

# He-Xe 混合ガスの電離・蛍光収量の測定と 検出器への応用

竹内 章博

博士（工学）

総合研究大学院大学

高エネルギー加速器科学研究科

加速器科学専攻

2019年12月10日



# 目次

<b>第 1 章 序論</b> .....	1
1.1 希ガスを用いた放射線検出器.....	1
1.1.1 希ガスと放射線の相互作用.....	1
1.1.2 希ガスの電離と励起に関する測定データ.....	1
1.1.3 希ガスを用いた放射線検出器.....	2
1.1.4 中性子の検出.....	3
1.1.5 ヘリウム・キセノン混合ガス.....	4
1.2 本研究の目的.....	6
<b>第 2 章 希ガスと荷電粒子の相互作用</b> .....	9
2.1 電離過程.....	9
2.2 ペニング効果.....	12
2.3 Hornbeck-Molnar 過程.....	16
2.4 W 値の測定データ.....	17
2.5 混合ガスの W 値.....	21
2.6 シンチレーション過程.....	25
2.7 シンチレーションの希ガス混合効果.....	29
<b>第 3 章 希ガスの電離とシンチレーション測定</b> .....	33
3.1 純ヘリウムの電離収量測定実験.....	33
3.1.1 実験装置.....	33
3.1.2 電離電子の飽和特性.....	48
3.2 ヘリウム・キセノン混合ガスの電離電子・シンチレーション同時測定実験.....	52
3.2.1 実験装置.....	52
3.2.2 電離電子・シンチレーションの飽和曲線.....	60
3.2.3 電子数校正.....	63
3.2.4 電離収量の安定性.....	66

3.3 純ヘリウムの電離収量の結果.....	68
3.3.1 ヘリウムの電離収量測定におけるガスの純化の効果.....	68
3.3.2 不純物と純ヘリウム中における電離収量の関係.....	82
3.4 ヘリウム・キセノン混合ガスの測定結果.....	94
3.4.1 ヘリウム・キセノン混合ガスの電離収量.....	94
3.4.2 ヘリウム・キセノン混合ガスのシンチレーション収量.....	99
3.5 本章のまとめ.....	102
<b>第4章 中性子検出器への応用.....</b>	<b>103</b>
4.1 緒言.....	103
4.2 設計方針.....	106
4.3 動作試験.....	124
4.4 本章のまとめ.....	143
<b>第5章 結論.....</b>	<b>144</b>
参考文献.....	147

# 目次

図 2.1	N <sub>2</sub> -Ar 混合ガスの電離収量の変化 [5].....	22
図 2.2	He-Ar 混合ガスの電離収量の変化 [24].....	23
図 3.1	電離収量測定実験装置の概略図.....	35
図 3.2	グリッド型電離箱の外観写真.....	36
図 3.3	PHITS コードより求めた有感領域への付与エネルギーのスペクトル .....	37
図 3.4	電離収量測定における回路構成.....	38
図 3.5	実験装置の配管模式図.....	39
	R.P. : ロータリーポンプ、TMP : ターボ分子ポンプ、QMS : 四重極質量分析計 (835 VQM, Granville-Phillips)、Purifier No. 1 : 純化装置 (St707, SAES Getters)、Purifier No.2 : ガス精製器 (MC200-902V, SAES Pure Gas)、Circulation pump : メタルベローズポンプ (MB-118, IBS).....	39
図 3.6	電離収量測定実験装置の外観写真.....	40
図 3.7	Zr-V-Fe ゲッター (St707, SAES Getters)の写真 .....	41
図 3.8	ガス精製器 (MC200-902V, SAES Pure Gas)の写真.....	42
図 3.9	真空中のチェンバー内残留ガス成分 (m:イオンの質量, z:電荷数) .....	45
図 3.10	真空中でのチェンバー内残留ガスのビルドアップ .....	46
図 3.11	露点計 (PURA 高純度ガス用微量水分トランスミッター, MICHELL)の写真 .....	47
図 3.12	ヘリウム 40kPa でのコレクターに収集された電離電子の波高分布 .....	49
図 3.13	カソード・グリッド間の電場強度を変えて得た飽和特性.....	50
図 3.14	カソード・グリッド間とグリッド・コレクター間の電場比を変えた得た飽和特性.....	51
図 3.15	電離電子・シンチレーション同時測定実験装置の概略図.....	54
図 3.16	電離電子・シンチレーション同時測定実験装置内部のグリッド型電離箱の写真.....	55
図 3.17	電離電子・シンチレーション同時測定実験の外観写真.....	56
図 3.18	実験装置の配管図.....	57

図 3.19	実験装置の配管の写真.....	58
図 3.20	様々な温度での H <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> に対するゲッター合金 St707 の吸着特性[37] .....	59
図 3.21	ヘリウム 980 kPa、キセノン 20 kPa における収集電離電子・シンチレーションの飽和特性.....	61
図 3.22	換算電場強度を変化させたときの収集電離電子の飽和特性.....	62
図 3.23	窒素とアルゴンにおけるコレクター信号の波高分布 .....	64
図 3.24	波高値と電子数の関係.....	65
図 3.25	ガス封入後の純化装置を用いた際の電離収量の経時変化 (ヘリウム 1.0 MPa、キセノン 100 kPa、窒素 600 kPa、アルゴン 300 kPa、ヘリウム 900 kPa + キセノン 100 kPa) .....	67
図 3.26	ガスの純化を行わない場合の真空到達度の違いによる電離収量の時間変化.....	70
図 3.27	純化を行っていない場合の水蒸気圧と電離収量の経時変化.....	73
図 3.28	純化を行っていない場合の電離収量の経時変化.....	74
図 3.29	純化を行っていない場合のガスの循環経路.....	75
図 3.30	流量 0.5 SLM で純化を行った場合の水蒸気圧の経時変化.....	77
図 3.31	流量 6.1, 0.3 SLM で純化を行った場合の水蒸気圧と電離収量の経時変化.....	80
図 3.32	純化を行った場合のガスの循環経路.....	81
図 3.33	不純物濃度とペニング効果により生成される不純物イオンの濃度の関係 .....	84
図 3.34	電離収量と水蒸気圧の関係.....	90
図 3.35	ヘリウムの W 値の先行研究[5,16,17,19-22]と本研究の実験データ .....	92
図 3.36	ヘリウムガスの圧力と W 値の関係[4].....	93
図 3.37	ヘリウム、ヘリウム・キセノン混合ガス (キセノン 2%)、キセノンにおけるコレクター信号の波高分布.....	96
図 3.38	ヘリウム・キセノン混合ガスによる電離収量.....	97
図 3.39	ヘリウム・キセノン混合ガスによるシンチレーション収量.....	101
図 4.1	キセノンの混合比に対するシンチレーションと電離収量の変化.....	105
図 4.2	内圧を受ける薄肉円筒の断面。内圧 $p$ [N・mm <sup>-2</sup> ]、内径 $D$ [mm]、肉厚 $t$ [mm]、円周応力 $\sigma t$ [N・mm <sup>-2</sup> ] [43] .....	114

図 4.3	MgF <sub>2</sub> 結晶 直径 8.0 cm×厚さ 1.0 cm (応用光研工業株式会社製)	115
図 4.4	設計・製作した検出器の図面	116
図 4.5	設計・製作した検出器の外観写真	117
図 4.6	グリッドとコレクターの写真	118
図 4.7	グリッド型電離箱の外観写真	119
図 4.8	検出器における回路構成	120
図 4.9	発光点から光電面を見込む立体角を計算する各パラメータ	122
図 4.10	カソードからの $\alpha$ 線の放出角度と立体角の関係	123
図 4.11	実験装置の配管模式図	125
	R.P. : スクロールポンプ、TMP : ターボ分子ポンプ、QMS : 四重極質量分析計 (835 VQM, Granville-Phillips)、Pressure gauge : 圧力計 (722A Baratron, MKS)	125
図 4.12	窒素ガス 500 kPa を封入した際の圧力の経時変化	126
図 4.13	ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa での光電子増倍管からのシンチレーションと電荷有感型プリアンプからの電離電子の信号波形。カソード・グリッド間の換算電場強度が $0.4 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$	128
図 4.14	ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa での光電子増倍管からのシンチレーション信号の波高分布。赤色が電場なし、青色がカソード・グリッド間の換算電場強度が $0.35 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$	129
図 4.15	ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa での光電子増倍管からのシンチレーションと電荷有感型プリアンプからの電離電子の信号波形。カソード・グリッド間の換算電場強度が $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$	131
図 4.16	ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa での光電子増倍管からのシンチレーション信号の波高分布。青色が $\alpha$ 線による最初のシンチレーション、赤色が比例シンチレーション。カソード・グリッド間の換算電場強度が $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$	132
図 4.17	ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa でのシンチレーションと電離電子の電荷有感型プリアンプからの信号波形。カソード・グリッド間の換算電場強度が $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$	134
図 4.18	ヘリウム 50 % + キセノン 50 % の混合ガスでの電子の流動速度[47]	135

図 4.19	ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa でのコレクターからの電離電子信号とテストパルスの波高分布。カソード・グリッド間の換算電場強度が $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$ .....	136
図 4.20	ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa でのシンチレーション収量・電離収量の換算電場強度依存性 .....	140



# 表目次

表 2.1	エネルギーバランス方程式の各パラメータの値[6]	11
表 2.2	電離原子数と励起原子数の比 $N_{ex}/N_i$ のデータ	11
表 2.3	希ガス原子の準安定準位[12]	13
表 2.4	それぞれのガスのイオン化エネルギー[13]	14
表 2.5	He $2^3S$ と $2^1S$ に対するペニング効果の断面積[14]	15
表 2.6	ICRU が推奨する $\alpha$ 粒子に対する気体の W 値[1]	18
表 2.7	5 MeV の $\alpha$ 粒子に対する希ガスの W 値[1]	19
表 2.8	ヘリウムの W 値の実験値	20
表 3.1	ガス精製器 MC200-902V 機械仕様[32]	43
表 3.2	ガス精製器 MC200-902V 精製および除去性能[32]	43
表 3.3	露点計 (PURA 高純度ガス用微量水分トランスミッター, MICHELL)の仕様[33]	44
表 3.4	式(3.3)のパラメータのフィッティング結果	71
表 3.5	式(3.8)のパラメータのフィッティング結果	78
表 3.6	式(3.29)のパラメータのフィッティング結果	91
表 3.7	ヘリウム・キセノン混合ガスの W 値の測定結果	98
表 3.8	式(3.37)のパラメータのフィッティング結果	98
表 4.1	検出器パラメータの選定	109
表 4.2	検出器として決定したパラメータ	110

# 第 1 章 序論

## 1.1 希ガスを用いた放射線検出器

### 1.1.1 希ガスと放射線の相互作用

希ガスは周期表 18 族に属する元素の総称で、ヘリウム・ネオン・アルゴン・クリプトン・キセノン・ラドンがある。希ガスは常温常圧において単原子分子であり、最外殻電子軌道が埋まっていることから、化学的に不活性で電子付着の効果もないため、放射線検出器の媒体として用いられてきた。ヘリウムの同位体であるヘリウム 3 は中性子との反応において、正の Q 値を持つ発熱反応であり、中性子検出媒体として比例計数管等に広く用いられている。ネオンは放電により荷電粒子の飛跡を検出するスパークチェンバーの封入ガスとして用いられる。アルゴンは空気中に 0.93 % 存在しており、他の希ガスに比べて安価な不活性ガスとして電離箱、GM 計数管、比例計数管に用いられている。クリプトンとキセノンは原子番号が大きいため、ガンマ線を高い効率で検出するための媒体や荷電粒子の飛程を短くするための添加ガスとして用いられている。ラドンの同位体はすべて放射性核種であるため放射線検出器媒体としては用いられていない。

希ガスと放射線の荷電粒子の相互作用には電離・励起過程とシンチレーション過程がある。電離・励起過程では荷電粒子が気体中を通過する際に、その経路に沿って電子・イオン対と励起原子が生成される。電子・イオン対が作られる電離作用の効率を表す物理量として W 値がある。励起作用によって作られる励起原子にはエネルギー準位の高い準安定状態の励起原子がある。この励起原子が電離に寄与するのがペニング効果であり、電離過程において重要な過程となっている。相互作用で生じる電離原子数  $N_i$  と励起原子数  $N_{ex}$  の比である  $N_{ex}/N_i$  が重要なパラメータとなる。これに加えて希ガスの特徴として、電離・励起過程で生成された励起原子から励起二原子分子が作られ、この分子から光子が放出されるシンチレーション過程がある。相互作用については第 2 章で詳しく述べる。

### 1.1.2 希ガスの電離と励起に関する測定データ

W 値は 1950 年代から多くの気体で測定され、再現性のある測定値

が得られている。しかしながら、ヘリウムの測定値は 42~46 eV とばらつきを示しており、今日に至るまでに確立した値がない[1]。測定値のばらつきの要因として不純物の影響が考えられる。励起ヘリウム原子と不純物原子との衝突によるペニング効果によって余剰な電離が生じるため、W 値が見かけ上小さくなる影響が現れる。ヘリウムの W 値の測定においては不純物の除去が重要となる。しかしながら、多くの先行研究においてはチェンバー内の不純物の状況が明記されておらず、測定値がどの程度不純物に影響を受けているか不明である。

ヘリウムの W 値は圧力に依存する可能性があることが理論的評価として指摘されている[2]が、これに否定的な評価[3]もある。これまでの先行研究においては不純物の情報と同様に、圧力に関しても大方の研究で明記はされていない。しかしながら、実験装置の寸法から見積もる限りでは、大気圧以上の条件で測定が行われていることが推測できている。よってこれまでの測定値は大気圧以上という条件下での測定となる。理論的評価として、圧力依存では低圧において W 値が大気圧での測定値と比べて大きくなるという指摘がある。しかしながら、これまでの研究では大気圧より低い条件での実験データはほとんどない。先行研究として Parks ら[4]が行った W 値測定がある。Parks らの研究では、圧力が 0.13 気圧から 1.3 気圧の範囲で測定されているが、不純物の影響により圧力依存は確認できなかったとある。よって実験的に圧力依存性は結論が得られていない。また、圧力依存性は理論的評価においても評価が分かれており、いずれも正当性が得られていない。

物質中における放射線のエネルギー損失過程を考えるうえで、重要なパラメータとして電離原子数  $N_i$  と励起原子数  $N_{ex}$  の比を表す  $N_{ex}/N_i$  がある。ヘリウムにおける  $N_{ex}/N_i$  の実験データとして Kubota [5] はヘリウム・アルゴン混合ガスによるペニング効果を用いて測定し、 $0.48 \pm 0.01$  と得られている。さらに、計算により Platzman [6]、Alhazov と Voob'ev [7] はそれぞれ 0.4、0.68 と求めている。これらの違いが、現状ではヘリウムと他の希ガスの混合ガスにおける電離収量の推定に曖昧さをもたらしてしまっている。これらの結果には大きな差があるため、詳細に調べる必要性がある。

### 1.1.3 希ガスを用いた放射線検出器

希ガスは電離作用を用いた検出器の媒体として、電離箱、比例計数

管、GM 計数管などで用いられている。これらの検出器は内部に陽極と陰極を設置し、電極間に電圧を印加する構造となっている。検出器内部に充填されているガスと放射線による電離で生じる電荷を、電場によって収集することで放射線を測定している。電極間の電圧を上昇させていくと収集される電子・イオン対の数は変化する。電場には電荷信号が放射線による一次電離量に応じた電子・イオン対の数となる電離箱領域、一次電離量よりも大きくなり電離が増幅される比例計数管領域、一次電離量とは関係なく電離が雪崩状に起き、一定の出力となる GM 計数管領域がある。

電離箱は電離で生じる電子・イオン対の絶対値を得ることができるため、放射線による電離効率を表す W 値を用いることで、測定した電荷から放射線による付与エネルギーの絶対値を求めることができる。

比例計数管には、放射線のエネルギーや種類に影響を受けず一次電離で一定の電離量をとる、アルゴンなどの希ガスが用いられている。また、電離増幅率の安定やガスの純度への鈍感化のためにメタンなどの有機ガスが少量添加されている。比例計数管に用いられる希ガスとしては安価であるアルゴンをベースとした、90%のアルゴンと10%のメタンの混合ガス（PR ガス）がよく用いられている。

GM 計数管では動作電圧が低く済むことからアルゴンが主に使われており、これに連続放電の発生を防止する目的で少量の有機多分子気体が添加されている。

励起作用を用いた検出器は、希ガスがシンチレータとして用いられている。多くの希ガスのシンチレーションは真空紫外領域の発光波長のため、その波長に感度がある光電子増倍管などで直接測定するか、波長を長波長側に変換できる気体を添加するか、波長変換材の膜を使用する方法がとられている。また、放射線の一次電離・励起による生じる一次シンチレーションの他に、ガス中に電場を印加し、加速された電子と中性原子との衝突による生じる二次シンチレーションを利用する方法もある。

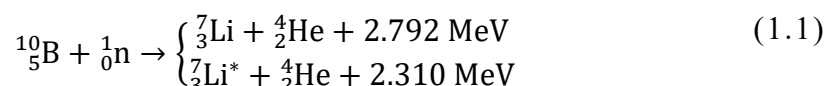
#### 1.1.4 中性子の検出

気体の電離作用を用いた検出器では、その検出器媒体としての気体を測定したい対象の放射線によって変えることで目的に特化した検出器となる。

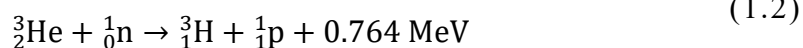
中性子は電荷を持たないため直接電離を起こさない。そのため中性

子とターゲット原子との核反応により検出可能な粒子に変換する必要がある。したがって中性子の検出効率ターゲットとの反応断面積に依存するため、できるだけ大きな断面積を有するターゲットを使用する必要がある。また、測定する中性子のエネルギーによっても断面積が変化するため、測定方法が異なってくる。ガスを媒体とした検出器で低速中性子の検出に用いられている代表的な反応を以下に示す。

$^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応



$^3\text{He}(n, p)$ 反応



式(1.1)はホウ素の同位体である天然存在比 19.8 %のホウ素 10 と中性子の反応である。 $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応の熱中性子断面積は 3840 barn であり、熱中性子の検出に使われている。検出媒体として気体の $\text{BF}_3$ が用いられている。しかし、 $\text{BF}_3$ は電子付着の作用があるため圧力を上げることができず中性子の検出効率が低くなってしまふ。また、強い毒性を持ったガスのため取り扱いが難しい。

式(1.2)はヘリウムの同位体である天然存在比 0.000137 %のヘリウム 3 と中性子の反応である。 $^3\text{He}(n, p)$ 反応の熱中性子断面積は 5330 barn とホウ素 10 の反応よりも大きい。 $\text{BF}_3$ のような電子付着の作用は無いため、圧力を上げることによって中性子の検出効率を高めることができる。また、熱中性子の検出だけでなく高速中性子のエネルギースペクトル測定にも用いられている[8]。

#### 1.1.5 ヘリウム・キセノン混合ガス

ヘリウムのシンチレーションは発光波長が 60~100 nm と短く、透過できる窓材が無いために光電子増倍管で直接検出することは困難である。そのためシンチレータとしてヘリウムガスを用いることは難しい。そこで、希ガスの中で最も発光波長が長いキセノン(173 nm)を添加することでヘリウムの発光をキセノンの発光へ変換できる。また、キセノンを添加することで式(1.2)の反応生成物の飛程を短くでき、検出器の

有効体積内に粒子のエネルギーを付与させることが容易になる。このことから単色中性子のエネルギー測定に有効性がある。

ヘリウム 3・キセノン混合ガスによるシンチレーションを用いたスペクトロメータが DD 核融合プラズマの中性子スペクトロメータ用として開発されている[9]。全圧が 200 気圧でヘリウム 3 とキセノンの混合比が 1:1 である。2.5 MeV の中性子に対して  $121 \pm 20$  keV のエネルギー分解能と  $(1.9 \pm 0.4) \times 10^{-3} \text{ (n/cm}^2\text{)}^{-1}$  の効率を示している。また、中性子とガンマ線の同時検出と識別にヘリウム 3・キセノン混合ガスのシンチレーションが使用され、1~10 MeV のエネルギー範囲の高速中性子と 7~15 MeV の範囲の高エネルギーガンマ線の検出が行われている[10]。

しかしながら、電離・シンチレーション収量に関してはほとんど知られていない。また、これまでの研究されてきた検出器ではシンチレーションのみを用いて中性子が測定されている。希ガスを用いた放射線検出器の特徴は電離とシンチレーションを同時に測定できることである。そこで希ガスを検出器媒体とし、電離とシンチレーションを同時に測定することにより、中性子とヘリウム 3 の反応位置を検出できるような検出器の開発が可能であると考えられる。

## 1.2 本研究の目的

本研究では、ヘリウム 3・キセノン混合ガスによる検出媒体で中性子検出を行うために、ヘリウム 4 とキセノンの混合ガスを用いて、電離とシンチレーション特性を実験により明らかにし、その結果をもとに中性子検出器へ応用することが目的である。

目的を達成するために、以下の項目について実験を行った。

検出器応用上で重要な物理量であるパラメータ測定として

- ① ヘリウムの W 値
- ② ヘリウムの電離原子数と励起原子数の比の  $N_{\text{ex}}/N_i$

ヘリウム 3・キセノン混合ガスを放射線検出媒体として利用するために重要な特性測定として

- ③ ヘリウム 4・キセノン混合ガスの電離収量とシンチレーション収量

①~③の測定結果をもとに中性子検出器への応用として

- ④ 中性子検出器の設計・製作と、 $\alpha$ 線源を用いたヘリウム 4・キセノン混合ガスでの動作試験

各項目の詳細な実験結果は第 3 章と第 4 章で述べる。その概要を以下に記す。

検出器応用上で重要な物理量であるパラメータ測定は第 3 章 3 節の「純ヘリウムの電離収量の結果」と第 3 章 4 節 1 項の「ヘリウム・キセノン混合ガスの電離収量」で述べる。

放射線による電離現象は放射線計測における実用面において重要であるばかりでなく、放射線が物質中に与える作用として最も基礎的な過程である。この電離過程に関する物理量としての W 値が、放射線による電離作用を定量的に表している。しかしながら、ヘリウムに着目すると未解決な問題として、W 値が実験的にも理論的にも定まっておらず、また電離原子数  $N_i$  と励起原子数  $N_{\text{ex}}$  の比の  $N_{\text{ex}}/N_i$  も同様に定まった値となっていないことが挙げられる。これらの問題に関する実験的報告はほとんどないのが現状である。そこで本研究ではヘリウムの W 値

とヘリウムの $N_{\text{ex}}/N_i$ に着目し、これらの値を実験的に測定する。

ヘリウムの $W$ 値に関しては、これまでの先行研究では明確にされていないガス中の不純物濃度に着目し、不純物濃度の電離収量への影響を明らかとする。ヘリウムの $N_{\text{ex}}/N_i$ に関しては、先行研究で用いられたヘリウム・アルゴンとは異なる混合ガスとして、ヘリウム・キセノン混合ガスを用いる。ヘリウム・キセノン混合ガスの場合はヘリウム・アルゴンと比べてペニング効果の断面積が大きい[14]という利点がある。

ヘリウム 3・キセノン混合ガスを放射線検出媒体として利用するために重要な特性測定は第 3 章 4 節 1 項の「ヘリウム・キセノン混合ガスの電離収量」と第 3 章 4 節 2 項の「ヘリウム・キセノン混合ガスのシンチレーション収量」で述べる。ヘリウムの $N_{\text{ex}}/N_i$ を求める実験はヘリウム・キセノン混合ガスを用いた電離収量測定により行っているため、ガスの特性測定の実験と同時に行った。

ヘリウム・キセノンの混合ガスは、ヘリウムと中性子の相互作用の結果としての電離電子またはシンチレーションを測定することで、中性子検出器として使用される。ヘリウム 3 とヘリウム 4 はそれぞれ、 ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$  と  ${}^4\text{He}(n,n){}^4\text{He}$  を介して低速及び高速中性子を検出するために使用されている。これらの反応は中性子のエネルギーを荷電粒子に変換するためである。提案されている媒体を使用した中性子検出器は、大きな検出領域、広範囲のエネルギーにわたる  $\gamma$  線と中性子の同時検出[10]、それぞれシンチレーションと電離信号のタイミングの差による位置情報やエネルギー情報など、多くの利点がある。混合ガスの発光メカニズムを明らかにする研究も行われており、混合比を変えて発光量が調べられている[11]。混合ガスを使うことでシンチレーションと電離の信号を同時に測定できるが、電離収量に関しては報告されていない。混合ガスの電離収量を見積もるためには、混合比の違いによる  $W$  値を得る必要がある。ヘリウム・キセノン混合ガスの電離電子・シンチレーション測定においては、放射線物理学として基礎的な電離過程を明らかにする上で重要であるばかりでなく、検出媒体といった実用面においても重要である。そこで、ヘリウム 3・キセノン混合ガスを用いた中性子検出として、混合ガスによる発光量と電離収量を元に混合ガスのパラメータを決め、中性子検出媒体用いるためにガスの特性を実験により測定する。ここでは、ヘリウム・キセノン混合ガスのシンチレーション収量と電離収量をキセノンの混合比を変えて測定することで、収量の変化傾向を明らかにする。



以上の測定結果をもとにした中性子検出器への応用は第4章の「中性子検出器への応用」で述べる。第3章で得られたヘリウム・キセノン混合ガスにおける混合比に対する収量の変化の測定データに基づいて、中性子検出媒体として用いる際のキセノンの混合比を定める。定めた混合比から中性子検出器としての構造を検討し、検出器の設計・製作を行う。製作した検出器にて $\alpha$ 線源を用い、ヘリウム4・キセノン混合ガスによる電離電子とシンチレーションの測定により動作試験を行う。電離電子の電極への収集時間、シンチレーションと電離電子の信号の時間差、電子の流動速度、二次シンチレーションの生成、電離収量とシンチレーション収量を測定する。その結果をもとに、中性子検出器の応用について検討する。

## 第 2 章 希ガスと荷電粒子の相互作用

本章では、希ガスと放射線の相互作用について説明し、電離過程、 $W$  値の測定データ、混合ガスの  $W$  値、シンチレーション過程、混合ガスによるシンチレーションなどについてまとめ、過程の定義、導出について述べる。

### 2.1 電離過程

荷電粒子により気体中に 1 組の電子・イオン対を生成させるために必要な平均エネルギーと定義される  $W$  値がある。以下の式で与えられる。

$$W = E/N_i. \quad (2.1)$$

ここで、 $W$  は  $W$  値 [eV]、 $E$  はガス中に付与される放射線のエネルギー [eV]、 $N_i$  は生成される電子・イオン対の数である。また、式(2.1)の  $E$  は放射線のエネルギー損失過程から Platzman がエネルギーバランス方程式により以下の式で示している [6]。

$$E = N_i \bar{E}_i + N_{\text{ex}} \bar{E}_{\text{ex}} + N_i \bar{\epsilon}. \quad (2.2)$$

ここで、 $\bar{E}_i$  と  $\bar{E}_{\text{ex}}$  は電離原子と励起原子を生成させる平均エネルギー [eV]、 $N_{\text{ex}}$  は励起原子数の数、 $\bar{\epsilon}$  は亜励起電子の平均エネルギー [eV] である。式(2.2)は放射線のエネルギーが気体中で失われる場合、エネルギーが気体分子・原子の電離と励起に消費され、さらに電離も励起も起こさない電子（亜励起電子）の運動エネルギーに分配されることを示している。

式(2.1)の  $W$  値の定義式の  $E$  に式(2.2)の Platzman のエネルギーバランス方程式を代入すると以下のように書ける。

$$W = E/N_i = \bar{E}_i + \bar{E}_{\text{ex}}(N_{\text{ex}}/N_i) + \bar{\epsilon}. \quad (2.3)$$

さらに、式(2.3)の両辺をイオン化ポテンシャル $I$  [eV]で割ると

$$W/I = \bar{E}_i/I + (\overline{E_{ex}}/I)(N_{ex}/N_i) + \bar{\epsilon}/I. \quad (2.4)$$

と書き表せる。

Platzman [6]はヘリウム、ネオン、アルゴンに対して式(2.4)の各パラメータの値を表 2.1 に示すように報告している。電離原子数と励起原子数の比を表す $N_{ex}/N_i$ の値が式(2.4)の右辺の第 2 項の値を決めるパラメータとなっており、電離収量を決めるために必要な値となっている。そこで報告されている希ガスの $N_{ex}/N_i$ の値を表 2.2 に示す。Platzman [6]は理論計算によりヘリウム、ネオン、アルゴンにおいて 0.4 と示している。Alkhazov ら[7]は理論計算によりヘリウムにおいて 0.68 と報告している。一方、Kubota [5]はヘリウムとアルゴンの混合による電離収量の測定実験で  $0.48 \pm 0.01$  と報告している。また、Saito ら[11]はアルゴンガスによるシンチレーションの測定実験で 0.52 と報告している。 $N_{ex}/N_i$ の報告例は少なく、ヘリウムとアルゴンの報告値はそれぞれの報告者によって値が異なっている。

表 2.1 エネルギーバランス方程式の各パラメータの値[6]

ガス	$W/I$	$\bar{E}_i/I$	$\bar{E}_{ex}/I$	$N_{ex}/N_i$	$\bar{\epsilon}/I$
He	1.72	1.06	0.85	0.40	0.31
Ne	1.70	1.06	0.85	0.4	0.3
Ar	1.68	1.1	0.85	0.4	0.3

表 2.2 電離原子数と励起原子数の比 $N_{ex}/N_i$ のデータ

ガス	報告者	$N_{ex}/N_i$	手法
	Kubota [5]	0.48±0.01	He-Ar 混合ガスによる実験
He	Platzman [6]	0.4	理論計算
	Alkhazov and Voob'ev [7]	0.68	理論計算
Ne	Platzman [6]	0.4	理論計算
Ar	Platzman [6]	0.4	理論計算
	Saito <i>et. al</i> [11]	0.52	Ar ガスによる実験

## 2.2 ペニング効果

準安定励起原子 $X^m$ が、そのエネルギーよりも低いイオン化エネルギーをもった中性子原子または分子 $Y$ と衝突すると、次のような電離反応が可能となる[12]。



これをペニング電離という。この場合、 $X^m$ の励起エネルギーと $Y$ の電離エネルギーとの差のエネルギーは、電子の運動エネルギーとなる。気体中では、準安定励起原子が電離過程に寄与するために、ペニング効果が重要な反応となっている。表 2.3 に希ガス原子の準安定準位を示す。これらの準位の励起原子が放射線による電離過程で生じる。そこで $Y$ のイオン化エネルギーより $X^m$ がもつポテンシャルエネルギーが大きいと式(2.5)の電離が起こる。表 2.4 に希ガスとその他のガスのイオン化エネルギーをまとめた。表 2.4 のイオン化エネルギーとヘリウムの準安定状態のポテンシャルエネルギー19.82 eV、20.61 eV とを比較すると、ヘリウムの準安定状態のポテンシャルエネルギーの方が高いために、ペニング効果が起こり式(2.5)の電離が起こる。よってヘリウムは他のガスの影響を受けペニング効果により電離が起こりやすいといえる。

ヘリウムの準安定励起原子とのペニング効果の断面積の測定値を表 2.5 に示す。希ガスではキセノンに対して断面積が大きく、分子性のガスに対しては酸素が大きい。

表 2.3 希ガス原子の準安定準位[12]

原子	基底項	準安定準位	ポテンシャルエネルギー [eV]
He	$1^1S_0$	$2^3S_1$	19.82
		$2^1S_0$	20.61
Ne	$2^1S_0$	$3^3P_2$	16.32
		$3^3P_0$	16.72
Ar	$3^1S_0$	$4^3P_2$	11.55
		$4^3P_0$	11.72
Kr	$4^1S_0$	$5^3P_2$	9.92
		$5^3P_0$	10.56
Xe	$5^1S_0$	$6^3P_0$	8.32
		$6^3S_0$	9.45

表 2.4 それぞれのガスのイオン化エネルギー[13]

ガス	イオン化エネルギー [eV]
He	24.58741
Ne	21.56454
Ar	15.759
Kr	13.99961
Xe	12.12987
N <sub>2</sub>	15.581
O <sub>2</sub>	12.0697
H <sub>2</sub> O	12.621
CO <sub>2</sub>	13.777
CO	14.014
H <sub>2</sub>	15.42593

表 2.5 He  $2^3S$ と $2^1S$ に対するペニング効果の断面積[14]

ガス	He $2^3S$ の断面積( $\times 10^{-16} \text{ cm}^2$ )	He $2^1S$ の断面積( $\times 10^{-16} \text{ cm}^2$ )
Ar	$7.6 \pm 0.5$	$7.6 \pm 0.5$
Kr	$9 \pm 2$	$9 \pm 2$
Xe	$12 \pm 3$	$12 \pm 3$
H <sub>2</sub>	$2.6 \pm 0.5$	$1.7 \pm 0.5$
O <sub>2</sub>	$14 \pm 1$	$14 \pm 1$
N <sub>2</sub>	$7 \pm 1$	$7 \pm 1$
CO	$7 \pm 1$	$7 \pm 1$



### 2.3 Hornbeck-Molnar 過程

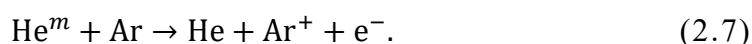
主量子数が 3 又はそれ以上の励起状態のヘリウム原子は式(2.6)に示す二次過程を介した分子イオンの生成を通じて、中性のヘリウム原子を電離する Hornbeck-Molnar 過程を引き起こす[15]。



ここで、 $\text{He}_2^+$ はヘリウム分子イオンである。この過程はヘリウムの圧力に依存していることから、 $W$  値に影響し圧力の依存が現れることが指摘されている。しかしながら、実験的にも理論的にもどの程度寄与するのかの結論が出ていない現状がある。

## 2.4 W 値の測定データ

再現性の良い W 値の測定が行われ始めたのは 1950 年代から 1960 年代になってからで、多くの気体に対して再現性のある値が得られている。再現性が得られる測定以前において、ヘリウムの W 値は 30 eV 程度であるとされていた。1949 年に Jesse ら [16] がヘリウムガスの純度を上げ測定した結果、41.3 eV となることを発見した。これにより W 値が不純物の影響を強く受けることが指摘された。さらに、ヘリウムに 0.13% とごく少量のアルゴンを混ぜた結果、W 値が 29.7 eV となることが報告された。これが式(2.5)によりペニング効果の影響である。ヘリウムの準安定状態がアルゴンのイオン化エネルギーより大きいためにアルゴンが電離され、W 値が小さくなるためである。この反応は以下の式で表される。



1979 年に国際放射線単位測定委員会 (ICRU) がこれまで実験により測定された W 値をまとめ、推奨値として示している [1] (表 2.6)。希ガスに関しては、ヘリウムとキセノンは 2 つの値が併記されており (表 2.7)、少しの不純物で大きく W 値が変わってしまい、他のガスの混合が W 値の決定に懸念されているとしている。特にヘリウムは、46.0 eV と 42.7 eV の値が併記され、大きなばらつきがある。表 2.8 にヘリウムの W 値の測定データをまとめた。測定結果は 42.2~46.0 eV ([5],[16]-[22]) とばらつきを示しており再現性のある値が得られていない (表 2.8)。この測定値のばらつきの要因として不純物による影響がなお懸念されている。ヘリウムは高いエネルギーレベルの準安定励起状態を有し、ヘリウム中に不純物が混入すると両者の衝突によるペニング効果によって余剰な電離が生じるため、W 値が見かけ上小さくなる影響が現れる。表 2.3, 表 2.4 よりヘリウムの準安定状態のポテンシャルエネルギーは大方の原子や分子のイオン化エネルギーより大きいために、測定チャンバー内に存在する不純物と反応してしまう可能性が高い。よって高性能な希ガスの純化が必要であり、不純物の定量的な評価が必要である。

また、ヘリウムの W 値は前述の Hornbeck-Molnar 過程による二次過程が電離収量に寄与していることが指摘されている [2]。理論計算とし

て、高圧の条件では W 値は 42~43.5 eV となると示されている。しかし、これに否定的な評価もあり、Alkhazov [7]は Hornbeck-Molnar 過程は無視できるとして 46.6 eV となることを指摘している。実験的にも理論的にも何れが正しいのか実証されておらず、未解明となっている。

表 2.6 ICRU が推奨する  $\alpha$ 粒子に対する気体の W 値[1]

ガス	W 値 [eV]
空気	35.08
Ar	26.31
CH <sub>4</sub>	29.11
CO <sub>2</sub>	34.21
H <sub>2</sub>	36.43
O <sub>2</sub>	32.24
C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	27.91

表 2.7 5 MeV の  $\alpha$  粒子に対する希ガスの W 値 [1]

ガス	W 値 [eV]	測定者
He	46.0	Bortner and Hurst (1954) [17]
He	42.7	Jesse and Sadauskis (1953) [16]
Ne	36.8	Jesse and Sadauskis (1953) [16]
Ar	26.4	Jesse and Sadauskis (1953) [16]
Kr	24.1	Jesse and Sadauskis (1953) [16]
Xe	21.9	Jesse and Sadauskis (1953) [16]
Xe	21.32	Klots (1966) [18]

表 2.8 ヘリウムの W 値の実験値

年	測定者	W 値 [eV]
1953	Jesse <i>et al.</i> [16]	42.7±0.5
1954	Bortner <i>et al.</i> [17]	46.0±0.5
1954	Herwing <i>et al.</i> [19]	44.2±0.9
1970	Kubota [5]	42.2±0.2
1976	Harris <i>et al.</i> [20]	43.5±0.3
1989	Sasaki <i>et al.</i> [21]	43.57±0.12
1992	Ishida <i>et al.</i> [22]	43.3±0.3

## 2.5 混合ガスの W 値

混合ガスの W 値は 1950 年に Huber ら[23]によって示された。混合ガスの各成分がそれぞれ独立に電離されるとし以下の式で与えられている。

$$\frac{1}{W_m} = \frac{1}{W_1}z + \frac{1}{W_2}(1-z), \quad (2.8)$$

$$z = [1 + R_1(P_1)/\{R_2(P_2)\}]^{-1}, \quad (2.9)$$

$W_m$ 、 $W_1$ 、 $W_2$ はそれぞれ、成分 1 と 2 の混合、成分 1、成分 2 の W 値、 $z$  は  $\alpha$  線のエネルギーが成分 1 に分配される割合、 $R_1(P_1)$ 、 $R_2(P_2)$ はそれぞれ成分 1 と成分 2 の分圧中での  $\alpha$  線の飛程である。混合ガスの実測例として  $N_2$ -Ar 混合ガスの例を図 2.1 に示す[5]。図 2.1 は成分 1 を窒素、成分 2 をアルゴンとし、横軸は式(2.9)の  $z$  で、縦軸は成分 1 の窒素に相対的な電離収量( $W_1/W_m$ )で表されている。式(2.8)の関係がすべての混合比に対して成り立っていることがわかる。

しかし、混合ガスによっては式(2.8)の関係が成り立たないものがある。具体例として He-Ar の結果を図 2.2 に示す[24]。式(2.8)が成り立つ場合は直線の変化となる。ヘリウムとアルゴンの混合ガスでは、わずかなアルゴンの混合で式(2.8)により予測されている電離収量（直線）よりも急激に増加し、アルゴンの混合が増えると緩やかにアルゴンの W 値に近づいていく変化となっている。この違いの要因が前述のペニング効果によるものである。ヘリウムの準安定励起原子のポテンシャルエネルギー (19.82 eV, 20.61 eV)がアルゴンのイオン化エネルギー (15.759 eV)よりも大きいため式(2.5)の電離が起き、電離収量が増加する。

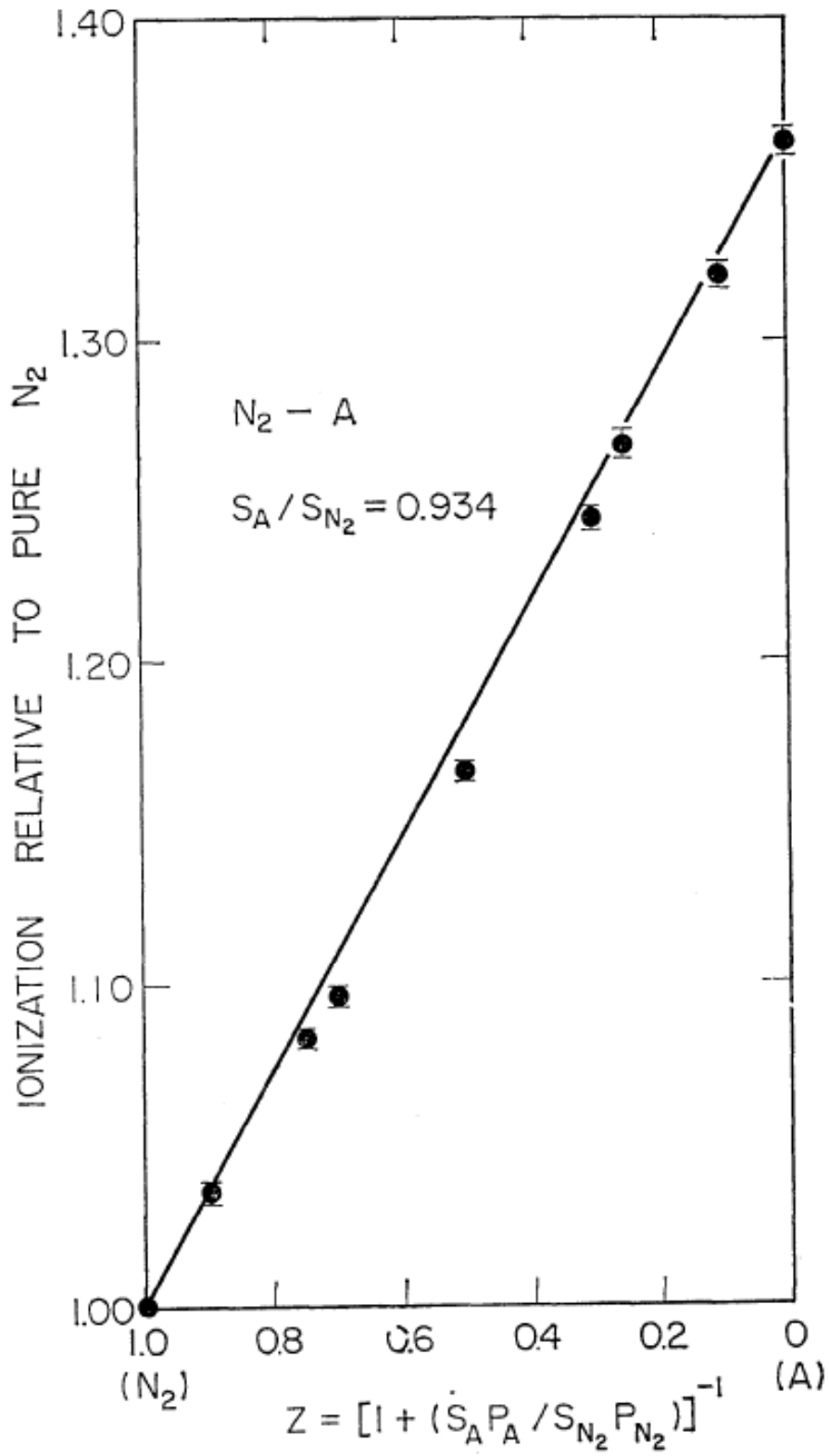


図 2.1 N<sub>2</sub>-Ar 混合ガスの電離収量の変化 [5]

