

# LaBr<sub>3</sub>(Ce)検出器を用いた低エネルギー励起準位の寿命測定

Life time measurement of low-energy levels using LaBr<sub>3</sub>(Ce) detector

名大院工<sup>1</sup>、名大工<sup>2</sup>、名大 RI センター<sup>3</sup>

鎌田裕生<sup>1</sup>、大野臣悟<sup>2</sup>、小島康明<sup>3</sup>、柴田理尋<sup>3</sup>

H. Kamada<sup>1</sup>, S. Ohno<sup>2</sup>, Y. Kojima<sup>3</sup>, and M. Shibata<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Engineering, Nagoya University

<sup>2</sup>School of Engineering, Nagoya University

<sup>3</sup>Radioisotope Research Center, Nagoya University

## 1. はじめに

$\beta$ - $\gamma$ (X)及び $\gamma$ - $\gamma$ (X)遅延同時計数法により励起準位の寿命を測定するには対象とする励起準位に出入りする放射線を計測し、検出器間の応答の時間差を求める。測定対象が数百 keV の $\gamma$ 線の場合、検出効率が高い、エネルギー分解能(662 keV で~3%)が良い、シンチレーション光の減衰時間(16 ns[1])が短いといった長所を持つ LaBr<sub>3</sub> 検出器が多用されている[2-4]が、100 keV 以下の低エネルギー領域において LaBr<sub>3</sub> 検出器は使われておらず、この領域での時間特性も明らかになっていない。時間特性のエネルギー依存性を明らかにするには、励起準位に寿命がなく、いくつかのエネルギーの $\gamma$ 線を放出する核種を測定する必要がある。しかし、低エネルギー $\gamma$ 線を放出する核種は、励起準位に寿命を持っていることが多いため、即時曲線を得るのには使えない。これが、低エネルギーにおいて LaBr<sub>3</sub> 検出器の時間特性が明らかになっていない原因のひとつである。

低エネルギー領域における即時曲線を得る方法として、高エネルギー $\gamma$ 線のコンプトン連続部分を用いる方法があるが、Régis ら[5]は検出器の周りに遮蔽体などの構造物が多い場合、コンプトン連続部分で得られた即時曲線の重心位置は、全吸収ピークで得られた即時曲線の重心位置に比べ遅れると報告している。この理由として、低エネルギーにおけるコンプトン連続部には検出器に直接入射する $\gamma$ 線のほかに周りの構造物からの散乱線の成分があり、それらが直接検出器に入射する $\gamma$ 線よりも遅れて検出器に入射することを挙げている。

以上のことから検出器周りに構造物がない、すなわち散乱線がない条件下では Régis らの報告した遅れは見られないことが予想される。本研究では、低エネルギー領域において全吸収ピークを得るために <sup>134</sup>Cs 及びコンバータ法[6]を用い、散乱線が少ない条件下における LaBr<sub>3</sub> 検出器の低エネルギー領域での時間特性、すなわち時間分解能(半値幅)と即時曲線の重心位置を明らかにすることを目的とした。また、<sup>125</sup>Te の 35 keV の励起準位の寿命を <sup>125</sup>I の EC 崩壊を利用して測定した。

## 2. 実験

### 2.1. 実験体系

LaBr<sub>3</sub> 検出器(直径 3.8 cm×高さ 3.8 cm, Canberra 社製)と $\gamma$ 線検出用のプラスチックシンチレータ(NE-102A,直径 5.1 cm×高さ 5.1 cm)を用い、 $\gamma$ (X)- $\gamma$ 遅延同時計数法にて測定を行った。LaBr<sub>3</sub> 結晶は 0.7 mm 厚のテフロンリフレクタと 0.5 mm 厚のアルミ製ハウジング内に収められており、光電子増倍管(PMT)は浜松ホトニクス R6231 である。プラスチックシンチレータは 0.1 mm 厚テフロンリフレクタ、0.2 mm 厚ビニルテープ、0.02 mm 厚アルミ箔で遮光し、PMT は浜松ホトニクス

H2431-51 を用いた。

LaBr<sub>3</sub> 検出器とプラスチックシンチレータは実験台上に 2.5 cm 離して向かい合わせに置き、散乱線をへらすため、遮蔽しない条件で測定をおこなった。

