

希ガスの絶対蛍光効率とその圧力依存性

齋藤 究

博士(理学)

総合研究大学院大学

数物科学研究科

加速器科学専攻

平成 13 年度

(2001)

目次

第1章 序論.....	1
1.1 本研究の背景.....	1
1.2 本研究の目的・意義.....	2
1.3 本論文の構成.....	2
第2章 希ガスのシンチレーション過程.....	4
2.1 希ガスの発光過程	4
2.2 希ガスの混合効果	11
2.2.1 希ガス・希ガスの混合.....	11
2.2.2 希ガス・分子性ガスの混合.....	12
2.3 放射線のエネルギー分配機構.....	13
2.4 絶対蛍光効率の定義.....	14
2.5 絶対蛍光効率測定例.....	14
第3章 実験.....	17
3.1 実験原理.....	17
3.1.1 絶対蛍光効率測定の原理	17
3.1.2 励起原子を起源とするシンチレーションの分離測定の原理	18
3.1.3 使用した光電管と光電子増倍管	18
3.2 光電子数測定実験	19
3.2.1 実験装置.....	19
3.2.2 ガス導入システムと純化装置.....	24
3.2.3 波高分布のシミュレーション.....	29
3.2.4 希ガスシンチレーション測定.....	32
3.3 希ガスシンチレーション発光スペクトル測定.....	40
3.3.1 発光スペクトル測定原理	40
3.3.2 希ガスシンチレーションの発光スペクトル測定	48
3.3.3 希ガスシンチレーションの発光スペクトルの混合効果.....	54
3.4 電離電子・シンチレーション光子同時測定	58
3.4.1 実験装置.....	58
3.4.2 電離箱の設計	62
3.4.3 電荷の飽和曲線.....	65
3.4.4 比例シンチレーションの観測.....	69
3.4.5 電離電子・シンチレーション光子同時計測	77
第4章 結果と考察	80

4.1	希ガスシンチレーションの発光スペクトル	80
4.1.1	発光スペクトル	80
4.1.2	平均量子効率	85
4.2	絶対蛍光効率	87
4.3	電離電子・シンチレーション光子同時計数測定	90
4.4	誤差評価	106
第5章	結論	107

図目次

図 2・1 アルゴンの発光スペクトル[3]	8
図 2・2 クリプトンの発光スペクトル[4]	9
図 2・3 キセノンの発光スペクトル[16]	10
図 3・1 実験装置の断面図	21
図 3・2 黒アルマイト処理を施した光吸収体の拡散反射率	22
図 3・3 実験装置の配管図	23
図 3・4 純化装置の断面図	26
図 3・5 ヒーティングロッドの温度に対する純化装置の特性	27
図 3・6 純化装置の性能	28
図 3・7 波高分布を計算する際の各パラメータ	30
図 3・8 計算によって求めた波高分布	31
図 3・9 PD の回路系のブロックダイヤグラム	34
図 3・10 発光の時間変化スペクトル測定に使用した R6836 の回路系	34
図 3・11 キセノンのシンチレーションの発光時間スペクトル	35
図 3・12 $1.01 \times 10^5 \text{ Pa}$ のキセノンのシンチレーション測定において得られた波高分布	36
図 3・13 光電面に印加した電圧(光電子収集電圧)に対する相対波高値	37
図 3・14 測定光電子数 N_{pe} を収集効率 F_{ce} の関数としてプロットした結果	38
図 3・15 シンチレーション光子が全て光電面に入射したとするときの光電子数	39
図 3・16 キセノンランプの発光スペクトル測定実験の概略図	42
図 3・17 キセノンランプの発光スペクトル測定に使用した R208 の配線図	43
図 3・18 キセノンランプの発光スペクトル測定実験において、PMT からの電流を波長の 関数としてプロットした結果	44
図 3・19 R208 の光電面の量子効率と使用したグレーティングの効率	45
図 3・20 実験で得られたキセノンランプの発光スペクトル	46
図 3・21 標準キセノンランプの発光スペクトル	47
図 3・22 希ガスシンチレーション発光スペクトル測定装置の配置	50
図 3・23 希ガスシンチレーション測定実験における真空排気系とガス導入系	51
図 3・24 アルゴン $4.05 \times 10^5 \text{ Pa}$ において得られた波長ごとの PMT からの出力	52
図 3・25 希ガスシンチレーションの発光スペクトル測定実験装置に用いた MgF_2 窓の透過 効率、2つのミラーの反射率、グレーティングの効率、R6836 の量子効率を波長の関 数としてプロットした結果	53
図 3・26 微量キセノンが不純物として存在するときのアルゴン $7.10 \times 10^5 \text{ Pa}$ における発光 スペクトル	55
図 3・27 全圧 1 気圧における希ガスシンチレーションの発光スペクトル	56
図 3・28 全圧 9 気圧における希ガスシンチレーションの発光スペクトル	57

図 3・29 電離電子・シンチレーション光子同時測定実験装置の概略図	60
図 3・30 R6836 使用時の回路系	60
図 3・31 電離電子・シンチレーション光子同時測定における回路構成	61
図 3・32 グリッド型電離箱における等電位線の分布	64
図 3・33 アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ におけるグリッド電離箱のコレクターからの波高分布	66
図 3・34 アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ におけるシンチレーション相対強度の波高分布	67
図 3・35 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て得た飽和曲線	68
図 3・36 アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ における電離電子・シンチレーション光子同時測定の結果	71
図 3・37 アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ におけるシンチレーション波形	72
図 3・38 キセノン $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ におけるシンチレーション波形	73
図 3・39 アルゴンにおける比例シンチレーション強度	74
図 3・40 クリプトンにおける比例シンチレーション強度	75
図 3・41 キセノンにおける比例シンチレーション強度	76
図 3・42 アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ におけるシンチレーション強度の電場効果	78
図 3・43 シンチレーション強度の電場効果	79
図 4・1 発光スペクトル測定実験に用いた光学系部品・PMT の各効率をまとめた結果	81
図 4・2 光学系の効率を補正して得たアルゴンの発光スペクトル	82
図 4・3 光学系の効率を補正して得たクリプトンの発光スペクトル	83
図 4・4 光学系の効率を補正して得たキセノンの発光スペクトル	84
図 4・5 PD(R5071PT)の光電面の量子効率と MgF_2 結晶の窓の透過効率とキセノンの発光スペクトル(補正済み)	86
図 4・6 5.49 MeV の α 粒子に対するシンチレーション光子数とその圧力に対する変化	89
図 4・7 各圧力において、全発光量に対する電荷を全て収集した時の発光量の比	93
図 4・8 アルゴンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係	94
図 4・9 クリプトンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係	95
図 4・10 キセノンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係	96
図 4・11 5.49 MeV の α 粒子によって発生した電子数の圧力依存	97
図 4・12 アルゴンにおける全シンチレーション光子数と電荷を完全に収集した時のシンチレーション光子数の圧力依存	98
図 4・13 クリプトンにおける全シンチレーション光子数と電荷を完全に収集した時のシンチレーション光子数の圧力依存	99
図 4・14 キセノンにおける全シンチレーション光子数と電荷を完全に収集した時のシンチレーション光子数の圧力依存	100
図 4・15 圧力変化に伴う再結合発光過程からのシンチレーション光子数	101
図 4・16 α 粒子による全発生電子数に対するシンチレーションに関わらない電子数の割合の圧力依存	102

図 4-17 アルゴンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係.....	103
図 4-18 クリプトンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係.....	104
図 4-19 キセノンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係.....	105

表目次

表 2・1 希ガスシンチレーションの発光波長	4
表 2・2 エネルギーバランスの式における各項の値[40]	13
表 3・1 使用した光電管、光電子増倍管の仕様。	19
表 4・1 アルゴン、クリプトン及びキセノンの W_s 値	88
表 4・2 アルゴン、クリプトン及びキセノンの W 値	90

第1章 序論

1.1 本研究の背景

放射線が物質に入射すると原子・分子は電離または励起される場合がある。入射した放射線によって直接、電子・イオン対が生成されることを一次電離といい、電離の際に放出された電子及びイオンによってさらに電子・イオン対が作られることを二次電離という。放射線による電離は、放射線と物質との相互作用の典型的なものである。また、ある程度のエネルギー以上の放射線によって生成される電子・イオン対数はそのエネルギーに比例し、逆に電子・イオン対数が測定できれば吸収されたエネルギーが求められることとなり、吸収線量測定の原理となっている。生成される電子・イオン対の効率は、1個の電子・イオン対を生成するのに必要な平均エネルギー、 W 値として示される。

放射線のエネルギーが物質に吸収され、電子・イオン対や励起原子・分子が生成されるが、電子・イオン対が再結合する場合や励起原子・分子が基底状態に戻る際に余分なエネルギーが光として放出される。これがシンチレーションである。入射粒子のエネルギーと発光量との関係からエネルギー測定が可能である、パルスの分解時間が非常に短く高計数率の場合にも有効である、ある種のシンチレータでは入射粒子によって発光波形が異なり粒子弁別が可能であるというような特徴を持ち放射線の検出に利用されてきた。

希ガスは以下のような特徴を持つことから、電離箱やシンチレータといった放射線検出器の媒体として利用され、古くから電離過程やシンチレーション過程について研究がなされてきた。

- ・ 絶縁性が良い
- ・ 大きさ・形状を自由に出来る
- ・ 放射線損傷に強い
- ・ 密度を変えることが出来る

ガスシンチレーションについては光電子増倍管の性能の向上と共に、1950年代から研究が行われてきた。純希ガスについては、 α 線やパルス電子線・陽子線を線源として真空紫外分光器を用いて発光スペクトル、各波長成分の発光時定数の測定[1]・[16]や電場効果(希ガス媒体中に電場を印加したときの発光強度の変化や発光波形の変化)[17]・[19]といった研究がなされてきた。また、アルゴン・クリプトン、アルゴン・キセノンといった希ガス同士の混合ガスや、アルゴン・窒素、アルゴン・メタン、キセノン・窒素といった希ガスと分子性ガスの混合ガスについて、混合の度合いによる発光強度の変化や発光スペクトルの変化、ペニング効果などについて研究がなされてきた[13]・[20]・[25]。さらに、液体希ガス放射線検出器[26]・[28]、比例シンチレーション検出器[29]・[30]等の研究開発も行われてきた。

また、希ガスでは電離電荷とシンチレーションが同時に測定可能であり、物質中の放射線のエネルギー消失過程の知見を得る上で重要な媒体として研究がなされてきた。

以上述べたように、希ガスシンチレーションについては古くから研究がなされてきた。しかしながら、物質の吸収した放射線のエネルギーに対する発光効率を示す絶対蛍光効率に関する報告はほとんど無い。絶対蛍光効率を実験的に求めた例としては常圧の気体キセノン 1.0×10^5 Pa - 2.0×10^5 Pa と液体キセノンについて報告があるのみである[31]。

1.2 本研究の目的・意義

希ガスシンチレーションの絶対蛍光効率は、検出器からの出力の大きさの評価、エネルギー分解能の評価といった実用の面において重要であるばかりではなく、電離とは別の側面から物質中での放射線のエネルギー消失過程を理解する上で重要である。しかしながら、希ガスの絶対蛍光効率に関する報告はほとんどない。なぜならば、希ガスシンチレーションの発光は真空紫外領域にあり、光子の検出自体が困難であり、また検出効率の標準化が困難であるためである。また、希ガス媒体は放射線によって発生する電荷とシンチレーションを同時に測定出来る数少ない媒体である。希ガスシンチレーションの発光機構は第2章において詳しく説明するが、シンチレーション光子は電離原子・電子の再結合または励起原子を起源としている。電離原子・電子の再結合を起源とする発光と励起原子を起源とする発光を分離測定し、おのおののシンチレーション光子数を求めることは、放射線の物質中でのエネルギー分配機構を明らかにする上で重要である。

本研究の目的はアルゴン、クリプトン、キセノンの圧力変化に伴う絶対蛍光効率を求め、電子とイオンが再結合を経て発光する過程と励起原子が起源となる発光を分離測定し、おのおのの光子数を求め、放射線の物質中でのエネルギー分配機構に対する知見を得ることである。

1.3 本論文の構成

第1章では希ガスシンチレーションについてこれまでの研究の流れと現在の状況について述べ、本研究の目的と意義について述べる。

第2章ではこれまでに明らかにされてきた希ガスシンチレーションの発光過程と発光の特性についてまとめ、絶対蛍光効率の定義と意味について述べる。絶対蛍光効率の測定例も紹介する。

第3章では初めに絶対蛍光効率測定の原理と、励起原子を起源とする発光の分離測定の原理について述べる。絶対蛍光効率を求めるために行った、シンチレーション測定、発光スペクトル測定における実験装置・実験方法とデータの解析法について述べる。電離原子・電子の再結合を起源とする発光と、励起原子を起源とする発光を分離測定するための電離電子・シンチレーション光子同時測定における実験装置・実験方法について述べ、実験で得られるデータの解析法について述べる。

第4章では実験より求めたシンチレーション光子数と絶対蛍光効率についてまとめ、考

察を行う。電離電子・シンチレーション光子同時測定実験の結果についてまとめ、電離原子・電子の再結合を起源とする発光と、励起原子を起源とする発光の各々のシンチレーション光子数を求め、放射線の物質中でのエネルギー分配機構に対して考察を行う。

第5章では本研究についての結論を述べる。

第2章 希ガスのシンチレーション過程

本章では、希ガスシンチレーションの発光機構について説明し、その発光波長、発光時定数、混合効果、発光強度の圧力依存、電場効果など、シンチレーションに関わる希ガス物性についてこれまでに明らかにされてきたことをまとめ、絶対蛍光効率の定義とその意味について述べる。また、物質中の放射線のエネルギー分配機構について述べ、絶対蛍光効率との関係について述べる。絶対蛍光効率の測定例についても述べる。

2.1 希ガスの発光過程

アルゴン、クリプトン及びキセノンの低圧から常圧にかけてのシンチレーションの発光スペクトル測定例を図 2-1[3]、図 2-2[4]、図 2-3[16]にそれぞれ示す。希ガスの圧力が低い場合、真空紫外領域に励起レベルからの共鳴線が観測される。これらの共鳴線の強度は圧力の上昇と共に小さくなり、760Torr 以上の圧力になるとほとんど観測されない。100Torr 以上の圧力では連続スペクトルを示す[2][32]。連続スペクトルの大部分は真空紫外領域にあり、アルゴン、クリプトン、キセノンでは 2 つの成分がある。それぞれ、短波長側は "first continuum"、長波長側は "second continuum" と呼ばれる。圧力の上昇に従い "second continuum" の成分が大きくなり、"first continuum" は小さくなつてゆき、760Torr 程度になるとほとんど "second continuum" の成分のみとなる。また、常圧以上の希ガスシンチレーションでは可視光領域の波長範囲に発光はないことが確認されている[49]。以下の表 2-1 に希ガスシンチレーション発光スペクトルの大まかな発光波長の中心を示す。

表 2-1 希ガスシンチレーションの発光波長

	UVU continuum (nm)		Resonance Line (nm)	
	First	Second	1P_1	3P_1
Ne		85.0	73.6	74.4
Ar	110	125	105	107
Kr	125	143	117	124
Xe	150	170	130	148

低圧から常圧までのシンチレーションの発光機構は以下のように説明されている。

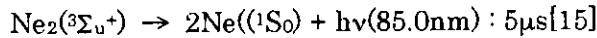
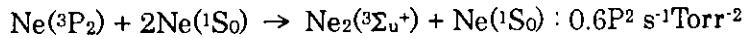
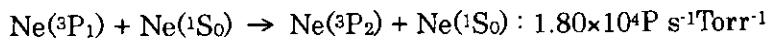
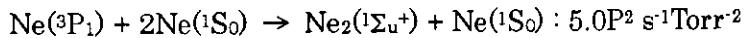
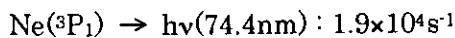
- 1) $R^* \rightarrow R + h\nu$
- 2) $R^* + R + R \rightarrow R_2^* + R$
- 3) $R_2^* ({}^1\Sigma_u^+ \text{ or } {}^3\Sigma_u^+) \rightarrow R + R + h\nu (\text{VUV})$

R は希ガス原子、R* は励起状態の希ガス原子、R₂* ({}¹ Σ_u^+ or {}³ Σ_u^+) は励起状態の希ガスの 2

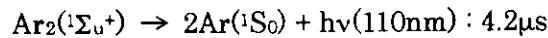
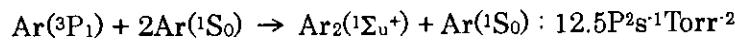
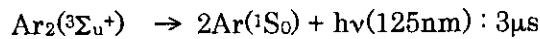
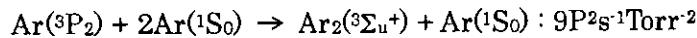
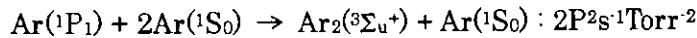
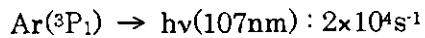
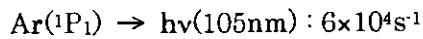
原子分子を表す。圧力が低い場合には 1)式の線スペクトルが観測される。2)式の反応は 3 体反応であり反応のはやさは圧力の二乗に比例する。圧力の上昇と共に 1)式における発光より 2)式における衝突の割合のほうがはやくなる。常圧以上になると 2)式の反応が主となり、励起状態の 2 原子分子が基底状態の原子に分離するときに発するシンチレーション光子が主となる。

希ガスシンチレーションの発光スペクトルにおける各発光波長の減衰時間の測定から希ガスシンチレーションの各過程における時定数が求まる。以下に現在までに明らかにされた各希ガスにおける発光時定数についてまとめた。P は Torr で示される希ガスの圧力である。

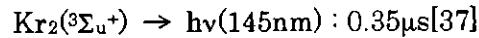
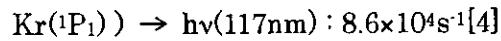
A. ネオン[15][36]



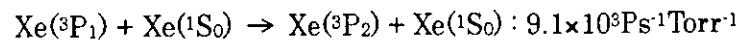
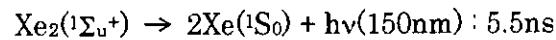
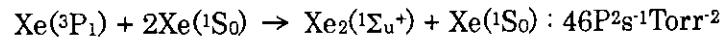
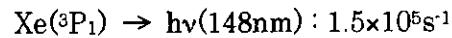
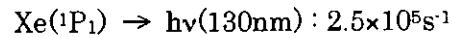
B. アルゴン

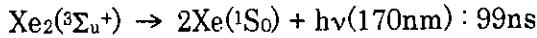
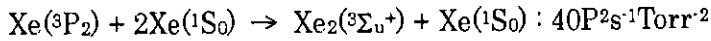
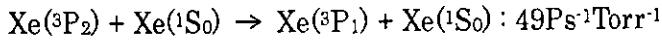


C. クリプトン



D. キセノン[16]





更に圧力が高くなると、電子と電離原子の再結合に起因した発光が観測されるようになる。再結合によるシンチレーションの発光過程は以下のように説明されている[33]。電離原子 R⁺が次のような過程を経て励起 2 原子分子 R₂*となりその解離に伴って発光が起こるという過程である。この発光を再結合発光と呼ぶ。

- 4) R⁺ + R → R₂⁺
- 5) R₂⁺ + e_{th} → R^{**} + R
- 6) R^{**} + R + R → R₂^{**} + R
- 7) R₂^{**} → R* + R
- 8) R* + R + R → R₂* + R
- 9) R₂* → R + R + hν(VUV)

R⁺は電離希ガス原子、R₂⁺は希ガスの電離 2 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、R₂^{**}は高い励起状態の希ガスの 2 原子分子を表す。電子と電離原子の再結合を起源とする発光過程と励起原子を起源とする発光過程を比べると、両方の過程共に発光は励起状態の 2 原子分子から発生しており、発光波長に違いはない。

シンチレーションに再結合発光がどの程度寄与しているかを解明するために、希ガス媒体中に電場を印加し電子・イオンの再結合を抑制し励起原子を起源とするシンチレーションの測定が行われた[17]-[19][33]。Kubota[17]らは 1 気圧のヘリウムに電場を印加しながら α 粒子によるシンチレーションを測定している。この圧力ではヘリウムのシンチレーション強度に電場依存は無く、つまり再結合による発光はほとんどないと報告されている。しかしながら、圧力が高くなるにつれ全発光量に占める再結合発光の割合は増加してゆく。電場を印加した場合、電場を印加しない場合に比べて 30 気圧のヘリウムで約 8%、50 気圧で約 18% 発光量が減少するとの報告がある[34]。また、アルゴン、クリプトン、キセノンにおいても 1 気圧以上の圧力においてシンチレーション強度の変化について報告されている[33][35]。これらの希ガスすべてにおいて、圧力の上昇と共に発光強度は増加していく。アルゴンよりはクリプトン、クリプトンよりはキセノンが低い圧力でシンチレーション強度は飽和するとの報告があるが、測定者によりその飽和する圧力はまちまちで確立された結果はない。例えば、Suzuki[33]はキセノンでは 4000Torr、クリプトンでは 6000Torr においてシンチレーション強度は飽和すると報告しているが、一方、Dolgoshen ら[35]の測定においてはキセノン、クリプトンにおいては 20 気圧でも飽和しないとしている。また、希ガス媒体中に電場を印加し、再結合発光を排除すると観測する発光は励起原子を起源とする発光であるが、その発光強度はほとんど圧力に依存しないことが明らかにされている[33]。

希ガスシンチレーションの発光には紫外領域の波長範囲にも連続分布を示す発光があるとの報告がある。アルゴンにおいて 150nm-300nm[10]、クリプトンにおいて

200nm・300nm[8]、キセノンにおいて 200nm・400nm[7]の波長範囲における発光である。この連続の発光は"third continuum"と呼ばれる。"third continuum"の発光強度は"second continuum"の発光強度に比べて非常に小さいと言われている。キセノンの場合、50 倍ほど"second continuum"の発光強度の方が大きいと言われている[7]。しかしながら、これらの実験は分光器や検出器の波長ごとの検出効率について補正を行っていない。なぜならば、真空紫外領域の波長範囲において標準となるような光源はほとんどなく、ミラーの反射率や分光器のグレーティングの効率、検出器の効率などを正確に求めるることは困難であるためである。よって"third continuum"と"second continuum"の発光強度の比は曖昧なものである。また、"third continuum"の発光機構については確立された説というものはない。

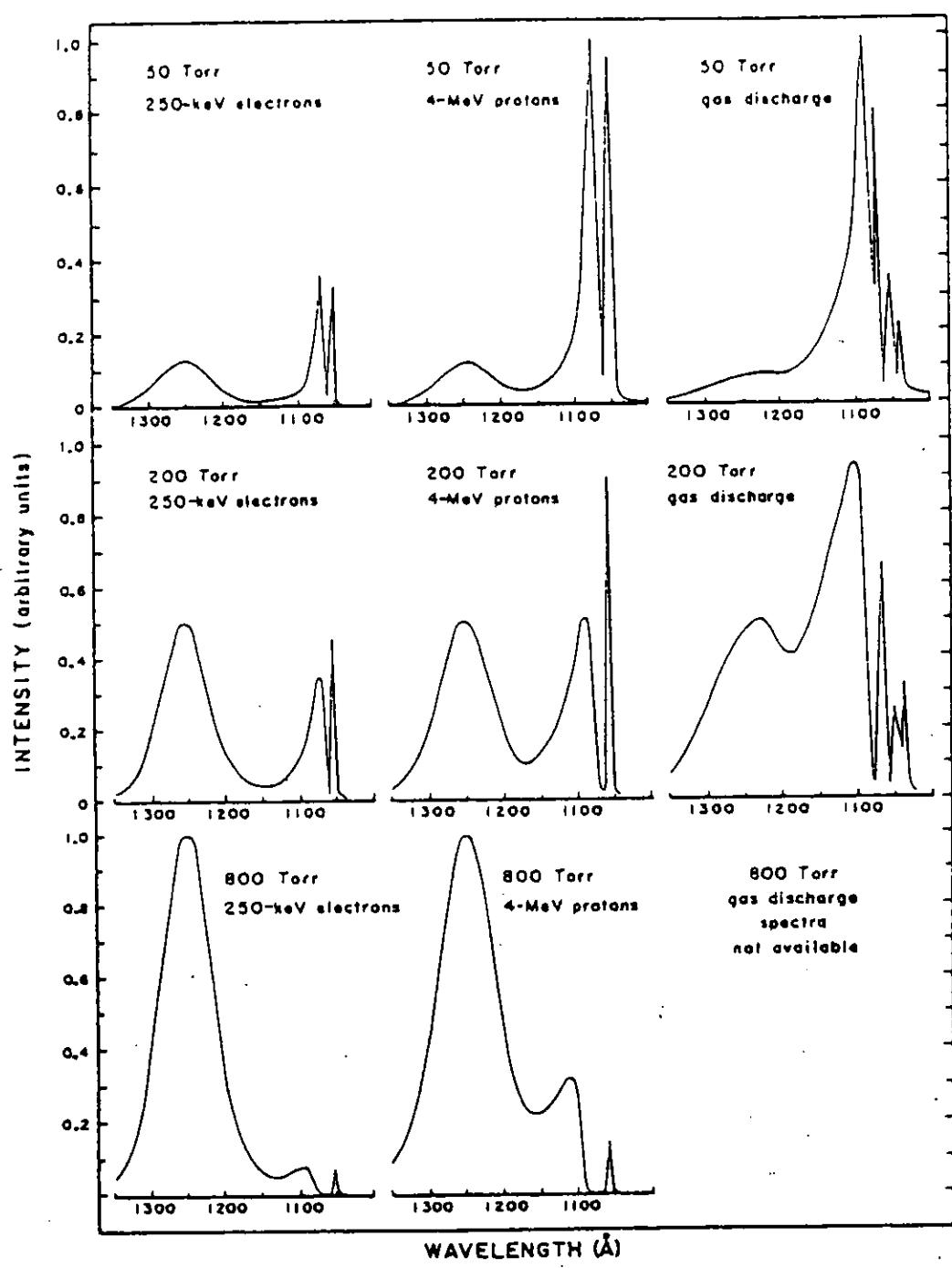


図 2-1 アルゴンの発光スペクトル[3]

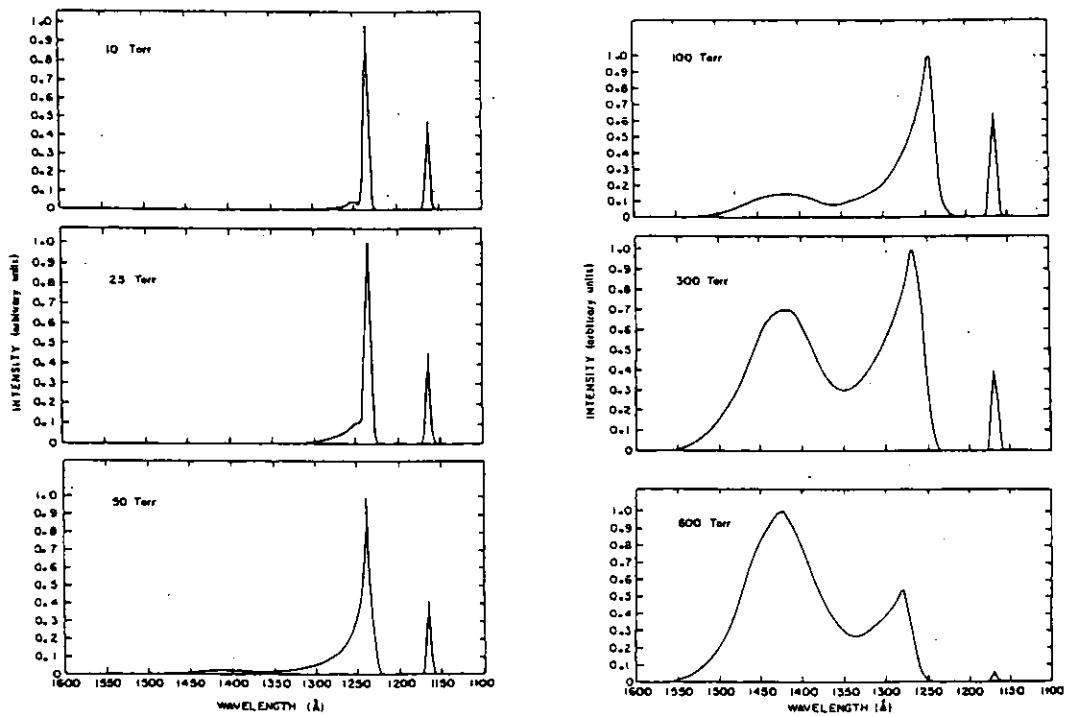


図 2-2 クリプトンの発光スペクトル[4]

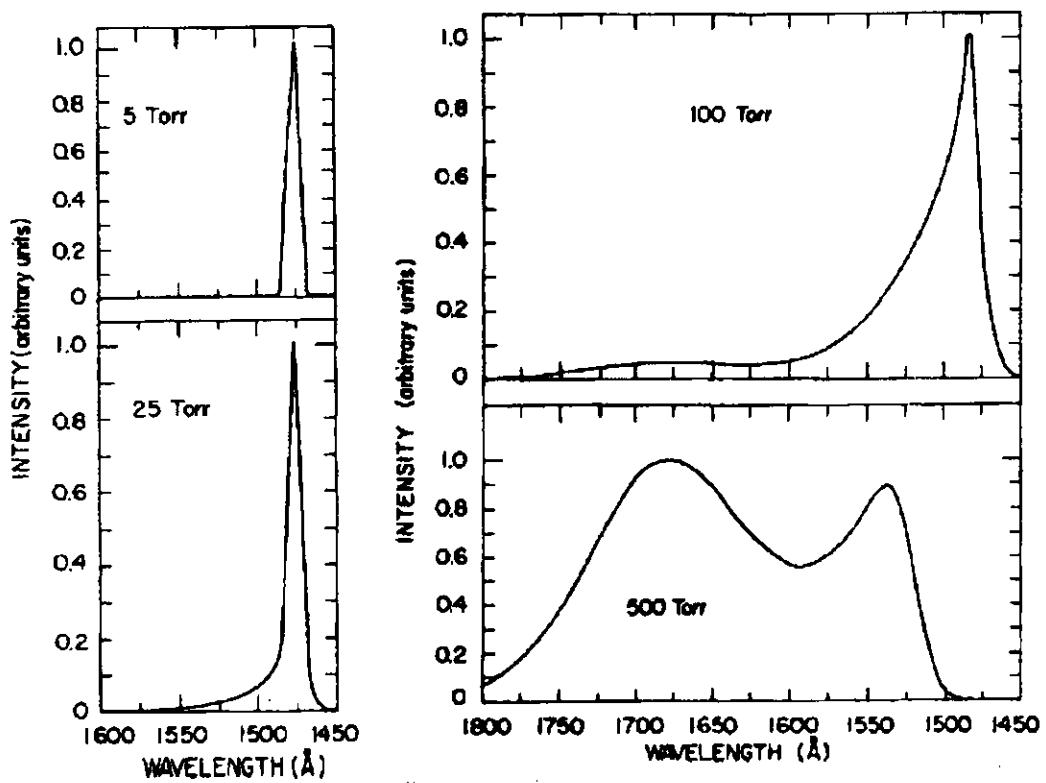


図 2-3 キセノンの発光スペクトル[16]

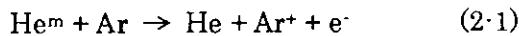
2.2 希ガスの混合効果

2.2.1 希ガス-希ガスの混合

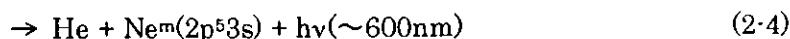
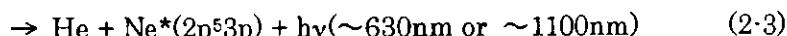
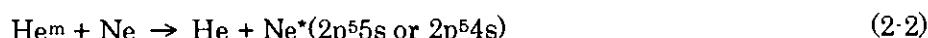
純希ガスにおけるシンチレーションの特性についての研究ばかりではなく、希ガス同士の混合効果についても古くから研究が成されてきた。

Northrop ら[38]は希ガス同士の混合効果について調べるため、様々な組み合わせについて、シンチレーション強度変化を測定している。

Kubota ら[17]はヘリウムに少量のアルゴン、ネオンを加えた時の発光強度の混合効果を diphenylstilben とサリチル酸ナトリウムの波長シフターを用いて調べている。波長シフターは光電子増倍管で検出するのが困難な真空紫外領域の光を検出しやすい可視光域の光に変換するために用いられているもので、50nm から 250nm の波長範囲においてほぼ均一の効率を持ち(ただし、使用する場合の塗布の方法による塗布面の厚み、不均一性などの影響が出やすい)、また、発光の減衰時間も 10×10^{-9} sec. とシンチレーション光の発光時定数に比較して十分短いと報告されている。Kubota ら[17]によれば、ヘリウムに少量のアルゴン、ネオンを加えると発光量は著しく減少すると報告している。この混合効果による発光量の減少は以下ののような反応が起きるためである。



放射線によって生成された準安定状態のヘリウム励起原子 He^m がアルゴン原子 Ar と衝突し、アルゴンイオン Ar^+ が生成され(ペニング過程)、 He^m が消失して発光の基となる He_2^* が生成されなくなるためである。ヘリウムにネオンを混合した場合にも発光量の減少が観測される。この場合、準安定状態のヘリウムのエネルギーはネオンのイオン化ポテンシャルよりも小さいため、ネオン原子をイオン化することはできないのが、ネオン原子を励起するエネルギーは有することから、以下の式のような反応が起こると説明している。



He^m とネオン原子との衝突により励起ネオン原子 Ne^* が生成される。 Ne^* は使用した光電子増倍管の感度の低くなる波長域で発光するため、シンチレーション強度が見かけ上減少する、と結論づけられている。 $\text{Ne}^m(2p^53s)$ の発光寿命は実験装置のクリッピングタイムより長いために測定にかかるないと報告されている。

ネオン・アルゴン、ネオン・キセノン、ネオン・クリプトン及びアルゴン・キセノンの場合には発光量の増加が報告されている[38]。

より詳細に混合効果を解明するために、シンチレーション強度のみではなく、混合ガスの発光スペクトルも測定されている[20][22][24]。

アルゴンに少量のクリプトンを混合した場合、 $\text{Ar}_2(3\Sigma_u^+)$ が解離するときに発する 125nm の発光の減少が観測されている。760Torr のアルゴンに 5Torr のクリプトンを加えると、

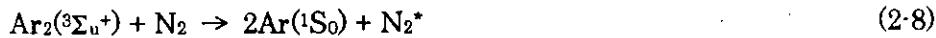
125nm の発光は小さくなり、 $\text{Kr}_2(^3\Sigma_u^+)$ が解離する時に発する 145nm のシンチレーションが観測される[24]。

アルゴンに少量のキセノンを混合した場合、アルゴンのシンチレーション強度の減少はさらに著しい。Takahashi ら[24]は 760Torr のアルゴンに 0.77Torr のキセノンを加えているが、アルゴンのシンチレーションはほとんど観測されなくなり、代わりにキセノンの"first continuum"と"second continuum"が観測されたと報告している。Cheshnovsky[20]は 1000Torr のアルゴンに 500ppm のキセノンを加え発光スペクトルを測定したところ、やはり、アルゴンのシンチレーションはほとんど減衰し、代わってキセノンのシンチレーションが観測されることを示した。このアルゴンのシンチレーションの減少とキセノンのシンチレーションの増加は以下の反応によってキセノンの励起原子が生成され、原子衝突によりキセノンの励起 2 原子分子が生成され、その励起 2 原子分子が発光するためであると説明されている。



2.2.2 希ガス-分子性ガスの混合

アルゴンに少量の窒素を混合した場合、光電子増倍管からの出力が増加したとの報告がある[21]。また、混合効果の原因を解明するために混合ガスの発光スペクトルが測定され、アルゴンに少量の窒素を加えると、著しく窒素が発光するのが測定された[13][24]。窒素の発光は 337nm、357nm、380nm に強い強度をもつスペクトルである。この現象は以下の式によって説明される。



励起状態の Ar_2 が窒素と衝突し、窒素が励起状態となり発光する過程である。ネオンに窒素を加えた場合にも発光量の増加が確認されている[39]。

アルゴンに他の分子性ガス、例えば、酸素、メタン、二酸化炭素を混合した場合はアルゴンの発光は減少し、酸素やメタン、二酸化炭素の発光は観測されていない[24]。これは以下の式のように励起状態のアルゴン 2 原子分子が分子性ガス M と衝突しエネルギーを失い、発光しないためであると結論づけられている。



クリプトン、キセノンに窒素を混合した場合には窒素からの発光は観測されず、希ガスの発光量の減少にのみ作用し、また、他の分子性ガス、酸素、メタン、二酸化炭素を混合した場合でもクリプトン、キセノンの発光の減少が観測され、分子性ガスは発光しないことが報告されている[21][24]。

以上のように不純物として希ガスや分子性ガスが混入した場合、発光強度は大きく変化する。従って、純希ガスの実験を行う場合にはガスの純度に注意を払わなければならない。

2.3 放射線のエネルギー分配機構

Platzman[40]は物質中における放射線のエネルギーは以下のエネルギーバランスの式に従い分配されることを示した。

$$E = N_i E_i + N_{ex} E_{ex} + N_i \epsilon \quad (2-10)$$

ここで、 E は物質中に吸収された放射線のエネルギー、 E_i は電離に費やされた平均の損失エネルギー、 E_{ex} は励起の際の平均の損失エネルギー、 ϵ は亜励起電子(電離や励起を起こすエネルギーよりも小さなエネルギーまで減衰されたエネルギーを持つ電子)の平均エネルギー、 N_i は電離原子数、 N_{ex} は励起原子数である。両辺を N_i で割ると、

$$E / N_i = W = E_i + E_{ex} (N_{ex} / N_i) + \epsilon \quad (2-11)$$

となる。ここで W は一対の電子・イオン対を生成するために必要な粒子の平均エネルギーとして定義される量で電離効率を表す。さらに、両辺をイオン化ポテンシャル I で割ると、

$$W / I = (E_i / I) + (E_{ex} / I) (N_{ex} / N_i) + (\epsilon / I) \quad (2-12)$$

となる。Platzman は光吸収断面積から N_{ex}/N_i を推定し、表 2-2 のような結果を得た。 W_β は β 線に対する実験で得られた W 値であり、 W/I_{cal} はエネルギーバランスの式より計算した値である。参考に幾つかの分子性ガスについても各項の値を示す。

表 2-2 エネルギーバランスの式における各項の値[40]

	W_β / I	E_i / I	ϵ / I	E_{ex} / I	N_{ex} / N_i	W / I_{cal}
He	1.72	1.06	0.31	0.85	0.40	1.71
Ne	1.70	1.06	0.3	0.85	0.4	1.7
Ar	1.68	1.1	0.3	0.85	0.4	1.7
H ₂	2.35	1.2	0.2	0.9		
N ₂	2.24	1.2	0.2	0.9		
O ₂	2.55	1.2	0.2	0.9		

WI はどの希ガスについてもほとんど同じ 1.7 という値をとる。 E_i/I が 1 より大きな値をとる理由は励起状態のイオンや 2 倍以上のイオンが生成される場合もあり余分にエネルギーが費やされてしまうためである。 $0.3I$ は亜励起状態の電子の平均エネルギーを示す。吸収された放射線のエネルギーの約 18% はこの項に費やされ熱になることを示している。 N_{ex}/N_i である 0.4 という値は電離と励起の平均の断面積の比に相当する。

また、Kubota[41]はヘリウムと他の希ガスとの混合効果の実験より N_{ex}/N_i を求めた。希ガスに少量の他の希ガスを混ぜると W 値が著しく減少する場合がある。ヘリウムの W 値は 42.3eV であるが、0.1% のアルゴンを混ぜると W 値が 40% 以上減少することが報告されている。これは前にも述べた以下のようなペニング過程がおこり電子・イオン対が増加する

ためである。



この効果は発見者にちなんで Jesse 効果とも呼ばれる。ヘリウムにアルゴンを少量づつ加えていったときの電離量の増加よりヘリウムの N_{ex}/N が計算されており、その値は 0.48 と報告されている[41]。

