卒業論文
無機結晶シンチレータに含まれる
放射性不純物の測定

東北大学理学部物理学科
素粒子·核物理学講座
原子核物理
鵜養 美冬

平成１１年３月

目 次

1 Introduction **3**

1.1 目的 3

1.2 GSO シンチレータ 3

1.3 γ 線検出器の動作原理 4

1.3.1 シンチレータ 4

1.3.2 半導体検出器 4

2 測定環境 **5**

2.1 実験原理 5

2.2 実験装置及び条件 5

2.2.1 遮弊時の条件 5

2.2.2 Ge 検出器 6

2.2.3 シンチレータと PMT 7

2.3 実験の回路図 8

2.4 実験室内のバックグラウンド 9

2.4.1 遮弊なし 9

2.4.2 遮弊あり 10

2.4.3 実験室内の放射性核種 11

3 Coinsidence **12**

3.1 コインシデンス機構 12

3.2 自然放射線核種におけるコインシデンス 13

3.3 Accidental Coinsidence の影響 15

3.3.1 Ge-GSO 回路における影響 15

4 実験結果 **16**

4.1 Ge-GSO 16

4.2 Ge-BaF_2 18

4.3 Ge-NaI 20

5 511KeV ピークの解析 **22**

5.1 自然放射線中の 511KeV ピーク 22

5.2 解析 23

5.3 考察 25

6 Summary **26**

7 謝辞 **27**

図 目 次

1 実験装置のセッティング 5
2 回路図 8
3 実験室内のバックグランド (遮弊なし) 9
4 実験室内のバックグランド (遮弊あり) 10
5 Ge-GSO:遮弊なし 16
6 Ge-GSO:遮弊あり 17
7 Ge-BaF_2:遮弊なし 18
8 Ge-BaF_2:遮弊あり 19
9 Ge-NaI:遮弊なし 20
10 Ge-NaI:遮弊あり 21
11 Ge-GSO:Ge511KeV 23
12 GSO の全スペクトル 24
13 GSO の Ge511KeV にするスペクトル 24

1 Introduction

1.1 目的

放射線検出において稀な event を測定するにあたり検出器内部からの放射線バックグランド計数を予め測定しておく必要がある。

今回の目的は近年開発された新しいシンチレータ Gd_2SiO_5:Ce についてその内部のバックグランド計数を測定する事にある。

1.2 GSO シンチレータ

これまでのシンチレータは decay constant が数百 ns と低速だったり、高速のシンチレータでも吸収係数が十分大きくならないという欠点があった。そこで大きい実効原子番号と速い decay constant を持つシンチレータとして GSO が開発された。

すでに GSO は Positron Emission CT や石油探査装置の γ 線検出器として実用化されている。

最近になって大型の結晶が製造可能になり、又放射線耐久性にもすぐれているので高エネルギー γ 線の検出に有効なシンチレータとして期待され研究が進められている。

(文献 [3])

1.3 γ 線検出器の動作原理

検出器に γ 線が入射すると内部で光電効果、コンプトン散乱、電子対生成などの相互作用をして電子にエネルギーをあたえ高速電子を生成する。

1.3.1 シンチレータ

高速電子が結晶中を通過すると通路にそって結晶格子から電子が電離され価電子帯の電子がエネルギーをうけて伝導帯にもちあげられ、残った格子点には正孔が出来る。あるいは価電子帯中の電子が励起されて励起子帯にうつり正孔とペア状態になった励起子を生成する。

これらの自由電子と正孔、あるいは励起子が結晶中を動きまわり禁止帯にある活性化中心にトラップされ励起状態になり 10^{-6}s 以下の短時間の間に光子を放出し基底状態に戻る。これがシンチレーションと呼ばれる機構である。

光子は PMT の光電面において光電効果におこし光電子が放出される。電子はダイノードとよばれる電極において二次電子放出過程により増幅されアノードに流れ込み、電流または電圧の信号として出力される。

1.3.2 半導体検出器

結晶中を荷電粒子が通過すると格子点にある価電子帯中の電子を電離し伝導帯にあげる。結晶格子には正孔が生じる。電界を印加することにより伝導帯の電子と正孔は電極に移動し集められ電荷出力となる。

(文献 [1])

2　測定環境

2.1　実験原理

γ 線検出に対して非常に高い分解能 (良いもので FWHM=2KeV 程度) を示す高純度ゲルマニウム (HPGe) 検出器を用いて測定したいシンチレータとのコインシデンスをとり、結晶から放出される γ 線を検出する。

今回測定したシンチレータは BaF_2、NaI、Gd_2SiO_5(GSO) である。

GSO を他の二つのシンチレータと比較することにより内部の放射性核種を決定する。

2.2　実験装置及び条件

2.2.1　遮弊時の条件

バックグランドを減らすために検出器を遮弊したときは全て鉛１０ cm のブロックとしんちゅうで覆った。

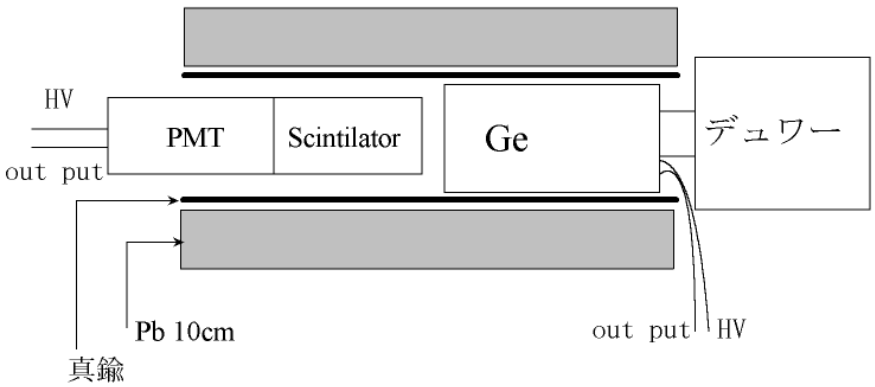


図 1: 実験装置のセッティング

2.2.2 Ge 検出器

高純度ゲルマニウム検出器
ORTEC 社製 preamp 内蔵 (reset 型)
分解能 ：0.35% FWHM=4.64KeV
(^{60}Co:1330KeV に対して)
HV=-2500V

