

エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の
開発に関する研究

名古屋大学大学院医学系研究科
医療技術学専攻

森下 祐樹

平成 27 年度学位申請論文

エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の
開発に関する研究

名古屋大学大学院医学系研究科

医療技術学専攻

(指導：山本 誠一 教授)

森下 祐樹

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、 PuO_2 ）が取扱われる。これらの施設では、 ZnS(Ag) シンチレータを用いた α 線用サーベイメータで PuO_2 の汚染検知を行っている。しかし、 ^{222}Rn （以下、ラドン）から壊変した子孫核種も同様に α 線を放出するため、両者の弁別が必要となる。 α 線用サーベイメータはエネルギー弁別の性能を有さず、プルトニウム（以下、 Pu ）とラドン子孫核種の α 線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 Si 表面障壁型半導体検出器（Silicon Surface Barrier Detector: SSBD）を用いて両者を弁別する方法が取られているが、採取直後の空気ろ紙のようにラドン子孫核種濃度の高い場合、両者の弁別には限界があった。他の手法として ZnS(Ag) 増感オートラジオグラフィ法で α 線の 2 次元分布を得ることにより Pu とラドン子孫核種を弁別する方法があるが、現場から試料を採取することが必要となり、労力・時間を要した。そこで、 PuO_2 汚染の現場での迅速な判別を可能にするため、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）を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発した。

はじめに、最も高いパルス波高値と最も良いエネルギー分解能を示すシンチレータを選定するため、4 種のシンチレータ、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）、 ZnS(Ag) 、プラスチックシンチレータを、SiPM と組み合わせ、パルス波高値とエネルギー分解能の測定を行った。次に、この結果をもとに GAGG と SiPM を用いてエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、空間分解能やエネルギー分解能を評価した。さらに、シリコン貫通電極（Through Silicon Via: TSV)-SiPM を用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、空間分解能やエネルギー分解能の評価を行った。

4 種のシンチレータの測定の結果、エネルギー分解能は GAGG が最も良く 13.0 %FWHM であった。パルス波高値は ZnS(Ag) が最大でプラスチックシンチレータの約 10 倍であった。開発した GAGG と SiPM アレーを用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の空間分解能は 0.6 mm FWHM、エネルギー分解能は 13.0 %FWHM であった。この結果は過去に開発されたプラスチックシンチレータと PSPMT を用いた α 線位置検出器の空間分解能 3.0 mm FWHM とエネルギー分解能 15 %FWHM を上回るものであった。TSV-SiPM アレーを用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器は、GAGG を用いたときに、エネルギー分解能が 13.8 %

FWHM、空間分解能は 0.625 mmであった

SiPM アレーを用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器は、高空間分解能と高エネルギー分解能を併せ持ち、ラドン子孫核種存在下でも迅速に高い精度で PuO_2 の検知が可能となる。この検出器を用いることにより、例えばラドン子孫核種の減衰を待たずに、ろ紙上の PuO_2 の存在の有無を確認することができるものと期待される。迅速な PuO_2 の存在の判断が可能になれば、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考えられる。

Study on the development of alpha-particle detectors with energy discrimination and position detection

Summary

Plutonium dioxide (PuO_2) is used in nuclear facilities such as mixed oxide fuel facilities for fast breeder or light-water reactors. In these facilities, an alpha radiation survey meter with a $\text{ZnS}(\text{Ag})$ scintillator is normally used for detecting PuO_2 contaminations. Since both ^{222}Rn (radon) and its progeny emit alpha radiation, it is necessary to be able to distinguish PuO_2 from the radon progeny; however, the alpha radiation survey meter does not have this ability. Therefore, instead of the alpha radiation survey meter, a silicon surface barrier detector (SSBD) with high energy resolution is used to distinguish PuO_2 from the radon progeny. However, if the concentration of the radon progeny is too high, the discrimination between PuO_2 and the radon progeny is difficult even with the SSBD. Another method to distinguish PuO_2 from the radon progeny is to determine the two-dimensional distribution of the alpha radiation by $\text{ZnS}(\text{Ag})$ autoradiography. However, a contaminated sample must be removed from the place where the contamination was found, which requires considerable effort and time. Therefore, to enable the instant identification of any PuO_2 contamination at a working site, we developed an alpha radiation detector with energy discrimination and position sensitivity based on a new light sensor with high light detection efficiency, namely, a silicon photomultiplier (SiPM).