2.4 絶対蛍光効率の定義

絶対蛍光効率を示す量としては幾つか存在する。例えば、吸収された放射線エネルギーの光子エネルギーへの変換効率を示す値である。これは以下の式のように定義される。

$$N_p E_p / E \quad (2-14)$$

ここで、 E は吸収された放射線のエネルギー、 N_p はシンチレーション光子数、 E_p はシンチレーション光子の平均エネルギーである。

もう一つ W_s 値がある。 W_s 値は、従来固体シンチレータや希ガスシンチレーション等において絶対蛍光効率を示す値として用いられてきた。 W_s 値は 1 シンチレーション光子を発生させるのに必要な平均エネルギーである。 W_s 値は以下の式で与えられる。

$$W_s = E / N_p \quad (2-15)$$

ここで、 E は希ガスに吸収された放射線のエネルギー、 N_p はシンチレーション光子数である。本研究では W 値の類推から W_s 値を絶対蛍光効率を示す値として用いる。

シンチレーションの発光機構は 2.1 節のように説明されている。この発光機構が正しいとすると、1 個の電離原子が電子と再結合すれば 1 個のシンチレーション光子が発生し、1 個の励起原子から 1 個の光子が発生すると考えられる。全イオンが電子と再結合し発光し、かつ全励起原子が発光する場合には W_s は以下の式で与えられることになる。

$$\begin{aligned} W_s &= \frac{E}{N_i + N_{\text{ex}}} \\ &= \frac{E}{N_i} \frac{1}{(1 + \frac{N_{\text{ex}}}{N_i})} \\ &= W \left(1 + \frac{N_{\text{ex}}}{N_i}\right)^{-1} \end{aligned} \quad (2-16)$$

電離原子と電子との再結合過程は電場を印加することによって排除することが可能であるので、励起原子を起源とする発光のみを測定することは可能である。励起原子を起源とする発光の光子数を測定すれば励起原子数が推定できる。

2.5 絶対蛍光効率測定例

希ガスの絶対蛍光効率はほとんど測定されておらず、1 気圧から 2 気圧のキセノンと液体

キセノンについて実験的に測定した例があるのみである[31]。また最近、液体アルゴン、液体キセノンについて絶対蛍光効率を推定した報告[50]がある。これらの結果について紹介する。

Miyajima ら[31]の実験では光子数(N_p)測定には光電面の量子効率が既知の光電子増倍管(PMT: R208, Hamamatsu Photonics)が用いられた。PMTからの出力 P は、次式で与えられる。

$$P = N_p f_i Q_p f_e G \quad (2-17)$$

f_i は光子の光電面における収集効率、 Q_p はシンチレーションの発光スペクトルに対する実効量子効率、 f_e は光電面から放出された光電子の収集効率、 G は PMT の増幅率である。光電面からの光電子数を正確に求めるため、 $G=1$ で動作させる PD モードと呼ばれる手法がとられている。この手法では PMT のグリッド、第 1 段ダイノードと第 2 段ダイノードを結線し収集電極とし、信号を電荷有感型前置増幅器へと導く。光電面と他のダイノードには光電面から放出される光電子を全て収集するため($f_i=1$ とするため)負の電圧を印加する。電子数で校正された水銀パルサーとチャージターミネータから電荷有感型前置増幅器に電荷を供給し、波高値を電子数に変換することによって光電面からの光電子数を求めている。PMT はキセノン中に設置される。液体キセノンの実験でも液体キセノン中にセットされる。液体キセノンは約-110°C と低温であるが、光電面の量子効率は温度によって変化し、PMT の量子効率は室温で測定されているため、液体キセノン温度での量子効率を求める必要がある。彼らの実験では液体キセノン温度での量子効率は、気体キセノンを冷却していったときの PMT からの波高値と室温での波高値との強度比から液体キセノン温度での量子効率を相対的に求めている。線源には ^{210}Po を用い、5.31MeV の α 粒子によって発生するシンチレーションを測定している。希ガスの純化のため、Ti-Ba ゲッターによる純化装置が用いられているが、液化の必要から連続純化ではなく、ガス導入時に一度だけ純化装置を通過させる one-pass 法である。実験は、光子が反射するように線源と PMT の周囲の壁にテフロンを用いた場合と、反射がないように黒アルマイト処理を施した光吸収体を用いた場合で行われている。線源と光電面との距離を変えながら実験が行われている。光子の収集効率はモンテカルロシミュレーションによって光子を輸送し計算している。壁における光子の反射率を 0% から 100 の間で幾つか変えながら、また、光電面と線源との距離を変えながら光子の収集効率の計算を行っている。実験より得られた波高値を線源と光電面との距離の関数としてプロットしたものを収集効率の計算から得た曲線でフィッティングし、壁の反射率を決め収集効率を決定している。また、フィッティングの結果より、テフロンのキセノンの発光に対する反射率は 82.5%、黒アルマイトの場合 0% と求めている。結果、 W_s 値は液体キセノンでは $16.3 \pm 0.3\text{eV}$ 、気体キセノンでは 1 気圧から 2 気圧で $49.6 \pm 1.1\text{eV}$ とこの圧力範囲においては圧力に依存しないと報告している。

Doke ら[50]は液体アルゴン、液体キセノンに様々な LET の粒子を照射し、電離とシンチレーションを同時に相対測定することによって、絶対蛍光効率を推定している。LET の大きい重荷電粒子を照射した場合、相対シンチレーション強度が LET に依存しない領域があ

ることを報告している。電場 E_e のときの相対シンチレーション強度を $S_r(E_e)$ 、収集電荷を $Q(E_e)$ 、 $E_e=0$ の時の相対シンチレーション強度を S_{r0} 、無限大の電場を印加したとするときの収集電荷を Q_0 、 χ を $E_e=0$ の時の N_i に対する escaping electron の比とし、2.1 節での希ガスの発光機構が正しいとするならば以下の式の関係が得られる。

$$\frac{S_r(E_e)}{S_{r0}} = \frac{\left(1 - \frac{Q(E_e)}{Q_0} + \frac{N_{ex}}{N_i}\right)}{\left(1 + \frac{N_{ex}}{N_i} - \chi\right)} \quad (2-18)$$

1MeV の電子を照射した場合の実験より得たデータから $S_r(E_e)/S_{r0}$ を $Q(E_e)/Q_0$ の関数としてプロットすると、十分電場が強い領域では上の式より直線関係が得られる。この直線の式より、 N_{ex}/N_i を求め、液体希ガスの W 値より W_s 値を推定している。 N_{ex}/N_i はアルゴン、キセノンにおいてそれぞれ、0.29、0.20 であり、励起原子と電離原子がすべて発光したときの W_s 値は液体の W 値と(2-16)式より液体アルゴンで 19.5 ± 1.0 eV、液体キセノンでは 13.8 ± 0.9 eV と報告している。 α 粒子に対してはクエンチング(消光)効果により液体キセノンで絶対蛍光効率は 17.9 ± 1.5 eV と得られたと推定されている。

第3章 実験

本章では初めに、絶対蛍光効率測定の原理と励起原子を起源とするシンチレーションの分離測定の原理について述べる。次に、絶対蛍光効率を求めるために行った光電子数測定実験、希ガスシンチレーションの発光スペクトル測定実験について実験装置の詳細と得られたデータとその解析法について述べる。次に、ガスシンチレーションにおける励起原子を起源とする発光のみを測定するために行った電離電子・シンチレーション光子同時測定実験についての実験装置の詳細、得られたデータとその解析法について述べる。

3.1 実験原理

3.1.1 絶対蛍光効率測定の原理

絶対蛍光効率を求めるためにはシンチレーション光子数 N_p を測定しなければならない。本研究では光子数測定には光子の波長に対する光電面の量子効率が既知の光電管(PD)を用いる。 N_p は次式で与えられる。

$$N_p = N_{pe} / (Q_e F_\infty) \quad (3-1)$$

ここで、 N_{pe} はシンチレーション光子によって PD の光電面から放出される光電子数、 Q_e は希ガスの発光スペクトルに対する光電面の平均量子効率、 F_∞ は光電面におけるシンチレーション光子の収集効率である。

発光点の周囲の壁で光が反射する場合、光子の光電面における収集効率を正確に計算するのは困難である。なぜならば、収集効率を計算するには壁の反射率や反射の状態(拡散反射なのか鏡面反射なのか)といったパラメータが重要となるが、希ガスシンチレーションの発光は前述のように真空紫外領域にありこれらのパラメータを正確に求めるのは困難であるからである。そこで、光源の周囲から反射を経て光電面に入射する光子数が光源から直接光電面に入射する光子数より無視できるほど少なければ、光子の収集効率は光源の光電面を見込む立体角によって決定できると考え、光子が反射しにくく、また、反射を経て光電面に入射しにくいような構造をもつ実験装置を設計した。

シンチレーション光子によって光電面から放出される光電子数は、電子数で校正された水銀パルサーとチャージターミネータの組み合わせから電荷有感型前置増幅器(CSA)に電荷を一定量供給し、波高値を電子数に変換する[42]ことによって得られる。アルゴン・メタンを検出器媒体として使用したグリッド電離箱を用い、グリッド電離箱からの波高値が α 粒子によって発生する電子数(W 値から計算する)に相当するとし、水銀パルサーとチャージターミネータの組み合わせが電子数によって校正されている。また、グリッド電離箱だけではなく、Si 検出器を用いても同様の校正が行われている[42]。

Q_e は光子の波長 λ に対する光電面の量子効率 $q_e(\lambda)$ と希ガスの発光スペクトル $I(\lambda)$ より次

式から計算する。

$$Q_e = \frac{\int I(\lambda) q_e(\lambda) d\lambda}{\int I(\lambda) d\lambda} \quad (3-2)$$

発光スペクトル $I(\lambda)$ は Q_e を求めるために重要なパラメータである。発光スペクトルはこれまでに多くの研究者によって測定されてきた。しかし、真空紫外領域の波長において使い勝手が良く安定した標準光源というものは入手困難であるため、発光スペクトル測定系全体の波長ごとの検出効率の標準化は困難であり、検出効率の標準化はほとんど行われてこなかった。そこで正確に発光スペクトルを求めるため、波長ごとの効率が既知の真空紫外用分光器と波長ごとの量子効率が既知の光電子増倍管(PMT)を使用し、独自に発光スペクトルの測定を行った。

3.1.2 励起原子を起源とするシンチレーションの分離測定の原理

希ガスシンチレーションには電離原子と電子が再結合し発光する過程と励起原子が起源となり発光する過程がある。励起原子を起源とするシンチレーションを分離測定するためには、希ガス媒体中に電場を印加し、電子を収集することによって電離原子と電子が再結合するのを妨げ、放射線によって発生する電子とシンチレーション光子を同時に測定すればよい。

放射線によって発生する電子数の測定にはグリッド電離箱を使用する。グリッド電離箱は放射線によって発生した電子・イオン対の位置からコレクターまでの距離によらず、発生した電子・イオン対の数に比例したパルスを取り出すことが出来る。通常、グリッド電離箱のパルス測定では電子数の絶対値は分からないが、電子数で校正した水銀バルサーとチャージターミネータの組み合わせから電荷有感型前置增幅器に電荷を供給することによって波高値を電子数に変換できる。

シンチレーション光子の検出には光電子増倍管(PMT)を用いる。PMT を用いた場合シンチレーション光子数を直接求めることは困難である。なぜならば、PMT の電子増幅率を正確に決定し光電面からの光電子数を正確に求めることは困難であるからである。また、グリッド型電離箱を導入するために、光子の反射やグリッドの影の影響などで光子の収集効率を正確に決定するのは困難であるからである。しかしながら、電場を印加しない場合の相対シンチレーション強度を 3.1.1 項の手法で求めたシンチレーション光子数で規格化することにより、電荷を収集した時のシンチレーション光子数を決定することが出来る。

3.1.3 使用した光電管と光電子増倍管

光電子数測定には真空紫外から紫外領域の波長に対する量子効率が既知の光電管(R5071PT, Hamamatsu Photonics)を用いた。光電管は光電面と収集電極からなる真空 2 極管である。希ガスシンチレーションに可視光領域の波長範囲の発光がないことを確かめるためには、可視光のみに感度を持つ光電子増倍管 7696(Hamamatsu Photonics)を用いた。

希ガスシンチレーションの発光スペクトル測定法確立のために常用標準光源を用いた実験では光電子増倍管 R208(Hamamatsu Photonics)を用いた。常用標準光源は紫外領域から赤外領域の波長に対して放射照度が校正されているため、紫外領域から可視光領域に感度を持ち量子効率が既知の光電子増倍管を用いた。希ガスシンチレーションの発光スペクトル測定には真空紫外から紫外領域の波長に対する量子効率が既知の光電子増倍管 R6836(Hamamatsu Photonics)を用いた。電離電子・シンチレーション光子同時測定に用いた光電子増倍管(R6836, Hamamatsu Photonics)は発光スペクトル測定に用いたと同一のものである。使用した光電管、光電子増倍管の特性を表 3-1 に示す。

表 3-1 使用した光電管、光電子増倍管の仕様。

型名	受光面サイズ 直径(mm)	感度波長域 (nm)	窓材質	光電面材質
R5071PT	46	115-350	MgF ₂	Cs·Te
R6836	23	115-350	MgF ₂	Cs·Te
R208	46	160-600	融解石英	Sb·Cs
7696	46	280-650	硼硅酸ガラス	Sb·Cs

3.2 光電子数測定実験

3.2.1 実験装置

光電子数測定実験の実験装置の概略図を図 3-1 に示す。チェンバーはステンレス(SUS304)製であり、PD を設置する部分(図 3-1 の上部)と線源を設置しガスを封入する部分(図 3-1 の下部)から成る。下部のチェンバーは内径 199.3mm、高さ 140mm であり、上部は内径 146mm、高さ 175mm である。PD は常圧以上のガス中では破損する恐れがあるので、高圧ガスを導入するときは上部と下部を MgF₂ 結晶の窓(直径 70mm、厚さ 10mm、OKEN)によって分離し、ガスを下部に封じきる。ガスケットにはバイトンの O·リング(G60)を用い、ステンレスのチェンバーと MgF₂ の結晶で O·リングを潰して密封状態を維持する。MgF₂ の窓を用いた場合、PD が設置している領域は分子性ガスによって真空紫外領域の光子が吸収されないように真空に保つ。 α 線源としては ²⁴¹Am を 2mm ϕ のステンレス製のネジの先端部に電着したものを用いる。

シンチレーション光子の収集効率をシンチレーション発光点から PD の光電面を見込む立体角より正確に決定するため、線源・検出器の周囲から反射を経て PD の光電面に入射する光子が発光点から直接光電面に入射する光子数に対して無視できるほど小さくするために、黒アルマイト表面処理を施したアルミ製光吸收体を製作した。壁での光子の反射をおさえるため、光吸收体をチェンバーの内側に設定した。光吸收体の構成は、面積を広くし 1

回の反射によって光電面に入射する光子を少なくするために、ドーナツ状の薄い板を重ねた形状となっており、下に設置してある光吸収体ほど中心の穴の直径が大きくなっている。また、PD の光電面からチャンバーの内側のステンレス表面は見えないような構造になっている。線源を固定する線源板にも黒アルマイト処理を施した。線源板は直線導入機に固定され、PD の窓との距離(Z)を 0mm から 140mm の範囲で変えることが出来る。図 3-2 に黒アルマイト処理を施した光吸収体の拡散反射率を示す。測定には拡散反射率測定装置(日本分光製の分光光度計 V-550 に日本分光製の積分球装置 ISV-569 を取り付けた装置)を使用した。測定結果より、250nm から 600nm の波長範囲における拡散反射率は 7% から 8% であることが分かった。希ガスシンチレーションの発光波長である真空紫外領域の光子では一般に紫外・可視領域の波長の光子よりも透過しにくく、反射しにくいので、この値より拡散反射率は更に小さいと推測される。

実験装置全体はガスを封入しシンチレーションを測定するチャンバー、真空排気系、ガス導入系、純化装置から成る。図 3-3 にガス導入系、純化装置、チャンバー、真空系の配置図を示す。真空排気系はロータリーポンプ(RP: 2015 SD, Alcatel)、ターボ分子ポンプ(TMP: STP-451, Seiko Seiki Co.)、電離真空計(IG: USD-1S, Anelva)、熱電対真空計(T.G.: TG-550, Anelva)と四重極質量分析計(QMS: QMA064, Balzers)で構成される。図 3-3 に示すように、純化装置はチャンバー・ガス導入系とは独立に真空排気が可能となっている。また、QMS に接続してあるバルブは流量調節バルブであるので、チャンバーへのバルブを閉じ、真空排気を行いながらガスの成分の分析ができる。

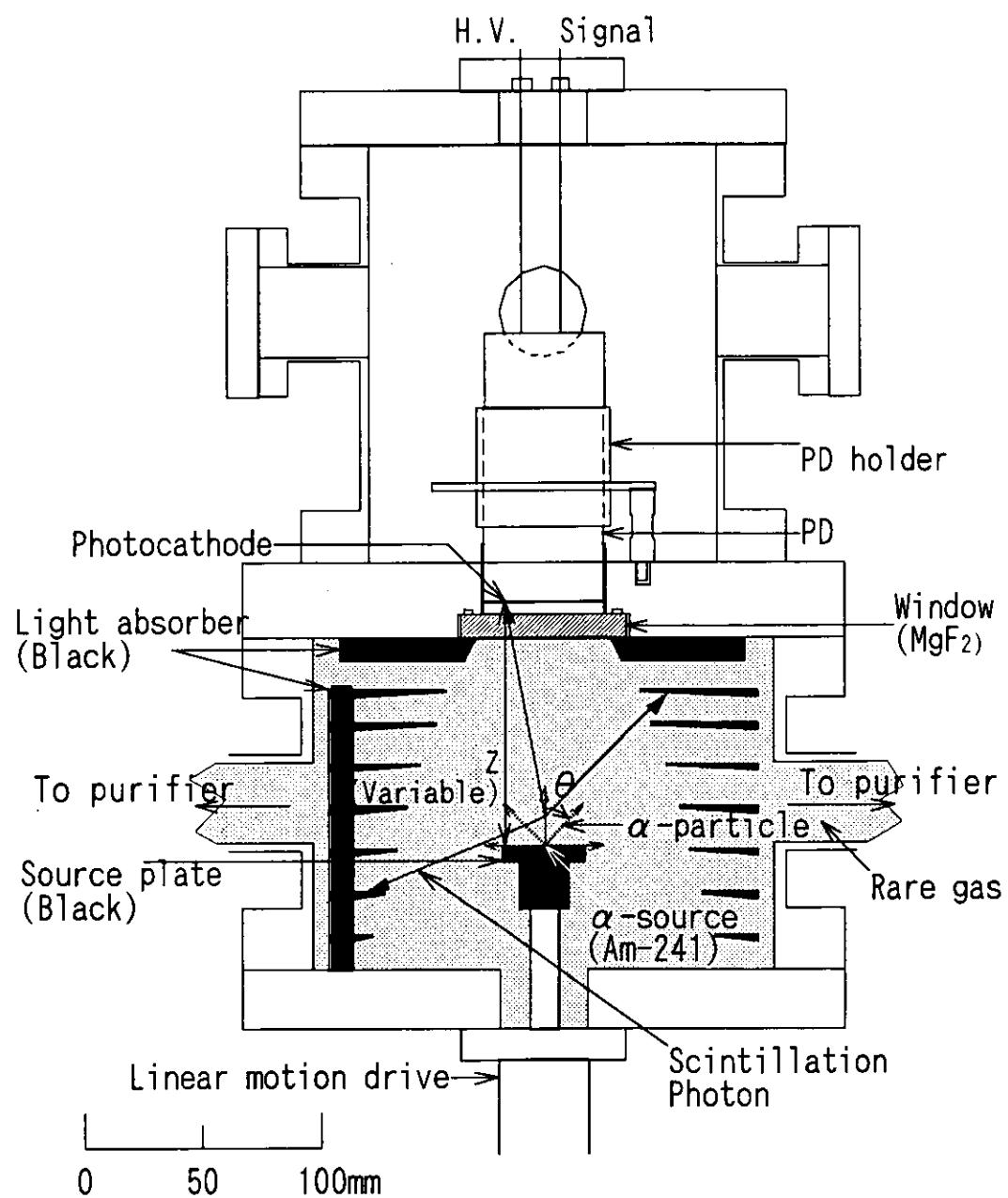


図 3-1 実験装置の断面図

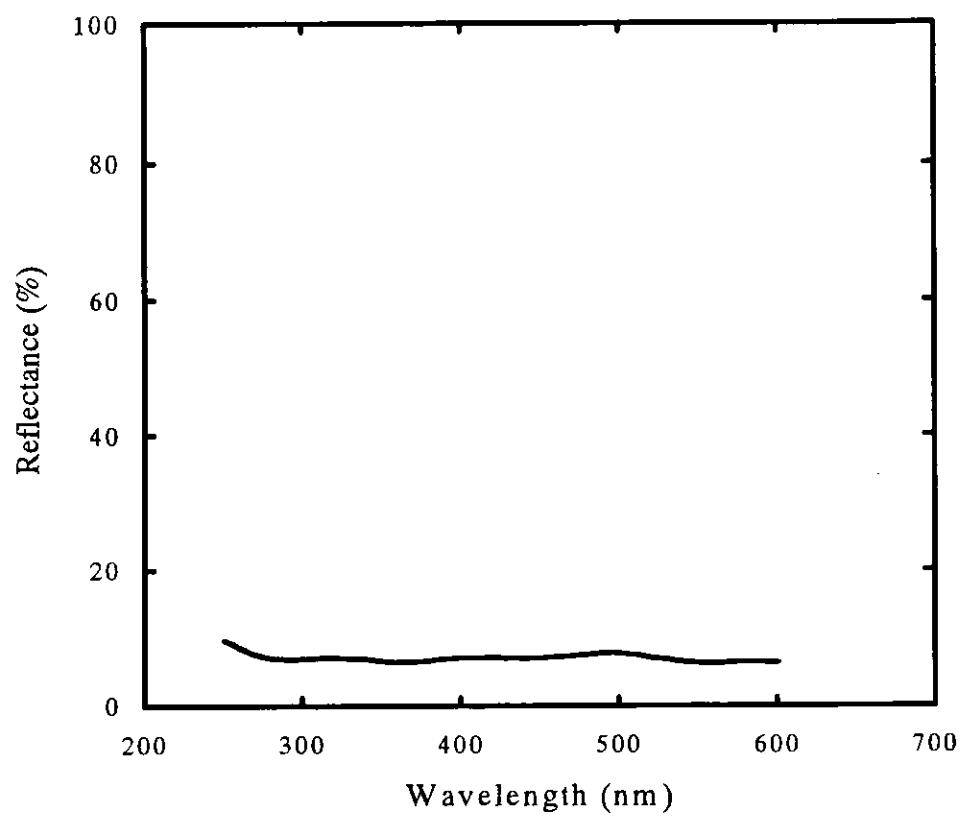


図 3-2 黒アルマイト処理を施した光吸収体の拡散反射率

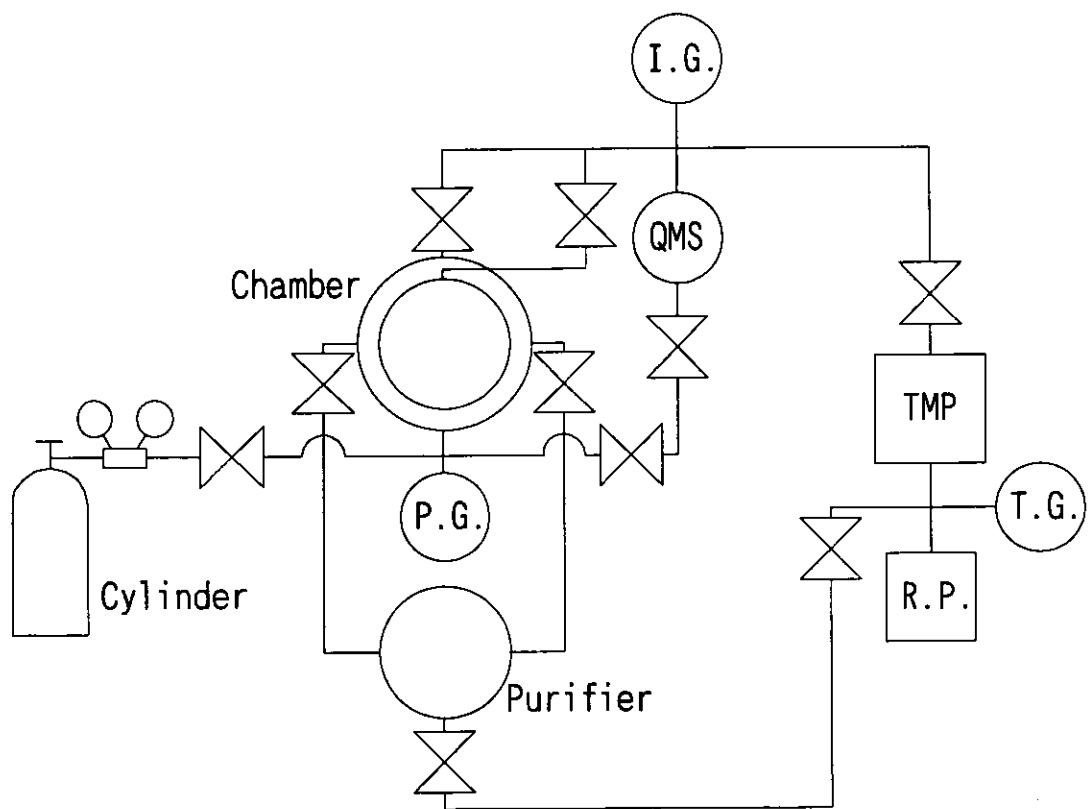


図 3・3 実験装置の配管図。I.G.:電離真空計、QMS:四重極質量分析計、P.G.:圧力計、T.G.:熱電対真空計、TMP:ターボ分子ポンプ、R.P.:ロータリーポンプ。

3.2.2 ガス導入システムと純化装置

第2章で述べたように希ガス中に窒素、酸素、二酸化炭素、一酸化炭素、水素などの分子性ガスが不純物として存在すると、希ガス以外の原子が発光してしまう場合や希ガス発光が減少してしまう場合があり、希ガスのシンチレーション強度が大きく変化する。本実験はガスを封入した状態で行うため、ガスを導入する前にチャンバー内を高真空にしても測定中に壁からのアウトガスや配管の接続部分からの微少な真空漏れによりガスの純度は悪くなってしまう。また、本実験では入手可能な市販ガスの中でも最高純度のものを用いたが、その中にもわずかながら不純物が存在する。以上のことから、希ガス中の不純物を取り除くために希ガス純化装置を導入し、希ガスの連続的純化法を確立した。

純化装置の断面図を図3-4に示す。純化装置の内部にはゲッターを封入する筒が設置している。筒の上下はメッシュで区分されており、ガスが通り抜けられるようになっている。

使用したゲッター(ST707, Saes)は直径2mm 厚さ1mm のペレット状のジルコニウム(70.0%)・バナジウム(24.6%)・鉄(5.4%)の合金であり、合計5000個を使用している。ゲッターの原理、各種ガスに対する働きは以下のように説明される[43]。ガス吸着プロセスは粒子の表面に衝突する活性ガスの化学吸着から成る。ガス分子を連続的に長時間吸着させると、次第にゲッターの表面は飽和状態となり、それ以上はガスを吸着しなくなる。そこで、ゲッターを加熱することで表面に吸着したガス分子をゲッター内部に拡散させ、再び表面を活性な状態にできる。この活性化は初期排気性能を回復させるためにゲッターがガス分子によって飽和するまで繰り返し行うことが出来る。水素はゲッターと安定な化合物をつくり、ゲッター内部に拡散し固溶体として保持される。ゲッターを高温にすると水素は放出される。一酸化炭素、二酸化炭素、窒素、酸素などの活性化ガスはゲッターに不可逆的に化学吸着される。ガス分子の化学結合はゲッター表面においてまず分解され、それぞれの成分は原子として吸着され、酸化物、炭化物、窒化物を形成する。ゲッターとこれらの化学結合力は強く、ゲッターを1000°Cまで熱してもガスの再放出はあまり大きくなない。反対に高温にすることによって一度吸着したガスをゲッター内部に拡散し、表面をクリーンな状態にして吸着能力を高める。水蒸気やハイドロカーボンの化学結合はゲッターの表面で分解され水素、酸素、炭素になり、前述のように吸着される。不活性ガスはゲッターには吸着されない。よって、不活性ガスの純化に使用できる。

純化装置の中心にはヒーティングロッド(直径11.5mm、ヒーター部180mm、全長350mm、100V-1000W、熱電対温度計内蔵)が通しており、これによってゲッターを熱して純化装置として機能させる。また、ガスが熱せられ、対流によりガスがチャンバーと純化装置の間を循環することによって、実験中でもガスの純化が連続的に行われる。純化装置の性能はシステム全体を真空状態にし、QMSでガスの分圧を測定することで調べた。図3-5は純化装置を動作させ、真空排気を止めて10分後のガスの分圧を測定したものである。最適な動作条件を決定するため、ヒーティングロッドの温度を幾つか変えて実験を行った。温度が高すぎると水素だけでなく窒素、一酸化炭素の分圧も大きくなっているのが分かる。ゲッターの温度が高すぎると、かえってゲッターからガスが放出されてしまい、純化装置とし

て機能しなくなるのが分かる。この結果より純化装置を動作させる温度を 250°C と決定した。次にヒーティングロッド温度を 250°C として純化装置を動作させ純化装置の性能を調べた。チャンバーをバルブで純化装置から隔離できる構造として、純化装置を使用した場合(バルブを開いてチャンバーと純化装置を接続した場合)と使用しない場合(バルブを閉じてチャンバーから純化装置を切り離した場合)の各残留ガスの分圧を測定した結果を図 3・6 に示す。図から分かるように純化装置を使用しない場合(purifier-out)に真空排気を止めると各ガスの分圧が上昇していくのが分かる。バルブを開き純化装置を使用した状態(purifier-on)にすると分子性ガスに関してはその分圧が急激に減少するのが分かる。窒素、一酸化炭素の分圧については 2 枠も減少し、この低い分圧の状態が維持されるうえ、少しずつ更に分圧が減少しているのが分かる。

実験装置系全体はガス封入前に 1.0×10^{-5} Pa まで排気した。ゲッターを真空排気しながら約 450°C で 10 分間活性化した後、純度 99.9995% の希ガスを封入する。測定中はゲッターの温度を 250°C に保った。実験はアルゴン、クリプトン、キセノンで 1.0×10^6 Pa から 1.0×10^6 Pa の圧力範囲で行った。圧力測定には隔膜式絶対圧力計(P. G.: MKS722A, Baratron)を使用した。

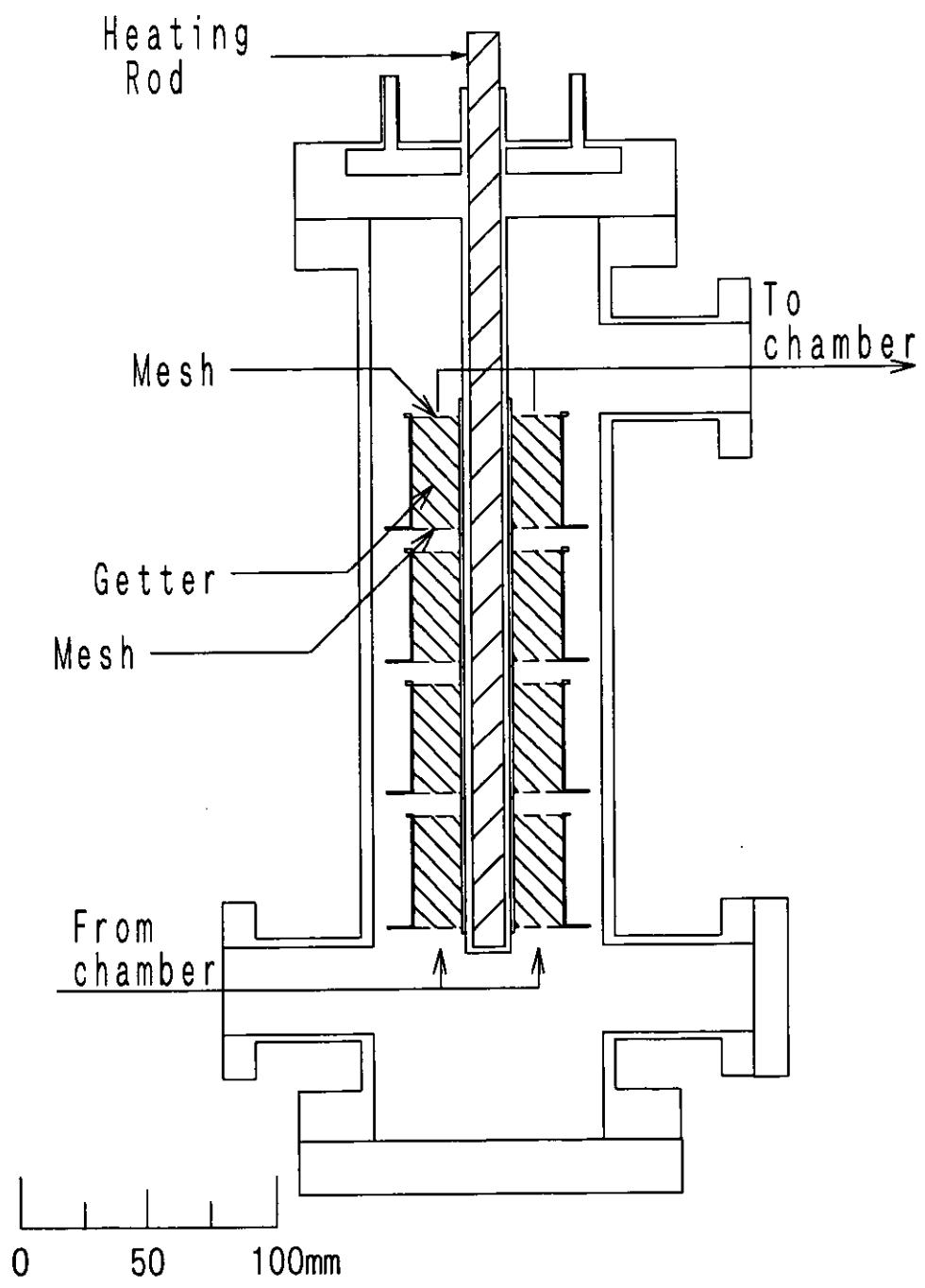


図 3-4 純化装置の断面図

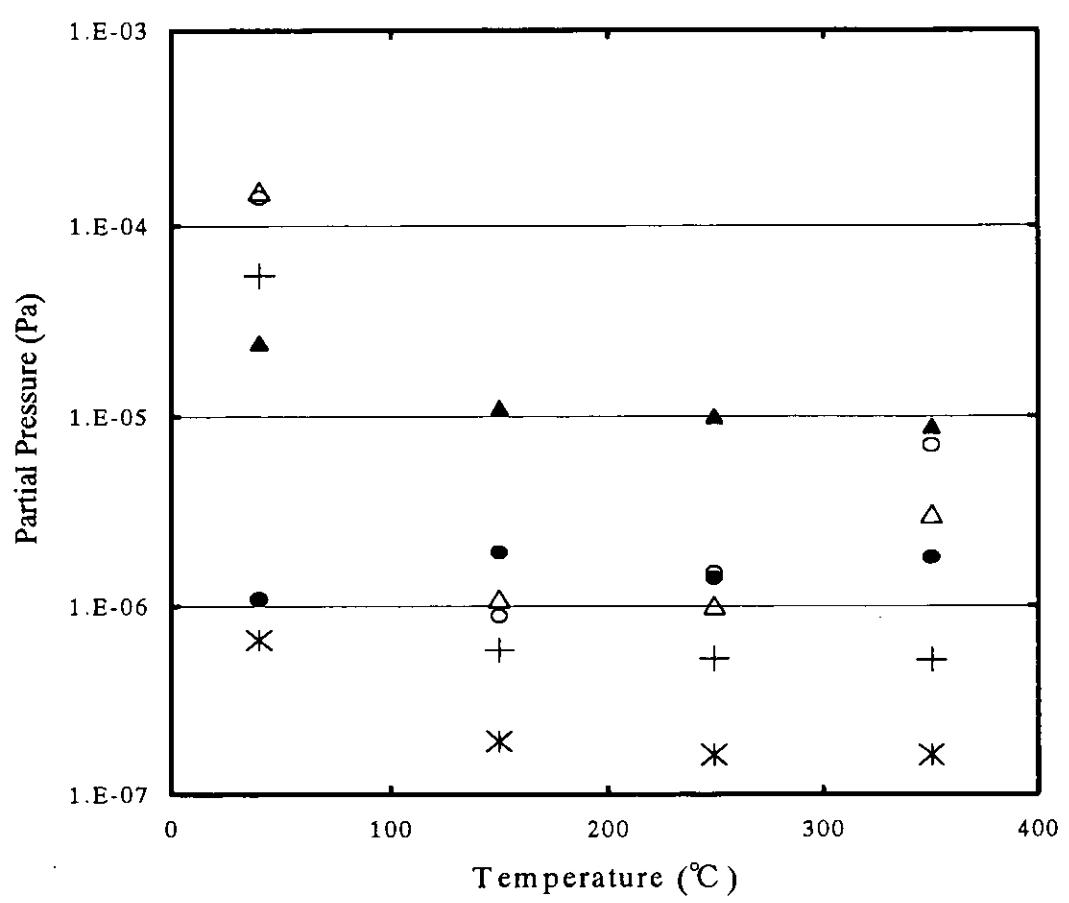


図 3-5 ヒーティングロッドの温度に対する純化装置の特性。○は水素、▲は水蒸気、△は窒素と二酸化炭素、*は酸素、●はアルゴン、+は二酸化炭素の分圧を示す。

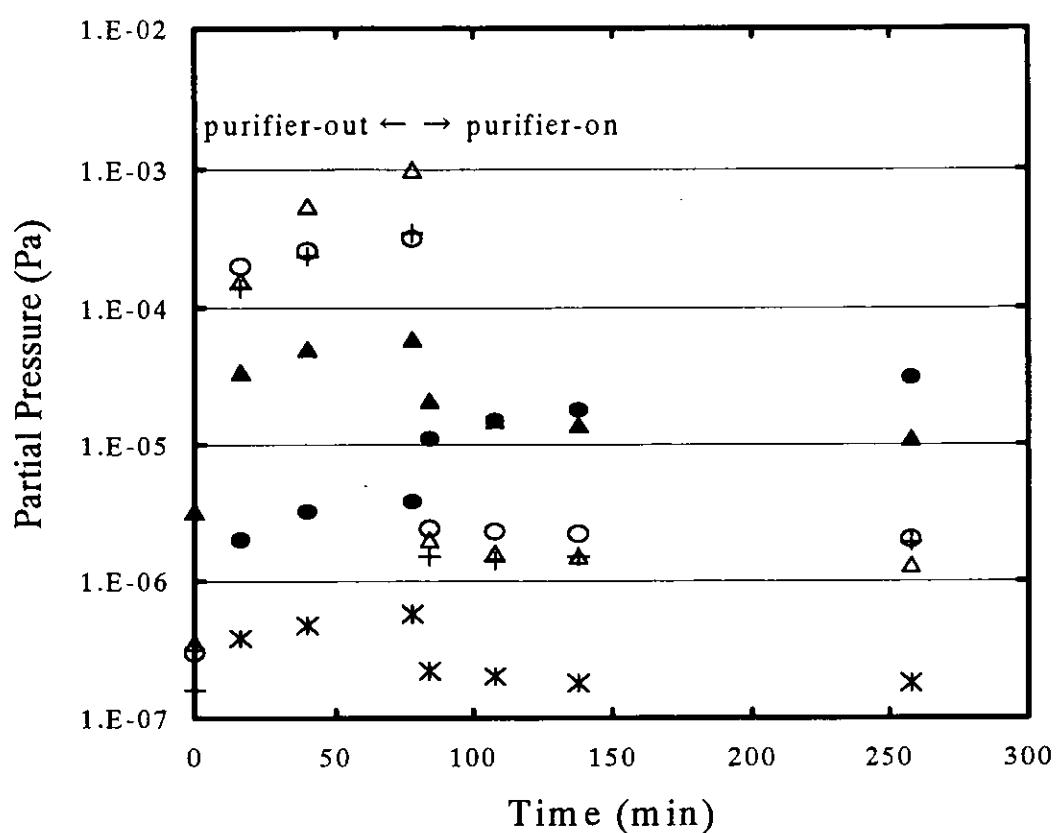


図 3-6 純化装置の性能。○は水素、▲は水蒸気、△は窒素と一酸化炭素、＊は酸素、●はアルゴン、+は二酸化炭素の分圧を示す。

3.2.3 波高分布のシミュレーション

実験で得られる波高分布の構造を理解するために、得られる波高分布を計算で求めた。波高値は PD の光電面から放出される光電子数に比例し、光電面から放出される光電子数は光電面に入射する光子数に比例する。光電面に入射する光子数は光子の光電面における収集効率に比例する。光源の周囲の壁から反射して光電面に入射する光子数が光源から直接光電面に入射する光子数に比べ無視できるほど小さければ、全発生光子数に対する光電面に入射する光子数(すなわち光電面における光子の収集効率)は光源の光電面を見込む立体角で決定される。計算を行う際の各パラメータを図 3-7 のように決定する。 R は光電面半径、 L は α 粒子の飛程、 I は α 粒子の飛跡に沿った線源から発光点までの距離、 θ は α 粒子の放出角である。全立体角 4π に対する発光点 I から光電面を見込む立体角 G_p は次式で示される[44]。

$$G_p = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{Z1}{D}\right) + \frac{1}{2} \frac{Z1}{D} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n (2n+1)!}{2^{4n} (n!)^2} \left(\frac{\rho^2}{D^2}\right)^n \sum_{k=0}^n m_k \quad (3-3)$$