2.2.3 シンチレータと PMT

シンチレータの一般的性質

	GSO:Ce	NaI:Tl	BaF_2
密度 (g/cm^3)	7.13	3.67	2.03
有効原子番号 Z	59	51	54
最大発光波長 (nm)	450	415	210/310
放射長 (cm)	1.38	2.59	2.03
蛍光減衰時間 (ns)	30-60	230	0.6/230
屈折率	1.85	1.85	1.56
蛍光出力	20	100	5/16
分解能 (%)	10	9	13

実験に使用したシンチレータ及び PMT の性質と条件

	GSO:Ce	NaI:Tl	BaF_2
結晶サイズ	$5 \times 5 \times 13.5 cm^3$	$2'' \phi \times 2''$	$2'' \phi \times 2''$
分解能 (%) 測定値	19	9.1	17
PMT	H3178	H1161	H3378
サイズø(inch)	3/2	2	2
応答波長 (nm)	300-650	300-650	160-650
窓材質	ガラス	ガラス	SiO_2
屈折率	1.49	1.49	1.458
印加電圧 (V)	1610	2400	3250

分解能は ^{137}Cs:662KeV に対して

シンチレータと PMT の接合に使用した
オプティカルコンパウンドの性質

OKEN6262A

屈折率 1.453

	波長	透過率 (%)
1 mm セルにおける	300nm	80
波長と透過率の	360nm	97
関係	400nm～	99

（ 文献 [3] ）

2.3　実験の回路図

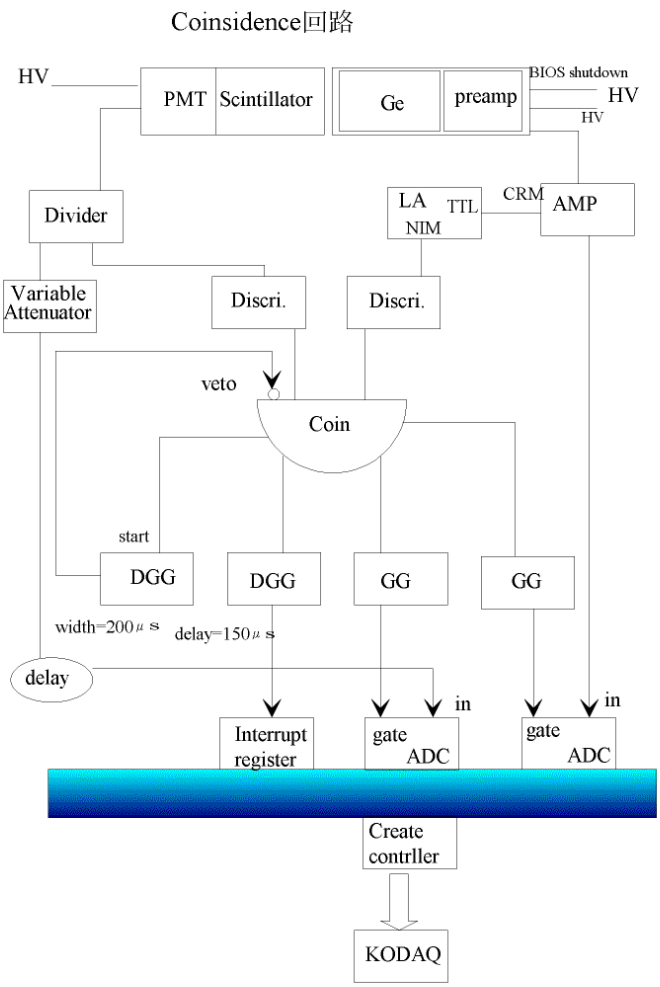


図 2: 回路図

2.4　実験室内のバックグラウンド

2.4.1　遮弊なし

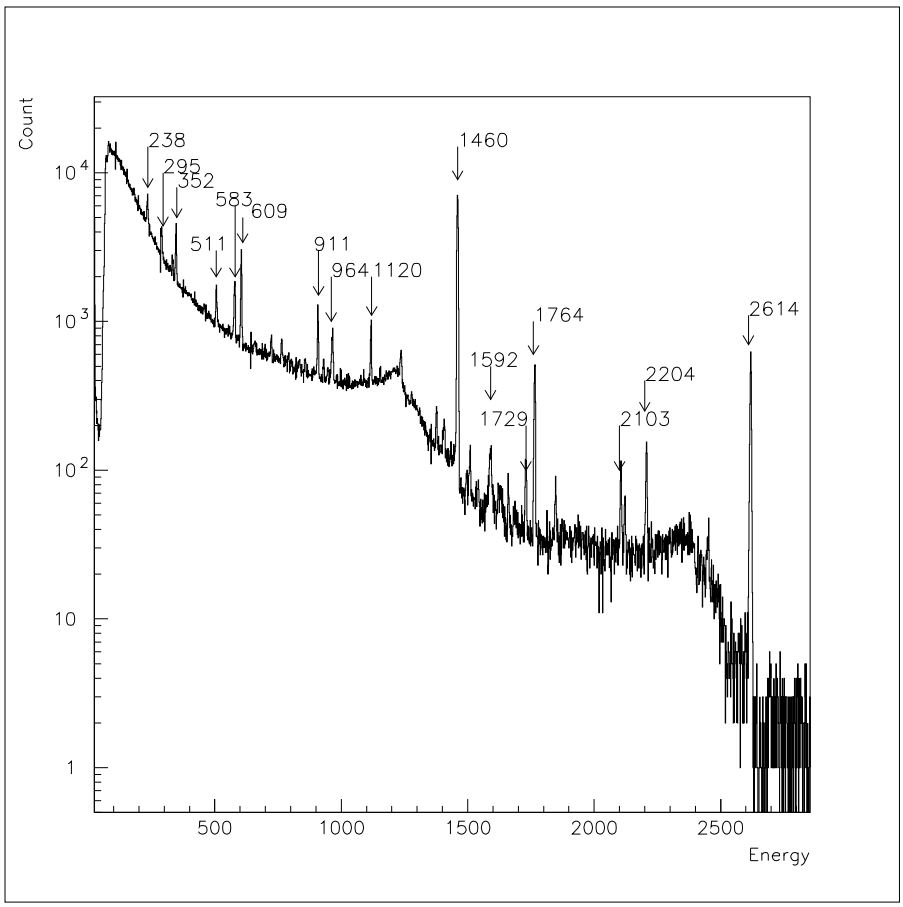


図 3: 実験室内のバックグランド（遮弊なし）

系列	核種	Energy(KeV)
ウラン系列	^{214}Pb:	295,352
	^{214}Bi:	609,1120,1729,1764,2204
トリウム系列	^{228}Ac:	911,964
	^{212}Pb:	238
	^{208}Tl:	583,1592(D2614),2103(D2614),2614
その他	annih.:	511
	^{40}K:	1460