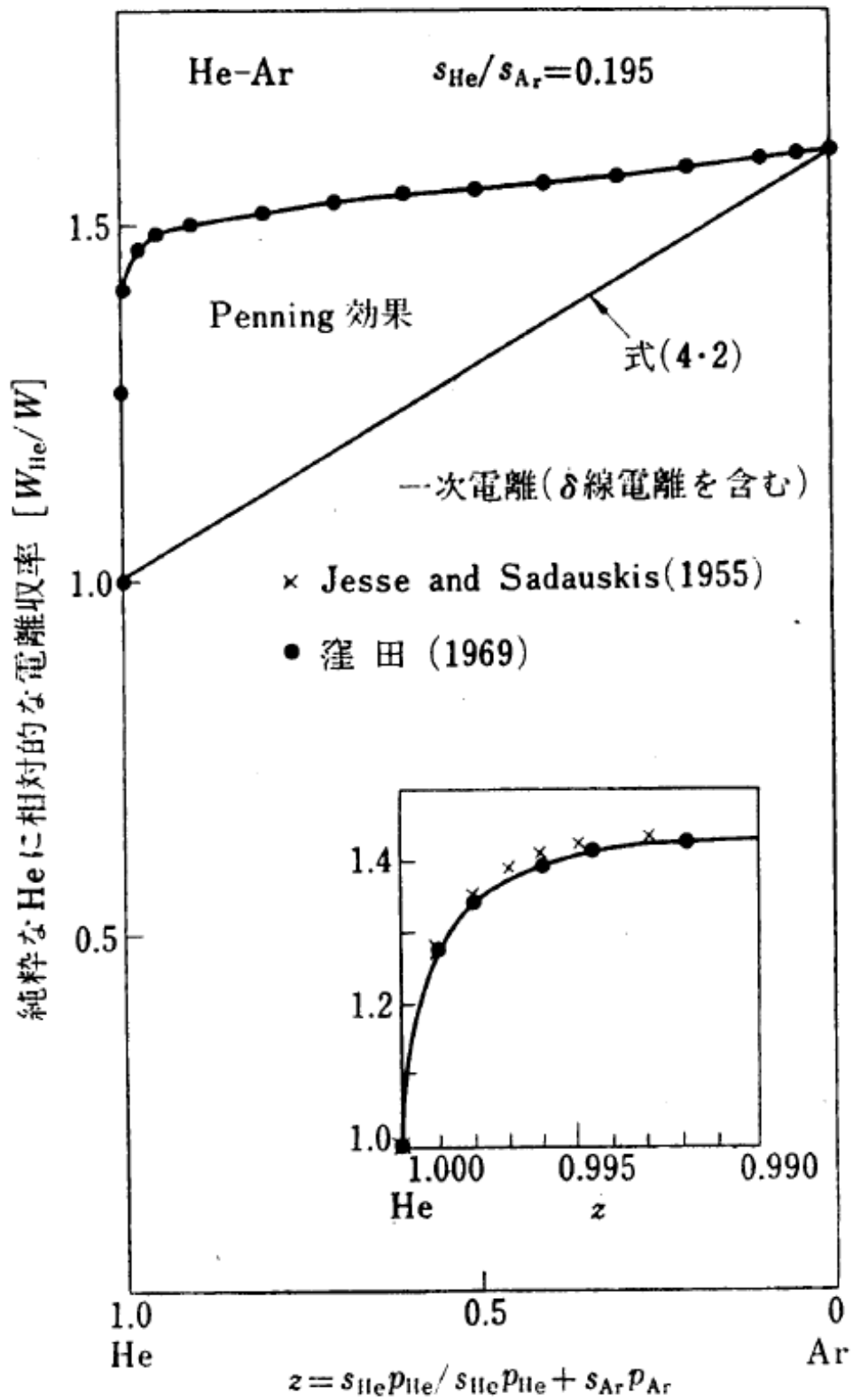


図 2.2 He-Ar 混合ガスの電離収量の変化 [24]



そこで、式(2.8)の混合ガスの  $W$  値の関係式に前述のヘリウムによるペニング効果を考慮に入れ、以下の式を導いた。

$$\frac{1}{W_m} = \frac{1}{W_{\text{He}}} z \left( 1 + \frac{N_{\text{ex}}}{N_i} \right) + \frac{1}{W_2} (1 - z), \quad (2.10)$$

$W_{\text{He}}$  はヘリウムの  $W$  値、 $N_i$ 、 $N_{\text{ex}}$  は荷電粒子によって生成されるヘリウムの電離原子と励起原子の数である。ペニング効果による励起原子による電離を式の中に入れるために、電離原子数と励起原子数の比  $N_{\text{ex}}/N_i$  を用いた。この比は測定することができる電離電子数から励起原子数を求めることができる。よって式(2.10)は混合ガス中でヘリウムに分配される  $\alpha$  線のエネルギーによって 1 次電離される電離電子数から見積もられる励起原子数が、すべてペニング効果によって電離されると仮定したことを表している式となっている。

また 2 次的な電離過程としてペニング効果の他に前述の Hornbeck-Molnar 過程がある。そこで脱励起過程などを無視した場合、ペニング効果と Hornbeck-Molnar 過程を考慮したヘリウムの混合ガスによる  $W$  値は以下で表される。

$$\begin{aligned} \frac{1}{W_m} &= \frac{1}{W_{\text{He}}} z \times \left\{ 1 + \frac{N_{0\text{ex}} - N(\text{He}_2^+)}{N_{0i} + N(\text{He}_2^+)} \right\} + \frac{1}{W_{\text{Xe}}} (1 - z) \\ &= \frac{1}{W_{\text{He}}} z \times \left\{ \frac{1 + \frac{N_{0\text{ex}}}{N_{0i}}}{1 + \frac{N(\text{He}_2^+)}{N_{0i}}} \right\} + \frac{1}{W_{\text{Xe}}} (1 - z), \end{aligned} \quad (2.11)$$

$N_{0i}$ 、 $N_{0\text{ex}}$  は荷電粒子によって生成される初期の励起原子数と電離原子数である。 $N(\text{He}_2^+)$  は式(2.6)の Hornbeck-Molnar 過程によって生成される分子イオン数である。式(2.10)と式(2.11)より、 $N_{\text{ex}}/N_i$  と  $\{N_{0\text{ex}} - N(\text{He}_2^+)\}/\{N_{0i} + N(\text{He}_2^+)\}$  は同じである。したがって、ヘリウムの  $N_{\text{ex}}/N_i$  は電離によって生成された初期値から、Hornbeck-Molnar 過程後で値が変化する。ヘリウムとヘリウム・キセノン混合ガスで測定された電離収量には、Hornbeck-Molnar 過程の効果が含まれている。式(2.11)は式(2.8)を変更して、ペニング効果と Hornbeck-Molnar 過程の効果を含めることで得られる。

## 2.6 シンチレーション過程

放射線が希ガス中を通過する際に、希ガス原子を電離・励起し発光する。この発光は(i)励起された希ガス原子による励起発光、(ii)電離された希ガスによる再結合発光の2つに分けるられる。

### (i) 励起発光

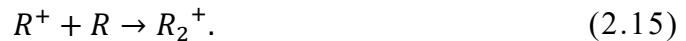
励起発光の発光機構は以下のように説明されている。



$R$ は希ガス原子、 $R^*$ は励起状態の希ガス原子、 $R_2^*$ は希ガス原子の励起二原子分子である。圧力が低い場合は、式(2.12)の励起原子が基底状態に遷移する過程により線スペクトルが測定される。また、圧力が高い場合は、式(2.13)の反応による三体衝突の割合が多くなり、式(2.14)の励起二原子分子の解離による発光が主体となる。図 2.3 に Salamero *et al.*[25]が検討した励起キセノンの動力学的体系の例を示す。キセノンの発光は resonance line の 130nm と 147nm、first continuum の 150nm、second continuum の 173nm の 4 種類がある。実際に測定されたキセノンの発光スペクトル[26]を図 2.4 に示す。圧力の増加に伴って発光が second continuum の成分に移行していることがわかる。

### (ii) 再結合発光

second continuum の起源には電子と電離電子の再結合に起源をもつ発光もある[27]。再結合発光の機構は以下のように説明されている。



$R^+$ は電離希ガス原子、 $R_2^+$ は希ガスの電離二原子分子、 $e_{th}$ は熱化電子、 $R^{**}$ は高い励起状態の希ガス原子、 $R_2^{**}$ は高い励起状態の希ガスの二原子分子である。電離原子が電子との再結合により、励起状態の二原子分子が生成される。したがって、励起原子による発光と起源は変わらないため、発光波長は同じとなる。また、ガス中に電場を印加することで電離原子と電子との再結合を抑制し、励起原子による励起発光のみの測定が行われている[27]。

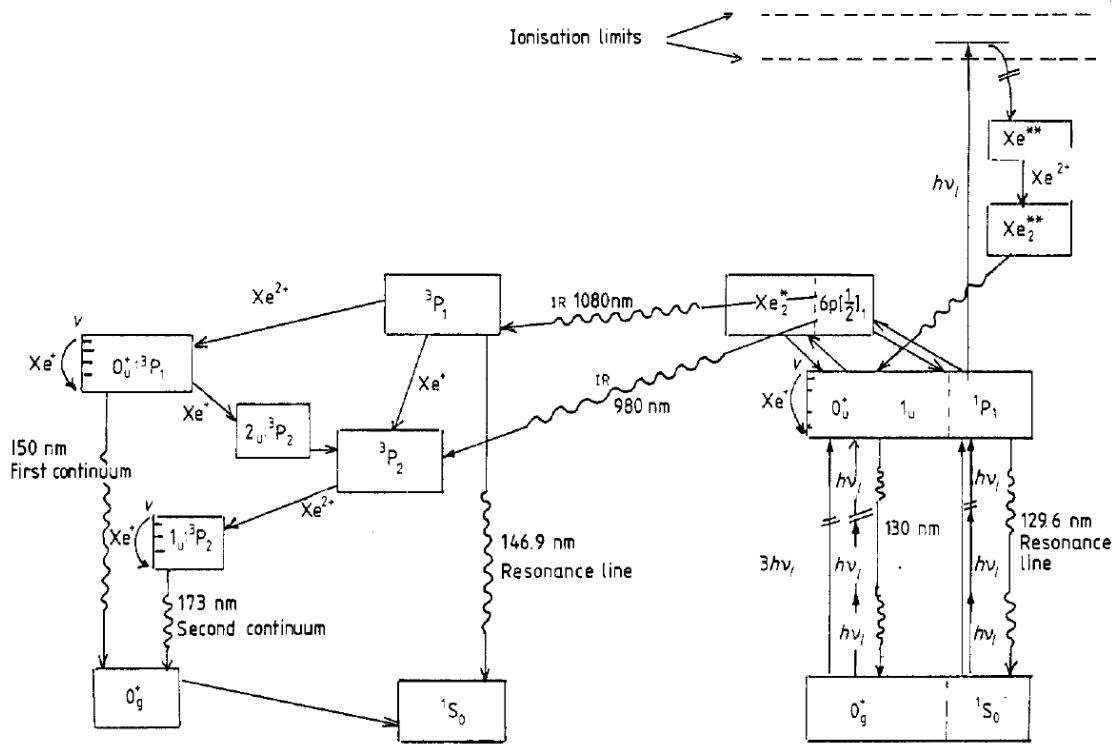


図 2.3 励起キセノンの動力的体系[25]

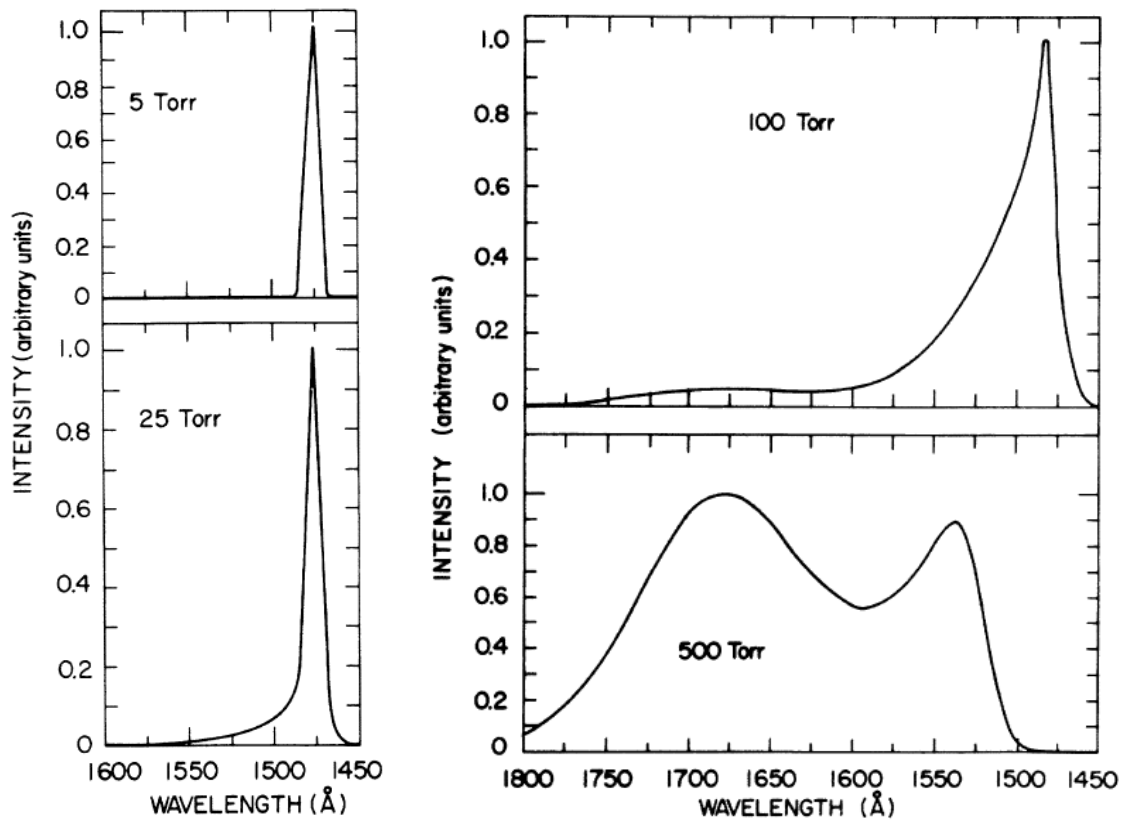


図 2.4 キセノンの発光スペクトル[26]

## 2.7 シンチレーションの希ガス混合効果

希ガス同士の混合によるシンチレーションの変化が研究されてきている。

Takahashi ら[28]はアルゴンに少量のキセノン混合させた場合のシンチレーションの発光スペクトルを報告している(図 2.5)。760 Torr のアルゴンに 10 Torr までのキセノンを加えることでアルゴンの発光はほとんど無くなり、キセノン発光に移行していることが確認されている。アルゴンのみの発光スペクトルは  $\text{Ar}_2^*$  による 127 nm にピークがあるが、キセノンを添加すると  $\text{Xe}^*$  の resonance line の 147 nm が観測されるようになっていく。キセノンの添加量が増えるにしたがって、 $\text{Ar}_2^*$  の 127 nm の発光は減少し、 $\text{Xe}^*$  の 147 nm の発光が増えている。さらにキセノンが増えると、 $\text{Xe}_2^*$  の second continuum の 173 nm の発光が観測されている。この現象は式(2.21)より、アルゴンの発光の元となる励起 2 原子分子とキセノンの衝突によりキセノンの励起原子が生成される。よって式(2.13)よりキセノンの励起 2 原子分子が生成されキセノンが発光するためと説明できる。



また Cheshnovsky ら[29]は 1000 Torr のクリプトンにキセノンを添加した場合の発光スペクトルの変化を報告している(図 2.6)。この場合も前述のアルゴンとキセノンの混合と同様の過程により  $\text{Kr}_2^*$  により  $\text{Xe}^*$  が生成され、それにより  $\text{Xe}_2^*$  が生成されクリプトンからキセノンの発光に移行が起きている。

Saito ら[11]はヘリウムとキセノンの混合の場合のシンチレーションの発光スペクトルの測定をした。キセノンの分圧を  $2.03 \times 10^{-3}$  MPa に固定し、ヘリウム・キセノンの混合ガスの全圧を 1.0 MPa まで変化させ、キセノンの発光強度が全圧の増加に伴って増えていることが確認されている(図 2.7)。

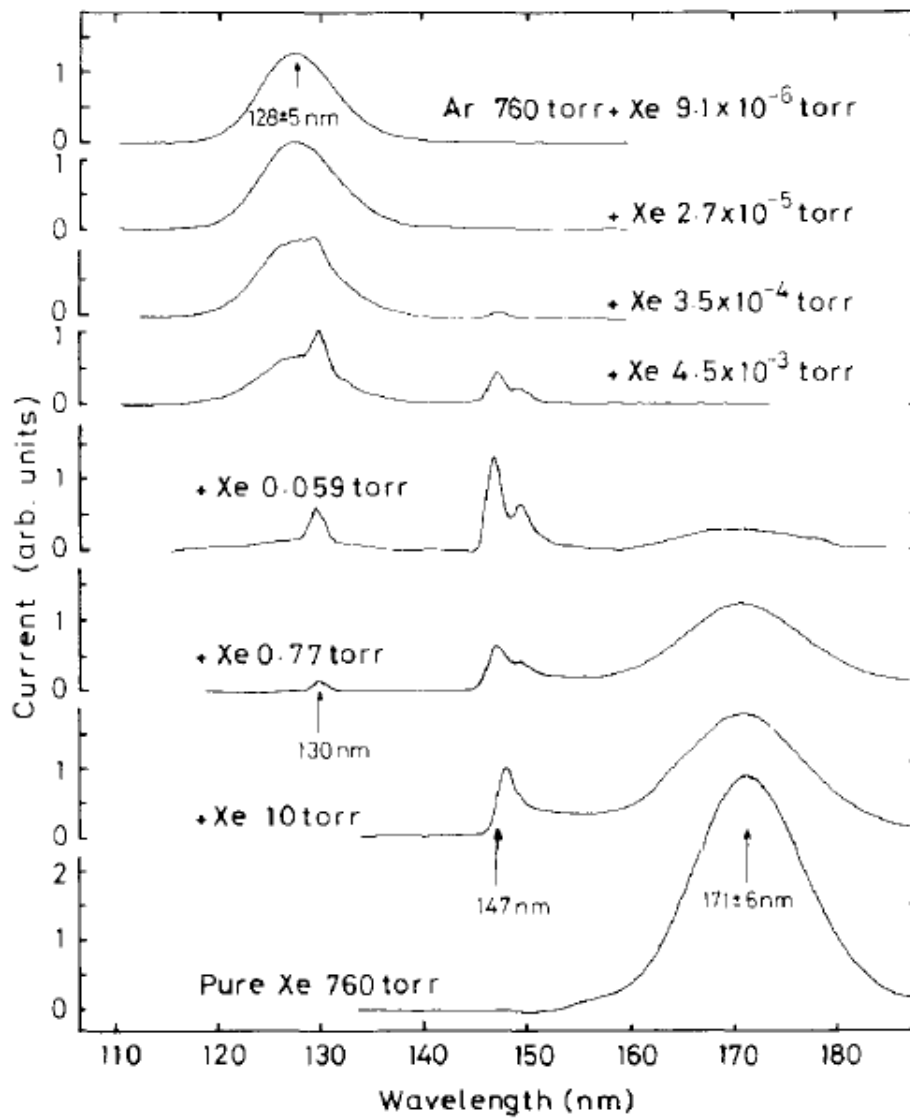


図 2.5 アルゴン・キセノン混合による発光スペクトル[28]

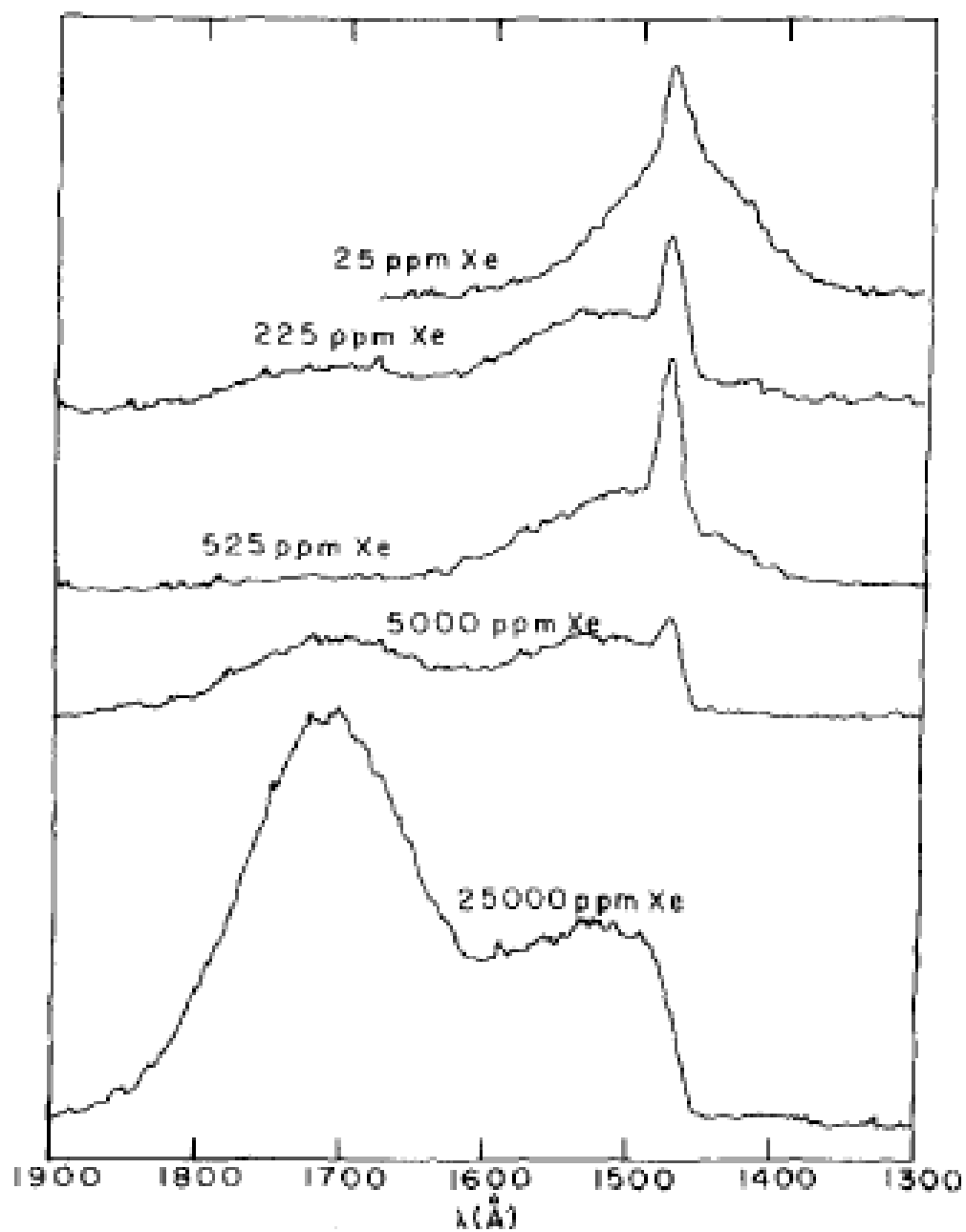


図 2.6 クリプトン・キセノン混合による発光スペクトル[29]



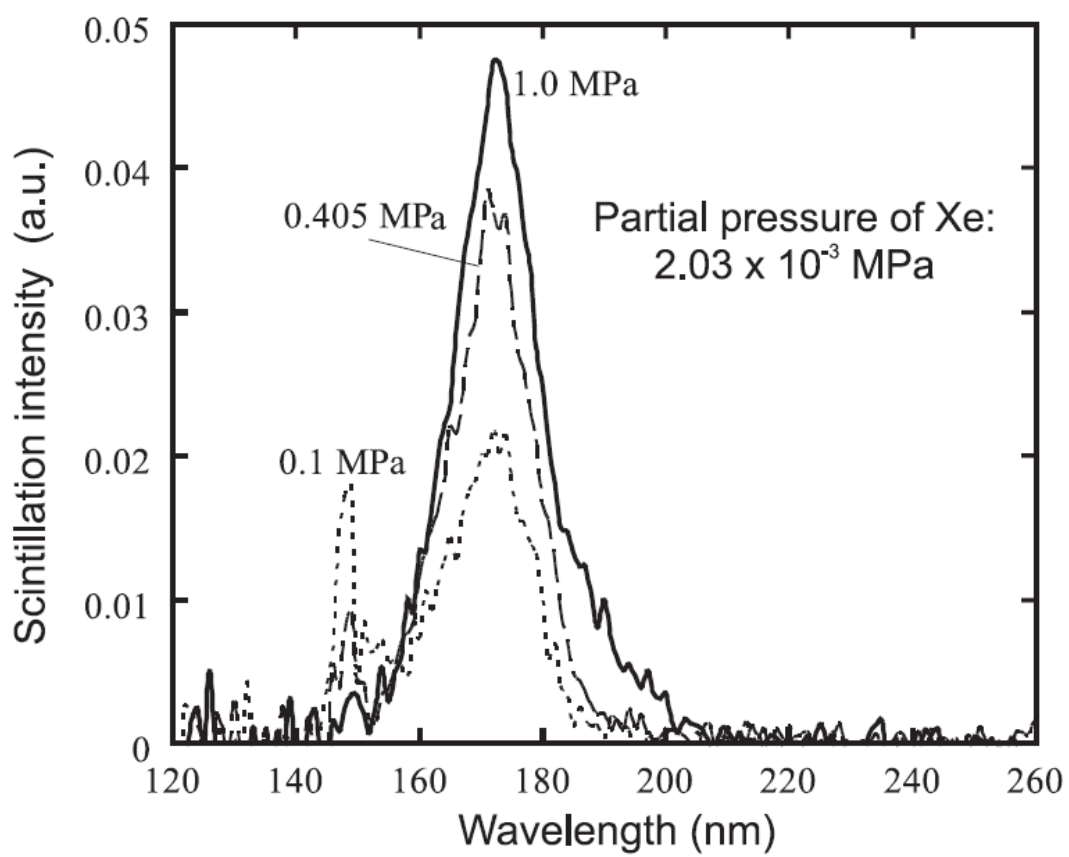


図 2.7 ヘリウム・キセノン混合による発光スペクトル[11]

## 第3章 希ガスの電離とシンチレーション測定

本章では、まずヘリウムの W 値の測定として、純ヘリウムの電離収量測定実験のための実験装置の詳細について述べる。次に、ヘリウムにおける  $N_{\text{ex}}/N_1$  とヘリウム・キセノン混合ガスの電離・シンチレーション収量を測定する実験装置の詳細について述べる。

### 3.1 純ヘリウムの電離収量測定実験

#### 3.1.1 実験装置

ヘリウムガス 40 kPa で満たしたグリッド型電離箱に  $^{241}\text{Am}$  からの  $\alpha$  線を入射させ生成電荷を測定する。グリッド型電離箱は参考文献[30]で使用されたものを使用した。実験装置の概略を図 3.1 に示す。グリッド電離箱は平板のカソードとコレクター、直径 0.1 mm のタングステンのワイヤーを 1 mm 間隔に張ったグリッドから構成されている。装置の全長が 600 mm でグリッド電離箱部分が長さ 250 mm、高さ 40 mm、幅 30 mm である。グリッド電極はコレクターから 7mm、カソードから 33 mm に位置している。線源は  $^{241}\text{Am}$  による 5.49 MeV の  $\alpha$  線で、 $\phi 8 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$  と  $\phi 2 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm}$  のコリメーターで絞り入射させる。グリッド型電離箱の写真を図 3.2 に示す。有感領域での  $\alpha$  線の付与エネルギーは放射線挙動を模擬するモンテカルロ計算コードである PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System[31])を用いて求め、3.01 MeV と決定した (図 3.3)。有感領域に入射する  $\alpha$  線はそれ以前の領域でエネルギーを落とすため 3.18 MeV となっている。よって  $\alpha$  線は有感領域内で完全にエネルギーを失ってはいない状態での測定となっている。

図 3.4 に電離収量測定における回路構成を示す。カソードとコレクターに負電圧を印加し、コレクターで電子を収集し信号を取り出す。コレクターからの信号は電荷有感型前置増幅器 (PA : CP580H, Clear Pulse) に導かれ、主増幅器 (MA : CP403, Clear Pulse) で増幅され、1024-channel pulse height to digital converter (PDC: A3400, Nikiglass Co.Ltd.) によって波高分析される。パルスジェネレーター (Pulse Generator : Precision Pulse Generator, ORTEC) とチャージターミネータから電荷を供給することにより、波高値を電子数に変換することができる。後述

の 3.2 の実験によるアルゴンと窒素ガスの電離収量の測定により、波高値から電子数に較正している。

図 3.5 に配管の模式図、図 3.6 に装置の外観を示す。ヘリウムガスは超高純度 99.9999 %のものを使用している。ガスの純化は直径 2 mm、厚さ 1 mm のペレット (図 3.7) 5000 個で構成された Zr-V-Fe ゲッター (St707, SAES Getters)による純化装置とニッケル化合物によるガス精製器 (MC200-902V, SAES Pure Gas) (図 3.8) によって行った。ガス精製器の仕様を表 3.1、表 3.2[32]に示す。純化装置は約 450°Cで活性化させ、測定中は 250 °Cに保つ。ガスを強制的に循環させるためにメタルベローズポンプ (MB-118, IBS)を用いている。チェンバーにガスを導入する前の真空到達度は $3.0 \times 10^{-5}$  Pa 以下である。図 3.9 に真空中での残留ガス成分を質量分析計 (835 VQM, Granville-Phillips)で測定した結果を示す。

図 3.9 より残留ガス成分はそれぞれ質量電荷比  $m/z=1$  ( $H^+$ ), 2 ( $H_2^+$ ), 4 ( $He^+$ ), 17 ( $OH^+$ ), 18 ( $H_2O^+$ ) であり、 $H_2O$ が最も多い成分で分圧  $2.4 \times 10^{-5}Pa$  となっている。チェンバーを封じ切り後の残留ガスの増加を測定した結果においても、増加するガスとして $H_2O$ が最も多い状態になっている (図 3.10)。よって電離収量測定中に不純物の評価の指標とするため、ガス中の $H_2O$ 濃度を露点計 (PURA 高純度ガス用微量水分トランスミッター, MICHELL) (図 3.11) により測定する。仕様を表 3.3[33]に示す。この測定器では露点温度 [ $^{\circ}Cdp$ ]が測定される。そこで測定される露点温度を飽和水蒸気圧 [Pa]に変換するために、次の SON-NTAG の式[34]を用いる。

$$\ln(y) = -6024.5282T^{-1} + 29.32707 + 1.0613868 \times 10^{-2}T + 1.673952 \times 10^{-5}T^2 + 2.433502\ln(T) \quad (3.1)$$

ここで、 $y$  が飽和水蒸気圧 [Pa]、 $T$  が露点温度 (絶対温度) [T]である。

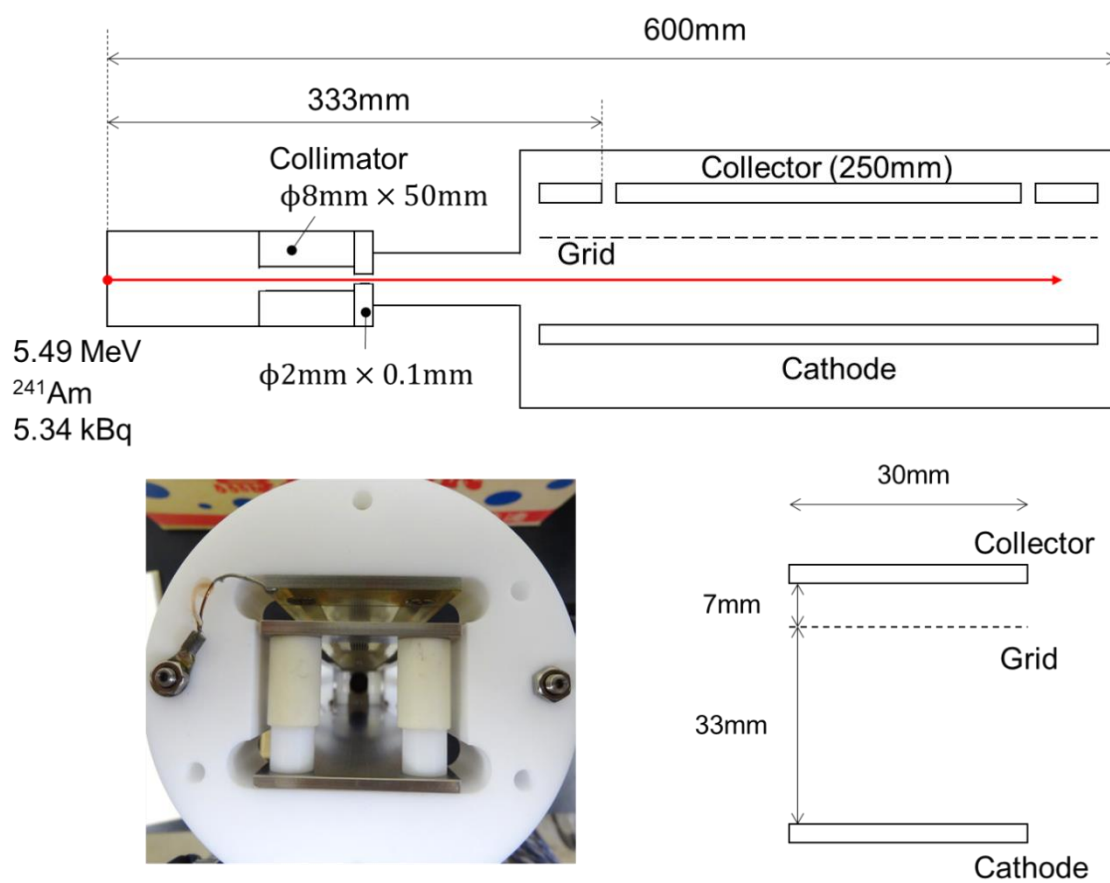


図 3.1 電離収量測定実験装置の概略図



図 3.2 グリッド型電離箱の外観写真

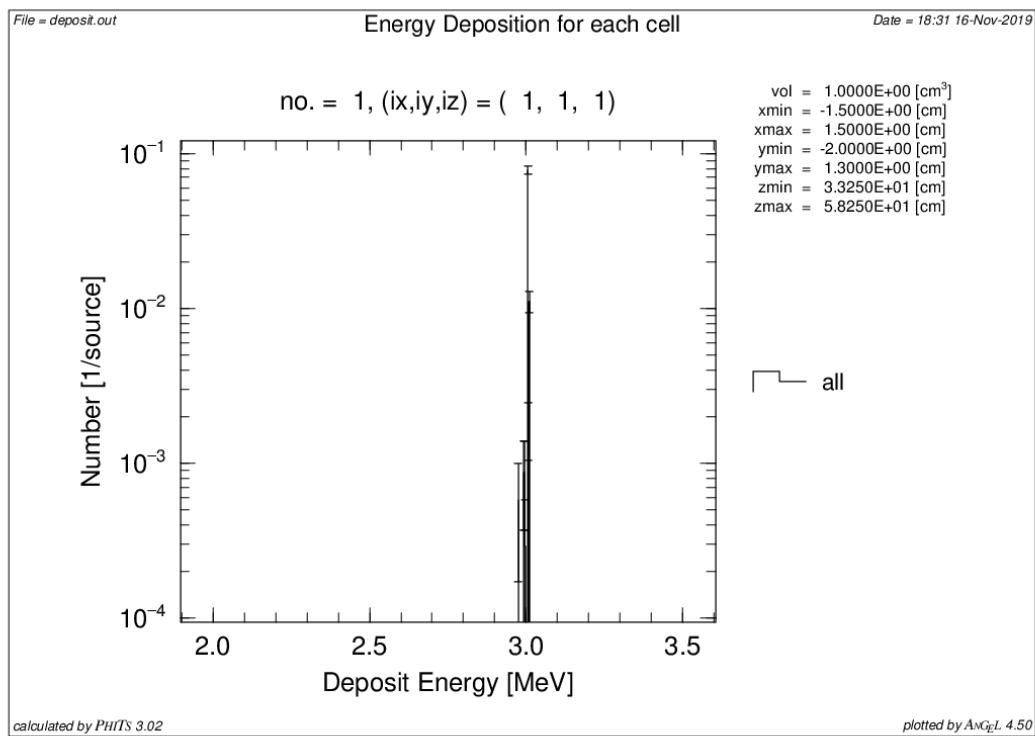


図 3.3 PHITS コードより求めた有感領域への付与エネルギーのスペクトル

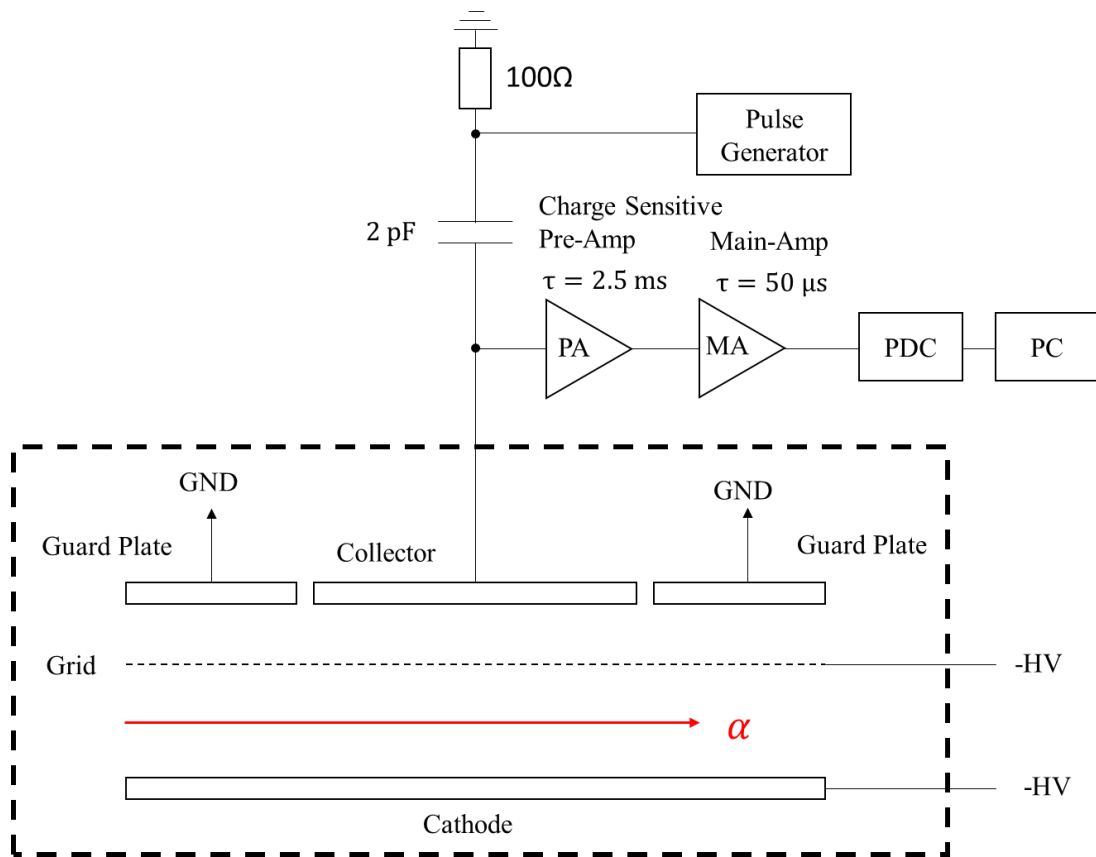


図 3.4 電離収量測定における回路構成

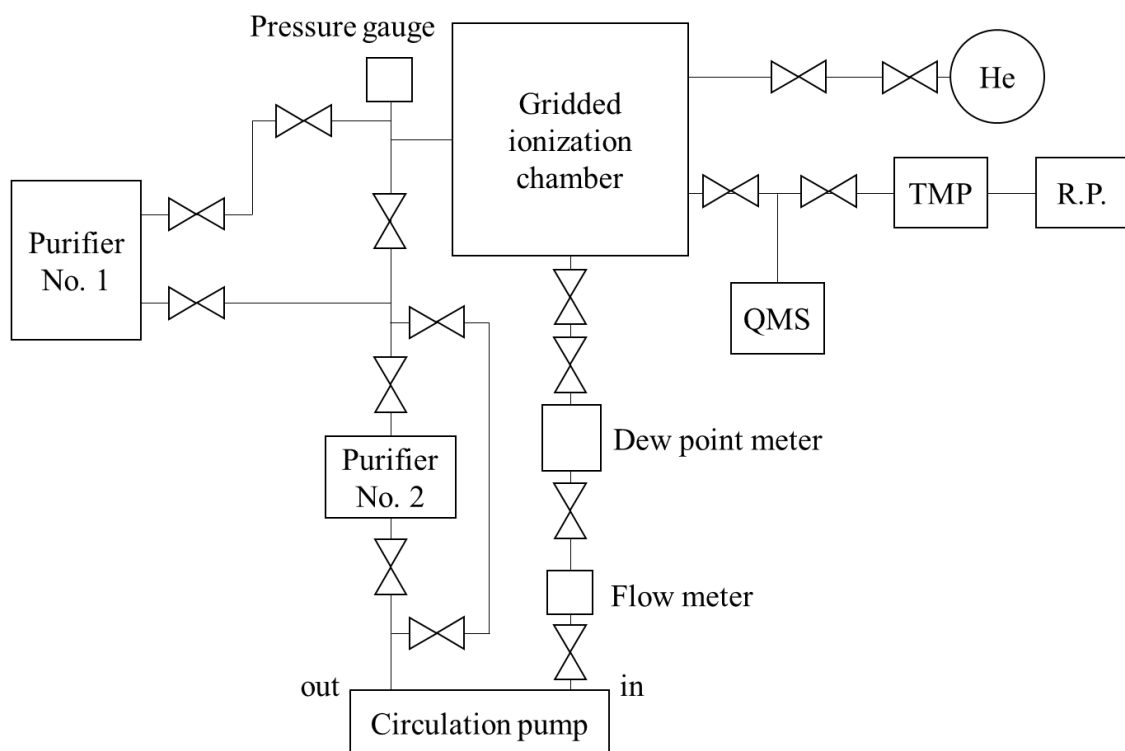


図 3.5 実験装置の配管模式図

R.P. : ロータリーポンプ、TMP : ターボ分子ポンプ、QMS : 四重極質量分析計 (835 VQM, Granville-Phillips)、Purifier No. 1 : 純化装置 (St707, SAES Getters)、Purifier No.2 : ガス精製器 (MC200-902V, SAES Pure Gas)、Circulation pump : メタルベローズポンプ (MB-118, IBS)