それぞれの検出器からの信号は CFD(Constant Fraction Discriminator, Canberra 2126)を通し、TAC(Time to Amplitude Converter, ORTEC 567)に入力し、TAC の出力と両検出器のエネルギー信号を VME ベースのデータ収集系に入力し、オフラインでソーティングすることで時間分布曲線を得た。それぞれの CFD には、LaBr<sub>3</sub> 側に 3 m の、プラスチック側に 30 cm の遅延線を用い、ワークを適切に調整した。

## 2.2. 時間特性実験

遮蔽が無く、散乱線が少ない条件下において、低エネルギー領域で即時曲線を得て、全吸収ピークとコンプトン連続部分で得られる即時曲線の違いの有無を確認するため、実験 1~3 を行った。また、周りの構造物からの散乱線の影響を確認するため実験 4 を行った。

実験 1 : LaBr<sub>3</sub> 検出器とプラスチックシンチレータの間に <sup>134</sup>Cs 線源を置いて測定した。

実験 2 : 実験 1 の幾何学条件下で、線源と LaBr<sub>3</sub> 検出器間に 5 mm 厚の銅板を置いて測定した。

実験 3 : 実験 1 の幾何学条件下で、線源と LaBr<sub>3</sub> 検出器間に 1 mm 厚の鉛板とタングステン板を置いて測定した。

実験 4 : 実験 1 の幾何学条件下で、検出器の周りを 10 cm 厚のポリエチレンブロックで囲んで測定した。

<sup>134</sup>Cs からは内部転換に伴う Ba の特性 X 線が放出されるが、この X 線の吸収を減らすため、<sup>134</sup>Cs 線源は 12 μm 厚のマイラー膜に放射性溶液を滴下・乾燥させたのち、マイラー膜で密封した。<sup>134</sup>Cs の娘核 <sup>134</sup>Ba の励起準位の半減期は最大 78 ps[7]であり、予想される時間分解能(~1 ns)と比較し十分短いため、即時曲線を得るのに影響はないと判断した。

## 2.3. <sup>125</sup>Te の 35 keV 励起準位の寿命測定実験

<sup>125</sup>I の EC 崩壊娘核である <sup>125</sup>Te の 35 keV の励起準位の半減期を測定するため実験 5 を行った。

実験 5 : LaBr<sub>3</sub> 検出器とプラスチックシンチレータの間に <sup>125</sup>I 線源(~9 kBq)を置いて測定した。

ここで、<sup>125</sup>I 線源はガラス濾紙に放射性溶液を滴下・乾燥させたのち、1.3 mm 厚のプラスチック製試験管中に密封した。

## 3. 結果と考察

### 3.1. 時間特性

3.2 節において <sup>125</sup>Te の 35 keV 励起準位の半減期を求める際に、プラスチックシンチレータ側で Te の KX 線(~30 keV)を測定し、ゲートを 30 keV 以下の領域に設定する。したがって、本研究ではプラスチックシンチレータ側のゲートを 30 keV 以下に設定した際の測定系の時間特性について述べる。

実験 1~3 について、プラスチックシンチレータの 30 keV 以下と同時計数した LaBr<sub>3</sub> 検出器のエネルギースペクトルを Fig.1 に示す。実験 1 で得られたエネルギースペクトルには <sup>134</sup>Ba の内部転換に伴う特性 X 線 32 keV の全吸収ピークがスペクトル中に見られたが、実験 2 においては、それが銅板中で吸収されてしまうため、32 keV 近傍はコンプトン連続部分があるのみであることがわかった。また、実験 3 では <sup>134</sup>Cs の崩壊に伴うγ線が、鉛板ないしタングステン板中で光電吸収を起こすことにより、鉛ないしタングステンの特性 X 線が発生するため、得られたエネルギースペクトル中に、58 keV (W K<sub>α</sub> X 線), 73 keV (W K<sub>β</sub> X 線と Pb K<sub>α</sub> X 線のダブルレット), 85 keV (Pb K<sub>β</sub>

X線)の全吸収ピークが観察された(X線コンバータ法)。

以上のことから、32 keV に関して、全吸収ピークを用いて得られた即時曲線と、コンプトン連続部分を用いて得られた即時曲線が一致するか確認するために、実験 1 と実験 2 で得られた即時曲線を比較し、58,73,85 keV に関しては実験 1 と実験 3 で得られた即時曲線を比較した。