測定時間：２０時間

2.4.2 遮弊あり

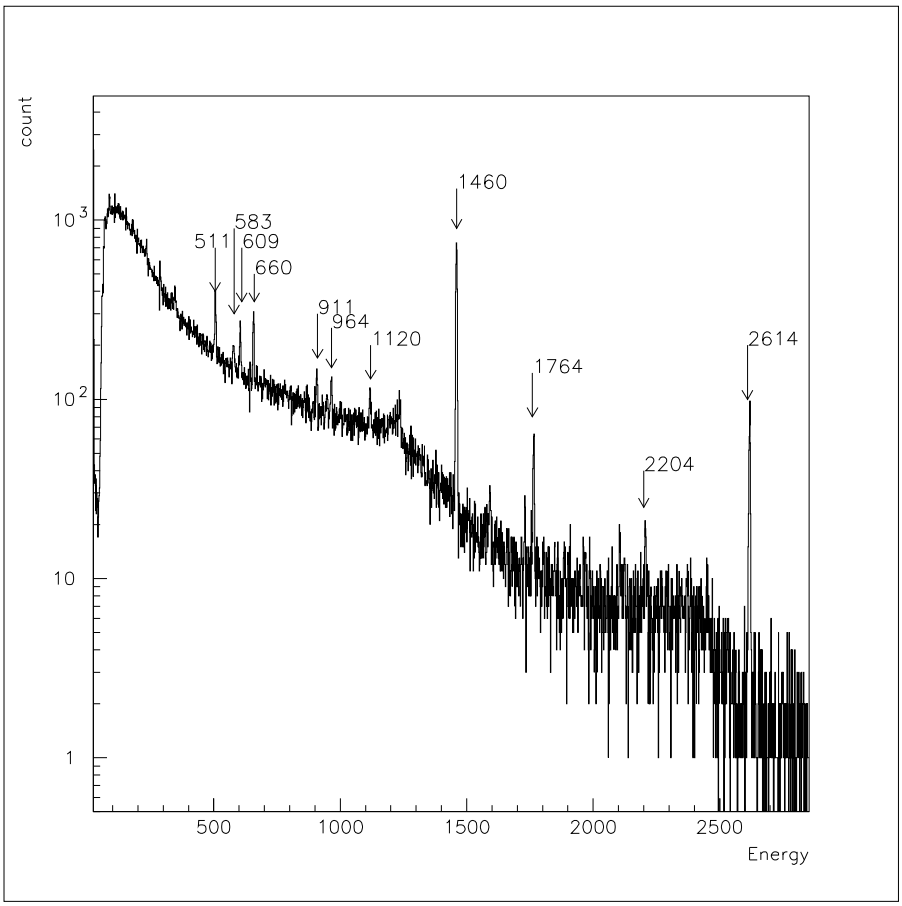


図 4: 実験室内のバックグランド（遮弊あり）

系列	核種	Energy(KeV)
ウラン系列	^{214}Bi:	609,1120,1764,2204
トリウム系列	^{228}Ac:	911,964
	^{208}Tl:	583,2614
その他	annih.:	511
	^{40}K:	1460
	不明:	660

測定時間：２０時間

2.4.3　実験室内の放射性核種

図３、４よりウラン系列、トリウム系列、^{40}K といった核種がみられた。

遮弊をした場合に検出されたおよそ 660KeV のピークについては自然放射線中にはあてはまるものがなく、他に身元不明のピークもなく確証がもてるような核種の同定は出来なかった。遮弊なしの場合においてはピークがみられなかったので遮弊体内部からのものか内部に核種が付着してしまったものと思われる。

ここでは本実験においてその影響はみられなかったので深く言及しないままにしてしまう。

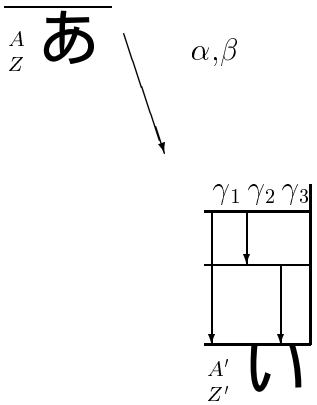
参考に 660KeV 付近の γ 線を放出する核種をあげる。

Energy(KeV)	核種
657.3	^{121}In
657.8	^{110}Ag
658.1	^{104}In
658.2	^{97}Nb
658.6	^{89}Mo
658.9	^{235}Pa
659.1	^{80}Ga
659.4	^{235}Th
661.0	^{113}Sn
661.7	^{137}Cs
663.0	^{205}At

(文献 [4])

3 Coinsidence

3.1 コインシデンス機構



α、β 崩壊に伴い γ 線が放出される場合

(1) 核種「あ」が崩壊し、核種「い」の励起準位に落ち γ 線を放出し基底または下の準位に遷移する。

(2) 励起準位からカスケード崩壊がおきる。

それぞれの準位の寿命が短く、放射線が別々の検出器に入射したら回路は同時に発生している (coinsidence) と認識する。
(1) の場合は γ_1 のピークが、(2) の場合 γ_2、γ_3 のピークが見える。

検出器内部での 2 次的要因におけるコインシデンス

検出器内部で γ 線のエネルギーは原子との相互作用により電子のエネルギーに変換される。
i) コンプトン効果によってエネルギーは電子と散乱 γ 線に変換される。この時散乱 γ 線のエネルギーが吸収されずに検出器外に逃げ出す。
ii) 電子対生成によって出来た陽電子が対消滅し $511\mathrm{KeV}\gamma$ 線を 2 本放出しこのうち 1 本ないし 2 本が検出器外に逃げ出す。
i)、ii) の場合において逃げた γ 線が他方の検出器に入射した場合も回路はコインシデンスとみなす。
i) の場合は連続スペクトル、またはコンプトンエッジがみられる。
ii) の場合は $511\mathrm{eV}$ ピーク、または single double escape peak がみられる。