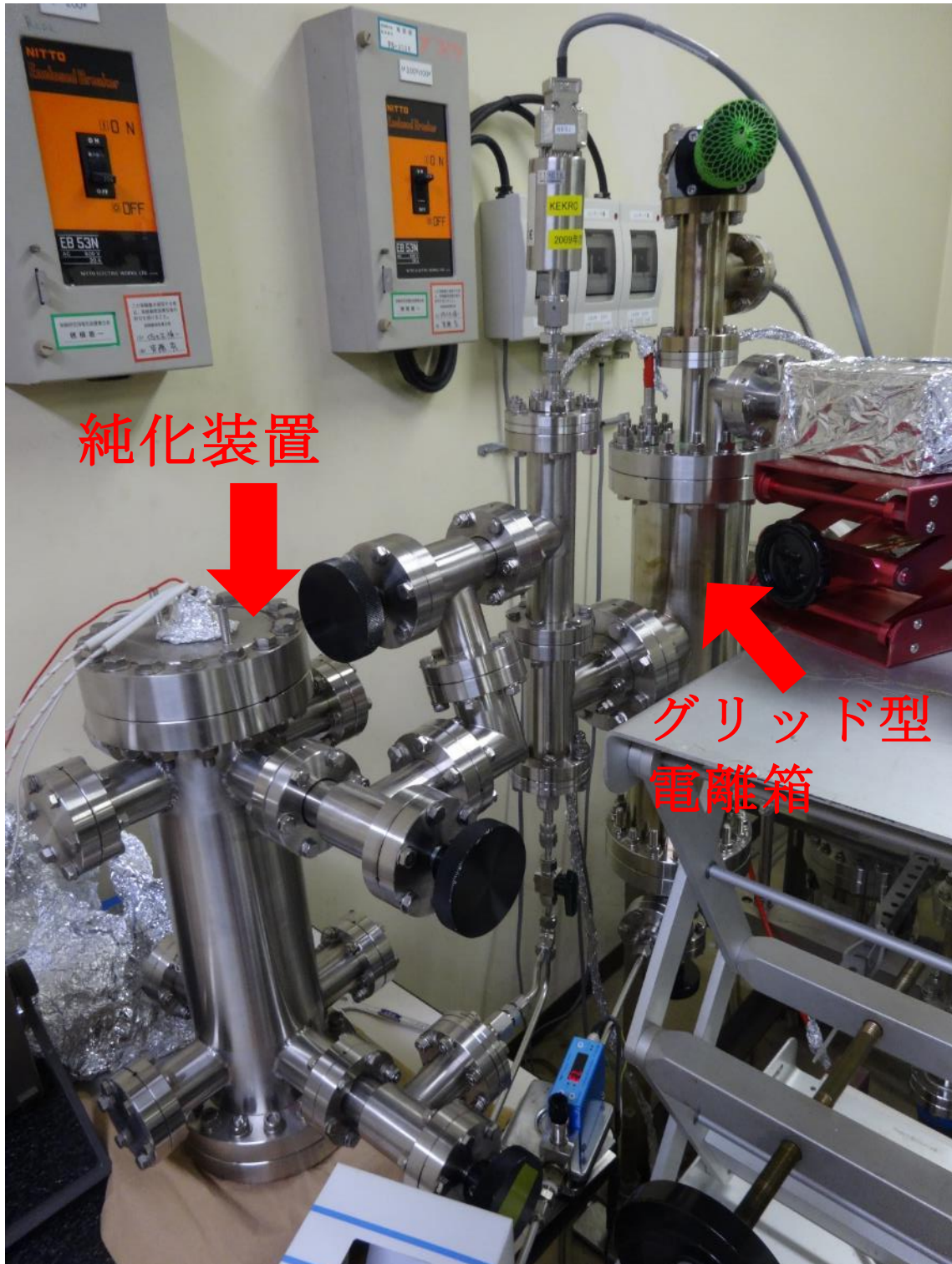


図 3.6 電離収量測定実験装置の外観写真



図 3.7 Zr-V-Fe ゲッター (St707, SAES Getters)の写真



図 3.8 ガス精製器 (MC200-902V, SAES Pure Gas)の写真

表 3.1 ガス精製器 MC200-902V 機械仕様[32]

最大定格流量	50 slpm
定格流量	5 slpm
材質	本体 316L ステンレス製
フィルター	メタルフィルター・ 0.003 $\mu\text{m}$
最大作動圧力	250 psig

表 3.2 ガス精製器 MC200-902V 精製および除去性能[32]

精製対象ガス	除去不純物	出口 不純物濃度
	H <sub>2</sub> O, O <sub>2</sub> , CO, CO <sub>2</sub>	< 100pptV
Ar, He, Kr, N <sub>2</sub> , Ne, Xe	揮発性有機酸、有機物、耐火性化合物	< 1pptV
	揮発性塩基	< 5pptV

表 3.3 露点計 (PURA 高純度ガス用微量水分トランスミッター, MICHELL)の仕様[33]

センサータイプ	ミッシェル社 セラミックインピーダンスセンサー
測定範囲	-120~ -40°Cdp (-110~ -40°Cdpにて実露点校正を実施)
動作圧力	最小 $10^{-7}$ Pa 最大 24MPa
動作温度	-40~ +60°C
流量	1~5 NL min <sup>-1</sup> (1~5 NL/min 推奨)

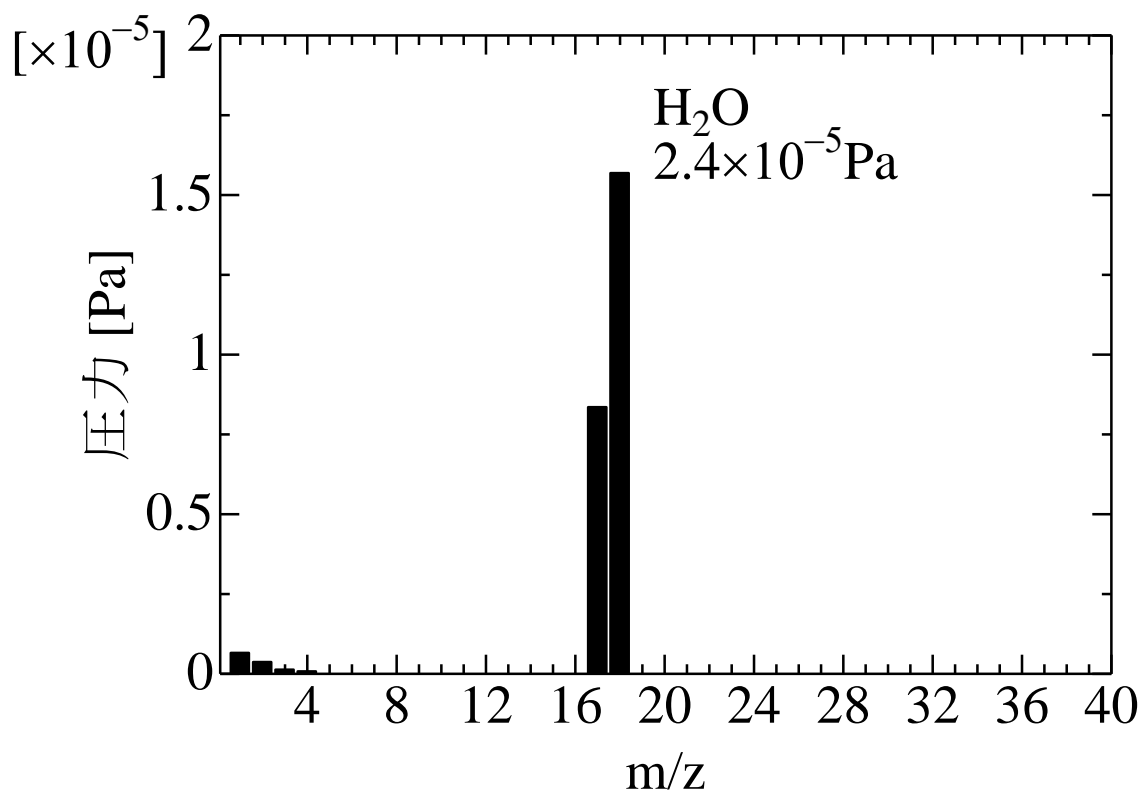


図 3.9 真空中のチェンバー内残留ガス成分 (m:イオンの質量, z:電荷数)

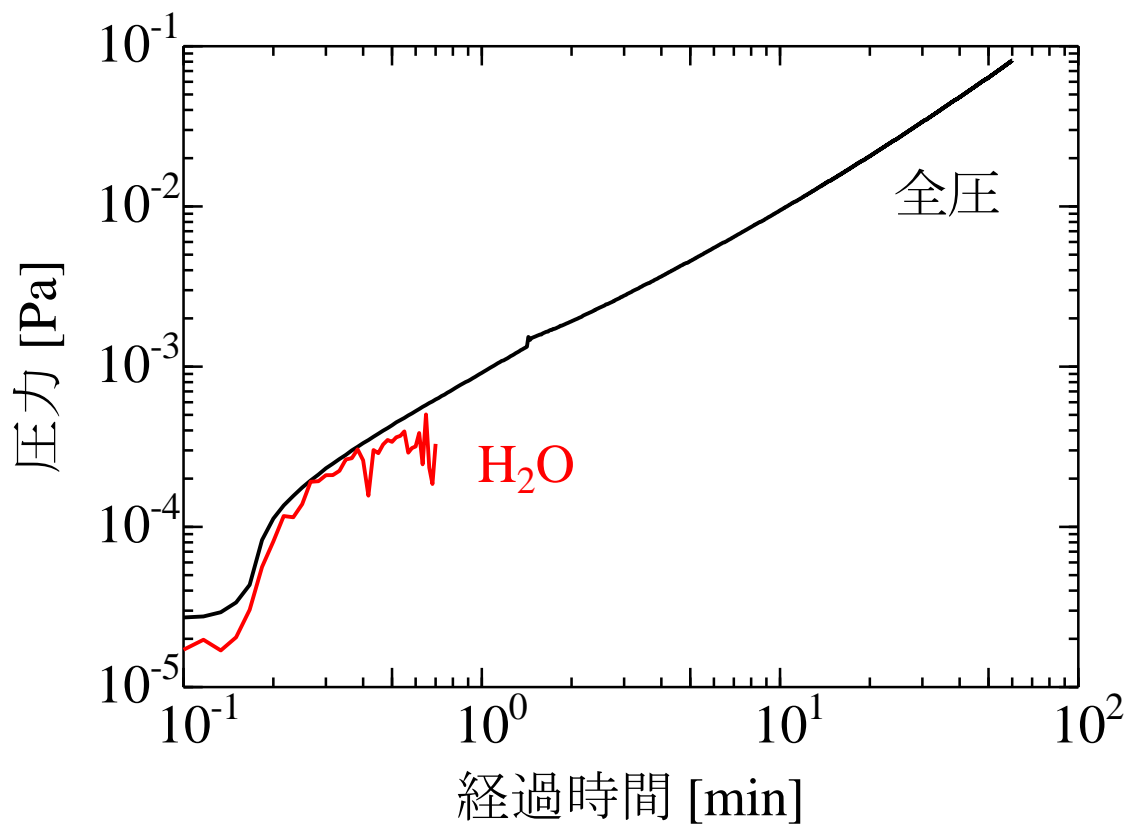


図 3.10 真空中でのチェンバー内残留ガスのビルドアップ





図 3.11 露点計 (PURA 高純度ガス用微量水分トランスミッター, MICHELL)の写真



### 3.1.2 電離電子の飽和特性

グリッド型電離箱はカソード・グリッド間の電場強度  $E_{kg}$  [V/cm] とグリッド・コレクター間の電場強度  $E_{gc}$  [V/cm] の電場強度比  $Z$  とその電場強度を適切に設定することで電離電子がグリッドで捕獲されることなく、かつすべての電子を収集することができる。グリッドで電子が捕獲されない限界の電場比  $Z$  が以下の式で与えられている[35]。

$$Z = \frac{E_{gc}}{E_{kg}} = \frac{1 + \rho}{1 - \rho} \quad (3.2)$$
$$\rho = \frac{2\pi r}{d}$$

ここで、 $r$  はグリッド線の半径、 $d$  はグリッド線の間隔である。本実験装置での電場強度比  $Z$  の限界値は 1.92 となる。

ヘリウム 40 kPa におけるコレクターからの波高分布を図 3.12 に示す。ガウス関数によるフィッティングによってピークチャンネルと半値幅が得られる。その結果、エネルギー分解能は 16.8% となった。以下フィッティングは Gnuplot[36] を用いて行った。

電離電子の飽和特性としてまず、グリッド・コレクター間の電場強度を一定にし、カソード・グリッド間の電場強度を変えることで電場強度比  $Z$  を変え、波高値の変化を測定した。結果を図 3.13 に示す。 $Z$  を 1.2 から 5.4 まで変化させ飽和特性を確認した。式(3.2)より求めた  $Z$  の限界値 1.92 以上の場合において、波高値が飽和することが確認できた。次に、電場強度比  $Z$  が 3, 4, 5 の場合でカソード・グリッド間の換算電場強度  $E_{kg}/N$  を 0.3 から  $0.6 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$  に変化させ飽和特性を確認した。 $N$  はガスの数密度 [ $1/\text{cm}^3$ ] を表している。測定結果を図 3.14 に示す。換算電場強度  $E_{kg}/N$  を強くしてしても波高値は変化しなく、電場強度比  $Z$  を変えた場合も飽和していることから、完全に電子を収集できていることを確認した。これにより、以下の実験ではカソード・グリッド間の換算電場強度  $E_{kg}/N = 0.5 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$ 、電場強度比  $Z=5$  の条件で行った。

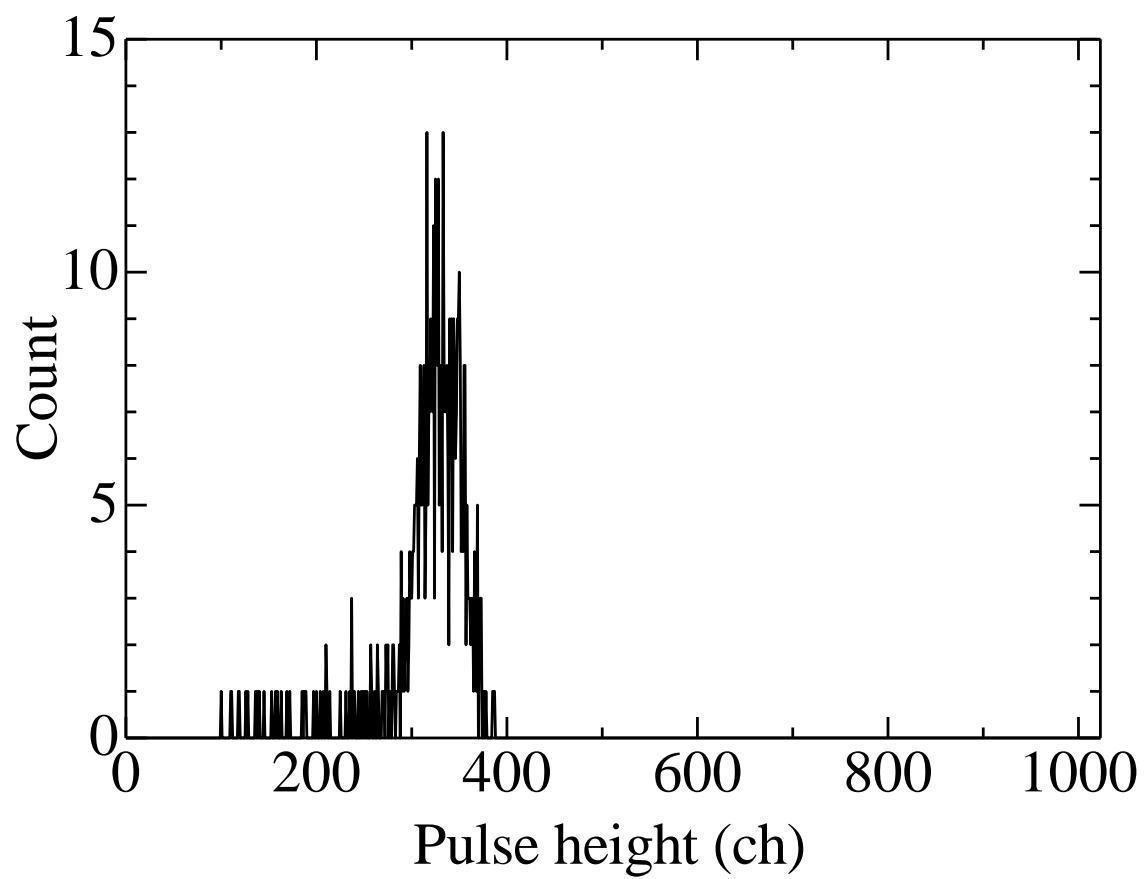


図 3.12 ヘリウム 40kPa でのコレクターに収集された電離電子の波高分布

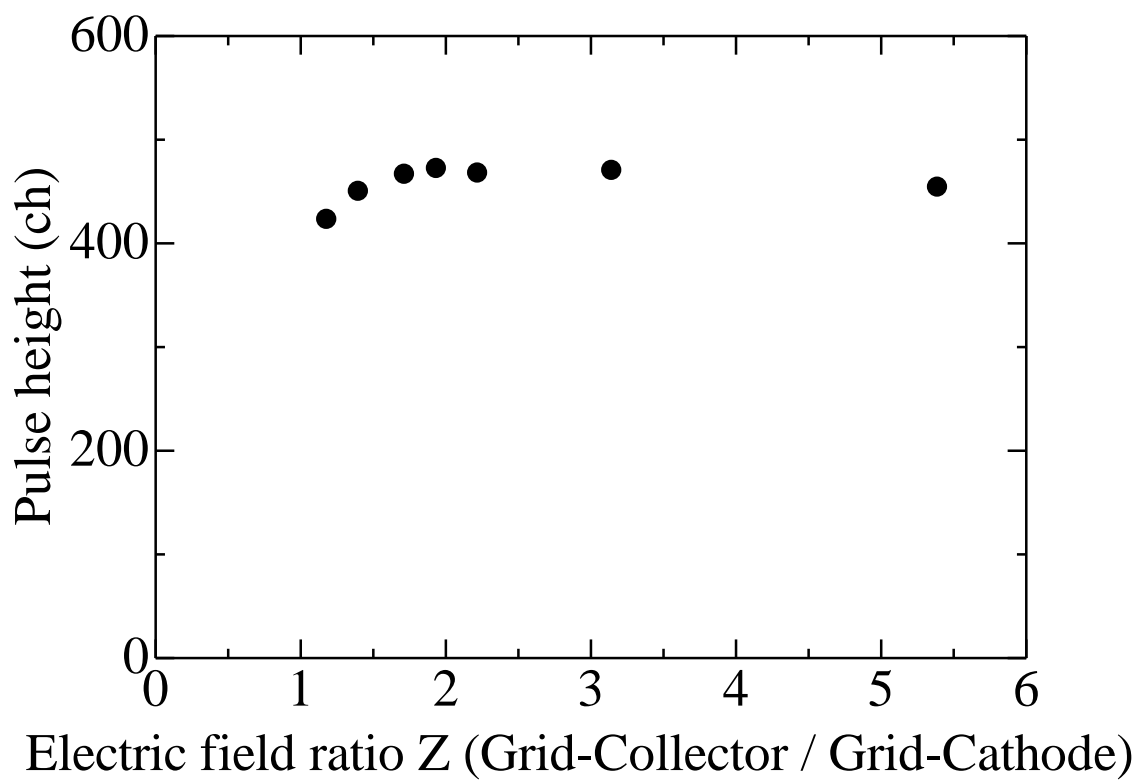


図 3.13 カソード・グリッド間の電場強度を変えて得た飽和特性

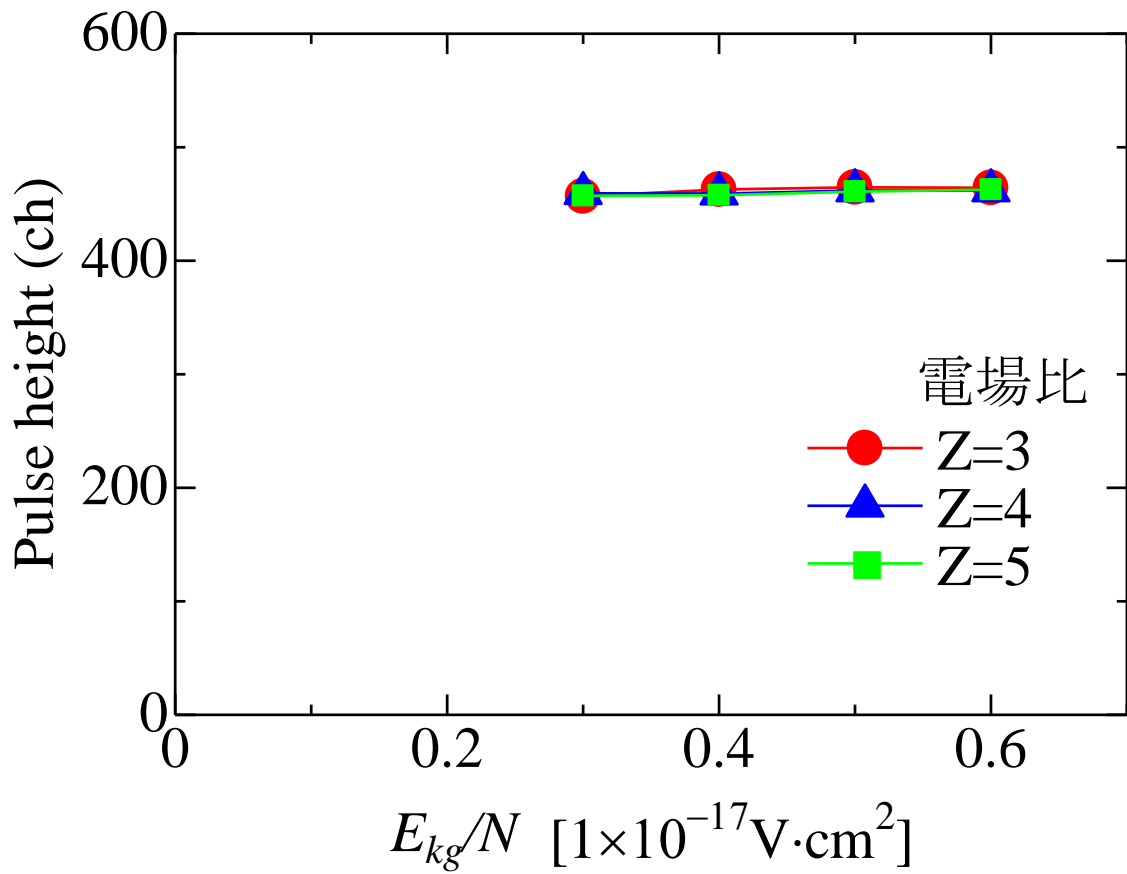


図 3.14 カソード・グリッド間とグリッド・コレクター間の電場比を変えた得た飽和特性

## 3.2 ヘリウム・キセノン混合ガスの電離電子・シンチレーション

### 同時測定実験

#### 3.2.1 実験装置

実験装置は参考文献[11]と同じものを使用した。電離収量はグリッド型電離箱を用いて測定した。図 3.15 に装置の概略を示す。電極は円板のカソードと直径 0.1 mm のタングステンのワイヤーを 1 mm 間隔に張られたグリッドとコレクターから構成されている。このワイヤー状の構造によって  $\text{MgF}_2$  の窓を通してシンチレーション光を PMT にて測定することができる。グリッドはコレクターから 5 mm、カソードから 35 mm の距離に位置している。電極の直径は 140 mm である。線源は  $^{241}\text{Am}$  を直径 2 mm のステンレス製ねじの上面に電着したものを、カソードの中央に取り付けられている。この装置を用いた実験では、 $\alpha$ 線の飛程がカソード・グリッド間の 35 mm 以内に収まるように封入するガスの圧力を調整する。図 3.16 にグリッド型電離箱の写真、図 3.17 に実験装置全体の外観写真を示す。

図 3.18 に実験装置の配管系を示す。実験装置は電離電子とシンチレーションを測定するチェンバー、真空排気系、ガス導入系、純化装置から構成されている。真空排気系はロータリーポンプ (R.P. : 2015SD, Alcatel)、ターボ分子ポンプ (TMP : STP-451, Seiko Seiki Co.)、電離真空計 (I.G. : M-922HG, Anelva)、四重極質量分析計 (QMS : 835 Vacuum Quality Monitor System, Granville-Phillips)、純化装置 (Purifier: Zr-V-Fe ゲッター, St707, SAES Getters) から成る。図 3.19 に純化装置と測定チェンバーを含む配管の写真を示す。純化装置の内部は 5000 個の直径 2 mm、厚さ 1 mm のペレット状の Zr-Ba-Fe のゲッター合金から構成されている。ゲッター合金を加熱することで  $\text{H}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2$  などの分子性ガスが吸着される。図 3.20 にゲッター合金の吸着特性[37]を示す。合金の加熱によって分子性ガスの吸着量と速度が増加することがわかる。純化装置の中心部のヒーティングロッドによってゲッター合金を加熱することでガスが純化される。グリッド型電離箱部と純化装置の間を熱による自然対流でガスを循環させ純化する。チェンバーにガスを封入する前に、チェンバー内は  $5.0 \times 10^{-5}$  Pa 以下まで排気する。使用するガスの純度はヘリウム・アルゴン・窒素が 99.9999%、キセノンが 99.9995% である。ヘリウム・キセノン混合ガスでは全圧を 657 kPa と

1.0 MPa でキセノンの分圧を 10 kPa から 100 kPa まで変化させ、混合比を 1.0 %、1.5 %、2.0 %、3.0 %、10 %、15 %とした。純ヘリウムは 1.0 MPa、純キセノンは 100 kPa、アルゴンは 300 kPa、窒素は 600 kPa の条件で実験を行った。なお、Zr-Ba-Fe のゲッター合金は窒素を吸着するため、窒素の測定では純化装置を使用しない。

電離電子による信号はコレクターから信号を取り出す。シンチレーションの測定は光電子増倍管 (PMT, R6836, Hamamatsu Photonics) を用いた。この光電子増倍管は光電面が Cs-Te、窓材が MgF<sub>2</sub> であり、110 nm から 300 nm に感度がある。コレクターからの電離電子と光電子増倍管の両方の信号は電荷有感型プリアンプ (PA: CP580P, Clear Pulse) と、メインアンプ (MA: CP403, Clear Pulse) を通す。電荷有感型プリアンプの時定数は 2.5 ms で、メインアンプの時定数は電離電子とシンチレーションの測定でそれぞれ 50  $\mu$ s と 30  $\mu$ s である。メインアンプからの信号は 1024-channel pulse height to digital converter (PDC: A3400, Nikiglass Co.Ltd.) によって波高分析する。波高値から電子数への変換はチャージターミネータとパルスジェネレーター (Ortec 419) を用いている。この組み合わせは窒素ガスとアルゴンガスの電離収量測定によって校正している。

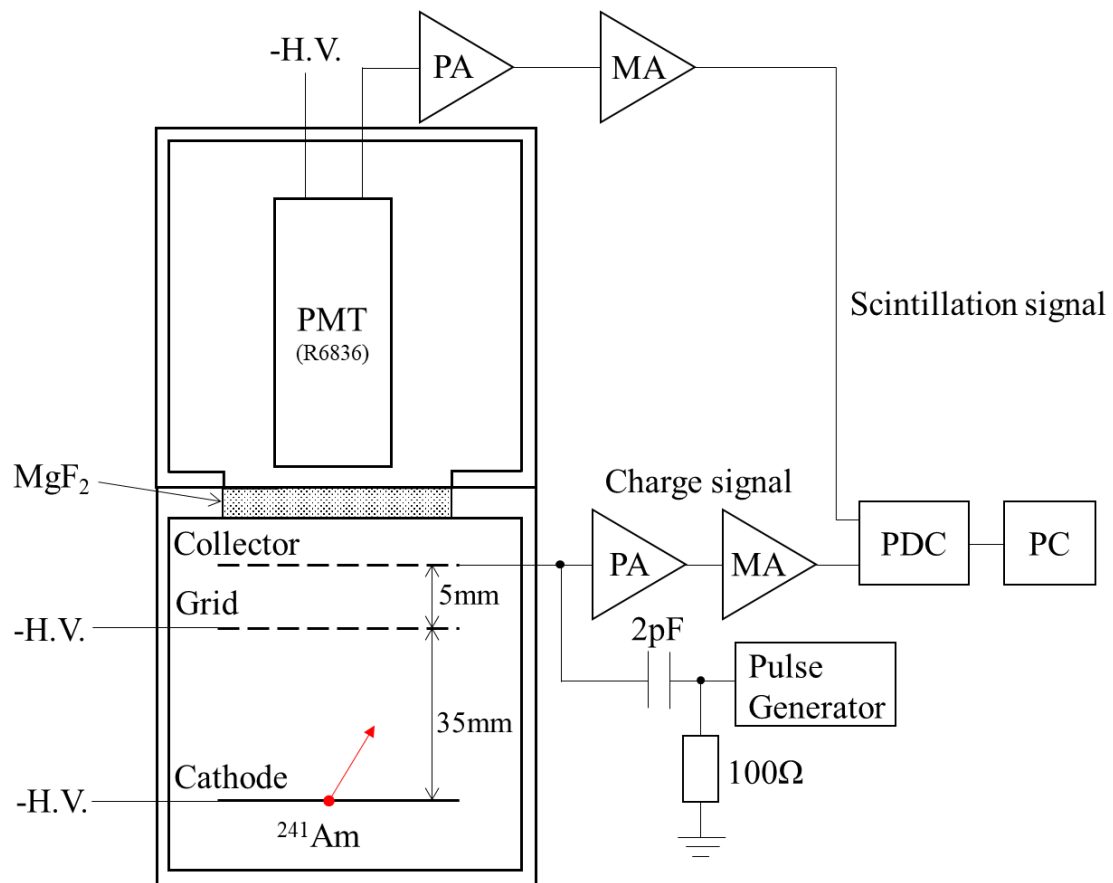


図 3.15 電離電子・シンチレーション同時測定実験装置の概略図



図 3.16 電離電子・シンチレーション同時測定実験装置内部のグリッド型電離箱の写真



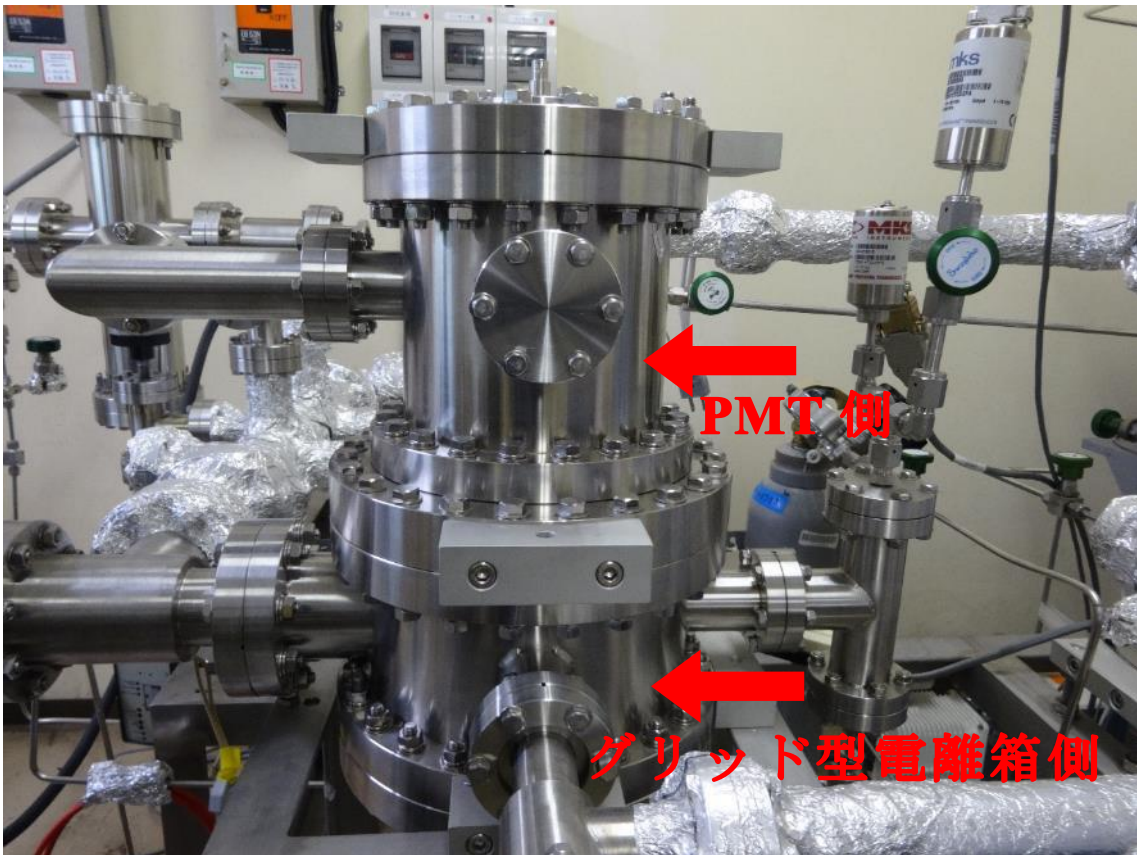


図 3.17 電離電子・シンチレーション同時測定実験の外観写真

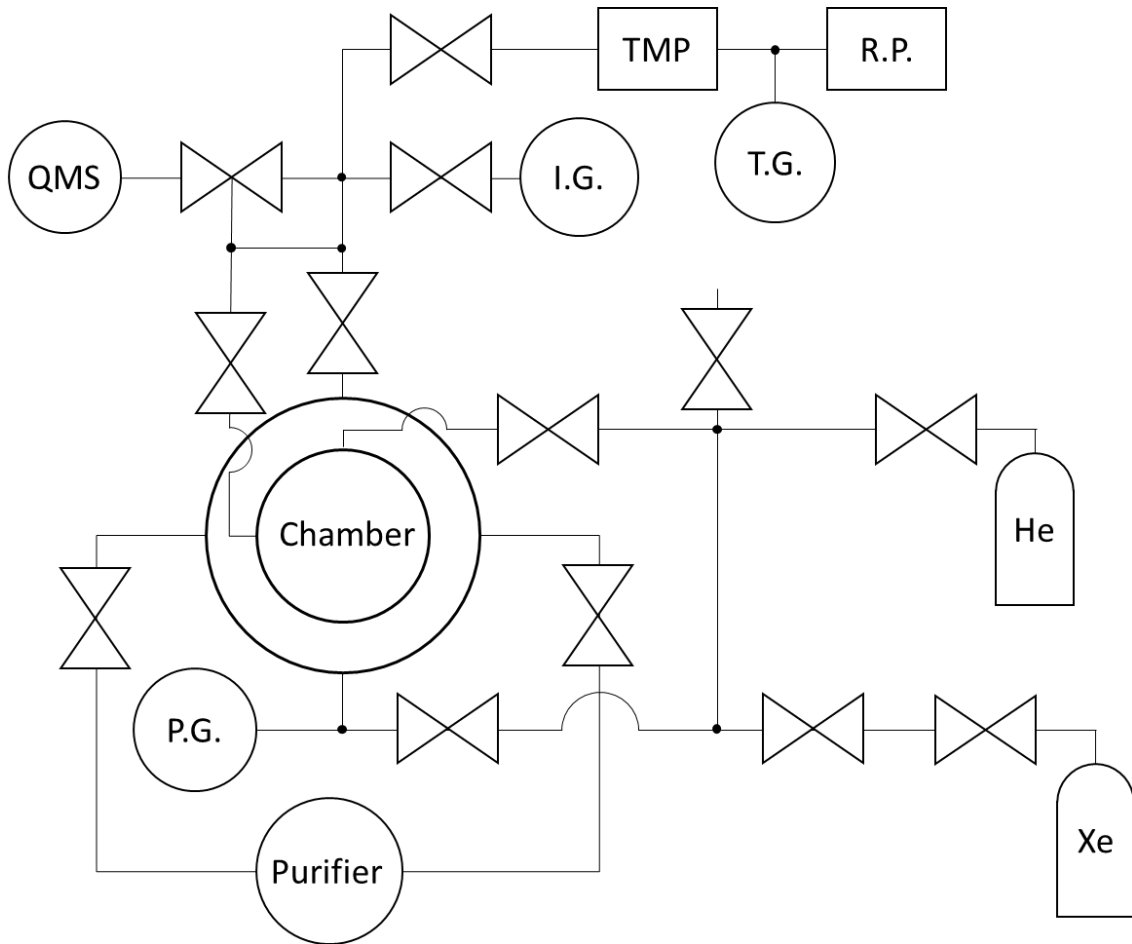


図 3.18 実験装置の配管図

R.P.: ロータリーポンプ、TMP: ターボ分子ポンプ、T.G.: 熱電対真空計、I.G.: 電離真空計、QMS: 四重極質量分析計、P.G.: 圧力計、Purifier: 純化装置

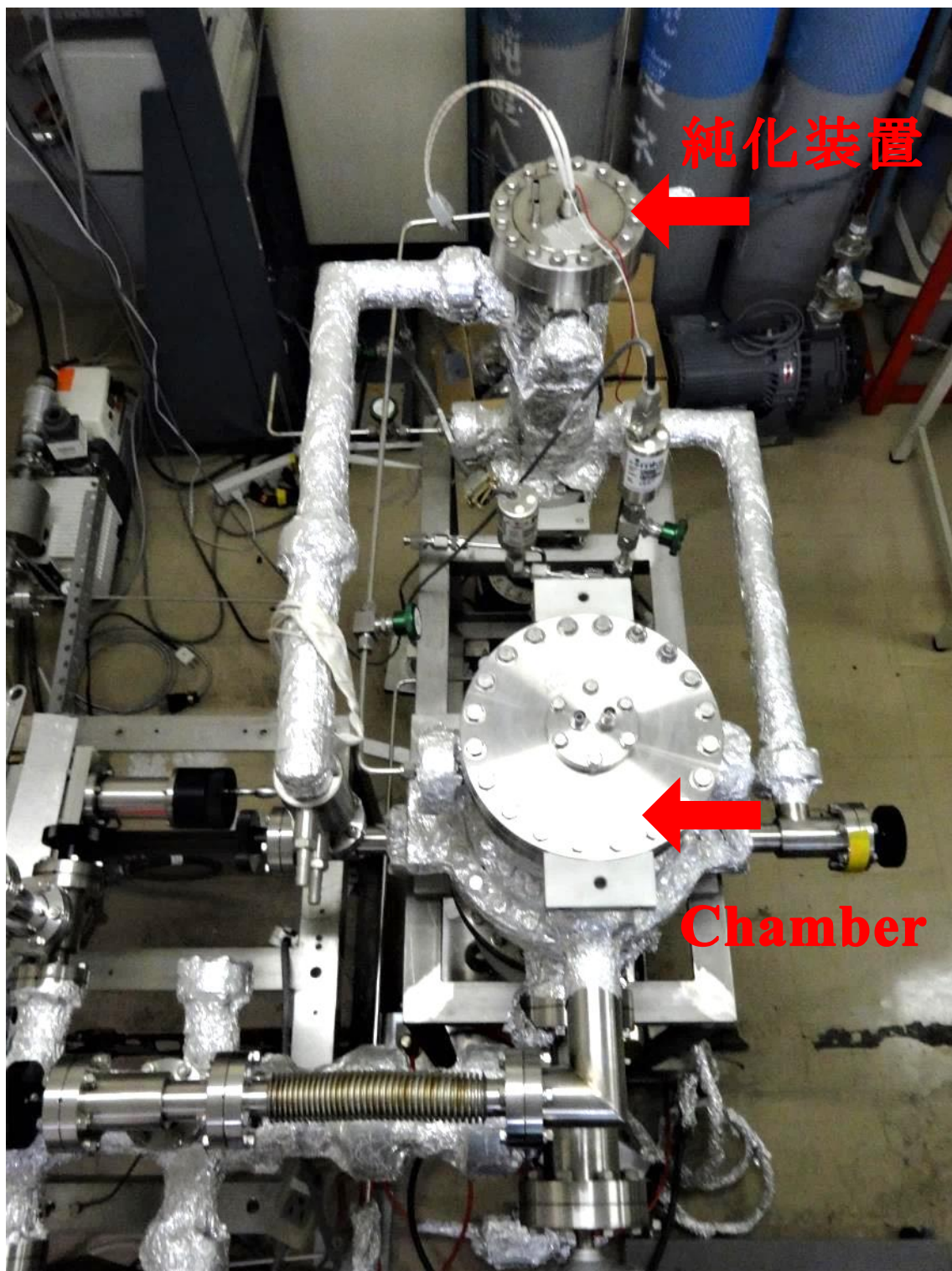


図 3.19 実験装置の配管の写真



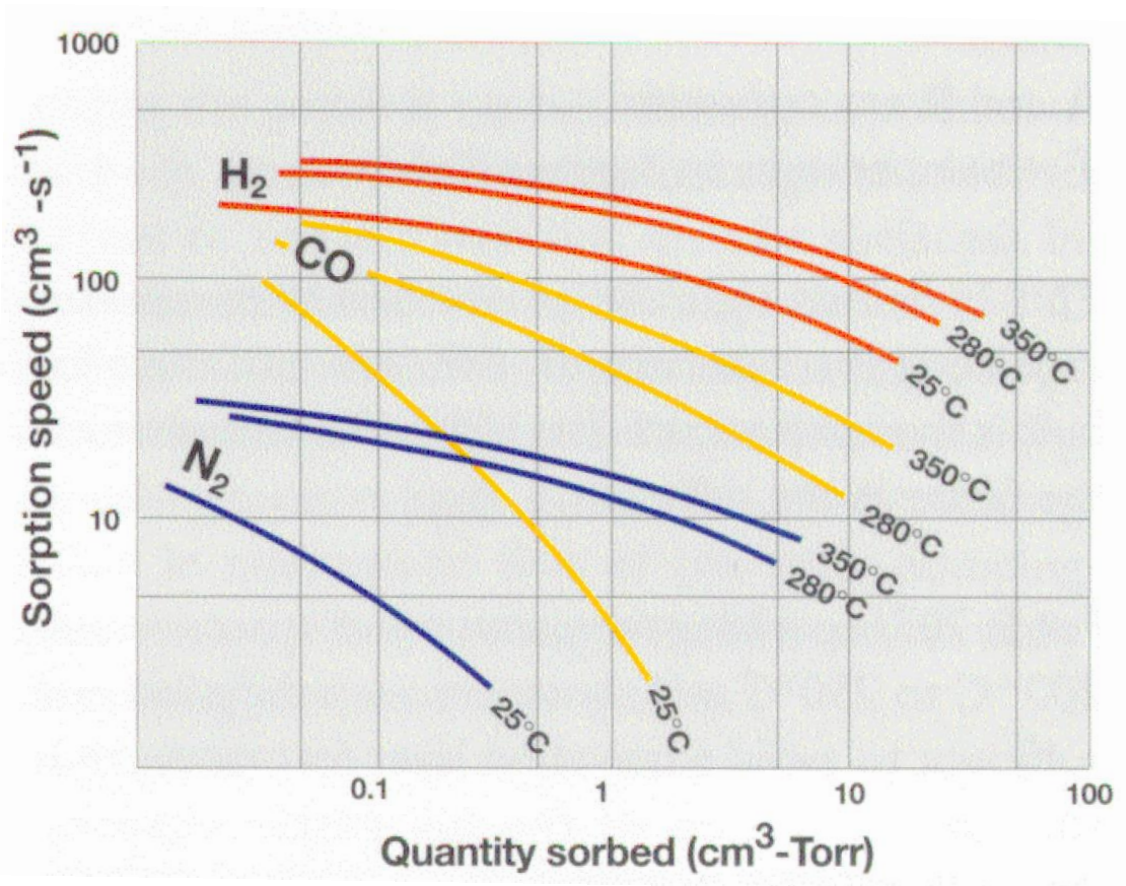


図 3.20 様々な温度での H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> に対するゲッター合金 St707 の吸着特性[37]