ここで、 D と m_k は次式で定義される。

$$D = \sqrt{Z1^2 + R^2} \quad (3-4)$$

$$m_k = \frac{(-1)^{k+1} (4n-2k)!}{(2n-k)! (2n-2k+1)! k!} \left(\frac{Z1^2}{D^2}\right)^{n-k} \quad (3-5)$$

飛跡にそった発光強度 $f(l)$ はプラッグ曲線に比例すると仮定すると、光電面に入射する光子数は次式で定義される。

$$\int_0^L G_p f(l) dl \quad (3-6)$$

また、収集効率 F_{ce} は次式で定義される。

$$F_{ce} = \int_0^L G_p f(l) dl / \int_0^L f(l) dl \quad (3-7)$$

計算で得られた波高分布を図 3-8 に示す。キセノン $1.01 \times 10^5 \text{ Pa}$ における実験を想定し $L=23.5 \text{ mm}$ とし、この計算において全発光量は 25262 photons とした。光電面半径は 2 インチの光電管を使用するとして $R=23 \text{ mm}$ とした。図において横軸は光電面に入射した光子数であり、実際の測定では波高値に相当する。また、 α 粒子は 2π 方向に等方的に放出されるとして、幾つか Z をかえて計算を行った。 Z が大きくなると光電面を見込む立体角が小さくなり、光電面に入射する光子数が小さくなる。また、一定の Z であっても α 粒子は飛程を持つため、飛跡に沿った発光の重心を考えると、 α 粒子が $\theta=0^\circ$ に放出されると光電面に発光重心が近くなるため F_{ce} が大きくなり、波高値が大きくなる。また、 $\theta=90^\circ$ に α 粒子が放出されると重心は光電面から遠くなり、また、中心軸からもずれるので F_{ce} は小さくなり、結果波高値は小さくなる。このように、 Z が一定でも波高値は $\theta=0^\circ$ から $\theta=90^\circ$ に対応した幅を有する分布を持つことが分かる。

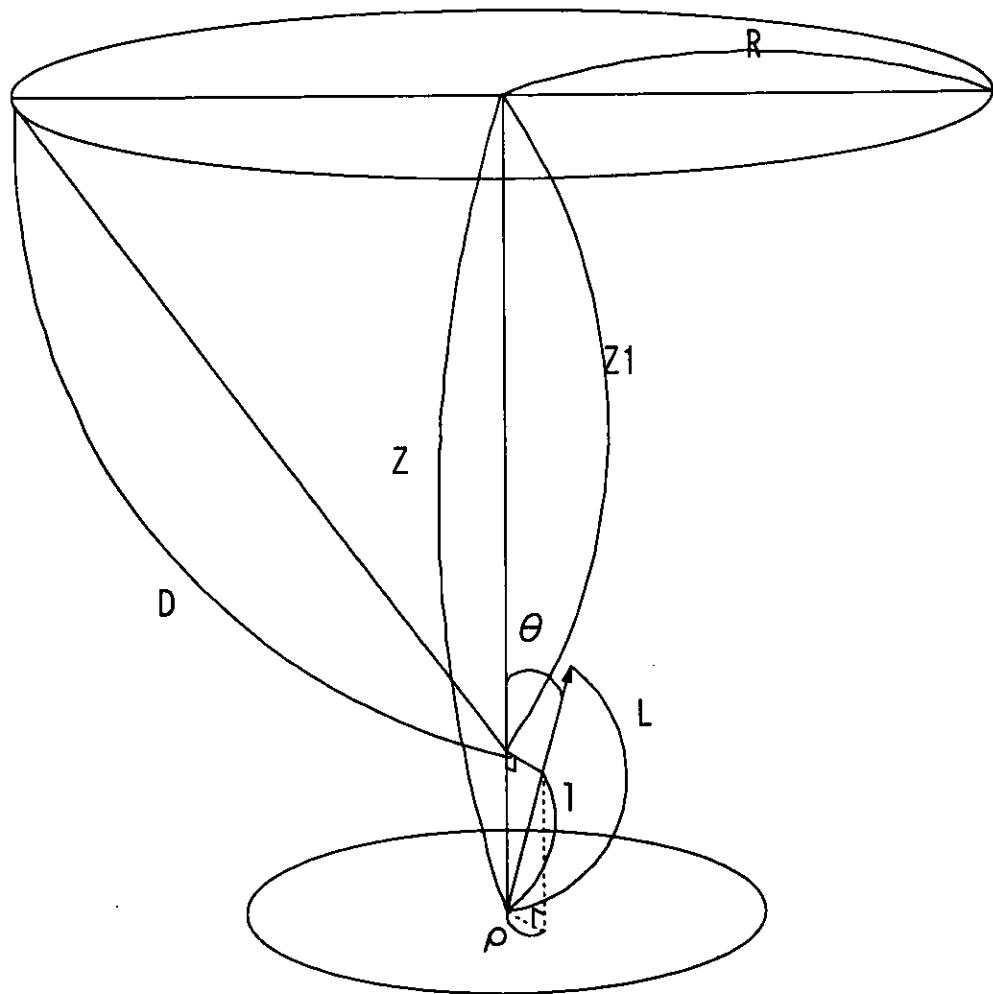


図 3-7 波高分布を計算する際の各パラメータ

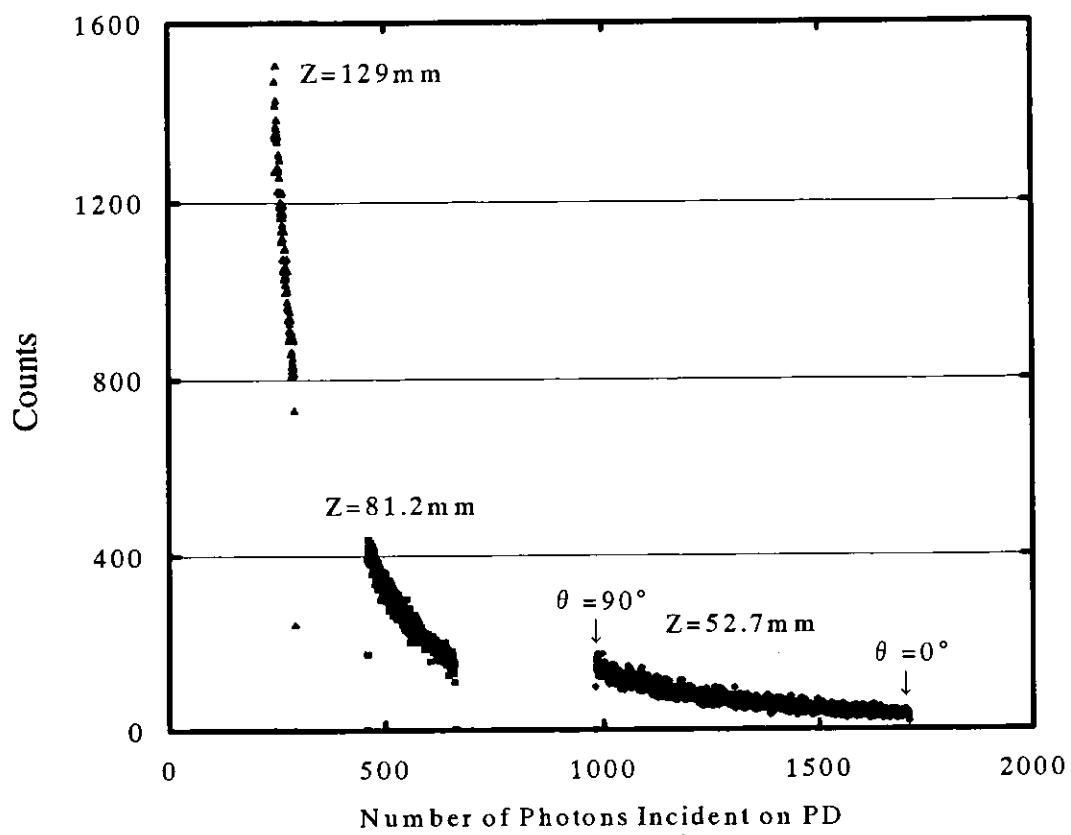


図 3-8 計算によって求めた波高分布。全発光量は 25262photons とし、横軸は光電面に入射した光子数を示す。

3.2.4 希ガスシンチレーション測定

希ガスシンチレーションの測定には 2" ϕ の直径を持つ光電管(R5071PT, Hamamatsu Photonics)を用いた。R5071PT は MgF₂の窓、Cs·Te の光電面を持つ。110nm から 350nm の真空紫外から紫外領域の波長に感度を持ち、可視光の領域に感度を持たない。このような特徴はソーラーブラインドと呼ばれる。また、ソーラーブラインドタイプの PD、PMT は暗電流が小さいのも特徴である。

図 3-9 に回路系のブロックダイヤグラムを示す。PD の光電面(K)に負の電圧を印加しアノード(A)から信号を取り出して使用する。アノードからの信号は電荷有感型前置増幅器(CSA: CP580H, Clear Pulse)に導かれ、さらに主増幅器(MA: CP403, Clear Pulse)で増幅され、ピークホールドディテクター(PHD: CP4060, Clear Pulse)を経由して波高弁別器(MCA)によって波高解析される。実験ではシンチレーション光子を全て収集するため MA の時定数を 50 μ s に設定し実験を行っているが、MA からの出力信号は極めて遅い立ち上がりを持つものとなり、このままでは MCA が正常に動作しない。本実験では PHD を用いて信号波形の最大値をホールドし矩形波状に成型して MCA に導いた。発光の時間変化測定では PD の代わりに光電子増倍管 R6836(PMT, Hamamatsu Photonics)を用いてシンチレーションの発光の減衰を測定した。R6836 は MgF₂の窓を持ち、Cs·Te の光電面を持つ PMT である。図 3-10 に R6836 使用時の回路を示す。図 3-11 にキセノン 1.01×10⁵Pa と 1.01×10⁶Pa における発光の時間変化測定の結果を示す。高圧のキセノンの場合に、減衰時間が長い成分があるのが分かる。この理由は、圧力が高くなると再結合過程が増加するが、再結合過程においてエネルギーの高い電子が熱化しイオンと再結合し発光するまでに時間がかかるためであると考えられる。この結果より、発光光子数を全て収集するため CSA の減衰時定数を約 500 μ s、MA の時定数を 50 μ s と設定した。

CSA には電子数によって校正されたチャージターミネータと水銀パルサーの組み合わせが接続してある。校正はアルゴンを放射線検出器媒体として用いたグリッド型電離箱と Si 検出器によって行われている。グリッド型電離箱では α 線線源を用い、アルゴンの α 線に対する W 値から波高値を電子数に変換している。Si 検出器では α 線に対する e 値から校正を行っている。このときチャージターミネータと水銀パルサーの組み合わせによるテストパルスを計測し、比較しておくことにより、このパルサーパルスの電子数が分かる。この電子数で校正されたチャージターミネータと水銀パルサーの組み合わせから実験に用いた CSA に電荷を供給することによって、波高値が電子数に変換でき、つまり N_e が求まる[42]。

1.01×10⁵Pa のキセノン実験で得られた波高分布を図 3-12 に示す。CSA には電子数によって校正したチャージターミネータと水銀パルサーの組み合わせが接続しており、波高値は電子数に変換することができる。計算より求めた波高分布と実験で得られた波高分布の型はよく一致している。

PD の光電面に負の電圧を 0V から徐々に印加していく時のピークの波高値を図 3-13 に示す。光電子数測定実験では PD の光電面に -90V を印加する。この電圧は光電面からの光電子を全て収集するのに十分な電圧であることが図より理解できる。

シンチレーション光子数を計算する場合には $\theta=0^\circ$ (線源板に対して垂直方向)に α 粒子が放出された場合による波高値から計算することとした。その波高値は図3-12の矢印によって示される変曲点である。

実験で得られた N_{pe} を F_{ce} の関数としてプロットしたものを図3-14に示す。 N_{pe} と F_{ce} には良い直線関係が得られている。これは F_{ce} は光電面を見込む立体角のみで決定され、光源の周囲から反射を経て光電面に入射する光子がほとんど無視できるほど少ないとすることを示している。

本実験より絶対蛍光効率を求めるために必要な N_{pe} と F_{ce} が求まる。

図3-15にシンチレーション光子が全て光電面に入射したときの光電子数を示す。

また、本実験装置と可視光領域にのみ感度をもつ光電子増倍管(PMT: 7696, Hamamatsu Photonics)を使用し、可視光領域の発光の有無を調べた。7696は硼硅酸ガラスの窓を持ちSb-Csの光電面をもつPMTである。感度波長域は280nm-650nmである。ここではPMTをPDモードで使用した。第2章でも述べた通り、PMTのゲインを1として利用する手法である。PMTのグリッド、第1段ダイノードと第2段ダイノードを結線し収集電極とし、信号を電荷有感型前置增幅器へと導く。光電面と他のダイノードには光電面から放出される光電子を全て収集するため負の電圧を印加する。結果、信号は認められず、よって可視光領域にシンチレーション発光はほとんどないことを確認した。

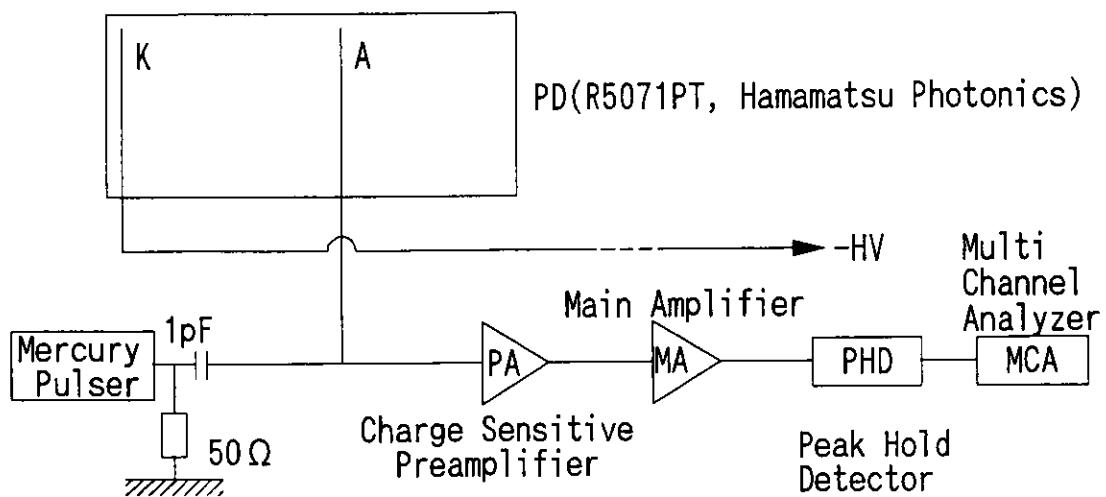


図 3-9 PD の回路系のブロックダイヤグラム

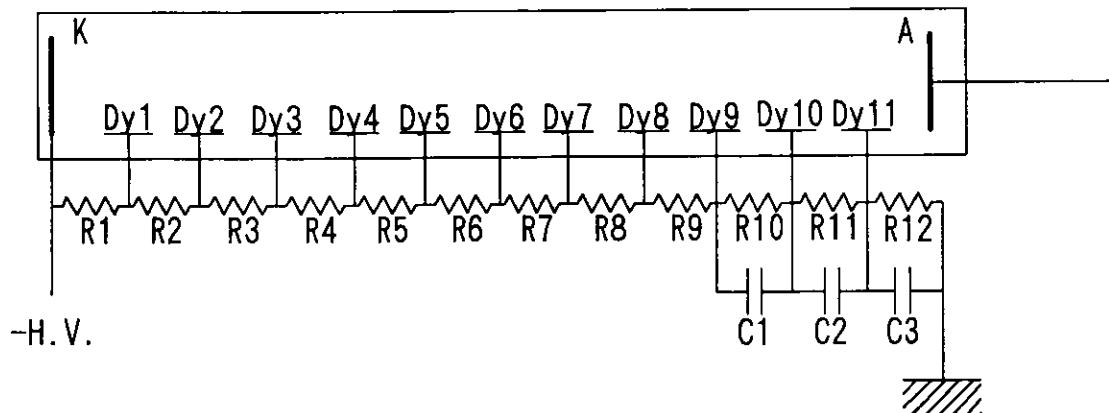


図 3-10 発光の時間変化スペクトル測定に使用した R6836 の回路系。R1-R12:1MΩ、C1-C3:2nF、K:光電面、A:アノード、Dy1-Dy11:ダイノード。

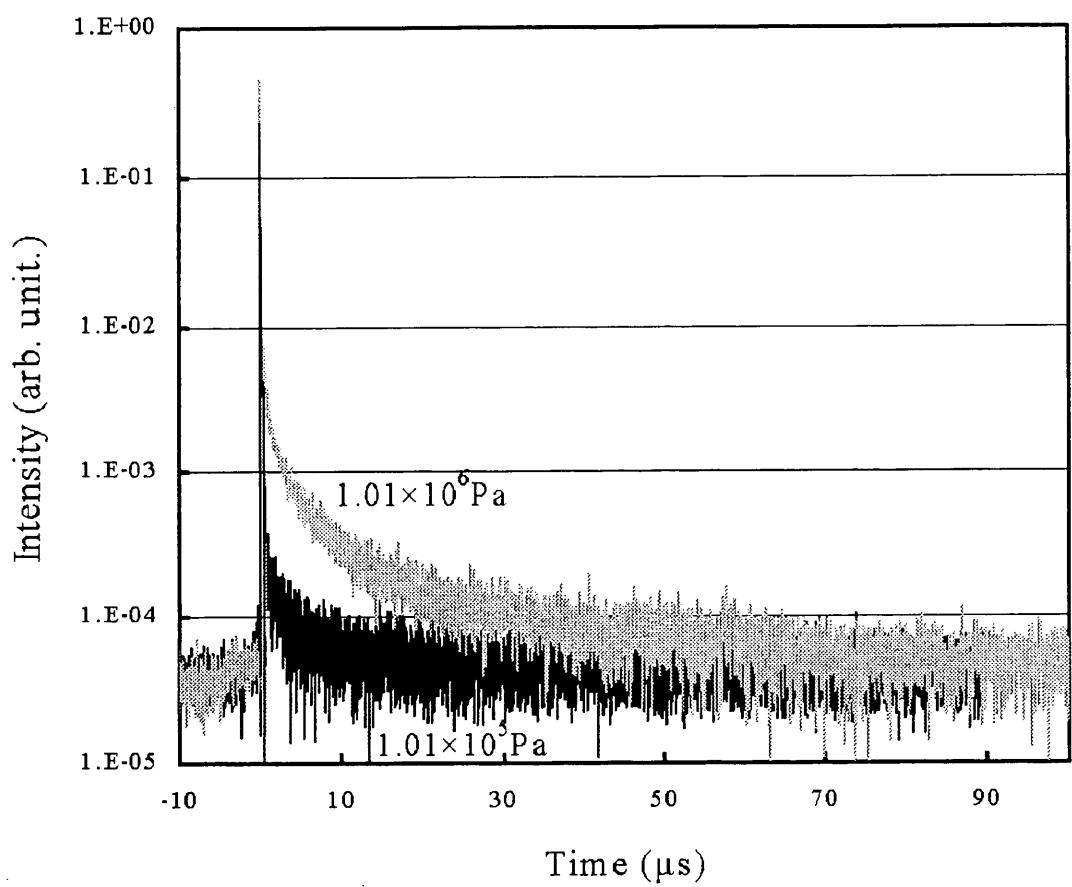


図 3-11 キセノンのシンチレーションの発光時間スペクトル

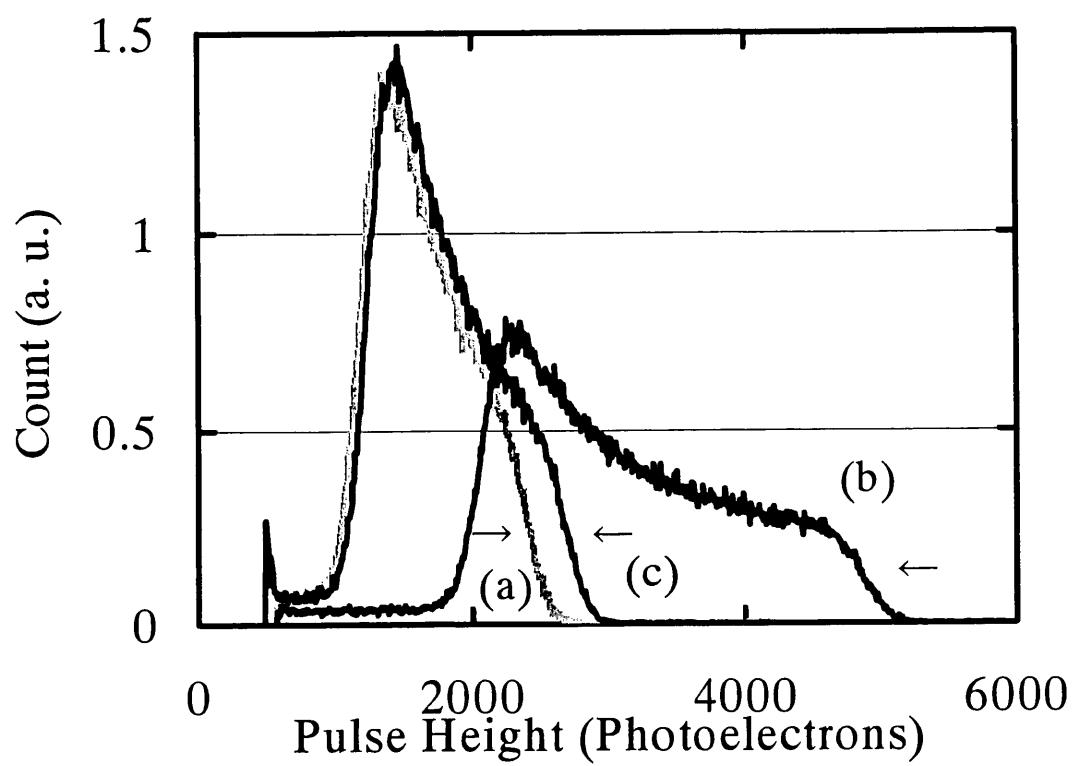


図 3-12 $1.01 \times 10^5 \text{Pa}$ のキセノンのシンチレーション測定において得られた波高分布。
(a):Z=47.1mm、MgF₂結晶窓を使用せず。(b):Z=42.1mm、MgF₂結晶窓を使用せず。(c):Z=47.2mm、
MgF₂結晶窓を使用。

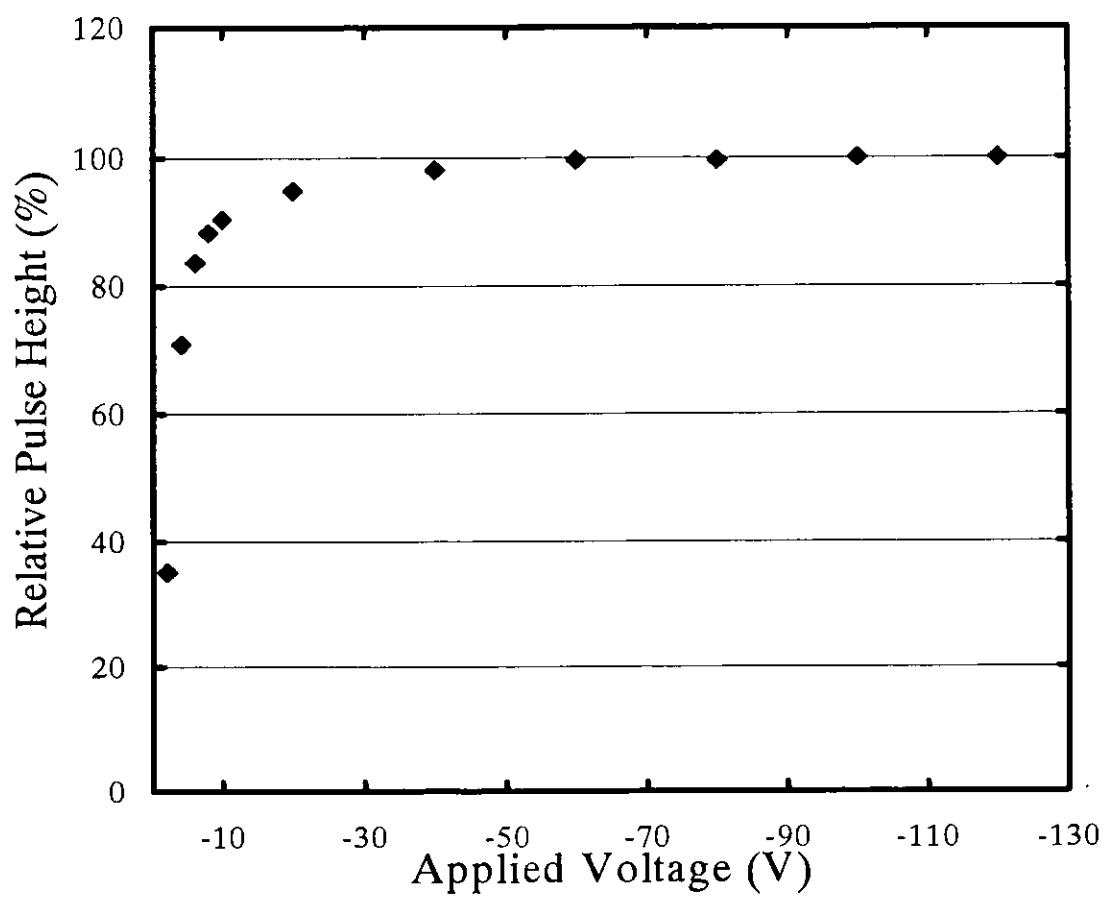


図 3-13 光電面に印加した電圧(光電子収集電圧)に対する相対波高値

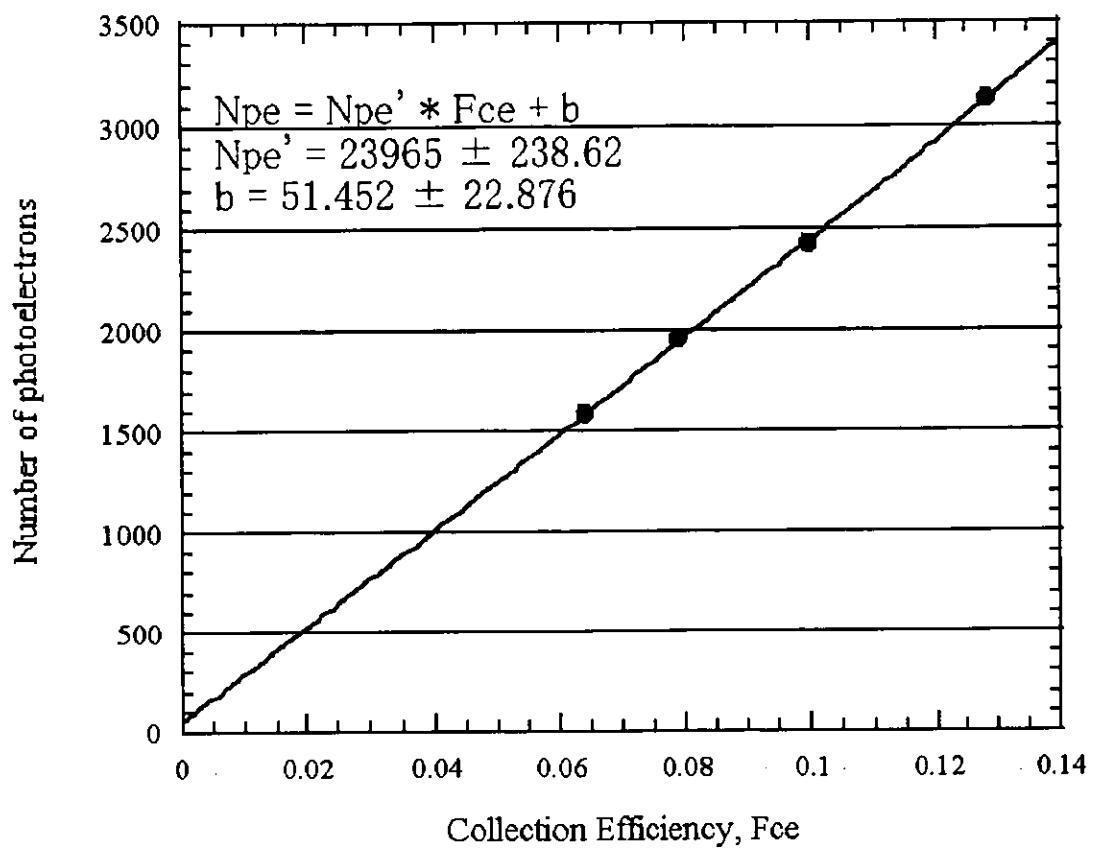


図 3-14 測定光電子数 N_{pe} を収集効率 F_{ce} の関数としプロットした結果。 $1.01 \times 10^5 \text{ Pa}$ のキセノンにおける測定結果について示したものである。

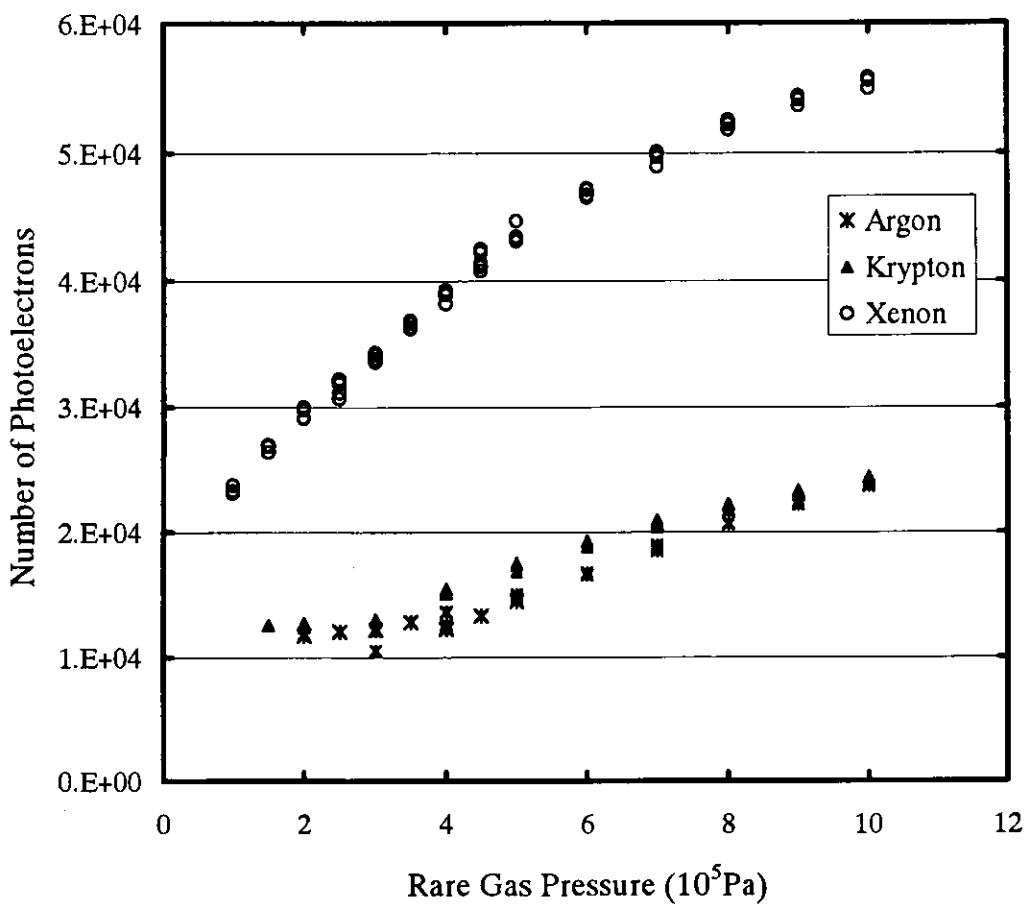


図 3-15 シンチレーション光子が全て光電面に入射したとするときの光電子数

3.3 希ガスシンチレーション発光スペクトル測定

3.3.1 発光スペクトル測定原理

第1章、第2章で述べたとおり希ガスシンチレーションの発光スペクトルは古くから測定されてきた。しかしながら、希ガスシンチレーションの発光波長は真空紫外領域にあり、発光波長ごとの分光器、検出器を含めた検出効率の標準化は困難でありほとんど行われておらず、したがって波長ごとのスペクトル強度分布は全くあいまいなものとなっている。絶対蛍光効率を求めるためにはPDの発光スペクトルに対する平均量子効率 Q_e が必要であり、 Q_e を正確に求めるためには発光スペクトルが重要である。そこで、希ガスシンチレーションの発光スペクトルを正確に求めるための手法を開発した。

発光スペクトル測定装置の標準化は、波長ごとの発光量が規格化されていて安定した動作をする光源があればその光源からの光を分光することによって達成できる。しかし、真空紫外領域の光を発する光源において波長ごとの発光量が規格化されていて、入手しやすく、使いかってがいい光源は存在しない。絶対標準が行える波長域は200nm以上の紫外領域であり、この波長以下の真空紫外領域での絶対標準法は確立されていない。そこで、分光器のミラー、グレーティングなどの効率と検出器の効率(本実験ではPMTを用いるので量子効率)を明らかにし、それらを結合する事によって、発光スペクトル測定装置全体の検出効率を決定する手法をとった。

まず、200nmから800nmの発光量域において波長ごとの発光量が規格化されている光源を用意し、この手法の妥当性を確かめた。

実験装置を図3-16に示す。光源には常用標準光源キセノンランプ(L7810, Hamamatsu Photonics)を用いた。250nm以上360nm未満の波長範囲において±8%、360nm以上800nm以下の波長範囲において±7%の校正の不確かさによって分光放射照度が値付けされている。分光器にはVM-504(Acton Research Corporation)、検出器には量子効率が既知のPMT(R208, Hamamatsu Photonics)を用いた。R208は石英の窓を持ち、光電面の材質はSb-Csである。光電面に負の電圧を印加しアノードから電流を取り出す。光電面には-300Vを印加する。PMTの回路を図3-17に示す。分光器には3種類のグレーティングが内蔵しており、測定したい波長域によってグレーティングを選択できる。本実験では分光器のグレーティングは1200grooves/mm、BLZ=500nmを選択した。分光器の出入り口のスリット幅は1.5mmであり、分解能は約2nmであった。分解能は水銀ランプからの輝線を測定することで求めた。分光器のグレーティングの角度をコントローラによって調節し5nmごとに波長ごとのアノードからの電流を電流計(6514, Keithley)を用いて読みとった。

PMTからの電流を波長の関数としてプロットしたものを図3-18に示す。この関数を $I(\lambda)$ とする。キセノンランプの発光スペクトル $I(\lambda)$ を、求めるためには、ミラーの反射率 $R_e(\lambda)$ 、グレーティングの効率 $G_e(\lambda)$ 、PMTの光電面の量子効率 $q_{ePMT}(\lambda)$ を明らかにする必要がある。各効率は独立に測定可能であり、よって、測定系の全体の効率が計算できる。図3-19に光

学系の各効率を示す。これらの効率はメーカーによって測定されたものである。 $I(\lambda)$ は以下の式より与えられる。

$$I(\lambda) = I(\lambda) / ((R_e(\lambda))^2 G_e(\lambda) q_{ePMT}(\lambda)) \quad (3-8)$$

また、200nm から 800nm の領域では $R_e(\lambda)$ は λ に対して一定である、と独立に求められている。実験より求めたキセノンランプの発光スペクトルを図 3-20 に示す。この結果を標準として用いた常用標準光源キセノンランプの発光スペクトル(図 3-21)と比較した。標準光源の発光強度は光子数に比例する強度に直してある。標準光源のスペクトルは分光器の分解能 1nm で波長 1nm ごとに測定されている。実験より得られたスペクトルの共鳴線の波長は 470nm、485nm、495nm であり、標準光源の共鳴線の波長は 468nm、483nm、493nm であり、良く一致した。実験より得た発光スペクトルにおいて 600nm 以上で標準キセノンランプと差が出ているのは PMT の量子効率の精度のためであると考えられる。600nm 以上では PMT の量子効率は 1% を下回っており、また一桁しか量子効率が示されていない。この測定により、本手法によって正確な発光スペクトルを求めることが可能であることが確認できた。

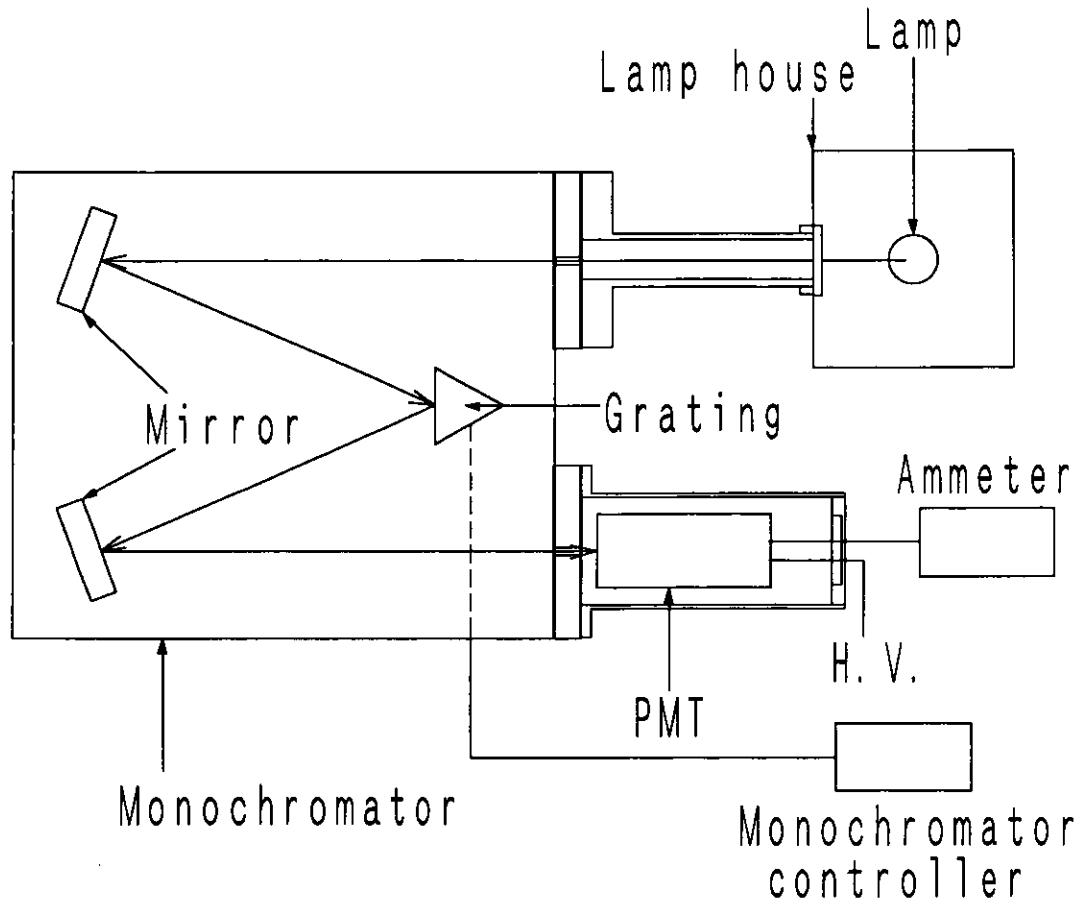


図 3-16 キセノンランプの発光スペクトル測定実験の概略図

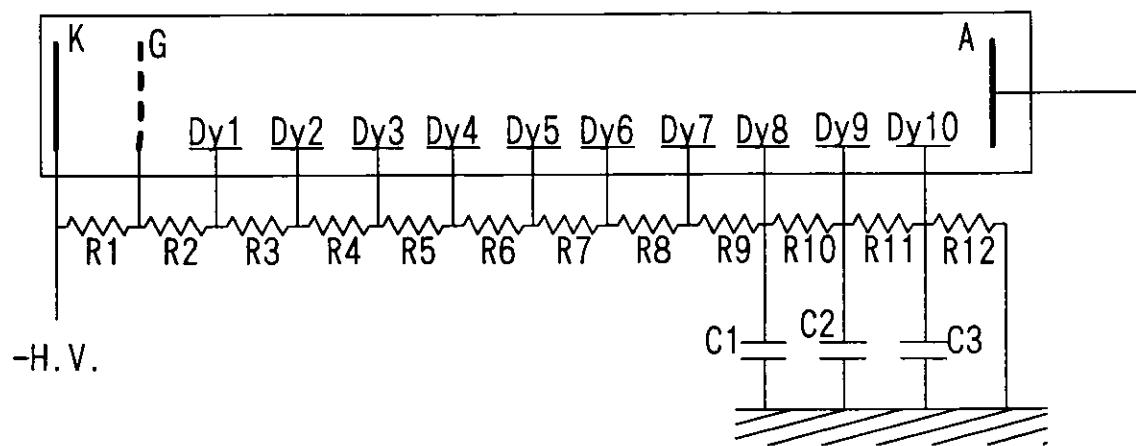


図 3-17 キセノンランプの発光スペクトル測定に使用した R208 の配線図。R1-R12:1MΩ、C1-C3:2nF、K:光電面、A:アノード、G:グリッド。

