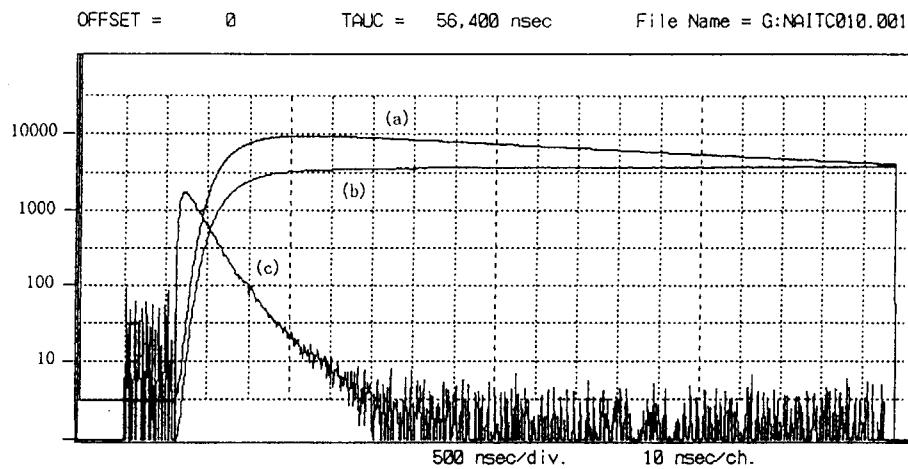


図2.5 コンピュータの画面上に表示された Na I (Tl) 測定データの一例

- (a) は 測定された電圧波形 : (3) 式に相当する
- (b) は τd で補正された電圧波形 : (2) 式に相当する
- (c) は その差分として得られる電流波形 : (1) 式に相当する ; (対数表示)

本方法の欠点は、観測される波形には光電子増倍管から発生するアフタパルスなどの擬似パルスを含む光電子増倍管の応答が重畠されていることである。アフタパルスは電子増倍の過程で加速された電子が残留ガスを電離し、イオンが逆行して光電面に当たることによって発生するものである。その形と大きさは個々の光電子増倍管に固有のもので、電極の構造、印加電圧および残留ガスに依存する。今回使用したR 375では、アフタパルスは主パルスに続いて $1 \mu\text{sec}$ 前後にブロードなピークを持って現れ、アフタパルスの電流の積分量は最大で主パルスの数%程度である。LDによる光パルスに対する光電子増倍管（R 375）の応答を印加電圧をパラメータとして 図2.6に示す。但し、アフタパルスは確率的に現れるもので、図に示したアフタパルスの形は多数のパルスを重ね合せた平均的な形を示すものである。印加電圧によるアフタパルスの主パルスに対する割合を 表2.2に示す。このアフタパルスは後述する純粋なNa I、Cs Iなどのように減衰時間の速いシンチレータの測定において明確に観測される。そのようなケースでは、印加電圧に対応するアフタパルスの寄与分を差し引く補正を施した。

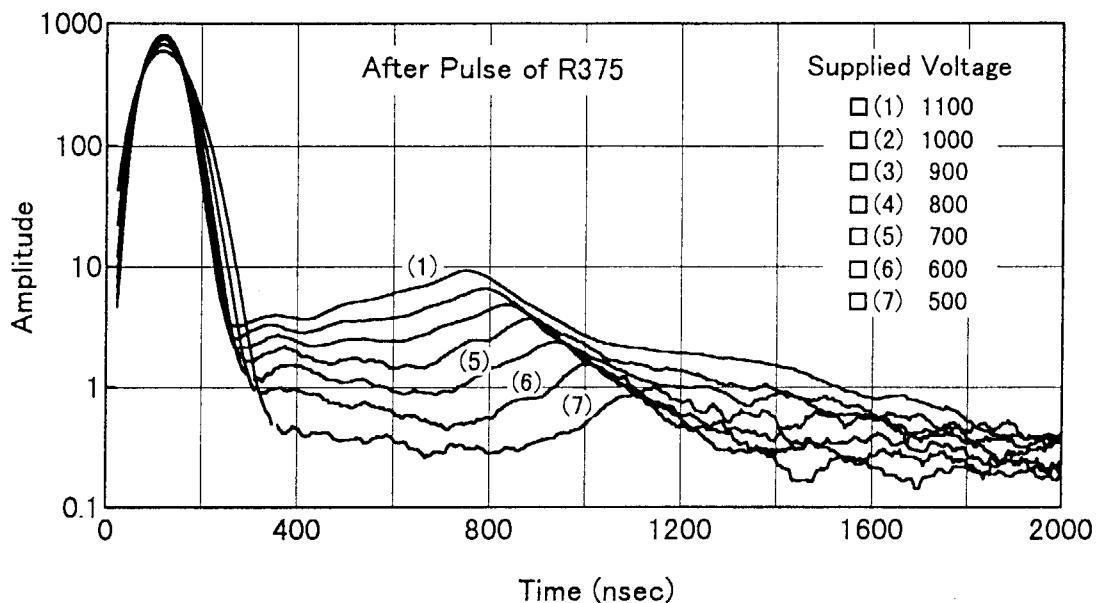


図2.6 アフターパルスを観るために測定した、レーザダイオードによる
短い光パルスに対する光電子増倍管（R 3 7 5）の応答

表2.2 光電子増倍管（R 3 7 5）の印加電圧をパラメータとした
主パルスに対するアフターパルスの割合

印加電圧 (volt)	500	600	700	800	900	1000	1100
主パルスに対するアフターパルス ($< 2 \mu\text{sec}$ の積算量) の割合 (%)	0.8	1.3	2.0	2.9	3.9	5.5	7.6
主パルスに対するアフターパルスの 波高値の割合 (%)	0.15	0.23	0.32	0.48	0.60	0.88	1.20

3. 無機シンチレータの発光波形とその減衰時間

現在市販されていて容易に入手できる代表的な無機のシンチレータを測定の対象とした。測定に使用したシンチレータの教科書あるいはカタログに表わされている特性を末尾 表Aに示す。発光波形の測定と減衰時間の算出は、シンチレータの応答特性の一部で、シンチレータ結晶の吸光分光特性、励起粒子およびエネルギー依存の発光スペクトルの測定、さらに、発光スペクトルと減衰時間との相関を含めた一連の測定によって完結する。測定は全て室温 ($24 \pm 1^\circ\text{C}$) で行い、ガンマ線源には $\text{Cs}-137$ を使用した。測定された積分パルス波形のデータを発光波形に相当する電流波形の形に変換した波形をリニア表示と片対数表示で図3.1から図3.9に示す。得られた発光波形データの対数を取って線形化し、多成分の1次関数の和として最小自乗法による近似を行い、減衰定数を推定した。それらの結果を表3.1から表3.4に示した。

沃化物シンチレータについては、減衰時間が短く、シンチレーション発光効率が高いことから最も広く利用されている $\text{Na I}(\text{Tl})$ をはじめ、溶解性が低いことから応用範囲の広い $\text{Cs I}(\text{Tl})$ 、 $\text{Na I}(\text{Tl})$ に似た性質を持つ $\text{Cs I}(\text{Na})$ のシンチレーション発光の減衰時間を測定した。さらに、活性化物質を含まない純粋な Na I と Cs I についても同様の測定を行った。これらの測定結果を過去のデータと比較しその差異について考察する。

Plyavin¹ はタリウムあるいはインジウムで活性化したアルカリ・ハライド結晶のホトルミネッセンスの減衰時間を測定している¹¹⁾。これらの値は、Storey ら¹²⁾、あるいは Robertson と Lynch¹³⁾の観測した $\text{Na I}(\text{Tl})$ 、 $\text{K I}(\text{Tl})$ 、 $\text{Cs I}(\text{Tl})$ のシンチレーション減衰時間の主成分の値 0.23 、 0.24 、 $0.7 \mu\text{sec}$ と良く一致しており、不純物中心のルミネッセンスが過程の1つとしてシンチレーション減衰時間を決める事を示している。

活性化されたアルカリ・ハライドのシンチレーション・パルスの波形は、a) 結晶の主格子、b) 活性化物質とその濃度、c) 空間的なエネルギー損失比 (dE/dr)、d) 温度、e) 結晶の欠陥等に依存し、それらが複合されて観測される。 $\text{Na I}(\text{Tl})$ については、1954年に Eby と Jentschke が Tl の含有量が異なる Na I 結晶を 11.5 MeV の deuteron と 23 MeV α 粒子あるいは Po^{210} の α 粒子によって励起した場合のシンチレーション・パルスの形を観測し、パルス波形を特徴付ける次の様な四つの過程を示している¹⁴⁾。