3.2 自然放射線核種におけるコインシデンス

- ウラン系列
  ^{238}U $\Rightarrow^{234}$Th $\rightarrow^{234}$Pa $\rightarrow^{234}$U $\Rightarrow^{230}$Th $\Rightarrow^{226}$Ra $\Rightarrow^{222}$Rn $\Rightarrow$
  ^{218}Po $\Rightarrow^{218}$Pb $\rightarrow^{218}$Bi $\rightarrow^{218}$Po $\Rightarrow^{214}$Pb $\rightarrow^{214}$Bi $\rightarrow^{214}$Po $\Rightarrow^{210}$Pb
  主な γ 線:^{214}Pb(295KeV,352KeV)
  ^{214}Bi(609.3KeV,1120.3KeV,1764.5KeV)

- アクチニウム系列
  ^{235}U $\Rightarrow^{231}$Th $\rightarrow^{231}$Pa $\Rightarrow^{227}$Ac $\rightarrow^{227}$Th $\Rightarrow^{223}$Ra $\Rightarrow^{219}$Rn $\Rightarrow$
  ^{215}Bi $\rightarrow^{215}$Po $\Rightarrow^{211}$Pb $\rightarrow^{211}$Bi $\Rightarrow^{207}$Tl $\rightarrow^{207}$Pb
  主な γ 線:^{231}Pa(283.7KeV,302.6KeV,300.1KeV)
  ^{223}Ra(269.5KeV),^{219}Rn(271.2KeV)

- トリウム系列
  ^{232}Th $\Rightarrow^{228}$Ra $\rightarrow^{228}$Ac $\rightarrow^{228}$Th $\Rightarrow^{224}$Ra $\Rightarrow^{220}$Rn $\Rightarrow^{216}$Po $\Rightarrow$
  ^{212}Pb $\rightarrow^{212}$Bi $\rightarrow^{212}$Po $\Rightarrow^{208}$Pb
  ^{208}Tl $\nearrow$
  主な γ 線:^{228}Ac(463KeV,911.2KeV,969KeV)
  ^{212}Pb(238.6KeV),^{208}Tl(2614.5KeV)

  $\Rightarrow$:α 崩壊 ,$\rightarrow$:β^- 崩壊

- 系列に属さない放射性核種
  ^{40}K :β^-(γ なし),EC+γ(1460KeV のみ)+X(3.19,2.96KeV,etc)
  ^{176}Lu :β^-+γ(306KeV,etc)
  ^{137}La :β^-+γ(788.7KeV),EC+γ(1436KeV のみ)+X(3.95,36.36,4.33KeV,etc)
  ^{92}Nb :EC+γ(561,934.5KeV)+X(2.14,17.66,1.79KeV,etc)
  ^{113}Cd,^{115}Im,^{87}Rb,^{187}Re :β^-(γ なし)
  ^{144}Nd,^{146}Sm,^{147}Sm,^{148}Sm,
  ^{152}Gd,^{174}Hf,^{186}Os^{190}Pt :α(γ なし)

今回のコインシデンス回路において検出されうる放射性核種はウラン、アクチニウム、トリウム系列のものと γ 線を伴った β 崩壊をするものである。
一つのエネルギーの γ 線のみ放出する EC でも特性 X 線やオージェ電子の放出により回路の threshold によっては検出されうる。
γ 線を伴わない崩壊に関しては全く検出する事はできない。

(文献 [4],[5],[6])

3.3 Accidental Coinsidence の影響

全く関係のない 2 つの event がたまたま同時に 2 つの検出器に入射してくることを accidental coinsidence という。

accidental coinsidence が起こりうる数は 1 s あたり

$$N_{acci} = N_{D1} \times N_{D2} \times (\tau_1 + \tau_2)$$

$N_{D1,D2}$ = 検出器 1 、 2 の single rate

τ =coinsidence をとるときのパルス幅

3.3.1 Ge-GSO 回路における影響

$$N_{Ge} = 434.8 s^{-1}$$

$$N_{GSO} = 239.0 s^{-1}$$

$$\tau_{Ge} = 45 ns$$

$$\tau_{GSO} = 55 ns$$

$$N_{acci} = 0.014 s^{-1}$$

実際の coinsidence rate N_{coin}=$0.31 s^{-1}$

$$N_{coin} \gg N_{acci}$$

accidental coinsidence の影響はさほど大きくないのでスペクトルに影響はないといえる。(文献 [2])