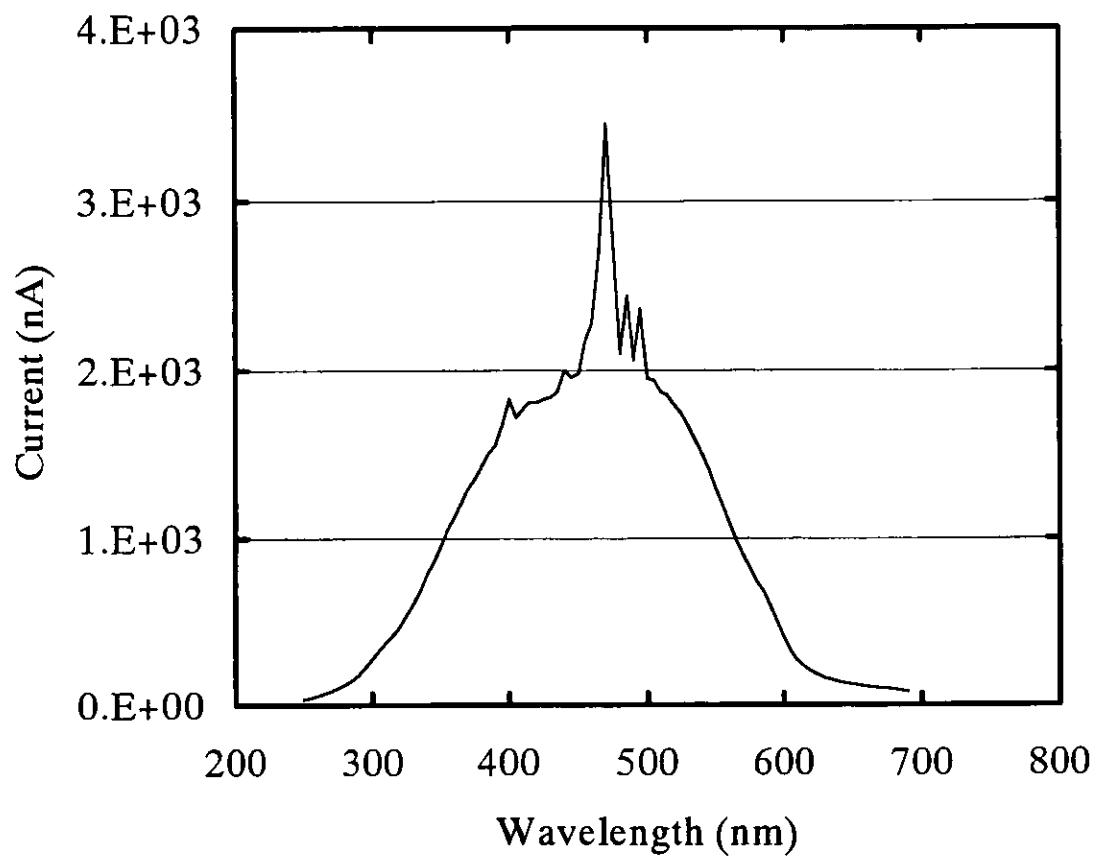


図 3-18 キセノンランプの発光スペクトル測定実験において、PMT からの電流を波長の関数としてプロットした結果

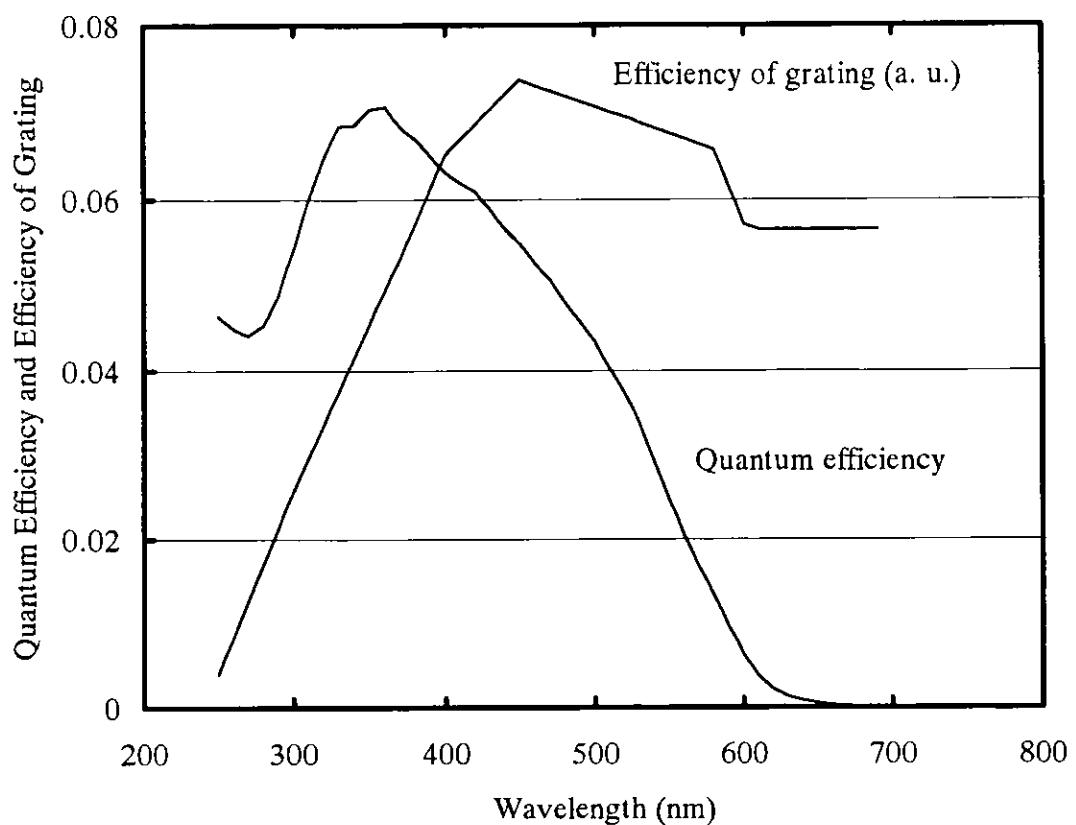


図 3-19 R208 の光電面の量子効率と使用したグレーティングの効率

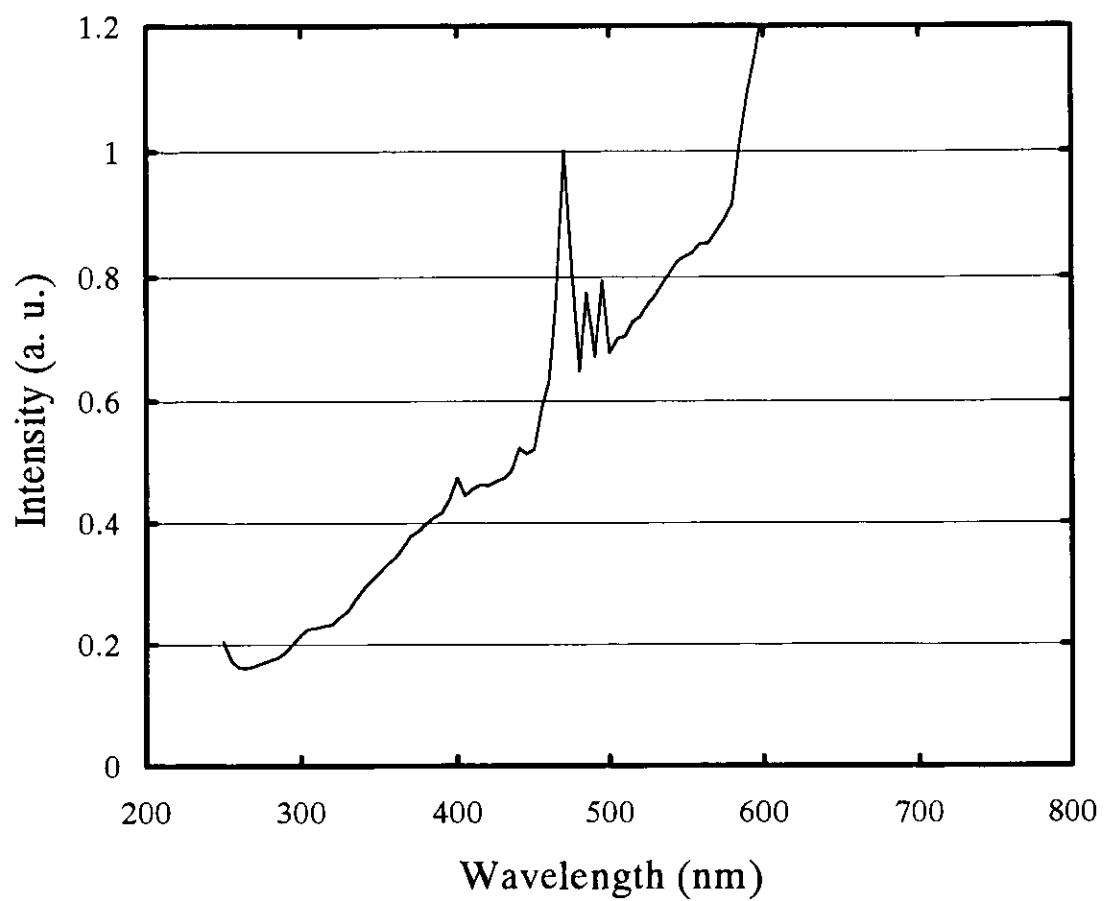


図 3-20 実験で得られたキセノンランプの発光スペクトル

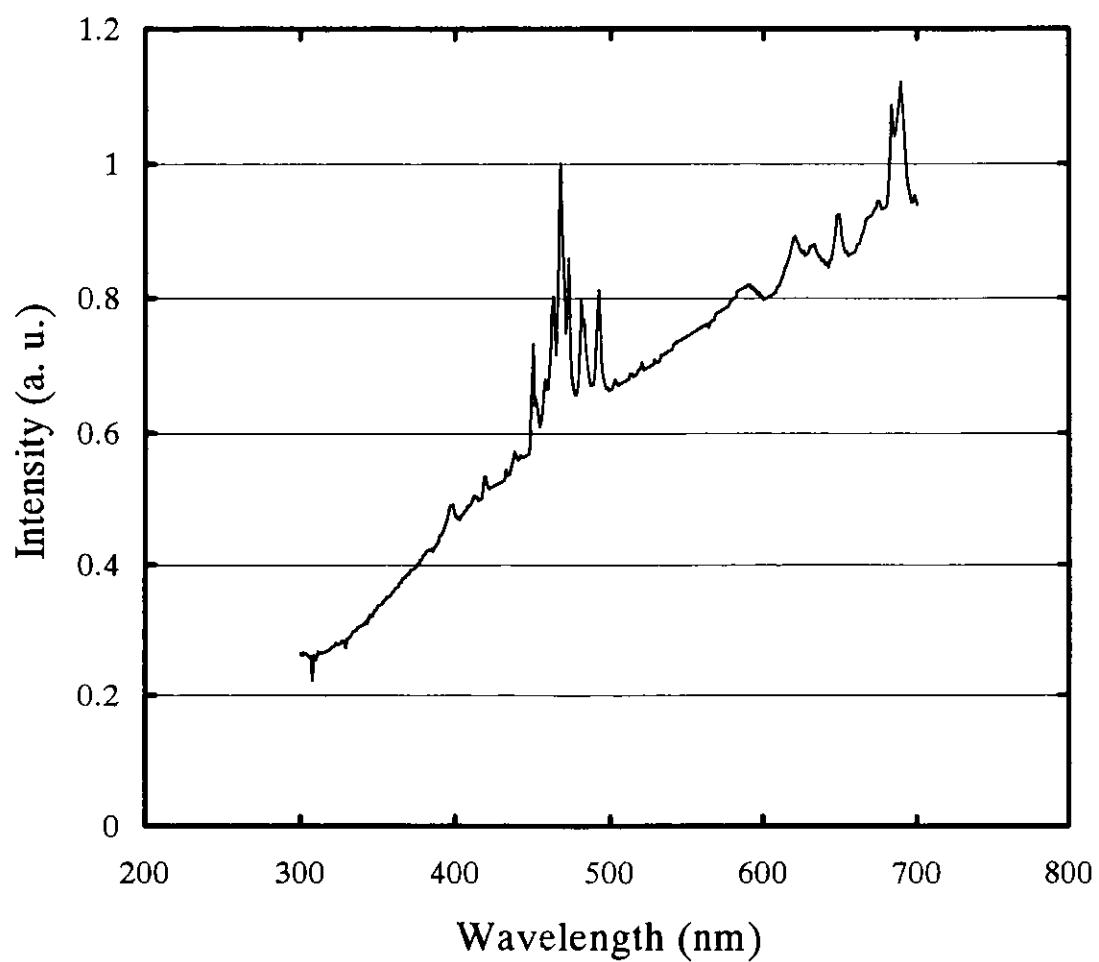


図 3-21 標準キセノンランプの発光スペクトル

3.3.2 希ガスシンチレーションの発光スペクトル測定

Q_e を正確に求めるために、希ガスシンチレーションの発光スペクトル測定を独自に行つた。発光スペクトル測定装置の概要を図 3-22 に示す。 α 粒子 1 個により発生するシンチレーションではその発光量が小さく測定が困難なため、X 線発生装置(HF420, PANTAK)を用いた。管電圧は 180kV、電流は 2mA から 10mA の範囲で設定した。ガスを封入するチャンバーを別に製作し、分光器(VM-504, Acton Research Corporation)の entrance-port に MgF₂ 結晶の窓を介して直接接続した。新しく製作したチャンバーはステンレス(SUS304)製であり、ガス封入部のサイズは内径 63mm、長さ 97mm である。分光器のグレーティングには 1200grooves/mm、BLZ=150nm を使用した。測定波長範囲は 115nm から 300nm であり、分光器の入り口と出口のスリットは幅 3mm、高さ 20mm に調節した。波長に対する分解能は約 4nm である。

チャンバーは真空排気系とガス導入系に接続し、分光器も真空排気系に接続した。配管図を図 3-23 に示す。真空排気系は熱電対真空計(T.G.: TYPE 0531, Anelva)、電離真空計(I.G.: NIG-2F, Anelva)、ロータリーポンプ(R.P.: 2010, Alcatel)、ターボ分子ポンプ(TMP: Turbo-V250, Varian)から成る。チャンバーはガスを封入する前に 5×10^{-5} Pa 程度まで排気した。チャンバーに高圧ガスを封入するために分光器とは MgF₂ の窓によって区切られている。MgF₂ 窓は厚さ 6mm、直径 30mm である。測定中は分光器の内部は酸素などの大気成分によって真空紫外の光が減衰しないように、 10^{-5} Pa 程度の真空に保った。アルゴン、クリプトン、キセノンにたいして 1.01×10^5 Pa から 1.01×10^6 Pa の圧力範囲で実験を行った。

この測定ではシンチレーション光子の検出には PMT(R6836, Hamamatsu Photonics)を用いた。この PMT は窓が MgF₂、光電面の材質が Cs-Te である。回路構成は図 3-17 と同等のものを使用した。この光電面は 110nm から 300nm に感度がある。光電面に負の電圧を印加し、アノードからの電流を電流計で読みとり、電流値は電流計で電圧信号に変換され、デジタルオシロスコープ(TDS3032, Tektronix)で電圧を測定した。グレーティングを制御し、波長スキャンしながら連続的に波長ごとの PMT からの出力のデータを取得し、PC に記録し保存する。X 線の照射により PMT の暗電流が増加するのを最小限に抑えるために PMT の周囲には鉛ブロックを用いて遮蔽した。

X 線を照射したときの PMT からの出力 $I(\lambda)$ を波長の関数として測定した結果を図 3-24 に示す。 4.05×10^5 Pa のアルゴンをチャンバーに封入し X 線を照射した時の実験結果である。この図から理解されるように約 127nm に中心をもつ連続スペクトル(second continuum)が主として観測され、また、“third continuum”と呼ばれる発光成分が約 200nm から 300nm の紫外領域にわずかではあるが観測される。

得られた実験結果より発光スペクトル $I(\lambda)$ を求めるためには、チャンバーと分光器を分割するのに使用した MgF₂ 窓の透過効率 $T_e(\lambda)$ 、ミラーの反射率 $R_e(\lambda)$ 、グレーティングの効率 $G_e(\lambda)$ 、PMT の光電面の量子効率 $q_{ePMT}(\lambda)$ を知る必要がある。各効率は独立に測定可能であり、各効率はメーカーによって測定されており、測定系の全体の効率を求めることが可能となる。図 3-25 に光学系の各効率を示す。 $I(\lambda)$ は以下の式より与えられる。

$$I(\lambda) = I(\lambda) / (T_e(\lambda) (R_e(\lambda))^2 G_e(\lambda) q_{ePMT}(\lambda)) \quad (3-9)$$

発光スペクトル測定結果については第4章において詳しく述べる。本実験と使用したPDの光電面の量子効率より、絶対蛍光効率を求めるために必要な Q_e が求まる。

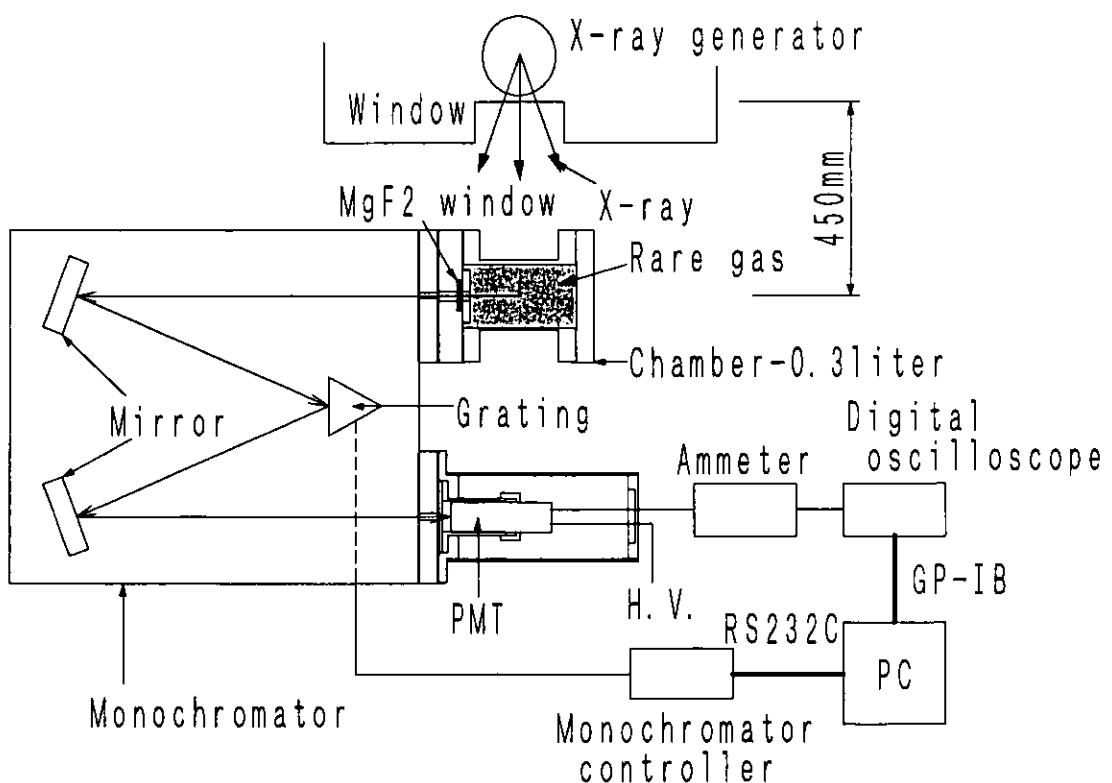


図 3-22 希ガスシンチレーション発光スペクトル測定装置の配置

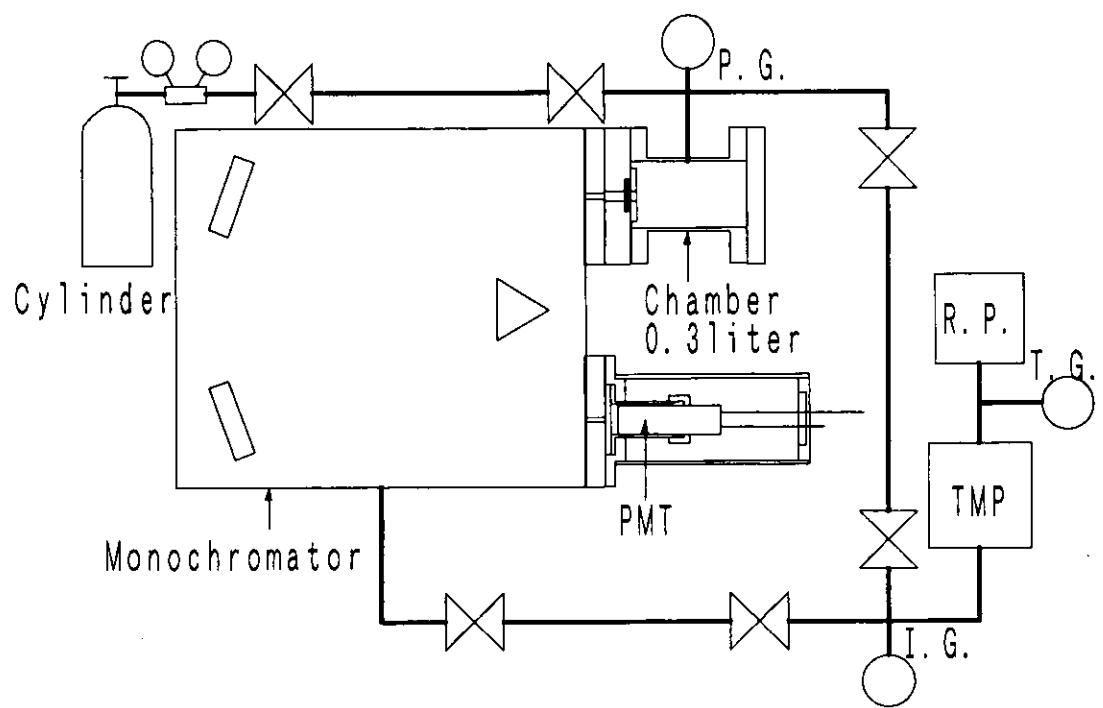


図 3-23 希ガスシンチレーション測定実験における真空排気系とガス導入系

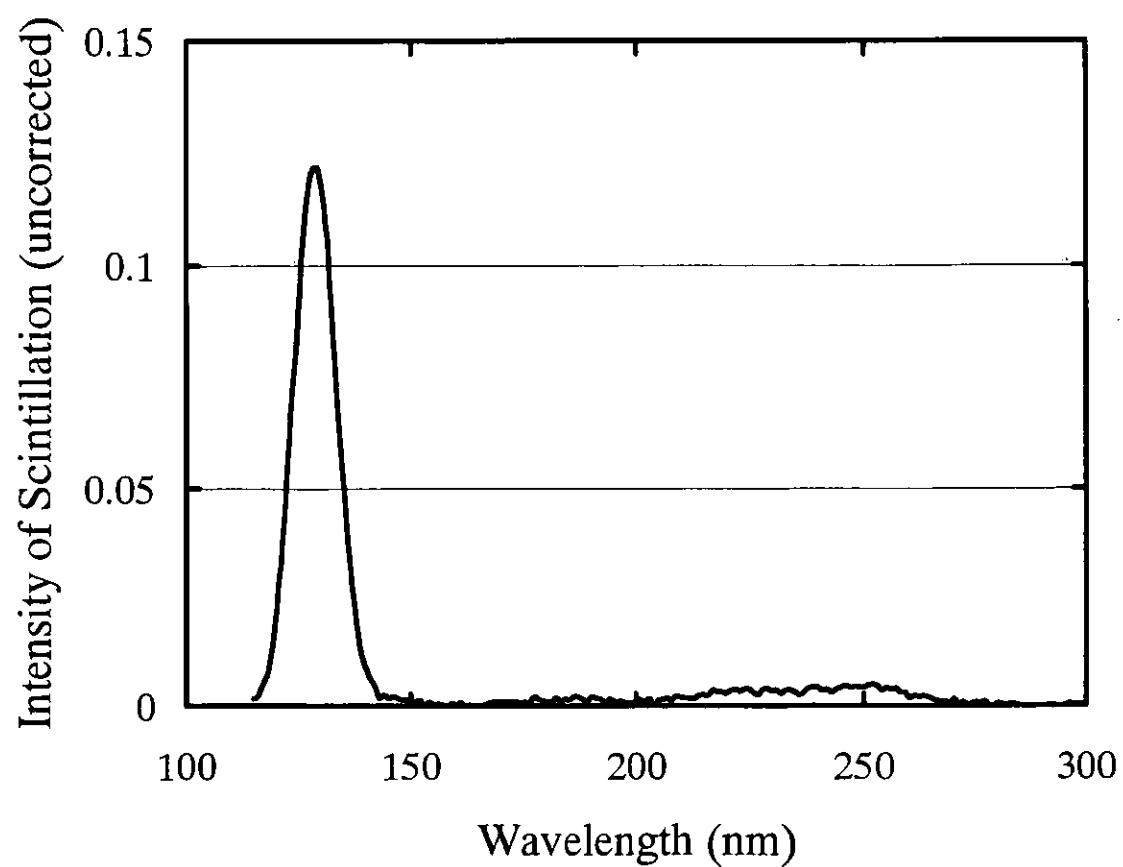


図 3-24 アルゴン 4.05×10^6 Paにおいて得られた波長ごとの PMT からの出力

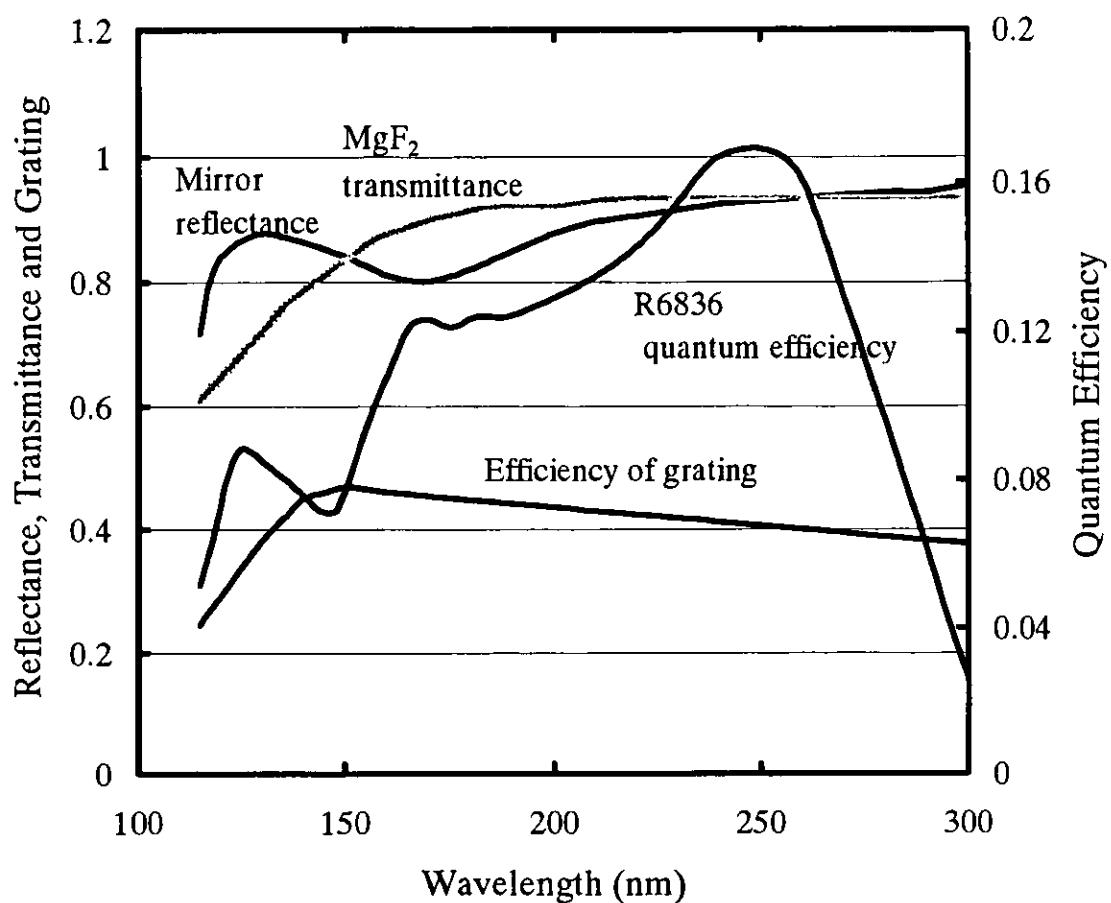


図 3-25 希ガスシンチレーションの発光スペクトル測定実験装置に用いた MgF₂ 窓の透過効率、2 つのミラーの反射率、グレーティングの効率、R6836 の量子効率を波長の関数としてプロットした結果

3.3.3 希ガスシンチレーションの発光スペクトルの混合効果

アルゴンの発光スペクトルを最初に測定した際にアルゴンにおけるピーク発光波長(127nm)に加えて150nm付近に今までに報告されていない発光成分が観測された。図3-26にその時観測された発光スペクトルを示す。これはアルゴン本来のシンチレーションの発光ではなく、この測定の前に行なったキセノン発光スペクトル測定に使用したキセノンがチャンバーに残っていたためと考えられる。アルゴンに少量のキセノンが混入した場合にキセノンが発光してしまうというのはすでに第2章で述べたとおりである。以下に、アルゴンに少量のキセノンを混合した場合のアルゴンの消光とキセノンの発光過程を示す[23]。



アルゴンの発光スペクトル測定の前に 10^{-5}Pa まで真空排気を行なったが十分では無かったと考えられる。

希ガスにおける不純物の効果を確かめるために、アルゴンにキセノンを混合させて発光スペクトルの測定を行なった。実験装置は3.2.2項の実験で使用したものと同じである。しかし、今回はアルゴンとキセノンを混合できるようにガスの導入系を二つ用意した。まず一度十分に真空をひいてアルゴンの発光スペクトルを測定した。一旦アルゴンを排気し、真空状態にした後、100Torrのキセノンを封入し、更に、アルゴンを加え、合計1気圧、9気圧の条件で発光スペクトル測定を行なった。その後、ガスを排気し、熱電対真空計で約1Torrまでガスを抜く。その後更にアルゴンガスを合計1気圧、9気圧となるように加え、それぞれの圧力において発光スペクトルを測定した。この場合のキセノンの分圧は0.015Torrと計算される。

図3-27に全圧1気圧の場合の測定結果、図3-28に全圧9気圧の場合の測定結果を示す。全圧が1気圧でも9気圧でも純アルゴンと、キセノンを混合した場合の発光スペクトルは明らかに異なる。キセノン0.015Torrを混合した場合、アルゴンの発光は減少し、150nmと180nm付近に発光が観測されるようになった。全圧9気圧の場合アルゴンに対するキセノンの割合はごく小さく 2.19×10^{-6} (2ppm)である。キセノンを100Torr混合させるとアルゴンの発光はまったく観測されなくなり、150nmの発光もなくなり、180nm付近にピークをもつ発光スペクトルが観測されるようになった。キセノンの量が少なくててもアルゴンが大量に存在すればアルゴンとの3体衝突により励起状態のキセノン2原子分子が生成されるためである。

以上より、イオン化ポテンシャルが大きなガスのシンチレーションを観測する実験では、イオン化ポテンシャルの小さなガスがわずかでも混入していると本来観測しようとする発光に影響が出るので、ガスの純度には十分注意を払わなければならないことが分かった。

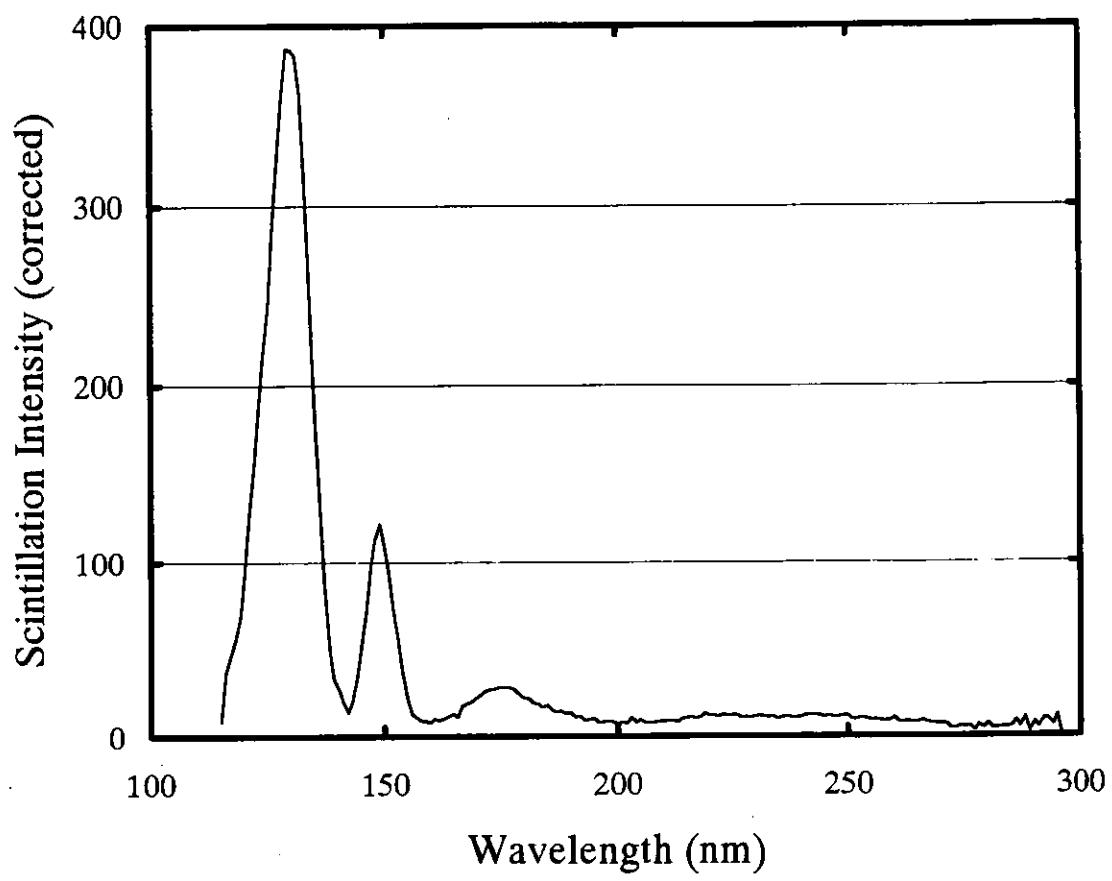


図 3-26 微量キセノンが不純物として存在するときのアルゴン $7.10 \times 10^5 \text{ Pa}$ における発光スペクトル

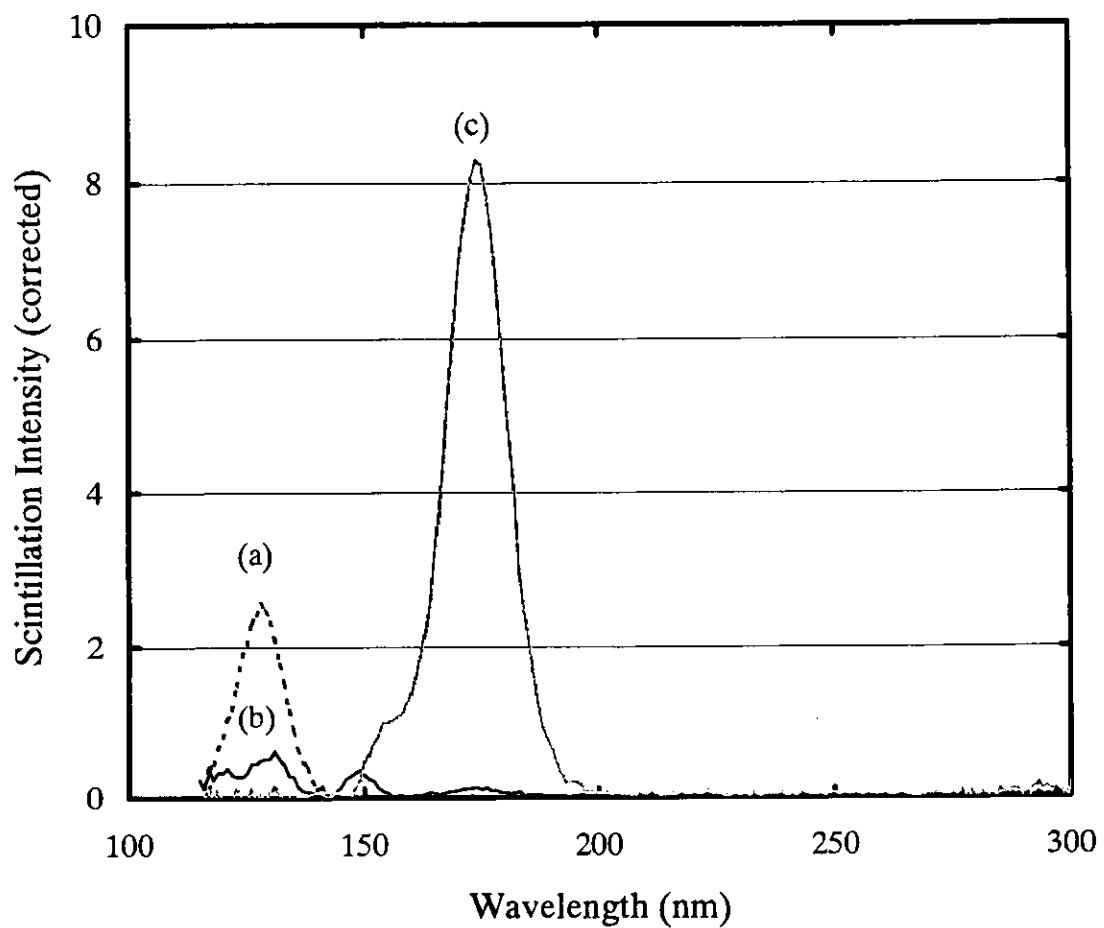


図 3-27 全圧 1 気圧における希ガスシンチレーションの発光スペクトル。(a):純アルゴン 1 気圧の発光スペクトル、(b):キセノン 0.015Torr をアルゴンに混合した場合の発光スペクトル、(c):キセノン 100Torr をアルゴンに混合した場合の発光スペクトル。