- (1) 主パルスの立ち上がり時間は 6.0 n sec である、
- (2) 主パルスの減衰時間は $\sim 230 \text{ n sec}$ である、
- (3) Tl の濃度が低い結晶からは減衰時間 $\sim 12 \text{ n sec}$ のスパイクが現れる、
- (4) Tl の濃度が高い結晶からは $\sim 15 \text{ n sec}$ の速い減衰がある。

Owen は 1959 年、 α 粒子によって励起されたシンチレーション・パルスの波形とガンマ線による波形とに差異があることを報告している¹⁵⁾。 $\text{Na I}(\text{Tl})$ については、ガンマ線による励起では、パルスは (1) の過程で最大値に立ち上がるが、 $\sim 230 \text{ n sec}$ で減衰する前に、起点から $\sim 150 \text{ n sec}$ までの間でほぼ一定の部分、即ち、フラット・トップの形状を呈する。一

方、 α 粒子によるパルスは(1)の過程から直ちに(2)の過程 $\sim 230 \text{ n sec}$ で減衰し鋭いピークを呈する。Cs I (T1)についても同様であり、 α 粒子励起によるパルスは速く立ち上がった後に $0.4 \mu \text{ sec}$ で減衰する。ガンマ線励起によるパルスは比較的緩やかに $0.2 \mu \text{ sec}$ で立ち上がり、 $0.4 \mu \text{ sec}$ と $7 \mu \text{ sec}$ の2つの成分をもって減衰する。Robertson と Lynch は、Na I (T1) のガンマ線あるいは陽子線で励起されたパルスに、 230 n sec の成分に加えて、さらに長い $1.5 \mu \text{ sec}$ の減衰時間を持ち全光量の 0.4 を占める成分を観察した¹³⁾。

Bonanomi と Rossel は、 290 K から 77 K までの温度範囲での Na I (T1) と純粋な Na I 結晶のガンマ線励起のシンチレーションの減衰を測定した¹⁶⁾。彼らは低温の領域で4つの減衰時間成分を識別したが、その一つの最も長い時間成分の常温での過程の減衰時間と思われる $1.5 \mu \text{ sec}$ の成分は観測していない。純粋な Na I のシンチレーション発光の減衰は最も短い成分が支配的であるが、彼らは常温領域では観測できていない。また、彼らは Po^{210} の α 粒子によって励起された Cs I (T1) と純粋な Cs I 結晶のシンチレーション発光に2つの減衰時間成分を観測した。その一つは $0.6 \mu \text{ sec}$ の成分で、温度の減少に伴って大きくなり、他の一つの $\sim 1.0 \mu \text{ sec}$ の成分はほとんど温度に依存しない。

Van Sciver と Bogart は、純粋な Na I の発光スペクトルの温度依存性を観測すると共に¹⁷⁾、ガンマ線に対するシンチレーション効率と減衰時間が温度に強く依存することを示した¹⁸⁾。彼らの測定によると、純粋な Na I の常温における減衰時間は $\sim 15 \text{ n sec}$ である。

図3.1に示す Na I (T1) の測定データを減衰時間が1成分であるとして解析すると 240 n sec になった。測定された波形を観察すると1成分で表わすことが不十分であることは明らかであり、これを2成分とすると減衰時間は 180 n sec と 480 n sec その相対的な強度比は 0.75 と 0.25 になった(表3.1 参照)。この値は、Robertson と Lynch が言う長い成分の $1.5 \mu \text{ sec}$ 相対強度比 0.4 とは異なっている。Owen が観測した起点から $\sim 150 \text{ n sec}$ の間のフラット・トップの形状は同様に見ることができる。2成分とした近似では、フラット・トップ部を外して解析したために 180 n sec の成分の強度を 0.75 としているが、フラット・トップ部の欠落を考慮すると大きめに見積られている。

Cs I (T1) はその発光波形(図3.2参照)から明らかに多成分の減衰時間を含み複雑な形状を示している。Cs I (T1) は、現在の減衰時間の測定結果と過去の測定結果との間に大きな差異があるものの一つで、過去の測定においても実験者の間で大きな差異があった。今回得られた発光波形は、表3.1 に示した様に4つの減衰時間成分を当て嵌めることによって良い近似が得られた。その内の速い方の2つの減衰時間成分である 920 n sec と $4,000 \text{ n sec}$ は、Owen の示した 400 n sec と $7,000 \text{ n sec}$ の成分に相当する。さらに長い時間成分 $20 \mu \text{ sec}$ と $\sim 600 \mu \text{ sec}$ が観測でき、その発光量を合わせると全光量の 44% になる。但し、この $\sim 600 \mu \text{ sec}$ の成分は、さらに長い残光を含めて便宜的に与えたもので寿命を意味するものではない。従って、この成分が分担する相対的な発光量も便宜的なものである。本方法による測定では $2 \sim 300 \mu \text{ sec}$ が限界であり、これ以上長時間の成分を正確に評価することはできない。

Cs I (Na) は、Na I (T1) よりも後で開発されたものの密度以外に性能的に Na I (T1) に

取って代わるだけの利点が無かったことから普及しなかった。図3.3に示す様に、CsI(Na)の発光の減衰波形は、CsI(Tl)のそれと類似しており、表3.1に示す様に4つの減衰時間成分を当て嵌めることによって近似できる。18.5 μsecと300 μsecで代表させた長時間成分の相対的強度は約40%ある。CsI(Tl)と同様にこの～300 μsecの成分は、さらに長い残光を含めて便宜的に与えたものである。

純粋なNaIとCsIの発光波形も測定したが、その減衰時間は短く本方法による測定の限界を超えていた。さらに、発光量が少ないとから光電子増倍管の増倍率を高めるために印加電圧を高くするとアフターパルスが強く現れる。従って、今回の測定では発光のパルス波形を示すまでには至らなかった。後述するCsFも同様であった。純粋なNaIの減衰時間については、前述のように Bonanomi らによる減衰時間の温度依存性に関する研究の中で観測され¹⁶⁾、CsIについては Knoepfel らによる同様の研究¹⁹⁾があるが、今回の室温における測定と関係付けることはできない。純粋なNaI、CsIの発光は、結晶の不完全性に因るところも大きく、この測定データが発光の過程を普遍的に表わしているとは言えない。温度依存の減衰時間の測定を行うことによって、発光の過程を解明する手掛かりが得られる可能性がある。

弗化物シンチレータについては、CsFについては1950年代に Van Sciver による研究があるが、他の弗化物シンチレータの良い結晶が得られる様になったのは比較的最近のことである。Euで活性化された弗化カルシウム CaF₂(Eu)の発光パルス波形を図3.4に示す。その発光減衰時間は、表3.2に示す様に、820 nsecの1成分だけである。発光効率も比較的高くX線領域への適用においてメリットが見出せるものと考える。BaF₂とCsFは発光効率が大変低いにも係わらず減衰時間が短いところが利点として注目されている。本方法による測定限界は数10 nsec程度であり、このような短い減衰時間の測定には適していない。図3.5に示すBaF₂の発光パルス波形は、長い成分がどの程度に現れるかを知るために、敢えて測定したもので、その短い減衰時間を決めるものではない。むしろ、670 nsecと2.2 μsecの成分が短い成分と比べて圧倒的に大きいことが分かった。この特性は使用する上で注意すべきである。図3.6に示すSrFの発光パルス波形は、BaF₂に似た形を示し、BaF₂と同様に短い成分が観察される。

酸化物シンチレータについては、5種類のサンプルを用意したが、今回の報告では測定し易かったCdWO₄とBGOの2種類だけとなつた。各々の発光パルス波形を、図3.7と図3.8に示す。表3.3に示す様に、両者とも2成分として解析したが、その発光パルス波形には共にさらに短い成分が僅かながら観察される。特に、CdWO₄では短い成分の存在は比較的大きい。

ZnS(Ag)のα線に対する発光については、多くの報告があり、速い成分は、40～100 nsec、遅い成分は、～10 μsecであるとされているが定量的な評価はされていない。Broser(1954)らは、速い成分に続く曲率の大きい部分を

$$I/I_0 = 1/(1+At)^2$$

で表わせると報告し、その後も幾つかの値が報告されている。ZnS(Ag)のα線に対する発光パルス波形を時間軸の異なる測定結果の一部を図3.9aと図3.9bに示す。これを、便宜的