全吸収ピークで即時曲線を得る際は、ピークに重なっているコンプトン連続部分の影響を差し引くため、ピークにゲートを設定して得られた即時曲線から、ピーク近傍のコンプトン連続部分に対し同じ幅でゲートを設定して得られた即時曲線を差し引いた。得られた結果の例として 58 keV 近傍における即時曲線を Fig.2 に示すが、全吸収ピークを用いて得られた即時曲線とコンプトン連続部分を用いて得られた即時曲線に違いがないことがわかる。58 keV 以外のエネルギーについても、全吸収ピークとコンプトン連続部分を用いて得られた即時曲線の時間分解能及び重心位置を比較した。

時間分解能について Fig.3(a)に示すように 100 keV 以下の低エネルギー領域において 1.3~1.7 ns 程度であることがわかり、また全吸収ピークとコンプトン連続部分で 60 ps の不確かさの範囲で一致していることがわかった。重心位置について Fig.3(b)から、100 keV 以下の低エネルギー領域において全吸収ピークとコンプトン連続部分で 60 ps の不確かさの範囲で一致していることがわかった。

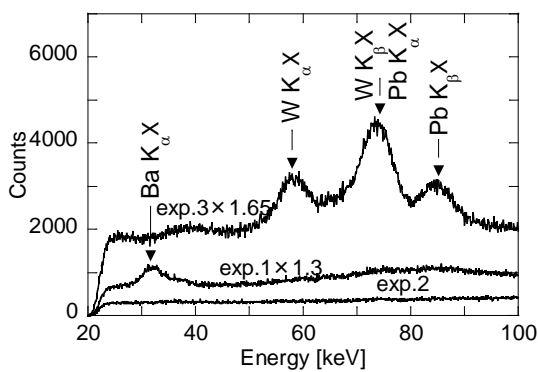


Fig.1 Energy spectra obtained in experiment 1-3.

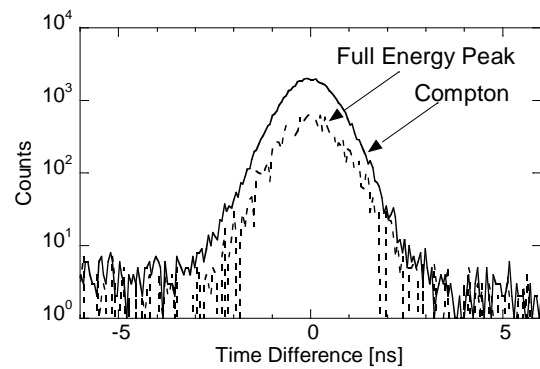


Fig.2 Prompt curves obtained by gating near 58 keV in the LaBr<sub>3</sub> detector.

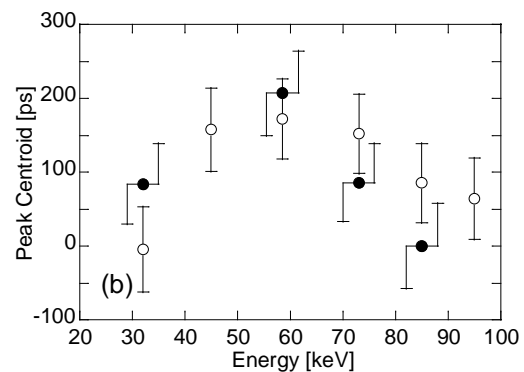
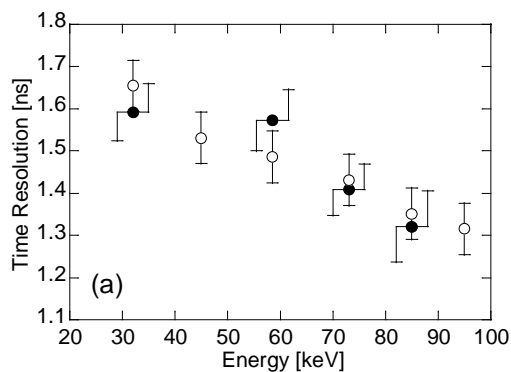


Fig.3 Energy dependence of the time resolutions (a) and peak centroids (b) of the prompt curves. In each figure, the closed and open circles show the values obtained by setting gate on the full energy peak and Compton continuum, respectively.