### 3.2.2 電離電子・シンチレーションの飽和曲線

ヘリウム 980 kPa、キセノン 20 kPa の混合ガスにおいて、電場強度を変化させ収集電子数とシンチレーション強度を測定した。結果を図 3.21 に示す。縦軸が電子数とシンチレーション強度で、横軸がカソード・グリッド間の換算電場強度  $E_{kg}/N$  [ $1 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$ ] である。 $E_{kg}$  がカソード・グリッド間の電場 [V/cm] で  $N$  がガスの数密度 [ $1/\text{cm}^3$ ] を表している。カソード・グリッド間とグリッド・コレクター間の電場比を 5 に設定して、飽和特性を測定した。シンチレーション強度は電場を印加していない状態が最大となり、電場を印加すると減少傾向後に一定値をとる。この減少は電場により電子とイオンの再結合が抑制されているためであり、これにより再結合発光の寄与がなくなり一定値をとっている。よって励起発光のみを測定できていると言える。また、電離電子数は電場強度を強くすることで増加している。この増加は電子が再結合を起こさずに収集されるためである。電離電子も電場強度の増加に伴い飽和することを確認した。

また、図 3.22 にヘリウム、キセノン、2%のキセノン混合、アルゴン、窒素の各ガスに対する電離電子の電場依存性の測定結果を示す。それぞれのガスにおいても収集される電離電子が飽和していることを実験的に確認した。

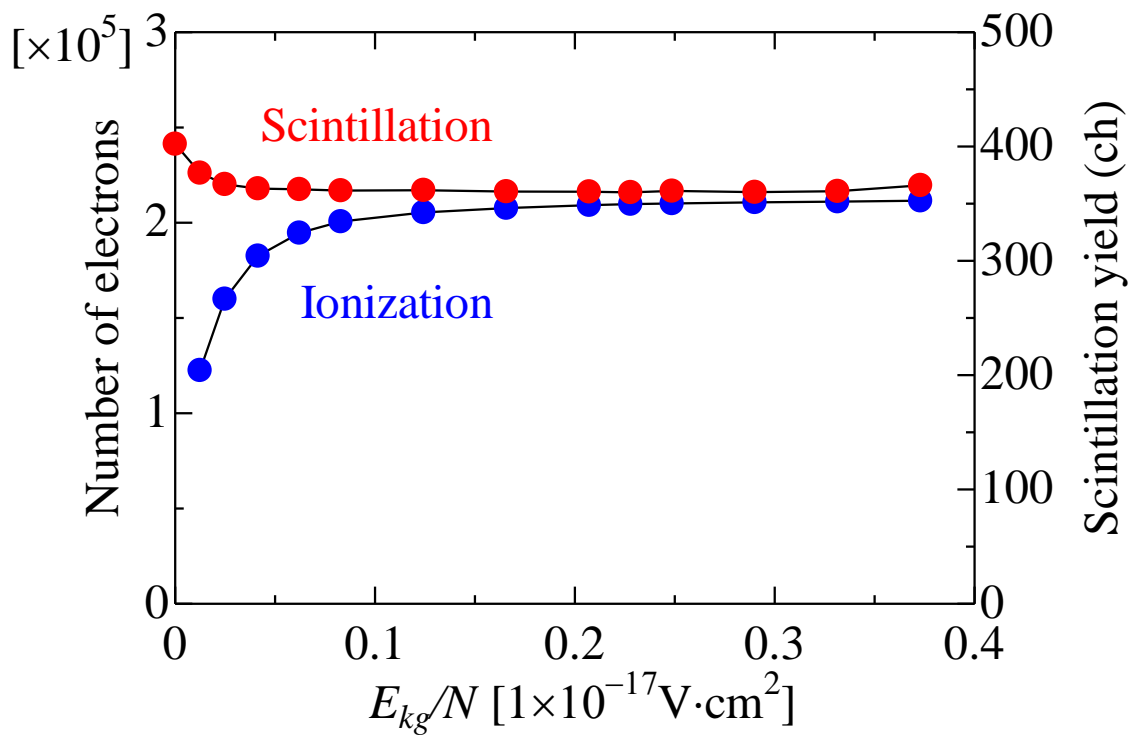


図 3.21 ヘリウム 980 kPa、キセノン 20 kPa における収集電離電子・シンチレーションの飽和特性

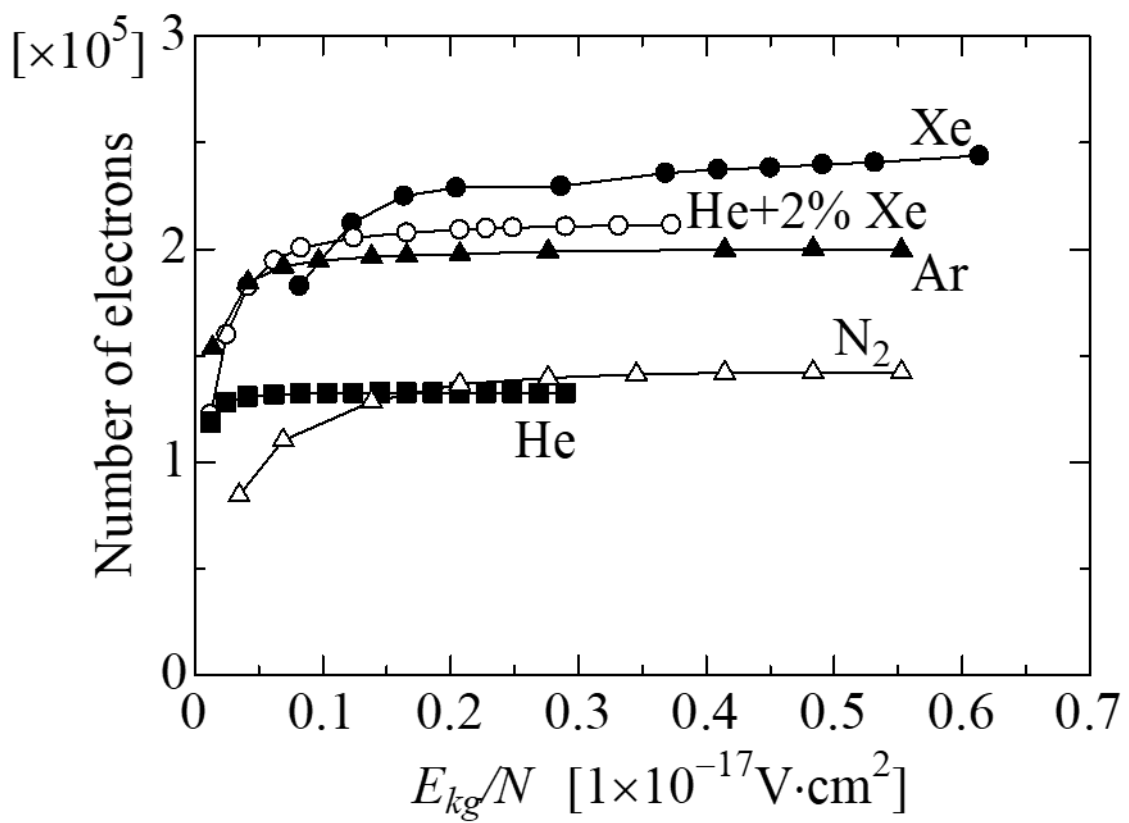


図 3.22 換算電場強度を変化させたときの収集電離電子の飽和特性

### 3.2.3 電子数校正

図 3.23 に窒素とアルゴンにおける 5.49 MeV の  $\alpha$ 線を照射した際のコレクターからの電離電子の波高分布を示す。ガウス関数によるフィッティングによってピークチャンネルと半値幅が得られる。この測定系によるエネルギー分解能 (FWHM)は窒素とアルゴンでそれぞれ 4.8 % と 6.4 %と評価された。各ピークの電子数は ICRU Report 31[1]で示されている窒素とアルゴンの W 値の推奨値 ( $36.39 \pm 0.23$  eV,  $26.31 \pm 0.18$  eV)によって式(2.1)を用いて決めている。電子数は測定した窒素とアルゴンの波高分布と W 値の推奨値から校正している。電子数の誤差は波高分布をフィッティングしたガウス関数の  $1\sigma$ と ICRU により推奨されている W 値の不確かさから 1.0 %と見積もられた。図 3.24 に波高値と電子数の関係を示す。この関係から測定した波高分布からフィッティングでピーク波高値を求め電子数に変換する。



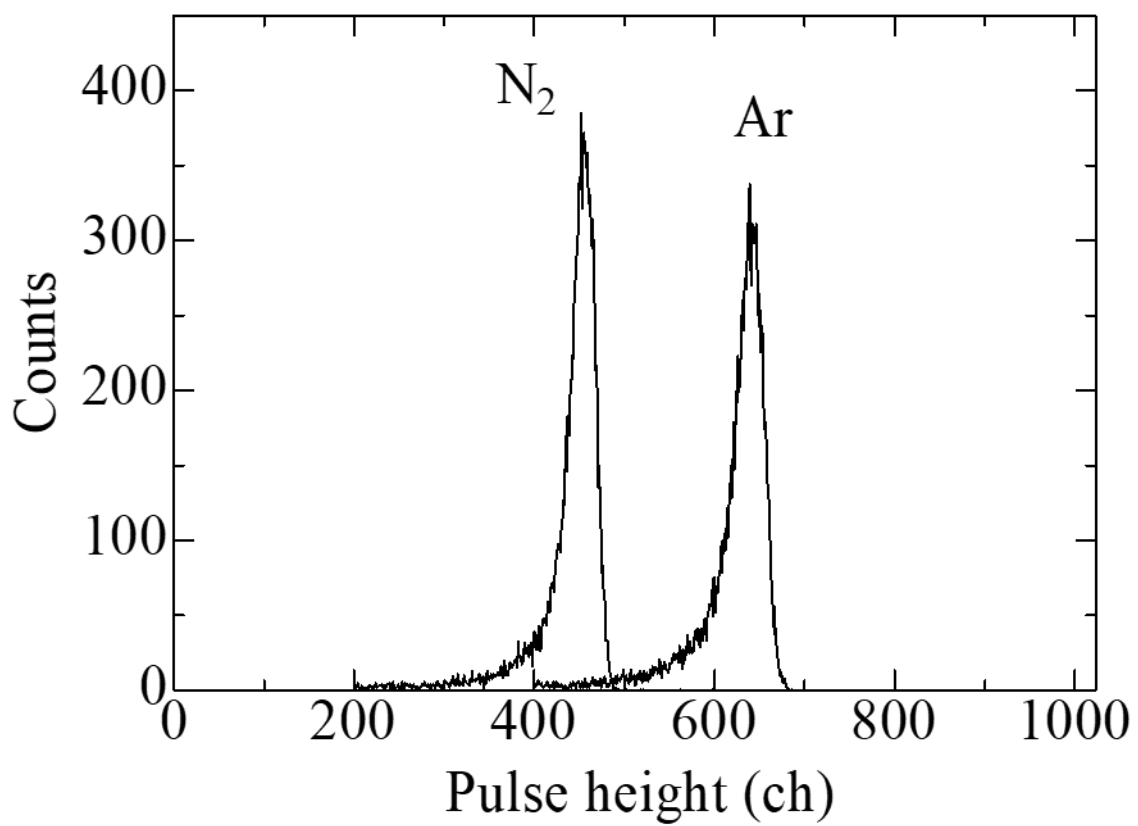


図 3.23 窒素とアルゴンにおけるコレクター信号の波高分布

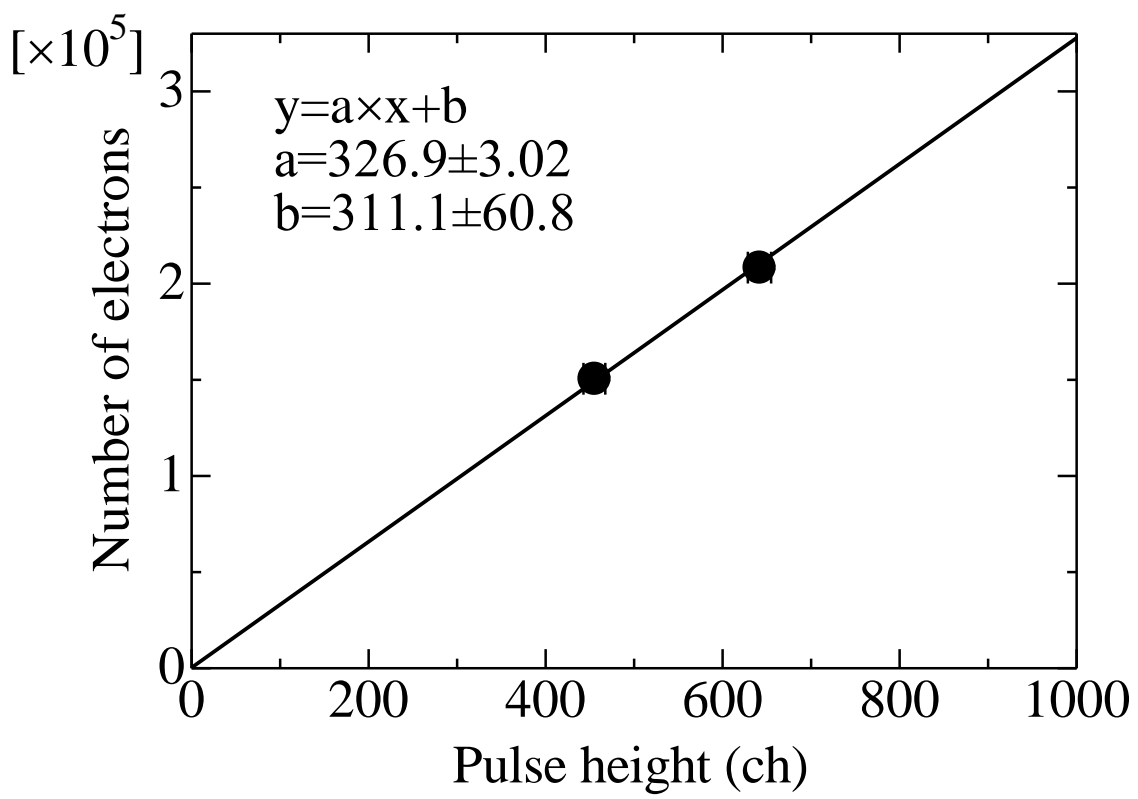


図 3.24 波高値と電子数の関係

### 3.2.4 電離収量の安定性

図 3.25 に真空引きしたチェンバー内に純ヘリウム 1.0 MPa、純キセノン 100 kPa、窒素 600 kPa、アルゴン 300 kPa、ヘリウム 900 kPa + キセノン 100 kPa のガスをそれぞれ封入した際の純化装置を用いたときの電離収量の経時変化を示す。純ヘリウムを除いたガスの電離収量の経時変化は、24 時間でガス封入直後の測定値の 0.2 %以内の変化となっていることを確認した。純ヘリウムの場合は、96 時間でガス封入直後から電離収量が 10 %増加している。この増加はヘリウムの場合のみに生じていることから、ペニング効果により不純物が電離されているためだと考えられる。この効果を避けるために、ヘリウムの電離収量測定は、電離収量の増加量をガス封入直後から 0.03 %未満に抑えることができるガス封入後 30 分以内に測定を完了させることとした。

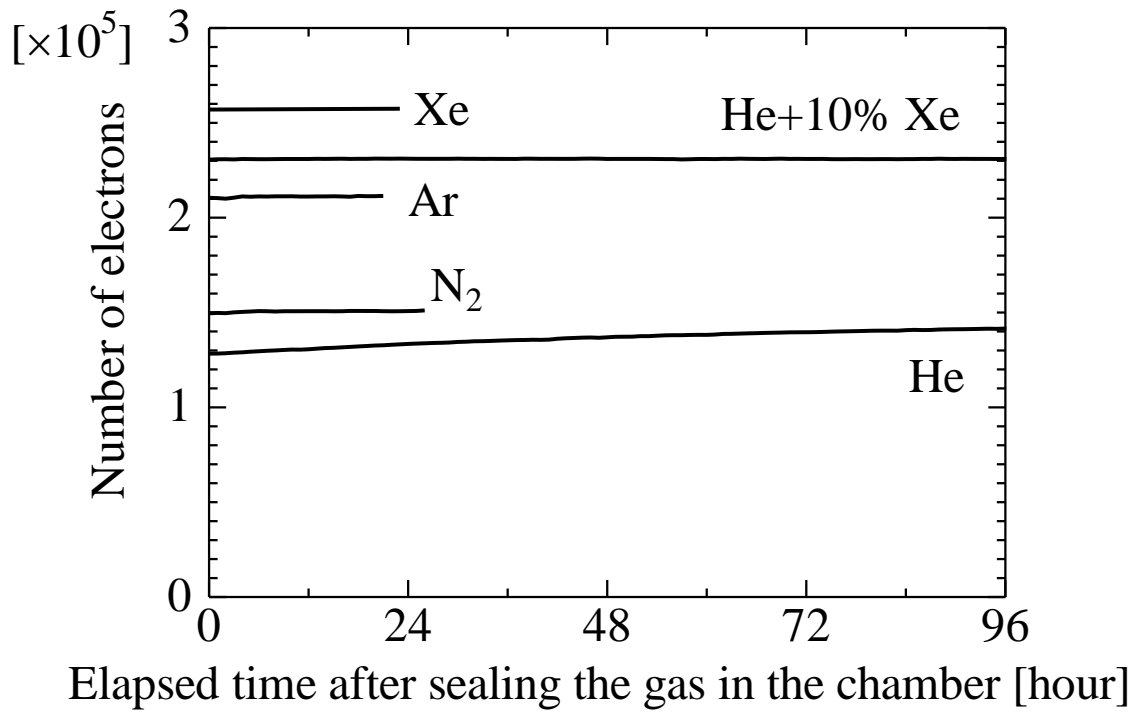


図 3.25 ガス封入後の純化装置を用いた際の電離収量の経時変化（ヘリウム 1.0 MPa、キセノン 100 kPa、窒素 600 kPa、アルゴン 300 kPa、ヘリウム 900 kPa + キセノン 100 kPa）

### 3.3 純ヘリウムの電離収量の結果

3.3 節と 3.4 節では、3 つの実験結果についてまとめ、考察を述べる。初めに、ヘリウムの  $W$  値を求めるために行った、ヘリウムの電離収量の測定結果についてまとめ、考察を行う。次に、ヘリウムの電離原子数と励起原子数の比を求めるために行った、ヘリウム・キセノン混合ガスによる電離収量の測定結果についてまとめ、考察を行う。最後に電離収量と同時に測定したシンチレーション収量の測定結果についてまとめ、考察を行う。

#### 3.3.1 ヘリウムの電離収量測定におけるガスの純化の効果

##### (1) 純化なし

第 3 章 1 節で説明した実験装置にてヘリウム 40kPa においてガスの純化を行わずに行った測定結果を図 3.26 に示す。この測定では循環ポンプは稼働させずに行った。ヘリウムガスを封入前のチェンバーの真空到達度が  $3.03 \times 10^{-5}$  Pa と  $2.36 \times 10^{-5}$  Pa の条件で測定を行った。封入後 1200 分間の電離収量の経時変化を測定した。電子数は経過時間とともに増加し、一定時間が経つと飽和する傾向の変化となっている。これは生成された励起ヘリウム原子と不純物とのペニング効果による電離が飽和しているためだと考えられる。また、真空到達度の違いにより電子数の増加速度が変化し、真空到達度が低い方が電子数の増加速度が緩やかになっている。真空到達度はチェンバーからのガス放出量に比例するため、真空到達度が低いほどガス放出量が小さくなる。そのため電子数の増加速度が異なっていると考えられる。電子数の広がりにはガス中の不純物の濃度と  $\alpha$  線の飛程の広がり起因すると考えられる。図 3.26 のプロットの測定値を実験データに合う関数として以下の式でフィッティングして得られたものが実線である。

$$f(x) = A \left( 1 - e^{-\frac{x}{t}} \right) + B \quad (3.3)$$

$x$  が経過時間 [min]、 $A$  が電離収量の増加分、 $B$  が経過時間 0 における電離収量の初期値、 $t$  が電離収量の変化の時定数を表す。得られたフィッティングパラメータを表 3.4 に示す。この結果から  $A$  と  $B$  は真空到

達度の違いでほぼ変わらなかった。しかし、時定数  $t$  は両者で約 2 倍の違いが表れている。これが真空到達度の違いによるガス放出率の差異によるものだと考えられる。

純化を行っていない場合のチェンバー内での不純物の増加の関係は以下の式で表すことができる。

$$V \frac{dp}{dt} = Q. \quad (3.4)$$

$p$  は不純物圧力 [Pa]、 $V$  はチェンバー体積 [ $m^3$ ]、 $Q$  はチェンバーからのガス放出量 [ $Pa \cdot m^3 \cdot s^{-1}$ ]を表す。式(3.4)の解は次式となる。

$$p(t) = \frac{Q}{V} t. \quad (3.5)$$

よって純化を行っていない場合の不純物の増加は、一次関数で表される。

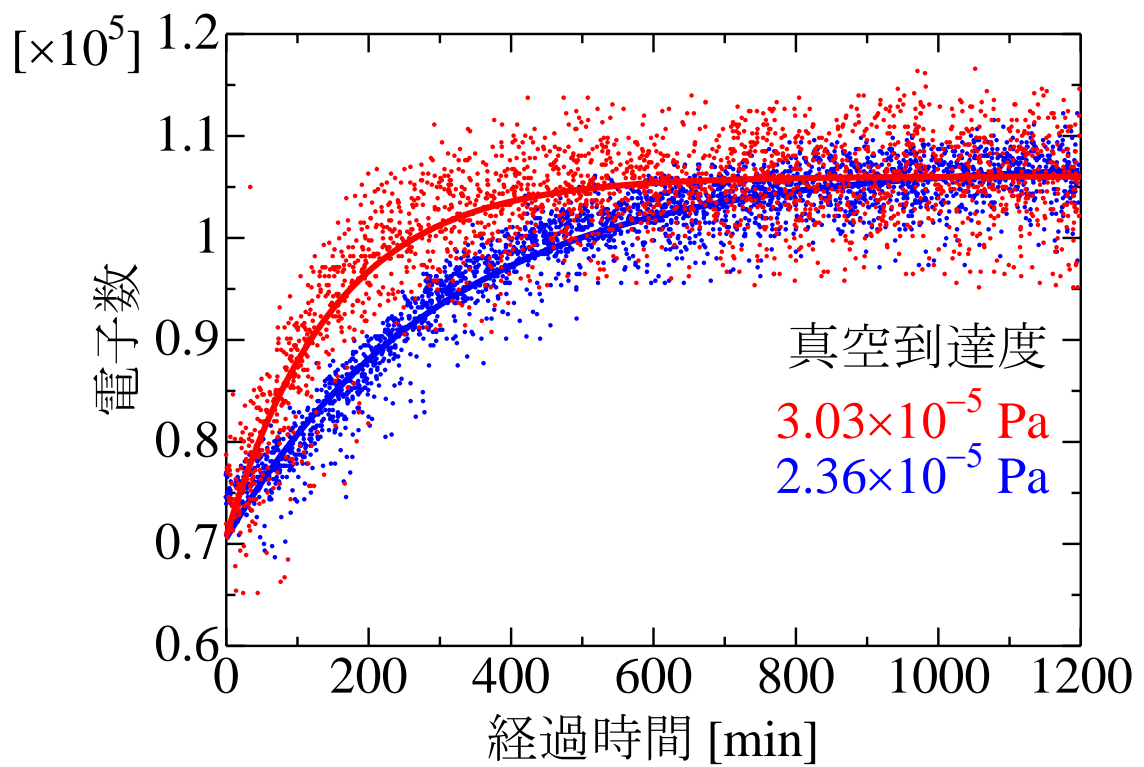


図 3.26 ガスの純化を行わない場合の真空到達度の違いによる電離収量の時間変化

表 3.4 式(3.3)のパラメータのフィッティング結果

パラメータ	真空到達度 $3.03 \times 10^{-5} \text{ Pa}$	真空到達度 $2.36 \times 10^{-5} \text{ Pa}$
A	$3.53 \times 10^4 \pm 4.60 \times 10^2$	$3.68 \times 10^4 \pm 1.90 \times 10^2$
B	$7.07 \times 10^4 \pm 4.71 \times 10^2$	$7.06 \times 10^4 \pm 2.11 \times 10^2$
t	$150 \pm 3.40 \text{ min}$	$308 \pm 4.10 \text{ min}$



40 kPa のヘリウムガスにおいて電離収量と水蒸気圧を同時に測定した経時変化の結果を図 3.27 に示す。この測定ではガス封入前の真空到達度が  $3.55 \times 10^{-5}$  Pa で、図 3.29 の経路でガスを 7.0 (SLM: Standard Liter per Minutes) で循環させた。黒のプロットが電子数で実線が水蒸気圧である。電離収量は経過時間とともに増加する傾向にあり、その後電子数は  $1.05 \times 10^5$  で飽和する変化となっている。水蒸気圧は線形的増加をしており、水蒸気圧の増加率は  $2.93 \times 10^{-3}$  Pa/min であった。式(3.5)で導出した不純物の増加の関係と一致している。また、ペニング効果による電離を起こす励起状態のヘリウムと不純物がすべて反応し尽くしているために、水蒸気圧が増加しても電離収量がそれ以上増えないことを示している。図 3.28 に図 3.27 よりも測定時間を延ばし、7400 分まで測定を行った結果を示す。電離収量は経過時間とともに増加し一定値を取り、その後徐々に減少する傾向となっている。この電離収量の減少は電子付着による作用だと考えられる。

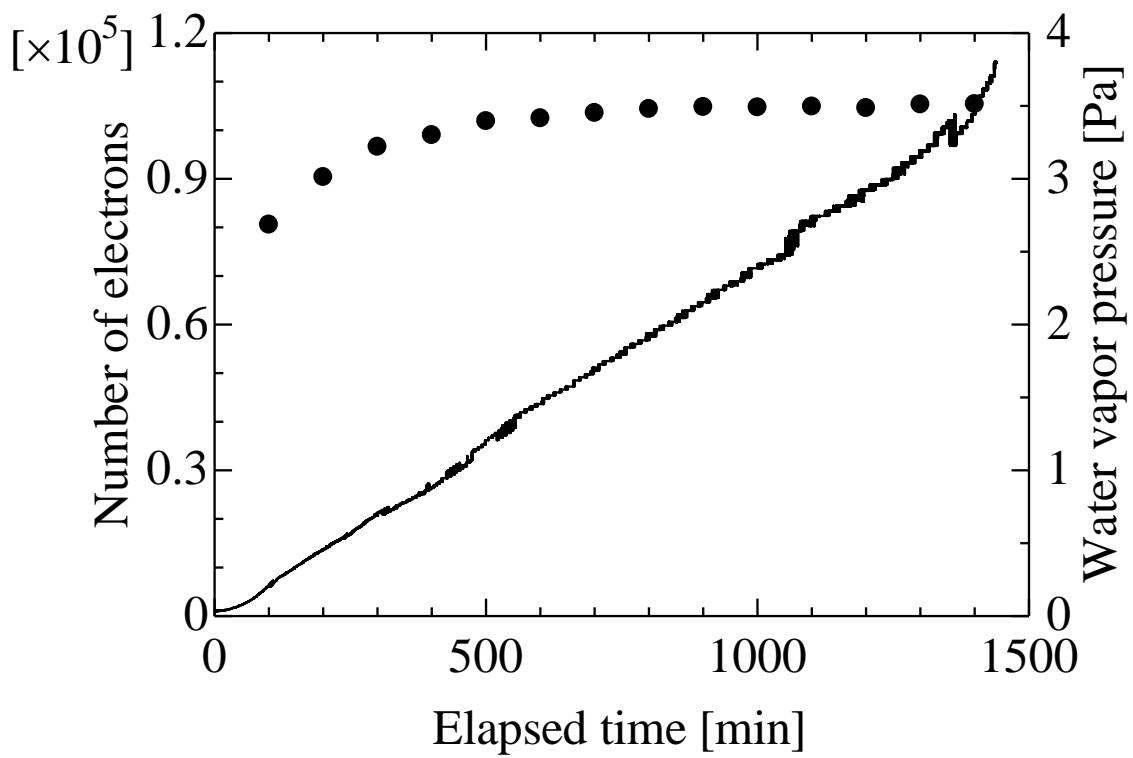


図 3.27 純化を行っていない場合の水蒸気圧と電離収量の経時変化

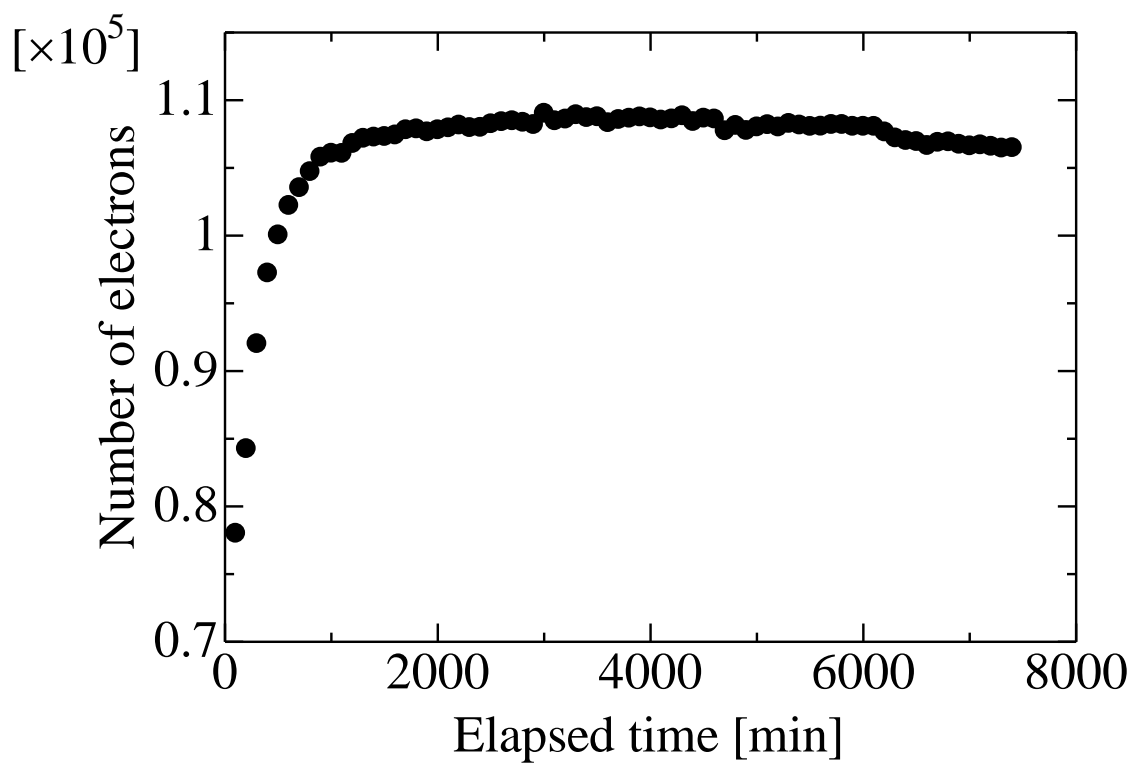


図 3.28 純化を行っていない場合の電離収量の経時変化

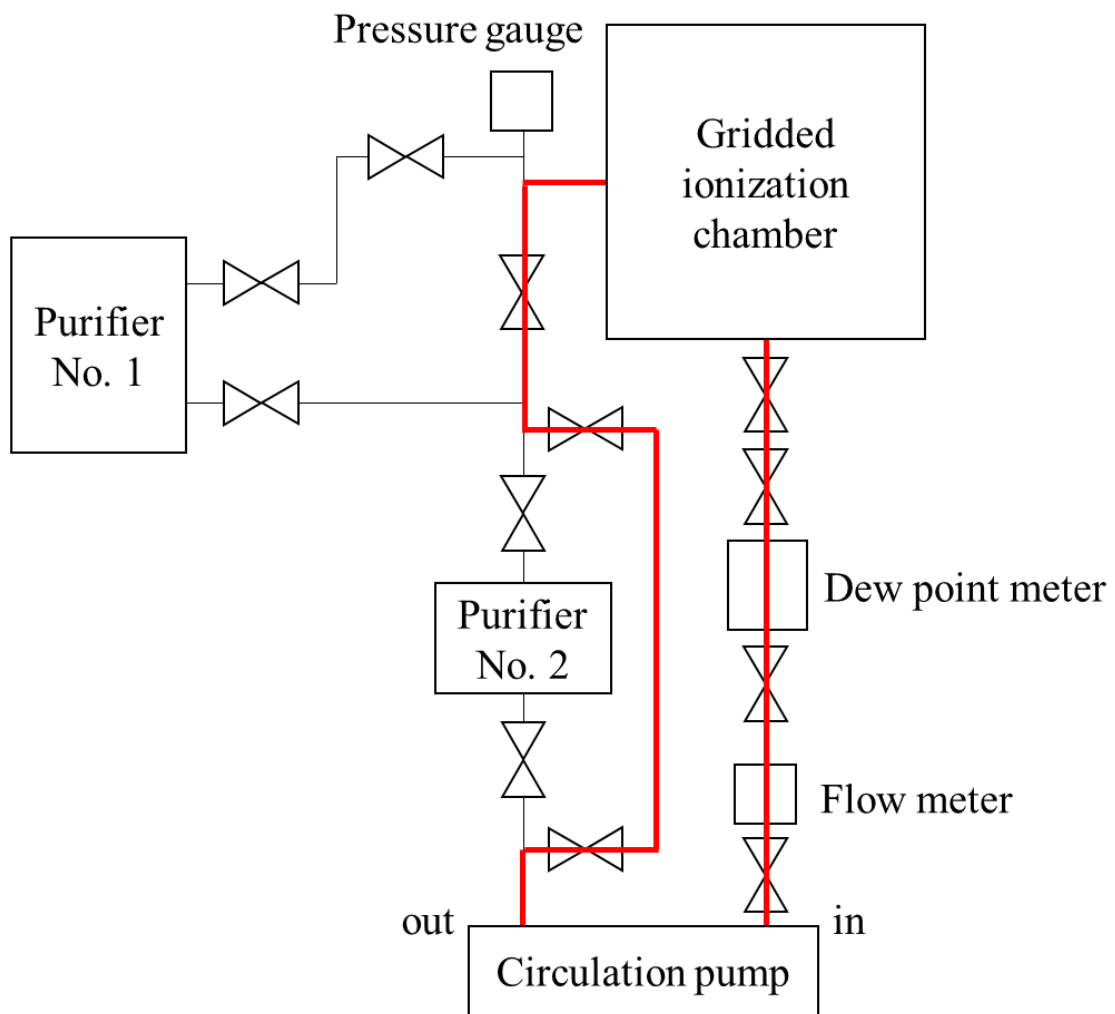


図 3.29 純化を行っていない場合のガスの循環経路

(2) 純化あり

純化時のチェンバー内の不純物圧力の時間変化は式(3.6)で与えられる。

$$V \frac{dp}{dt} = Q - \alpha Sp. \quad (3.6)$$

$p$  は不純物圧力 [Pa]、 $V$  はチェンバー体積 [ $\text{m}^3$ ]、 $S$  は流量 [ $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ]、 $Q$  はガス放出量 [ $\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ]、 $\alpha$  は純化装置による不純物除去率を表す。式(3.6)の解は次式となる。

$$p(t) = \frac{Q}{S} \left( 1 - e^{-\frac{\alpha S}{V} t} \right). \quad (3.7)$$

実際に流量 0.5 SLM で純化を行い、不純物としての水蒸気圧の経時変化を測定し、上式と比較した例を図 3.30 に示す。黒の実線が測定値で赤の実線がフィッティング曲線である。式(3.7)より、フィッティング関数とし以下の式よりフィッティングを行った。

$$f(x) = a \left( 1 - e^{-\frac{x}{b}} \right) + c. \quad (3.8)$$

$f$  が水蒸気圧 [Pa]、 $x$  が経過時間 [min]、 $a$  が  $Q/S$  [Pa]、 $b$  が  $V/S$  [s]、 $c$  が水蒸気圧の初期値 [Pa] である。 $a, b, c$  がフィッティングパラメータであり、得られた値を表 3.5 に示す。測定した水蒸気圧の変化と導出した式(3.8)はよく一致しており、純化時の不純物の変化が式(3.7)により説明できることを確認した。

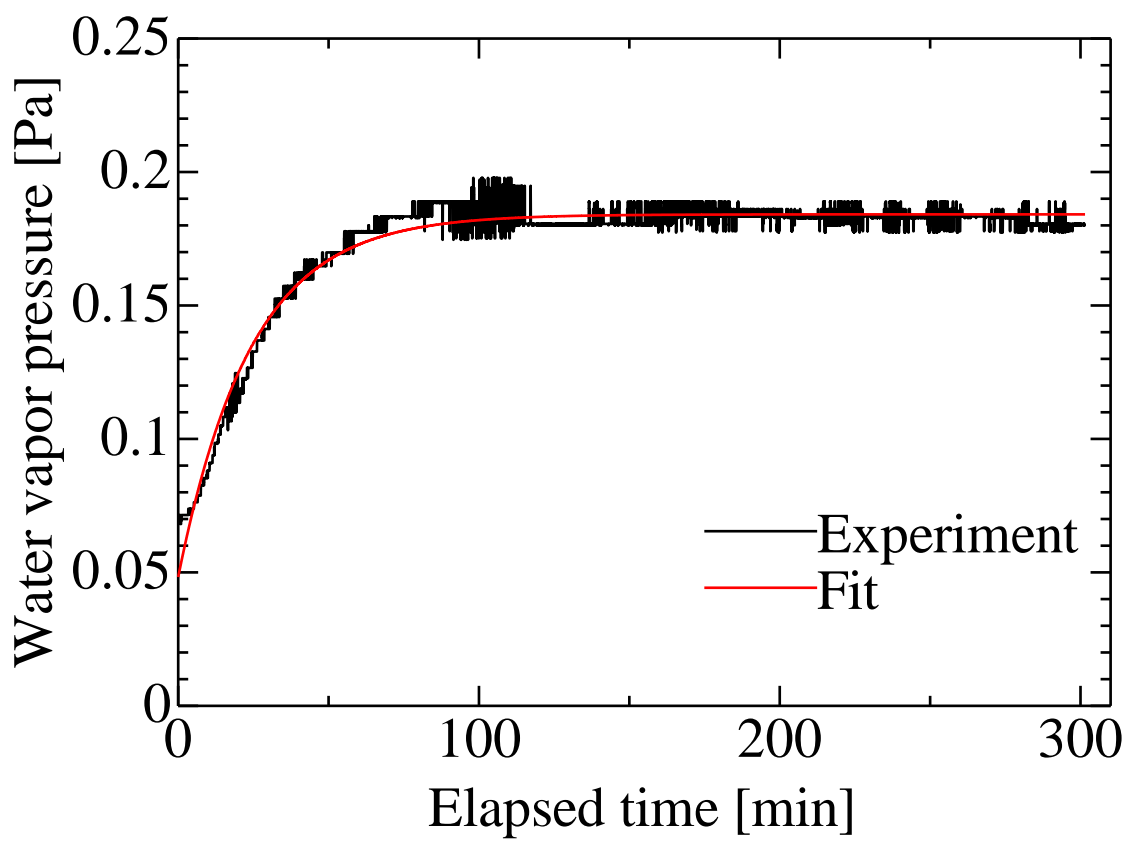


図 3.30 流量 0.5 SLM で純化を行った場合の水蒸気圧の経時変化

表 3.5 式(3.8)のパラメータのフィッティング結果

a	$0.136 \pm 2.35 \times 10^{-4}$
b	$24.2 \pm 6.58 \times 10^{-2}$
c	$0.0483 \pm 2.39 \times 10^{-4}$

式(3.7)より、時間が十分に経過し、定常状態 ( $dp/dt = 0$ )での不純物圧力  $p_{\infty}$  は式(3.9)で表される。よって不純物圧力はガス放出量  $Q$  と流量  $S$  と純化装置の不純物除去率  $\alpha$  で決まり、流量と不純物圧力は反比例の関係となる。

$$p_{\infty} = \frac{Q}{\alpha S} \quad (3.9)$$

純化は図 3.32 の経路でガスを循環させ行った。図 3.31 にガス精製器と純化装置によって 40 kPa のヘリウムガスを 6.1, 0.3 SLM で純化した場合の電離収量と水蒸気圧の経時変化を示す。純化することで水蒸気圧の増加を抑制していることがわかる。ガスの純化をガス中の水蒸気圧の測定によって、純化により不純物が除去されていることを確認することができた。一方、電離収量も同様に増加が抑えられている。このことによってガス中の不純物を純化によって減らすことで、ペニング効果による励起原子の電離への寄与を抑制できていることを示している。流量を小さくすることで水蒸気圧は増加し、次第に一定値をとる変化となっている。よって、流量を変化させることによりガス中に含まれる不純物の濃度が変化することが分かった。