4　実験結果

4.1　Ge-GSO

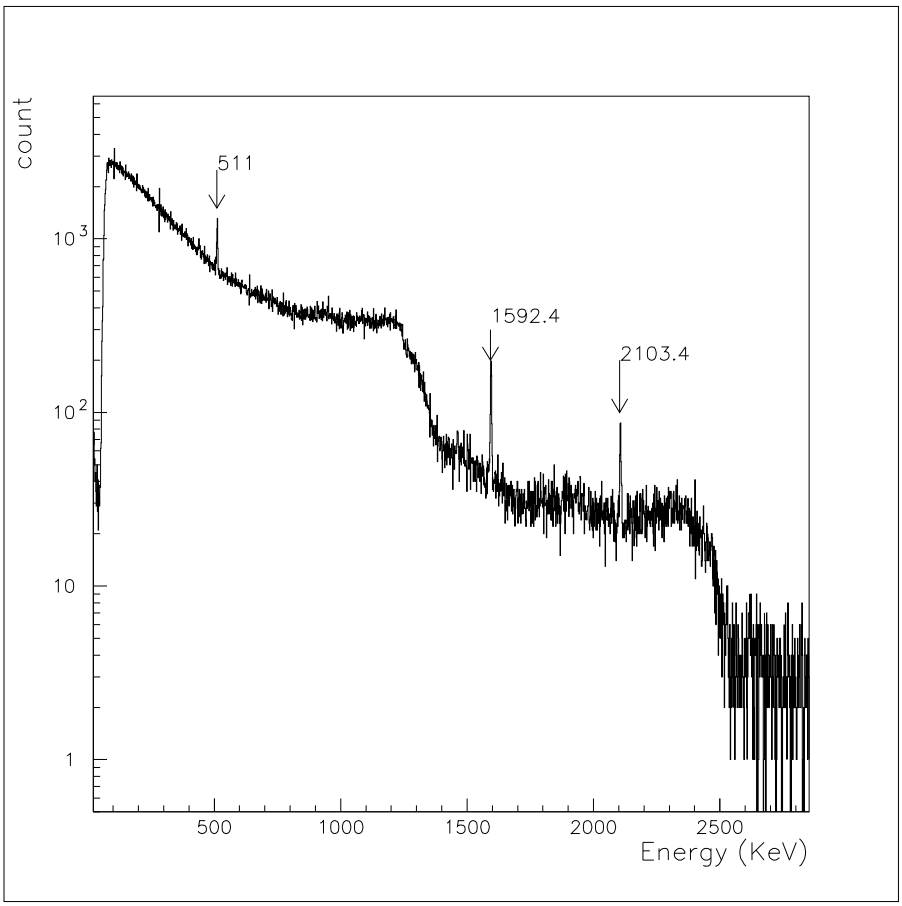


図 5: Ge-GSO:遮弊なし

511　　KeV :annih
1592.4KeV:^{208}Tl D2614KeV
2103.4KeV:^{208}Tl S2614KeV

測定時間：４４時間

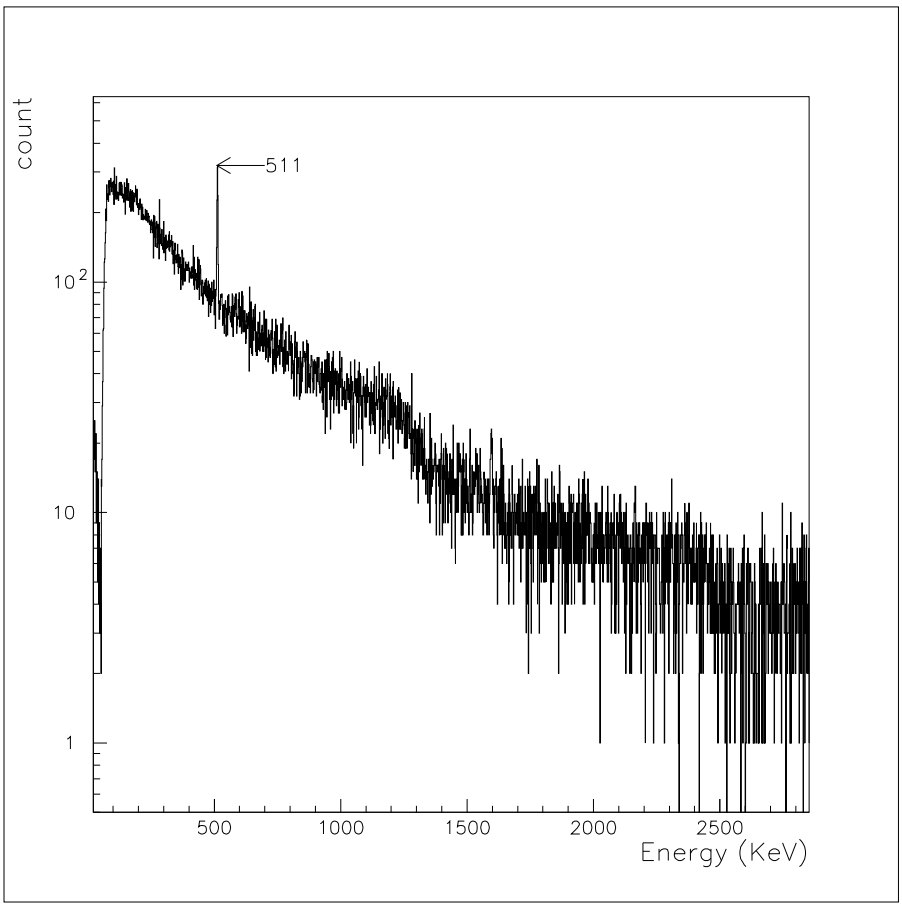


図 6: Ge-GSO:遮弊あり

511　KeV :annih

測定時間：４４時間

4.2 Ge-BaF_2

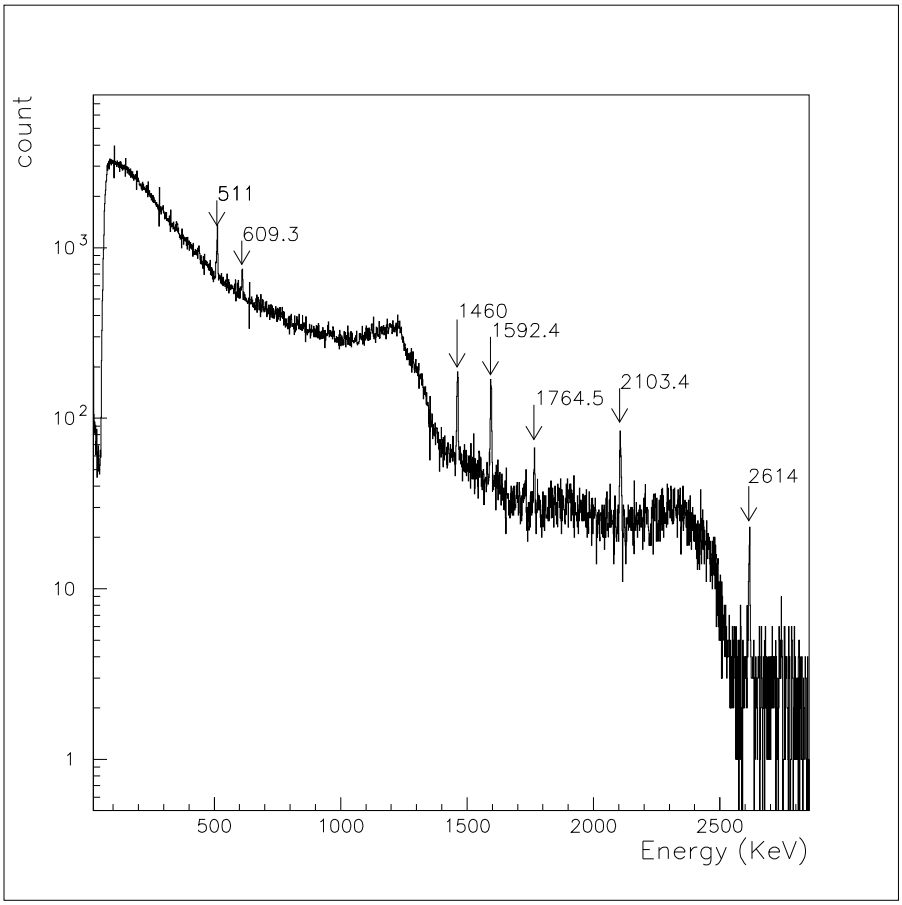


図 7: Ge-BaF_2:遮弊なし

511 KeV:annih.
1460 KeV:^{40}K
583 KeV:^{208}Tl
1592.4KeV:^{208}Tl D2614KeV
2103.4KeV:^{208}Tl S2614KeV
2614 KeV:^{208}Tl
609.3 KeV:^{214}Bi
1764.5KeV:^{214}Bi