First, to select a scintillator with high pulse height and high energy resolution for alpha-particles, we measured the pulse height and the energy resolution of four scintillators: $\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7:\text{Ce}$ (GPS), $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ (GAGG), $\text{ZnS}(\text{Ag})$, and a plastic scintillator combined with an SiPM array. Next, we developed an alpha radiation detector with energy discrimination and position sensitivity using GAGG and SiPM arrays and evaluated its pulse height and energy resolution. Then, we developed a large alpha radiation detector with energy discrimination and position sensitivity using through silicon via (TSV)-SiPM array and evaluated its pulse height and energy resolution.

The comparison of the four scintillators with SiPM showed that the energy resolution of the GAGG (13.0%) was the highest among the four scintillators. The pulse height of the $\text{ZnS}(\text{Ag})$, which was 10 times higher than that of the plastic scintillator, was the best among the four scintillators. We, therefore, developed an alpha radiation detector with energy discrimination and position sensitivity using

a GAGG scintillator and a SiPM array. The newly developed detector had a spatial resolution of 0.625 mm and an energy resolution of 13.0% Full width at half maximum (FWHM). The spatial and energy resolutions were superior to an alpha-particle imaging system, which combines a plastic scintillator and position sensitive photomultiplier tube. Then, we developed a large alpha-radiation detector with energy discrimination and position sensitivity using the TSV-SiPM array. This detector had a spatial resolution of 0.625 mm and an energy resolution of 13.8% FWHM.

The developed detector has high spatial resolution and high energy resolution and enables the precise detection of PuO_2 in the presence of the radon progeny. For instance, the detector enables the instant detection of PuO_2 on a filter paper without the wait for the radon progeny decay. The instant detection of PuO_2 will make it possible to take immediate action for the protection of workers against internal exposure.

目次

第1章 序論	
1-1 本研究の意義	1
1-2 Pu 検知のための α 線検出器の歴史的背景	2
1-3 本研究の目的及び構成と内容	3
第2章 α 線用シンチレータの性能比較	
2-1 緒言	5
2-2 シンチレータの性能比較方法	5
2-2-1 シンチレータ	5
2-2-2 PMT を用いたパルス波高スペクトルの測定方法	6
2-2-3 SiPM を用いたパルス波高スペクトルの測定方法	7
2-2-4 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関係	8
2-3 シンチレータの性能比較結果	9
2-3-1 エネルギー分解能	9
2-3-2 相対波高値	10
2-3-3 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関係	11
2-4 考察	12
2-5 まとめ	13
第3章 SiPM を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の開発	
3-1 緒言	14
3-2 SiPM を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の開発	14
3-2-1 検出器部	14
3-2-2 データ収集部	17
3-2-3 基本性能の評価方法	17
3-2-3-1 空間分解能	17
3-2-3-2 空間直線性	18
3-2-3-3 均一性	18
3-2-3-4 エネルギー分解能	19
3-2-3-5 文字のファントムの画像化	19
3-2-3-6 バックグラウンド計数の評価	19
3-2-4 基本性能の評価結果	19
3-2-4-1 空間分解能	19
3-2-4-2 空間直線性	20

3-2-4-3	均一性	21
3-2-4-4	エネルギー分解能	22
3-2-4-5	文字のファントムの画像化	22
3-2-4-6	バックグラウンド計数の評価	22
3-3	考察	23
3-4	まとめ	24
第4章	TSV-SiPM を用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の開発	
4-1	緒言	25
4-2	TSV-SiPM を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の開発	26
4-2-1	検出器部	26
4-2-2	基本性能の評価方法	29
4-2-2-1	空間分解能	29
4-2-2-2	エネルギー分解能	29
4-2-2-3	空間直線性	30
4-2-2-4	均一性	30
4-3	基本性能の評価結果	30
4-3-1	空間分解能	30
4-3-2	エネルギー分解能	32
4-3-3	空間直線性	33
4-3-4	均一性	34
4-4	考察	35
4-5	まとめ	35
第5章	結論	36
参考文献		38
略語・略号一覧		43
本論文を構成する発表論文及び学会発表		44
謝辞		46