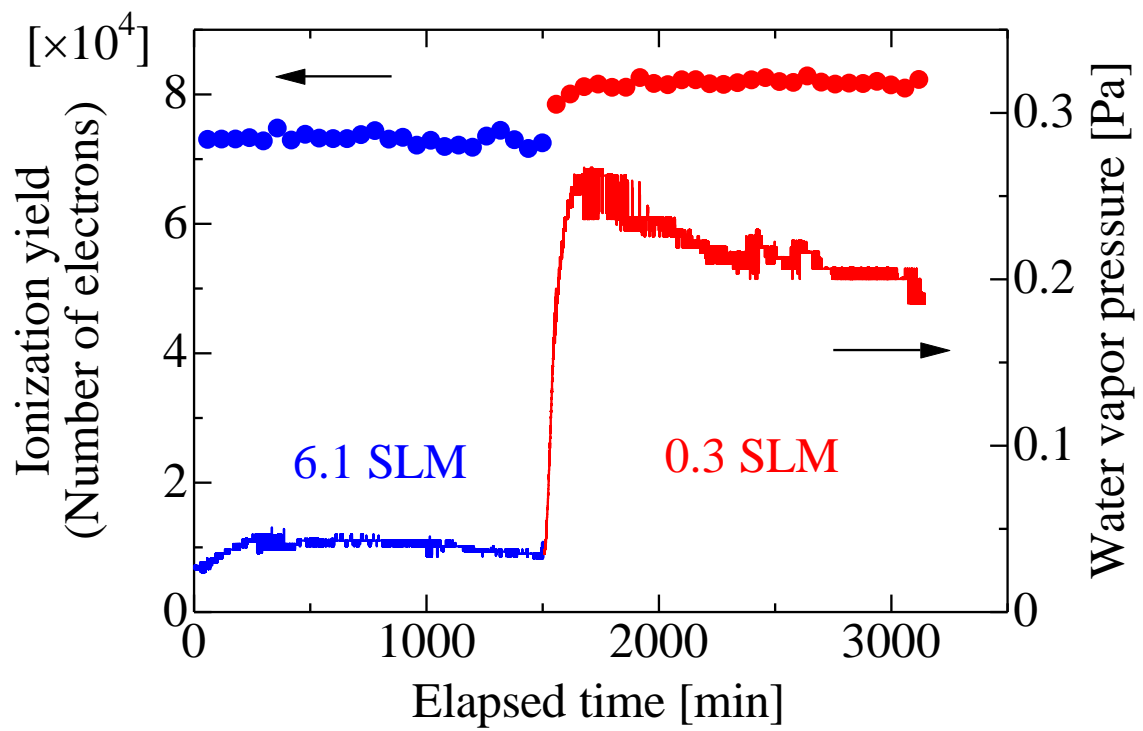


図 3.31 流量 6.1, 0.3 SLM で純化を行った場合の水蒸気圧と電離収量の経時変化

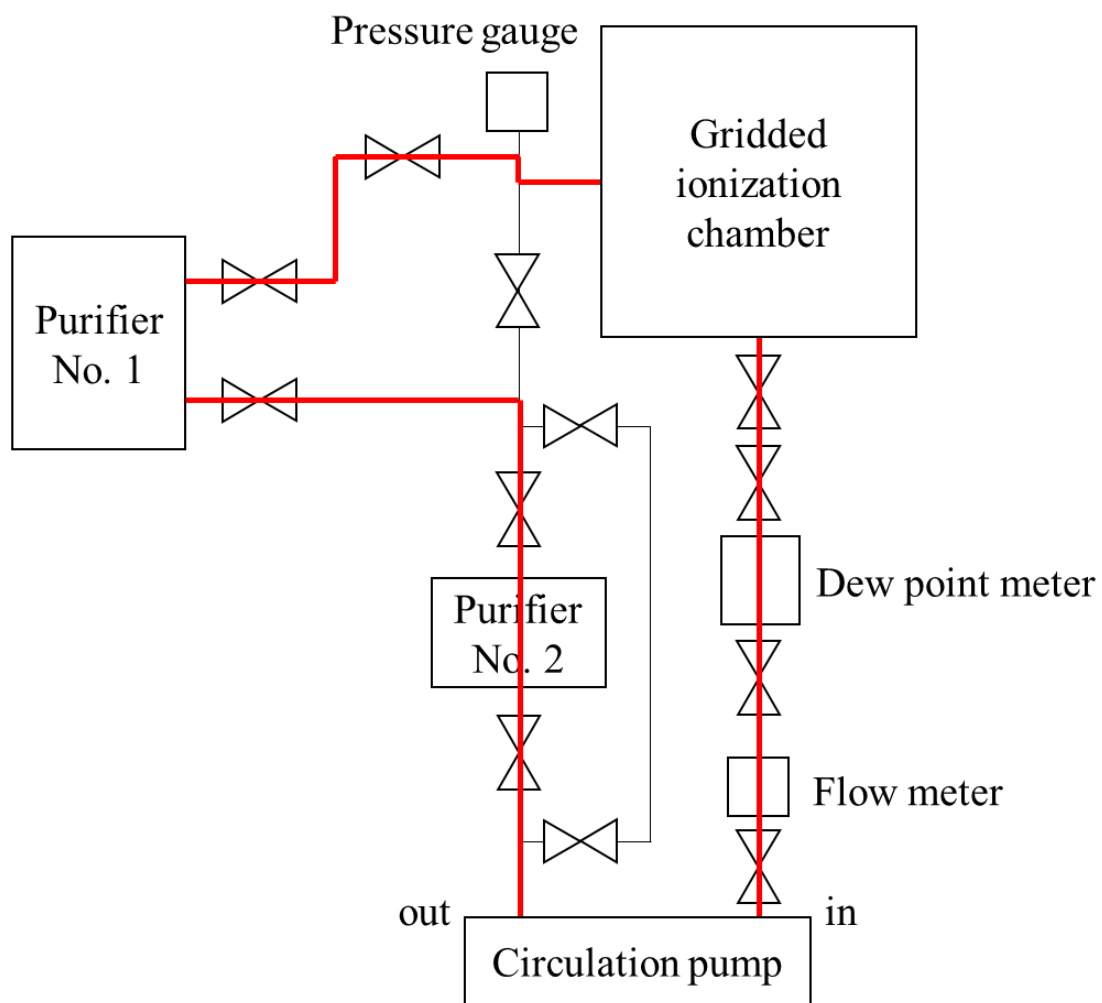
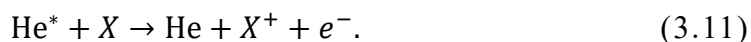


図 3.32 純化を行った場合のガスの循環経路

### 3.3.2 不純物と純ヘリウム中における電離収量の関係

純ヘリウムの電離収量の変化に対する露点計により測定した水蒸気圧の影響について、 $\alpha$ 線照射により生成された励起ヘリウム原子の振る舞いから考察する。励起ヘリウム原子 $\text{He}^*$ が寿命 $\tau$  [s]で脱励起する場合の式(3.10)、速度定数 $k_1$  [ $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ]で不純物  $X$  とのペニング効果により電離する場合の式(3.11)、シンチレーション過程として速度定数 $k_2$  [ $\text{cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$ ]で励起二原子分子 $\text{He}_2^*$ が生成される場合の式(3.12)を考える。



上式の反応の速度式はそれぞれ以下のように書ける。以下[ ]で表される単位は数密度 $\text{cm}^{-3}$ である。

$$v_1 = \frac{1}{\tau} [\text{He}^*]. \quad (3.13)$$

$$v_2 = k_1 [\text{He}^*] [X]. \quad (3.14)$$

$$v_3 = k_2 [\text{He}^*] [\text{He}]^2. \quad (3.15)$$

ここで、式(3.14)と式(3.15)の不純物 $[X]$ とヘリウム $[\text{He}]$ の数密度は励起ヘリウム原子 $[\text{He}^*]$ の数密度に比べて、大過剰にあるために反応中もその数密度は一定と近似することができ、時間変化はしないものとする。そこで励起ヘリウム原子の濃度の時間変化は脱励起、ペニング効果と励起二原子分子の生成から式(3.16)の微分方程式で表される。これを解くと式(3.17)となる。

$$\frac{d[\text{He}^*]}{dt} = -\frac{1}{\tau} [\text{He}^*] - k_1 [\text{He}^*] [X] - k_2 [\text{He}^*] [\text{He}]^2$$

$$= \left( -\frac{1}{\tau} - k_1[X] - k_2[\text{He}]^2 \right) [\text{He}^*]. \quad (3.16)$$

$$[\text{He}^*] = [\text{He}^*]_0 e^{-\left(\frac{1}{\tau} + k_1[X] + k_2[\text{He}]^2\right)t}. \quad (3.17)$$

次にペニング効果による電離でできる不純物イオンの濃度の時間変化が式(3.18)の微分方程式で表される。式(3.18)に式(3.17)を代入して解くと式(3.19)となる。

$$\frac{d[X^+]}{dt} = k_1[\text{He}^*]_0 e^{-\left(\frac{1}{\tau} + k_1[X] + k_2[\text{He}]^2\right)t}. \quad (3.18)$$

$$[X^+] = \frac{k_1[X]}{\frac{1}{\tau} + k_1[X] + k_2[\text{He}]^2} [\text{He}^*]_0 \left\{ 1 - e^{-\left(\frac{1}{\tau} + k_1[X] + k_2[\text{He}]^2\right)t} \right\}. \quad (3.19)$$

ここで、 $[\text{He}^*]$ は励起ヘリウム濃度  $[\text{cm}^{-3}]$ 、 $[\text{He}^*]_0$ は励起ヘリウムの初期濃度  $[\text{cm}^{-3}]$ 、 $[X^+]$ は不純物イオンの濃度  $[\text{cm}^{-3}]$ 、 $[X]$ は不純物濃度  $[\text{cm}^{-3}]$ である。式(3.19)より時間  $t$  が十分経過した後の飽和する不純物イオンの濃度  $[X^+]$  を求めると式(3.20)となる。

$$\begin{aligned} \lim_{t \rightarrow \infty} [X^+] &= \frac{k_1[X]}{\frac{1}{\tau} + k_1[X] + k_2[\text{He}]^2} [\text{He}^*]_0 \\ &= \frac{k_1}{\frac{1}{\tau[X]} + k_1 + \frac{k_2}{[X]} [\text{He}]^2} [\text{He}^*]_0 \end{aligned} \quad (3.20)$$

すると不純物濃度とペニング効果により生成される不純物イオンの濃度の関係は図 3.33 のようになる。不純物濃度が増えると不純物イオンの濃度は  $[\text{He}^*]_0$  に漸近する形となる。

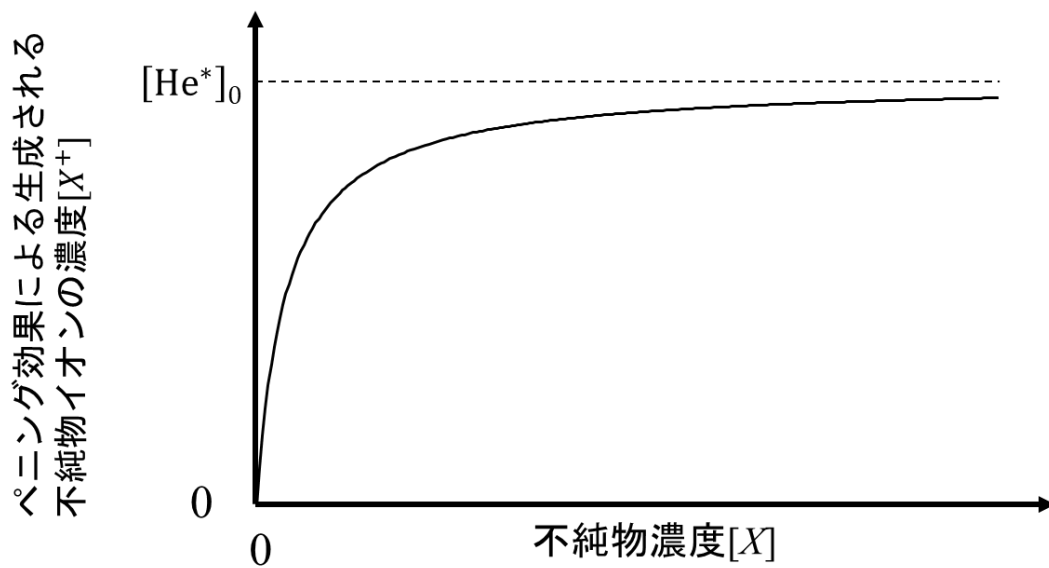
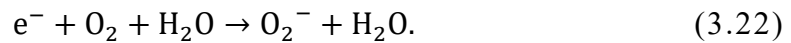


図 3.33 不純物濃度とペニング効果により生成される不純物イオンの濃度の関係

さらに、全電離収量を考えると式(3.20)の不純物とのペニング効果による電離と  $\alpha$  線照射による直接電離が足し合わされることになる。直接電離による生成されるヘリウムイオンの濃度  $[\text{cm}^{-3}]$  を  $[\text{He}^+]$ 、全電子の濃度  $[\text{cm}^{-3}]$  を  $[e^-]_0$  とすると  $[e^-]_0$  は式(3.21)で表される。

$$\begin{aligned}
 [e^-]_0 &= \frac{k_1[X]}{\frac{1}{\tau} + k_1[X] + k_2[\text{He}]^2} [\text{He}^*]_0 + [\text{He}^+] \\
 &= \frac{[X]}{[X] + \frac{1}{k_1\tau} + \frac{k_2}{k_1}[\text{He}]^2} [\text{He}^*]_0 + [\text{He}^+].
 \end{aligned}
 \tag{3.21}$$

また、電子付着の影響により測定する電離収量が減少する作用を考慮する。不純物の  $\text{H}_2\text{O}$  は自身への電子の付着は起こらず、酸素  $\text{O}_2$  の混入による 3 体付着反応による触媒として作用する[12]。反応式を以下に示す。



式(3.22)の反応の速度定数を  $k_3 [\text{cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}]$  とすると、全電子の濃度  $[e^-]$  の反応速度は以下の式で与えられる。

$$\frac{d[e^-]}{dt} = -k_3[e^-][\text{O}_2][\text{H}_2\text{O}]. \tag{3.23}$$

これを解くと、全電子の濃度  $[e^-]$  の電子付着による時間変化は以下で表される。

$$[e^-] = [e^-]_0 e^{-k_3[\text{O}_2][\text{H}_2\text{O}]t}. \tag{3.24}$$

$[e^-]_0$  は電子付着の影響を受ける前の全電子の濃度である。時間  $t$  はカソード・グリッド間の電子の流動時間に相当する。流動時間は  $\alpha$  線の飛程の角度で変化するが代表値を取り、一定とすることで  $t$  を定数とする。図 3.10 より測定チェンバー内で測定された増加する不純物の成分は  $\text{H}_2\text{O}$  である。しかし、質量分析計で不純物の増加成分を測定できていた時間は短時間であり、 $\text{H}_2\text{O}$  以外に電子付着を起こす  $\text{O}_2$  が増加している可能性がある。純化を行っていない場合の不純物の増加は式(3.5)より

1 次関数で表される。よって測定している  $\text{H}_2\text{O}$  と比例関係がある増加となる。 $\text{H}_2\text{O}$  以外に  $\text{O}_2$  が増加すると仮定すると、 $\text{O}_2$  の増加は  $\text{H}_2\text{O}$  の増加から比例定数を  $\alpha$  とすると以下の式で表すことができる。

$$[\text{O}_2] = \alpha[\text{H}_2\text{O}]. \quad (3.25)$$

以上のことから、式(3.24)の指数は以下のように書き換えることができる。

$$-k_3[\text{O}_2][\text{H}_2\text{O}]t = -k_3\alpha[\text{H}_2\text{O}]^2t = -\beta[X]^2. \quad (3.26)$$

$$\beta = k_3\alpha t. \quad (3.27)$$

式(3.21)、式(3.24)、式(3.26)より電子付着の影響を考慮した場合の全電子の濃度  $[e^-]$  の不純物濃度  $[X]$  による変化は式(3.28)となる。

$$[e^-] = \left( \frac{[X]}{[X] + \frac{1}{k_1\tau} + \frac{k_2}{k_1}[\text{He}]^2} [\text{He}^*]_0 + [\text{He}^+] \right) e^{-\beta[X]^2}. \quad (3.28)$$

以上より求めた不純物の関係と測定した電離収量とを比較する。流量を 7.2, 6.1, 0.5, 0.3 SLM と変えてそれぞれ測定した。式(3.28)から不純物の濃度  $[X]$  を変数  $x$ 、全電子の濃度  $[e^-]$  を実験で測定した電子数  $f(x)$  をグリッド電離箱の有感領域の体積  $V = 247.5 \text{ cm}^3$  で割った値としフィッティング関数を式(3.29)と定義した。

$$\frac{f(x)}{V} = \left( \frac{x}{x+b} \times a + c \right) e^{-dx^2}. \quad (3.29)$$

ここで式(3.29)の  $a, b, c, d$  に該当するパラメータを以下に示す。

$$a = [\text{He}^*]_0. \quad (3.30)$$

$$b = \frac{1}{k_1\tau} + \frac{k_2}{k_1}[\text{He}]^2. \quad (3.31)$$

$$c = [\text{He}^+]. \quad (3.32)$$

$$d = k_3 a t. \quad (3.33)$$

$a, b, c, d$  はフィッティングパラメータである。それぞれのパラメータの単位は $\text{cm}^{-3}$ となっている。また不純物の濃度 $[X]$ は露点計により測定した水蒸気圧  $\text{Pa}$  を数密度 $\text{cm}^{-3}$ に変換して変数  $x$  として求めている。これにより式(3.29)のフィッティング関数と不純物による電離収量の変化を導出した式(3.28)は物理量を表す単位が一致しているため両者のパラメータを比較することができる。

誤差を含んだ測定値の電子数と水蒸気圧の結果から式(3.29)よりフィッティングして得られたパラメータを表 3.6 に示す。電離収量と水蒸気圧の関係を図 3.34 に示す。水蒸気圧は表 3.3 より、用いた露点計の測定範囲が露点温度 $-40^\circ\text{C}$ のため、図 3.34 の横軸の $0.3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ までが実測値である。それ以降は露点温度 $-40^\circ\text{C}$ までの測定値を基に求めた水蒸気圧の増加率で $1.1 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ まで外挿した。青色のプロットが純化した場合の値で、黒色のプロットが純化していない場合の値である。赤の実線が式(3.29)によりフィッティングして得られた曲線である。測定値からこの曲線で水蒸気圧 0 の値を外挿して求めることで、不純物の影響を受けていない電離収量を求めることができる。 $x$  が 0 の時の  $f(0)/V$  が表 3.6 の  $c$  である。よって電子数  $f(0)$  は  $c[\text{cm}^{-3}]$  に体積  $V[\text{cm}^3]$  をかけた値になる。そして  $W$  値は式(2.1)より求めることができ、付与エネルギーは図 3.3 より  $3.01 \text{ MeV}$  である。よって  $W$  値は以下となる。

$$W = \frac{E}{cV} = 45.0 \pm 0.90 \text{ eV}. \quad (3.34)$$

式(3.34)より不純物の影響を排除する手法により導出した  $40 \text{ kPa}$  でのヘリウムの  $W$  値は  $45.0 \pm 0.90 \text{ eV}$  となった。

次に導出した  $W$  値の妥当性について考察する。式(3.28)から求めたパラメータを実際の物理量と比較を行う。 $b$  を式(3.31)で示している。文献から準安定励起ヘリウム原子( $2^3S$ )の寿命 $\tau$ が  $7870 \text{ s}$  [38]、準安定励起ヘリウム原子( $2^3S$ )と水蒸気とのペニング効果の速度定数 $k_1$ が  $6.6 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  [39]であり、準安定励起ヘリウム原子( $2^3S$ )と中性のヘリウム原子との衝突による励起 2 原子分子の生成の速度定数 $k_2$ は  $2.0 \times 10^{-34} \text{ cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$  [40]、 $1.3 \times 10^{-33} \text{ cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$  [41]というデータがある。



40 kPa のヘリウムの数密度 $[\text{He}]$ は $9.7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ である。以上の文献の値を式(3.31)に代入すると  $b$  は以下となる。

$$\begin{aligned}
 b &= \frac{1}{6.6 \times 10^{-10} \times 7870} \\
 &\quad + \frac{2.0 \times 10^{-34} \sim 1.3 \times 10^{-33}}{6.6 \times 10^{-10}} \times (9.7 \times 10^{18})^2 \quad (3.35) \\
 &= 2.9 \times 10^{13} \sim 1.9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}.
 \end{aligned}$$

よって測定からフィッティングにより求めた  $b$  は表 3.6 より  $6.49 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ であり、文献の値を代入して求めた  $b$  は式(3.35)より  $2.9 \times 10^{13} \sim 1.9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ となった。実験値のフィッティングにより求めた  $b$  (表 3.6)は式(3.35)の範囲内で一致していることから、物理量として  $b$  のパラメータが妥当であると言える。よって式(3.10)~(3.12)の反応により導出した不純物と励起ヘリウムの関係が妥当であり、この関係を用いた式(3.28)のフィッティングにより導出した  $W$  値も妥当だと言える。

図 3.35 にこれまで測定されたヘリウムの  $W$  値と本研究の値を示す。本研究での値は先行研究で測定された 7 つのうち 2 つの値が誤差の範囲で一致している。先行研究のほとんどがヘリウムを測定した圧力の条件が明確に明記されていない。詳細は分からないが実験装置の寸法から大気圧以上で実験が行われていることが推測できる。よって本研究と比較すると圧力の条件が異なっており、本研究は低圧力側での測定値となっている。そのため、式(2.6)で示した Hornbeck-Molnar 過程が影響する可能性がある。圧力が低いことで影響すると仮定した場合、励起ヘリウム原子が中性のヘリウム原子と衝突する頻度が減少するため、この過程による電離収量が減少する作用が現れる。よって先行研究の値よりも  $W$  値としては高くなる。しかしながら、40 kPa と大気圧以上の圧力条件でどの程度作用するかしないかが不明なため評価できない。また、ヘリウムの圧力が低くなるほど不純物の影響による電離がより起こるため、測定が困難になることが予測できる。式(3.29)より分母の  $[\text{He}]^2$  が圧力によって変化するパラメータである。よってヘリウムの圧力が高くなるほど式(3.29)の  $b$  が大きくなるため、電離収量の増加が 40 kPa での測定時と同じ不純物濃度  $x$  に対して、緩やかな変化となりより不純物に鈍感になることがわかる。図 3.36 に Parks[4]が測定したヘリウムの圧力を約 70 Torr から 1000 Torr まで変化させた際の  $W$

値の結果を示す。図 3.36 からヘリウムの圧力が低いほど  $W$  値が小さくなっており、つまり、電離収量が増加している結果となっている。この研究では **Pure Helium** の測定に関しては、ガスの更なる純化が必要であるとされており、不純物の影響が示唆されている。そこで不純物が影響する場合の  $W$  値は式(3.29)より以下となる。

$$W = \frac{E}{f(x)} = \frac{E}{V \left( \frac{x}{x+b} \times a + c \right) e^{-dx^2}}. \quad (3.36)$$

よって、ヘリウムの圧力が異なる場合の不純物濃度  $x$  が同じであると仮定した場合、変化するパラメータは  $b$  である。つまりヘリウムの圧力が低いほど  $b$  は小さくなり、式(3.36)の分母の電子数は大きくなることから、 $W$  値は小さくなる。以上のことが導出した式(3.21)より推測できる。

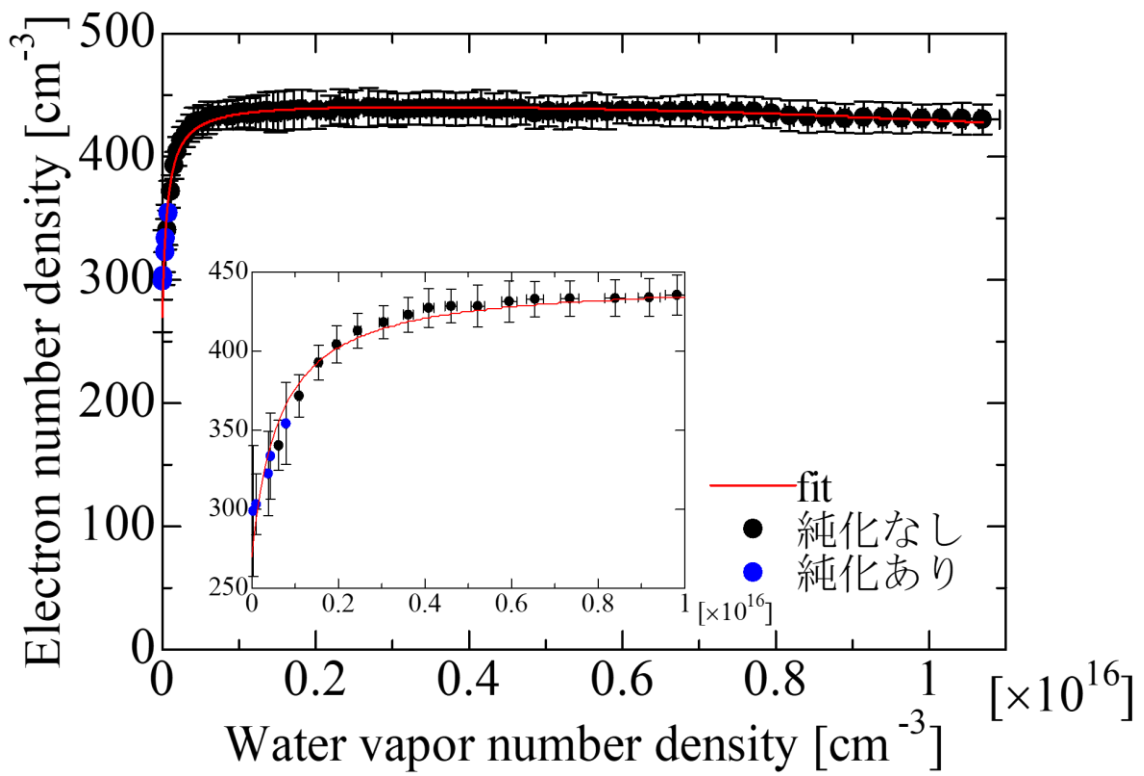


図 3.34 電離収量と水蒸気圧の関係

表 3.6 式(3.29)のパラメータのフィッティング結果

パラメータ	値
a	$175 \pm 5.2 \text{ cm}^{-3}$
b	$6.49 \times 10^{13} \pm 4.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$
c	$270 \pm 5.4 \text{ cm}^{-3}$
d	$3.28 \times 10^{-34} \pm 3.0 \times 10^{-35} \text{ cm}^6$

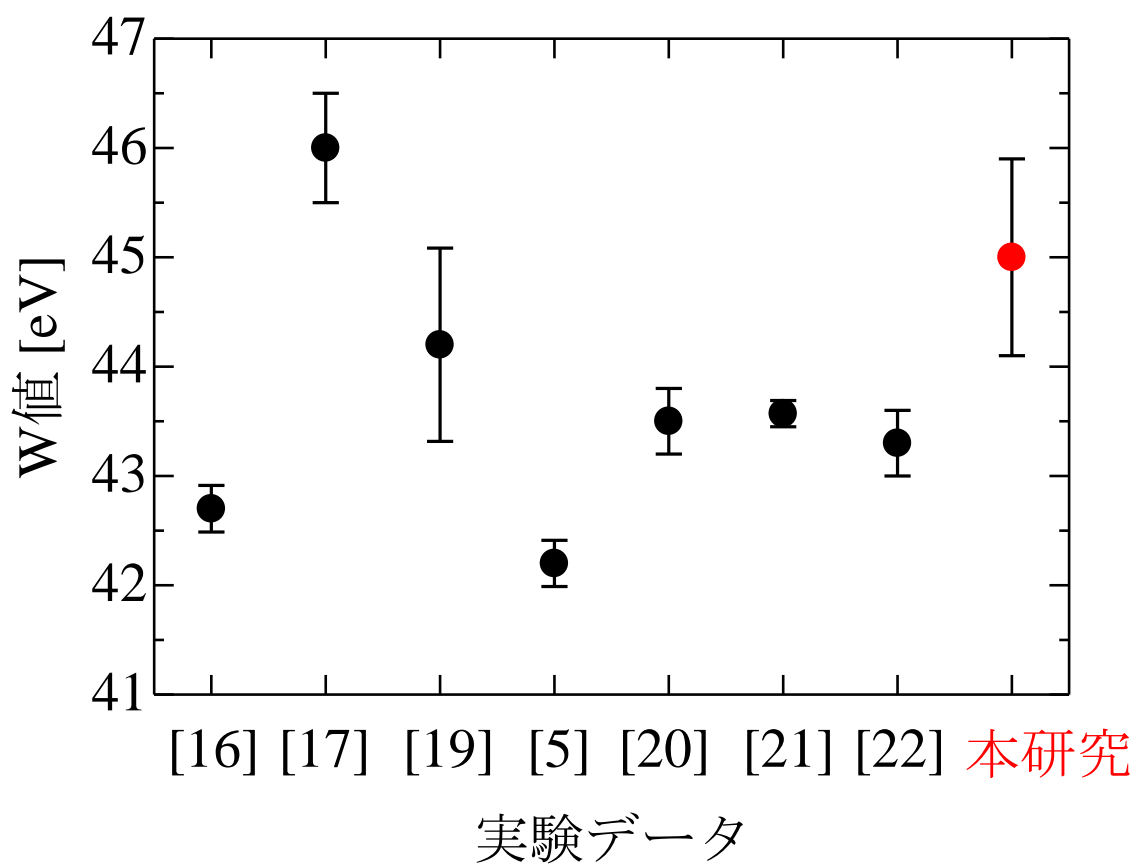


図 3.35 ヘリウムの W 値の先行研究[5,16,17,19-22]と本研究の実験データ

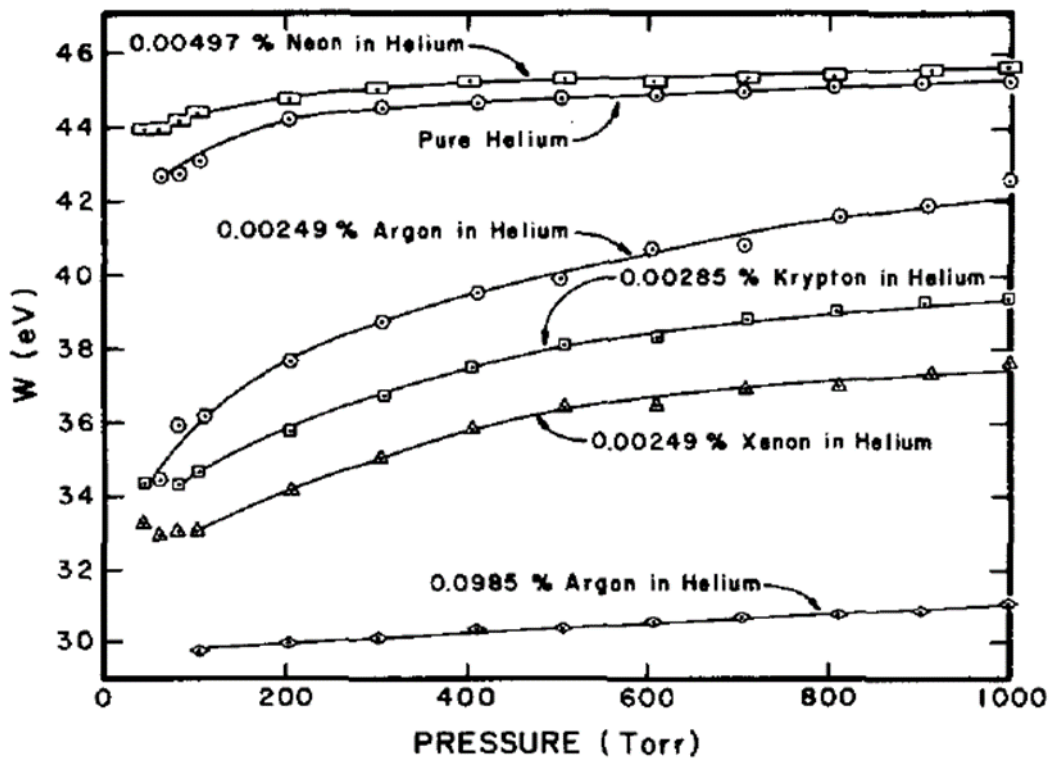


図 3.36 ヘリウムガスの圧力と W 値の関係[4]

## 3.4 ヘリウム・キセノン混合ガスの測定結果

### 3.4.1 ヘリウム・キセノン混合ガスの電離収量

第3章2節で説明した実験装置においてヘリウム、ヘリウム・キセノン混合ガス（キセノン2%）、キセノンでの電離電子の波高分布を測定した結果を図3.37に示す。測定した波高分布をガウス関数でフィッティングし、図3.24よりピーク波高値を電子数に変換した。電子数の誤差はフィッティングしたガウス関数の $1\sigma$ から見積もった。その結果、ヘリウムのW値は $42.8 \pm 1.6$  eV、キセノンは $21.3 \pm 0.4$  eVとなった。ヘリウムとキセノンの測定結果はBortnerら[17]の値を除いて、他の実験値とよく合っている。それ故、使用している測定系において、W値に対して妥当な値を測定できていることを確認した。第3章1節の実験装置により測定したヘリウムのW値とは誤差の範囲内で一致する結果となった。表3.7にキセノンの混合比を変えて測定した、ヘリウム・キセノン混合ガスでのW値のデータを示す。キセノンの混合1%で純ヘリウムの電離収量の1.59倍に増加する結果となった。キセノンの混合10%では純キセノンの電離収量の0.884倍、15%では0.918倍となり、純キセノンの電離収量に近くなる結果となった。

図3.38に $z$ の関数でプロットしたヘリウム・キセノン混合ガスによる電離収量の測定結果を示す。電離収量は純ヘリウムの電離収量に対する比で表している。 $z$ はSRIMコード(The Stopping and Range of Ions in Matter) [42]によりそれぞれのガスの分圧中での飛程 $R$ から求めた。 $z$ の誤差はSRIMで求めた飛程のストラグリングとガス圧を測定した圧力計の読みの誤差0.5%から見積もった。ガス圧は純ヘリウムが1.0 MPa、純キセノンが0.100 MPa、ヘリウム・キセノン混合ガスが全圧1.0 MPaと0.657 MPaで測定した。キセノンの混合比は0, 1.0, 2.0, 3.0, 10, 15%と変化させた。全圧が1.0 MPaと0.657 MPaの電離収量は $z$ の増加に伴って増加している。 $z$ あたりの増加はどちらの圧力においても類似している。よって、電離収量の増加は全圧に依存していないといえる。図中の点線は式(2.8)より計算されたprimary ionizationである。測定値が点線よりも増えているのはペニング効果によるためである。この差分がヘリウムとキセノンの相互作用によるペニング効果がもたらした電離量である。図中の実線は式(2.10)の混合ガスのW値の計算式にペニング効果を考慮に入れたもので、次の式を測定値に対する最小二乗法であてはめることによって得られた。

$$f(z) = z(1 + a - b) + b, \quad (3.37)$$

ここで、 $a$  と  $b$  はフィッティングパラメータである。 $a$  のパラメータは式(2.10)の  $N_{\text{ex}}/N_i$  に対応している。式(3.37)で示す通り、混合ガスの電離収量の変化は  $z$  に対して一次関数となっており直線の変化となる。キセノンの混合比を変化させた測定値も直線上の変化となっていることから、フィッティング式が成り立っていると言える。また、 $N_{\text{ex}}/N_i$  の値は  $z=1$  の値を除く式(3.37)によるフィッティングから  $0.541 \pm 0.005$  と得た。フィッティング結果を表 3.8 に示す。これまで報告されていた値と比較する (表 2.2)。実験による測定は Kubota[5]がヘリウム・アルゴン混合ガスによるペニング効果を用いた例がある。全圧が 0.1 MPa でアルゴンを約 0.04 % から約 30 % 混ぜて測定が行われている。表 2.5 よりキセノンはアルゴンと比べてペニング効果の断面積が大きい特徴があり、キセノンを用いた実験による測定は本研究が初めてである。また、理論計算における 2 例の値も両者異なる見解となっており、本研究とも異なる結果となった。

$N_{\text{ex}}/N_i$  には式(2.6)の Hornbeck-Molnar process の効果が含まれている。ここで、Hornbeck-Molnar process は式(2.5)のペニング効果よりも反応が早く進み、実験を行ったヘリウム 40 kPa では Hornbeck-Molnar process の反応量が飽和していると仮定する。Hornbeck-Molnar process の効果を排除した初期の電離原子数と励起原子数の比  $N_{0\text{ex}}/N_{0i}$  を求めるためには、Hornbeck-Molnar process により生成される  $\text{He}_2^+$  と  $\alpha$ 線照射により生成される初期の電離原子数の比である  $N(\text{He}_2^+)/N_{0i}$  の値を求める必要がある。Kubota[5]はヘリウム・ネオン混合ガスの電離収量測定の実験により  $[N(\text{He}_a^*) - N(\text{He}_2^+)]/[N_{0i} + N(\text{He}_2^+)] = 0.135 \pm 0.01$ 、電子衝突断面積により見積もりとして  $N(\text{He}_a^*)/N_{0i} = 0.30 \sim 0.34$  と示している。これら 2 つの値と本研究により測定した  $N_{\text{ex}}/N_i$  より  $N(\text{He}_2^+)/N_{0i} = 0.02 \sim 0.1$  という値を得た。この値を用い、式(2.11)より  $N_{0\text{ex}}/N_{0i} = 0.57 \sim 0.70$  となった。表 2.2 の Alkhozov and Voob'ev [7]の値と近くなる結果となった。



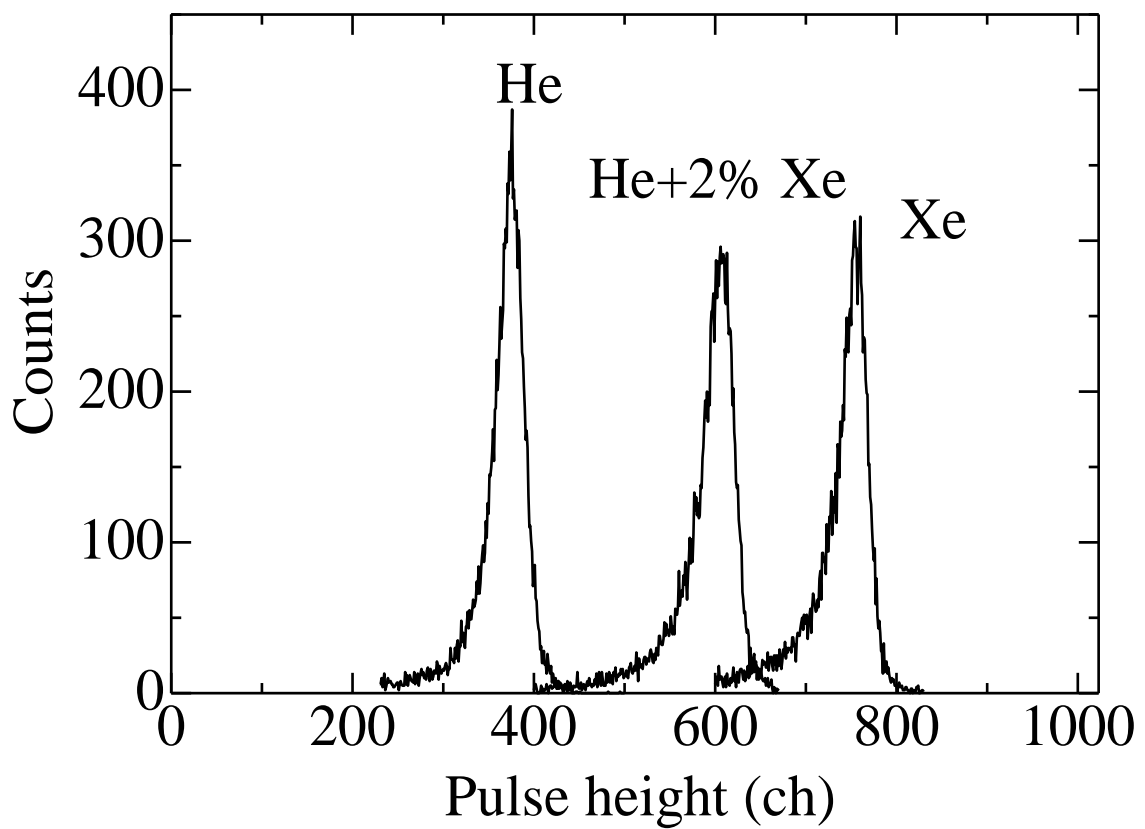


図 3.37 ヘリウム、ヘリウム・キセノン混合ガス（キセノン 2%）、キセノンにおけるコレクター信号の波高分布

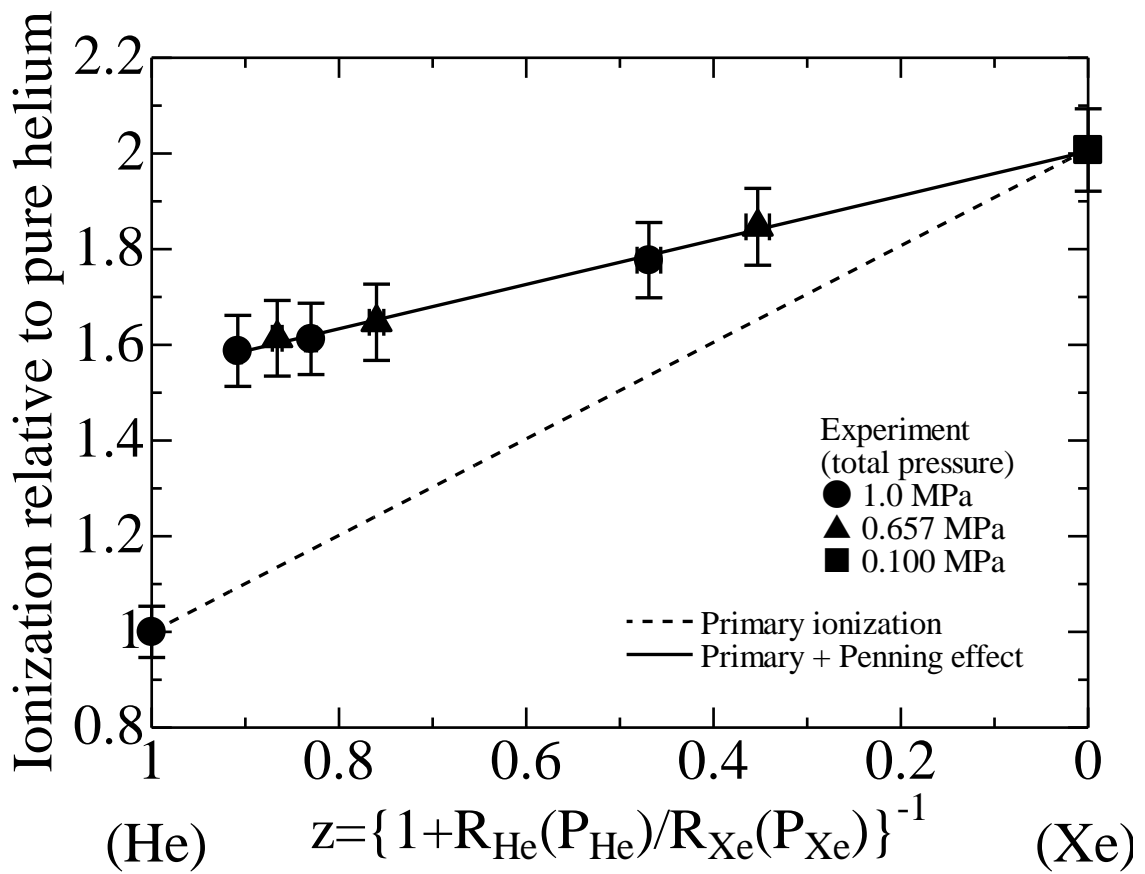


図 3.38 ヘリウム・キセノン混合ガスによる電離収量

表 3.7 ヘリウム・キセノン混合ガスの W 値の測定結果

Total pressure	Xenon	z	W-value [eV]
1.0 MPa	1.0%	0.908	27.0±0.7
0.657 MPa	1.5%	0.866	26.5±0.8
1.0 MPa	2.0%	0.830	26.6±0.7
0.657 MPa	3.0%	0.760	26.0±0.8
1.0 MPa	10%	0.469	24.1±0.6
0.657 MPa	15%	0.353	23.2±0.5