測定時間：６０時間

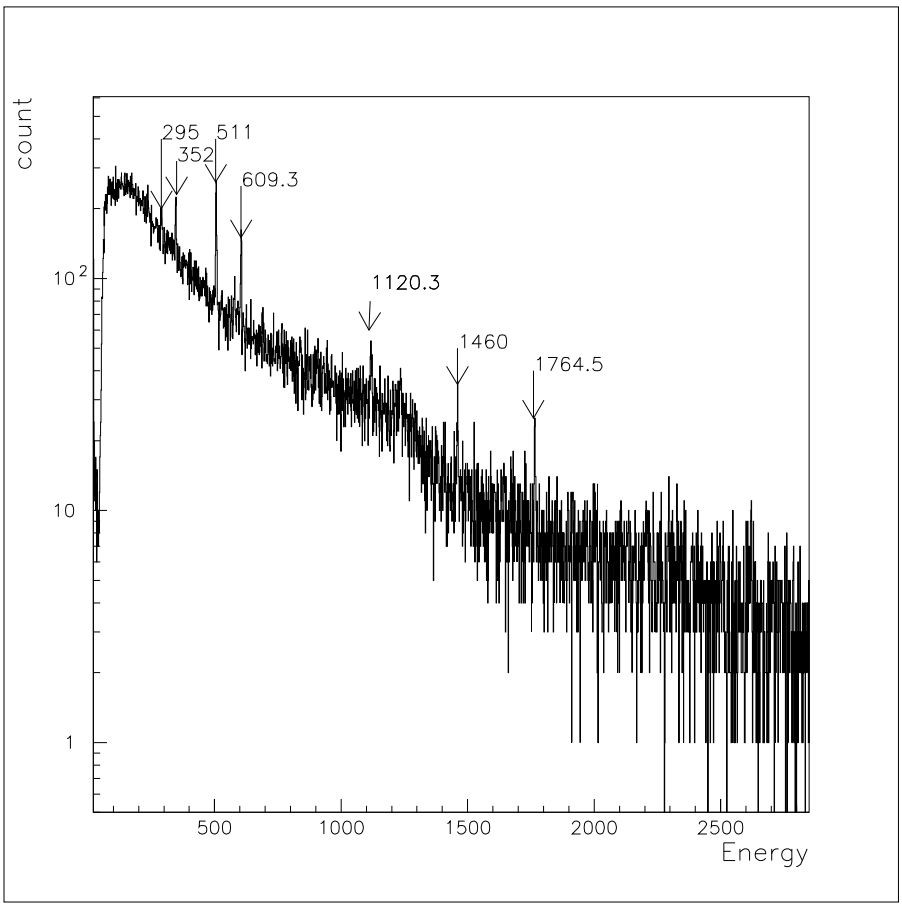


図 8: Ge-BaF_2:遮弊あり

511 KeV:annih.
1460 KeV:^{40}K
609.3 KeV:^{214}Bi
1120.3KeV:^{214}Bi
1764.5KeV:^{214}Bi
295 KeV:^{214}Pb
352 KeV:^{214}Pb

測定時間：６０時間

4.3 Ge-NaI

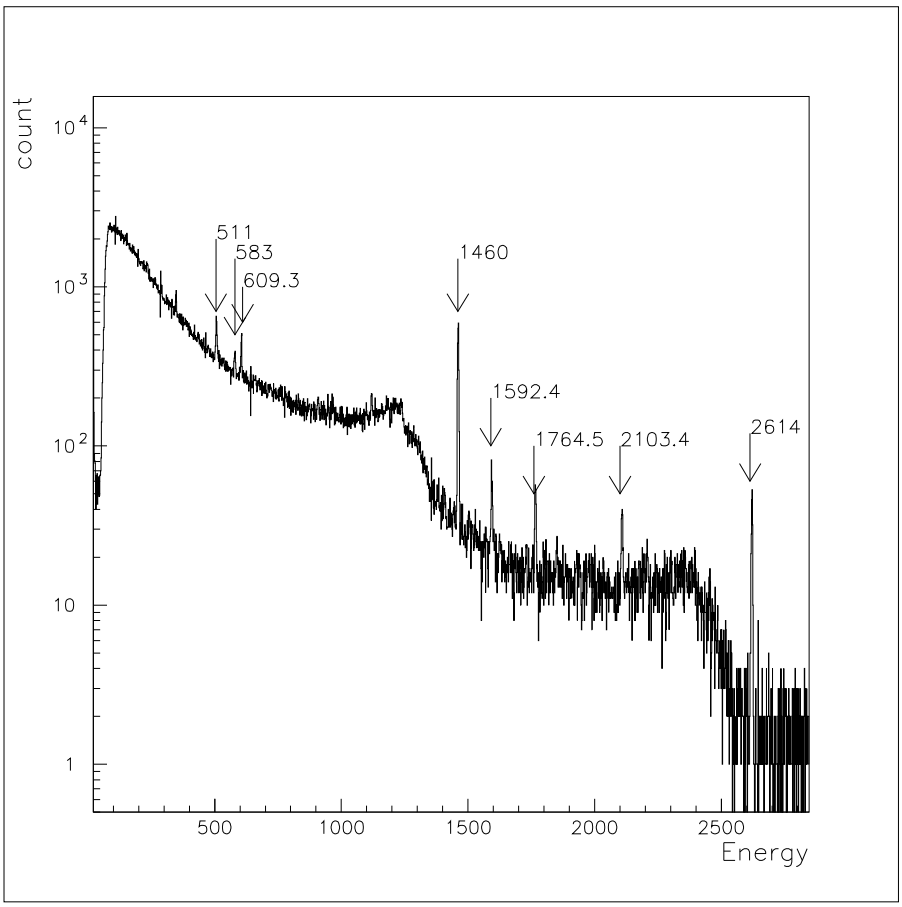


図 9: Ge-NaI:遮弊なし

511 KeV:annih.
1460 KeV:^{40}K
583 KeV:^{208}Tl
1592.4KeV:^{208}Tl D2614KeV
2103.4KeV:^{208}Tl S2614KeV
2614 KeV:^{208}Tl
609.3 KeV:^{214}Bi
1764.5KeV:^{214}Bi