第1章 序 論

1-1 本研究の意義

高速増殖炉や軽水炉に用いるウラン・プルトニウム混合酸化物 (Mixed Oxide: MOX) 燃料を製造する施設では、二酸化プルトニウム (以下、 PuO_2) が燃料製造のため取扱われる。 PuO_2 の取扱は、包蔵性を有するグローブボックス (以下、GB) 等の設備で行われる。GB のグローブは GB の本体と比べ破れやすい構造をしており、グローブの予期しない破損等により 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、Pu) の同位体は、 ^{241}Pu を除き全て α 線放出核種であり、かつその比放射能が高いため、作業者が吸入摂取すると深刻な健康影響をもたらす。Pu を体内摂取すると、生体組織内の α 線の飛程が数十 μm であるため、その領域に全エネルギーを付与する。一旦体内に侵入した Pu は、極めて排泄しにくい特徴を持ち、 PuO_2 の肺の生物学的半減期は 500 日、肝臓の生物学的半減期は 20 年、骨の生物学的半減期は 50 年と考えられている¹⁾。Pu は α 線の他には、弱い特性 X 線 (平均エネルギー 17 keV の LX 線) を出すが²⁾、体外からその存在量を測定するには数百 Bq 以上の放射能が必要となり¹⁾、微量の Pu の摂取に対しては測定が不可能である。他にはバイオアッセイにより間接的に測定する方法があるが、バイオアッセイによる方法は誤差が大きく、分析に時間がかかるという問題がある^{3,4)}。従って、厳格な汚染管理を行い、 PuO_2 の吸入摂取による内部被ばくを未然に防ぐことが非常に重要となる。

作業者の身体や設備の表面の PuO_2 の汚染検査のためには、銀活性硫化亜鉛 (以下、 $\text{ZnS}(\text{Ag})$) をシンチレータとして用いた、 α 線用サーベイメータによる測定が行われる。また、作業環境の空気中の Pu の放射能濃度を評価するために、作業環境の壁等に据付けられた α 線用空気モニタ、エアスニファ等の空気捕集装置により、空気中のダストをろ紙上に捕集し、 $\text{ZnS}(\text{Ag})$ シンチレータを用いた α 線用放射能測定装置による測定が行われる。しかし、天然核種である ^{222}Rn (以下、ラドン) の子孫核種も作業環境中に存在するため、この α 線が Pu の検知の妨げになる。 α 線用サーベイメータは、エネルギー弁別の性能を有さないため、Pu とラドン子孫核種の α 線の弁別ができない。両者の弁別のために、エネルギー分解能の良い Si 表面障壁型半導体検出器 (Silicon Surface Barrier Detector: SSBD) を用いて、 α 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行われている。しかし、ラドン子孫核種濃度が高い場合、SSBD の優れたエネルギー分解能をもっ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 PuO_2 の迅速な識別は困難である。

他には、 $\text{ZnS}(\text{Ag})$ 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、 α 線の 2 次元分布を得ることにより 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 PuO_2

を試料として採取することが必要となり、労力と時間を要する。また、この方法は α 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。ラドン子孫核種の濃度が高くPuの検知が困難な場合、ラドン子孫核種が減衰しその影響を無視できる程度待って測定を行う必要があるため、この方法では、Puの迅速な判別は不可能である。Puの判別に時間がかかると、その汚染の拡大を招く危険性が高まり、同時に作業者の内部被ばくのリスクも高まる。

ラドン子孫核種存在下でも迅速に、高い精度でPuO₂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ことが可能となり、作業者の内部被ばくを未然に防ぐことに繋がる。

1-2 Pu 検知のための α 線位置検出器の歴史的背景

1965年、JJC HsiehらはZnS(Ag)蛍光膜とポラロイドフィルム用いたZnS(Ag)増感オートラジオグラフィ法を開発し、短時間での α 線のオートラジオグラフィを可能にした⁵⁾。その後、日本原子力研究所の大畑らや、動力炉・核燃料開発事業団の小泉らがZnS(Ag)増感オートラジオグラフィ法を改良し、暗室を全く必要とせずにオートラジオグラフを得ることができるようになり、日常の放射線管理での使用が可能となった^{6,7)}。日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所（旧動力炉・核燃料開発事業団）では、PuO₂の汚染の判定のため、現在もこのZnS(Ag)増感オートラジオグラフィ法が主として用いられている。しかしZnS(Ag)増感オートラジオグラフィ法は、PuO₂粒子をスポットとして検知するために、ZnS(Ag)に数10本の α 線が入射する必要があり、長時間の露光時間を必要とした^{6,7)}。そこで、飯田らはMCPイメージンテンシファイアを組み込んだ α 線イメージング装置を開発した⁸⁾。イメージンテンシファイアの光利得を上げることにより、 α 線の1本1本をスポット像として写すことが可能になった。さらに、動力炉・核燃料開発事業団の関らが、飯田らが開発した α 線イメージング装置を日常の放射線管理に容易に使えるよう改良した⁹⁾。この α 線イメージング装置で実際にPuO₂粒子とラドン子孫核種を測定した結果、両者の判別に必要な時間がZnS(Ag)増感オートラジオグラフィ法の約1/6に短縮されることが分かった。この α 線イメージング装置は様々なPuO₂試料の測定に応用された⁹⁾。