TAC の動作の温度依存性により、得られた時間特性に時間変化が観察された。測定中の温度変

化は TAC 回路近傍で、 $\pm 1$  °C であり、これにより、時間分布曲線に  $\pm 60$  ps のドリフトが発生する[7]。この影響は、不確かさとして Fig.3(a)、(b)中の即時曲線の重心位置及び時間分解能中にも反映されており、不確かさの支配的な要因になっている。

全吸収ピークでもコンプトン連続部分でも即時曲線の形状に違いがないという結果は Régis らの報告[5]と異なっている。この理由は、Régis らが実験を行った検出器周りに構造物が多い条件下と異なり、本研究のような構造物が少ない条件下では、低エネルギー部分のコンプトン連続部分に散乱線成分が少なく、直接検出器に入射する成分が支配的であるからだと説明できる。この説明の妥当性を確認するため、散乱線の多い実験 1 と少ない実験 4 について実験結果を比較した。

Fig.4(a)に実験 1 と実験 4 それぞれにおいて、プラスチックシンチレータ側で 30 keV 以下にゲートを設定し、LaBr<sub>3</sub> 検出器側で全エネルギー領域にゲートを設定して得られた時間分布曲線を示す。散乱線の多い場合は少ない場合と比べ、時間分布曲線中の遅れた成分(0.5~4.0 ns あたり)にイベントが多いことが確認できる。Fig.4(b)に時間分布曲線中の遅れた成分にゲートを設定して得られた LaBr<sub>3</sub> 検出器のエネルギースペクトルを示す。ブロックがある場合はない場合に比べ、200 keV 以下の領域にイベントが多いことが確認でき、これらは散乱線成分であると考えられる。

すなわち、遮蔽体などの構造物が多いと、低エネルギーのコンプトン連続部分に散乱線成分が増え、それが時間分布曲線中の遅れた成分の増加につながることを示された。実際に、実験 1 と実験 4 について、即時曲線の重心位置のエネルギー依存性の違いを求めたところ、100 keV 以下の低エネルギー領域において、散乱線の影響が大きくなるため、ブロックありの条件下で得られた即時曲線は無しの条件下で得られた即時曲線に比べ最大 150 ps 遅れていることが確認できた。

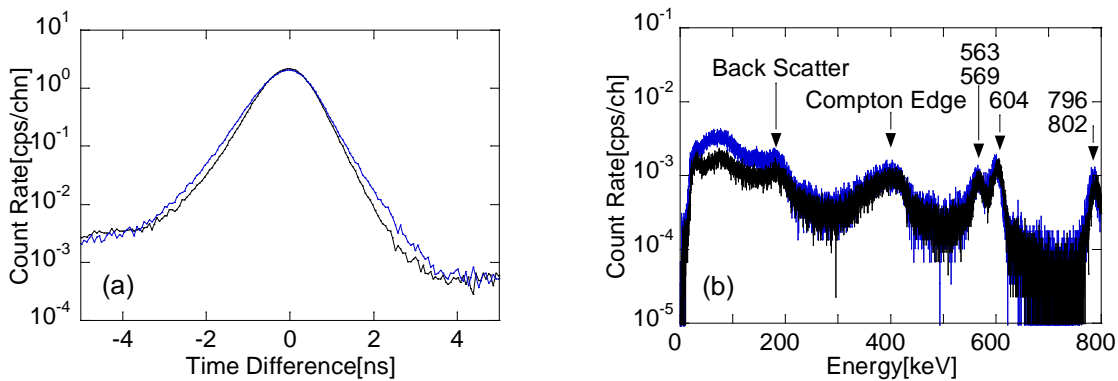


Fig.4 Comparison of time distribution curve obtained by setting gate below 30 keV by plastic scintillator (a) and energy spectrum of LaBr<sub>3</sub> detector obtained by setting gate on the 0.6-3.6 ns in Fig.4-a (b). In each figure, the black line shows the result obtained in experiment 1 and the blue one shows that obtained in experiment 4.