に多成分の指數関数で表わせるとして解析してみると、アーフタ・グローを含む $10 \mu\text{sec}$ 以上の成分を入れて、少なくとも3桁にわたる5つ以上の成分を当て嵌めなければ近似出来ないことが分かった。1つの測定データは1000点の時系列データとして得られるが、1000点では3桁にわたる解析は出来ない。そこで、時間軸を4nsec／点から100nsec／点まで変えて測定し、規格化して繋ぎ合せて解析した。ここでは減衰時間の定数と言うのではなく、便宜的に5個の減衰時間を選び、半対数グラフの上で5つ直線の和として近似した結果を表3.4に示す。これは、あくまで便宜的な数値であるが、発光のパルス波形を良く近似している。この値を用いて、電子回路の波形整形後の出力を算出することが出来る。

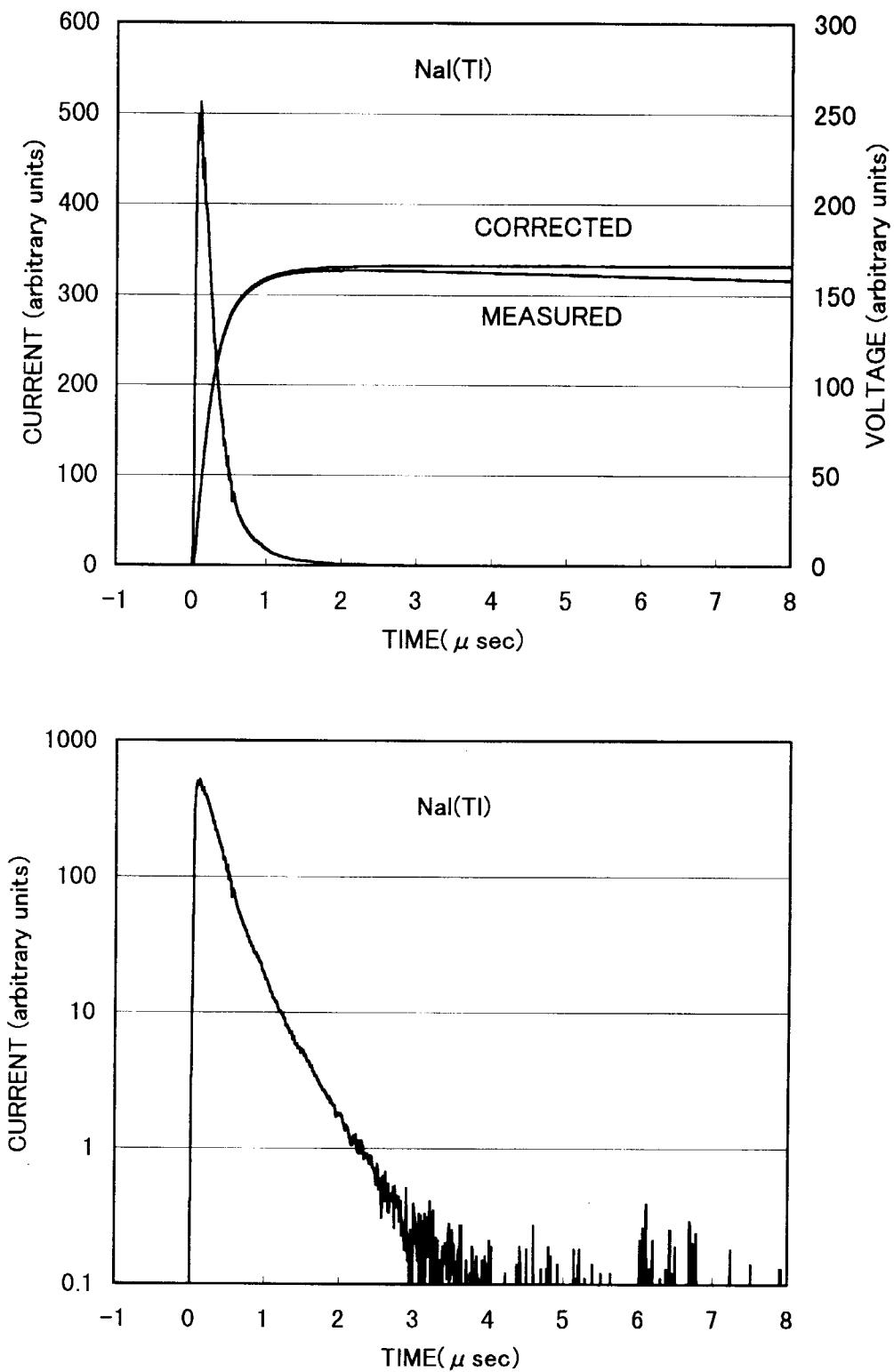


図3. 1 NaI(Tl)のシンチレーション発光のパルス波形

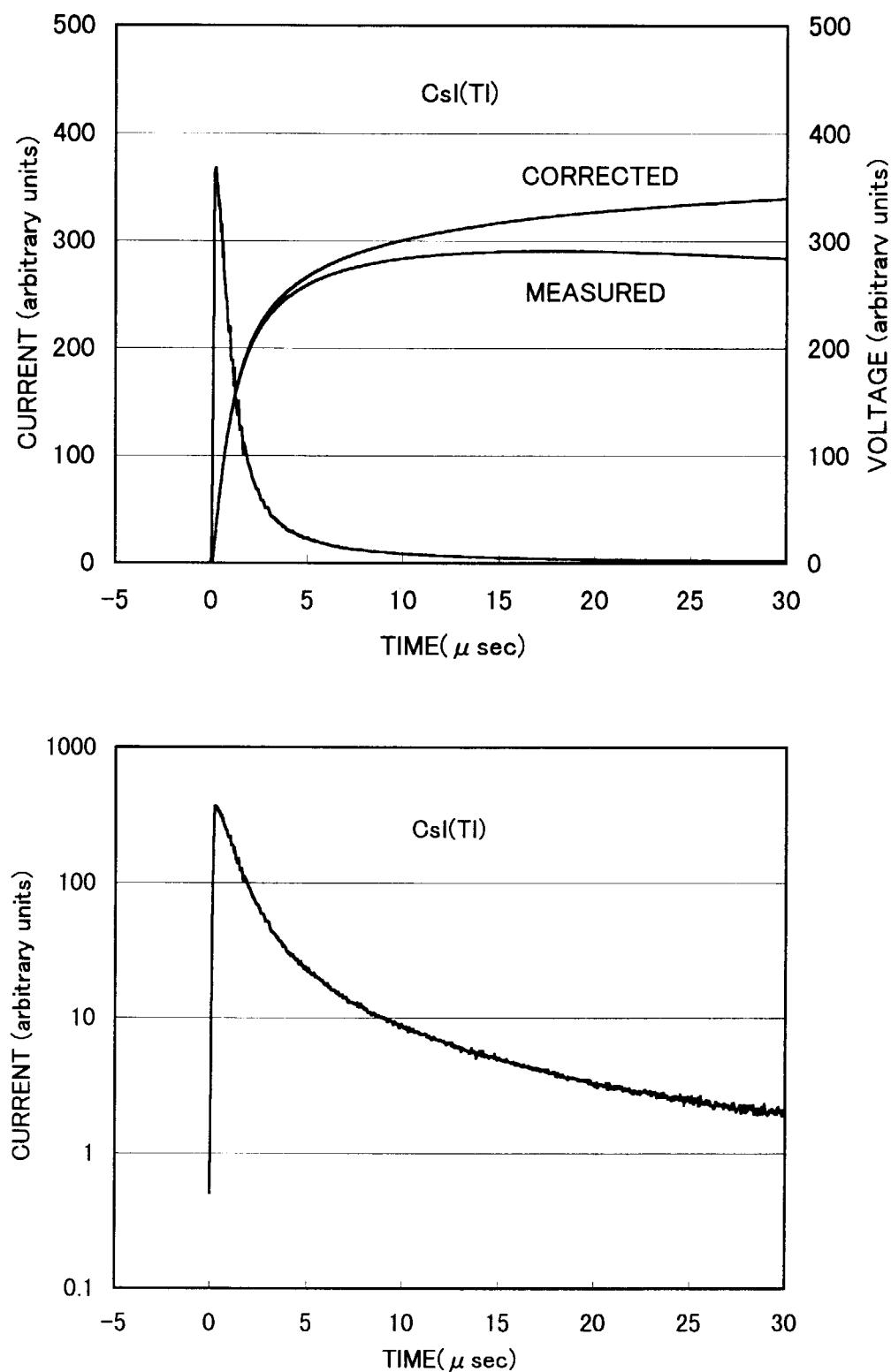


図3. 2 CsI(Tl)のシンチレーション発光のパルス波形

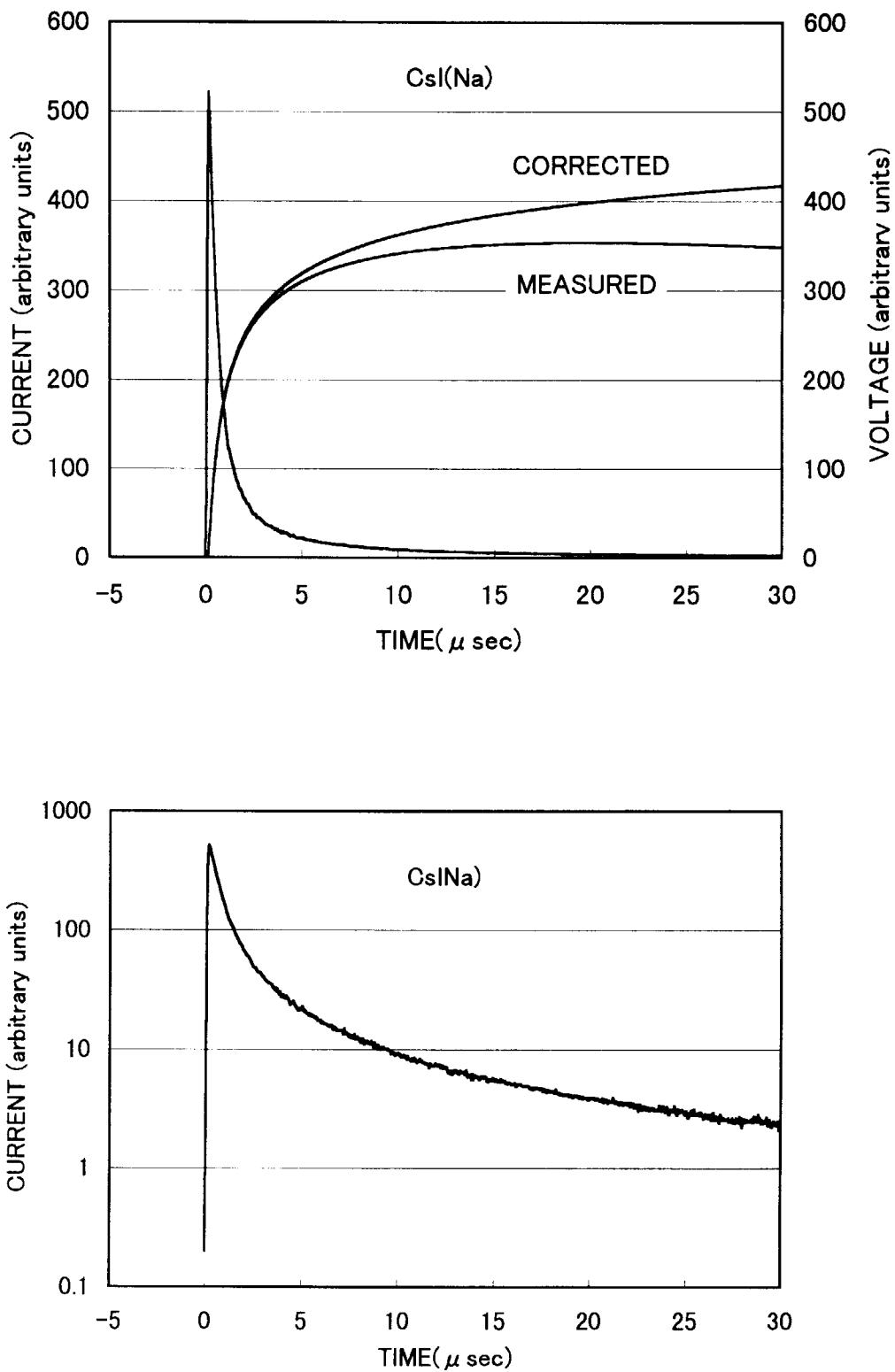
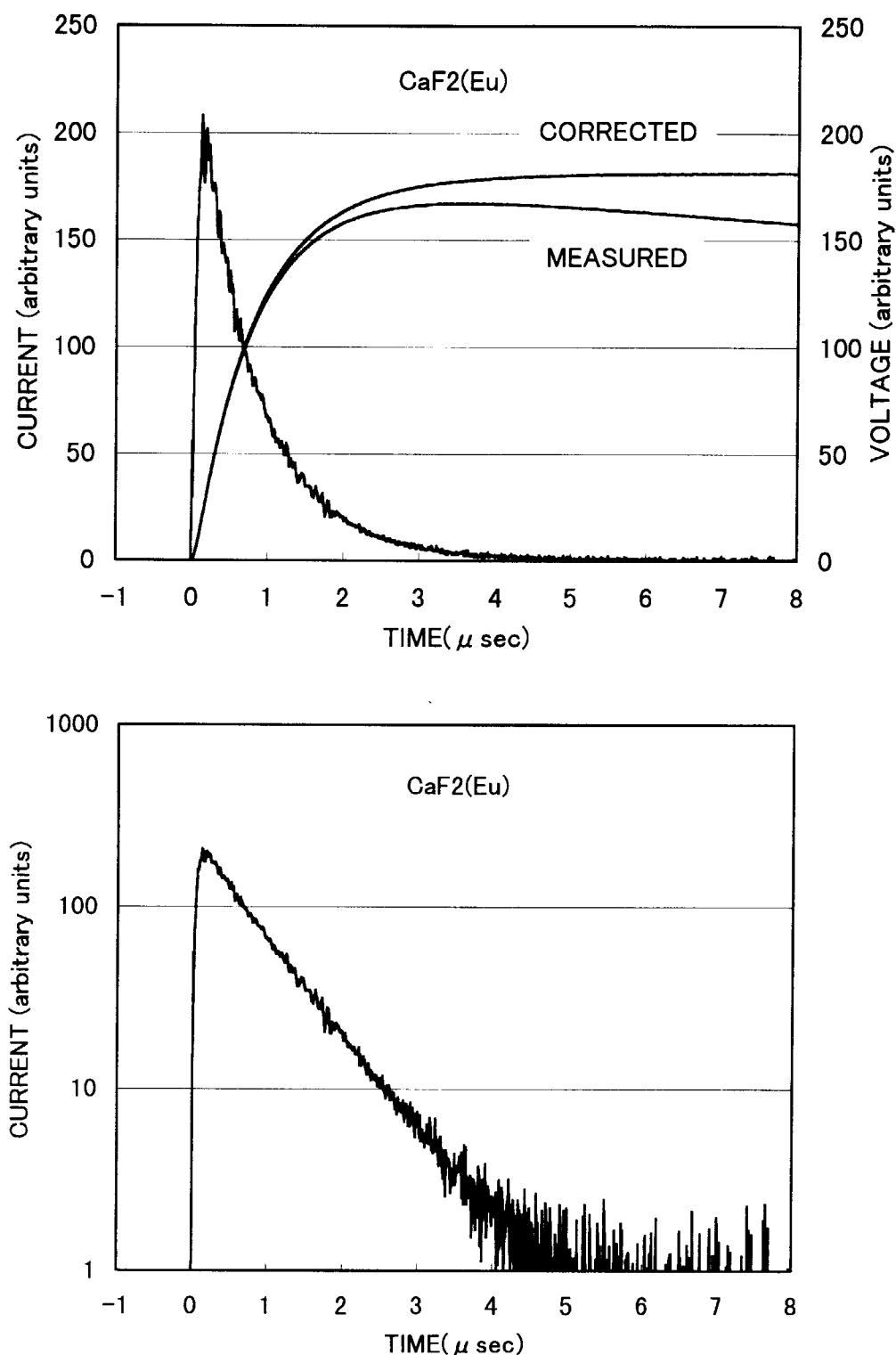
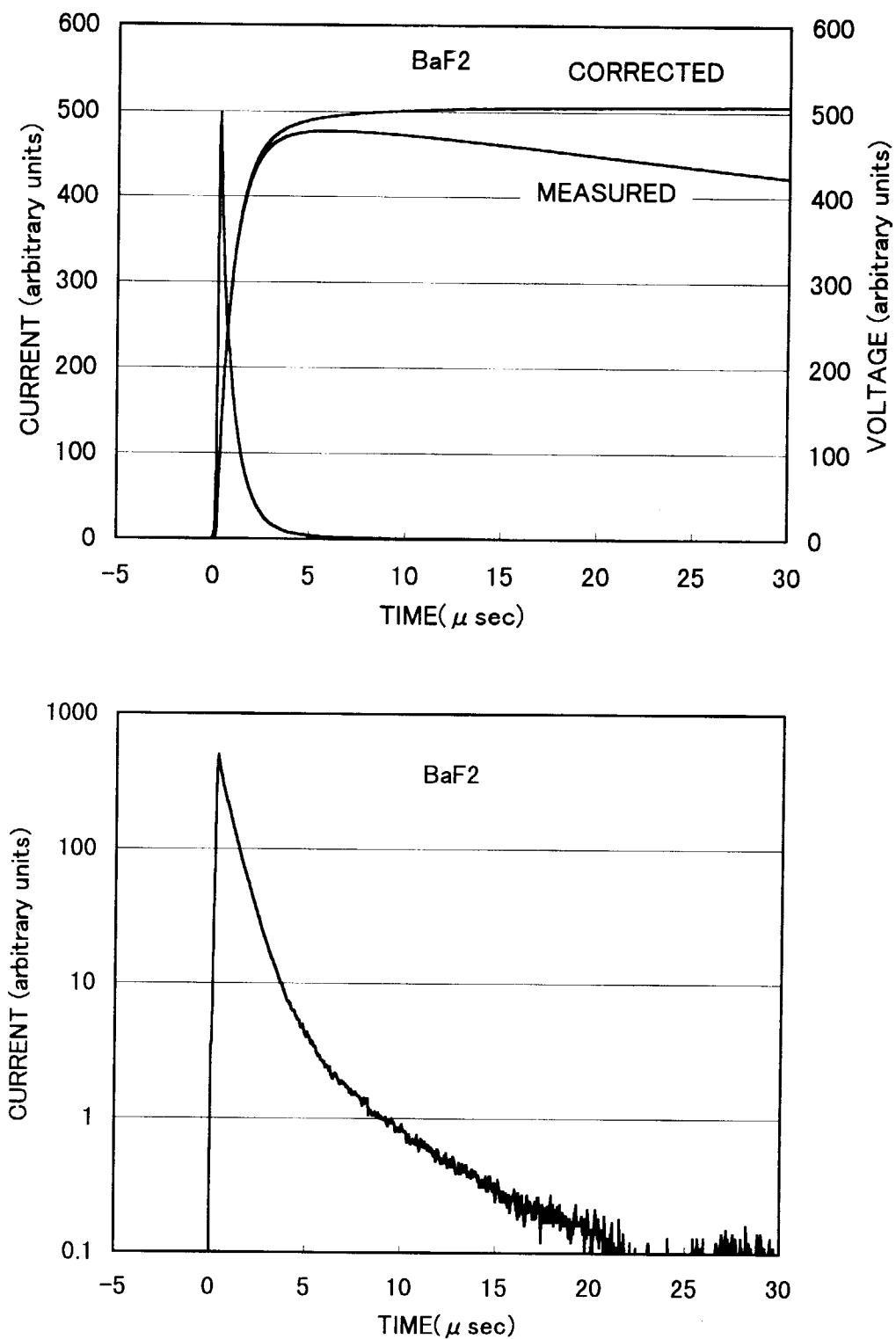