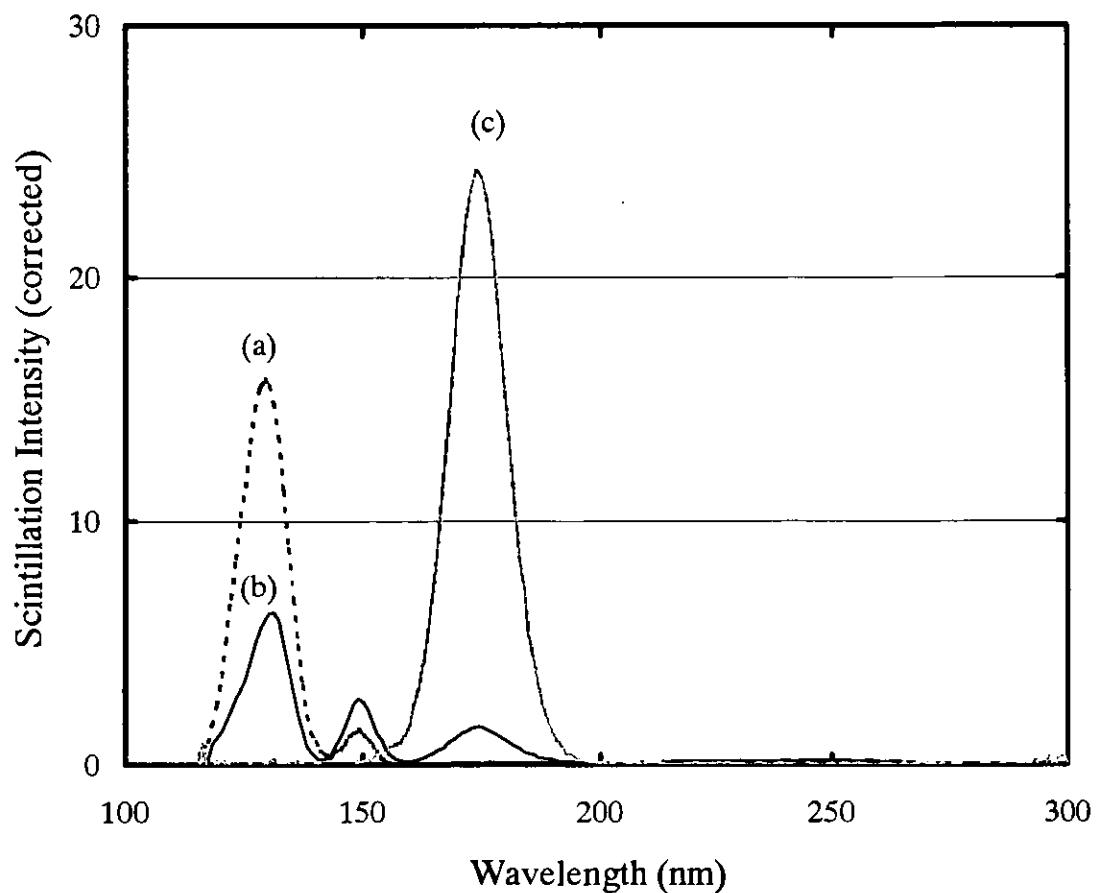


図 3-28 全圧 9 気圧における希ガスシンチレーションの発光スペクトル。(a):純アルゴン 9 気圧の発光スペクトル、(b):キセノン 0.015Torr をアルゴンに混合した場合の発光スペクトル、(c):キセノン 100Torr をアルゴンに混合した場合の発光スペクトル。

3.4 電離電子・シンチレーション光子同時測定

3.4.1 実験装置

第2章で説明したように、常圧以上の希ガスシンチレーションには2つの発光メカニズムがある。電離原子と電子が再結合するのを起源とする過程と励起原子が起源となり発光する過程である。電離原子と電子が再結合し発光する過程を排除し励起原子を起源とする発光のみを測定するために、放射線によって発生する電子とシンチレーション光子を同時に測定できる実験装置を設計・製作した。

実験装置の概略を図3-29に示す。チャンバーには光電子数測定実験に用いたものを使用した。電荷を測定するために、黒アルマイド処理を施した光吸収体を取り外し、カソード、グリッド、コレクターからなるグリッド型電離箱をチャンバー内に導入した。2枚の平板からなる2極電離箱では、電子による波高にのみ着目した場合、陽イオンによる影響で電子・イオン対が発生した位置とコレクターまでの距離に依存した波高値を持つパルスしか取り出すことができない。しかしながら、グリッド型電離箱ではカソードとコレクターの間に挿入したグリッドの遮蔽効果によって、電子・イオン対が発生した位置とコレクターまでの距離によらず、収集した電子の数に比例した波高値を持つパルスを得ることができる。よって、電子を全て収集しているか確認できる。この理由からグリッド型電離箱を採用した。 α 線源として ^{241}Am をこれまでの測定と同様に2mmのステンレス製のネジに電着したものを用いた。線源板はステンレス(SUS304)製の平板であり、中央に ^{241}Am を電着させたネジを取り付けた。線源板に高電圧を印加する。線源板は直線導入機によって外部から移動可能で、これによりグリッド板との間の距離を変えることができる。グリッド板にはステンレス製のリングに直径0.1mmのタンクステン金メッキのワイヤーを1mm間隔に張ったものを用いた。通常グリッド型電離箱ではコレクターに平板を用いるが、本実験ではグリッドに用いたものと同じもの、ステンレス製リングに直径0.1mmのタンクステン金メッキのワイヤーを1mm間隔に張ったものを用いた。これにより、シンチレーション光子がグリッドとコレクターのワイヤーの間を通り抜け、測定可能となり、放射線によって発生した電子とシンチレーション光子の同時測定が可能となる。コレクターから信号を取り出す時は線源板に負の電圧を印加する。

シンチレーションの検出にはPMT(R6836, Hamamatsu Photonics)を用いた。光電面はグランド電位に接地し、アノードに正の高電圧660Vを印加する。アノードに印加してある正の高電圧と信号を分離するためにカップリングコンデンサを使用し信号を取り出す。本実験のシンチレーション測定では光子数の絶対測定は行えないで、線源板に電圧を印加した場合にシンチレーションの相対強度がどのように変化するのかを観測した。図3-30にPMTの回路図、図3-31にPMTのブロックダイヤグラムと電離箱のブロックダイヤグラムを示す。シンチレーション測定はCSA(CP-1715, Clear Pulse)を用い、MA(CP403, Clear Pulse)の時定数は50μsで実験を行った。電荷測定はCSA(CP580H, Clear Pulse)を用い、

MA(CP403, Clear Pulse)の時定数はアルゴン、クリプトンの実験では $50\mu\text{s}$ 、キセノンの実験においては $100\mu\text{s}$ に設定し実験を行った。コレクターに収集された電荷は CSA で積分される。PD を用いた実験と同じように CSA に電子数によって校正された水銀パルサー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できる。PMT と電離箱の MA の時定数は長いので、PHD を用いている。グリッド型電離箱の回路構成に示しているように線源板とグリッドには一台の高圧電源を用い、抵抗によって電圧を分けているが、可変抵抗を用いることにより線源板とグリッドに印加する電圧の比を変えることが出来るようになっている。

PMT が設置してある領域には実験中の希ガス $1.0 \times 10^5 \text{ Pa}$ を封入する。これは PMT に印加した高電圧による放電を防ぐためである。その他、真空系とガス導入系、純化装置の配管は光電子数測定装置と同じであり、また、ガス封入までの手順なども 3.2.1 項で述べたものと同じである。

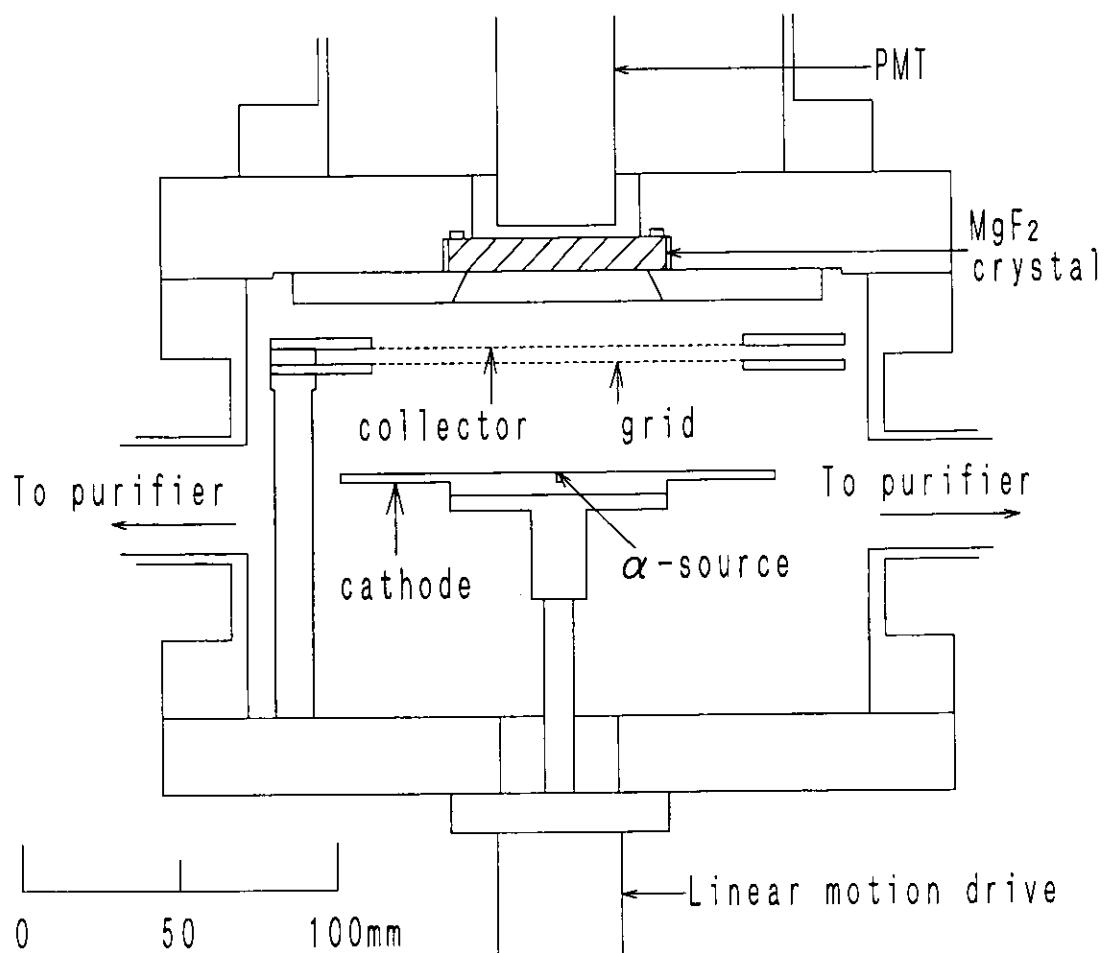


図 3-29 電離電子・シンチレーション光子同時測定実験装置の概略図

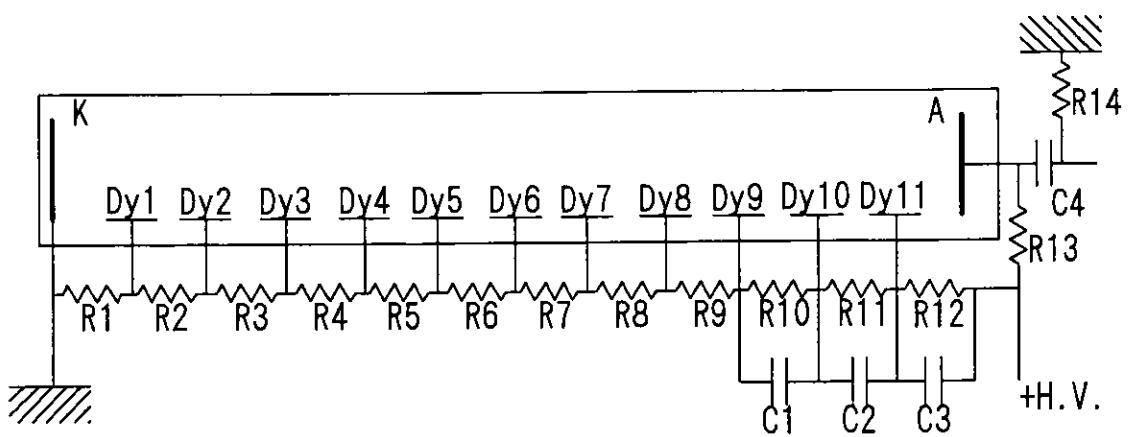


図 3-30 R6836 使用時の回路系。R1-R12:1MΩ、R13,R14:2MΩ、C1-C4:2nF。

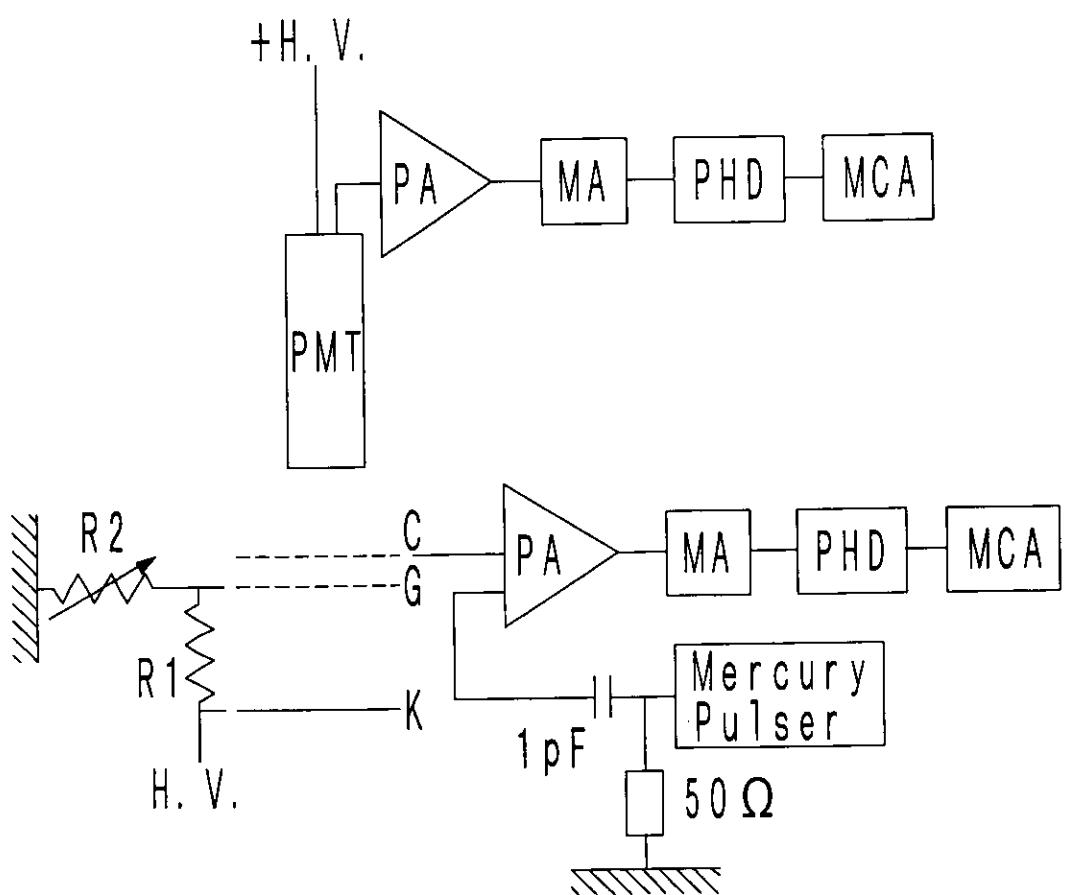


図 3-31 電離電子・シンチレーション光子同時測定における回路構成。上がシンチレーション光子測定回路、下がグリッド型電離箱における電子数測定回路である。下の図において K はカソード、G はグリッド、C はコレクター。R1 は $80\text{M}\Omega$ 、R2 は可変抵抗($1\text{M}\Omega$ - $110\text{M}\Omega$)。R2 を調節することによってカソード-グリッド間の電場とグリッド-コレクター間の電場比を変える。

3.4.2 電離箱の設計

グリッドの遮蔽効果を高めるにはワイヤーの間隔を出来るだけ狭くしなければならないが、ワイヤーの間隔を狭くすればするほど電子はワイヤー間をくぐり抜けにくくなり、グリッドに収集される電子の割合が増えてしまう。Buneman ら[45]は平行平板型グリッド型電離箱についてグリッド付近の電場を詳しく調べることによりグリッドの設計方針と作動の条件を明らかにした。その結果は実験でも確かめられ、電子を事実上全部通過させ、遮蔽の不完全さに基づく波高分布の広がりを増幅器の雑音レベル以下に押さえることが可能であることを明らかにした。

カソード・グリッド間とグリッド・コレクター間の電場比 Z' が次式を満たす場合、カソードから電気力線をさかのぼるとグリッドに集まることなく、コレクターに到達する[45]。つまり、電子はグリッドに捕獲されることなくコレクターに収集される。

$$Z' = \frac{a}{b} \frac{V_c - V_g}{V_g - V_k} \geq Z'_{\min} = \frac{1 + \rho'}{1 - \rho'} \quad (3-13)$$

$$\rho' = \frac{2\pi r}{d}$$

この式において、 a はカソード・グリッド間の距離、 b はグリッド・コレクター間の距離、 V_k はカソード電極の電位、 V_g はグリッドの電位、 V_c はコレクターの電位、 r はグリッドワイヤーの半径、 d はグリッドワイヤーの中心線の間隔である。(3-13)式が満たされる限り、グリッドから見てコレクター側の電界のほうがカソード側の電界よりも十分強く、カソード側の電気力線をさかのぼると全部グリッドのワイヤーを避けて直接コレクターに達する。本実験装置では $Z'_{\min}=1.96$ となる。実際には拡散により電気力線を横切ってグリッドのワイヤーに収集される電子もあるため、このような電子を減らすために(3-13)式の Z'_{\min} より電場比を大きくする。

次にグリッドの遮蔽効果を考える。遮蔽効果が良いということはグリッドからみてカソード側の電界 E_{kg} がイオンや電子の存在のために微少量 δE_{kg} だけ変化するとき、これに応じたコレクター側の電界 E_{gc} の変化量 δE_{gc} が小さいということである。そこで、Bunemann ら[45]は遮蔽不完全さを表す量として遮蔽不完全度 $\sigma = dE_{gc}/dE_{kg}$ という量を導入しこれが次式で与えられることを示した。

$$\sigma = \frac{dE_{gc}}{dE_{kg}} = \frac{d}{2\pi b} \log\left(\frac{d}{2\pi r}\right) \quad (3-14)$$

先に述べたようにグリッドにはステンレス製のリングに直径 0.1mm のタンクスチタン金メッキのワイヤーを 1mm 間隔に張ったものを用いる。遮蔽不完全度は約 4% と計算される。

放射線により発生した電子を全て収集するためには α 線の飛程が有効電場内に収まっている事が必要である。また、安定した動作のため一様な電場を印加する必要がある。本研究では、電場は Relaxation 法という数値解法[46]によって計算し、上記の条件が満たされていることを確認した。時間に依存しない電場を記述する Maxwell 方程式は

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E}' = \frac{\rho''}{\epsilon'}$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E}' = 0$$

で与えられる。 E は電場、 ϵ は誘電率、 ρ'' は電荷密度。第2式より、「渦なし」の条件より、電場は静電ポテンシャル ϕ の勾配によって

$$\vec{E}' = -\vec{\nabla} \phi$$

と表される。これを第1式に代入すると、Laplace-Poisson 方程式

$$\nabla^2 \phi = -\frac{\rho''}{\epsilon'}$$

を得る。今は2次元の場合を考え、左辺の2階微分を一辺の長さが Δ の正方格子上の差分で置き換えると、x座標の添え字をi、y座標の添え字をjとすると

$$\nabla^2 \phi = \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial y^2}$$

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} \approx \frac{\phi_{i-1,j} + \phi_{i+1,j} - 2\phi_{i,j}}{\Delta^2}$$

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial y^2} \approx \frac{\phi_{i,j-1} + \phi_{i,j+1} - 2\phi_{i,j}}{\Delta^2}$$

のように書ける。これから、特に電荷が存在しない場合に ϕ_j の満たすべき方程式は

$$\phi_{i,j} = \frac{\phi_{i-1,j} + \phi_{i+1,j} + \phi_{i,j-1} + \phi_{i,j+1}}{4}$$

となる。つまり、各格子点でのポテンシャルの値が、その周辺の4点のポテンシャル値の平均になるべきである。この方程式は、Relaxation 法と呼ばれる反復法によって解くことができる。つまり、k回目で得られたポテンシャルの値を用い、k+1回目の値を計算するために、

$$\phi_{i,j}^{k+1} = \phi_{i,j}^k + \beta \left(\frac{\phi_{i-1,j}^k + \phi_{i+1,j}^k + \phi_{i,j-1}^k + \phi_{i,j+1}^k}{4} - \phi_{i,j}^k \right)$$

とする。ここで β は収束を早めるためのパラメータで、今回は簡単のため $\beta=1$ に選び、反復を繰り返す。電離箱の電場の計算結果を図3-32に示す。 α 粒子の飛程が最大35mmの場合を考慮し、線源板の中心から35mm以内で電場が一様になるように線源板の直径を140mm、グリッド、コレクターのリングの直径を184mm、グリッドの領域を直径120mmとした。電場の計算結果より、線源板の中心から35mm以内で一様な電場が得られていることが分かる。

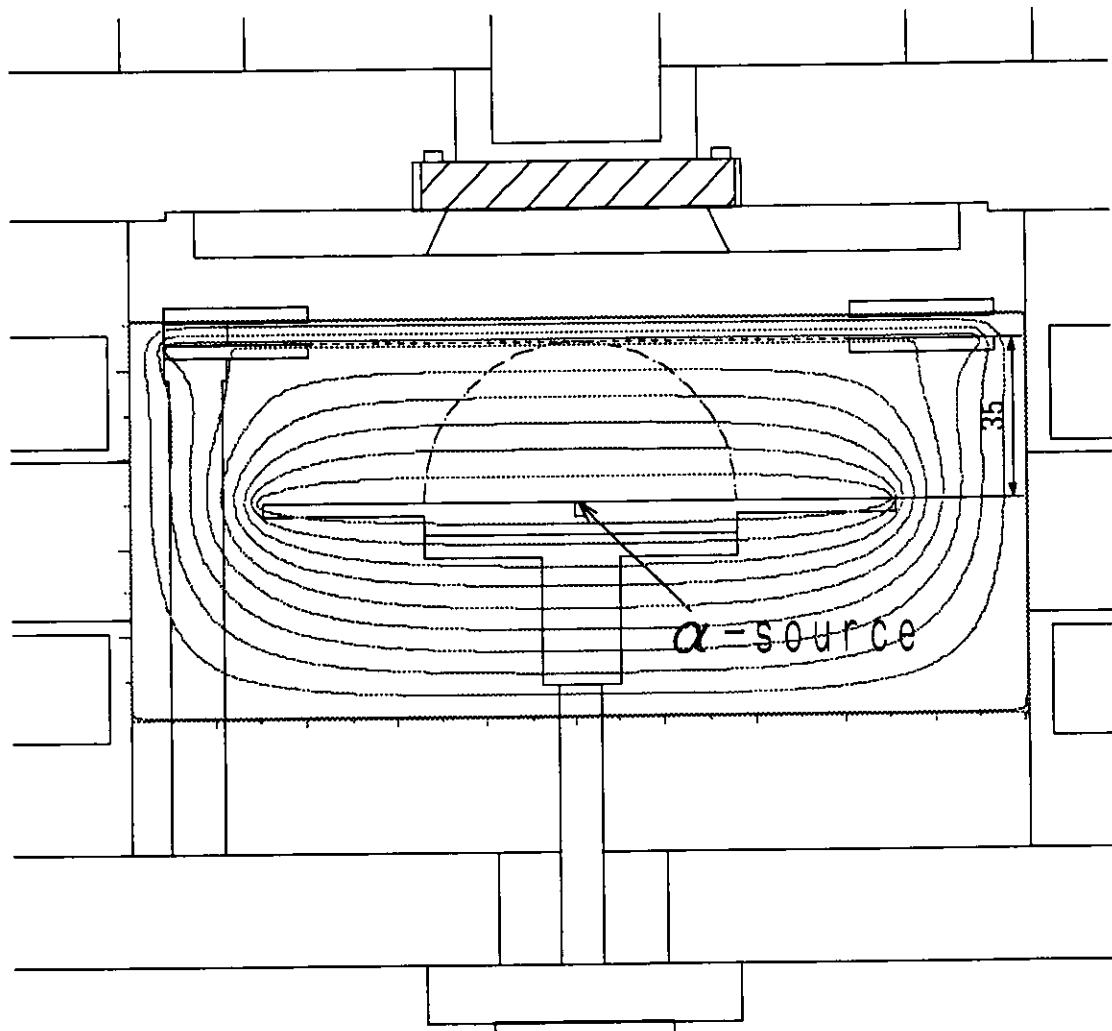


図 3-32 グリッド型電離箱における等電位線の分布

3.4.3 電荷の飽和曲線

アルゴン $9.12 \times 10^5 \text{ Pa}$ におけるグリッド型電離箱のコレクターからの波高分布を図 3-33 に示す。電場強度比 $Z=3$ で実験を行った。波高値は電子数に変換してある。電場強度を強くすると波高値が大きくなり、収集電子数が増えていることがわかる。アルゴン $9.12 \times 10^5 \text{ Pa}$ における PMT からの波高分布を図 3-34 に示す。この場合は電場強度を強くすると発光量が減少している。

先に述べた様に電場強度比 $Z=1.96$ でグリッドでの電子捕獲は起こらないと計算されるが実際には電子がグリッドを通過中に拡散によりグリッド線に捕獲されることがあり得る。そこで、この様な捕獲が起こらない条件を確認する目的でグリッド型電離箱の飽和曲線を Z' を変えて測定する実験を行った。アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ における測定結果を図 3-35 に示す。 $Z=2$ では、電場強度を大きくしても収集電子数は飽和しない。 $Z=3$ の場合では収集電子数は飽和し完全に電子をコレクターで集めることができた。このときの収集電子数は $2.05 \times 10^5 \text{ electrons}$ である。アルゴンの α 粒子に対する W 値(電子・イオン対を 1 つ発生させるのに必要な平均エネルギー)、 26.4 eV [47]から、 5.49 MeV の α 粒子によって発生する電子・イオン対を計算すると $2.08 \times 10^5 \text{ electrons}$ となり、良く一致した値となる。以下、実験は $Z=3$ の電場強度比で行った。

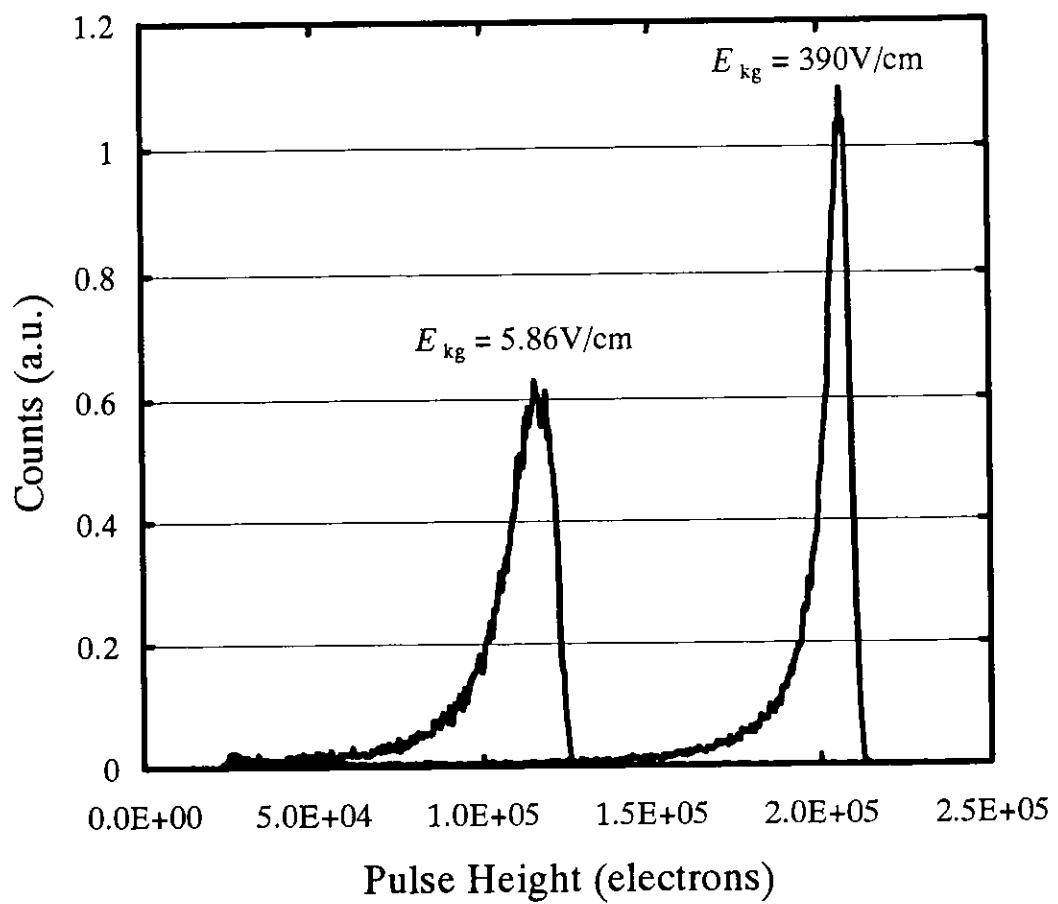


図 3-33 アルゴン $1.52 \times 10^5\text{Pa}$ におけるグリッド電離箱のコレクターからの波高分布

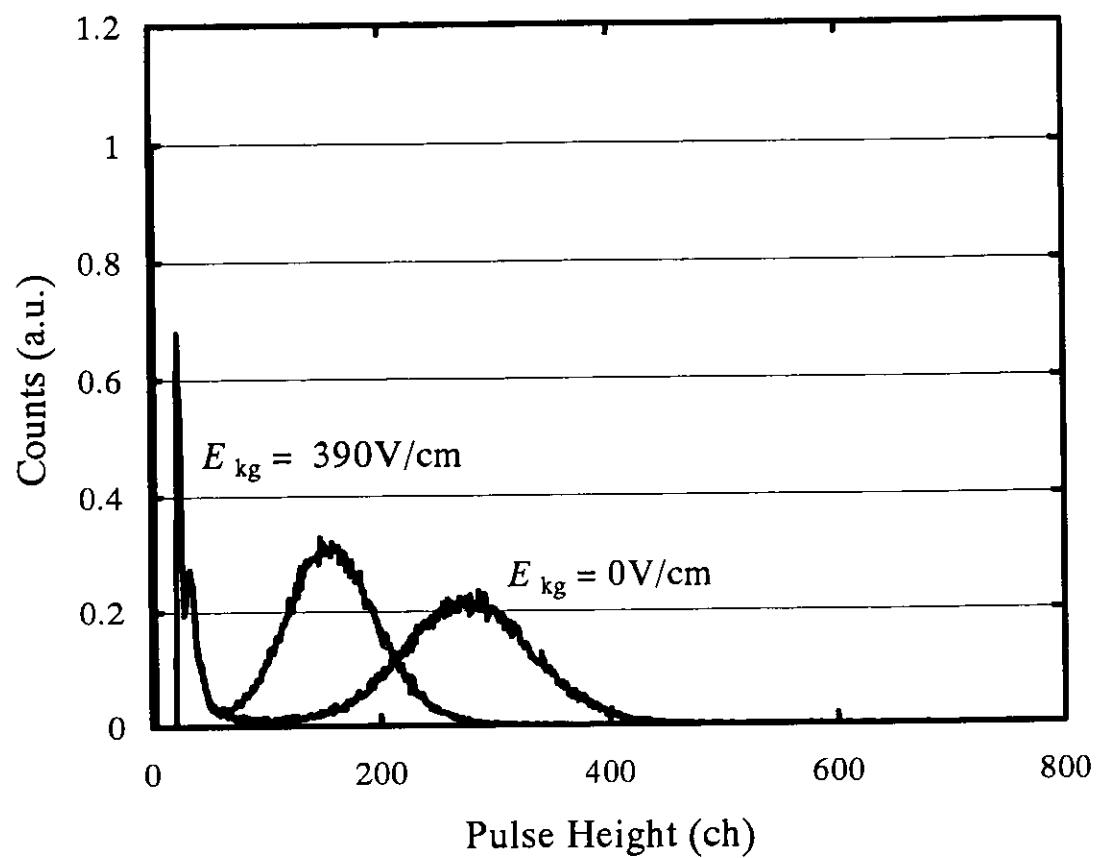


図 3-34 アルゴン $1.52 \times 10^6\text{Pa}$ におけるシンチレーション相対強度の波高分布

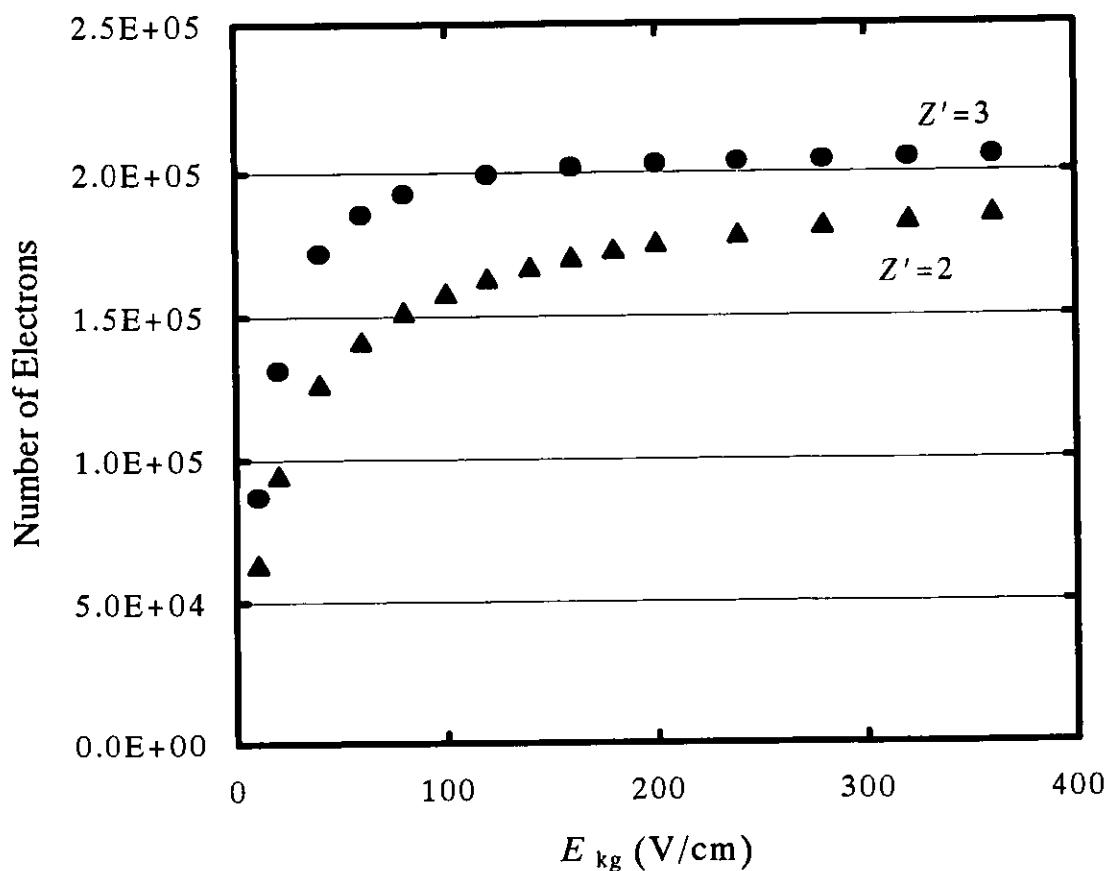


図 3-35 カソード-グリッド間とグリッド-コレクター間の電場比を変えて得た飽和曲線

3.4.4 比例シンチレーションの観測

アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ における電離電子とシンチレーション光子の同時測定の結果を図 3-36 に示す。ここで I_s はシンチレーション強度、 N_e は収集した電子数を表す。カソード・グリッド間の電場(E_{kg})の関数として示す。電場強度を大きくしていくと収集電子数は大きく増大し、シンチレーションの強度は若干の減少傾向のあと一定値をとる。さらに電場強度を大きくすると電子数は飽和するが、シンチレーション強度が急激に増加していくのが分かる。これは比例シンチレーションと呼ばれるものである。より詳しく解析するために、PMT からの信号を直接観測し、シンチレーションの波形を観測した。図 3-37 にアルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ の実験における PMT からの直接の出力をデジタルオシロスコープで観測した結果を示す。図 3-37 の中に表示している電場はグリッド・コレクター間の電場(E_{gc})であり、 $E_{gc}=361 \text{ V/cm}$ のときには $E_{kg}=117 \text{ V/cm}$ 、 $E_{gc}=1080 \text{ V/cm}$ のときには $E_{kg}=351 \text{ V/cm}$ である。比例シンチレーションはクリプトン、キセノンの場合でも観測される。図 3-38 にはキセノン $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ におけるシンチレーション波形を示す。図 3-38 の中に表示している電場は E_{gc} であり、 $E_{gc}=0 \text{ V/cm}$ のときは $E_{kg}=0 \text{ V/cm}$ 、 $E_{gc}=4700 \text{ V/cm}$ のときは $E_{kg}=1530 \text{ V/cm}$ である。図に示された波形は 1 つの α 粒子による信号ではなく、512 個の波形を取り込んで平均したものである。アルゴン、キセノン両方の場合において、 $0 \mu\text{s}$ の鋭い立ち上がりのピークが α 粒子によるシンチレーションに対応する。電場強度が大きい場合、キセノン、アルゴン共に最初のシンチレーションから約 $13 \mu\text{s}$ 後に発光が観測された。これが比例シンチレーションの発光である。アルゴンにおける測定の場合、カソード・グリッド間は 35 mm 、グリッド・コレクター間は 5 mm である。比例シンチレーションを測定したときの電場に対する電子の流動速度はカソード・グリッド間で $3 \times 10^5 \text{ cm/s}$ 、グリッド・コレクター間で $4 \times 10^5 \text{ cm/s}$ である[48]。以上より、電子がカソードからコレクターまで達するまでの時間を計算すると約 $12 \mu\text{s}$ である。しかし、 α 粒子の飛程が約 34 mm があるので、 α 粒子がカソードに対して垂直方向に放出された場合、早くコレクターに到達する電子もある。キセノンの測定の場合、カソード・グリッド間は 11 mm 、グリッド・コレクター間は 5 mm である。比例シンチレーションを測定したときの電場に対する電子の流動速度はカソード・グリッド間で約 10^5 cm/s 、グリッド・コレクター間で約 $1.5 \times 10^5 \text{ cm/s}$ である[48]。以上よりカソードからグリッドまでの電子の流動時間を計算すると約 $11 \mu\text{s}$ 、コレクターに達するまで約 $14 \mu\text{s}$ となる。図 3-38 では比例シンチレーションが始まる時間は約 $11 \mu\text{s}$ であり、ピークに達する時間は約 $13 \mu\text{s}$ である。以上より、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考えられる。グリッド・コレクター間にはカソード・グリッド間の約 3 倍の大きい電場強度であり、また、コレクターには直径 0.1 mm のワイヤーを張ったものを使用しているため、ワイヤー近傍では電気力線が密集し、電子が加速される。加速された電子により希ガスが励起され、発光が起きると考えられる。ただし、電場強度を大きくしていった場合でも、収集電子数に変化がないことから、流動電子の作用は励起のみであり、電離は起こっていないと推察できる。また、キセノンの実験において、 α 粒子によるシンチレーションに着目すると、電場を印加した場合に発光の減衰の遅い成分が小さくなっているのがわかる。

このことはキセノンの圧力が高くなると表れてくる発光の減衰の遅い成分は、再結合発光によるものであることを示している。エネルギーの高い電子が熱化し、イオンと再結合するまでに時間がかかるため、発光の減衰の遅い成分となるのである。

