

報告番号	※甲	第	号
------	----	---	---

## 主論文の要旨

論文題目 エネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器の開発に関する研究

氏名 森下 祐樹

## 論文内容の要旨

高速増殖炉や軽水炉に用いる混合酸化物燃料を製造する施設では、二酸化プルトニウム（以下、 $\text{PuO}_2$ ）が取扱われる。通常、 $\text{PuO}_2$  の取扱いは包蔵性を有するグローブボックス等の設備で行われるが、設備の予期しない破損により  $\text{PuO}_2$  が作業環境中に漏れる可能性がある。プルトニウム（以下、 $\text{Pu}$ ）は  $\alpha$  線を放出し、かつ、比放射能が高いため、吸入摂取すると深刻な健康影響をもたらす。これらの施設では、 $\text{ZnS}(\text{Ag})$  シンチレーションサーベイメータを用いて初期の  $\text{Pu}$  の汚染検知を行っている。しかし、あらゆる場所に存在している天然核種である  $^{222}\text{Rn}$ （以下、ラドン）の子孫核種も同様に  $\alpha$  線を放出するため両者の弁別が必要となる。 $\text{ZnS}(\text{Ag})$  シンチレーションサーベイメータはエネルギー弁別の性能を有さず、 $\text{Pu}$  とラドン子孫核種の弁別ができないという問題があった。そこで両者の弁別のため、エネルギー分解能の良い  $\text{Si}$  表面障壁型半導体検出器（Silicon Surface Barrier Detector: SSBD）を用いて  $\alpha$  線のエネルギー情報を得ることにより両者を弁別する方法が取られている。しかし、ラドン子孫核種濃度の高い場合、SSBD の優れたエネルギー分解能を以てしても両者の弁別には限界がある。例えば、採取直後の空気ろ紙にはラドン子孫核種が多数捕集されているので、ろ紙上の  $\text{PuO}_2$  の迅速な識別は困難である。他方、 $\text{ZnS}(\text{Ag})$  シンチレータとポラロイドフィルムを組み合わせた  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  増感オートラジオグラフィ法で  $\alpha$  線の 2 次元分布を得ることにより  $\text{Pu}$  とラドン子孫核種を弁別する方法がある。しかし、この方法は測定を行うには汚染個所の  $\text{PuO}_2$  を試料として採取することが必要となり、労力・時間を要した。また、 $\alpha$  線のエネルギー情報を有さないためラドン子孫核種の計数を低減できない。ラドン子孫核種存在下で迅速に高い精度で  $\text{PuO}_2$  の汚染を早期に検知することができれば、汚染拡大を防止する措置が可能になり、作業者の内部被ばくを未然に防ぐことが可能になるため、この目的を達成できる  $\alpha$  線検出器が切望されていた。そこで、本研究では高い光検出効率を有する新しい光センサであるシリコン光電子増倍管（Silicon Photomultiplier: SiPM）を用い、 $\text{PuO}_2$  の迅速識別が可能であるエネルギー弁別・位置検出型の  $\alpha$  線検出器を開発した。

研究内容は：1)  $\text{PuO}_2$  の識別性能を上げるため、最も高いパルス波高値・最も良いエネルギー分解能を示すシンチレータの選定，2)  $\text{PuO}_2$  の現場での迅速な識別を可能にするため、SiPM を用いた高空間分解能，高エネルギー分解能を有するエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器の開発，3) 現場で実用的な有効視野を有する大面積のエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器の開発，の構成である。

1)  $\text{PuO}_2$  の識別性能を上げるため、最も高いパルス波高値・最も良いエネルギー分解能を示すシンチレータの選定

入射する  $\alpha$  線を可視光に変換する部分であるシンチレータは、 $\alpha$  線検出器の性能を決定付ける重要なものである。これまで、 $\alpha$  線検出器にはシンチレータとして  $\text{ZnS(Ag)}$  が広く用いられてきた。 $\text{ZnS(Ag)}$  は  $\alpha$  線に対し高い発光量を示すが、不透明であるため、エネルギー分解能が悪いという欠点があった。近年、発光量が高く、 $\alpha$  線検出器として有望なシンチレータが開発されてきている。そこで、開発するエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器に用いる最適なシンチレータを選定のため、4 種のシンチレータ、すなわちセリウム添加ガドリニウムパイロシリケート ( $\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7\text{:Ce}$  : GPS)、セリウム添加ガドリニウムアルミニウムガリウムガーネット ( $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}\text{:Ce}$  : GAGG)、 $\text{ZnS(Ag)}$ 、プラスチックシンチレータと 2 種の光検出器、すなわち光電子増倍管(Photomultiplier tube : PMT)と Si-PM を用い、パルス波高値とエネルギー分解能の比較測定を行った。