図3. 3 CsI(Na)のシンチレーション発光のパルス波形

図3・4 CaF₂(Eu)のシンチレーション発光のパルス波形

図 3. 5 BaF₂ のシンチレーション発光のパルス波形

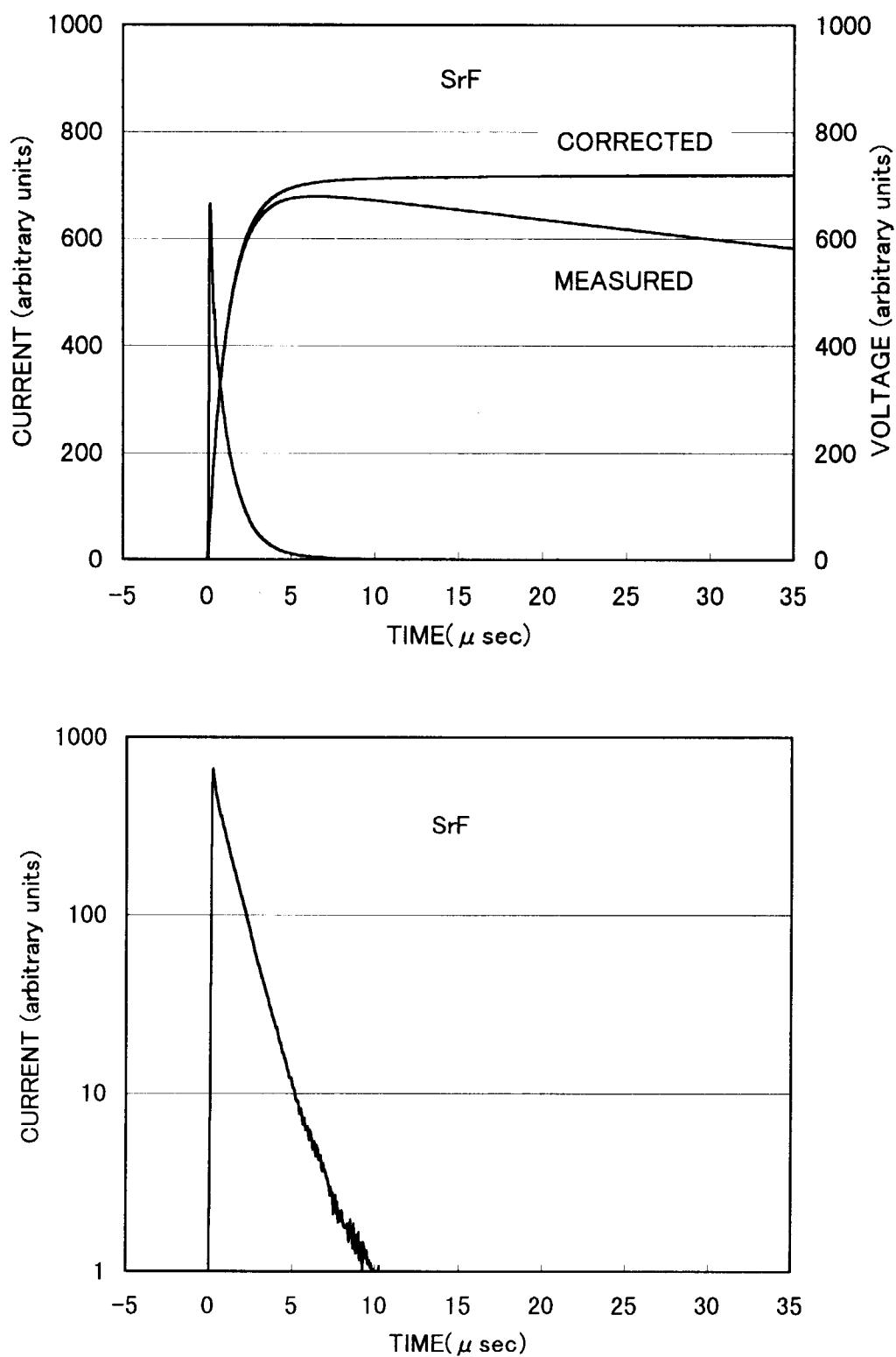
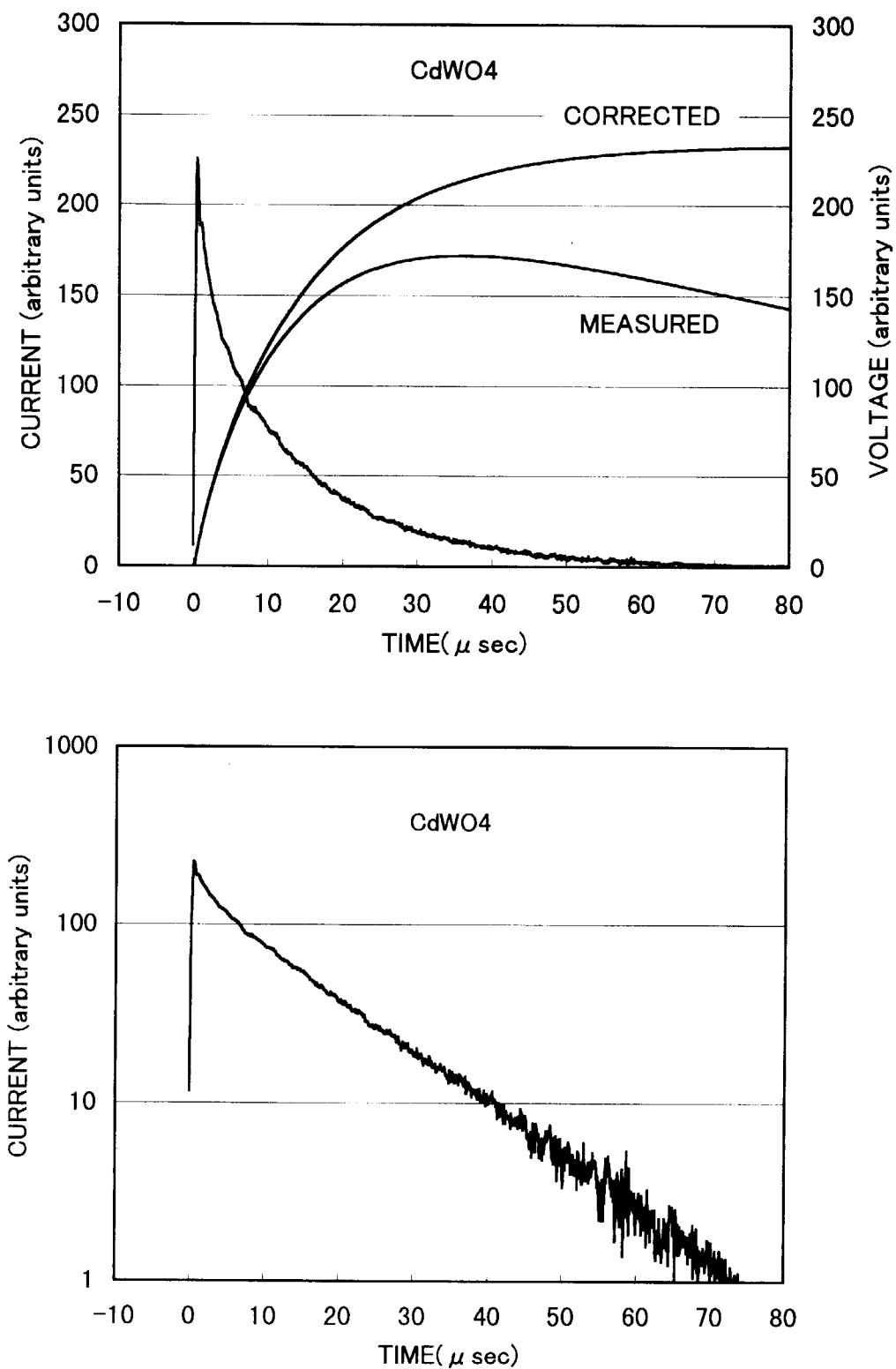