表 3.8 式(3.37)のパラメータのフィッティング結果

パラメータ	値
a	$0.541 \pm 5.1 \times 10^{-3}$
b	$2.00 \pm 7.3 \times 10^{-3}$

### 3.4.2 ヘリウム・キセノン混合ガスのシンチレーション収量

図 3.39 に全圧に対するキセノンの混合比を関数としてプロットしたヘリウム・キセノン混合ガスのシンチレーション収量を示す。0.100 MPa の純キセノンのシンチレーション収量を 1 と基準にし、ヘリウム・キセノン混合ガスを全圧 1.0 MPa と 0.657 MPa で測定した。測定しているシンチレーション収量は電場を印加して電離電子をすべて収集しているので励起原子を起源とする発光のみである。白抜きのプロットが先行研究[11]の値で、黒塗りのプロットが本実験の値である。先行研究では少量のキセノンの混合を中心に、シンチレーション収量が調べられている。本研究では先行研究で測定されていないキセノン混合比が 3 %付近での測定を行った。先行研究と同じキセノンの混合比である 1 %と 1.5 %では、ほぼ同等の値を得た。このことより実験の再現性を確認できた。3%のキセノン混合で 100 kPa の純キセノンのシンチレーションと同程度の収量が得られることがわかった。また、シンチレーション収量がキセノンの混合比 10 %で飽和することを明らかにした。10%の混合比で 0.100 MPa の純キセノンのシンチレーション収量の 1.1 倍と多くなった。10 %以上の混合の場合は、シンチレーション収量は 0.100 MPa の純キセノンの収量に向かって減少していく傾向となる。

以上の測定により、広い範囲のキセノンの混合比でのヘリウム・キセノン混合ガスによるシンチレーション収量のデータが得られた。検出器への応用を考えると数パーセント以上のキセノンの混合において、純キセノンのシンチレーションと同程度のシンチレーション収量が得られる利点がある。

キセノンの混合が数パーセントで純キセノンのシンチレーションが得られている要因はヘリウムの励起二原子分がキセノンをも励起させているためだと考えられる。式(2.21)よりアルゴンとキセノンの混合ガスの際と同様に以下の反応が起きていると考えることができる。



上式の反応により生成されるキセノンの励起原子から、励起二原子分子が生成されキセノンのシンチレーションが発生していると説明できる。図 3.39 よりキセノン 10 %の混合ではシンチレーション収量が純キセノンの収量よりも増加している。このことは、式(3.28)に示した反応からも説明することができる。また、キセノンの励起二原子分子の

生成過程の三体衝突において、以下の反応が起きているためと考えることもできる。



キセノンの励起二原子分子の生成過程は純キセノンの場合、三体衝突は励起原子と2つの中性のキセノンであるが、ヘリウム・キセノン混合ガスではヘリウムが加わる三体衝突が起こることで、より効率的にキセノンの励起二原子分子が生成されることが考えられる。これにより、純キセノンを測定した時の圧力 **0.100 MPa** とヘリウム・キセノン混合ガスを測定した時のヘリウム分圧 **0.900 MPa**、キセノン分圧 **0.100 MPa** とで、キセノンの圧力が同じ場合でのシンチレーション収量の増加が式(3.39)の反応により説明することができる。

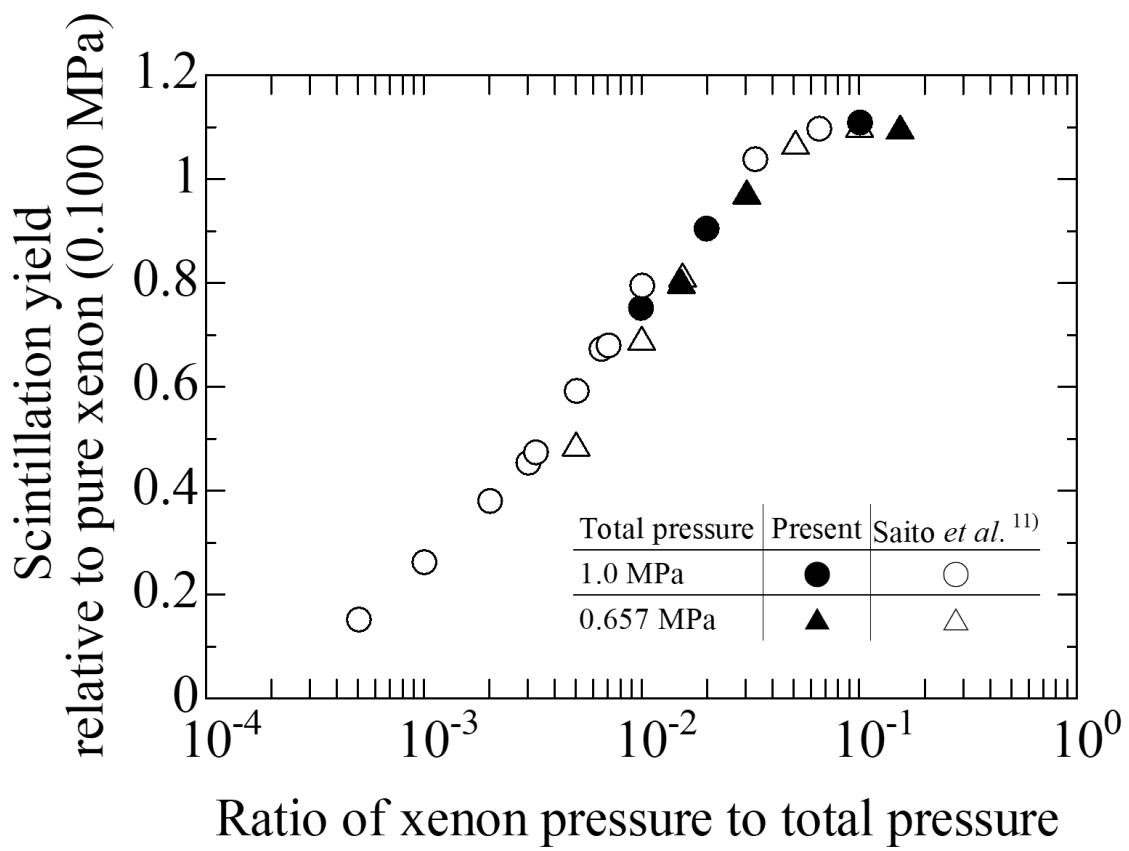


図 3.39 ヘリウム・キセノン混合ガスによるシンチレーション収量

### 3.5 本章のまとめ

ヘリウム 3・キセノン混合ガスによる電離とシンチレーションを用いた中性子測定のために、ヘリウム 4 とキセノンによりガスの基礎的なデータを取得する実験を行い、以下のデータを測定した。

- 不純物の影響を受けていないヘリウムの W 値
- ヘリウムの電離原子数と励起原子数の比  $N_{\text{ex}}/N_i$
- ヘリウム 4・キセノン混合ガスによる電離収量の変化
- ヘリウム 4・キセノン混合ガスによるシンチレーション収量の変化

ヘリウムの W 値測定では不純物の  $\text{H}_2\text{O}$  濃度と電離電子数を同時に測定し、実験値と導出した  $\text{H}_2\text{O}$  濃度と電離電子数の関係から  $\text{H}_2\text{O}$  濃度が 0 の時の電離電子数を外挿で求め、不純物の影響を受けていないヘリウムの W 値を求めた。得られた W 値は  $45.0 \pm 0.9 \text{ eV}$  であった。

ヘリウムの電離原子数と励起原子数の比  $N_{\text{ex}}/N_i$  の測定ではヘリウム 4・キセノン混合ガスを用いた電離電子数を測定し、ヘリウムの励起原子がキセノンを電離するペニング効果を利用して  $N_{\text{ex}}/N_i$  を求めた。得られた  $N_{\text{ex}}/N_i$  は  $0.541 \pm 0.005$  であった。

ヘリウム 4・キセノン混合ガスによる電離収量の変化の測定では上記の  $N_{\text{ex}}/N_i$  を求める測定と共通した実験を行った。キセノンの混合 1% で電離収量は純ヘリウムの電離収量の 1.59 倍に増加した。15% のキセノンの混合では純キセノンの電離収量の 0.918 倍となった。

ヘリウム 4・キセノン混合ガスによるシンチレーション収量の変化の測定は上記の電離収量の測定と同時に行った。3% のキセノンの混合比で 100 kPa の純キセノンのシンチレーション収量と同程度となることがわかった。10% のキセノンの混合でシンチレーション収量が飽和することを明らかにした。

## 第 4 章 中性子検出器への応用

本章では、ヘリウム 3・キセノン混合ガスによる電離とシンチレーション信号を用いた中性子検出器への応用について述べる。前章の実験で得られた結果を用い以下の項目について検討を行った。

- ・ 検出器の設計
- ・ ヘリウム 4・キセノンによる検出器の動作試験

### 4.1 緒言

第 1 章 1.1.5 で述べたようにヘリウム 3・キセノン混合ガスによる中性子検出器が開発されている。いずれもシンチレーションの測定により中性子検出を行っている。そのため検出器内部はガスを封入するだけの構造となっている。しかしながら、希ガスは放射線による電離とシンチレーションを同時に測定できる特徴がある。この特徴を生かすことで、これまでのシンチレーションのみの中性子検出に電離情報の測定を加えることで反応位置の特定ができるようになるため、中性子位置検出が可能となる。以上のことから、シンチレーションと同時に電離の情報を測定するために、ガス中に電場を印加できるように電極を検出器内部に設置する構造について検討する。

また、ヘリウム 3 は熱中性子の測定だけでなく、高速中性子のエネルギースペクトル測定にも用いられている [8]。 ${}^3\text{He}(n,p)$  反応の断面積は中性子の速度に反比例する領域に続いて単調な変化を示すため検出器としては向いている [24]。DD 核融合反応の 2.45 MeV の中性子の測定では、熱中性子の検出感度に比べて約 1 万分の 1 と小さくなる。加速器からのビーム状の中性子でないものに対しても  ${}^3\text{He}(n,p)$  反応を用いることで中性子のエネルギースペクトル測定ができる利点がある。よって、高速中性子の測定も検討を行う。

電離とシンチレーションの両方の信号の読み出しによる中性子検出器を設計する上で、中性子のエネルギー、検出器のサイズ、陽子と三重水素の飛程を考慮して、検出媒体であるヘリウム・キセノン混合ガスを適切な混合比に設定する必要がある。図 4.1 に第 3 章の図 3.38 と図 3.39 により測定したヘリウム・キセノン混合ガスの電離収量とシンチレーション収量をまとめたものを示す。黒塗のプロットが電離収量



で白抜きのプロットがシンチレーション収量である。横軸はキセノンの混合比で縦軸は純キセノン 0.100 MPa のシンチレーション収量を基準にした相対収量と、純ヘリウムを基準とした相対電離収量である。シンチレーション収量はキセノンの混合比が 0.1 %から 10 %の範囲では増加する領域となっており、電離収量も同様である。

したがって、シンチレーションと電離収量が急激に変化しない混合比を選択することが望ましい。それゆえ、図 4.1 からキセノンの混合比が 10 %以上であることが適しているとわかる。

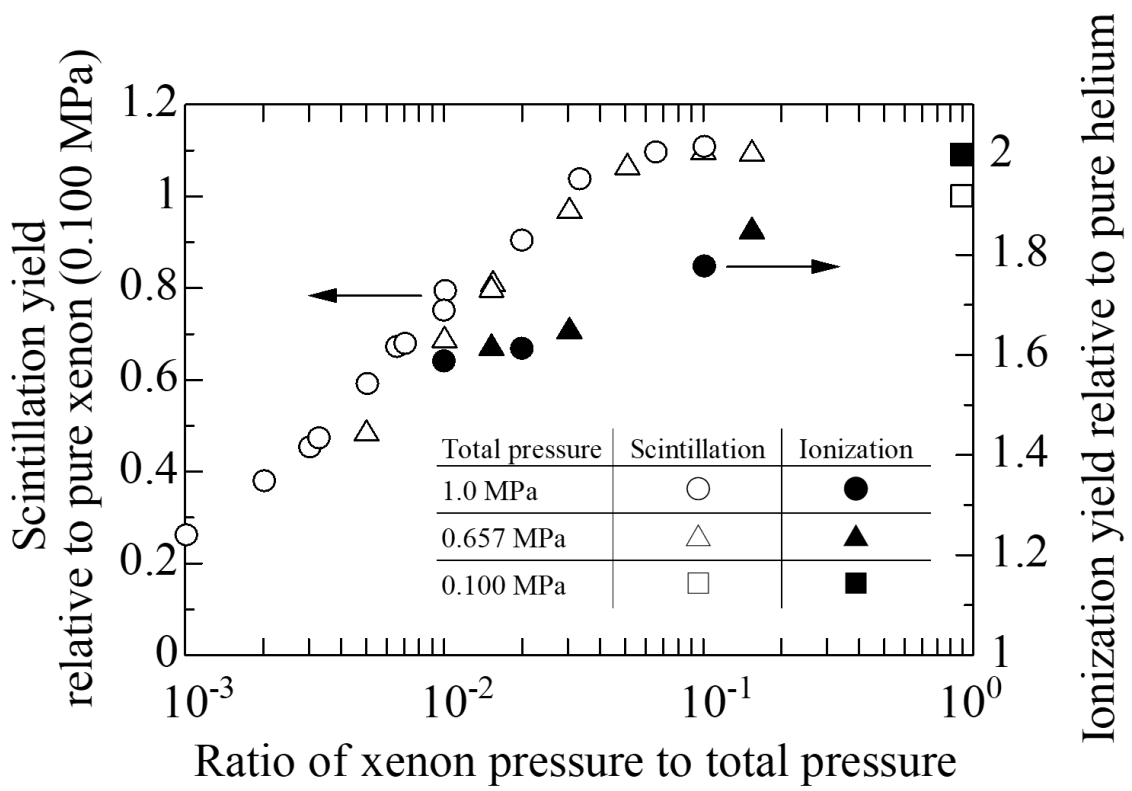


図 4.1 キセノンの混合比に対するシンチレーションと電離収量の変化

## 4.2 設計方針

検出器の寸法のパラメータは以下の条件から決定した。また、検出器として移動させることができるように、可搬性を持たせ、ガスの純化を行わない構造とすることにした。

### A) 熱中性子の検出効率 $\varepsilon$

検出器へ入射する熱中性子に対する検出効率 $\varepsilon$ は以下の式となる。

$$\varepsilon = 1 - e^{-N\sigma d} \quad (4.1)$$

ここで、 $N$ は ${}^3\text{He}$ の数密度 [ $\text{cm}^{-3}$ ]、 $\sigma$ は熱中性子に対する ${}^3\text{He}(n,p)$ 反応の断面積 ( $5330 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ )、 $d$ は検出器の直径 [ $\text{cm}$ ]である。これは熱中性子が直径  $d$  [ $\text{cm}$ ]を通過するまでに反応する割合を示している。

### B) ${}^3\text{He}$ の分圧 $P_{3\text{He}}$ と直径 $d$

式(4.1)より検出効率 $\varepsilon$ を決めると、それに必要な ${}^3\text{He}$ の数密度 $N_{3\text{He}}$  [ $\text{cm}^{-3}$ ]と直径 $d$  [ $\text{cm}$ ]が以下の式で求まる。

$$N_{3\text{He}} \cdot d = -\frac{\ln(1 - \varepsilon)}{\sigma} \quad (4.2)$$

式(4.2)より、設定したい検出効率 $\varepsilon$ を満たす ${}^3\text{He}$ の数密度 $N_{3\text{He}}$  [ $\text{cm}^{-3}$ ]と直径 $d$  [ $\text{cm}$ ]が積の形で求めることができる。

また、数密度 $N_{3\text{He}}$  [ $\text{cm}^{-3}$ ]を理想気体の状態方程式 $PV = m/M \cdot RT$ より圧力 $P_{3\text{He}}$  [ $\text{Pa}$ ]で表すと次の式となる。

$$N_{3\text{He}} = \frac{m}{V} \cdot \frac{N_A}{M} \times 10^{-6} = \frac{P_{3\text{He}} \cdot N_A}{RT} \times 10^{-6} \quad (4.3)$$

ここで、 $V$ は体積 [ $\text{m}^3$ ]、 $m$ は質量 [ $\text{g}$ ]、 $M$ は分子量 [ $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ]、 $N_A$ はアボガドロ定数  $6.02 \times 10^{23}$  [ $\text{mol}^{-1}$ ]、 $R$ は気体定数  $8.31$  [ $\text{J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1}$ ]、 $T$ は温度 [ $\text{K}$ ]である。温度 $T$ は室温で $300 \text{ K}$ とした。式(4.2)、(4.3)より ${}^3\text{He}$ の分圧 $P$  [ $\text{Pa}$ ]と検出器の直径 $d$  [ $\text{cm}$ ]は以下の関係となる。

$$P_{\text{He}} \cdot d = -\frac{\ln(1-\varepsilon)}{\sigma} \times \frac{RT}{N_A \times 10^{-6}} \quad (4.4)$$

C) Xe の分圧  $P_{\text{Xe}}$

$^3\text{He}$  に添加する Xe の分圧  $P_{\text{Xe}}$  [Pa] は図 4.1 の測定結果より 10 % 以上の混合とする。そこで Xe の混合比の上限を 90 % とし、10 % から 90 % の混合比で検討を行う。

D) Cathode-Grid 間距離  $z$

B) と C) の  $^3\text{He}$  の数密度  $N_{\text{He}}$  [ $\text{cm}^{-3}$ ] と Xe の分圧  $P_{\text{Xe}}$  [Pa] より全圧  $P_{\text{total}}$  [Pa] と数密度  $N_{\text{total}}$  [ $\text{cm}^{-3}$ ] が求まる。さらに、ガス中に印加する電場強度によって Cathode-Grid 間の取ることができる電極間距離が決まる。ガス圧が高くなるほど、必要な電圧が高くなる。電場強度は図 3.22 の電離収量の電場依存性の測定結果より、必要な換算電場強度を  $E/N_{\text{total}} = 0.5 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$  と決定した。これにより電場強度  $E$  [ $\text{V} \cdot \text{cm}^{-1}$ ] は以下の式で表される。

$$E = N_{\text{total}} \times 0.5 \times 10^{-17} \quad (4.5)$$

式(4.5)より、理想気体の状態方程式  $PV = m/M \cdot RT$  を用いて数密度  $N_{\text{total}}$  [ $\text{cm}^{-3}$ ] を全圧  $P_{\text{total}}$  [Pa] で表すと以下の式となる。

$$N_{\text{total}} = \frac{m}{V} \cdot \frac{N_A}{M} \times 10^{-6} = \frac{P_{\text{total}} \cdot N_A}{RT} \times 10^{-6} \quad (4.6)$$

よって式(4.5)に式(4.6)を代入することで電場強度  $E$  [ $\text{V} \cdot \text{cm}^{-1}$ ] を全圧  $P_{\text{total}}$  [Pa] で表すことができ、以下の式となる。

$$E = 1.21 \times 10^{-3} \times P_{\text{total}} \quad (4.7)$$

そこで、式(4.7)の電場強度  $E$  [ $\text{V} \cdot \text{cm}^{-1}$ ] を印加するため電圧  $X$  [V] で Cathode-Grid 間距離  $z$  [cm] が決まってくる。高圧電源として最大出力 6 kV のものを使用することを想定すると、Cathode-Grid 間距離  $z$  [cm] は以下の通りになる。

$$z = \frac{X}{E} = \frac{4.96}{P_{total}} \times 10^6 \quad (4.8)$$

以上から、A~Dのパラメータによって検出部の寸法が決まる。具体的な値を当てはめた例を表4.1に示す。Aの検出効率を80%とし、それをもとにBの $^3\text{He}$ の分圧 $P_{^3\text{He}}$ と直径 $d$ が求まる。Bの中で組み合わせができ、 $^3\text{He}$ の分圧 $P_{^3\text{He}}=200\text{ kPa}$ で直径 $d=6.25\text{ cm}$ の組み合わせを選択した結果がCのXeの分圧 $P_{\text{Xe}}$ となっている。Xeの混合比によって分圧 $P_{\text{Xe}}$ が決まり、それぞれの条件における結果がDのCathode-Grid間距離 $z$ である。

表 4.1 検出器パラメータの選定

A) 熱中性子の検出効率  $\varepsilon$

検出効率 $\varepsilon$	90 %	80 %	70 %
-----------------------	------	------	------

B)  $^3\text{He}$  の分圧  $P_{^3\text{He}}$  と直径  $d$

$^3\text{He}$ の分 圧 $P_{^3\text{He}}$ [kPa]	50	100	150	200	250	300
直径 $d$ [cm]	25.0	12.5	8.34	6.25	5.00	4.17

C) Xe の分圧  $P_{\text{Xe}}$

Xe 混合比	10 %	20 %	30 %	40 %	50 %	60 %	70 %	80 %	90 %
Xe の分圧 $P_{\text{Xe}}$ [kPa]	22.2	50.0	85.7	133	200	300	467	800	1800

D) Cathode-Grid 間距離  $z$

全圧 $P_{total}$ [kPa]	222	250	286	333	400	500	667	1000	2000
Cathode- Grid 間距 離 $z$ [cm]	22.3	19.8	17.3	14.9	12.4	9.92	7.44	4.96	2.48

そこで、検出器として検出効率は高く、有感領域を広くとれるなどの条件を考慮し、以下を検出器のパラメータとして決定した。

表 4.2 検出器として決定したパラメータ

$^3\text{He}$ の分圧 $P_{^3\text{He}}$	直径 $d$	全圧 $P_{total}$	Cathode-Grid 間距離 $z$
150 ~ 200 kPa	8 cm	~600 kPa	10 cm

上記のパラメータをもとに検出器の設計を行った。

有感領域である直径 8 cm×長さ 10 cm の空間が確保できる大きさの圧力容器の検討を行った。まず、ICF 規格を用いることを考えた。内径を 8cm より広く取らないといけないことから、ICF203 (内径 : 147 mm) が候補となる。しかしながら、フランジが直径 203 mm で厚さ 22 mm と大きくかつ重くなってしまい、中性子検出器として中性子場への持ち込みを考慮した可搬性等から ICF 規格を用いることをやめた。そこで、ガスケットを使用する ICF 規格と比べて構造が簡素化できる O リングによるシール構造を取り入れることとした。O リングは平面固定用として用いるため G 規格の O リングを使用する。G 規格の O リングのリングサイズと溝の寸法から考慮して、O リングは G-190 (線径:  $5.7 \pm 0.13$  mm, 内径:  $189.3 \pm 1.47$  mm, 外径: 200.7 mm) を用いることとした。また、O リングの溝の位置は加わる圧力の方向で異なってくる。内圧がかかる場合は O リングの外径に溝の外壁が密着するようにする必要があり、外圧がかかる場合は O リングの内径が溝の内壁に密着する必要がある。規格によって内圧用と外圧用の溝の寸法がそれぞれ決まっている。しかし、設計を行っている本検出器では内部を一度真空引きし、その後ガスを詰めて加圧を行う。そのため、真空引きでは外圧がかかり、ガスを詰めることで内圧がかかる。そこで、外圧と内圧の両方に対応させる必要がある。規格では両方に対応できるようにはなっていないため、O リングの溝の寸法を工夫することで対応させる。検出器は加圧して用いるため、内圧用の溝の寸法を基準とする。内圧用の寸法で外圧がかかると、溝の内壁と O リングの内径に隙間が空いてしまうことが問題となる。そこで溝の内壁を O リングの内径に近づけて、O リングが溝の内壁と外壁の両方に密着できるように設計を変

更することで問題を解消させる。しかし、完全に両側から密着させる寸法にしてしまうと、規格の溝の寸法と比べて溝に対して O リングの体積が大きくなるため、O リングの圧縮や溝からはみだしにより、O リングが損傷してしまう可能性がある。この問題を解決するために、溝の断面積に対する O リングの断面積で表される充填率を規格で決まっている 75 % から 90 % にすることで、溝の幅を狭めて両圧に対応させることとした。充填率  $F$  は以下の式により求まる。

$$F = \frac{\pi/4 \times W^2}{G \times H} \quad (4.9)$$

ここで、 $W$  は O リングの線径 [mm]、 $G$  は溝の幅 [mm]、 $H$  が溝の深さ [mm] である。O リング G-190 の規格より内圧用の溝の寸法は  $G = 7.5$  mm、 $H = 4.6$  mm となっている。式(4.9)から充填率  $F$  が 0.9 となる溝の幅  $G$  を求めると 6.2 mm となる。この結果より余裕を持たせて溝の幅  $G$  を 6.4 mm と決定した。

全圧 600 kPa の圧力を満たすために、圧力容器に必要な肉厚の計算により確認した。内圧を受ける薄肉円筒の応力は円周応力が最も大きく、円周応力のみを考慮すればよい。内圧  $p$  [ $\text{N} \cdot \text{mm}^{-2}$ ] を受ける図 4.2 のような内径  $D$  [mm]、肉厚  $t$  [mm] の薄肉円筒の円周応力  $\sigma_t$  [ $\text{N} \cdot \text{mm}^{-2}$ ] は以下の式で与えられている[43]。

$$\sigma_t = \frac{pD}{2t} \quad (4.10)$$

そこで、内径  $D = 180$  mm、内圧  $p = 600$  kPa =  $0.6$   $\text{N} \cdot \text{mm}^{-2}$ 、SUS304 の耐力  $205$   $\text{N} \cdot \text{mm}^{-2}$  と安全係数 4 として円周応力  $\sigma_t = 205/4 = 51.3$   $\text{N} \cdot \text{mm}^{-2}$  を式(4.10)に代入して必要な肉厚  $t$  を求めた。

$$t = \frac{pD}{2\sigma_t} = 1.1 \text{ mm} \quad (4.11)$$

これにより、圧力容器は 1.1 mm 以上の肉厚で設計を行うことを決めた。また、圧力容器の円板のふたとして、フランジの板厚も同様に決める必要がある。フランジは半径方向の応力が最大となるのでこれのみを



考慮する。内圧  $p$  [ $\text{N} \cdot \text{mm}^{-2}$ ] を受ける外半径  $r$  [ $\text{mm}$ ]、板厚  $t$  [ $\text{mm}$ ] の円板の半径方向の応力  $\sigma_r$  [ $\text{N} \cdot \text{mm}^{-2}$ ] は以下の式で与えられている [43]。

$$\sigma_r = 0.75 \times \frac{pr^2}{t^2} \quad (4.12)$$

そこで、内径  $r = 90 \text{ mm}$ 、内圧  $p = 600 \text{ kPa} = 0.6 \text{ N} \cdot \text{mm}^{-2}$ 、SUS304 の耐力  $205 \text{ N} \cdot \text{mm}^{-2}$  と安全係数 2 として半径方向の応力  $\sigma_r = 205/2 = 103 \text{ N} \cdot \text{mm}^{-2}$  を式(4.12)に代入して必要な板厚  $t$  を求めた。

$$t = \sqrt{\frac{0.75pr^2}{\sigma_r}} = 6.0 \text{ mm} \quad (4.13)$$

これにより、圧力容器のフランジは  $6.0 \text{ mm}$  以上の板厚で設計を行うことを決めた。

ガスを封入する領域と光電子増倍管を設置する真空領域は真空紫外領域の光を透過できる  $\text{MgF}_2$  結晶で区切る。そこで全圧  $600 \text{ kPa}$  を想定して結晶の耐圧を計算により確認した。結晶耐圧計算式として式(4.14)が与えられている [44]。

$$t/D = 1.06 \left( \frac{P}{F_a} \right)^{1/2} \quad (4.14)$$

ここで、 $t$  は結晶厚さ [ $\text{cm}$ ]、 $D$  は結晶の開放部の直径 [ $\text{cm}$ ]、 $P$  は単位面積当たりの圧力 [ $\text{kg}/\text{cm}^2$ ]、 $F_a$  は  $\text{MgF}_2$  の見掛けの弾性限界  $506.21 \text{ kg}/\text{cm}^2$  である。加圧条件  $P = 600 \text{ kPa} = 6.12 \text{ kg}/\text{cm}^2$  と結晶厚さ  $t = 1 \text{ cm}$  とし式(4.14)から結晶の開放部の直径  $D$  を求めると以下となる。

$$D = \frac{t}{1.06 \left( \frac{P}{F_a} \right)^{1/2}} = 8.5 \text{ cm} \quad (4.15)$$

よって、開放部を最大で  $8.5 \text{ cm}$  取ることができる。そこで  $\text{MgF}_2$  結晶として応用光研工業株式会社製の直径  $8.0 \text{ cm}$  × 厚さ  $1.0 \text{ cm}$  のもの (図

4.3) を用いることで、取ることができる最大の開放部の寸法より結晶の直径が小さいことから耐圧を満たす。

以上の条件から検出器を設計し製作した。図面を図 4.4 に示す。ガスを封入する領域と光電子増倍管を設置する領域の二つのステンレス製のチェンバーから構成されている。図 4.5 に検出器の外観を示す。ガスを封入するチェンバー内に電離電子を測定するために、カソード、グリッド、コレクター、シェイピングリングからなるグリッド型電離箱を導入している。カソードは直径 126 mm の平板で、中央に第 3 章の 3.2.1 と同様に動作確認のために直径 2 mm のステンレス製ねじの上面に  $^{241}\text{Am}$  が電着されている  $\alpha$  線源を取り付けている。グリッドとコレクターは外径 126 mm、内径 80 mm のステンレス製の中空円板に直径 0.1 mm の金メッキタングステンワイヤーを 1 mm 間隔に張った構造となっている (図 4.6)。シェイピングリングは外径 126 mm、内径 80 mm のステンレス製の中空円板で一様な電場を形成させるために 20 mm 間隔で設置している。カソード・グリッド間は 100 mm、グリッド・コレクター間は 5 mm となっている。グリッド型電離箱の写真を図 4.7 に示す。

電離電子はコレクターから信号を取り出す。シンチレーションは光電子増倍管 (R208, Hamamatsu Photonics) を用いた。光電面は Sb-Cs、窓材は融解石英、感度波長域が 160~600 nm で、受光面は直径 46 mm である。コレクターからの電離電子と光電子増倍管の信号はそれぞれ電荷有感型プリアンプ (PA: CP580H, CP580P, Clear Pulse) と、メインアンプ (MA: CP403, Clear Pulse)、(MA: 572A, ORTEC) を通す。電荷有感型プリアンプの時定数は 2.5 ms で、メインアンプの時定数は電離電子とシンチレーションの測定でそれぞれ 50  $\mu\text{s}$  と 2  $\mu\text{s}$  である。メインアンプからの信号は 1024-channel pulse height to digital converter (PDC: A3400, Nikiglass Co.Ltd.) によって波高分析する。

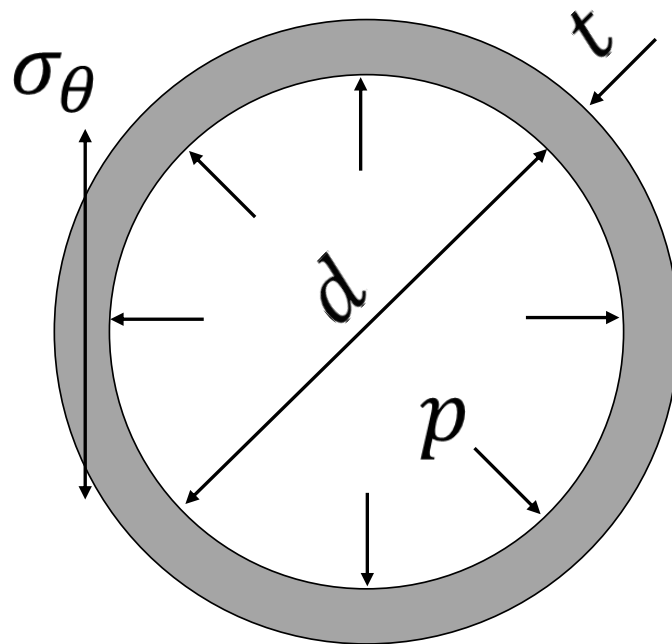
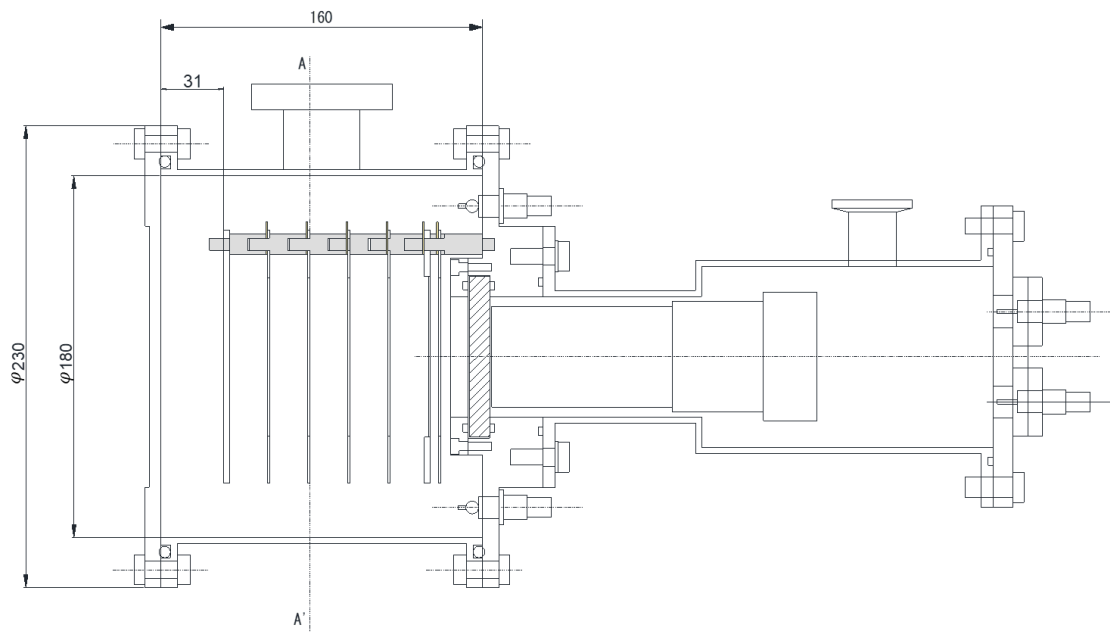


図 4.2 内圧を受ける薄肉円筒の断面。内圧  $p$  [ $\text{N} \cdot \text{mm}^{-2}$ ]、内径  $D$  [ $\text{mm}$ ]、肉厚  $t$  [ $\text{mm}$ ]、円周応力  $\sigma_t$  [ $\text{N} \cdot \text{mm}^{-2}$ ] [43]



図 4.3 MgF<sub>2</sub> 結晶 直径 8.0 cm×厚さ 1.0 cm (応用光研工業株式会社製)