1998年、山本らは位置有感型光電子増倍管（Position Sensitive Photomultiplier : PSPMT）とプラスチックシンチレータを組み合わせた α 線位置検出器を開発した。PSPMTを光検出器に用いることで、 α 線の位置情報だけでなくエネルギー情報も同時に得ることが可能になった¹⁰⁾。しかし、プラスチックシンチレータは比較的発光量が少ないことから、その空間分解能には限界があった。また、2011年には高崎らがイメージングプレート（Imaging Plate : IP）を用いたPuO₂粒子の識別方法を開発した¹¹⁾。IPはPuO₂粒子の識別に有効であり日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所の放射線管理においてZnS(Ag)増感オートラジオグラフィ法の代替として用

いられてきている。しかし、IPは露光時間を要し、リアルタイムなイメージングが不可能であり、かつ β 線や γ 線にも感度を有するため¹²⁾、これらの放射線が α 線の測定バックグラウンドとなってしまふ。そのため、これらの問題点を解決した、高い精度でPuの検知が可能な α 線位置検出器が切望されていた。

1-3 本研究の目的及び構成と内容

本研究の目的は、光電子増倍管 (Photomultiplier tube : PMT) に比べ高い光検出効率を有する新しい光センサーであるシリコン光電子増倍管 (Silicon Photomultiplier : SiPM) を用い、エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、PuO₂汚染の現場での迅速な判別を可能にすることである。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¹³⁾、PuO₂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。

研究内容は、(1) PuO₂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) PuO₂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 α 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 α 線検出器の開発、で構成される。

本論文は5章からなる。以下に各章の概要を記す。

第1章では、研究の背景及び意義、 α 線位置検出器の開発の歴史的な背景、研究の目的及び論文の構成と内容について述べる。

第2章では、最も高いパルス波高値と最も良いエネルギー分解能を示すシンチレータを選定するため、4種のシンチレータ、セリウム添加ガドリニウムパイロシリケート (Gd₂Si₂O₇: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 (Gd₃Al₂Ga₃O₁₂:Ce : GAGG)、ZnS(Ag)、プラスチックシンチレータと、2種の光検出器、PMTとSiPMを用い、出力パルス波高とエネルギー分解能の比較測定を行った研究内容について述べる。PMTを用いた場合、エネルギー分解能はGAGGが最も良く、 $\sim 8.4\%$ FWHMであった。出力パルス波高はGPSが最大でプラスチックシンチレータの約14倍であった。SiPMを用いた場合、エネルギー分解能はGAGGが最も良く $\sim 13.0\%$ FWHMであった。出力パルス波高はZnS(Ag)が最大でプラスチックシンチレータの約10倍であった。

第3章では、SiPMとGAGGを用いてエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、その基本的な性能を評価した研究内容について述べる。開発したエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の空間分解能は0.6 mmFWHM、エネルギー分解能は $\sim 13\%$ FWHMであった。この結果は、過去に開発されたプラスチックシンチレータとPSPMTを用いた α 線位置検出器¹⁰⁾の、空間分解能3.0 mmFWHMとエネルギー分解能 $\sim 15\%$ FWHMを上回るものであった。さらに開発したエネルギー弁別・位置検

出型 α 線検出器は、PSPMT を用いた α 線位置検出器に比べ、厚みが約 1/5 以下であるという利点を有した。

第 4 章ではシリコン貫通電極 (Through Silicon Via : TSV)-SiPM を用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、その性能の評価を行った研究内容について述べる。TSV-SiPM アレーを 2×2 の構成とし、チャンネルを 8×8 に配置することで、サイズを $26 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$ に拡大した。シンチレータには ZnS(Ag) と GAGG の 2 種を用いた。GAGG と ZnS(Ag) は異なる利点を有し、GAGG を用いた検出器はエネルギー分解能が 13.8 %FWHM と良かったが、空間分解能は 0.625 mmFWHM と ZnS(Ag) の 0.4 mmFWHM より劣っていた。大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器は厚みが 15 mm 以下と薄い利点も有した。