図3. 6 SrF のシンチレーション発光のパルス波形

図3. 7 CdWO₄ のシンチレーション発光のパルス波形

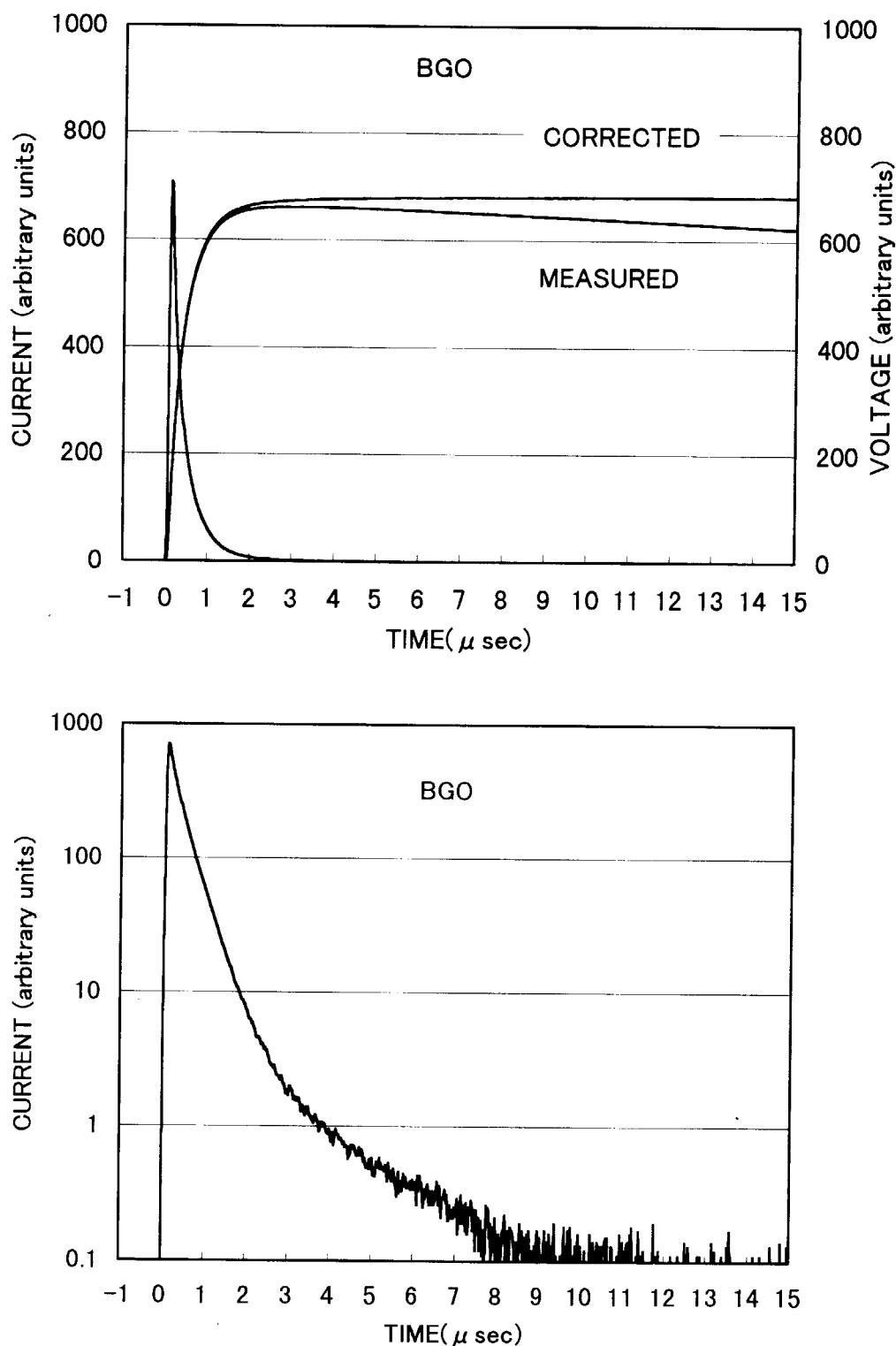


図 3. 8 BGO のシンチレーション発光のパルス波形

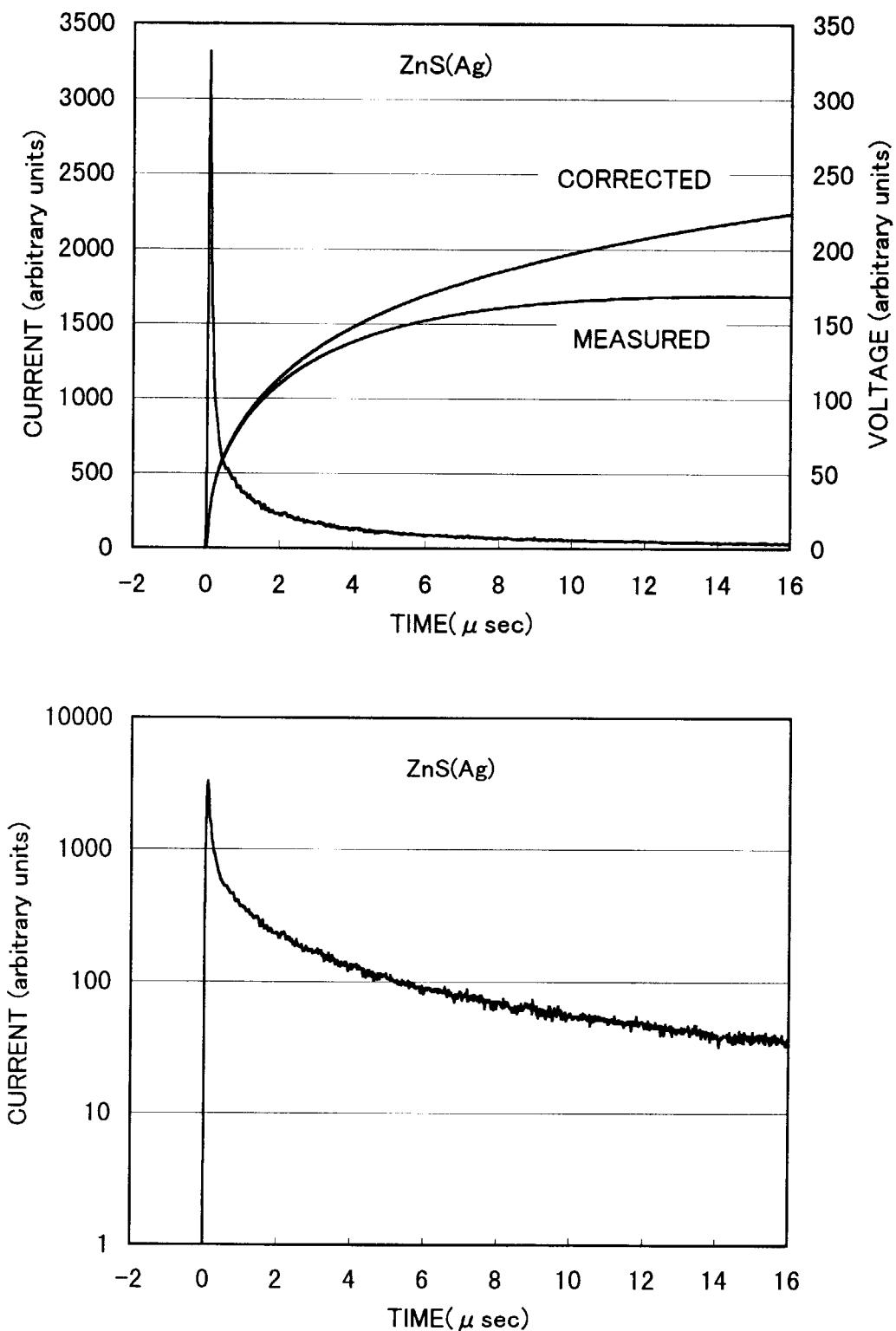


図3. 9 a ZnS(Ag) のシンチレーション発光のパルス波形

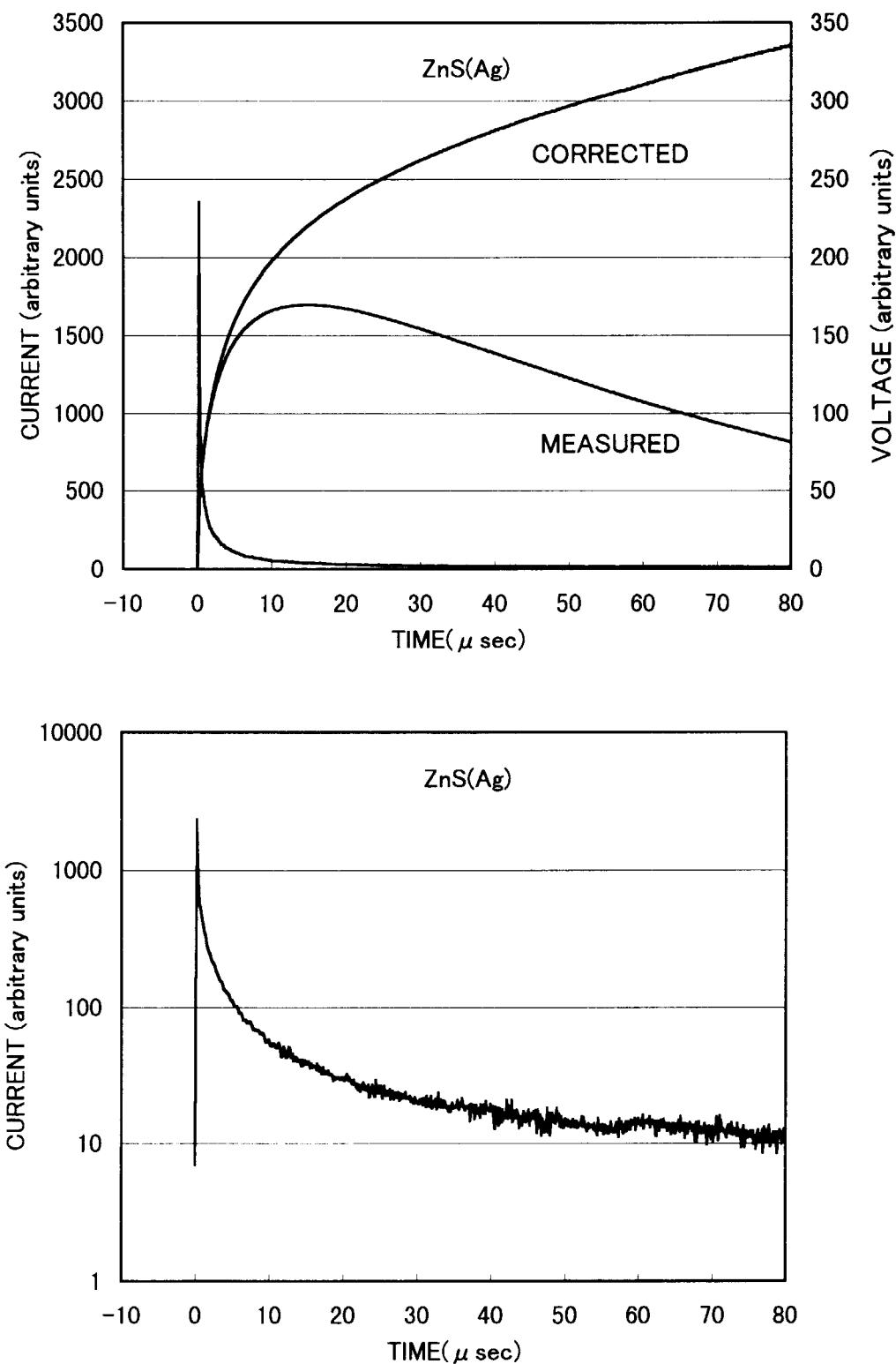


図3. 9 b ZnS(Ag) のシンチレーション発光のパルス波形

表3.1 沃化物シンチレータの発光減衰時間と発光効率

Scintillator	Measured Decay Time			Scintillation Conversion Efficiency		Decay Time (others) (ns) ***
	τ (ns)	$Y_i(0)$	Relative Intensity	Total Emission Ratio *	Pulse Height Ratio **	
NaI(Tl) #1	240	1.00	1.00	1.00	1.00	230
NaI(Tl) #2	180 480	0.88 0.12	0.75 0.25			
CsI(Tl)	920 4,000 20,000 ~600,000	0.87 0.11 0.015 0.001	0.37 0.19 0.13 0.31	----	0.45	1,000
CsI(Na)	580 3,000 18,500 ~300,000	0.86 0.12 0.016 0.001	0.35 0.24 0.18 0.23	----	0.85	630
NaI (pure)	---	---	---			
CsI (pure)	---	---	---			8

表3.2 弗化物シンチレータの発光減衰時間と発光効率

Scintillator	Measured Decay Time			Scintillation Conversion Efficiency		Decay Time (others) (ns) ***
	τ (ns)	$Y_i(0)$	Relative Intensity	Total Emission Ratio *	Pulsed Response **	
CaF ₂ (Eu)	820		1.00	---	0.50	900
BaF ₂	---	---	---	---	0.10	0.6 630
CsF	< 20	---	---	---	0.05	5
SrF	< 20 1,200 7,000	---	---	---		?

* Total photo emission ratio to NaI(Tl).