### 3.2. <sup>125</sup>Te の 35 keV 励起準位の寿命測定

<sup>125</sup>Te の 35 keV 励起準位の半減期を <sup>125</sup>I の EC 崩壊を利用して求めた。<sup>125</sup>I の崩壊図式[7]を Fig.5 左上に示す。<sup>125</sup>Te の 35 keV の励起準位の半減期を求めるには、<sup>125</sup>I の EC 崩壊に伴う X 線(以下 X<sub>EC</sub>)と 35 keV の  $\gamma$ 線(以下  $\gamma_{35}$ )の時間差を測定する方法、及び、X<sub>EC</sub> と 35 keV 励起準位からの内部転換に伴う X 線(以下 X<sub>IC</sub>)の時間差を測定する方法の 2 通りがある。このため、プラスチックシンチレータは X<sub>EC</sub>( $\leq 30$  keV の領域)に、LaBr<sub>3</sub> 検出器は  $\gamma_{35}$  ないしは X<sub>IC</sub> にゲートを設定し、時間分布曲線を得た。得られた時間分布曲線を Fig.5 に示す。Fig.5 中の prompt は <sup>134</sup>Cs の 35 keV 近傍のコ

ンプトン連続部分にゲートを設定して得られた即時曲線である。また、 $X_{EC-X_{IC}}$ の時間分布曲線について、 $X_{EC}$ と $X_{IC}$ は等しいエネルギーをもち、検出器は両者を区別することができないため、両側にスロープが表れている。

時間分布曲線を得るにあたり、 $LaBr_3$ 結晶中に存在する $^{138}La$ 由来の放射能の影響を差し引いた。 $^{138}La$ はEC崩壊し、1438 keVの $\gamma$ 線を放出する[7]。したがって、 $^{138}La$ のEC崩壊に伴うX線が $LaBr_3$ 結晶中で全吸収され、1438 keVの $\gamma$ 線がプラスチックシンチレータ中でコンプトン散乱されれば、即時事象を与えることになる。 $^{138}La$ のEC崩壊に伴うX線が $LaBr_3$ 結晶中で全吸収されると娘核 $^{138}Ba$ のK殻電子結合エネルギーである37 keVに全吸収ピークができる。このため、 $^{125}I$ 由来の35 keVのピーク中に $^{138}La$ 由来の37 keVのピーク成分が混入する。この影響を差し引くため、線源を置かない状態で、バックグラウンドを測定して得られた時間分布曲線を $X_{EC-\gamma_{35}}$ の時間分布曲線及び即時曲線から差し引いた。

Fig.5に示された $X_{EC-\gamma_{35}}$ の時間分布曲線のスロープ部分から、35 keVの励起準位の半減期を1.449(14) nsと決定した。また、 $X_{EC-X_{IC}}$ の時間分布曲線の左右のスロープそれぞれから、1.446(11) ns, 1.459(11) nsと決定した。これらの加重平均をとることにより、1.452(11) nsと求めた。また、 $X_{EC-\gamma_{35}}$ の時間分布曲線と即時曲線との重心位置の差から1.39(6) nsと決定し、スロープ法で求めた値と不確かさの範囲で一致していることを確認した。評価値は1.482(8) ns[7]であり、評価値を支持している。過去に報告されている値と今回の値の比較をFig.6に示した。1970年にMareliusら[11]が2台のプラスチックシンチレータを用い1.45(3) nsの値を報告しており、本研究において得られた値に一番近いが、本研究では、より精度のよい値を得ることができた。

重心法で求めた半減期について、バックグラウンドを測定して得られた時間分布曲線を差し引かず半減期を求めると1.35(6) nsの値が得られる。 $^{138}La$ 由来のバックグラウンドは、 $^{125}I$ の $X_{EC-\gamma_{35}}$ の時間分布曲線と即時曲線の重心位置の差を小さくする方向に作用するため、バックグラウンドの影響を差し引かないと半減期を過小評価してしまうことがわかった。

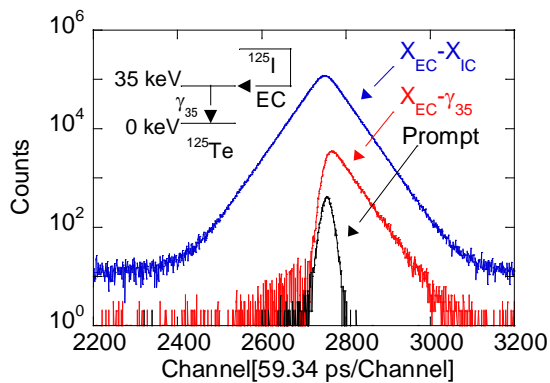


Fig.5 Time distribution curve observed for the 35 keV level in  $^{125}Te$ . The inset shows the decay scheme of  $^{125}I$ .