第 5 章では、本論文を総括し、得られた成果を簡潔にまとめる。

第2章 α 線用シンチレータの性能比較

2-1 緒言

従来、 α 線用のシンチレータには ZnS(Ag)が用いられてきた。その理由は α 線に対して大きな発光量を有すること、また、高湿度環境中で安定性が高いことが挙げられる¹⁴⁾。シンチレーション効率は NaI(Tl)と同等であり、その発光量は、 α 粒子に対して NaI(Tl)の 1.3 倍、すなわち 49,000 photons/MeV である¹⁵⁾。ZnS(Ag)を用いたシンチレーション検出器は高い安定性を有している^{8,14)}が、ZnS(Ag)は不透明なシンチレータであり、そのエネルギー分解能は悪い¹⁶⁾。そのため ZnS(Ag)を用いたシンチレーション検出器は α 線のエネルギースペクトル測定には不向きであった。井崎らは ZnS(Ag)の厚みを最適化することにより α 線のエネルギー弁別性能を行うことを試みた。ZnS(Ag)の厚みが 10 mg/cm²のときに最も良いエネルギー弁別結果が得られたが、その弁別性能には限界があった¹⁶⁾。そのため、 α 線のエネルギースペクトル測定には、エネルギー分解能の良い SSBD が用いられる¹⁷⁾。しかしながら、SSBD はシンチレーション検出器に比べ高価であり、半導体検出器が故障したときの交換にかかるコストが大きい。また、SSBD は検出器自身に信号の増幅機構を持たないため信号レベルが小さく、ノイズに敏感であるといった問題がある。

そこで、ZnS(Ag)の代わりに透明性を有するプラスチックシンチレータを用いて α 線のスペクトル測定を行う方法が報告されている¹⁰⁾。しかし、プラスチックシンチレータ(NE-102A)は発光量が 10,000 photons/MeV と比較的小さい¹⁵⁾ため、エネルギー分解能の向上に限界があった。そのため、透明性を有し、かつ発光量の高いシンチレータが α 線のシンチレーション検出器として切望されていた。

近年、GPS シンチレータが開発され、これが α 線に対し高い発光量を有することが報告された¹⁸⁾。その発光量は γ 線に対しゲルマニウム酸ビスマス(Bi₄Ge₃O₁₂:BGO)の 4.4 倍、すなわち 36,000 photons/MeV であった¹⁹⁾。GAGG も近年開発された新しいシンチレータであり、 γ 線に対し高い発光量とエネルギー分解能を有する^{20,21)}。CsI(Tl)は、NaI(Tl)に比べ潮解性が少なく、 α 線用シンチレータの候補と考えられるが、その潮解性は、核燃料施設の空気中のダストや排気の連続モニタリングに耐えられない可能性があるため、今回は比較測定の候補から除外した。

シンチレータの性能比較のための光検出器には、PMT と SiPM を使い、両者の測定結果を比較した。

2-2 シンチレータの性能比較測定方法

2-2-1 シンチレータ

Table 2-1 に、性能評価に用いたシンチレータのサイズ及び厚みを示す。すべてのシンチレータはサイズを 18 mm×16 mm とした。ZnS(Ag)とプラスチックシンチレ

一タの厚みは、 α 線の飛程に合わせ、0.05 mm とした。GPS と GAGG の厚みは、製造上の技術的限界で厚さが決定され、0.1 mm とした。機械的強度を高めるため、GPS と GAGG は 1 mm 厚のガラス基板に光学的に結合されたものを用いた。

MOX 燃料製造施設では、 ^{241}Pu の放出する最大エネルギーが 20.8 keV の β 線や²²⁾、その壊変生成物の ^{237}U や ^{241}Am の放出する γ 線が存在する²³⁾ため、これらの β 線や γ 線を検出することによるバックグラウンド計数を低減する必要がある。そのため、厚みの薄いシンチレータを用いた。Fig.2-1 に 4 種のシンチレータの外観写真を示す。左からプラスチックシンチレータ、ZnS(Ag)、GAGG、GPS の順である。ZnS(Ag)およびプラスチックシンチレータは応用光研(株)製のものを用いた。プラスチックシンチレータと GAGG は光学的な透明性を有している。GPS は単結晶を細かく砕きエポキシ樹脂で固めた構造をしており¹⁹⁾結晶とエポキシ樹脂の間に白い境界の線が観察される。ZnS(Ag)は白色で不透明である。なお、すべてのシンチレータは潮解性を有さない。

Table 2-1 Scintillators used for performance evaluation

	Plastic scintillator	ZnS(Ag)	GAGG	GPS
Size (mm)	18 x 16	18 x 16	18 x 16	18 x 16
Thickness (mm)	0.05	0.05	0.1	0.1