** Pulse height ratio to NaI(Tl) with S-11 photocathode response and 1 micro sec shaping, referred to "Harshaw Scintillation Phosphors (third edition)".

*** Referred to Table A

表 3.3 酸化物シンチレータの発光減衰時間と発光効率

Scintillator	Measured Decay Time			Scintillation Conversion Efficiency		Decay Time (others) (ns) ***
	τ (ns)	$Y_i(0)$	Relative Intensity	Total Emission Ratio *	Pulsed Response **	
CdW04	3,000	0.29	0.07	---	0.65	> 500
	18,200	0.70	0.93	---	0.65	< 20,000
BG0	120	0.39	0.16	---	0.08	300
	400	0.60	0.79	---	0.08	
	1,600	0.01	0.05	---	0.08	
Gd202S :Pr, Ce, F	---	---	---	---	0.08	
	---	---	---	---	0.08	
YAG	---	---	---	---	0.08	
PbW04	---	---	---	---	0.08	

表 3.4 ZnS(Ag)シンチレータの発光減衰時間と発光効率

Scintillator	Measured Decay Time			Scintillation Conversion Efficiency		Decay Time (others) (ns) ***
	τ (ns)	$Y_i(0)$	Relative Intensity	Total Emission Ratio *	Pulsed Response **	
ZnS(Ag) pol.	90	0.79	0.07	---	1.3	200
	1,300	0.16	0.21	---	(for α)	
	6,000	0.04	0.23	---	1.3	
	~90,000	0.006	0.49	---	1.3	

* Total photo emission ratio to NaI(Tl).

** Pulse height ratio to NaI(Tl) with S-11 photocathode response and 1 micro sec shaping, referred to "Harshaw Scintillation Phosphors (third edition)".