図 3-39、図 3-40、図 3-41 にそれぞれアルゴン、クリプトン、キセノンの比例シンチレーションを場のエネルギーの関数としてプロットしたものを示す。場のエネルギーは E/N というパラメータで表す。 E/N は電場をガスの密度で割ったもので "Td" という単位が使用される。1Td=10⁻⁷Vcm²である。クリプトンの実験において 4.04×10⁵Pa と 5.07×10⁵Pa のシンチレーション強度が大きくなっているのは線源板を PMT に近づけたためである。アルゴンよりもキセノンのほうが比例シンチレーションは起こりやすく、また、比例シンチレーションの強度には圧力依存がある。

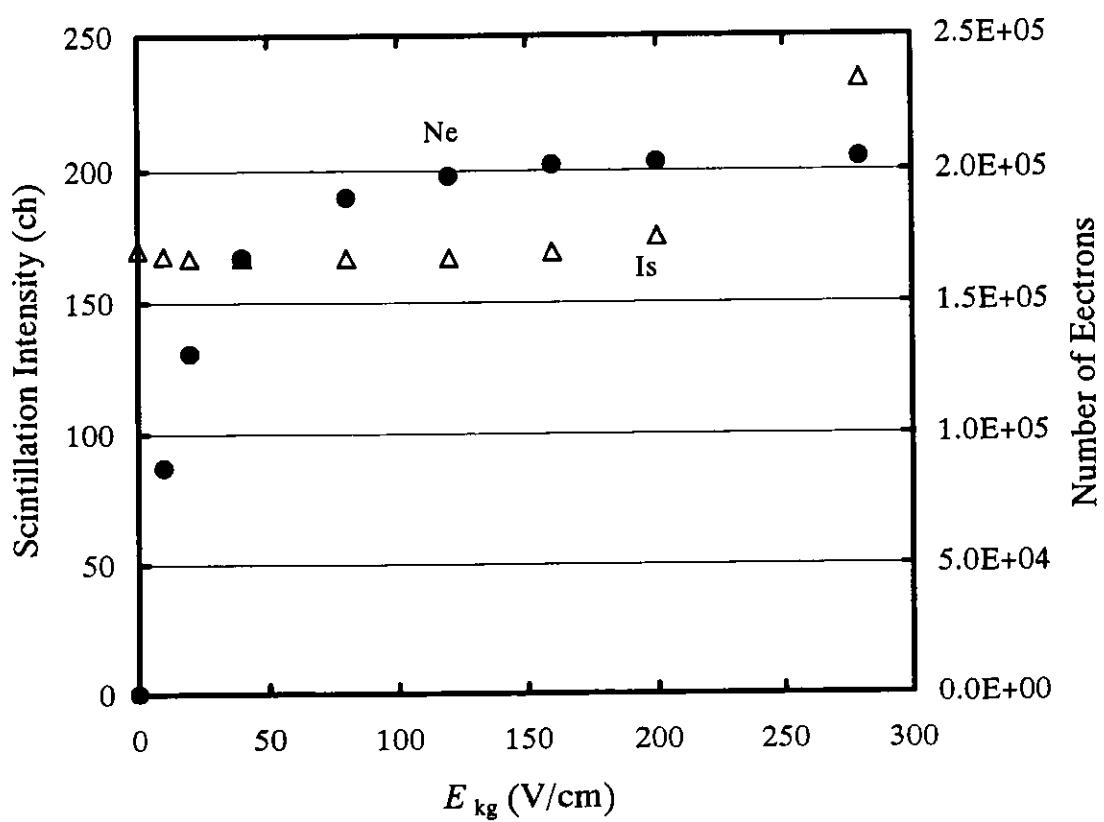


図 3-36 アルゴン $1.52 \times 10^6 \text{ Pa}$ における電離電子・シンチレーション光子同時測定の結果。●は収集電子数、△はシンチレーション相対強度を示す。

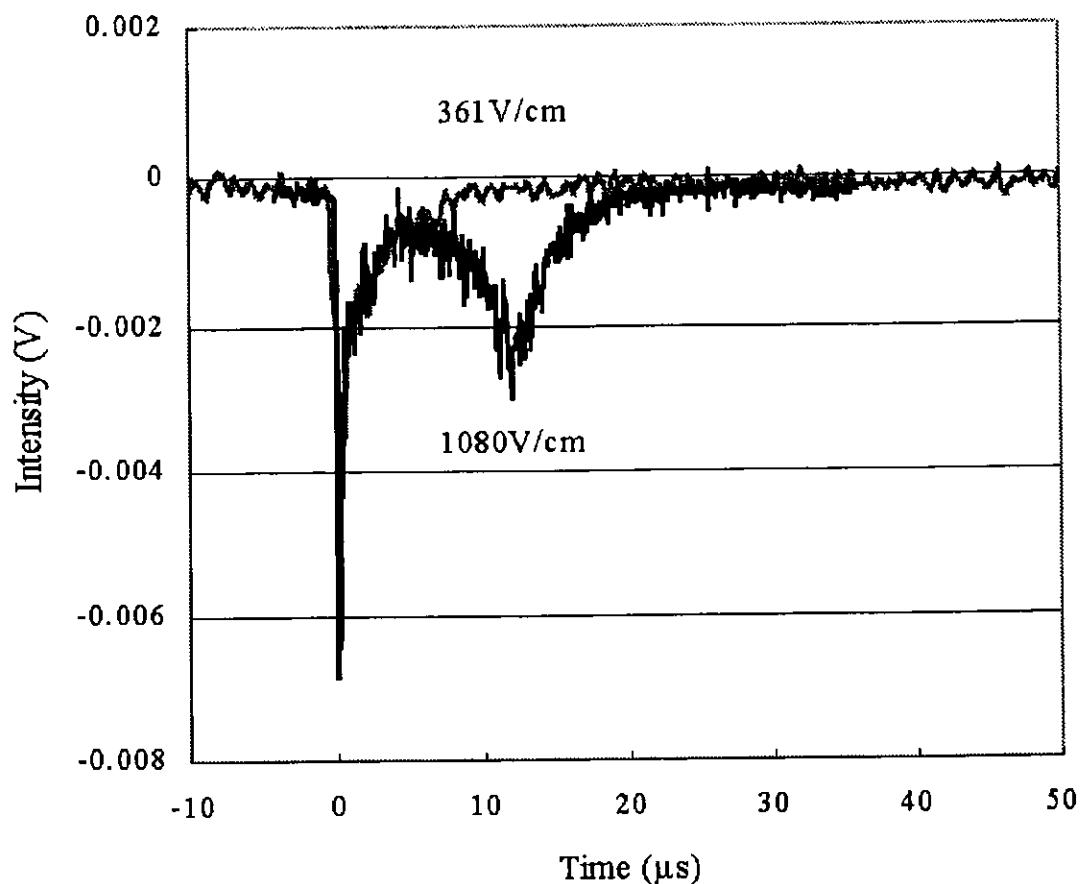


図 3-37 アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ におけるシンチレーション波形。グリッド-コレクター間の電場強度の異なる波形を示す。

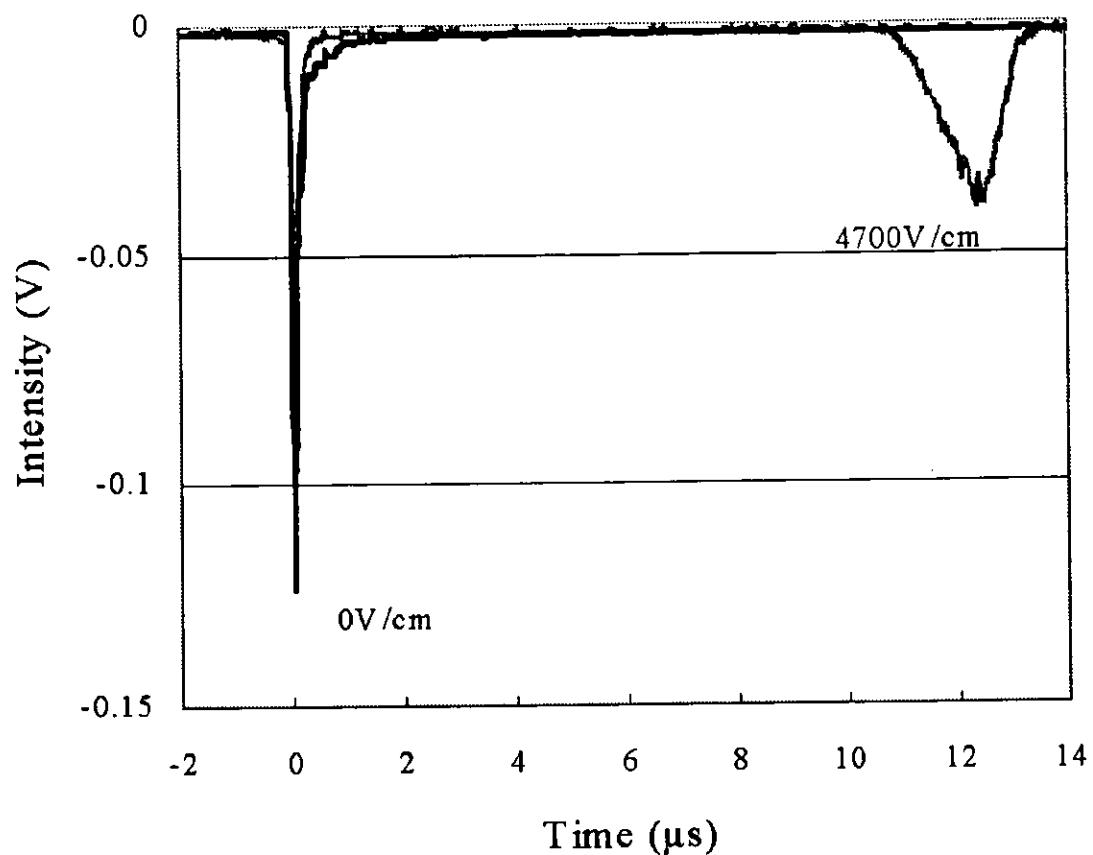


図 3-38 キセノン 1.01×10^6 Pa におけるシンチレーション波形

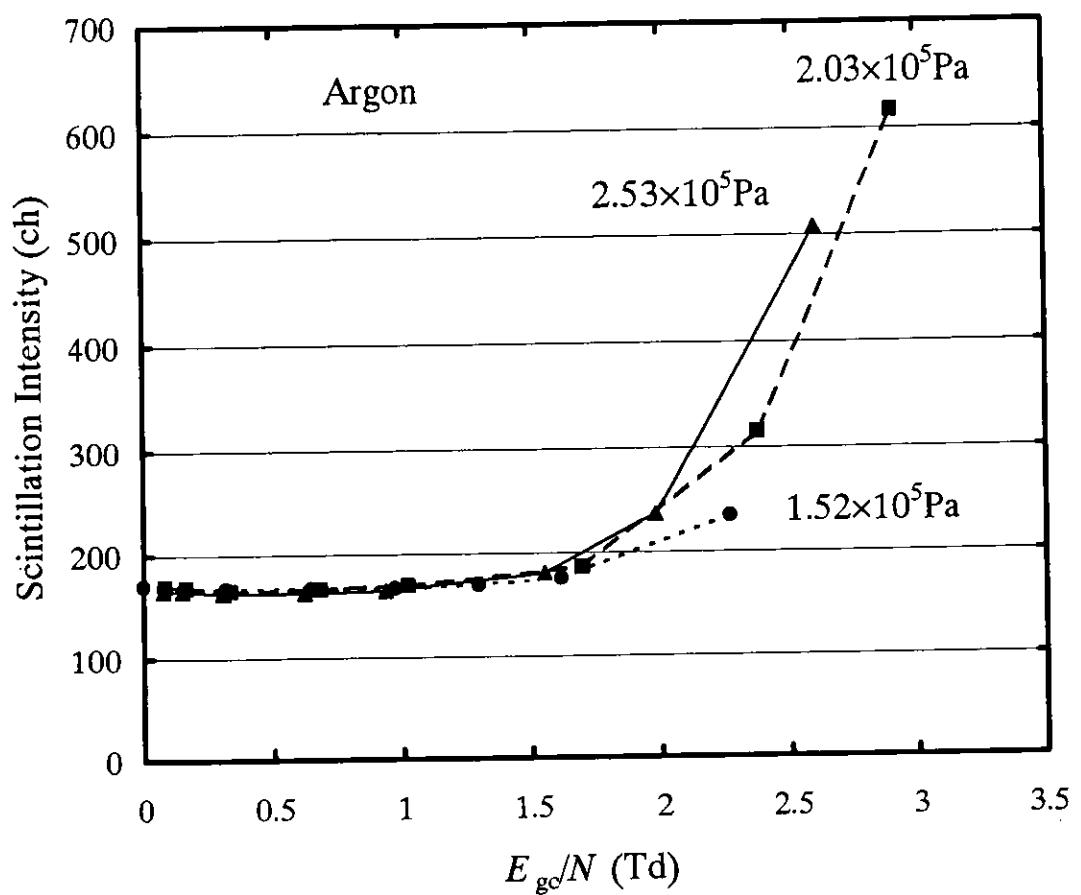


図 3-39 アルゴンにおける比例シンチレーション強度

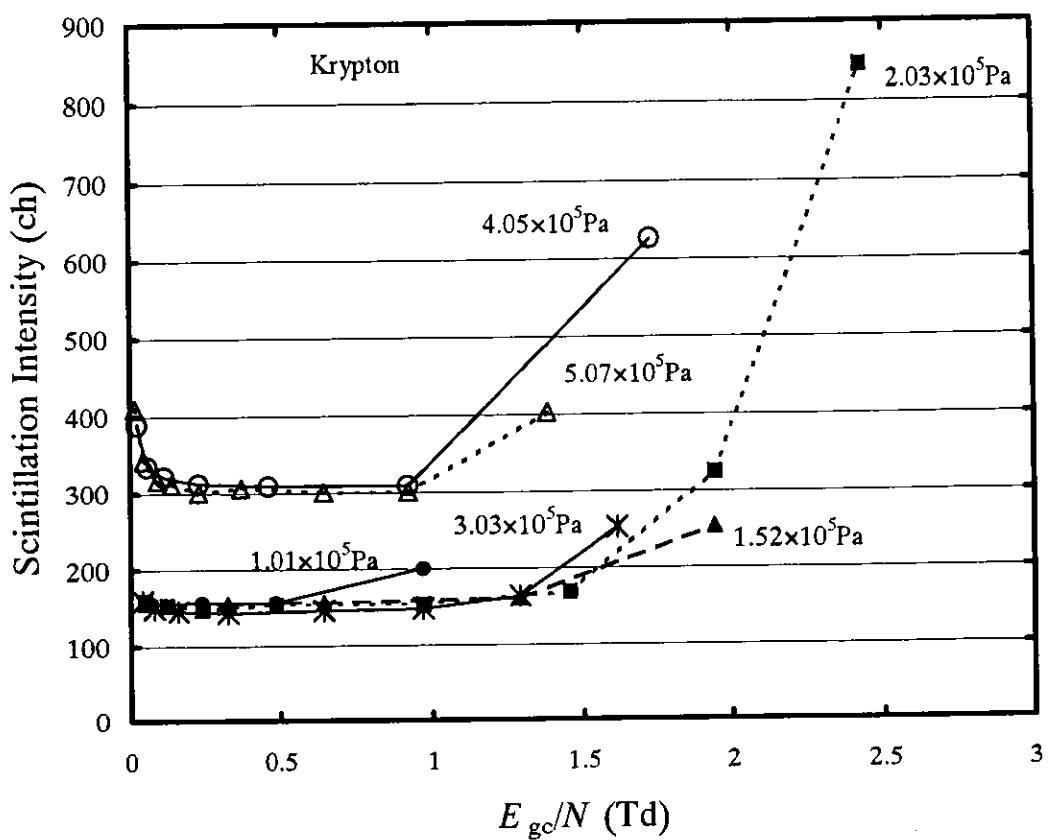


図 3-40 クリプトンにおける比例シンチレーション強度

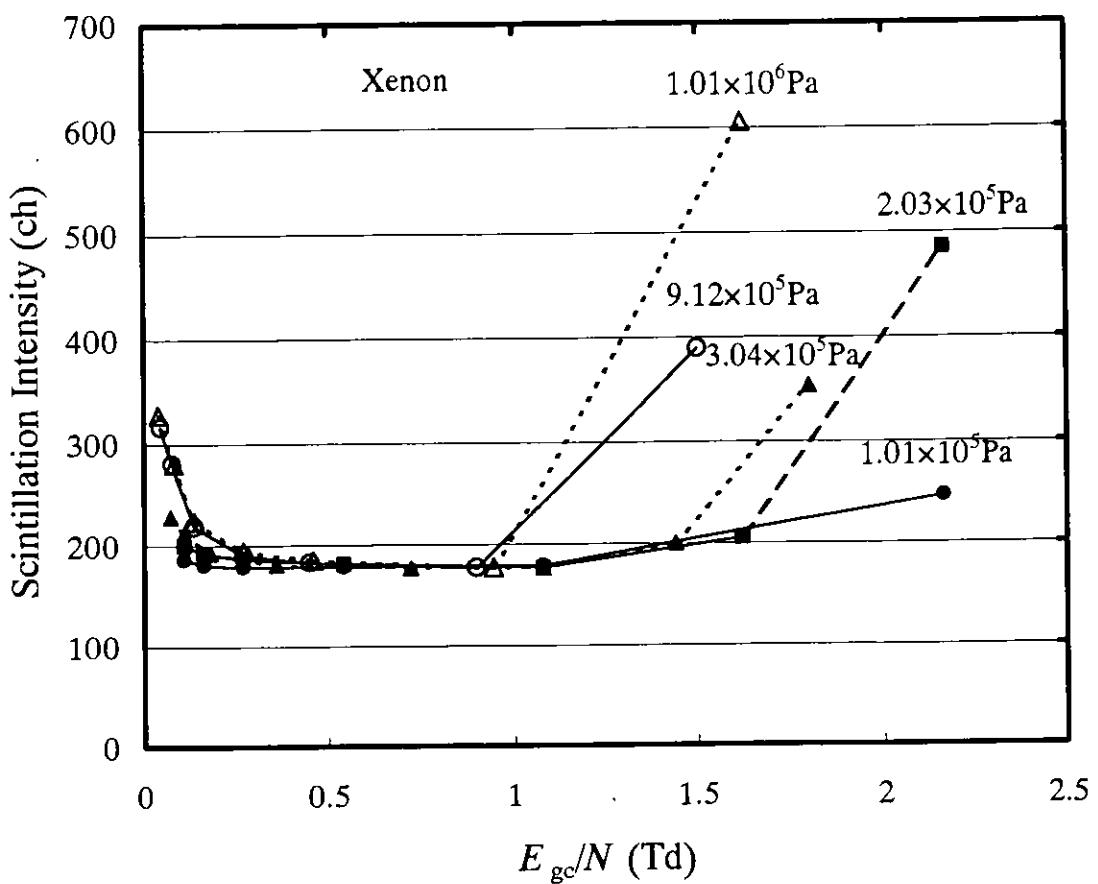


図 3-41 キセノンにおける比例シンチレーション強度

3.4.5 電離電子・シンチレーション光子同時計測

本研究では α 粒子による最初のシンチレーション強度の電場依存を調べたいので、比例シンチレーションは排除する必要がある。そこで、シンチレーションに対する電場効果を測定する場合には線源板に正の高電圧を印加することとした。正の電圧を線源板に印加すると α 粒子によって発生した電子は線源板に引かれグリッド板方向に向かわない。電離原子がグリッド方向に向かうことになるが、電離原子の移動度は電子に比べ非常に遅いので希ガスを電離、励起することはない。よって、比例シンチレーションは発生しない。図3-42にアルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ において、線源板に負の電圧を印加した場合と正の電圧を印加した場合のシンチレーション強度の電場依存を示す。線源板に正の電圧を印加した場合シンチレーション強度の増加はみられなかった。また、比例シンチレーションが起きるまでの電場強度が小さい条件で測定したシンチレーション強度に正・負の電圧印加による差異は認められなかった。よって、本実験ではまず線源板に負の電圧を印加し電荷の飽和曲線を得、電子が全て収集できる電場強度を測定してから、線源板に正の電圧を印加しシンチレーション強度の電場効果を測定することとした。実験はアルゴン、クリプトン、キセノンで $1.01 \times 10^5 \text{ Pa}$ から $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ の圧力範囲で行った。

図3-43にアルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ と $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ における実験結果を示す。アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ ではシンチレーション強度は電場に依存していないことが分かる。つまり、電離原子と電子とが再結合し発光する過程がないということを示している。一方、アルゴン $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ では電場の増加とともにシンチレーション強度が減少し、後に一定となっていく。このことは、 $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ のアルゴンのシンチレーションには再結合発光が存在することを示している。

電場を印加しない場合の相対シンチレーション強度を、先に求めた全シンチレーション光子数によって規格化することにより、電場を印加した場合のシンチレーション光子数を求める。放射線によって発生した電離電子を全て収集したときのシンチレーションは励起原子を起源とする発光である。

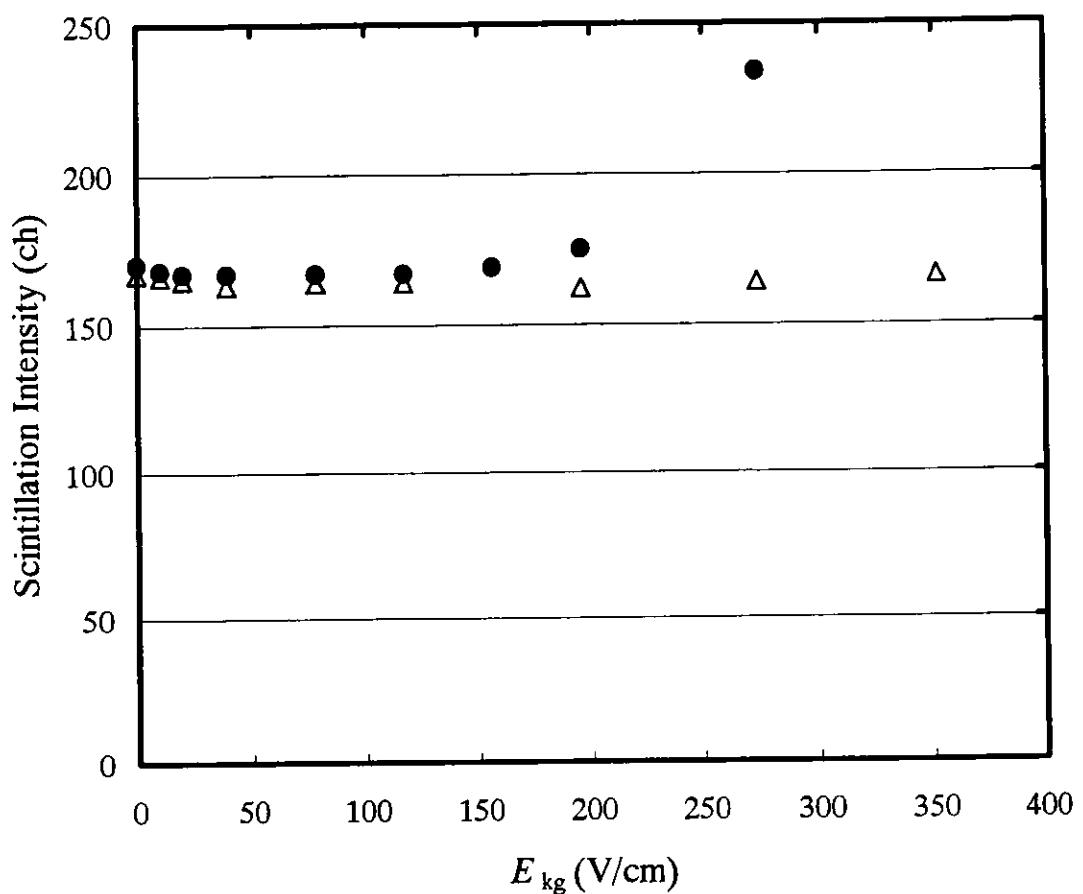


図 3-42 アルゴン $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ におけるシンチレーション強度の電場効果。●は線源板に負の高電圧を印加した場合。△は線源板に正の高電圧を印加した場合の実験結果を示す。

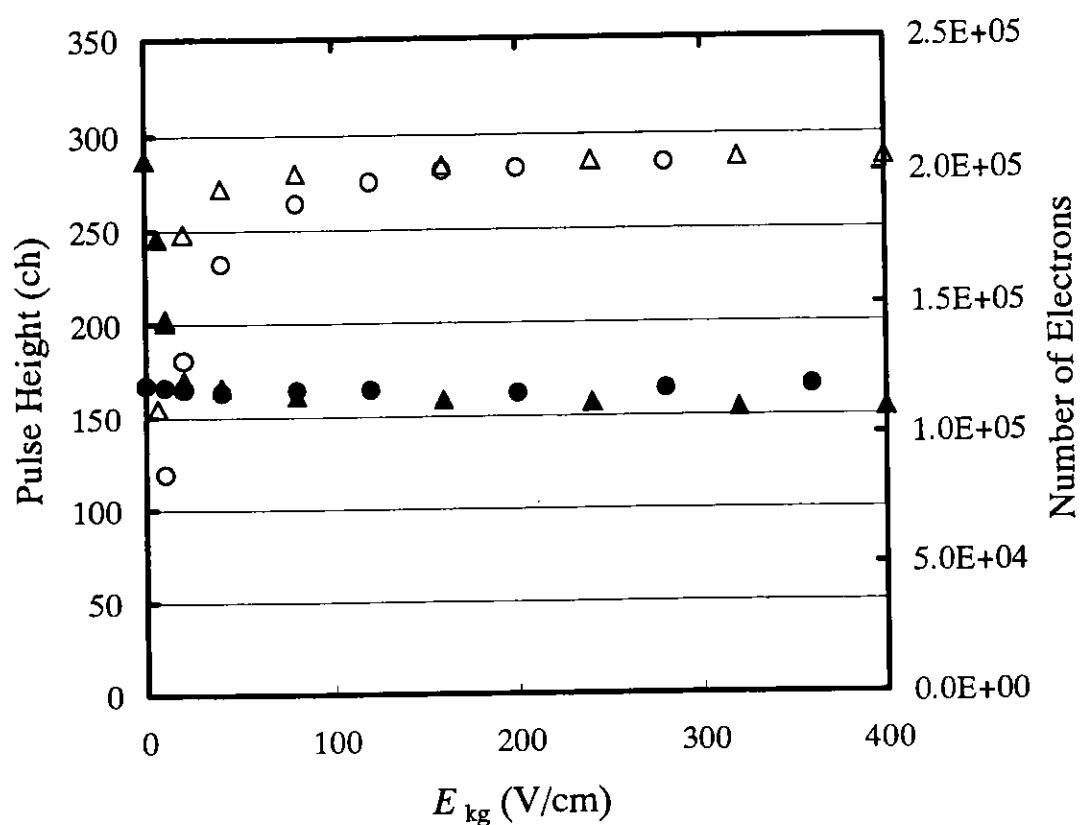


図 3-43 シンチレーション強度の電場効果。白抜き(○、△)は収集電子数、塗りつぶし(●、▲)はシンチレーション強度を示し、●、○はアルゴン 1.52×10^5 Pa、▲、△はアルゴン 1.01×10^6 Paにおける実験結果を示す。

第4章 結果と考察

本章では、本研究で行ったそれぞれの実験結果についてまとめ、考察する。最初に絶対蛍光効率を求めるために行った発光スペクトル測定実験の結果についてまとめ、考察を行う。次に、測定した発光スペクトルと光電子数測定実験からシンチレーション光子数と絶対蛍光効率を求め、その結果についてまとめると共に考察を行う。発生したシンチレーション光子数が求まったので、その結果と電離電子・シンチレーション光子同時測定の結果から励起原子を起源とする発光と、電離原子・電子の再結合を起源とする発光の各々の光子数を求め、放射線のエネルギーの物質中の分配機構について考察する。

4.1 希ガスシンチレーションの発光スペクトル

4.1.1 発光スペクトル

図 4-1 に発光スペクトル測定実験に用いた分光器、 MgF_2 結晶の窓及び光電子増倍管の効率を一つにまとめ、波長の関数としてプロットした結果を示す。この効率と実験で得られた結果より、発光スペクトルを求めることが可能となる。図 4-2、図 4-3、図 4-4 に効率補正を行って得た発光スペクトルをそれぞれアルゴン、クリプトン、キセノンの場合について示す。“second continuum”と呼ばれる真空紫外領域での発光が主であり、“third continuum”と呼ばれる紫外領域での発光は無視できるほど小さいことが分かった。各発光スペクトルの発光中心波長はアルゴンでは 127nm、クリプトンでは 148nm、キセノンでは 175nm であり、半値幅はそれぞれ 11nm、13nm、15nm である。これらの図から明らかのように発光スペクトル強度には圧力依存があるが、その形状には圧力に依存した変化は観測されなかった。発光スペクトル強度が圧力に依存するのは、密度が大きくなると X 線と希ガス原子との相互作用の頻度が増加するためである。

Lindblom ら[49]は常圧以上のネオン、アルゴン、クリプトン、キセノンのシンチレーションを波長 350nm から 980nm の範囲で調べ、常圧以上の希ガスのシンチレーションにおいては可視光領域の波長範囲に発光がほとんどないことを報告している。本研究においても、可視光領域の波長範囲にのみ感度を持つ光電子増倍管(7696: 感度波長 280nm-650nm)を用いてシンチレーション測定を行ったが、全く可視光領域に発光は観測されなかった。

以上より、常圧以上での希ガスシンチレーションは真空紫外領域での発光が大部分を占め、可視光領域から赤外領域までの発光はほとんど無視しうる程小さいと結論づけることが出来る。

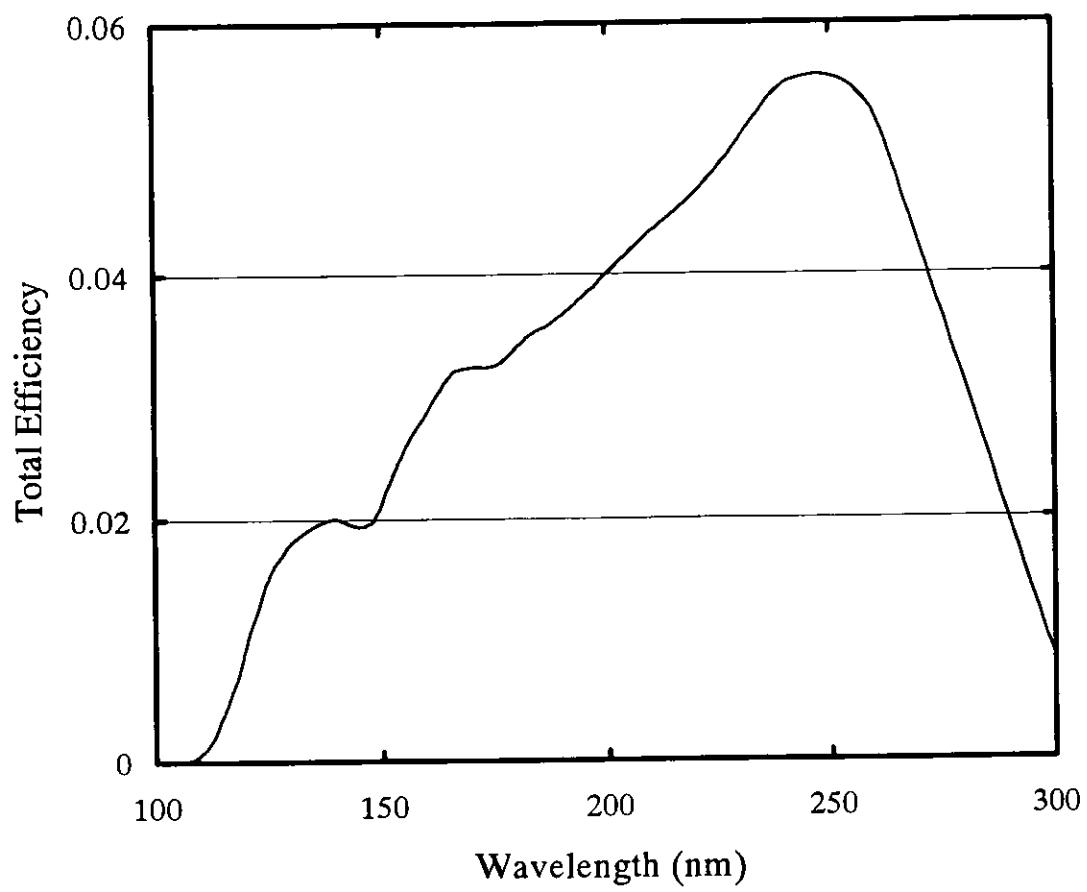


図 4-1 発光スペクトル測定実験に用いた光学系部品・PMT の各効率をまとめた結果

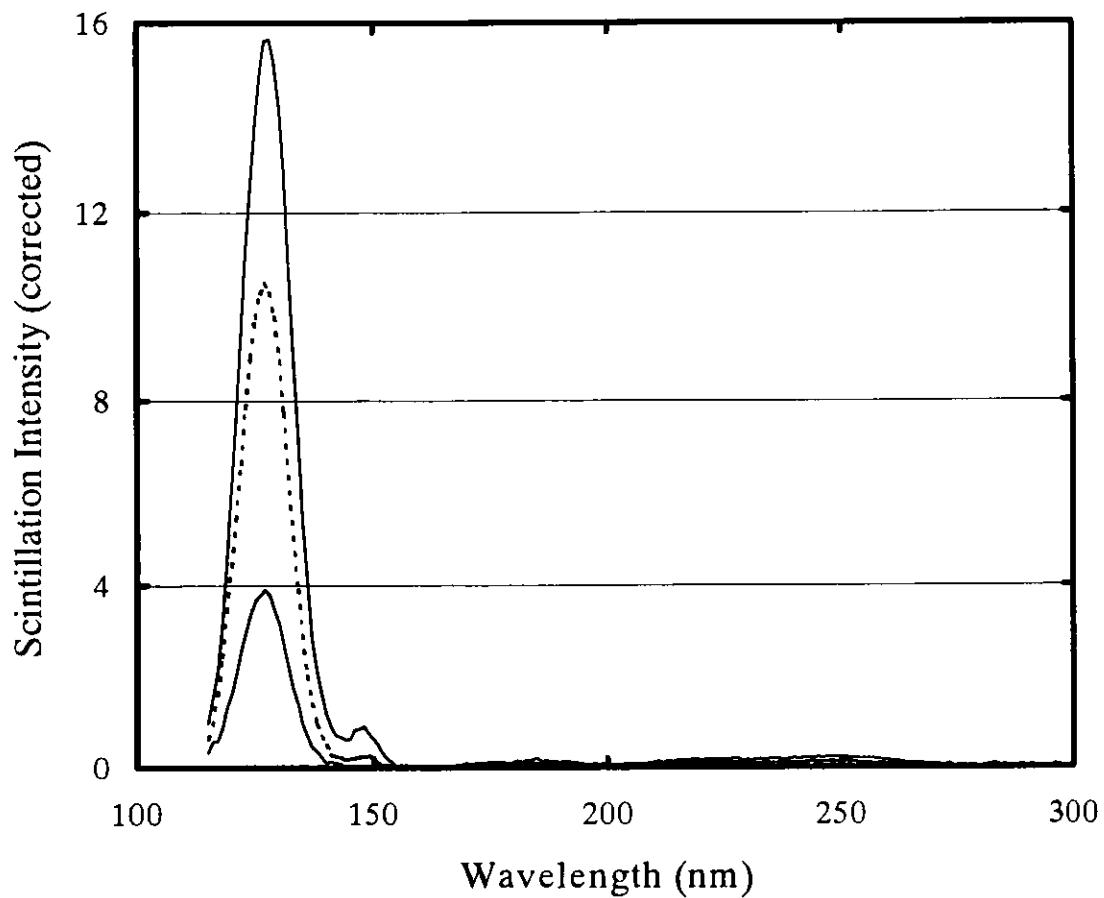


図 4-2 光学系の効率を補正して得たアルゴンの発光スペクトル。シンチレーション強度が小さい順に $2.03 \times 10^6 \text{ Pa}$ 、 $6.08 \times 10^6 \text{ Pa}$ 、 $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ の圧力で得られた結果を示す。

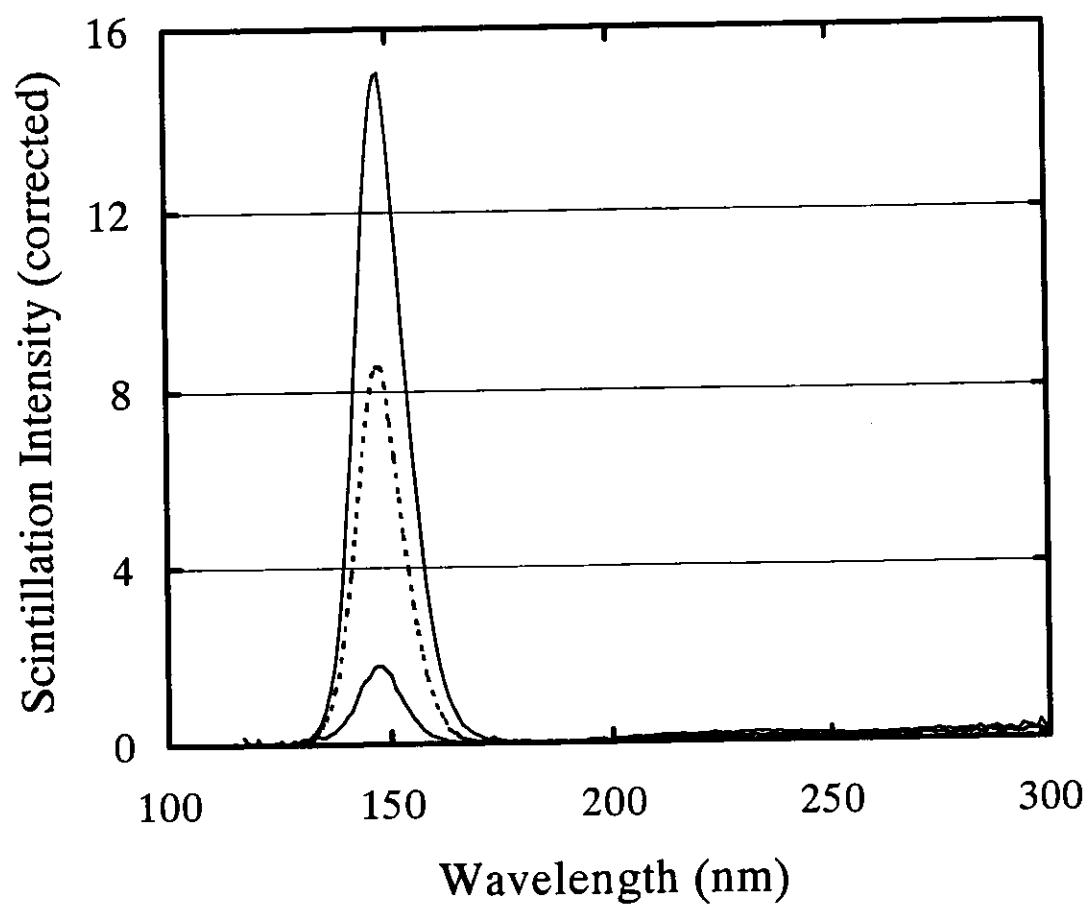


図 4-3 光学系の効率を補正して得たクリプトンの発光スペクトル。シンチレーション強度が小さい順に $1.01 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、 $5.07 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、 $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ の圧力において得られた結果を示す。