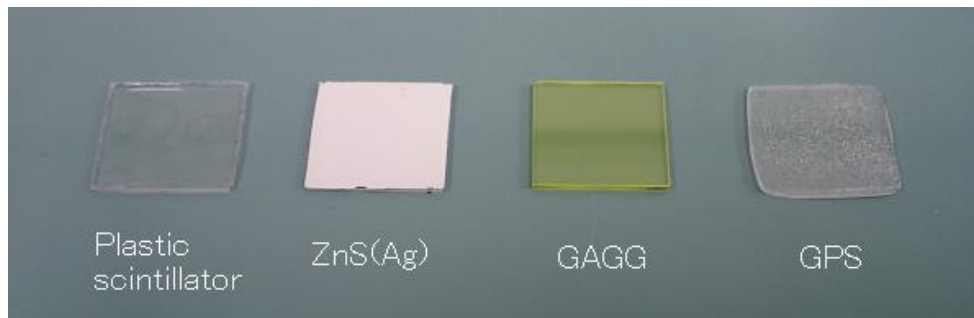


Fig. 2-1 Photograph of scintillators for performance evaluation

2-2-2 PMT を用いたパルス波高スペクトルの測定方法

PMT を光検出器に用いた場合のシンチレータ性能比較評価の概念図 を Fig. 2-2 に示す。4 種のシンチレータを 1 つずつ替えながら、各シンチレータのパルス波高スペクトルを測定した。PMT には直径 3 インチの高量子効率 (High Quantum Efficiency: HQE) である浜松ホトニクス社の R6233-100HA を用いた。HQE の PMT を用いることで、 γ 線に対して高い波高値と良いエネルギー分解能を示した報告があるため今回のパルス波高スペクトルの測定に用いた²⁴⁾。4 種のシンチレータのうち 1 つを PMT

に光学結合し、その上から遮光と反射材の目的のため、アルミ蒸着マイラーで覆った。光学結合には、信越化学工業（株）の KE-420 を用いた。放射能 2kBq の ^{241}Am 線源をアルミ蒸着マイラーの上に置き、シンチレータに対し 5.5 MeV の α 線を照射した。PMT への印加電圧は -750 V で、測定時間は 600 秒とした。PMT からの信号は NIM 規格モジュールへと導き、その後、多重波高分析器 (Multichannel Analyzer : MCA) へと導いた。MCA はクリアパルス（株）の ADC Model 1125P を用いた。パルス波高スペクトルの測定後、MCA に内蔵されたガウス分布フィッティング機能を用い、エネルギー分解能とパルス波高値を評価した。測定は 5 回ずつ行い、エネルギー分解能とパルス波高値の平均と標準偏差を求めた。パルス波高値はプラスチックシンチレータを 1 とした相対値で評価した。

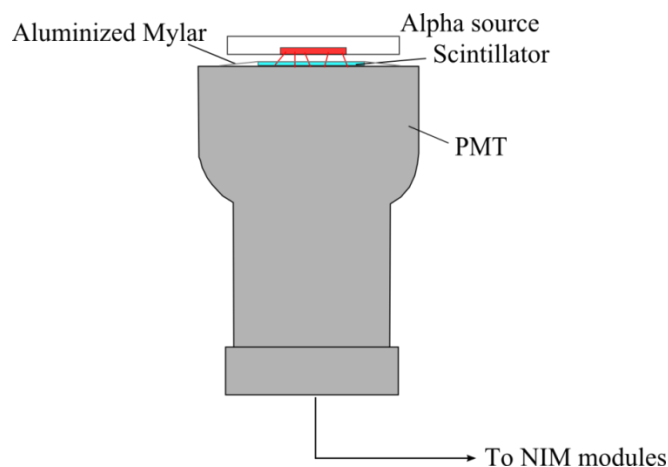


Fig. 2-2 Schematic diagram of performance evaluation system with PMT

2-2-3 SiPM を用いたパルス波高スペクトルの測定方法

SiPM は、ガイガーモードで動作するアバランシェ・フォトダイオードを微細に 2 次元的に多数配列したものである。ガイガーモードで動作するアバランシェ・フォトダイオードは、入射する光量の大小に関係なく一定の飽和出力を示す。複数のアバランシェ・フォトダイオードから生じた飽和出力を合算することにより、入射する光子の数に比例した出力が得られる。SiPM には浜松ホトニクス（株）の Multi-Pixel Photon Counter : MPPC S11064-025P を用いた。Fig. 2-3 にその外観写真を示す。

SiPM を用いた時のシンチレータ比較評価の概念図を Fig. 2-4 に示す。Table 2-1 に示した 4 種のシンチレータのうち 1 つを 3 mm 厚のアクリルライトガイドと SiPM アレーに光学結合した。アクリルライトガイドには紫外線を透過するタイプの三菱レイヨン（株）、Acrylite No.000 を用いた。シンチレータは反射材であるアルミ蒸着マイラーで覆い、その上に ^{241}Am 線源を置き、シンチレータに対し 5.5 MeV の α 線を照射した。SiPM アレーに対する印加電圧を -71V とし、測定時間は 1800 秒とした。用いた SiPM アレーは 4×4 の 16 チャンネルの構成であり、16 チャンネルのアナログ信号が 16 本の同軸ケーブルで高速のアンプへと導かれ、さらに重みづけ加算回路