プラスチックシンチレータは透明性を有するが発光量が小さく、そのエネルギー分解能や空間分解能には限界があった。GPS は近年北海道大学、日立化成 (株) で共同開発されたゲルマニウム酸ビスマス ( $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  : BGO) の 4.4 倍の発光量を有するシンチレータである。GPS の単結晶を細かく砕きガラス基板上に成形することにより  $\alpha$  線計測に応用している。GAGG は東北大学、古河機械金属で共同開発された、発光量が大きく単結晶で透明なシンチレータである。PMT には浜松ホトニクス (株) の 3 インチの高量子効率の R6233-100HA を、Si-PM には浜松ホトニクス (株) の Multi-Pixel Photon Counter : MPPC (S11064-025P) を用いた。各シンチレータを PMT、また Si-PM に光学的に透明なシリコングリスを用い光学結合した。5.5MeV  $\alpha$  線を照射し、それぞれの波高スペクトルを取得し、パルス波高値とエネルギー分解能を評価した。

PMT に対しては GPS がプラスチックシンチレータの約 14 倍の最も大きいパルス波高値を示し、GAGG が  $\sim 8.4\%$  FWHM と最も良いエネルギー分解能を示した。一方、Si-PM に対しては、 $\text{ZnS(Ag)}$  がプラスチックシンチレータの約 10 倍の最も大きいパルス波高値を示し、GAGG が  $\sim 13.0\%$  FWHM と最も良いエネルギー分解能を示した。PMT と Si-PM の結果が異なる理由として、シンチレータの発光波長分布と光検出器の量子効率分布の違いが関係していると考えられる。

2)  $\text{PuO}_2$  の現場での迅速な識別を可能にするため、SiPM を用いた高空間分解能，高エネルギー分解能を有するエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器の開発

SiPM は、PMT に匹敵する高い増倍率を有し、かつ高い光の検出効率を有する利点があるため、 $\text{PuO}_2$  の迅速検知に必要となる高空間分解能，高エネルギー分解能を有する検出器が開発できる可能性がある。そこで、SiPM アレーと GAGG を用い、エネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器を開発し、その空間分解能・エネルギー分解能等の基本的な性能を評価した。

Si-PM アレーには浜松ホトニクス (株) の MPPC (S11064-050P) を用いた。この SiPM アレーは  $3 \times 3 \text{ mm}^2$  の Si-PM が  $4 \times 4$  に配列され、サイズは  $12 \times 16 \text{ mm}$ 、厚みは  $3.3 \text{ mm}$  であった。シンチレータに GAGG を選定した理由は、シンチレータの比較測定において Si-PM に対しエネルギー分解能が最も良かったことから用いた。バックグラウンドの  $\beta$  線や  $\gamma$  線を低減するため、GAGG を  $100 \mu\text{m}$  まで薄くしたものを用いた。Si-PM アレーからの 16 チャンネルのアナログ信号は重み付け加算した後、A-D 変換し、位置情報をデジタル的に重心演算し  $\alpha$  線の 2 次元分布、およびエネルギーの波高スペクトルを PC 上に出力する。開発した検出器の空間分解能、エネルギー分解能等の基本性能を  $5.5 \text{ MeV}$   $\alpha$  線を用いて評価した。空間分解能はタングステンのスリットチャートを撮像し、どれだけ細かい幅のスリットが弁別できるかで評価した。エネルギー分解能は  $5.5 \text{ MeV}$   $\alpha$  線の波高スペクトルから求めた。