測定時間：４０時間

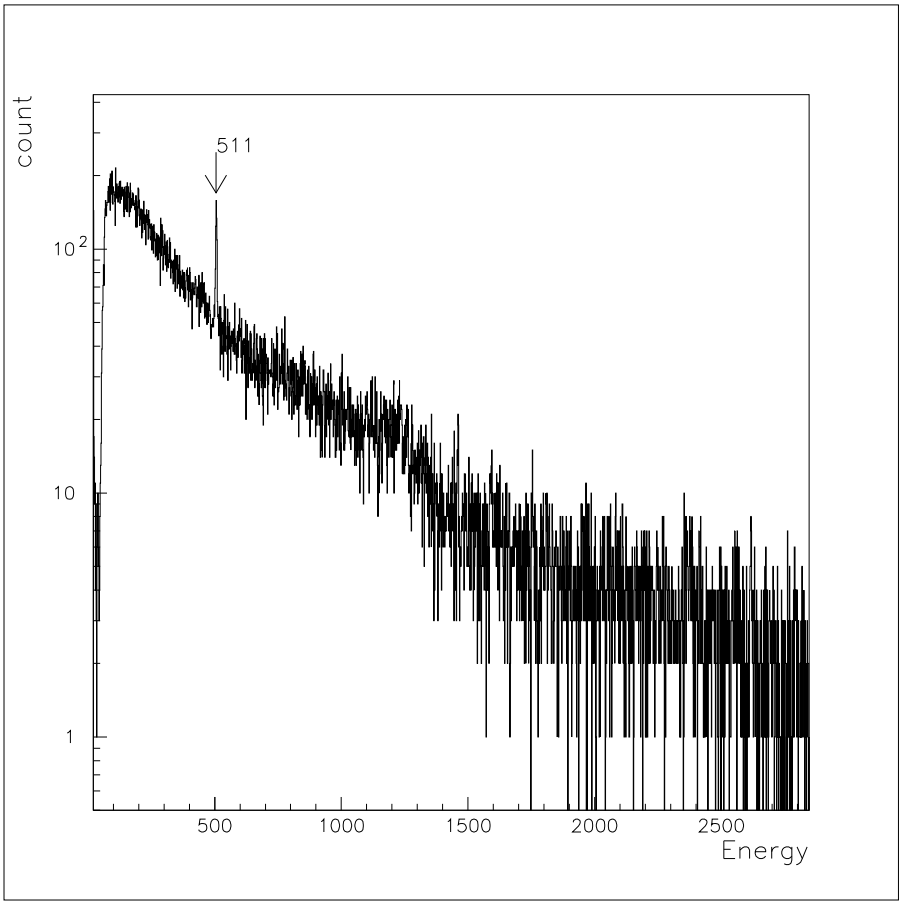


図 10: Ge-NaI:遮弊あり

511　KeV:annih.

測定時間：４０時間

5　511KeVピークの解析

GSO 結晶からは 511KeVγ 線のピークだけが検出された。

今回の目的は GSO 内部のバックグラウンド計数の測定なのでこれを詳しく解析することにする。

5.1　自然放射線中の 511KeV ピーク

鉛１０ cm+Cd 遮弊を行なった時のバックグランド計数率を示す。

核種など	対消滅	^{208}Tl	^{214}Bi	^{40}K
エネルギー (KeV)	511	583.2	609.3	1460
計数率	10-30	3-7	1-3	2-4

計数率は一時間あたりのピーク面積計数率

(文献 [1])

以上より十分遮弊を行なった場合でも 511KeV ピークは他のピークと比べ多く見られる事が分かる。

この γ 線の由来は、検出器の外部の物質において 1022KeV 以上のエネルギーをもつ γ 線が電子対生成を起こすためである。

電子対生成の断面積は低エネルギー領域では物質の原子番号の 2 乗に比例する。それぞれの結晶の有効原子番号の 2 乗を参考に挙げておく。

$(\mathrm{Z}_{GSO})^2 = 3481$
$(\mathrm{Z}_{NaI})^2 = 2500$
$(\mathrm{Z}_{BaF_2})^2 = 2916$

5.2 解析

KODAQ のリストモードでとった Ge-GSO coinsidence データを以下の方法で解析した。

下の図のように 500KeV-522KeV の間のチャンネルに Ge のデータが入った場合のみ GSO 側もデータをとる。
電子対生成による消滅 γ 線ならば Ge:511Kev にたいする GSO のスペクトルは連続になる筈である。