に導かれる。その後、データ収集システムのサンプリング周波数 100 MHz のアナログ-デジタル変換器 (Analog to digital converter : AD converter) でアナログ信号がデジタル化される。フィールドで書き換え可能なゲートアレー (Field-programmable gate array : FPGA) でデジタル的に位置とエネルギーの情報を演算した後、データをメモリに格納し、PC へと伝送される。PC 上で、 α 線の 2 次元分布とパルス波高スペクトルの情報が同時に得られる。このデータ収集装置は PET 装置の開発用のものを用いた²⁵⁾。測定は 5 回ずつ行い、エネルギー分解能とパルス波高値の平均と標準偏差を求めた。

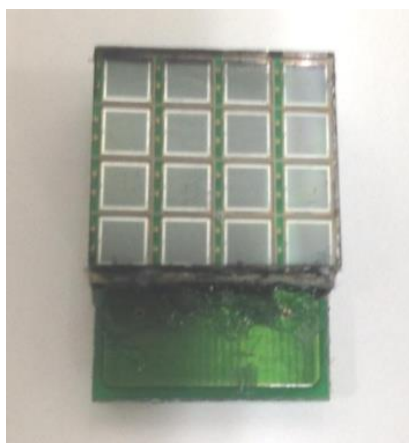


Fig. 2-3 Photograph of SiPM(S11064-025P)

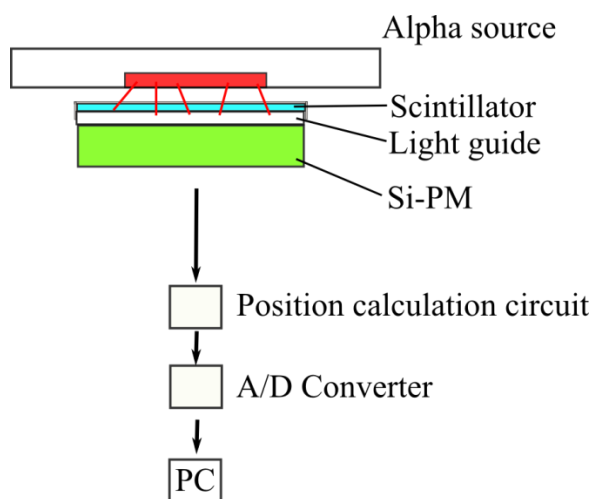


Fig. 2-4 Schematic diagram of performance evaluation system with Si-PM

2-2-4 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関係

光検出器である PMT と SiPM の量子効率分布とシンチレータの発光波長分布はそれぞれ異なるため、その関係を調べた。PMT の量子効率の領域は 300~650 nm、ピークの波長感度は 350 nm であり、SiPM の量子効率の領域は 320~900 nm、ピーク

の波長感度は 440 nm であった。

各シンチレータの発光波長分布は日本分光（株）の分光蛍光光度計 JASCO FP-6500 を用い測定した。励起波長を 290 nm とし、各シンチレータの発光波長分布を測定した。

その後、測定し得られた波長毎のシンチレータの発光波長の値と光検出器の量子効率の値の積を、全ての波長にわたって積分した。この値を積分値と呼ぶこととし、各シンチレータの積分値の比率を、理論的なシンチレータの発光量の相対値と考えることとした。また、SiPM に対する各シンチレータの積分値を PMT に対する各シンチレータの積分値で除した比率を求め、実測の SiPM に対する各シンチレータの波高値を PMT に対する各シンチレータの波高値で除した比率を求め、両者を比較した。

2-3 シンチレータの性能比較結果

2-3-1 エネルギー分解能

光検出器に PMT を用いた時の、各シンチレータのパルス波高スペクトルを Fig. 2-5 に、SiPM を用いた時の各シンチレータのパルス波高スペクトルを Fig. 2-6 に示す。またこのパルス波高スペクトルから求めた各シンチレータのエネルギー分解能とその標準偏差の値を Table 2-2 に示す。光検出器に PMT を用いたときは、GAGG のエネルギー分解能が最も良く、その値は～8.4 %FWHM であった。ZnS(Ag)はエネルギー分解能が最も悪く、その値は～42.8 %FWHM であった。

光検出器に SiPM を用いたときは GAGG のエネルギー分解能が最も良く、その値は～13.0 %FWHM であった。ZnS(Ag)はエネルギー分解能が最も悪く、その値は～43.6 %FWHM であった。5 回測定 of 相対標準偏差は全て 10 %以内であった。