A-A' 断面

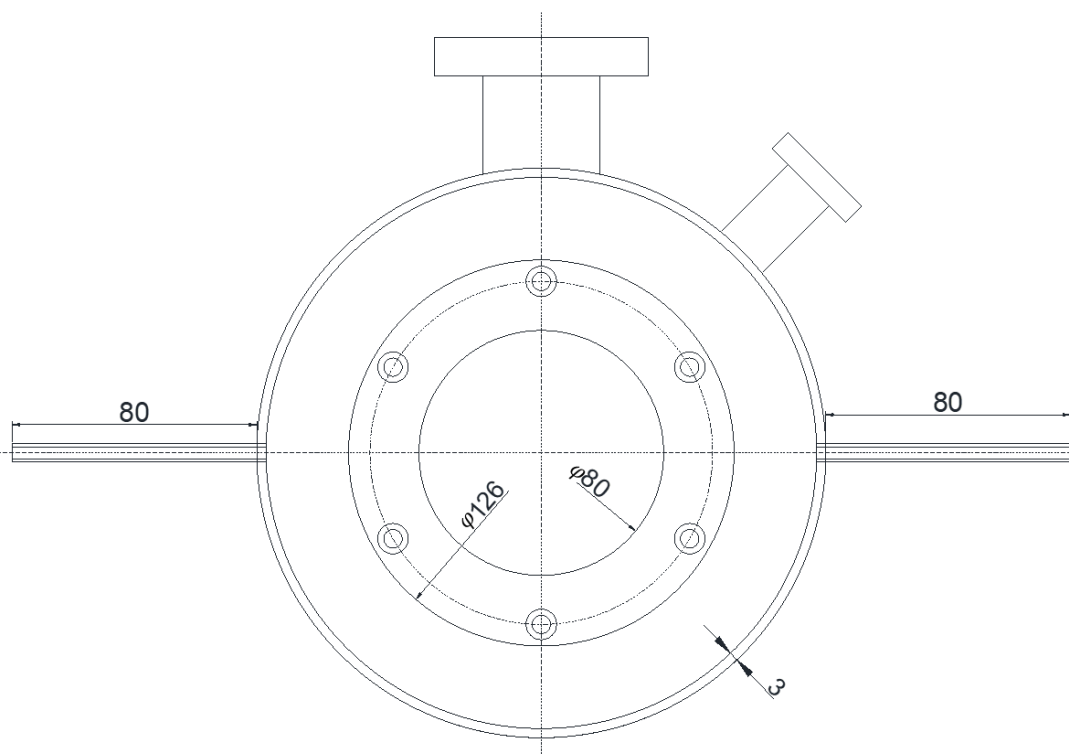


図 4.4 設計・製作した検出器の図面

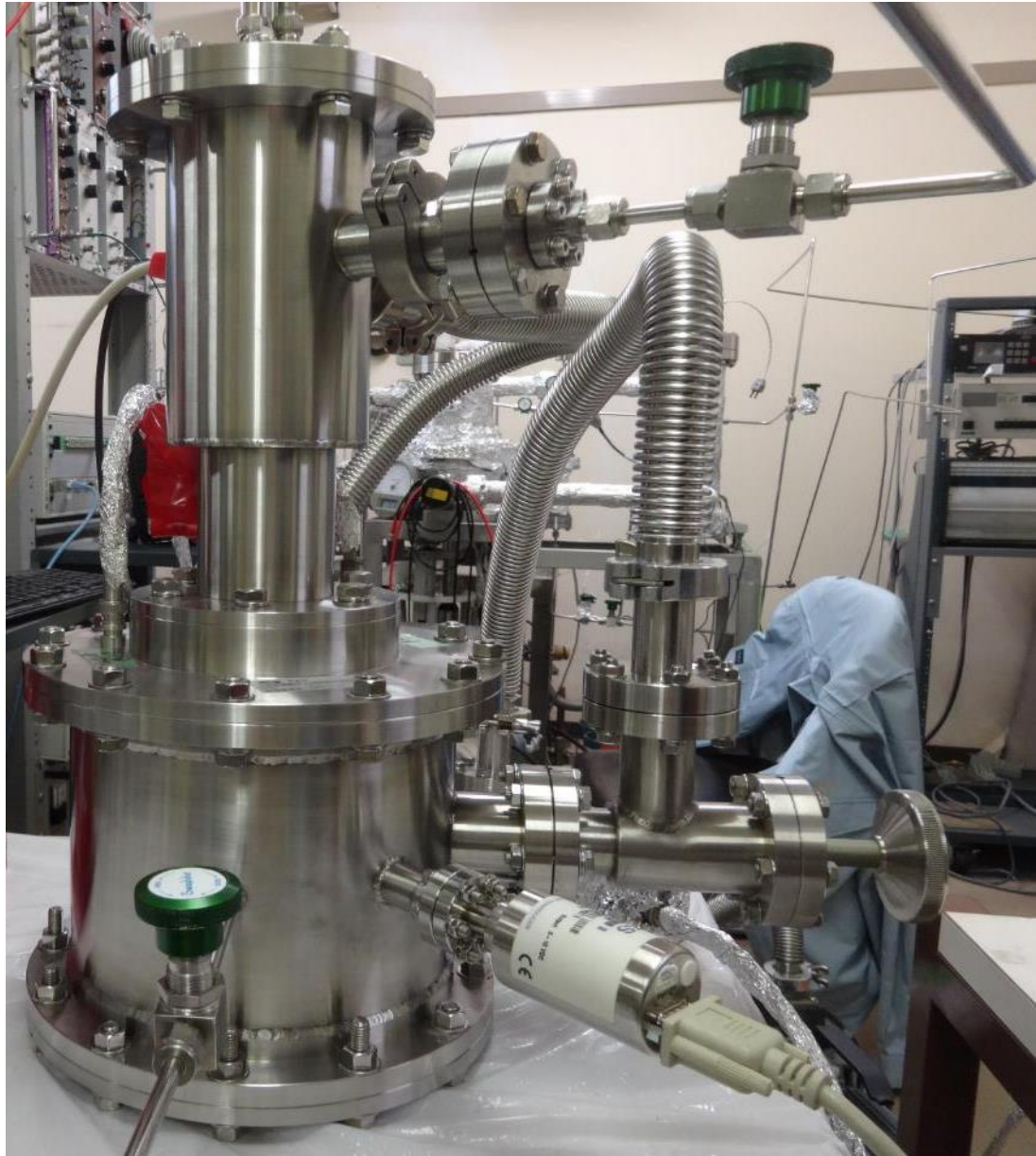


図 4.5 設計・製作した検出器の外観写真

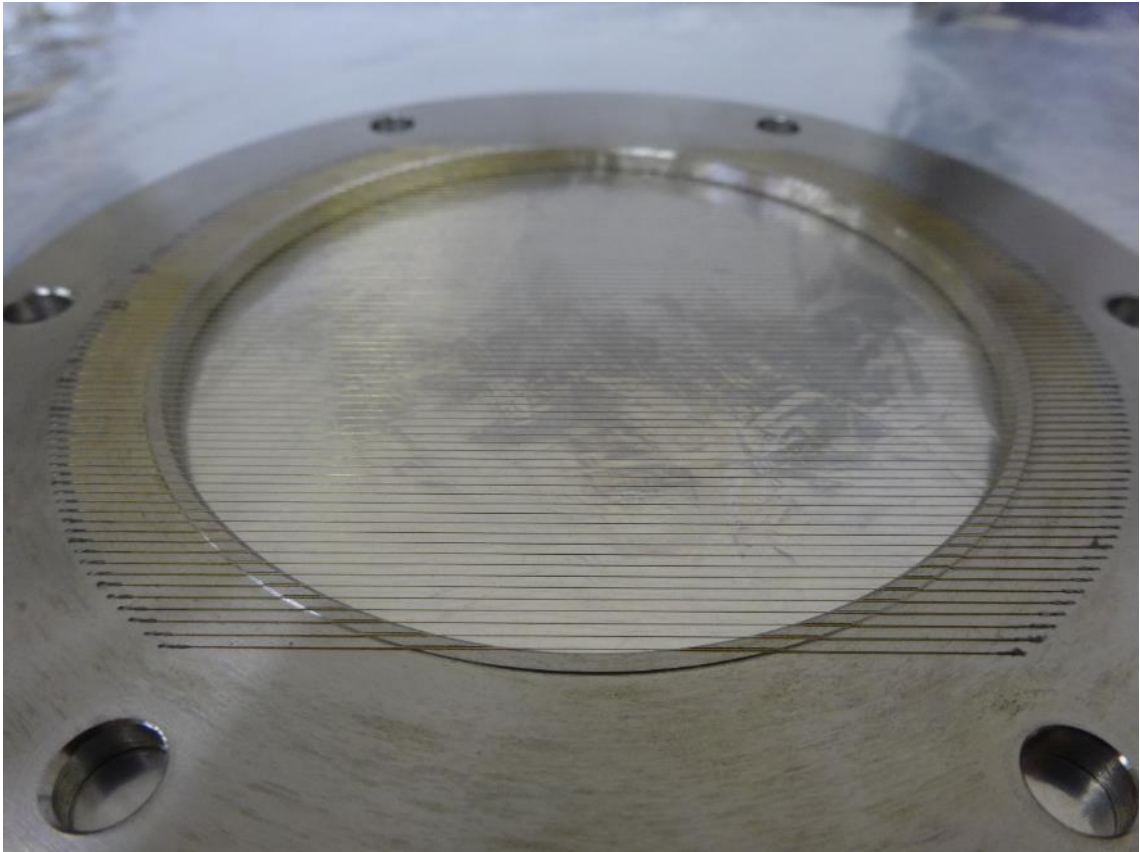


図 4.6 グリッドとコレクターの写真



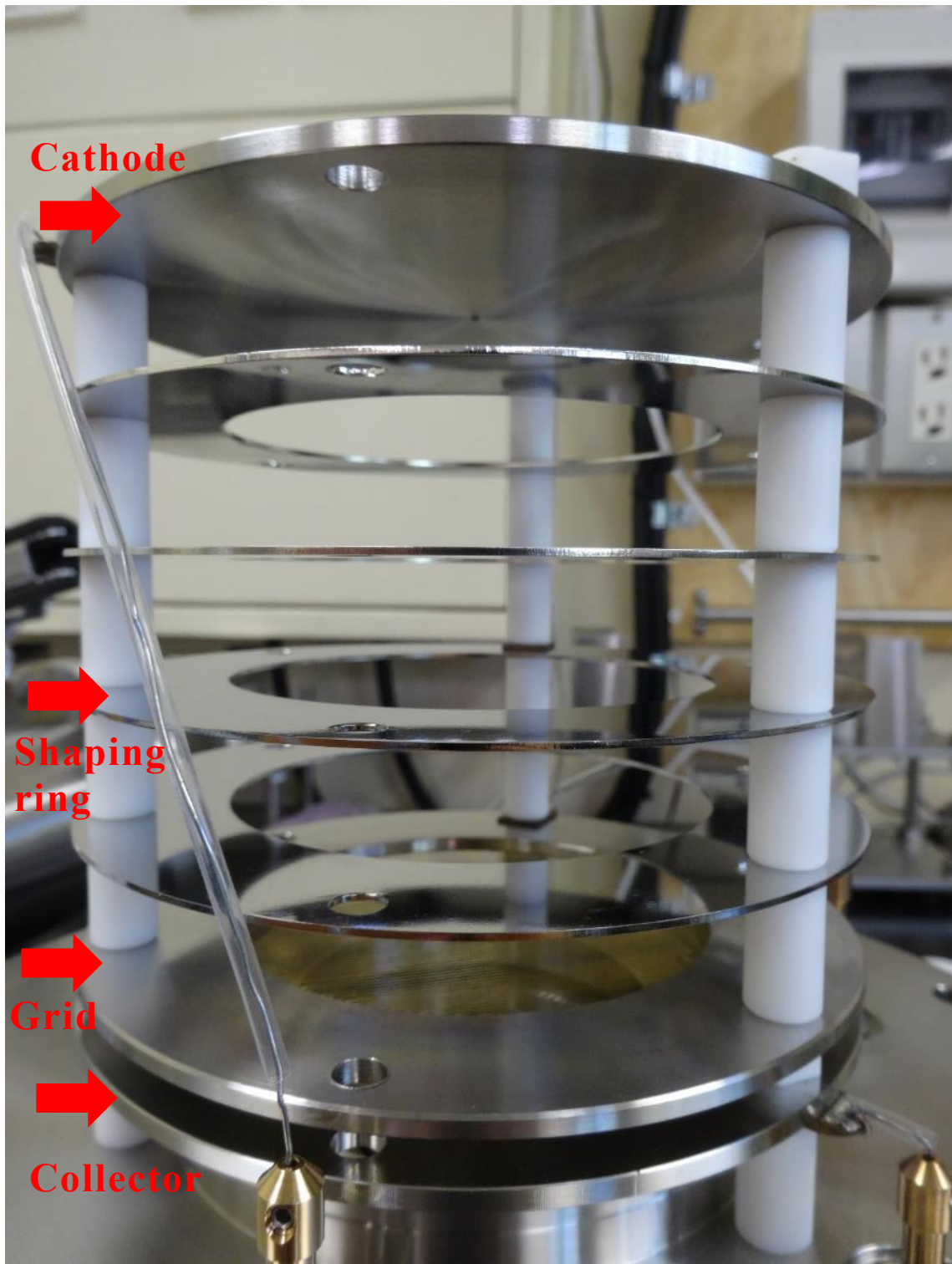


図 4.7 グリッド型電離箱の外観写真



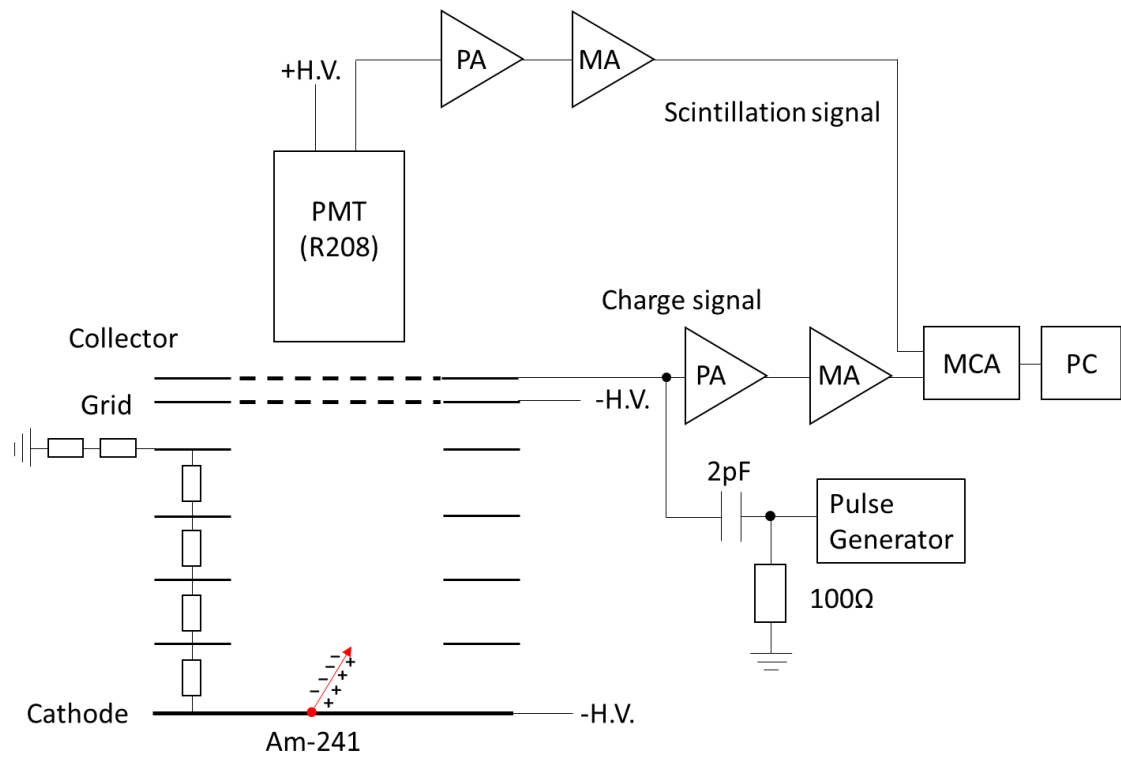


図 4.8 検出器における回路構成

シンチレーション光子の収集効率を見積もるために、発光点から光電子増倍管の光電面を見込む立体角 $\Omega$ の計算を行った。計算を行うための各パラメータを図 4.9 に示す。 $R$ は光電子増倍管の光電面半径、 $h$ は発光点から光電面までの距離、 $\rho$ は発光点と光電面の中心点との水平方向距離、 $\xi$ は光電面の中心線と $\rho$ のなす角である。全立体角に対する発光点から光電面を見込む立体角 $\Omega$ は以下の式で与えられている[45]。

$$\Omega = 2\pi - \int_0^{2\pi} G d\xi. \quad (4.16)$$

$$G = \frac{h(h^2 + \rho^2 + R\rho\sin\xi)}{(h^2 + \rho^2\cos^2\xi)(h^2 + R^2 + \rho^2 + 2R\rho\sin\xi)^{\frac{1}{2}}}. \quad (4.17)$$

使用している光電子増倍管の光電面半径は $R = 23 \text{ mm}$ である。 $\alpha$ 線源はカソードの中央に設置しているため $h$ と $\rho$ は $\alpha$ 線の放出角度によって変化する。SRIM コード[42]よりヘリウム 4 150 kPa + キセノン 150 kPa での 5.49 MeV の $\alpha$ 線の飛程は 14.5 mm、重心は 8.7 mm と求めた。線源から $\alpha$ 線の飛跡の重心までの距離から $h$ と $\rho$ を求めた。カソードに対する $\alpha$ 線の放出角が $0^\circ$ から $90^\circ$ の場合の立体角 $\Omega$ を図 4.10 に示す。 $\alpha$ 線がカソードに対して水平方向 $0^\circ$ に放出された場合は、重心が光電面から最も遠くなり中心軸からもずれることから立体角 $\Omega$ が小さくなり、 $\alpha$ 線の放出角が $90^\circ$ の場合は、重心が光電面に最も近くなるために立体角 $\Omega$ が大きくなる。 $\alpha$ 線の放出角 $0^\circ$ から $90^\circ$ に対応する立体角 $\Omega$ は $0.0955 \sim 0.110 \text{ sr}$ となる。また、有感領域内で立体角が最も小さくなる箇所は光電面から最も遠くなるカソード面の端となる。この箇所の立体角 $\Omega$ は $0.0844 \text{ sr}$ となり、ヘリウム 4 150 kPa + キセノン 150 kPa での 5.49 MeV の $\alpha$ 線でカソードからの放出角 $0^\circ$ の 88 %となる。

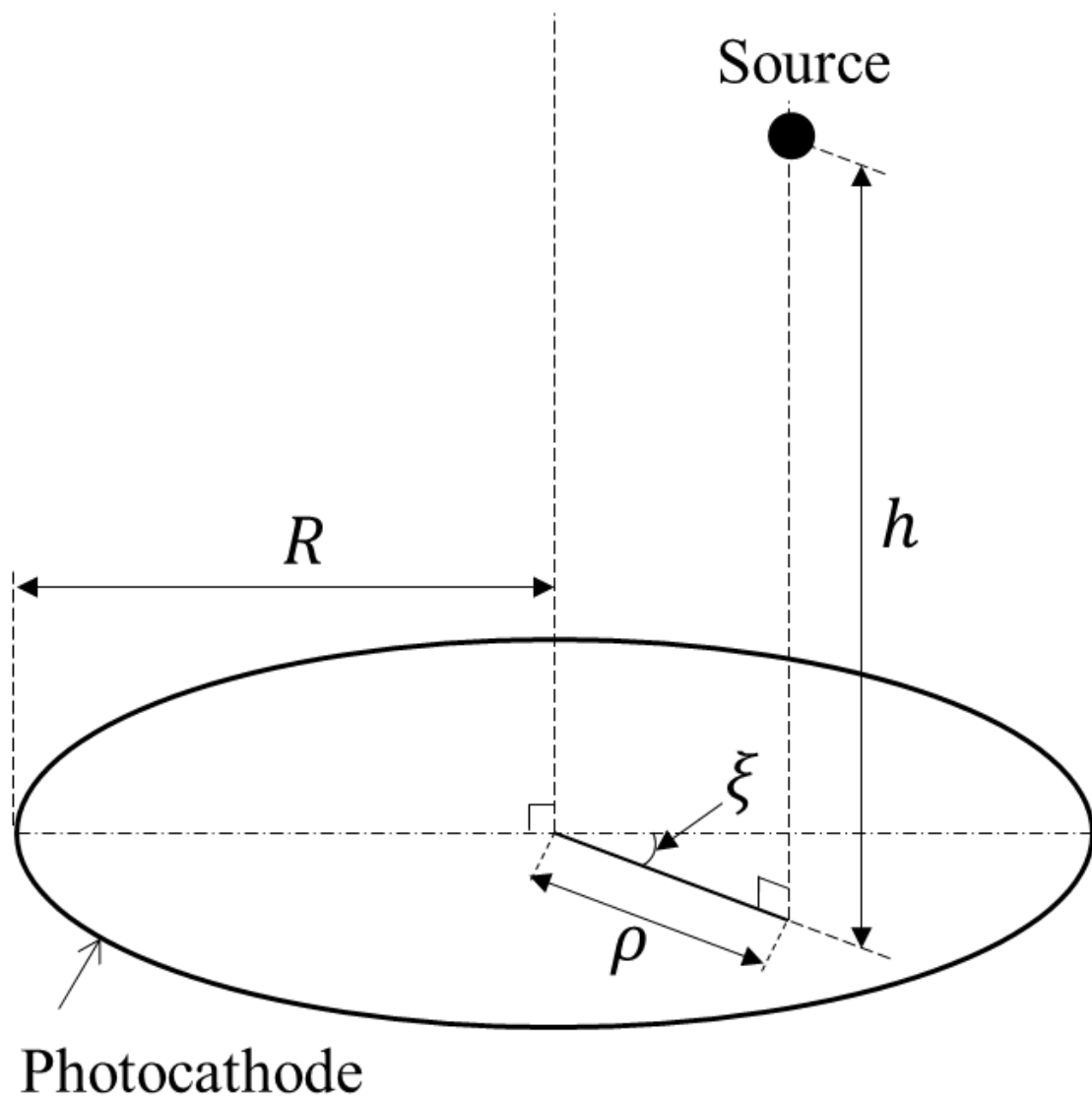


図 4.9 発光点から光電面を見込む立体角を計算する各パラメータ

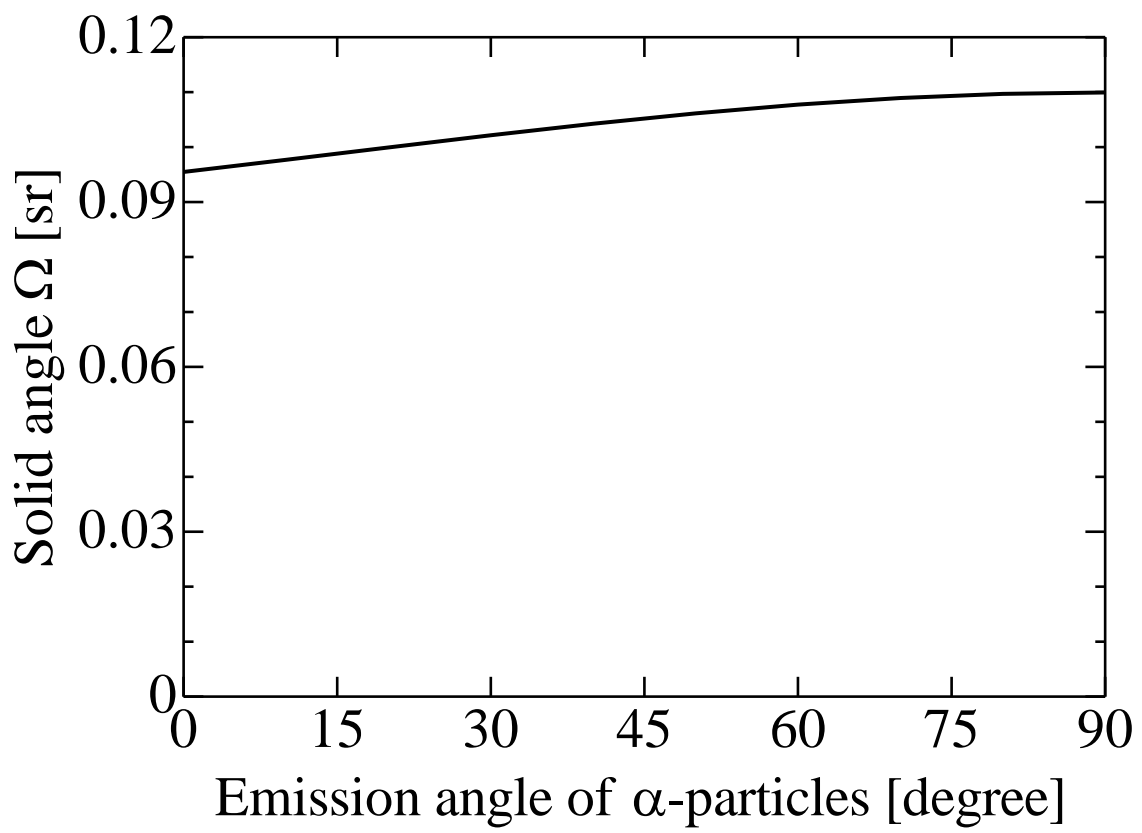


図 4.10 カソードからの $\alpha$ 線の放出角度と立体角の関係

## 4.3 動作試験

### i) リーク・加圧試験

設計を行った実験装置が設計圧力要件を満たすことを確認するために、真空中でのリークテストと加圧試験を行った。図 4.11 に実験装置の配管模式図を示す。リークテストとして PMT chamber と Gridded ionization chamber を真空にし、ヘリウムを吹き付け、質量分析計(835 VQM, Granville-Phillips)により圧力の変動を測定した。エタノールでも同様に吹き付け測定した。その結果、圧力の変動は検出されず、実験装置に漏れがないことを確認した。次に加圧試験として、PMT chamber を真空にした状態で Gridded ionization chamber に窒素ガス 500 kPa を封入し、圧力計(722A Baratron, MKS)により圧力の経時変化を測定した。図 4.12 にガス封入後から 1040 分間の圧力測定の結果を示す。ガス封入時の圧力から変化はなく、一定を保っていることがわかる。以上のことから、内圧と外圧の両方に対応できるように改良した Oリングの溝と  $\text{MgF}_2$  の結晶による加圧側と真空側の区切る機構に問題がないことを確認した。

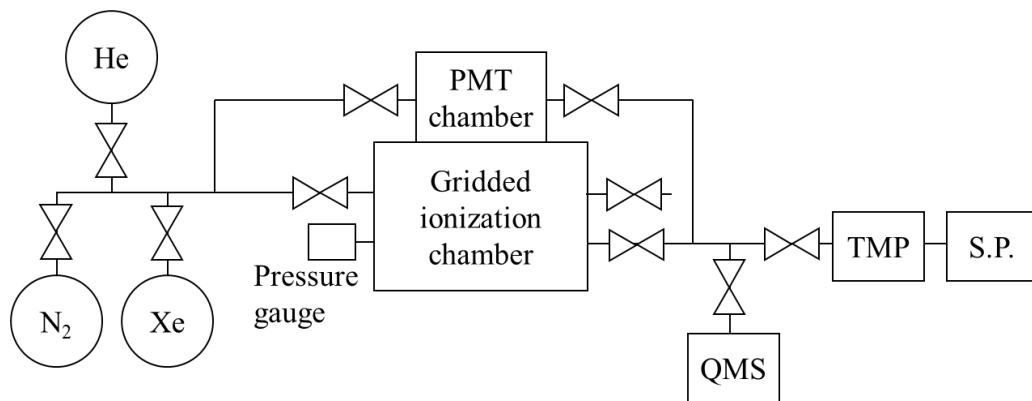


図 4.11 実験装置の配管模式図

R.P. : スクロールポンプ、TMP : ターボ分子ポンプ、QMS : 四重極質量分析計 (835 VQM, Granville-Phillips)、Pressure gauge : 圧力計 (722A Baratron, MKS)

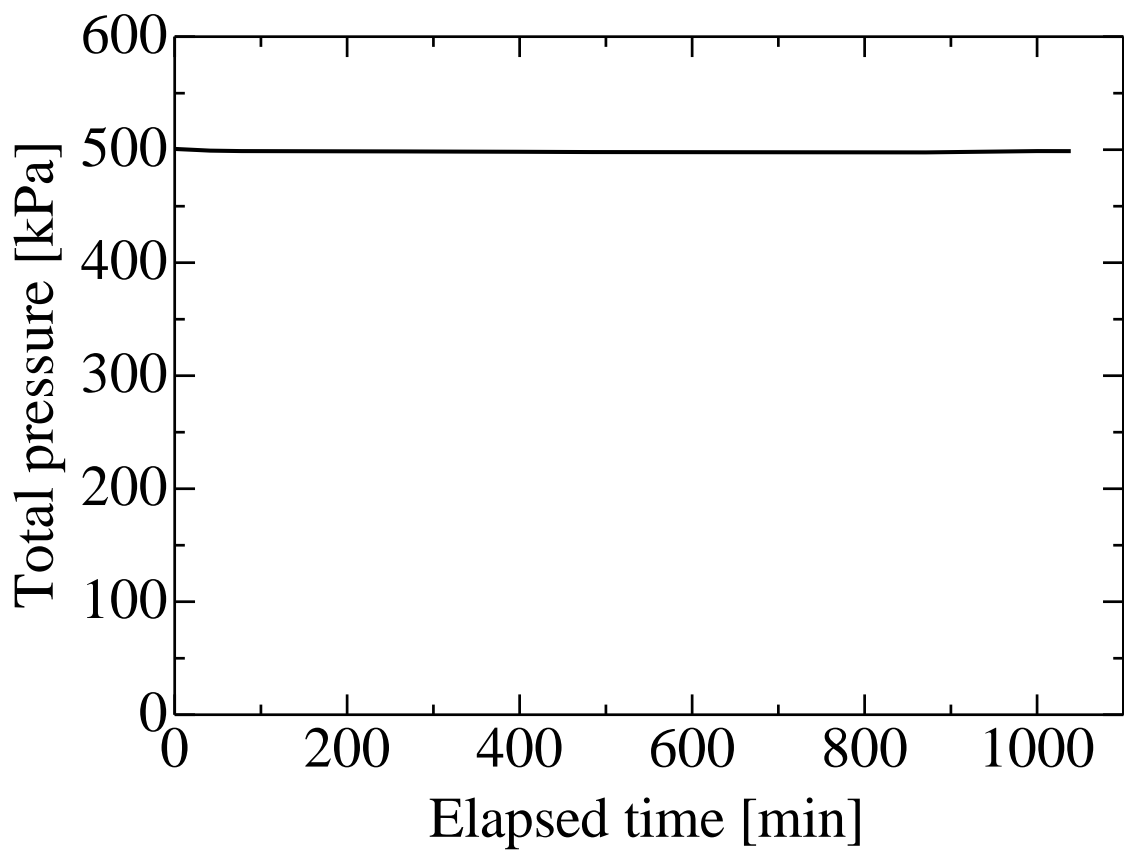


図 4.12 窒素ガス 500 kPa を封入した際の圧力の経時変化

## ii) ヘリウム 4・キセノン混合ガスによる測定

ヘリウム 150 kPa、キセノン 150 kPa の混合ガスによる動作試験を行った。5.49 MeV の  $\alpha$  線の飛程は 14.5 mm となっている。図 4.8 より、光電子増倍管からのシンチレーション信号とコレクターに接続した電荷有感型プリアンプからの電離電子の信号をオシロスコープを用いて記録した。図 4.13 にカソード・グリッド間の換算電場強度が  $0.4 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$  の時の信号波形を示す。 $\alpha$  線によりガスが電離・励起され、最初にシンチレーション光が検出されている。次に電離電子がカソード・グリッド間を移動し、グリッド・コレクター間に入り信号が立ち上がり始めている。この時間差は約 25  $\mu\text{s}$  となっている。シンチレーションと電離電子の信号の時間差がカソード・グリッド間の電子の移動時間となる。

シンチレーション収量の測定として、光電子増倍管からの信号を電荷有感型アンプとメインアンプを通して波高分析した結果を図 4.14 に示す。波高分布は電場を印加しない場合とカソード・グリッド間の換算電場強度を  $0.35 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$  とした場合である。シンチレーション収量は波高分布のピーク領域をガウス関数でフィッティングして得たピーク波高値とする。



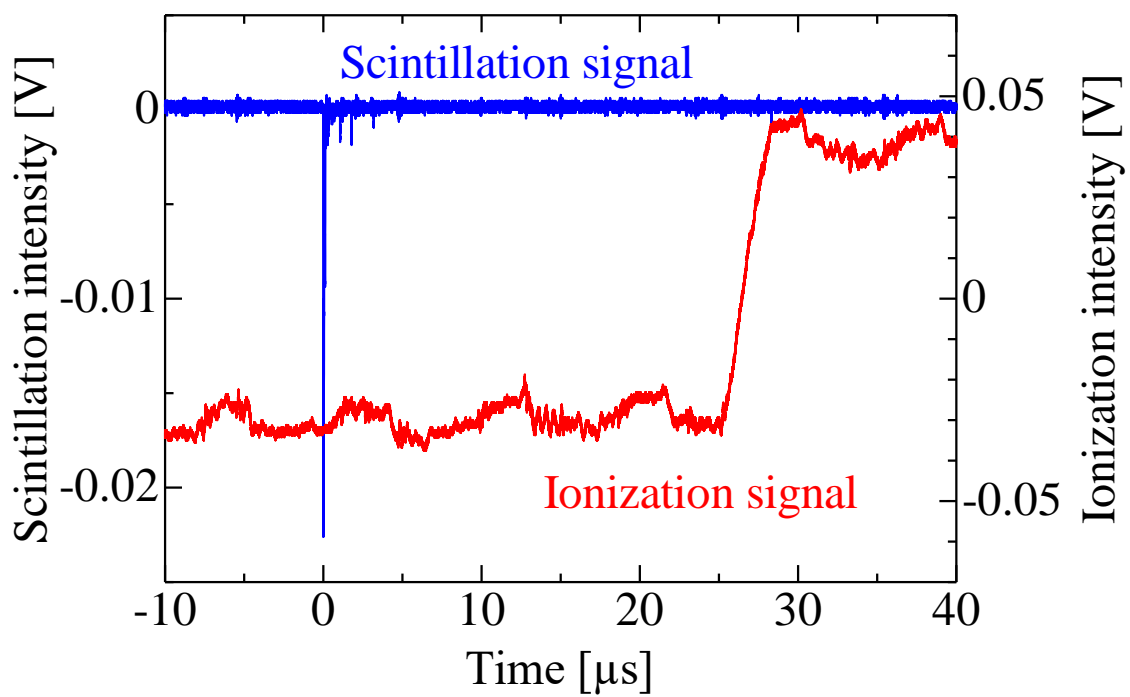


図 4.13 ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa での光電子増倍管からのシンチレーションと電荷有感型プリアンプからの電離電子の信号波形。カソード・グリッド間の換算電場強度が  $0.4 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$

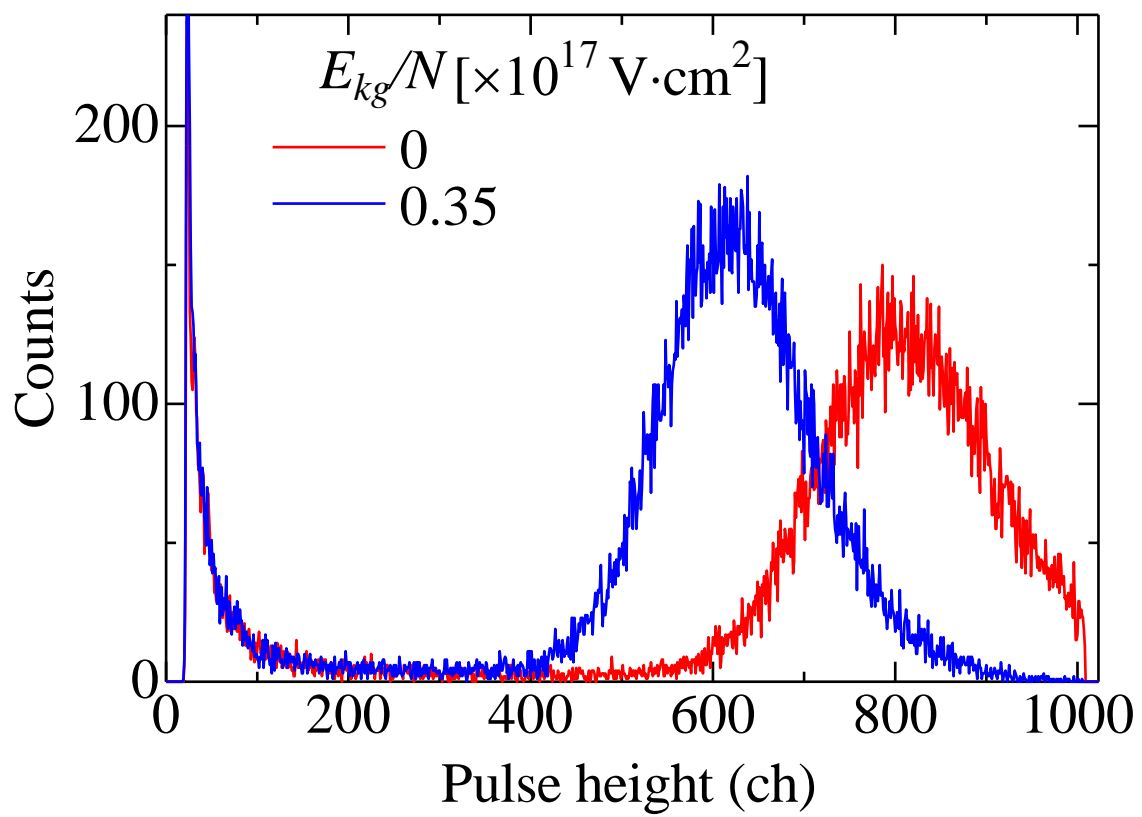


図 4.14 ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa での光電子増倍管からのシンチレーション信号の波高分布。赤色が電場なし、青色がカソード・グリッド間の換算電場強度が  $0.35 \times 10^{-17} \text{ V}\cdot\text{cm}^2$

電場強度を強くすることで、放出された $\alpha$ 線による発生する最初のシンチレーションの他に、比例シンチレーションと呼ばれるものが発生する。カソード・グリッド間の換算電場強度が $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$ 、グリッド・コレクター間の換算電場強度が $2.36 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$ の時の光電子増倍管からのシンチレーション信号とコレクターに接続した電荷有感型プリアンプからの電離電子の信号を図 4.15 に示す。0  $\mu\text{s}$ のピークが $\alpha$ 線によるシンチレーションである。最初のシンチレーションから約 23  $\mu\text{s}$ 後に発光が発生している。これが比例シンチレーションである。電子の立ち上がりとシンチレーションは同時に発生していることから、比例シンチレーションはグリッド・コレクター間で発生していると言える。比例シンチレーションが発生しているときの波高スペクトルを図 4.16 に示す。 $\alpha$ 線による最初のシンチレーションと比例シンチレーションは最長で図 4.15 より約 23  $\mu\text{s}$ の時間差があることから、時間情報から近接する 2 つのシンチレーションを分離し、最初のシンチレーションと比例シンチレーションを分けた波高スペクトルが図 4.16 となっている。

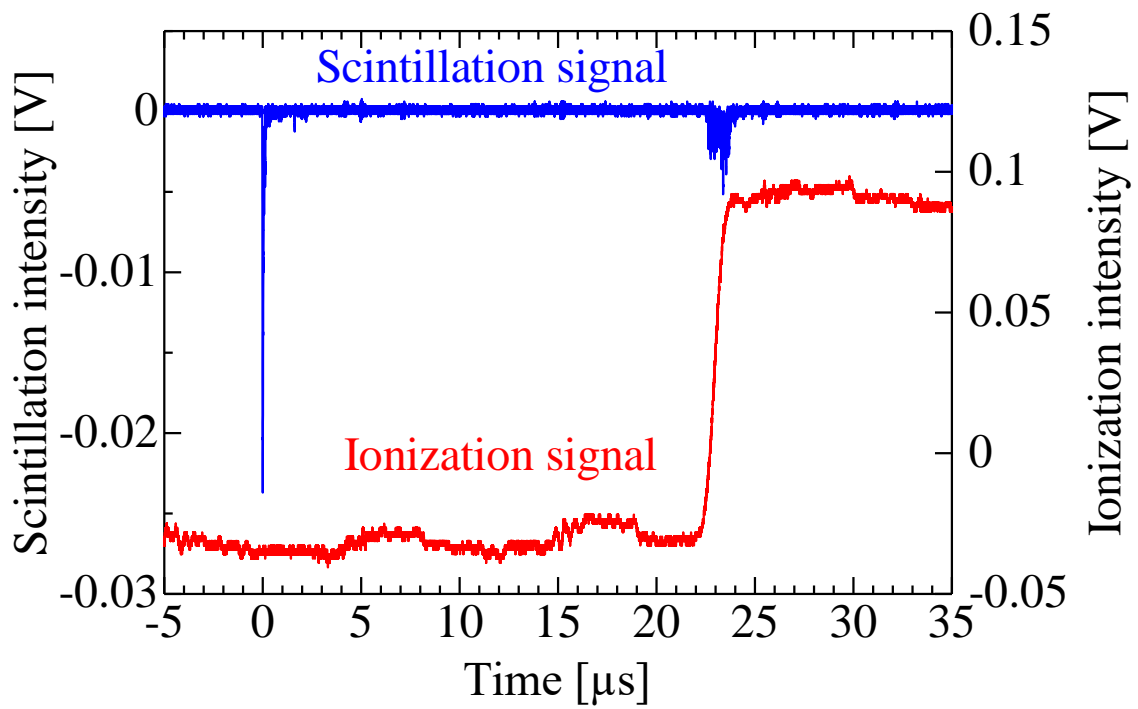


図 4.15 ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa での光電子増倍管からのシンチレーションと電荷有感型プリアンプからの電離電子の信号波形。カソード・グリッド間の換算電場強度が  $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$

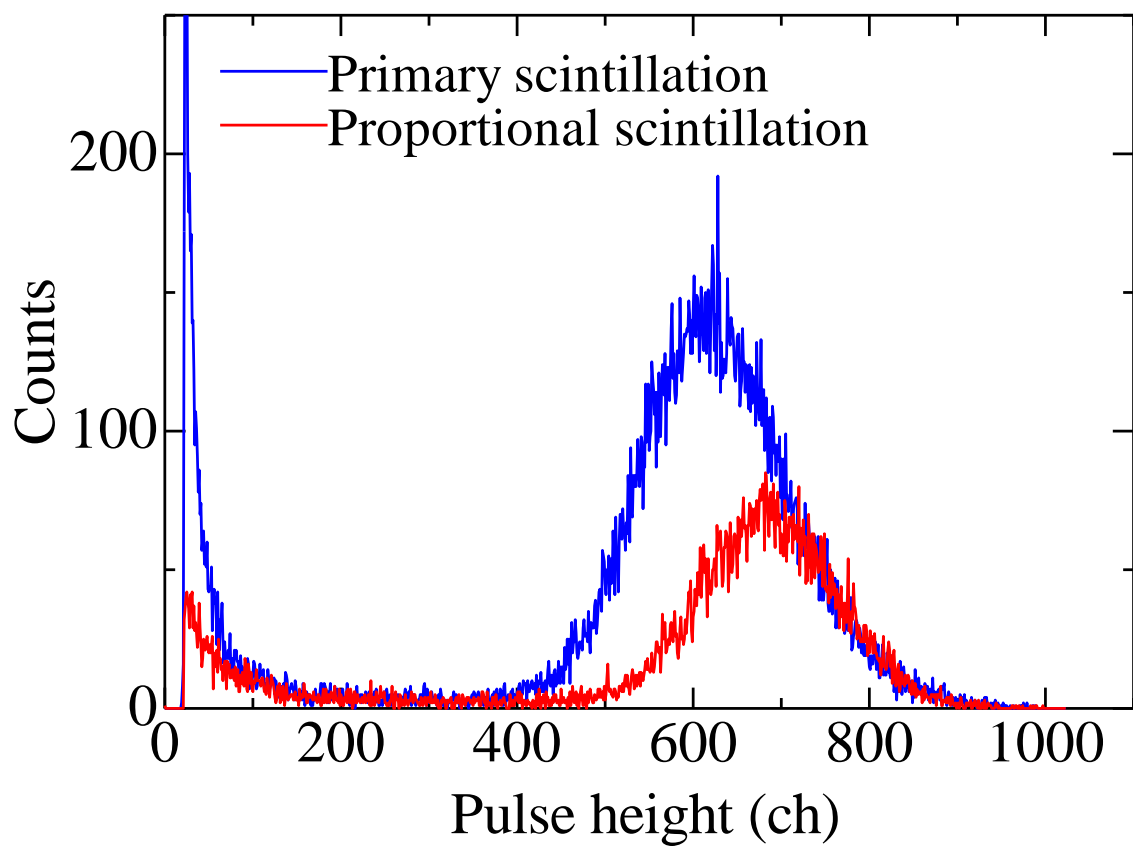


図 4.16 ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa での光電子増倍管からのシンチレーション信号の波高分布。青色が $\alpha$ 線による最初のシンチレーション、赤色が比例シンチレーション。カソード・グリッド間の換算電場強度が  $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$

図 4.17 にシンチレーションと電離電子の電荷有感型プリアンプからの信号波形を示す。カソード・グリッド間の換算電場強度が  $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$ 、グリッド・コレクター間の換算電場強度が  $2.36 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$  である。電離電子の信号の立ち上がりが早く、 $\alpha$ 線がカソードに対して水平方向に放出されている波形を抽出した。そのため電離電子の流動距離はカソード・グリッド間の距離である  $10 \text{ cm}$  となる。最初のシンチレーションと比例シンチレーションの時間差が電離電子の流動時間になる。シンチレーション信号の立ち上がり信号強度の最大値の  $10\%$  となったタイミングとし、図 4.17 から時間差が  $23 \text{ } \mu\text{s}$  と求めた。電子の流動速度は  $0.43 \text{ cm/s}$  となった。また、グリッド・コレクター間のシンチレーションの立ち上がり時間から電子の流動時間もわかる。その結果  $0.87 \text{ } \mu\text{s}$  と求まり、グリッド・コレクター間の距離が  $0.5 \text{ cm}$  なことから電子の流動速度は  $0.57 \text{ cm/s}$  となった。図 4.18 にヘリウム  $50\%$  + キセノン  $50\%$  の混合ガスによる電子の流動速度を測定した先行研究の結果[47]を示す。本研究の混合比と同じことから結果を比較することができる。本研究では図 4.18 の換算電場強度  $E/N=0.59 \text{ Td}$ ,  $2.36 \text{ Td}$  での流動速度を測定した。図からそれぞれの電場強度での流動速度を読み取ると、 $0.40 \text{ cm/s}$  と  $0.55 \text{ cm/s}$  となっている。本研究により求めた流動速度とほぼ一致していることが確認できた。

電離収量の測定として、コレクターからの電離電子の信号を電荷有感型アンプとメインアンプを通して波高分析した結果を図 4.19 に示す。波高分布はカソード・グリッド間の換算電場強度を  $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$  とした場合である。電離収量は波高分布のピーク領域をガウス関数でフィッティングして得たピーク波高値を式(4.18)の校正曲線により電子数に変換する。 $y$  が電子数、 $x$  が波高値である。

$$y = (223.5 \pm 0.125)x + (311.1 \pm 70.9). \quad (4.18)$$

図 4.19 より測定した混合ガスのピークの幅は FWHM で電子数  $1.06 \times 10^4$  個で、Testpulse の幅は電子数 460 個である。Testpulse による電氣的雑音は小さいことから、収集される電子数が減少している電子付着が分解能の劣化に影響していると考えられる。電子付着は電子の流動距離が長いほど多くなり、 $\alpha$ 線がカソードに対して水平方向に放出された場合は垂直方向と比べて移動距離が長くなるために、電子付着数が多くなる。そのことで、測定される電子数が広がり、波高分布の幅が大きくなる。