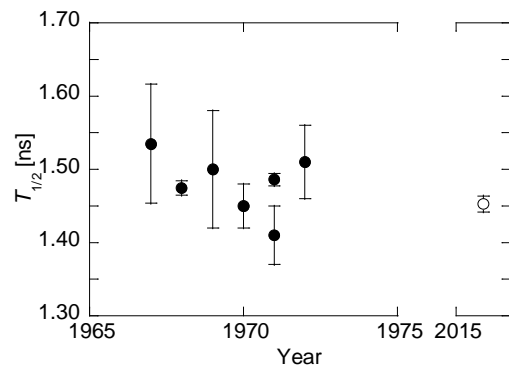


Fig.6 A comparison between the published half-life values[8-16] (closed circles) and our value(open circle) of the 35-keV level in  $^{125}Te$ .

#### 4. まとめ

検出器周りに構造物が少なく、散乱線が少ない条件下における $LaBr_3$ 検出器の時間特性を100 keV以下の低エネルギー領域まで明らかにした。低エネルギー領域において時間分解能は1.3~1.7 nsであった。時間分解能及び即時曲線の重心位置はエネルギーが同じであれば全吸収ピークとコ

ンプトン連続部分で不確かさの範囲内で一致することがわかった。また、 $^{125}\text{Te}$  の 35 keV の励起準位の半減期を 1.453(11) ns と求めた。 $^{125}\text{Te}$  について、スロープ法の値と重心法の値が不確かさの範囲で一致することを確認した。

以上のことより、 $\text{LaBr}_3$  検出器は 100 keV 以下の領域においても、サブナノ秒の半減期をもつ励起準位の寿命測定に適応可能であることがわかった。

## 5. 今後

エネルギー選別用の Ge 検出器を加えた $\beta$ - $\gamma$ - $\gamma$ 遅延同時計数法を用い、複雑な準位構造を持つ $^{131}\text{Xe}$  の 80 keV, 341 keV 及び 667 keV 励起準位の寿命測定を $^{131}\text{I}$  の $\beta^-$ 崩壊を利用して行っている。これらの励起準位について、過去にいくつか実験値が報告されているが、それらは大幅にばらついている(例:80 keV について報告値:0.496(21) ns[16]と 0.416(20) ns[17]、評価値: $T_{1/2}^{\text{ref}}=0.454(40)$  ns[7], 文献[16,17]の加重平均)。このため、エネルギー分解能の良い Ge 検出器をエネルギー選別に、また時間特性の良い  $\text{LaBr}_3$  検出器をタイミング用検出器に用いることで、信頼性が高く精度のよい値を決定できると考えている。

予備的な解析において、80 keV の励起準位の半減期として 0.453(23) ns の値を得た。これは文献[16]と[17]で報告されている値の平均付近の値を示しており、評価値を支持する値である。341 keV( $T_{1/2}^{\text{ref}}:1.6$  ns[7]), 667 keV( $T_{1/2}^{\text{ref}}:<0.5$  ns[7])励起準位の半減期に関も同様に決定する予定である。

## 参考文献

- [1] J. Goldo *et al.*, IEEE trans. Nucl. Sci. 52 (2005) 1805.
- [2] B. Bucher *et al.*, Phys. Rev. C92 (2015) 064312.
- [3] Y. Kojima *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A659 (2011) 193.
- [4] Y. Kojima *et al.*, Nucl. Data Sheets 120 (2014) 52.
- [5] J. -M. Régis *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A811 (2016) 42.
- [6] K. Kawade *et al.*, Nucl. Instr. Meth. 200 (1982) 583.
- [7] National Nuclear Data Center, ENSDF Web site (<http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>).
- [8] ORTEC 567 Manual.
- [9] H. Voorthuis *et al.*, Physica 33 (1967) 695.
- [10] C. Hohenemser *et al.*, Nucl. Phys. A 109 (1968) 364.
- [11] M. M. Bajij *et al.*, Proc. Natl. Sci. India 36A (1970) 176.
- [12] A. Marelius *et al.*, Nucl. Phys. A148 (1970) 433.
- [13] P. D. Bond *et al.*, Nucl. Phys. A163 (1971) 571.
- [14] E. E. Berlovich *et al.*, Sov. J. Nucl. Phys. 12 (1970) 117.
- [15] G. Satyanarayana *et al.*, Can. J. Phys. 50 (1972) 600.
- [16] R. S. Weaver. Can. J. Phys. 40 (1962) 1684.
- [17] S. C. Pancholi *et al.*, Phys. Rev. C 24 (1981) 2337.