開発したエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器の空間分解能は  $0.6 \text{ mmFWHM}$ 、エネルギー分解能は  $\sim 13.3\% \text{ FWHM}$  であった。この性能は過去に開発されたプラスチックシンチレータと位置有感型光電子増倍管を用いた  $\alpha$  線位置検出器の空間分解能  $3.0 \text{ mmFWHM}$ 、エネルギー分解能  $\sim 15.0\% \text{ FWHM}$  を上回るものであった。

### 3) 現場で実用的な有効視野を有する大面積のエネルギー弁別・位置検出型 $\alpha$ 線検出器の開発

SiPM と GAGG を用いたエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器の開発を行い、良好な空間分解能、エネルギー分解能が得られたが、開発したエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器のサイズは、用いた SiPM アレーのサイズである  $18 \text{ mm} \times 16 \text{ mm}$  に限られた。現場で実用的なエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器とするためには、より大きな有効視野を有する必要がある。例えば、作業環境空気のモニタリングに用いられる空気ろ紙のサイズは  $48 \text{ mm}$   $\phi$  であり、ろ紙上の  $\text{PuO}_2$  の汚染の測定を行うためには、有効視野が  $50 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$  であることが望ましい。近年、シリコン貫通電極 (Through-Silicon Via : TSV) を用いた TSV-SiPM が開発された。この TSV-SiPM は、従来の SiPM, S11064-050P に比べ、ダークカウントやアフターパルスといったノイズ成分が低減していることから、多数の SiPM アレーの構成による大面積化に適している。そこで TSV-SiPM を用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器を開発した。

TSV-SiPM アレーに浜松ホトニクス (株) S12642-0404PA-50 を用い、 $2 \times 2$  で構成し合計  $8 \times 8$  のチャンネル、サイズは  $26 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$  とした。シンチレータには、ZnS(Ag) と GAGG を用いた。ZnS(Ag) を用いた理由は、シンチレータの性能比較において、SiPM に対し ZnS(Ag) が最も大きなパルス波高値を示しており、GAGG と異なる利点を有するエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器が開発できると考えたためである。 $5.5 \text{ MeV}$   $\alpha$  線を用い、空間分解能、エネルギー分解能等の基本特性をそれぞれ評価した。評価方法は SiPM アレーを用いたときと同様である。

測定の結果、空間分解能は ZnS(Ag) で  $0.4 \text{ mmFWHM}$ 、GAGG で  $0.625 \text{ mmFWHM}$  であり、ZnS(Ag) の方が GAGG より空間分解能で上回るという結果であった。これは、GAGG は単結晶構造のシンチレータでかつ屈折率が大きいため、シンチレーション光の一部が内部全反射し、光検出器に届いていないためであると考えられる。エネルギー分解能の評価では、GAGG が  $\sim 13.8\% \text{ FWHM}$  と ZnS(Ag) の  $\sim 42.7\% \text{ FWHM}$  に比べ良好であり、これは GAGG が光学的な透明性を有するためと考えられる。

開発したエネルギー弁別・位置検出型  $\alpha$  線検出器は、高空間分解能、高エネルギー分解能を有し、ラドン子孫核種存在下でも迅速に高い精度で  $\text{PuO}_2$  の検知が可能である。この検出器を用いることにより、ラドン子孫核種の減衰を待たずに  $\text{PuO}_2$  粒子の存在の有無を確認することができ、すなわち、作業の制限や、当該工程室への入室の禁止などの措置を迅速に講じることができ、作業者の内部被ばくを未然に防ぐことができるものとする。

本文中で使用した略語を以下に示す。

SSBD : Silicon Surface Barrier Detector Si 表面障壁型半導体検出器

Si-PM : Silicon Photomultiplier シリコン光電子増倍管

PMT : Photomultiplier tube 光電子増倍管

MPPC : Multi-Pixel Photon Counter

TSV-MPPC : Through Silicon Via- Multi-Pixel Photon Counter

GPS :  $\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7:\text{Ce}$  セリウム添加ガドリニウムパイロシリケート

GAGG :  $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$  セリウム添加ガドリニウムアルミニウムガリウムガーネット

BGO :  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  ゲルマニウム酸ビスマス