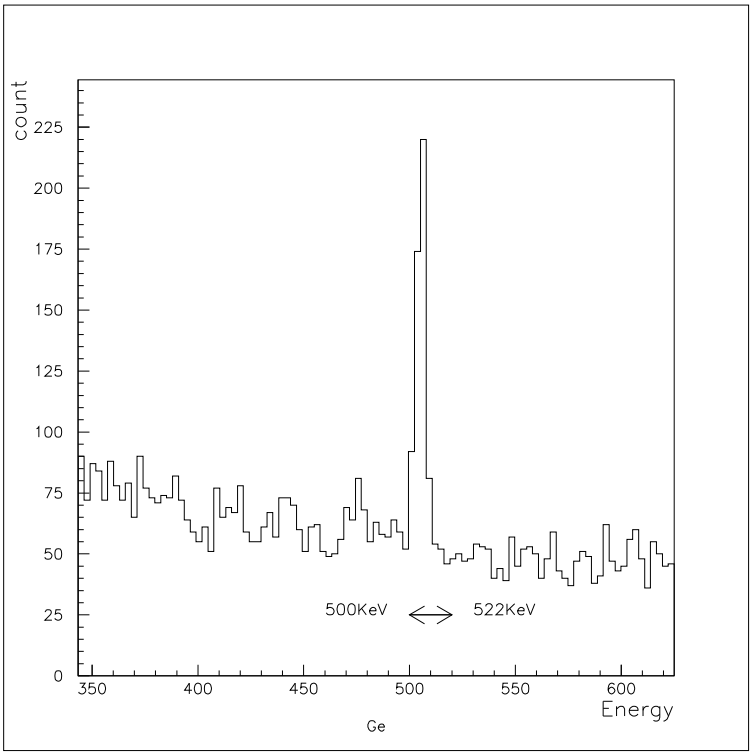


図 11: Ge-GSO:Ge511KeV

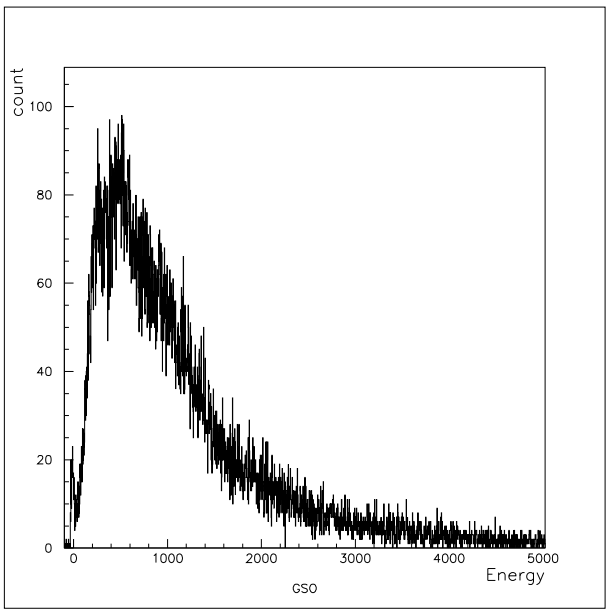


図 12: GSO の全スペクトル

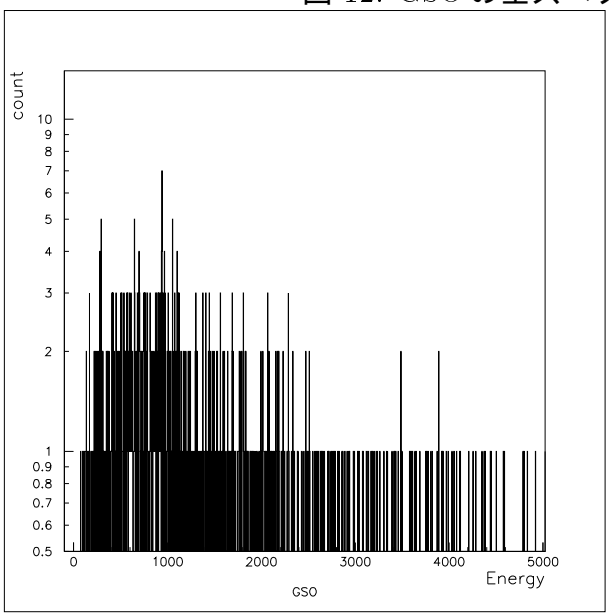


図 13: GSO の Ge511KeV にするスペクトル

測定時間：８４時間

5.3 考察

Ge:511KeV に対する GSO スペクトルはピークをなさない連続的なものになった。このことから Ge:511KeV ピークは電子対生成によって生成された陽電子の対消滅 γ 線であると推測できる。また GSO:511KeV ピークがみえないことから電子対生成は Ge と GSO の間にある物質内で起こっているのではなく、GSO 結晶内部で起こっている事が分かる。

6 Summary

BaF_2 結晶中にはウラン系列核種が多く含まれていることがわかる。これは Ba と同じ 2 価である Ra が結晶の精製段階において分離が困難なためである。

ちなみに今回使用した結晶はあまり純度が高いものではない。

NaI、GSO 結晶からはコインシデンスの条件にあうような放射性崩壊に伴った γ 線のピークはみとめられなかった。

このことよりウラン、アクチニウム、タリウム系列の核種またはその他の γ 線を伴う崩壊をする放射性不純核種に対して高い純度であることがわかる。

以上より低エネルギー領域において稀に起こる event の測定にたいして BaF_2 は好ましいとはいえず, 今回の実験の限りではそのような測定に対して GSO、NaI は好ましい検出器であるといえる。

ただ、具体的な数値を示すところまでいけなかったのが残念でした。

今回の測定方法では section 3 の通り全ての放射性核種に対し有効ではないのでさらに詳しく調べるには他の実験方法が必要になる。またもっと厳密に調べるならば原材料の産地や元素の化学的性質まで調べる必要があるだろう。(BaF_2 などは産地により組成が微妙に異なる。)

7　謝辞

最後になりましたがこの卒業研究にあたり実験の機会と御指導いただいた橋本治教授と田村裕和助教授に感謝しお礼申し上げます。

実験にあたり基礎から教えて下さいました高橋俊行助手、この方なくしては私の卒業研究は進まなかったのではないかと思われるほどお世話になりっぱなしだった藤井優助手に感謝致します。

様々な日常の生活において加藤守男技官、秘書の川村直子さんにはお世話になりました。

院生、４年生の皆様には様々な面において手助けしていただいて有難うございました。特に佐々尾淳一氏にはお忙しい中 Ge 検出器を伝授していただき感謝しております。

原子核物理講座の皆様には部活動に対し御理解いただきありがとうございました。深く感謝致します。

そして液体窒素運びを手伝ってくださったすべての方々に感謝致します。

参考文献

[1] 野口正安. γ 線スペクトロメトリー. 日刊工業新聞社,1980.

[2] W.R.Leo. *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments 2nd Edition*. Springer-Verlag,1993.

[3] M.Ishi and M.Kobayashi. *Single Crystals for Radiation Detectors*. 1992.4.

[4] GAMQUEST program. from Table of Radioactive Isotopes. (@csa1.lbl.gov).

[5] 村上悠紀雄. 放射線データブック. 地人書館.1982.

[6] Richard B.Firestone.*Table of Isotopes 8th edition*. Wiley Interscience.1996.