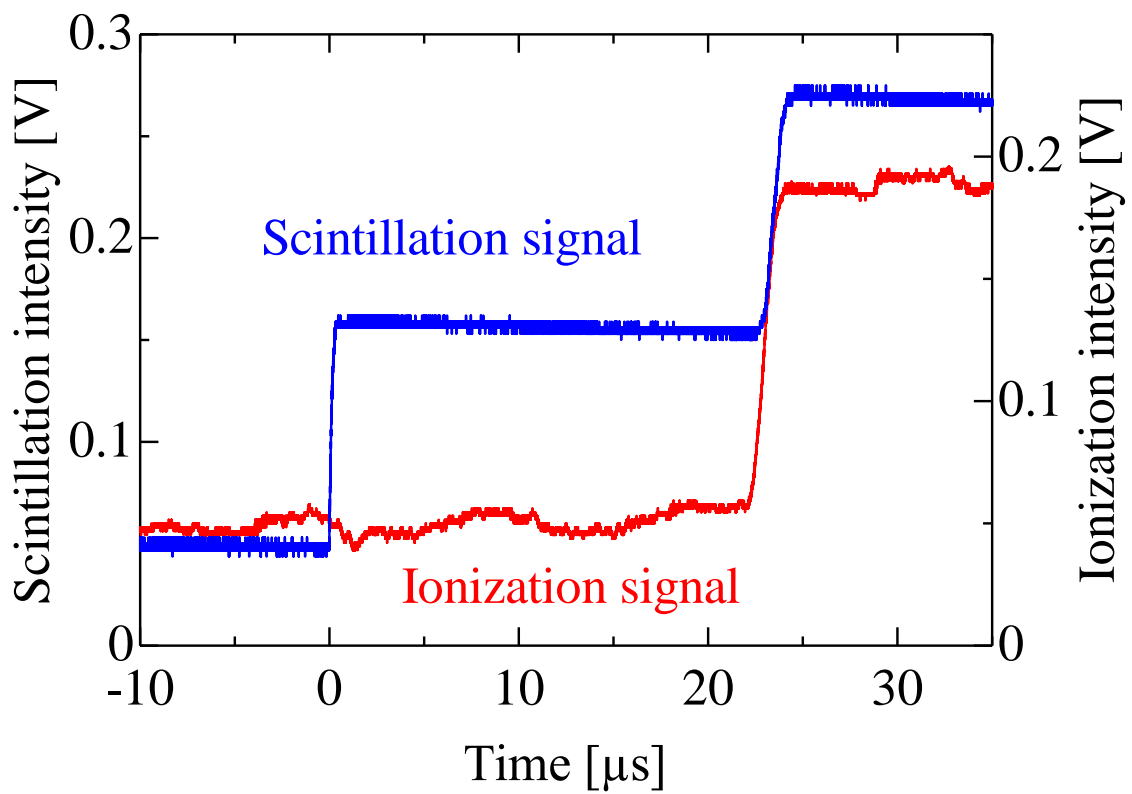


図 4.17 ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa でのシンチレーションと電離電子の電荷有感型プリアンプからの信号波形。カソード・グリッド間の換算電場強度が  $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$

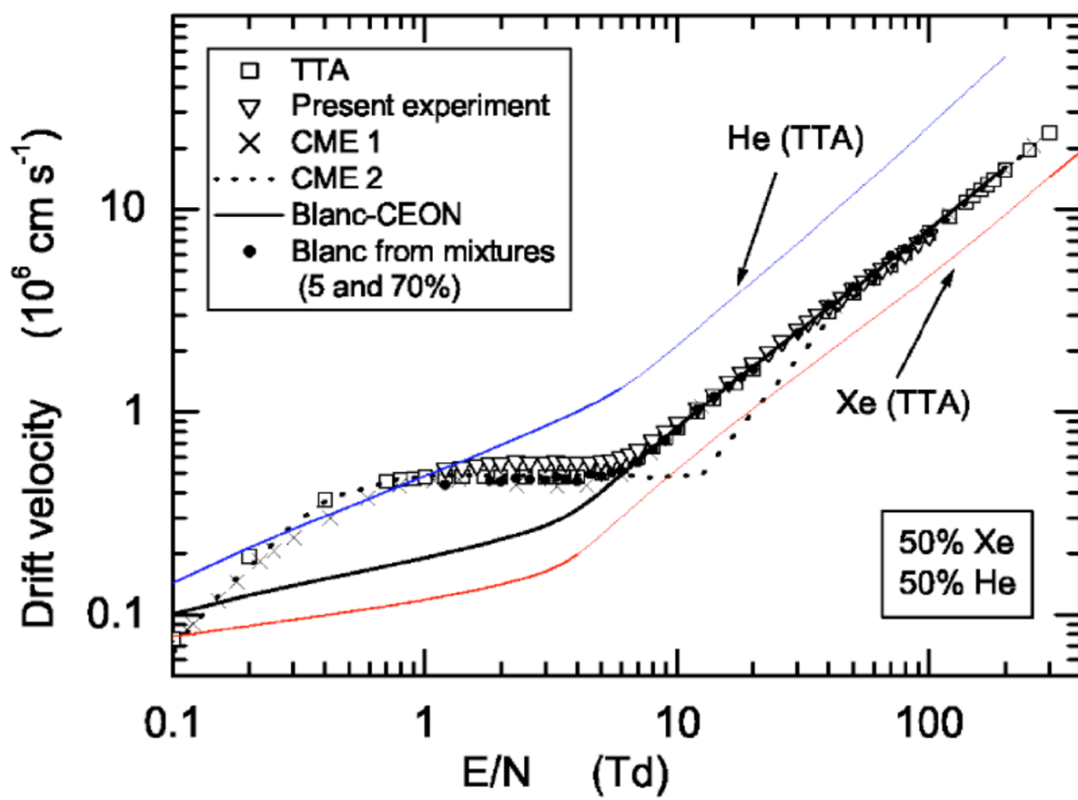


図 4.18 ヘリウム 50 % + キセノン 50 % の混合ガスでの電子の流動速度[47]



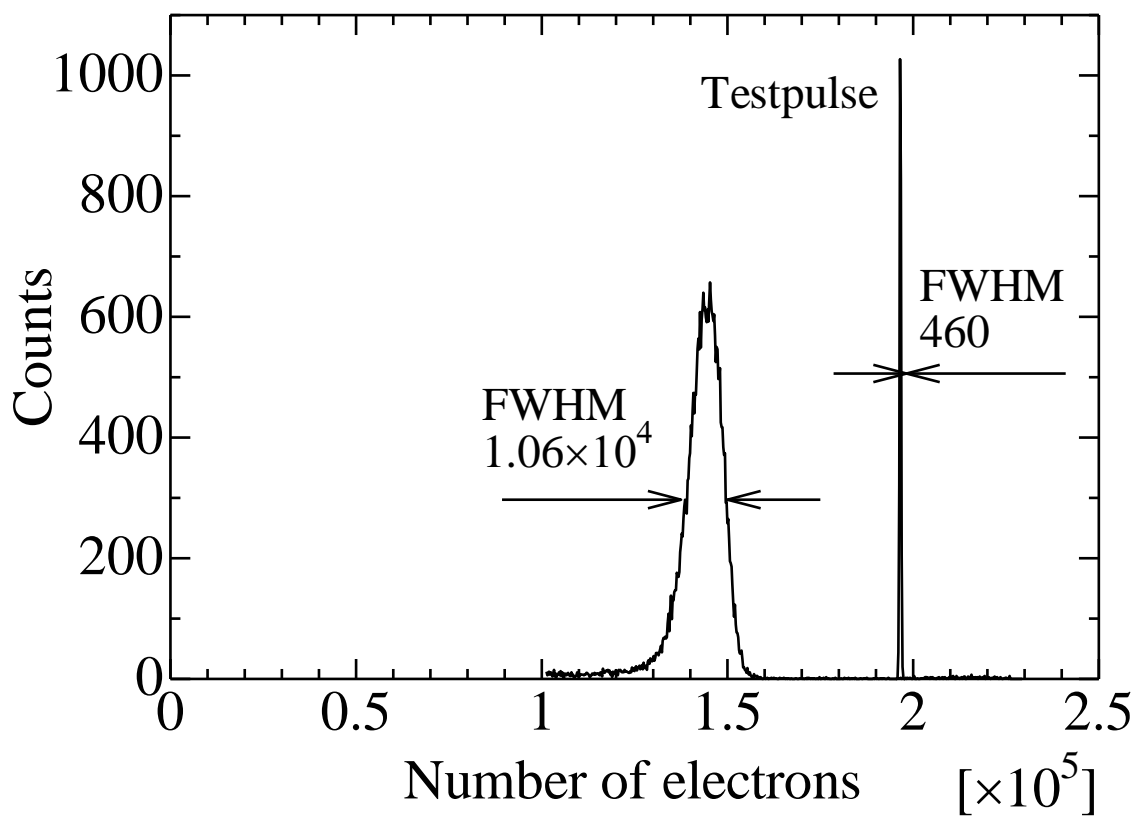


図 4.19 ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa でのコレクターからの電離電子信号とテストパルスの波高分布。カソード・グリッド間の換算電場強度が  $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$

換算電場強度を変化させ、シンチレーション収量と電離収量の電場依存性の測定を行った。カソード・グリッド間の換算電場強度を  $0 \text{ V} \cdot \text{cm}^2$  から  $0.59 \text{ V} \cdot \text{cm}^2$  まで変えた測定結果を図 4.20 に示す。シンチレーション収量は電場強度の増加とともに減少し、その後一定となっている。これは電場をかけていない状態で電離原子と電子による再結合発光が存在していることを示しており、電場をかけることでシンチレーション収量が減少し一定値になっていることから、再結合発光が抑制され励起発光のみを測定していると言える。シンチレーションは再結合発光が抑制されていることから、電場強度の増加による電子数の増加は再結合過程には依存していないと言える。式(3.37)よりヘリウム・キセノン混合ガスによる電離収量を見積もることができる。ヘリウム  $150 \text{ kPa}$  + キセノン  $150 \text{ kPa}$  から  $\alpha$ 線のエネルギーがヘリウムに分配される割合を表す  $z$  は式(2.9)より  $0.09$  となる。これにより  $W$  値は  $21.8 \text{ eV}$  と見積もられ、電離収量は  $2.52 \times 10^5$  個となる。しかし、図 4.20 より測定した電子数は換算電場強度を最も強くした  $0.59 \times 10^{-17} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$  の時に  $1.44 \times 10^5$  個となり、想定される電子数の  $57\%$  となっており、測定される電子数が想定より少なくなっている。測定される電子数が想定より少ない要因は電子付着の影響が考えられる。

電子付着が作用する過程を考える。1 個の電子が中性の原子や分子に付着して負イオンを生成する電子付着係数を  $\eta$  とし、 $n$  個の原子が  $dx$  の距離を進む間に  $dn$  だけ減少するため以下の関係が成り立つ[24]。

$$dn = -\eta n dx. \quad (4.19)$$

したがって、この解は  $x = 0$  のときの電子数を  $n(0) = n_0$  とすると

$$n = n_0 e^{-\eta x}. \quad (4.20)$$

となる。次に電子付着係数  $\eta$  を考える。電子が単位長さ移動する間に衝突を起こす回数を  $\nu$  [ $\text{m}^{-1}$ ] とすると、電子の平均自由行程  $\lambda$  [ $\text{m}$ ]、平均自由時間  $\tau$  [ $\text{s}$ ]、流動速度  $u$  [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ] より

$$\nu = \frac{1}{\lambda} = \frac{1}{u\tau}. \quad (4.21)$$

1 回の衝突から次の衝突までの間に平均として電子が流動する距離  $d$  [m] は電気素量  $e$  [C]、電子の質量  $m$  [kg]、電場強度  $E$  [ $V \cdot m^{-1}$ ] より以下の式で表される。

$$d = \frac{1}{2} \frac{eE}{m} \tau^2. \quad (4.22)$$

以上の関係から流動速度  $u$  [ $m \cdot s^{-1}$ ] は次のように書ける。

$$u = \frac{d}{\tau} = \frac{eE}{2m} \tau. \quad (4.23)$$

ここで電子付着係数  $\eta$  を考える。 $\eta$  は電子が単位長さ流動する間に起こる衝突回数  $\nu$  [ $m^{-1}$ ] に電子付着の確率  $h$  をかけたものとして表すことができる。このことから、式(4.21)と式(4.23)より電子付着係数  $\eta$  は次の関係式が得られる。

$$\eta = \nu h = \frac{h}{u\tau} = \frac{eE}{2mu^2} h. \quad (4.24)$$

式(4.24)から電子付着の作用は電場強度  $E$  と流動速度  $u$  の関係で表され、電場強度  $E$  が同じ場合は流動速度が速いほど電子付着係数  $\eta$  が小さくなる関係となっている。よってガス中での電子の流動速度が速くなるような工夫ができれば電子付着の影響を抑えることができる。

電子付着の影響を抑える方法を検討した。電子付着が起こる要因としては、測定中にガスの純化を行っていないためにチャンバー内で不純物が増加し続けるためだと推測できる。これまでの実験で用いていた加熱型の純化装置 (Zr-V-Fe ゲッター) は大型で重く、検出器に付随させる装置としては難がある。ガス精製器 (MC200-902V, SAES Pure Gas) は室温型で 0.8 kg とコンパクトではあるが、ガスを循環させるためには高圧ガスに対応したポンプが必要になり難がある。中性子検出器として可搬性を持たせるために純化装置の小型化が必要となる。そのため、1 つの案としては小型化したゲッター合金の加熱型純化装置が望ましいと考えられる。別の案としては、検出器内部に不純物ガスを吸着する活性炭などの吸着材を備え付ける方法がある[46]。通常、比例計数管ではガス封入前に容器のベーキングを行う。これは容器内か

ら放出される不純物を除去するためである。しかし、放出される不純物は容器からだけでなく、容器に挿入する構造材からも発生するため、容器のベーキングだけでは不純物の放出を十分に抑えることはできない。そこで不純物が吸着される材料を容器内に設置することで、不純物の増加を抑えることができ、電子付着の影響が抑制されることが期待できる。検出器内部に吸着材を設置することでガスの循環をする必要がなくなりポンプが不要となる。以上の方法により電子付着の影響を抑えることができると考えられる。

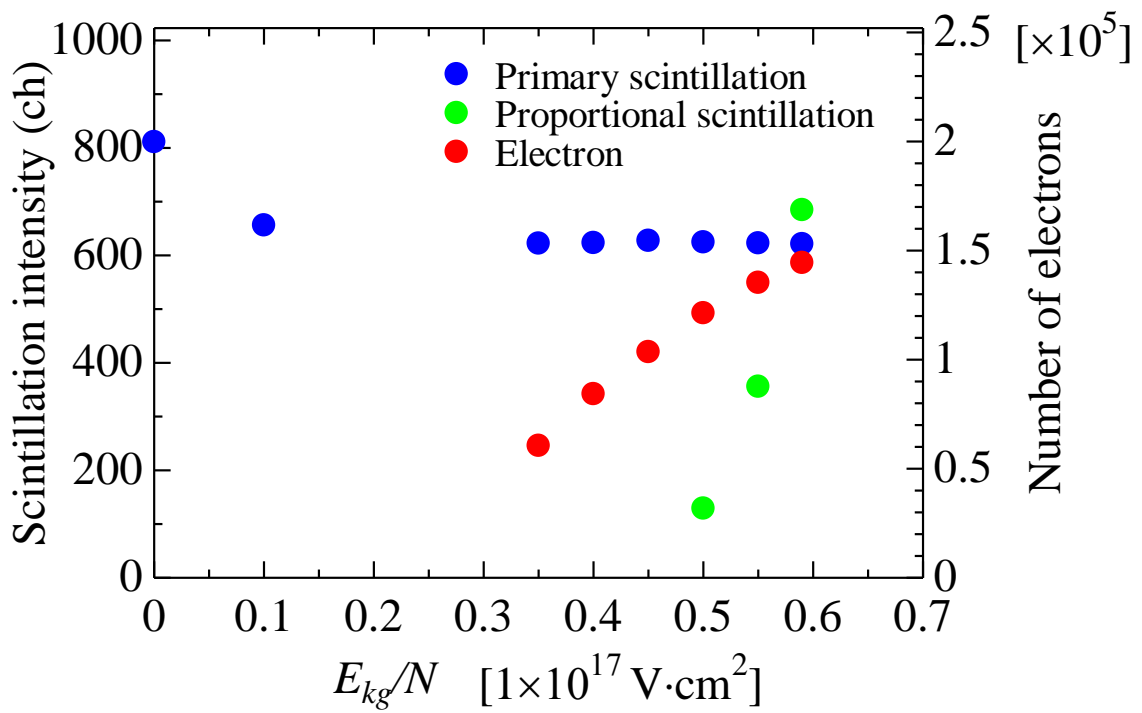


図 4.20 ヘリウム 150 kPa + キセノン 150 kPa でのシンチレーション収量・電離収量の換算電場強度依存性

ヘリウム 4 150 kPa + キセノン 150 kPa の混合ガスによる 5.49 MeV の  $\alpha$ 線を用いた測定において、ヘリウム 3 + キセノン混合ガスによる熱中性子の検出を評価する。測定対象の熱中性子とヘリウム 3 の(n,p)反応による Q 値は式(1.2)より 0.764 MeV である。反応生成物の陽子への付与エネルギーが 0.573 MeV で、三重水素が 0.191 MeV である。SRIM コード[42]よりガス中での飛程はそれぞれ 3.8 mm、1.0 mm となる。全付与エネルギー  $E$  は 5.49 MeV の 14 % となる。電離収量  $N_e$  は上述の  $W$  値より以下のように見積もられる。

$$N_e = \frac{E}{W} = \frac{0.764 \times 10^6 \text{ eV}}{21.8 \text{ eV}} = 3.50 \times 10^4 \quad (4.25)$$

式(4.25)の電子数は式(4.18)の電子数と波高値の関係より、波高分布のピークが 155 ch になる。これまでの測定から電子付着の影響が表れているため、ヘリウム 4 150 kPa + キセノン 150 kPa の混合ガスによる 5.49 MeV の  $\alpha$ 線と際と同様の割合で影響するとした場合、ピークチャンネルは 88 ch となる。以上から電離収量は熱中性子とヘリウム 3 の反応による付与エネルギーで測定できることがわかる。

シンチレーションは広いエネルギー範囲にわたりエネルギー応答に線形性がある[48]。5.49 MeV のエネルギー付与による 1 次シンチレーションの収量は図 4.20 よりピークの波高値が 621 ch なことから、熱中性子による付与エネルギーではピーク波高値は 87 ch となる。図 4.16 より熱中性子により想定されるピーク領域に低波高値成分がある。熱中性子によるシンチレーションは光電子増倍管の印加電圧をあげることでゲインが大きくなり、ピーク波高値も大きくすることができる。また、使用している光電子増倍管 R208 と同じサイズの光電面を持つ R6041-406 は、キセノンのシンチレーションに対しての量子効率が R208 の約 10 % [49] よりも高い 30 % [50] の量子効率を有する。高い量子効率の光電子増倍管を用いることで、ガス中の付与エネルギーが小さい場合でもキセノンのシンチレーションを検出できる改善策もある。以上よりシンチレーション収量においても熱中性子とヘリウム 3 の反応による付与エネルギーで測定できることがわかる。

ヘリウム 3 による高速中性子のエネルギースペクトル測定として、2.45 MeV の単色中性子を検討する。式(1.2)より 2.45 MeV の中性子による  ${}^3\text{He}(n,p)$  反応の Q 値は  $2.45 \text{ MeV} + 0.764 \text{ MeV} \cong 3.21 \text{ MeV}$  となる。反応生成物の陽子への付与エネルギーが 2.41 MeV で、三重水素が 0.803

MeV となる。それぞれの荷電粒子の飛程はヘリウム 3 のみ 200 kPa で  
のガス中では、SRIM コード[42]より 301 mm、32.1 mm となる。飛程が  
長くなるため有感領域内での全エネルギー付与が困難となる。そこで  
反応生成物の飛程を短くするために重いガスを添加する。シンチレー  
ションを測定するために加えるキセノンが飛程を短くさせる役割も果  
たすことができる。キセノンを 400 kPa 加えることで飛程が 12.8 mm、  
1.73 mm[42]となる。ヘリウム 3 200 kPa + キセノン 400 kPa での 2.45  
MeV の中性子による反応生成物のガス中での飛程は、実験を行ったヘ  
リウム 4 150 kPa + キセノン 150 kPa での 5.49 MeV の $\alpha$ 線の飛程とほ  
ぼ同じとなっている。2.45 MeV の中性子測定の場合、付与エネルギー  
は 5.49MeV の $\alpha$ 線の 58%となる。図 4.20 の 5.49 MeV の $\alpha$ 線による測定  
結果から、シンチレーションと電離収量は 58%の付与エネルギーにお  
いても信号として取り出せることがわかる。

#### 4.4 本章のまとめ

ヘリウム 3・キセノン混合ガスによる電離とシンチレーションを用いた中性子検出を行うための検出器の設計・製作を行った。第 3 章で測定したヘリウム 4・キセノン混合ガスの電離とシンチレーションのデータをもとに、ガスの圧力、有感領域の直径、カソード・グリッド間距離を決定した。製作した検出器の動作試験として、 $^{241}\text{Am}$ による 5.49 MeV の  $\alpha$ 線を用い、ヘリウム 4・キセノン混合ガスによる電離とシンチレーションの測定を行った。ヘリウム 4・キセノン混合ガスでは混合比 1:1 の全圧 300 kPa で実験を行い、電離電子とシンチレーションの測定を行った。収集電子数は混合ガスの W 値から計算される電子数の 57 %と少なくなった。シンチレーションは  $\alpha$ 線による 1 次シンチレーションが測定できた。ガス中に印加する換算電場強度を強くすることでグリッド・コレクター間において電離電子による比例シンチレーションが測定できた。熱中性子と 2.45 MeV の高速中性子によるガスへの付与エネルギーにおいて、電離とシンチレーションの信号を測定できることがわかった。1 次シンチレーションとコレクターからの電離電子の信号の時間差は電子の流動時間となる。測定した流動時間から流動速度を求めた結果は先行研究で測定された値と一致する結果となった。これより 1 次シンチレーションとコレクターからの電離電離の信号の時間差を測定することで、入射した中性子の反応位置を特定することができることが確認できた。

電子付着の影響を抑制するためにはガスの純化が必要となる。検出器として用いるためには純化装置の小型化が望ましく、不純物を吸着する吸着材を検出器内部に設置する方法が挙げられる。



## 第 5 章 結論

本研究は、ヘリウム 3・キセノン混合ガスによる検出媒体で中性子検出を行うために、ヘリウム 4 とキセノンの混合ガスを用いて、電離とシンチレーション特性を実験的に明らかにし、その結果をもとに中性子検出器へ応用することが目的である。目的を達成するために、検出器応用上で重要な物理量であるパラメータ測定として、①ヘリウムの W 値、②ヘリウムの電離原子数と励起原子数の比  $N_{ex}/N_i$  を求めた。ヘリウム 3・キセノン混合ガスを放射線検出媒体として利用するために重要な特性測定として、③ヘリウム 4・キセノン混合ガスの電離とシンチレーション収量を求めた。以上の結果をもとに中性子検出器への応用として、④中性子検出器の設計・製作と、 $\alpha$ 線源を用いたヘリウム 4・キセノン混合ガスでの動作試験を行った。結論を以下にまとめる。

検出器応用上で重要な物理量であるパラメータ測定

### ①ヘリウムの W 値

グリッド電離箱により 40 kPa のヘリウムにおける電離収量を測定した。ヘリウムの電離過程は不純物の影響を受けやすく、微量の不純物の混入で大きく電離収量が増加すると指摘されている。そこで、Zr-V-Fe ゲッターによる純化装置と Ni 化合物によるガス精製器を用い、ガスをポンプにより強制循環させ、常時純化を行い測定を行った。純化と同時にガス中の不純物濃度の測定として、微量水分トランスミッターにより水蒸気圧を測定し、電離収量の変化との関係性を調べた。純化しない場合では水蒸気圧は線形増加し、電離収量も増加している。しかし、水蒸気圧は増え続けている状況下において、電離収量は飽和する傾向となっている。これはペニング電離を起こすヘリウムの励起原子が不純物と反応し尽くしているからだと考えられる。また、純化した場合は水蒸気圧は一定値になり電離収量も一定値となった。ガスを循環させる流量を変えることで、一定となる水蒸気圧が変化し、0.1 Pa オーダーの水蒸気圧の変化で電離収量が増加し、影響を受けていることがわかった。純化を行っていない測定で水蒸気圧が高い領域まで測定し、純化を行った測定で水蒸気圧が低い領域を測定し、2つの測定を組み合わせることで水蒸気圧に対する電離収量の変化の傾向を明らかにした。これらの測定から水蒸気圧 0 を外挿で求めることで、不純物の影響を受けていない電離収量の値を求めることができる。そのた

め、水蒸気圧に対する電離収量の変化を関数として定義するために、ヘリウムの励起原子に関して脱励起とペニング効果による電離を反応速度式より関数を求めた。その結果、測定値と求めた関数から外挿して、 $W$  値は  $45.0 \pm 0.9$  eV と求めた。この値はこれまでの先行研究で測定された圧力より低い条件で行った実験値であり、先行研究が明確にしていない不純物の影響も考慮した、新しい手法で得られたものである。

## ②ヘリウムの電離原子数と励起原子数の比 $N_{\text{ex}}/N_i$

励起ヘリウム原子を電離に寄与させその増加量から電離原子数と励起原子数の比  $N_{\text{ex}}/N_i$  を測定する手法を取った。そこでヘリウムとキセノンの混合ガスによるペニング効果を用いた。測定はグリッド型電離箱により行い、全圧 1.0MPa と 657 kPa においてキセノンの混合比を 1~15 % に変化させ電離収量の測定を行った。放射線の物質中でのエネルギー分配を表す Platzman によるエネルギーバランス方程式において、電離原子数と励起原子数の比を表す  $N_{\text{ex}}/N_i$  が与えられている。電離収量を求める上で重要なパラメータとなっている。ヘリウムに関してのこの比を実験的に求め、 $0.541 \pm 0.005$  という値を得た。

ヘリウム 3・キセノン混合ガスを放射線検出媒体として利用するために重要な特性測定

## ③ヘリウム 4・キセノン混合ガスの電離とシンチレーション収量

ヘリウム 4・キセノン混合ガスによる電離収量とシンチレーション収量を混合比を変えて測定を行った。上記のヘリウムの電離原子数と励起原子数の比  $N_{\text{ex}}/N_i$  の測定と実験を共通化した。ペニング効果によりヘリウムの励起原子が電離に寄与するため、キセノンの混合 1 % で純ヘリウムの電離収量の 1.59 倍に増加する結果となった。15 % のキセノンの混合では純キセノンの電離収量の 0.918 倍となり、純キセノンの電離収量に近づいている。シンチレーション収量の変化の測定では、3 % のキセノンの混合比で 100 kPa の純キセノンのシンチレーション収量と同程度となることがわかった。10 % のキセノンの混合でシンチレーション収量が飽和することを明らかにした。

## 中性子検出器への応用

### ④中性子検出器の設計・製作と、 $\alpha$ 線源を用いたヘリウム4・キセノン混合ガスでの動作試験

これまでの測定結果に基づき、混合ガスの比率、有感領域の体積を決定し、電離とシンチレーションを同時に測定できる機構を有した中性子検出器の設計・製作を行った。 $\alpha$ 線源を用いて製作した検出器の動作試験を混合比 1:1 の全圧 300 kPa のヘリウム4・キセノン混合ガスでそれぞれ行った。収集電子数はどちらのガスにおいても  $W$  値から計算される電子数より少なくなった。電子の流動距離を短くすることで収集電子数が増加することから、電子付着による影響が表れていると考えられる。ヘリウム4・キセノン混合ガスのシンチレーションはガス中に電場を印加することで再結合発光が抑制され励起発光のみとなるため、収量は換算電場強度を強くすると減少しその後一定値をとる変化となっている。換算電場強度をさらに強くすることで、グリッド・コレクター間で電離電子により比例シンチレーションが発生することを確認した。熱中性子の場合と 2.45 MeV の高速中性子の場合において、電離電子とシンチレーションを測定できることを確認できた。 $\alpha$ 線による最初の1次シンチレーションとコレクターからの電離電子の信号との時間差が電離電子の流動時間となる。測定した流動時間から流動速度を求めた結果は先行研究で測定された流動速度と一致する結果となった。これにより  ${}^3\text{He}(n,p)$  反応による荷電粒子によって生じる1次シンチレーションと、コレクターからの電離電子の信号との時間差を測定することで、その時間差と流動速度から反応位置を特定できることが確認できた。

以上のように、検出器応用上で重要な物理量であるヘリウムの  $W$  値、ヘリウムの電離原子数と励起原子数の比  $N_{\text{ex}}/N_i$  を求め、ヘリウム3・キセノン混合ガスを放射線検出媒体として利用するために、ヘリウム4・キセノン混合ガスの電離とシンチレーション収量の測定を行った。研究の結果をもとに中性子検出器の設計・製作と、 $\alpha$ 線源を用いたヘリウム4・キセノン混合ガスでの動作試験を行い、ヘリウム3・キセノン混合ガスのシンチレーションを利用した中性子検出器の実現可能性を示した。

## 参考文献

- [1] ICRU, *Average Energy Required to Produce an Ion Pair* (ICRU Report 31, 1979).
- [2] M. Inokuti, Ionization Yields in Gases under Electron Irradiation, *Radiat. Res.* 64, 6 (1975).
- [3] G. D. Alkhazov, IONIZATION CASCADE IN HELIUM CAUSED BY NONRELATIVISTIC ELECTRONS, *Sov. Phys. Tech. Phys.*, 16, 1995 (1972).
- [4] J. E. Parks, G. S. Hurst, T. E. Stewart, and H. L. Weider, Ionization of the Noble Gases by Protons: Jesse Effects as a Function of Pressure, *J. Chem. Phys.* 57, 5467 (1972).
- [5] S. Kubota, Non-Metastable Penning Effect in the Alpha-Particle Ionization of Inert Gas Mixtures, *J. Phys. Soc. Jpn* 29, 1017 (1970).
- [6] R. L. Platzman, Total ionization in gases by high-energy particles An appraisal of our understanding, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 10, 116 (1961).
- [7] G. D. Alkhazov, and A. A. Voob'ev, Total ionization and ionization fluctuations in helium, *Phys. Lett.* 29A, 25 (1969).
- [8] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (Wiley, New York, 2010) 4th ed.
- [9] M. S. Derzon, D. S. Slaughter, and S. G. Prussin, A HIGH-PRESSURE  $^3\text{He}$  GAS SCINTILLATION NEUTRON SPECTROMETER, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 33, 247 (1986).
- [10] W. Tornow, J. H. Esterline, C. A. Leckey, and G. J. Weisel, High-pressure  $^3\text{He}$ -Xe gas scintillators for simultaneous detection of neutrons and gamma rays over a large energy range, *Nucl. Instr. Meth.* A647, 86 (2011).
- [11] K. Saito, S. Sasaki, H. Tawara, T. Sanami, and E. Shibamura, Study of scintillation in helium mixed with xenon to develop thermal neutron detectors, *Nucl. Instr. Meth.* A581, 119 (2007).
- [12] J. S. Chang, R. M. Hobson, 市川幸美, 金田輝男 (1984) 「電離気体

- の原子・分子過程」, 東京電機大学
- [13] NIST Chemistry WebBook, <https://webbook.nist.gov/chemistry/>
- [14] W. P. Sholette, and E. E. Muschlitz, Ionizing Collisions of Metastable Helium Atoms in Gases, *J. Chem. Phys.* 36, 3368 (1962).
- [15] J. A. Hornbeck, and J. P. Molnar, Mass Spectrometric Studies of Molecular Ions in the Noble Gases, *Phys. Rev.* 84, 621 (1951).
- [16] W. P. Jesse, and J. Sadauskis, Alpha-Particle Ionization in Pure Gases and the Average Energy to Make an Ion Pair, *Phys. Rev.* 90, 1120 (1953).
- [17] T. E. Bortner, and G. S. Hurst, Ionization of Pure Gases and Mixtures of Gases by 5-Mev Alpha Particles, *Phys. Rev.* 93, 1236 (1954).
- [18] C. E. Klots, Energy-Partition Parameters in Radiation Studies Involving Rare Gases, *J. Chem. Phys.* 46, 3468 (1967).
- [19] L. O. Herwig, and G. M. Miller, Alpha-Particle Ionization Yields in a Gridded Chamber, *Phys. Rev.* 94, 1183 (1954).
- [20] S. J. Harris, and C. E. Doust, Energy per Ion Pair Measurements in Pure Helium and Helium Mixtures, *Radiat. Res.* 66, 11 (1976).
- [21] S. Sasaki, and H. Tawara, グリッド型電離箱による気体の W 値測定, *Oyo Butsuri* 58, 59 (1989) [in Japanese].
- [22] N. Ishida, J. Kikuchi, and T. Doke, The  $W$  Values and Fano Factors in Helium and Argon-Doped Helium, *Jpn. J. Appl. Phys.* 31 1465 (1992).
- [23] P. Huber, E. Baldinger, and W. Haberli, Arbeit pro Ionenpaar in  $N_2$ -Ar-Mischungen für  $\alpha$ -Teilchen, *Helv. Phys. Acta* 23, 481 (1950) [in German].
- [24] 山崎文男 (1973) 「実験物理学講座II 放射線」, 共立出版.
- [25] Y. Salamero, A. Birot, H. Brunet, J. N. Foulquier, J. Galy, P. Millet, M. Rouzard, and J. L. Teyssier, Multiphoton excitation near the  $6s'(1/2)1(^1P_1)$  resonant state of xenon. Spectroscopic study and temporal analysis of the post-luminescence, *J. Phys.* B 21, 2015 (1988).
- [26] P. K. Leichner, K. F. Palmer, J. D. Cook, and M. Thieneman, Two- and three-body collision coefficients for  $Xe(^3P_1)$  and  $Xe(^3P_2)$  atoms and radiative lifetime of the  $Xe_2(1_u)$  molecule, *Phys. Rev.* A 13, 1787 (1976).
- [27] M. Suzuki, J. Ruan(Gen), and S. Kubota, Time dependence of the recombination luminescence from high-pressure argon, krypton and xenon

- excited by alpha particles, *Nucl. Instr. Meth.* 192, 565 (1982).
- [28] T. Takahashi, S. Himi, M. Suzuki, J. Ruan(Gen), and S. Kubota, Emission spectra from Ar·Xe, Ar·Kr, Ar·N<sub>2</sub>, Ar·CH<sub>4</sub>, Ar·CO<sub>2</sub> and Xe·N<sub>2</sub> gas scintillation proportional counters, *Nucl. Instr. and Meth.* 205, 591 (1983).
- [29] O. Cheshnovsky, B. Raz, and J. Jortner, Electronic energy transfer in rare gas mixtures, *J. Chem. Phys.* 59, 3301 (1973).
- [30] S. Sasaki, T. Sanami, K. Saito, K. Iijima, H. Tawara, E. Shibamura, and A. Fukumura, Ionization yields for heavy ions in gases as a function of energy, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 52, 2940 (2005).
- [31] T. Sato, Y. Iwamoto, S. Hashimoto, T. Ogawa, T. Furuta, S. Abe, T. Kai, P. Tsai, N. Matsuda, H. Iwase, N. Shigyo, L. Sihver, and K. Niita, Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, *J. Nucl. Sci. Technol.* 55, 684-690 (2018).
- [32] MicroTorr ガス精製器取扱説明書, SAES Pure Gas
- [33] PURA 高純度ガス用微量水分トランスミッター 仕様表, Michell
- [34] JIS Z 8806 : 「湿度－測定方法」
- [35] O. Bunemann, T. E. Cranshaw, and J. A. Harvery, Design of grid ionization chambers, *Can. J. Research A27*, 191 (1949).
- [36] T. Williams, and C. Kelley, Gnuplot 5.0: an interactive plotting program, <http://www.gnuplot.info>
- [37] St707 NON EVAPORABLE GETTERS ACTIVATABLE AT LOW TEMPERATURES, saes getters
- [38] S. S. Hodgman, R. G. Dall, L. J. Byron, K. G. H. Baldwin, S. J. Buckman, and A. G. Truscott, Metastable Helium: A New Determination of the Longest Atomic Excited-State Lifetime, *Phys. Rev. Lett.* 103, 053002 (2009).
- [39] D X Liu, P Bruggeman, F Iza, M Z Rong, and M G Kong, Global model of low-temperature atmospheric-pressure He + H<sub>2</sub>O plasmas, *Plasma Sources Sci. Technol.* 19, 025018 (2010).
- [40] R. Deloche, P. Monchicourt, M. Cheret, and F. Lambert, High-pressure helium afterglow at room temperature, *Phys. Rev. A* 13, 1140 (1976).

- [41] X. Yuan, and L.L. Raja, Computational study of capacitively coupled high-pressure glow discharges in helium, *IEEE Trans. Plasma. Sci.*, 31, 495 (2003).
- [42] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010), *Nucl. Instr. Meth.* B268, 1818 (2010).
- [43] 吉沢武男 (2010) 「大学演習 機械要素設計 改訂版」, 裳華房
- [44] 合成光学結晶・高精度光学製品,  
<http://www.oken.co.jp/ebook5/crystal.html> , 応用光研工業株式会社
- [45] Y. S. Selim, and M. I. Abbas, Source-detector geometrical efficiency, *Radial. Phys. Chem.* 44, 1 (1994).
- [46] 株式会社リガク, 清水一明, ガス封入型比例計数管, 特開 2010-118333, 2010-05-27.
- [47] O. Šašić, J. Jovanović, Z. Lj. Petrović, J. de Urquijo, J. R. Castrejón-Pita, J. L. Hernández-Ávila, and E. Basurto, Electron drift velocities in mixtures of helium and xenon and experimental verification of corrections to Blanc's law, *Phys. Rev.* E71, 046408 (2005).
- [48] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillating Counting*, The Macmillan Company, New York, 1964
- [49] M. Miyajima, S. Sasaki, and E. Shibamura, Absolute number of photons produced by alpha-particles in liquid and gaseous xenon, *Nucl. Instr. Meth.* B63, 297 (1992).
- [50] PHOTOMULTIPLIER TUBES AND ASSEMBLIES FOR SCINTILLATION COUNTING & HIGH ENERGY PHYSICS, [https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/High\\_energy\\_PMT\\_TPM\\_Z0003E.pdf](https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/High_energy_PMT_TPM_Z0003E.pdf) , Hamamatsu Photonics

## 本研究に係る論文・国際会議等での発表

### 査読付き論文

1. A. Takeuchi, K. Saito, Y. Kishimoto, T. Oyama, and T. Sanami, Scintillation and ionization yields of helium-xenon gas mixture for application in neutron detectors, *Japanese Journal of Applied Physics*, (Accepted on 26 Feb 2020).

### Proceedings

2. A. Takeuchi, K. Saito, Y. Kishimoto, T. Oyama, and T. Sanami, ヘリウムの電離収量に対する不純物の影響, *Proceedings of the 33th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses*, 8 (2019).
3. A. Takeuchi, K. Saito, Y. Kishimoto, T. Oyama, and T. Sanami, Measurement of scintillation and ionization in helium mixed with xenon, *JPS Conference Proceedings*, 24, 011006 (2018)

### 国際会議における発表

1. Akihiro Takeuchi, Kiwamu Saito, Yuji Kishimoto, Takahiro Oyama, Toshiya Sanami, Impurity Effect on Ionization Yield in Helium by Alpha-Particles, 2019 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, Manchester (UK), 2019.10
2. Akihiro Takeuchi, Kiwamu Saito, Yuji Kishimoto, Takahiro Oyama, Toshiya Sanami, Measurement of scintillation and ionization in helium mixed with xenon, International Symposium on Radiation Detectors and Their Uses (ISR2018), Tsukuba (JAPAN), 2018.1



## 国内学会および研究会における発表

1. 竹内章博, 齋藤究, 岸本祐二, 大山隆弘, 佐波俊哉, 「ヘリウムの電離収量と不純物の関係」, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学, 2019.9
2. 竹内章博, 齋藤究, 岸本祐二, 大山隆弘, 佐波俊哉, 「ヘリウムの電離収量に対する純化と不純物の効果」, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学, 2019.3
3. 竹内章博, 齋藤究, 岸本祐二, 大山隆弘, 佐波俊哉, 「ヘリウムの電離収量に対する不純物の影響」, 第 33 回 研究会「放射線検出器とその応用」, KEK, 2019.1
4. 竹内章博, 齋藤究, 岸本祐二, 大山隆弘, 佐波俊哉, 「希ガス W 値の圧力依存性」, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 2018.9
5. 竹内章博, 齋藤究, 岸本祐二, 大山隆弘, 佐波俊哉, 「He/Xe 混合ガスにおける電離収量測定」, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 早稲田大学, 2018.3
6. 竹内章博, 大山隆弘, 岸本祐二, 佐波俊哉, 齋藤究, 「He/Xe 混合ガスにおけるシンチレーション測定」, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場, 2017.9

## 謝辞

指導教官である高エネルギー加速器研究機構 齋藤究准教授には、実験から論文の作成に至る、研究全般にわたり御指導を賜りましたこと、心より厚く御礼申し上げます。

同研究機構 佐波俊哉教授、岸本祐二助教、大山隆弘准技師には、研究を遂行するにあたり多大な御意見と議論を賜りました。心より厚く御礼申し上げます。

本学位論文の主査として高エネルギー加速器研究機構 波戸芳仁教授には、貴重な御意見、御指導をいただきました。深く御礼申し上げます。同研究機構 佐々木慎一教授には、深い経験と知識から様々な御助言、御指導をいただきました。深く御礼申し上げます。また慶應義塾大学医学部 寺沢和洋助教には、本学位論文の外部審査委員を務めていただき、御助言、御指導をいただきました。深く御礼申し上げます。

高エネルギー加速器研究機構 放射線物理グループの萩原雅之准教授、山崎寛仁准教授、飯島和彦技術副主幹、長畔誠司技師には、様々な御助言をいただきました。深く御礼申し上げます。

本研究を行う前の日本大学大学院博士前期課程の指導教官である渡部政行教授には、研究を行う上での心得、研究発表のいろはを御指導いただきました。深く御礼申し上げます。

研究を通じ、多くの方々と交流をし、多くの御指導を賜りました。すべての皆様に厚く御礼申し上げます。

最後に、長きにわたり学業に専念できるように支えてくださいました両親に御礼申し上げます。

竹内 章博