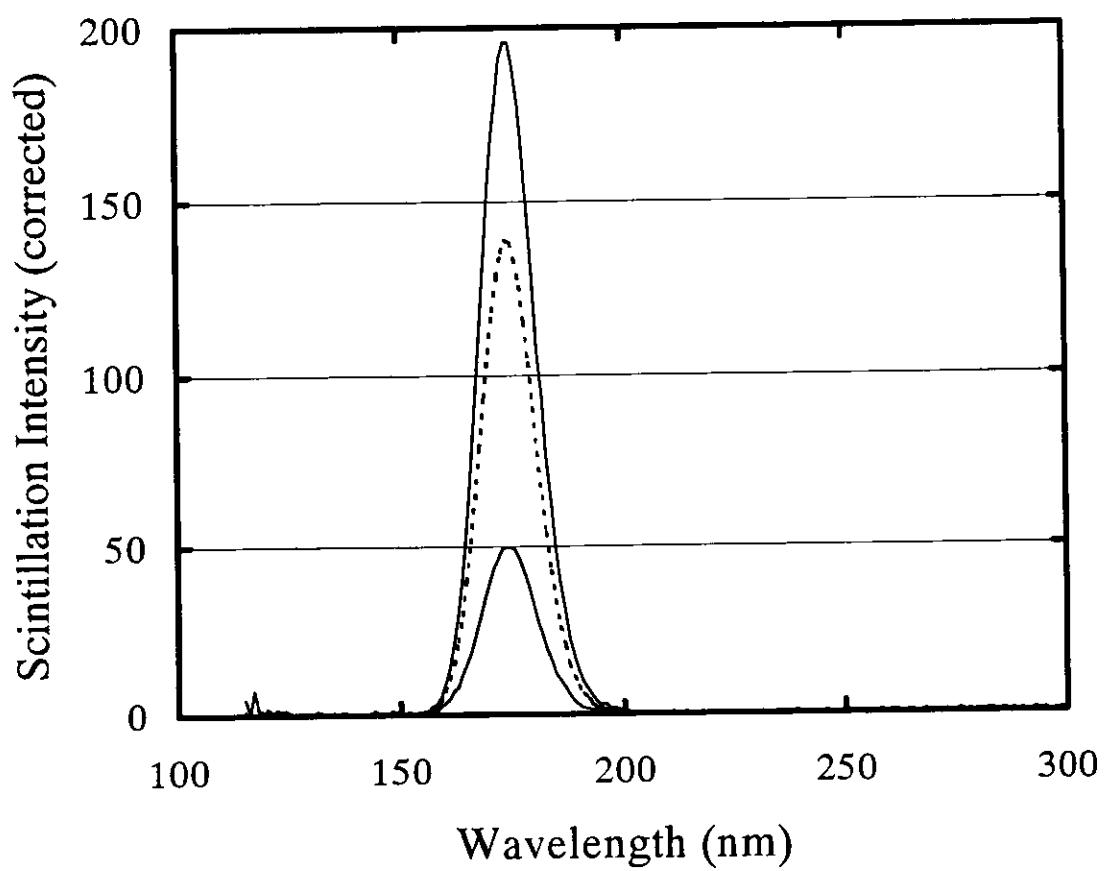


図 4-4 光学系の効率を補正して得たキセノンの発光スペクトル。シンチレーション強度が小さい順に $2.02 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、 $6.08 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、 $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ の圧力において得られた結果を示す。

4.1.2 平均量子効率

3.1.1において示したように、絶対蛍光効率を求めるためには希ガスシンチレーションの発光スペクトルに対する PD の光電面の平均量子効率 Q_e が必要である。 Q_e は以下の式で与えられる。

$$Q_e = \frac{\int I(\lambda) q_e(\lambda) T(\lambda) d\lambda}{\int I(\lambda) d\lambda} \quad (4-1)$$

$I(\lambda)$ は波長 λ に対する発光スペクトル強度、 $q_e(\lambda)$ は λ に対する PD の光電面の量子効率、 $T(\lambda)$ は光電子数測定実験に用いた MgF_2 結晶の窓の λ に対する透過率である。図 4-5 に $I(\lambda)$ の例としてキセノンの発光スペクトル、 $q_e(\lambda)$ 、 $T(\lambda)$ をそれぞれ示す。先に述べたように発光スペクトルの強度分布の形は圧力によらないことから、 Q_e は圧力に依存せず、希ガスの発光スペクトルに対して一定値をとる。発光スペクトルの実験結果と計算より PD のアルゴン、クリプトン、キセノンに対する Q_e はそれぞれ 0.109、0.0965、0.147 と決定される。

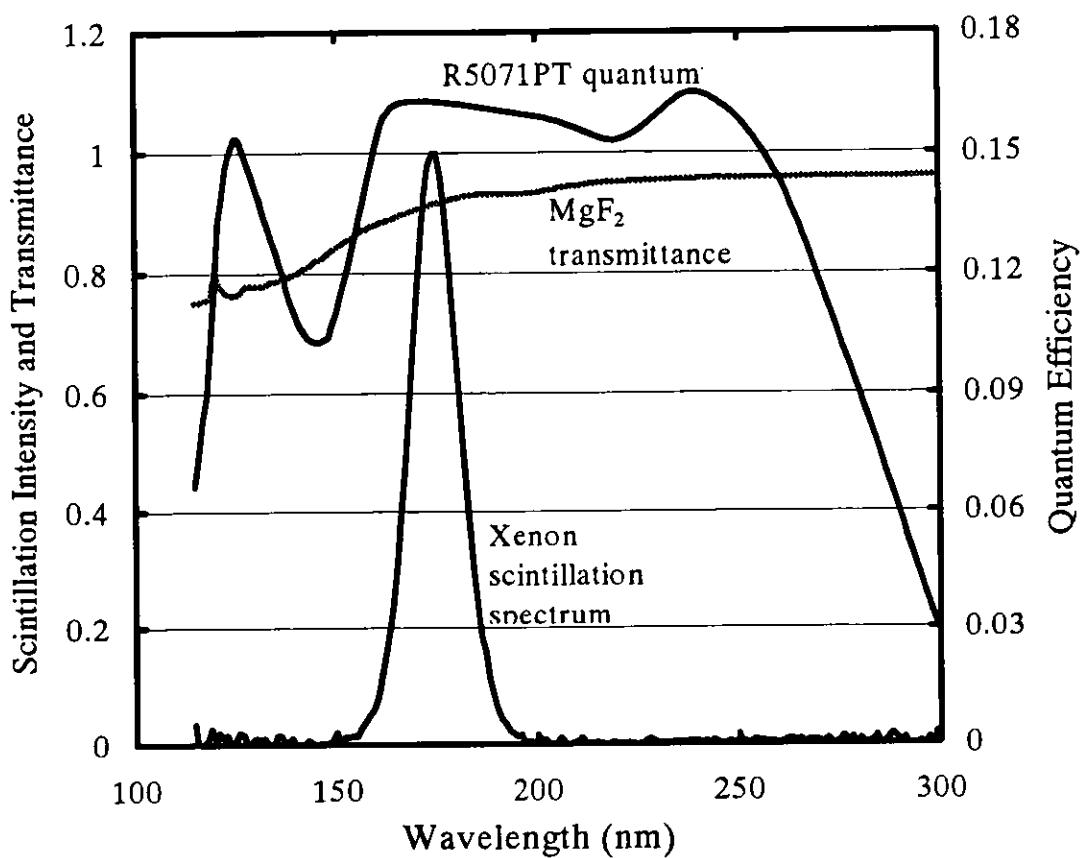


図 4-5 PD(R5071PT)の光電面の量子効率と MgF₂結晶の窓の透過効率とキセノンの発光スペクトル(補正済み)。スペクトル強度は最大値で規格化してある。

4.2 絶対蛍光効率

光電子数測定実験より N_{pe} と F_{ce} が決まり、発光スペクトル測定実験より Q_e が決まる。これらの実験より、全シンチレーション光子数 N_p を決定することができる。光電子数測定実験に用いたチャンバーでは高圧のガスを導入するため、ガスを封入した領域と PD を設置した領域とを MgF_2 結晶の窓で区切っている。この窓の表面での屈折による F_{ce} への影響は計算によって評価した。 $1.01 \times 10^5 \text{ Pa}$ のキセノンでは MgF_2 結晶の窓を設定した場合と設定しない場合で光子数測定を行い、 F_{ce} の計算において屈折の効果が正しく計算できているか確かめた。 MgF_2 の結晶の窓を用いない場合、 Q_e は(4-1)式において $T(\lambda)=1$ として計算し、0.161 という値を得た。 MgF_2 結晶の窓を用いない場合、 N_p は 1.52×10^5 、 MgF_2 結晶の窓を用いた場合は N_p は 1.53×10^5 となり、極めて良く一致した。この確認の実験は MA の時定数を $10\mu\text{s}$ に設定し行った。図 4-6 にアルゴン、クリプトン、キセノンにおける圧力変化とともに N_p をプロットしたものを示す。幾つか Z を変えて実験を行った。本研究で対象にした希ガスすべてにおいて、圧力の上昇と共に発光量が増加している。

表 4-1 に実験結果より求めた W_s 値を示す。 W_s 値は各希ガス・各圧力において、図 3-14 のように光電子数を光子の収集効率の関数としてプロットしたときの直線の傾きと Q_e から計算した。Miyajima ら[31]は 1 気圧から 2 気圧のキセノンと液体キセノンについて α 粒子に対する W_s 値を測定した。Miyajima ら[31]によると 1 気圧から 2 気圧のキセノンの W_s 値は $49.6 \pm 1.1 \text{ eV}$ であり、この圧力範囲では W_s 値は圧力に依存しないと報告している。また、液体キセノンの W_s 値は $16.3 \pm 0.3 \text{ eV}$ であると報告している。本研究で得た $1.01 \times 10^5 \text{ Pa}$ のキセノンの W_s 値は $34.3 \pm 1.6 \text{ eV}$ である。Miyajima ら[31]の実験では第 2 章で紹介したように光子の収集効率はモンテカルロシミュレーションによって反射材がテフロンと黒アルマイトの場合で求めているが、その収集効率の計算と光子数を求める際に着目した波高値に曖昧さが残ると考えられる。 $7.09 \times 10^5 \text{ Pa}$ のキセノンにおいて W_s 値は $16.5 \pm 0.5 \text{ eV}$ という値を本実験から得た。その値は液体キセノンの W_s 値と同程度となり、更に圧力が高くなると W_s 値は小さくなり、 $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ では $14.6 \pm 0.5 \text{ eV}$ となった。液体キセノンを高圧キセノンの極現状態と考えるとキセノンにおいてイオン・電子対が全て再結合したとしても液体キセノンの W_s 値を越えることはないと考えられる、Doke ら[50]は α 粒子に対する液体キセノンシンチレーション過程には、励起状態の原子のエネルギーが発光に寄与せず消滅する過程があり、他の LET の小さな粒子を照射した場合に比べ W_s 値が大きくなることを報告している。

表 4-1 アルゴン、クリプトン及びキセノンの W_s 値

Pressure	W_s (eV)		
	Argon	Krypton	Xenon
1.01×10^5 Pa			34.3 ± 1.6
1.52×10^5 Pa		42.0 ± 3.0	
2.03×10^5 Pa	50.6 ± 2.6	41.3 ± 2.4	27.5 ± 1.3
4.05×10^5 Pa	46.3 ± 2.4	34.8 ± 1.8	21.0 ± 0.8
6.08×10^5 Pa	36.0 ± 1.9	27.9 ± 1.2	17.5 ± 0.6
7.09×10^5 Pa	32.1 ± 1.6	25.9 ± 1.0	16.5 ± 0.5
8.10×10^5 Pa	28.9 ± 1.3	24.3 ± 0.9	15.6 ± 0.5
1.01×10^6 Pa	25.3 ± 1.1	22.3 ± 0.8	14.6 ± 0.5

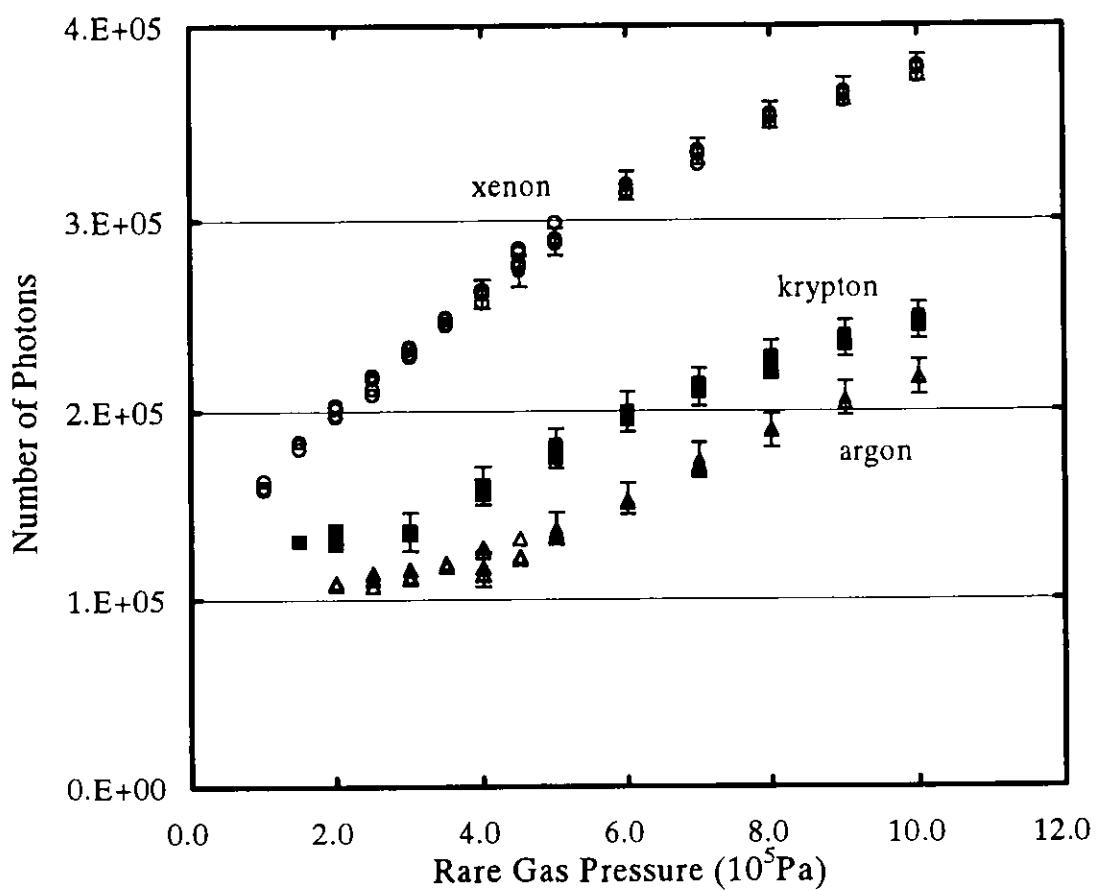


図 4-6 5.49MeV の α 粒子に対するシンチレーション光子数とその圧力に対する変化。○はキセノン、■はクリプトン、△はアルゴンに対する結果を示す。

4.3 電離電子・シンチレーション光子同時計数測定

図 4-7 に各圧力において電離電子・シンチレーション光子同時測定実験により求めた電場を印加しない場合のシンチレーション強度と、電荷を全て収集したときのシンチレーション強度の比を示す。放射線によって発生した電子を全て収集したときの発光量の減少率は圧力の上昇と共に大きくなっている。電離電子・シンチレーション光子同時測定実験だけではシンチレーション光子数は求められないが、電場を印加しない場合のシンチレーション強度を光電子数測定実験と発光スペクトル測定実験より求めたシンチレーション光子数で規格化する事によって、電場を印加した場合のシンチレーション光子数の変化を求めることが出来る。アルゴン、クリプトン及びキセノンにおける収集電子数とシンチレーション光子数を E/N (電場強度を電子密度数で割ったもので、場のエネルギーを示す)の関数としてプロットした結果をそれぞれ図 4-8、図 4-9、図 4-10 に示す。

図 4-11 は放射線によって発生した電子を完全に収集したときの電子数を圧力の関数としてプロットしたものである。本実験の圧力範囲においては、放射線によって発生する電子・イオン対の数に圧力に対する依存性は観測されなかった。Bolotnikov ら[52]は α 粒子に対する高圧キセノンにおける電離について研究をおこなっており、約 40 気圧までは放射線によって発生する電荷数はほぼ一定であることを示している。更に圧力が高くなると発生電荷量は大きくなることを示している。表 4-2 に本実験より得られた W 値を示す。

表 4-2 アルゴン、クリプトン及びキセノンの W 値

	W (eV)		
	Argon	Krypton	Xenon
2.02×10^6 Pa	26.4	24.0	21.1
1.01×10^6 Pa	26.7	24.0	21.0
[47]	26.4	24.1	21.9

全シンチレーション光子数と、放射線によって発生した電子を完全に収集した場合のシンチレーション光子数を、アルゴン、クリプトン及びキセノンにおいて圧力の関数としてプロットした結果を図 4-12、図 4-13、図 4-14 にそれぞれ示す。電荷を完全に収集した場合の発光は励起原子を起源とする発光のみであり、それは圧力にほとんど依存していない。従って、圧力の増加に伴うシンチレーション光子の増加はイオンと電子が再結合により発光する量が増加するためであるといえる。励起原子が全て発光に寄与したと仮定すると、励起原子を起源とする測定した光子数は励起原子数 N_{ex} そのものとなる。アルゴン、クリプトン及びキセノンにおいて、グリッド型電離箱を使用して測定した電子・イオン対数(N)と N_{ex} から、 N_{ex}/N を計算すると、それぞれ、0.507、0.556、0.594 となった。希ガスのアルゴン、クリプトン及びキセノンについて N_{ex}/N を実験的に求めたのは本研究が初めてで

ある。 N_{ex}/N の実験値についてはヘリウム[41]について報告がある程度で、この他液体アルゴン、液体キセノンについて計算値[51]、推定値[50]があるのみである。Platzman[40]はアルゴンにおいて N_{ex}/N を 0.4 と計算している。Kubota ら[41]は、アルゴンを混合させた場合のペニング効果よりヘリウムについての N_{ex}/N を実験的に求め、その値は 0.48 と報告している。液体アルゴン、クリプトン及びキセノンにおいては道家ら[51]は光吸収のデータから得られた振動子強度を用いて N_{ex}/N を、それぞれ 0.21、0.08、0.06 と計算し、Doke ら[50]はアルゴン、キセノンにおいてそれぞれ 0.29、0.20 という値を実験から推定している。

本実験より得たアルゴン、クリプトン及びキセノンに対する N_{ex}/N に対して、イオン・電子対が全て再結合し発光したとするときの $W_{\text{s},\text{min}}$ を(2-16)式より求めた。 $W_{\text{s},\text{min}}$ はアルゴン、クリプトン及びキセノンについてそれぞれ 17.5eV、15.5eV、13.7eV である。液体希ガスを高圧希ガスの極限状態と考え液体希ガスの W_{s} 値と比較する。Doke ら[50]は液体アルゴン、液体キセノンの消光過程がない場合の W_{s} 値をそれぞれ 19.5 ± 1.0 eV、 13.8 ± 0.9 eV と示している。アルゴン、キセノンそれぞれに対しての $W_{\text{s},\text{min}}$ と液体の消光過程がない場合の W_{s} 値は、ほぼ一致している。

アルゴン、クリプトン、キセノンについて、圧力を関数とした場合の再結合発光の光子数をプロットした結果を図 4-15 に示す。圧力の増加に伴う再結合発光量の増加は再結合する電子数が増加するためである。第 2 章の希ガスシンチレーションの発光機構で述べたように 1 対のイオン・電子が再結合し 1 光子が発生すると仮定すると、再結合発光の光子数からイオンと再結合した電子数が求まり、放射線によって発生する全電子数から再結合発光に関与しない電子数が求まる。ここでは、再結合に関与しない電子をエスケーピング電子と呼ぶ。エスケーピング電子数 $N_{\text{e},\text{esc}}$ と放射線によって発生した全電子数 N_{e} の比は以下の式より求められる。

$$N_{\text{e},\text{rec}} = N_{\text{p},\text{rec}} \quad (4-2)$$

$$N_{\text{e},\text{esc}} / N_{\text{e}} = (N_{\text{e}} - N_{\text{e},\text{rec}}) / N_{\text{e}} = (N_{\text{e}} - N_{\text{p},\text{rec}}) / N_{\text{e}} \quad (4-3)$$

ここで、 $N_{\text{p},\text{rec}}$ は再結合発光の光子数、 $N_{\text{e},\text{rec}}$ は再結合した電子数である。 $N_{\text{p},\text{rec}}$ と N_{e} は本実験において測定しているので $N_{\text{e},\text{esc}}/N_{\text{e}}$ が求まる。図 4-16 に得られた $N_{\text{e},\text{esc}}/N_{\text{e}}$ の圧力依存を示す。ある圧力において、アルゴン、クリプトン、キセノンの順番にエスケーピング電子の割合が多いのは電子が熱化する距離がこの順に長いため、クーロン力が及ぶ距離外において電子が熱化する確率が増すためである。Suzuki[18]は放射線によって原子から電離した電子が熱化したときの分布は 2 つのガウス分布を重ねたものであるとし熱化距離を求めている。2 つのガウス分布のうち中心部を "core" 周辺部を "penumbra" と呼んでいる。 1.01×10^5 Pa において電子が熱化したときのそれぞれの標準偏差はアルゴンで 2.8×10^{-3} cm、 4.8×10^{-2} cm、クリプトンで 1.1×10^{-3} cm、 1.1×10^{-2} cm、キセノンで 0.97×10^{-3} cm、 0.69×10^{-2} cm と報告している。

アルゴン、クリプトン及びキセノンのそれぞれの実験において、シンチレーション光子数を収集電子数の関数としてプロットしたものを図 4-17、図 4-18、図 4-19 に示す。キセノン 1.01×10^6 Pa において、電子を収集している領域に注目し、直線で近似すると傾きが -1

に近い直線が得られた。これは 1 電子・イオン対が 1 光子に相当することを示し、第 2 章で説明した発光機構の正しさを証明しているといえる。圧力が低い場合や収集電子数が小さいときには、このような直線にはならない。図 4-8、図 4-9、図 4-10 に示したように、圧力が低い場合、電子を完全に収集するためにはより大きな E/N が必要である。これは E_{kg} と E_{ec} の比 Z が小さいため拡散によってグリッドに電子が捕獲されてしまうためである。また、圧力が高くても E/N が小さい場合には拡散の影響が大きく、電子がグリッドに捕獲されてしまう。図 4-17、図 4-18、図 4-19において 1 の傾きの直線とならないのは以上のような理由から一部収集できない電子があるためと考えられる。

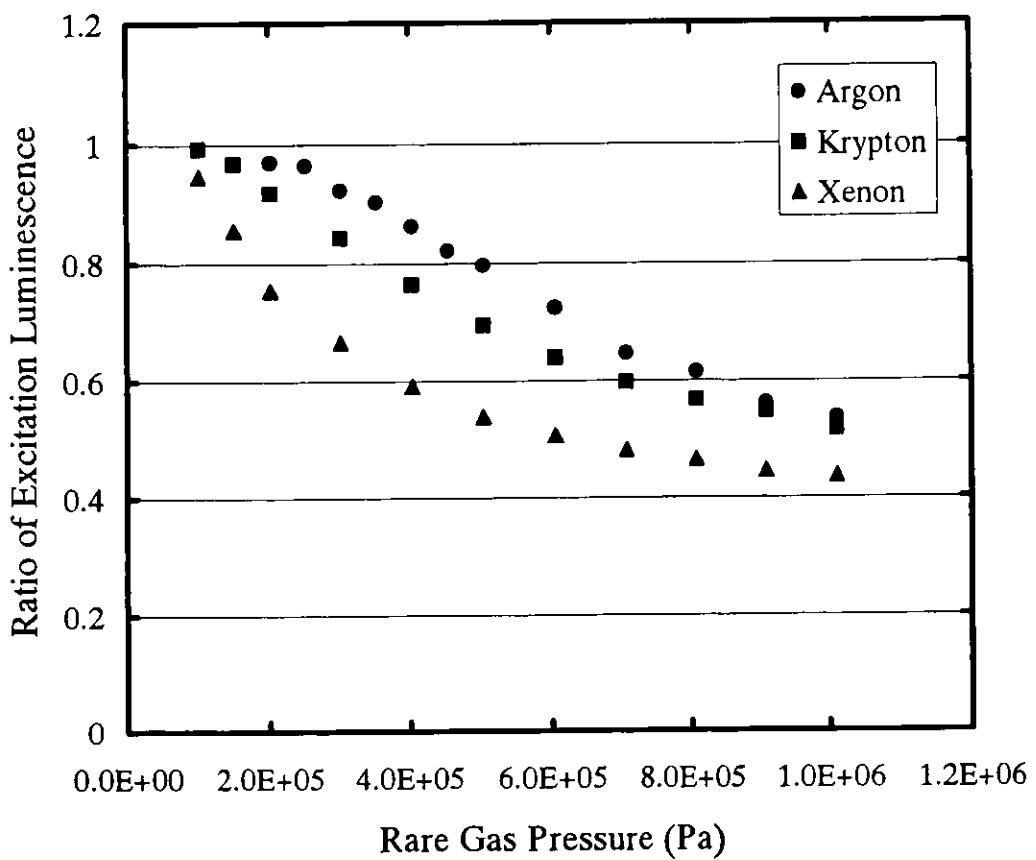


図 4-7 各圧力において、全発光量に対する電荷を全て収集した時の発光量の比

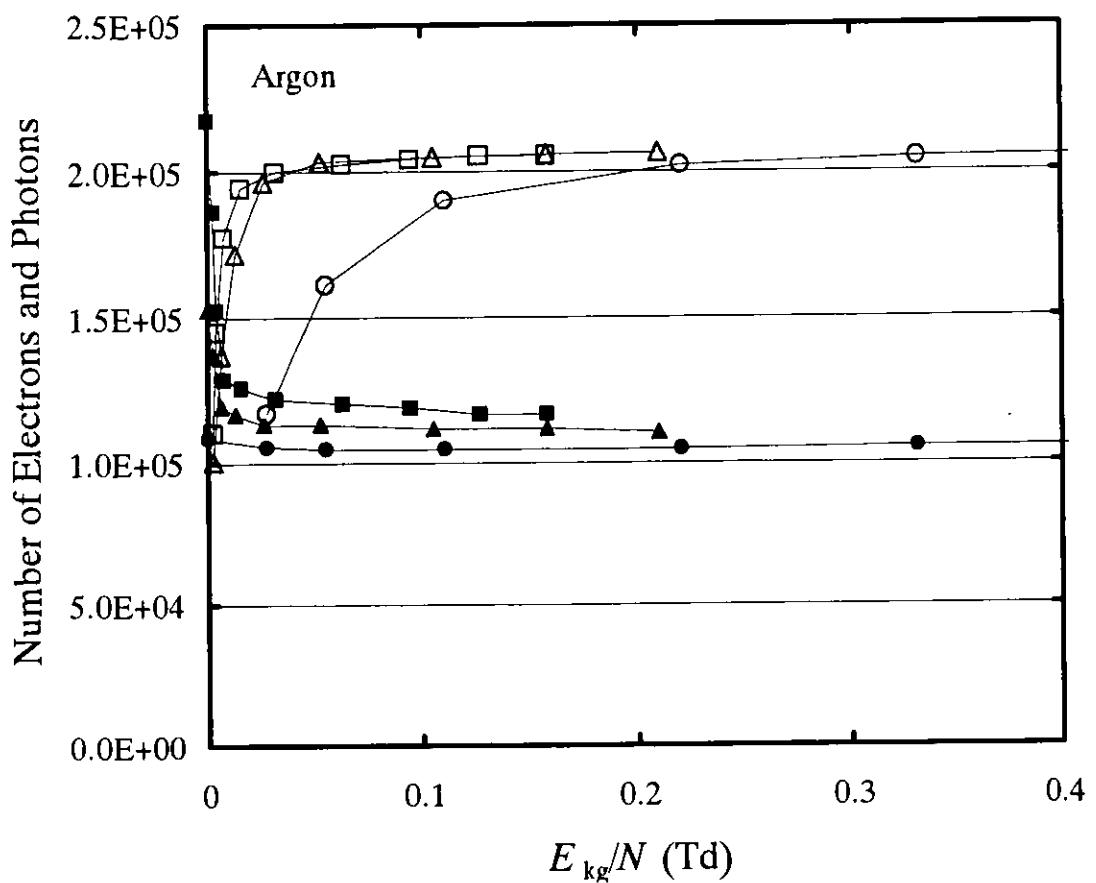


図 4-8 アルゴンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係。白抜きは収集電子数、黒塗りはシンチレーション光子数を表す。●、○は $2.03 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、▲、△は $6.08 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、■、□は $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ の圧力のアルゴンにおける測定結果を示す。

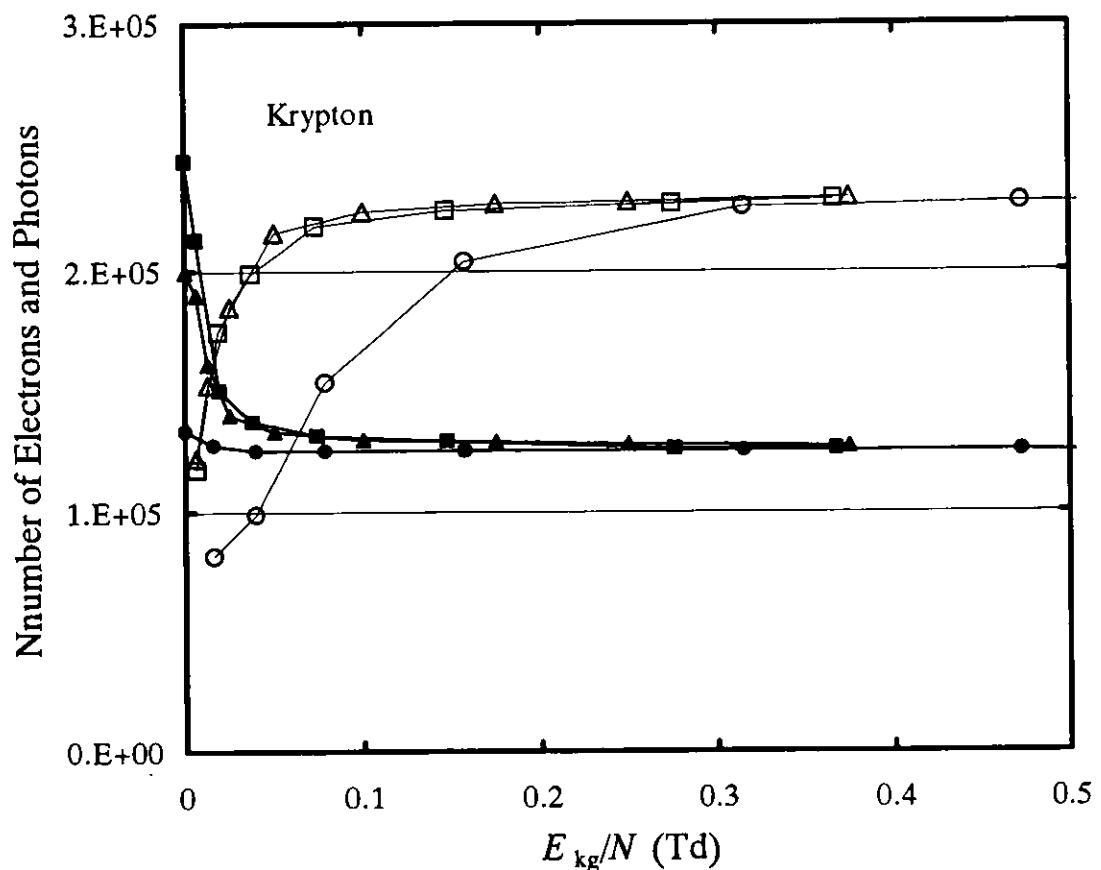


図 4-9 クリプトンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係。白抜きは収集電子数、黒塗りはシンチレーション光子数を表す。●、○は $2.03 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、▲、△は $6.08 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、■、□は $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ の圧力のクリプトンにおける測定結果を示す。

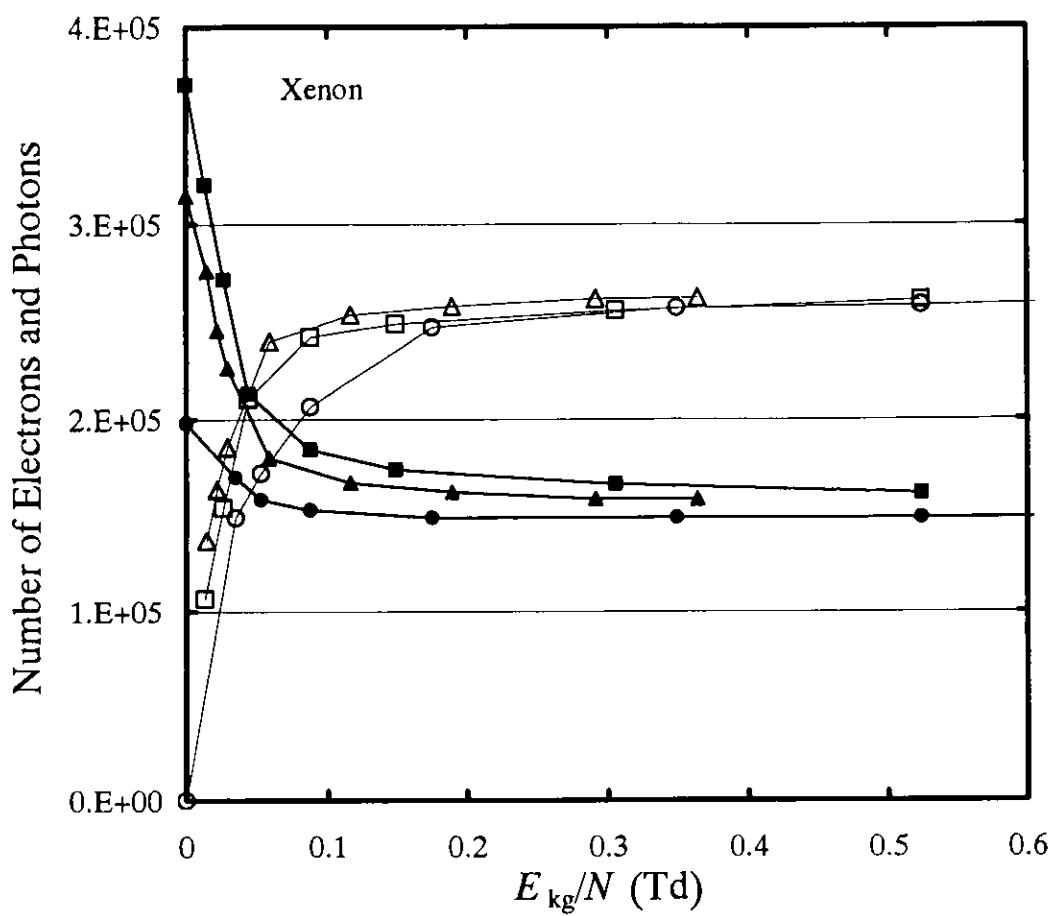


図 4-10 キセノンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係。白抜きは収集電子数、黒塗りはシンチレーション光子数を表す。●、○は $2.03 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、▲、△は $6.08 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、■、□は $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ の圧力のキセノンにおける測定結果を示す。