*** Referred to Table A

Table A Characteristics of typical inorganic scintillators

Material (Chemical Composition)	Wavelength of Max. Emission (nm)	Index of Refraction	Density (g/cm ³)	Hygro- scopic	Decay Constant (nsec) *	Scintillation Conversion Efficiency (%) **	References
NaI(Tl)	410	1.85	3.67	Yes	230	100	\$, 13~17
CsI(Tl)	565	1.80	4.51	No	1,000 800	45	\$, 16, 18 17
CsI(Na)	420	1.84	4.51	Yes	630	85	\$
NaI (pure)	303 400~410						11, 12, 16~18
CsI (pure)	340 400~410	1.84	4.51		8		11, 12, 16~18
CaF ₂ (Eu)	435	1.47	3.19	No	900	50	\$
BaF ₂	195, 220, 325	1.49	4.88	No	0.6, 630	10	\$
CsF	305, 390	1.48	4.11	Yes	5	5	\$
SrF ₂			2.44	No			
CaWO ₄	430	1.92	6.12	No	500~20k	50	\$
CdWO ₄	530	2.20	7.90	No	500~20k	65	\$
BGO	480	2.15	7.13	No	300	8	
Gd202S :Pr, Ce, F (line spec.)	520	2.20	7.32	No	20,000	72	xx
ZnS(Ag) pol.	450	2.36	4.09	No	200	130(for α)	

* Room temperature, Best signal exponential decayconstant, $I_0 e^{-\lambda t}$

** Referred to NaI(Tl) with S-11 photocathode response

\$ From "Harshaw Scintillation Phosphors (third edition)", (1975)

4. あとがき

発光波形の測定と減衰時間の算出は、シンチレータの応答特性の一部で、シンチレータ結晶の吸光分光特性、励起粒子およびエネルギー依存の発光スペクトルの測定、さらに、発光スペクトルと減衰時間との相関を含めた一連の測定によって完結する。

参考文献

- 1) S. Kubota and S. Sakuragi, 放射線 Vol. 14, No. 1, p. 28 (1987)
- 2) E. Sakai, 放射線 Vol. 12, No. 3, p. 22 (1986)
- 3) G. F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement", John Wiley & Sons, Inc., N.Y. (1979)
- 4) Harshaw's catalog, "Harshaw Scintillation Phosphors (third edition)", (1975)
- 5) T. Asada et al., Journ. Phys. Soc. Japan 14, 1766 (1959) ; decay properties of ZnS(Ag)
- 6) L. M. Bollinger and G. E. Thomas, Rev. Sci. Instr. 32, 1044 (1961) ; delayed coincidence method

Alkali Halides ; Iodide

- 11) I. K. Plyavin', Optika i Spectrosk. 4, 266 (1958) ; photoluminescence decay times of alkali halides
- 12) R. S. Storey, W. Jack and A. Ward, Proc. Phys. Soc. 72, 1 (1958) ; decay times of NaI(Tl), KI(Tl), CsI(Tl) are 0.23, 0.24, 0.7 microsec
- 13) J. C. Robertson and J. G. Lynch, Proc. Phys. Soc. 77, 751 (1961) ; decay times of NaI(Tl) etc. and slower decay of 1.5 μ sec
- 14) F. S. Eby and W. K. Jentschke, Phys. Rev. 96, 911 (1954) ; 60ns rise and \sim 230ns decay
- 15) R. B. Owen, Nucleonics, 17, No. 9, 92 (1959)
- 16) J. Bonanomi and J. Rossel, Helv. Phys. Acta 25, 725 (1952) ; decay of NaI(Tl) and NaI(pure)
- 17) W. J. Van Sciver, I.R.E. Trans. Nucl. Sci. NS-3, 39 (1956) ; Nucleonics, 14, No. 50 (1956) ; spectra of "pure" NaI
- 18) W. J. Van Sciver and L. Bogart, I.R.E. Trans. Nucl. Sci. NS-5, No. 3, 90 (1958)
- 19) H. Knoepfel et al. Helv. Phys. Acta, 30, 521 (1957) ; decay of CsI(Tl) and CsI(pure)
- 20) N. N. Vasil'eva and Z. L. Morgenshtern, Optika i Spectrsk. 9, 676 (1960) ; Optics and Spectrosc. 9, 357 (1960) ; Optika i Spectrsk. 12, 86 (1962) ; Optics and Spectrosc. 12, 41 (1962) ; spectra of pure alkali halides

Alkali Halides ; Fluoride

- 31) M. Laval, M. Moszynski, R. Allemand, E. Cormoreche, P. Guinet, R. Odru and J. Vacher, Nucl. Instr. Methods 206, 169 (1983). ; BaF₂/decayによる粒子弁別
- 32) S. Kubota, M. Suzuki, J. Ruan, F. Shiraishi and Y. Takami, Nucl. Instr. Methods A242, 291 (1986). ; BPS (BaF₂/ラスティック成形)
- 33) T. Shimizu, S. Kubota, T. Motobayashi, J. Ruan, F. Shiraishi and Y. Takami, I. E. E. Nucl. Sci. 33, 370 (1986).

BGO

- 34) M. J. Weber and R. R. Monchamp, J. Appl. Phys. 44, 5496 (1973).
- 35) O. H. Nestor and C. Y. Huang, I.E.E.E. Nucl. Sci. 22, 68 (1975).

Others

- 51) H. B. Deitrich and R. B. Murray, J. Lum. 5, 155 (1972).
- 52) H. B. Deitrich, A. E. Purdy, R. B. Murray and R. T. Williams, Phys. Rev. B8, 589 (1973).
- 53) Y. Valbis, Z. A. Rachko and Ya. L. Yansons, JETP Lett. 42, 172 (1985).
- 54) S. Kubota, N. Kanai and J. Ruan, Phys. State. Sol.(b) 139, 635 (1987). 温度依存性
- 55) P. Schotanus, C. W. E. van Eijk, R. W. Hollander and J. Pijpelink, I.E.E.E. Nucl. Sci. 34, 272 (1987).
- La 添加
- 56) R. C. Tailor, O. H. Nestor and B. Utts, I. E. E. Nucl. Sci. 33, 243 (1986). Ce 添加
- 57) H. Grassmann, E. Lorenz and H. G. Moser, Nucl. Instr. Methods A 228, 323 (1985).
- 58) H. Grassmann, H. G. Moser, H. Dietl, G. Eigen, V. Fonseca E. Lorenz and G. Mageras, Nucl. Instr. Methods A 234, 122 (1985).
- 59) H. Grassmann, E. Lorenz, H. G. Moser and H. Vogel, Nucl. Instr. Methods A 235, 319 (1985).
- 60) H. Grassmann and H. G. Moser, Nucl. Instr. Methods A 237, 486 (1985).
- 61) S. Kubota, J. Ruan, H. Murakami, N. Iwasa, S. Hashimoto, and S. Sakuragi, Abstract for London Conf. on Position Sensitive Detectors (7-11, Sep. 1987).
- 62) S. Kubota, J. Ruan, S. Sakuragi, M. Itoh and S. Hashimoto, Proc. of the 1987 Intern. Conf. on Luminescence (Beijing, China, 1987). ; アルカリ・ハライドの発光機構、クロス・オーバー遷移

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s^{-1}
力	ニュートン	N	$m \cdot kg/s^2$
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m^2
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	$N \cdot m$
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	$A \cdot s$
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	$V \cdot s$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	$cd \cdot sr$
照度	ルクス	lx	lm/m^2
放射能	ベクレル	Bq	s^{-1}
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s} (\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ポアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233	
0.101325	1.03323	1	760	14.6959	
1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}	
6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1	

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV
1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{18}	$1 \text{ cal} = 4.18605 \text{ J (計量法)}$
9.80665	1	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	4.184 J (熱化学)	
3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^5	3412.13	2.65522×10^6	6.12082×10^{19}	$= 4.1855 \text{ J (15 }^\circ\text{C)}$
4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.24694×10^{25}	$= 4.1868 \text{ J (国際蒸気表)}$
1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	2.61272×10^{19}	仕事率 1 PS(仏馬力)
1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	6.58515×10^{21}	$= 75 \text{ kgf} \cdot \text{m/s}$
1.60218×10^{-19}	1.63377×10^{-20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	8.46233×10^{18}	$= 735.499 \text{ W}$

放射能	Bq	Ci
1	2.70270×10^{-11}	
3.7×10^{10}	1	

吸収線量	Gy	rad
1	100	
0.01	1	

照射線量	C/kg	R
1	3876	
2.58×10^{-4}	1	

線量当量	Sv	rem
1	100	
0.01	1	

(86年12月26日現在)

シンチレーション発光のパルス波形測定