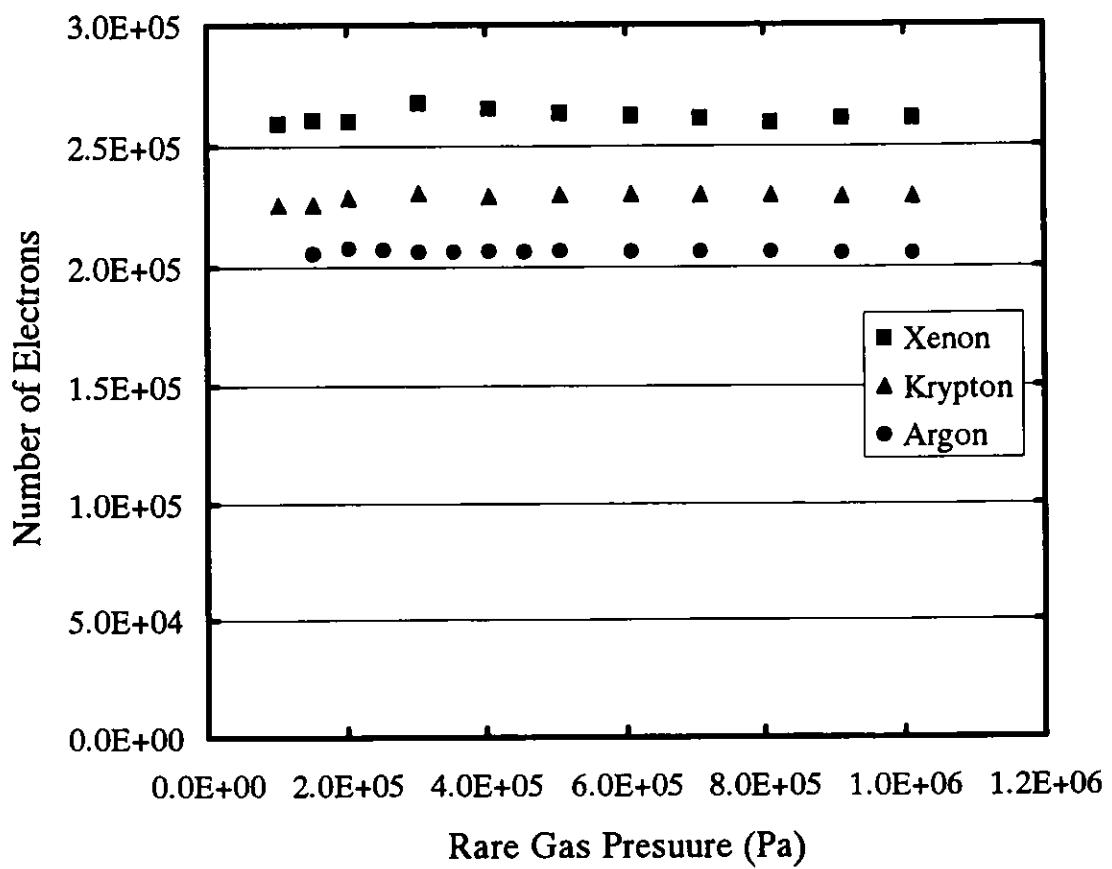


図 4-11 5.49MeV の α 粒子によって発生した電子数の圧力依存

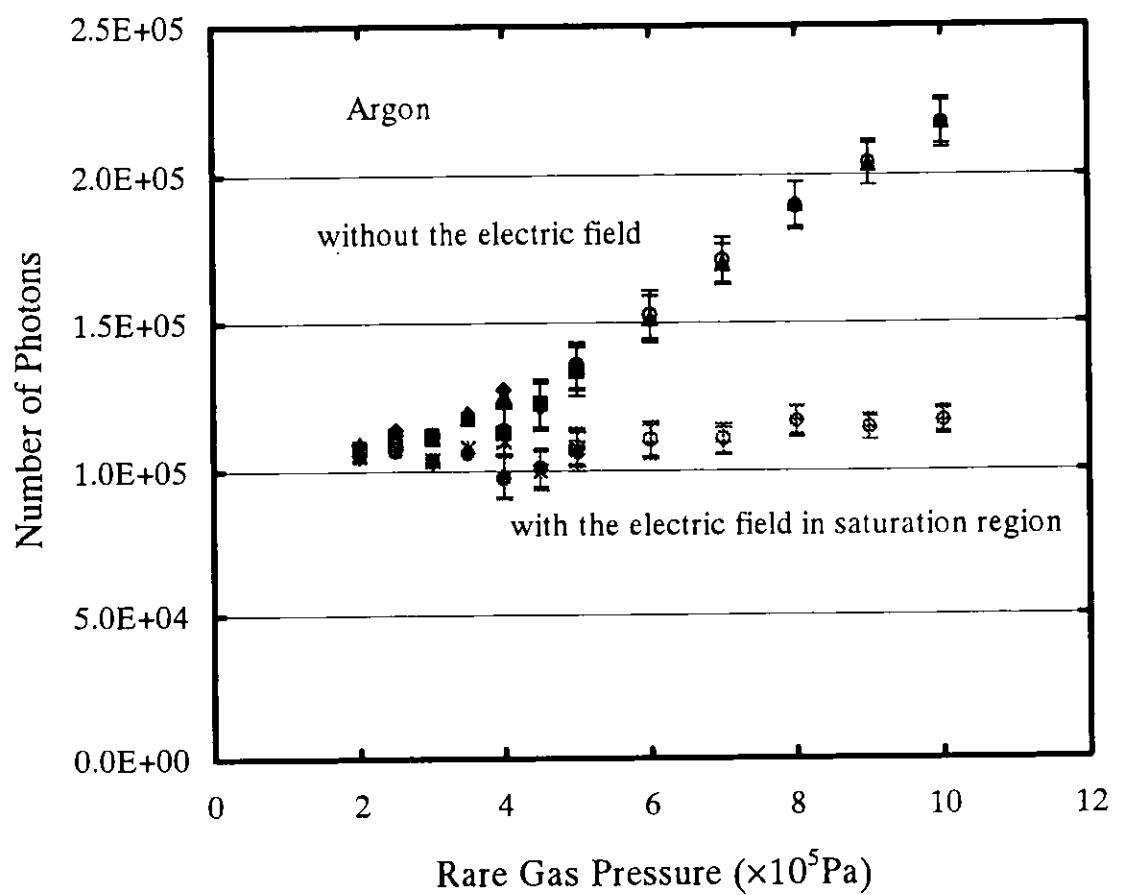


図 4-12 アルゴンにおける全シンチレーション光子数と電荷を完全に収集した時のシンチレーション光子数の圧力依存

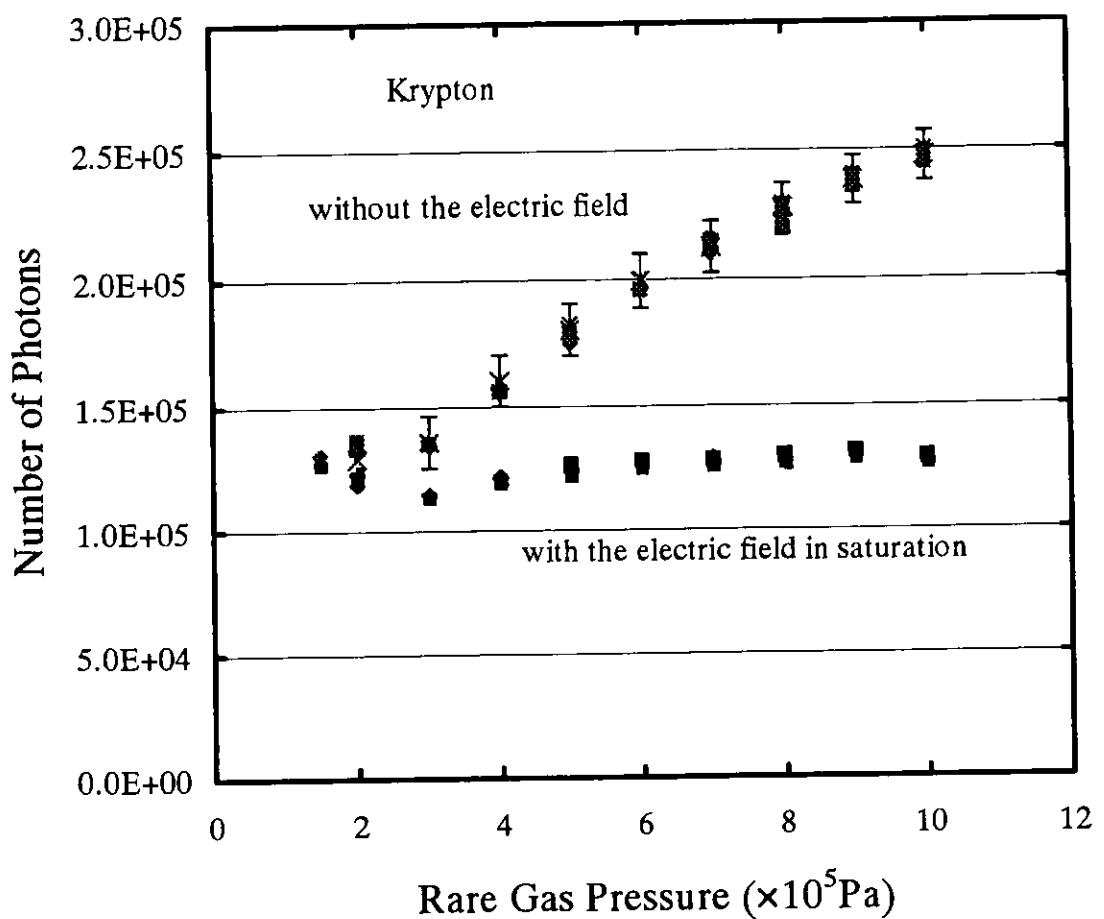


図 4-13 クリプトンにおける全シンチレーション光子数と電荷を完全に収集した時のシンチレーション光子数の圧力依存

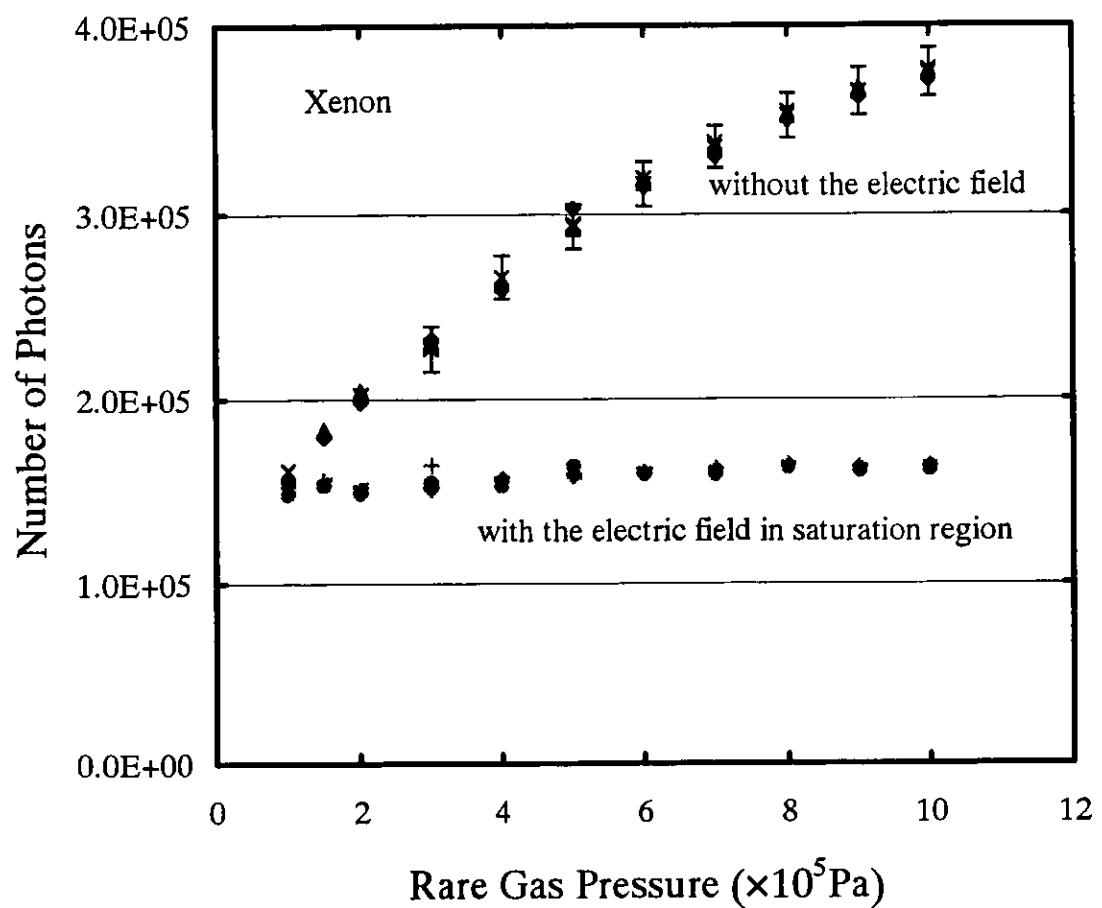


図 4-14 キセノンにおける全シンチレーション光子数と電荷を完全に収集した時のシンチレーション光子数の圧力依存

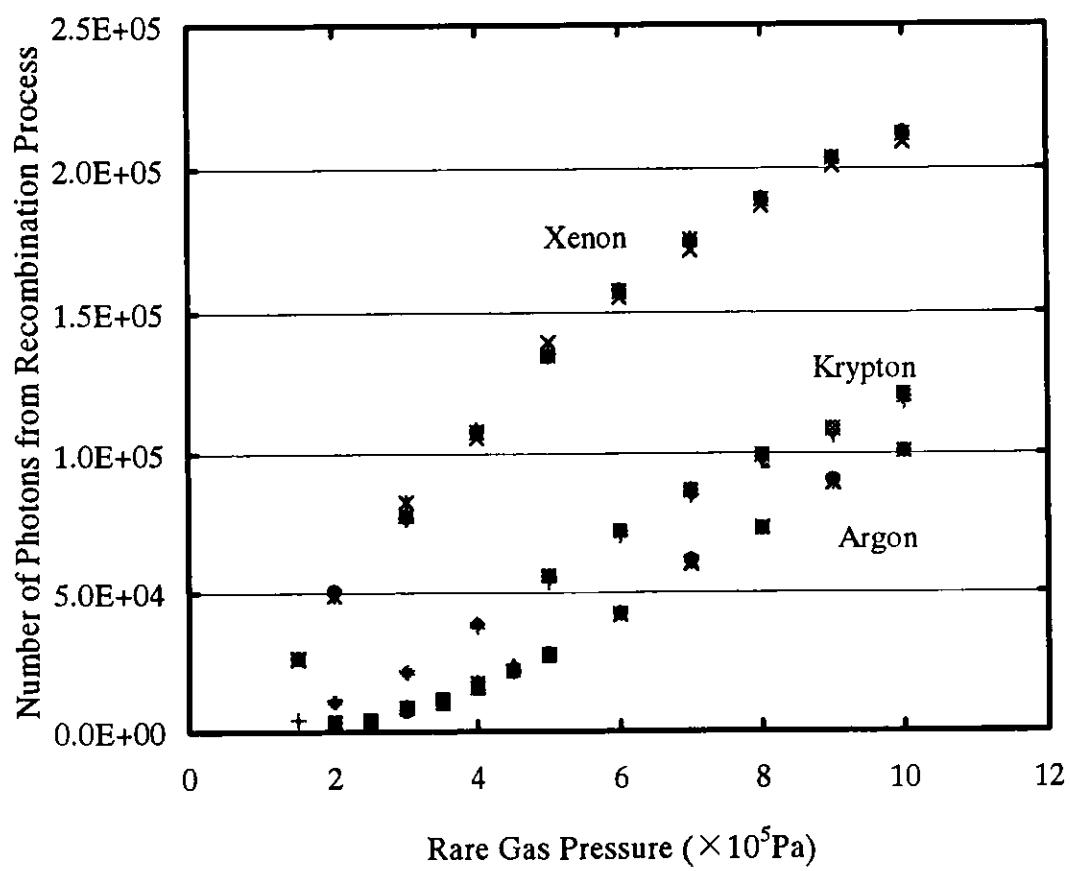


図 4-15 圧力変化に伴う再結合発光過程からのシンチレーション光子数

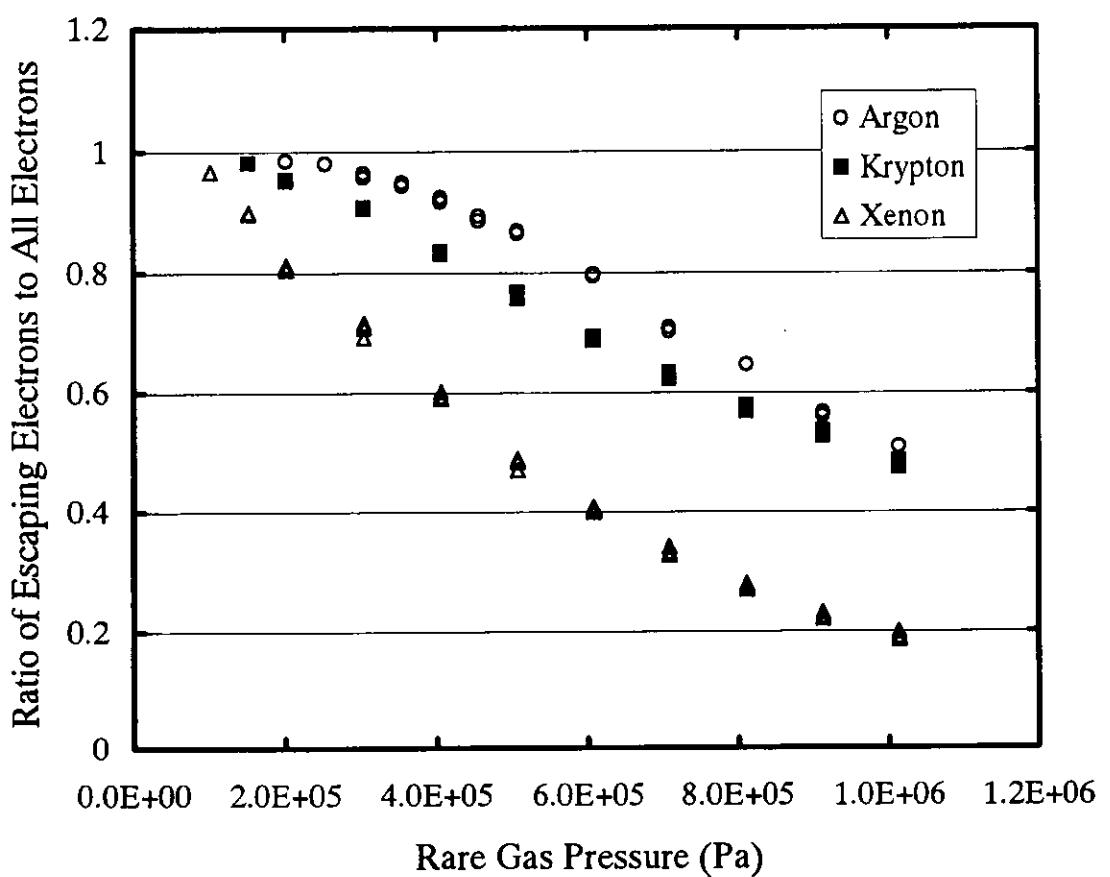


図 4-16 α 粒子による全発生電子数に対するシンチレーションに関わらない電子数の割合の圧力依存

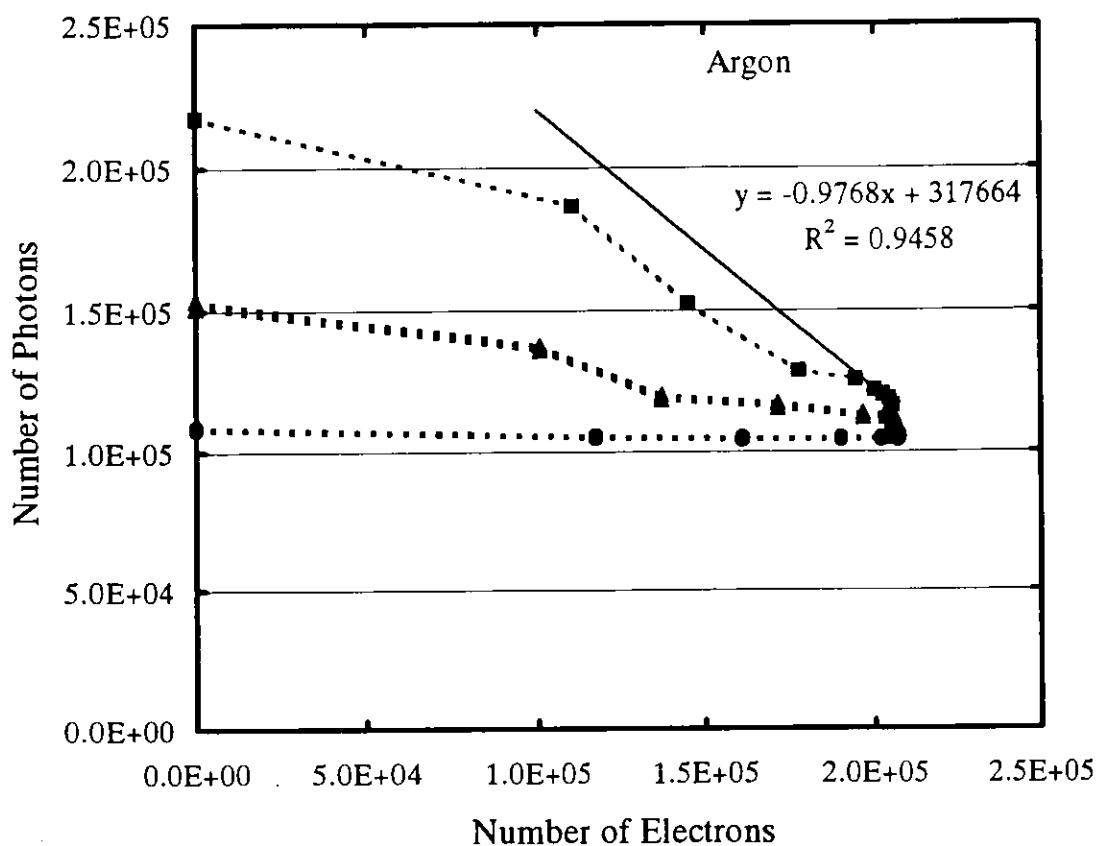


図 4-17 アルゴンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係。●は $2.03 \times 10^5 \text{Pa}$ 、▲は $6.08 \times 10^5 \text{Pa}$ 、■は $1.01 \times 10^6 \text{Pa}$ の圧力のアルゴンにおける測定結果を示す。

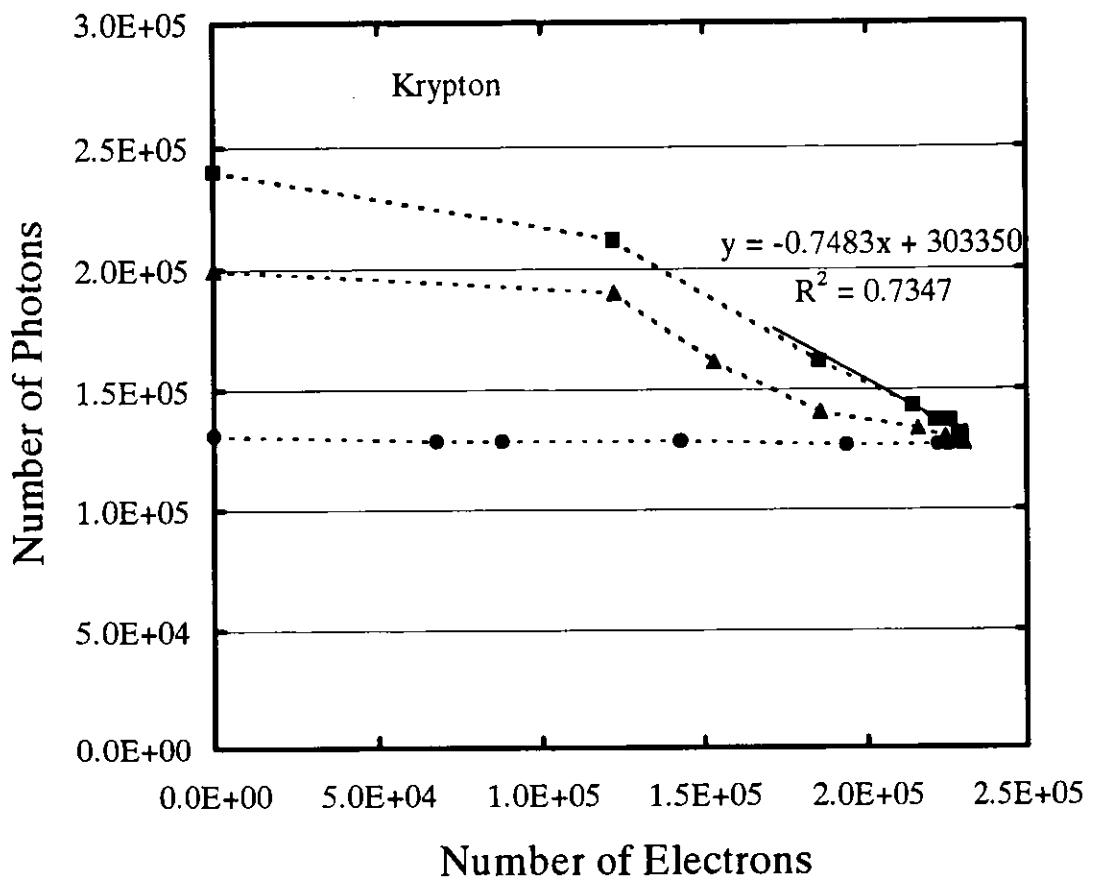


図 4-18 クリプトンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係。●は $1.52 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、▲は $6.08 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、■は $9.12 \times 10^5 \text{ Pa}$ の圧力のクリプトンにおける測定結果を示す。

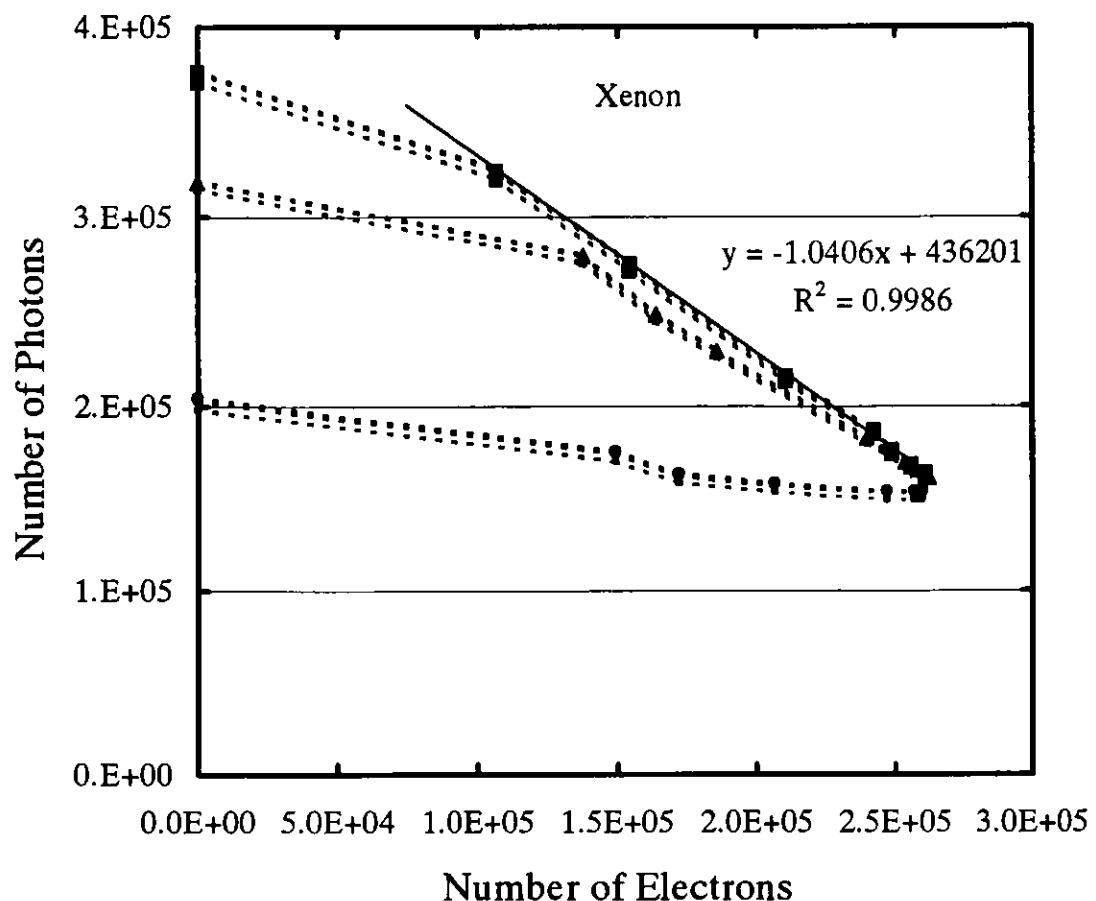


図 4-19 キセノンにおける収集電子数とシンチレーション光子数の関係。●は $2.03 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、▲は $6.08 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、■は $1.01 \times 10^6 \text{ Pa}$ の圧力のキセノンにおける測定結果を示す。

4.4 誤差評価

W_s 値の誤差については以下のように評価した。

$q(\lambda)$ はメーカーによって測定されている。真空紫外領域の波長については米国 NIST (National Institute of Standard Technology) によって校正された光電管を用いて、量子効率の値付けをしている。200nm 以上の波長では米国 NIST によって校正された Si 検出器が用いられている。真空紫外領域の波長に対する誤差は明らかにされていないが、200nm 以上の波長について Si 検出器を用いた場合は約 5% とされ、再現性は 2% とされている [53]。量子効率に関する誤差は W_s 値の誤差には含まれていない。

光電面と線源との距離 Z に関しては $\pm 0.2\text{mm}$ の再現性である。本実験では Z は 33mm から 70mm の範囲で行った。 F_{ce} の計算には α 粒子の飛程の要素も入っている。 α 粒子の飛程は希ガスの密度に依存する。使用した圧力計の精度については読みの 0.5% である。以上より、 F_{ce} に関する誤差は 1.2% と評価できる。

電子数によって校正されたチャージターミネータと水銀パルサーとの組み合わせから電荷を供給することによって MCA の波高値を電子数に変換している。供給する電子数の誤差は 0.5% [42] である。

W_s 値は(2-15)式より求めた。(2-15)式における N_p は図 3-14 に示すような光電子数を光子の収集効率の関数としてプロットした図における直線の傾きと Q_e から決定した。傾きを決定する際の誤差はアルゴン、クリプトン及びキセノンにおいて、それぞれ、2~3%、2~5%、1~3% である。

W_s 値の誤差は以上述べたような誤差を足したものとして表 4-1 に示した。

第5章 結論

以下、本研究で得られた研究結果について述べる。

希ガスシンチレーションの発光スペクトル

絶対蛍光効率を求めるために発光スペクトルは重要であるが、発光スペクトル測定の際に波長ごとの検出効率を明らかにし、正確な波長ごとの発光強度を測定した例はほとんどない。希ガスシンチレーションの発光は真空紫外領域にあり、この領域において反射率、透過率などの効率を標準化するのは困難だからである。本研究では、発光スペクトルを測定するための分光器を構成するミラーの反射率、グレーティングの効率、光電子増倍管の量子効率、希ガスを封入するチャンバーの MgF_2 結晶窓の透過効率を独立に求め、これらから光学系全体の効率を求め、実験によって直接測定したスペクトルを補正することにより正確な発光スペクトルを求めた。アルゴン、クリプトン及びキセノンのシンチレーションを測定した結果、発光は真空紫外領域の波長に单一のピークを持つスペクトルであることが分かった。紫外領域の波長(アルゴンでは 150-300nm、クリプトンでは 200nm-400nm、キセノンでは 200nm-400nm の波長範囲)に発光があると報告されていたが、その発光は真空紫外領域の波長の発光に比べて無視できるほど小さいことが分かった。

希ガスシンチレーションにおける発生光子数と絶対蛍光効率

絶対蛍光効率は分解能、出力の評価といった実用の面ばかりではなく、電離とは別の側面から放射線のエネルギー消失過程を理解する上でも重要であるが、その測定の困難さからほとんど測定されてこなかった。本研究では絶対蛍光効率を示す値として W_s 値を定義し、希ガスの圧力変化に伴うシンチレーション光子数を測定し、圧力変化に伴う W_s 値を求めた。光電面の量子効率が既知の光電管を用い、光子の収集効率を正確に決定するために、光電面を見込む立体角から収集効率が計算できるような実験装置を開発した。開発した実験装置を用いてアルゴン、クリプトン及びキセノンにおけるシンチレーション光子数を測定し、 W_s 値の圧力依存性について調べた。実験の結果、 W_s 値は圧力に依存し圧力の増加と共に小さくなることが分かった。また、ガスの蛍光効率は悪いとされてきたが、キセノンでは圧力を高くすることによって液体キセノン並の W_s 値となることが分かった。7.09×10⁵Pa のキセノンにおいて W_s 値は 16.5±0.5eV と求まり、報告されている液体キセノンの W_s 値 16.3±0.3eV と同程度の効率となった。

電離電子・シンチレーション光子同時測定

放射線によって発生した電子とシンチレーション光子を同時に測定できる実験装置を開発した。1.01×10⁵Pa から 1.01×10⁶Pa におけるアルゴン、クリプトン及びキセノンの 5.49MeVα 粒子によって発生する電子数を測定し、この圧力範囲ではそれぞれの希ガスにお

いて、発生電子数は圧力に依存しないことを明らかにした。希ガスシンチレーションには電離原子と電子が再結合を経て発光する過程と励起原子が起源となり発光する過程がある。アルゴン、クリプトン及びキセノンにおける励起原子を起源とするシンチレーション光子数を求めた。励起原子を起源とする発光は圧力に依存せず、ほぼ一定であることが分かった。放射線による励起原子が全て発光に寄与したとすると、励起原子を起源とする発光の光子数から励起原子数が推定できる。放射線の物質中でのエネルギー分配を表す Platzman のエネルギーバランスを示す式における N_{ex}/N をアルゴン、クリプトン及びキセノンの場合において実験的に求め、それぞれ 0.507、0.556、0.594 という値を得た。イオン・電子の再結合によって発生するシンチレーション光子数を求め、放射線によって発生する全電子数に対する再結合に関与しないエスケーピング電子数の比を圧力の関数として求めた。

参考文献

- [1] G.S. Hurst, T. E. Bortner and T. D. Strickler, *Phys. Rev.* 178 (1969) 4.
- [2] T. E. Stewart, G. S. Hurst, T. E. Bortner, J. E. Parks, F. W. Martin and H. L. Weidner, *J. Opt. Soc. Am.* 60 (1970) 1290.
- [3] N. Thonnard and G. S. Hurst, *Phys. Rev.* A5 (1972) 1110.
- [4] P. K. Leichner and R. J. Ericson, *Phys Rev.* A9 (1974) 251
- [5] H. A. Koehler, L. J. Ferder, D. L. Redhead and P. J. Ebert, *Phys. Rev.* A9 (1974) 768.
- [6] A. Birot, H. Brunet, J. Galy and P. Millet, *J. Chem. Phys.* 63 (1975) 1469.
- [7] P. Millet, A. Birot, H. Brunet, J. Galy, B. P. Germain and J. L. Teyssier, *J. Chem. Phys.* 69 (1978) 92.
- [8] Y. Salamero, A. Birot, H. Brunet, J. Galy, P. Millet and J. P. Montagne, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 12 (1979) 419.
- [9] M. J. Carvalho and G. Klein, *Nucl. Instr. and Meth.* 178 (1980) 469.
- [10] G. Klein and M. J. Carvalho, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 14 (1981) 1283.
- [11] P. Millet, A. Birot, H. Brunet, H. Dijols, J. Galy and Y. Salamero, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 15 (1982) 2935.
- [12] C. Cachoncinlle, J. M. Pouvesle, F. Davanloo, J. J. Coogan and C. B. Collins, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 23 (1990) 984
- [13] T. D. Strickler and E. T. Arakawa, *J. Chem. Phys.* 41 (1964) 1783.
- [14] D. M. Bartell, G. S. Hurst and E. B. Wagner, *Phys. Rev.* A7 (1973) 1068.
- [15] P. K. Leichner, *Phys. Rev.* A8 (1973) 815.
- [16] P. K. Leichner, K. F. Palmer, J. D. Cook and M. Thieneman, *Phys. Rev.* A13 (1976) 1787.
- [17] S. Kubota, T. Takahashi and T. Doke, *Phys. Rev.* 165 (1968) 225.
- [18] M. Suzuki, *Nucl. Instr. and Meth.* 215 (1983) 345.
- [19] A. Bolotnikov, B. Ramsey, *Nucl. Instr. and Meth.* A428 (1999) 391.
- [20] O. Cheshnovsky, B. Raz and J. Jortner, *J. Chem. Phys.* 59 (1973) 3301.
- [21] W. Tornow, H. Huck, H. J. Kober and G. Mertens, *Nucl. Instr. and Meth.* 133 (1976) 435.
- [22] R. Brodmann and G. Zimmerer, *Chem. Phys. Lett.* 56 (1978) 434.
- [23] H. Brunet, A. Birot, H. Dijiols, J. Galy, P. Millet and Y Salamero, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 15 (1982) 2945.
- [24] T. Takahashi, S. Himi, M. Suzuki, J. Ruan(Gen) and S. Kubota, *Nucl. Instr. and Meth.* 205 (1983) 691.
- [25] J. Galy, H. Brunet, C. Dominique, P Roger and J. L. Teyssier, *J. Phys. B: At. Mol.*

Opt. Phys. 25 (1992) 5141.

- [26] F. L. Hereford and F. Moss, *Phys. Rev.* 141 (1966) 204.
- [27] F. J. Agee, R. J. Manning, J. S. Vinson and F. L. Hereford, *Phys. Rev.* 153 (1967) 255.
- [28] S. Kubota, M. Hishida, M. Suzuki and J. Ruan(Gen), *Phys. Rev.* B20 (1979) 3486.
- [29] M. A. F. Alves and A. J. P. L. Policarpo, *Nucl. Instr. and Meth.* 57 (1967) 321.
- [30] F. Favata, A. Smith, M. Bavdaz and T. Z. Kowalski, *Nucl. Instr. and Meth.* A294 (1990) 595.
- [31] M. Miyajima, S. Sasaki and E. Shibamura, *Nucl. Instr. and Meth.* B63 (1992) 297.
- [32] T. E. Stewart, G. S. Hurst, D. M. Bartell and J. E. Parks, *Phys. Rev.* A3 (1971) 1991.
- [33] M. Suzuki, J. Ruan(Gen) and S. Kubota, *Nucl. Instr. and Meth.* 192 (1982) 565.
- [34] T. Takahashi, *J. Phys. Soc. Japan* 24 (1968) 561.
- [35] B. A. Dolgoshein, V. N. Lebedenko, A. M. Rogozhin, B. U. Rodionov and E. N. Shuvalova, *Sov. Phys. JETP* 29 (1969) 619.
- [36] P. K. Leicher, J. D. Cook and S. J. Luerman, *Phys. Rev.* A12 (1975) 2501.
- [37] T. Oka, K. V. S. R. Rao, J. L. Redpath and R. F. Firestone, *J. Chem. Phys.* 61 (1974) 4740
- [38] J. A. Northrop and J. C. Gursky, *Nucl. Instr. and Meth.* 3 (1958) 207.
- [39] S. Kobayashi, H. Itoh and S. Yasumi, *Nucl. Instr. and Meth.* 81 (1971) 72.
- [40] R. L. Platzman, *Int. J. Appl. Radiation and isotopes* 10 (1961) 116.
- [41] S. Kubota, *J. Phys. Soc. Japan* 29 (1970) 1017
- [42] M. Miyajima, S. Sasaki and E. Shibamura, *Nucl. Instr. and Meth.* 224 (1984) 331.
- [43] SORB-AC カートリッジ・ポンプ、エス・ゲッター・ジャパン(株)。
- [44] A. H. Jaffey, *Rev. Sci. Instr.* 25 (1954) 349.
- [45] O. Bunemann, T. E. Cranshaw and J. A. Harvey, *Can. J. Research* A27 (1949) 191.
- [46] 早野龍五、高橋忠幸、「計算物理」、共立出版株式会社、1995。
- [47] ICRU Report 31
- [48] L. G. Christophorou, *Atomic and molecular radiation physics* (Wiley, New York, 1971).
- [49] P. Lindblom and O. Solin, *Nucl. Instr. and Meth.* A268 (1988) 204.
- [50] T. Doke, A. Hitachi, J. Kikuchi, K. Masuda, H. Okada and E. Shibamura, to be published
- [51] 道家忠義、窪田信三、宮島光弘、高橋旦、「応用物理」、第 46 号、958、応用物理学会。
- [52] A. Bolotnikov and B. Ramsey, *Nucl. Instr. and Meth.* A396 (1997) 360.
- [53] Hamamatsu Photonics, Private communication, 23 February 2001.

研究業績リスト

学術雑誌

1. Absolute Number of Scintillation Photons Emitted by Alpha-particles in Rare Gases,
Kiwamu Saito, Hiroko Tawara*, Toshiya Sanami*, Eido Shibamura** and Shinichi
Sasaki*,
Department of Accelerator Science, The Graduate University for Advanced Studies,
*High Energy Accelerator Research Organization,
**College of Health Science, Saitama Prefectural University,
To be published in: *IEEE Trans. Nucl. Sci.*

プロシードィング

1. A Measurements of Number of Scintillation Photons in Rare Gases,
Kiwamu Saito, Shinichi Sasaki*, Hiroko Tawara* and Eido Shibamura**,
Department of Accelerator Science, The Graduate University for Advanced Studies,
*High Energy Accelerator Research Organization,
**College of Health Science, Saitama Prefectural University,
KEK Proceedings 2000-14 RADIATION DETECTORS AND THEIR USES, p.191
(2000).
2. Measurements of a Number of Scintillation Photons in Gases Xenon,
Kiwamu Saito, Shinichi Sasaki*, Hiroko Tawara* and Eido Shibamura**,
Department of Accelerator Science, The Graduate University for Advanced Studies,
*High Energy Accelerator Research Organization,
**College of Health Science, Saitama Prefectural University,
KEK Proceedings 2001-20 RADIATION DETECTORS AND THEIR USES, p.52
(2001).

学会・研究会における口頭発表・ポスター発表

1. 高圧 Xenon におけるシンチレーション光
斎藤究、佐々木慎一*、俵裕子*、柴村英道**
総研大、高エネ研*、埼玉県立大短大**
第 61 回応用物理学会学術講演会、北海道工業大学、2000/09/06
2. 気体 Xe におけるシンチレーション光子数の測定

齋藤究、佐々木慎一*、俵裕子*、柴村英道**

総研大、高エネ研*、埼玉県立大短大**

研究会“放射線検出器とその応用”(第 15 回)、高エネルギー加速器研究機構、2001/02/01

3. 高圧気体 Xenon におけるシンチレーション光子数測定

齋藤究、佐々木慎一*、俵裕子*、柴村英道**

総研大、高エネ研*、埼玉県立大短大**

第 48 回応用物理学関係連合講演会、明治大学、2001/03/30

4. 高圧 Xenon におけるシンチレーション光子数測定(2)

齋藤究、佐波俊哉*、俵裕子*、佐々木慎一*、柴村英道**

総研大、高エネ研*、埼玉県立大短大**

第 62 回応用物理学会学術講演会、愛知工業大学、2001/09/12

5. 希ガスの絶対蛍光効率測定の試み

齋藤究、佐々木慎一*、俵裕子*、柴村英道**

総研大、高エネ研*、埼玉県立大短大**

研究会“放射線検出器とその応用”(第 14 回)、高エネルギー加速器研究機構、2000/02/02

6. Absolute Number of Scintillation Photons Emitted by Alpha-Particles in Rare Gases,

Kiwamu Saito, Shinichi Sasaki*, Hiroko Tawara* and Eido Shibamura**,

Department of Accelerator Science, The Graduate University for Advanced Studies,

*High Energy Accelerator Research Organization,

**College of Health Science, Saitama Prefectural University,

2001 IEEE Nuclear Science Symposium, San Diego, 2001/11/07

謝辞

本研究において実験の立案段階から論文作成に至るまで、全般に渡って御指導と御鞭撻を頂きました高エネルギー加速器研究機構放射線科学センターの佐々木慎一助教授に深く感謝いたします。また、高エネルギー加速器研究機構共通施設長の近藤健次郎教授、並びに放射線科学センター長の柴田徳思教授、放射線科学センターの鈴木健訓教授には、研究が前進するように御意見、御指導を頂きました。深く感謝いたします。

埼玉県立大学の柴村英道教授、高エネルギー加速器研究機構放射線科学センターの俵裕子助手、佐波俊哉助手には実験に関し、また、その結果をまとめるにあたり貴重な御意見と御指導を頂きました。深く感謝いたします。

本論文をまとめるにあたり、貴重な御助言と御指導を頂きました高エネルギー加速研究機構計算機科学センター長の渡瀬芳行教授、並びに素粒子原子核研究所の石原信弘教授に深く感謝いたします。

高エネルギー加速研究機構放射線科学センターの諸先生方には、研究を進めていく上で多くの御助言と御協力を頂きました。別所光太郎助手には反射率測定に関して御協力を頂きました。穂積憲一技官、飯島和彦技官には発光スペクトル測定実験に際し、装置の設置とX線発生装置の運転に御協力頂きました。また、放射線科学センターの皆様からは日々激励の御言葉を頂き研究に打ち込むことができました。心から深く感謝いたします。

東京ニュークリアサービス株式会社の皆様には実験室の整備や実験装置の設置に御協力を頂きました。日本放射線エンジニアリング株式会社の皆様には実験装置の設置やX線発生装置の運転に御協力を頂きました。深く感謝致します。

総合研究大学院大学卒業生の濱田栄作氏(現 環境科学技術研究所)には研究を進めていく上で多くの御助言と励ましを頂きました。心から感謝いたします。

多くの方々の御指導と御協力が無ければ本論文はまとまらなかつたと思います。改めて感謝の辞を述べたいと思います。ありがとうございました。

齊藤 究