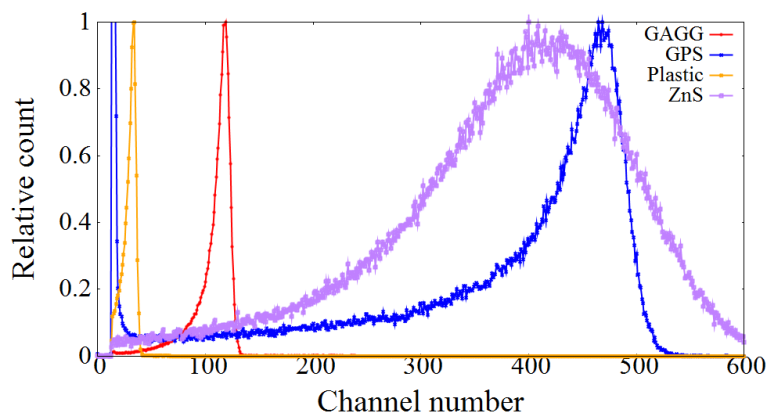


Fig. 2-5 Energy spectra of scintillators for 5.5-MeV alpha particles with PMT

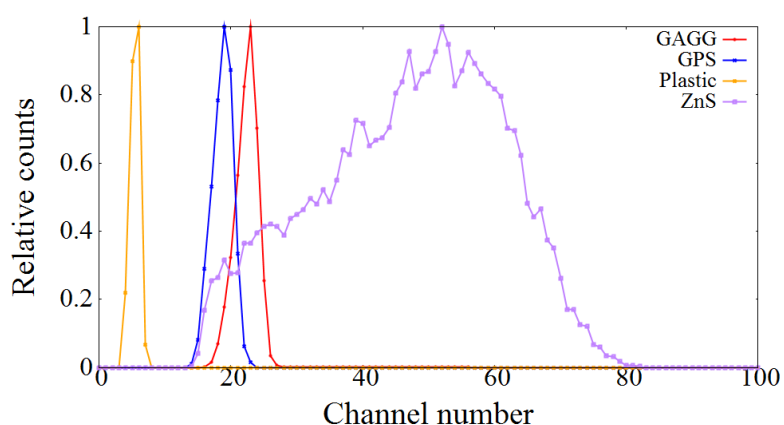


Fig. 2-6 Energy spectra of scintillators for 5.5-MeV alpha particles with SiPM

Table 2-2 Energy resolution of four scintillators with PMT and SiPM

	GPS	ZnS(Ag)	GAGG	Plastic scintillator
Energy resolution with PMT(%FWHM)	9.7±0.6	42.8±1.8	8.4±0.5	16.1±1.6

	GPS	ZnS(Ag)	GAGG	Plastic scintillator
Energy resolution with SiPM (%FWHM)	13.8±0.3	43.6±1.0	13.0±0.3	24.2±0.5

2-3-2 相対波高値

プラスチックシンチレータを1とした相対波高値の大きさを Table 2-3 に示す。光検出器に PMT を用いたときは GPS が最大の波高値で、その値はプラスチックシンチレータの約 14 倍であった。光検出器に SiPM を用いたときは ZnS(Ag)が最大の波高値で、その値はプラスチックシンチレータの約 10 倍であった。

Table 2-3 Relative light output of four scintillators with PMT and SiPM

	GPS	ZnS(Ag)	GAGG	Plastic scintillator
Relative light output with PMT	14.0	12.7	3.6	1

	GPS	ZnS(Ag)	GAGG	Plastic scintillator
Relative light output with SiPM	3.5	10.4	4.6	1

2-3-3 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関係

各シンチレータの発光波長分布と、光検出器である PMT と SiPM の量子効率分布を Fig. 2-7 に示す。ZnS(Ag)は 450 nm 付近に、プラスチックシンチレータは 420 nm 付近にピークを有していた。GPS はより短い 360 nm 付近にピークを有しており、一方、GAGG はより長い 530 nm 付近にピークを有していた。

Table2-4 に、SiPM に対する各シンチレータの積分値を PMT に対する各シンチレータの積分値で除した理論値の比率を示す。この比率が 1 を下回るときは、PMT に対しシンチレータの発光波長分布の適合性が高いことを示す。一方、この比率の値が 1 を上回るときは、SiPM に対しシンチレータの発光波長分布の適合性が高いことを示す。GPS の比率は 0.72 で、PMT に対し発光波長分布の適合性が高かった。ZnS(Ag) の比率は 1.15 で、SiPM に対しわずかに発光波長分布の適合性が高かった。GAGG では 1.88 で、SiPM に対し波長の適合性が高かった。

SiPM に対する実測のパルス波高値を、PMT に対するパルス波高値で除した比率を Table2-4 に示す。理論値と比率は異なるものの、傾向は同様であった。

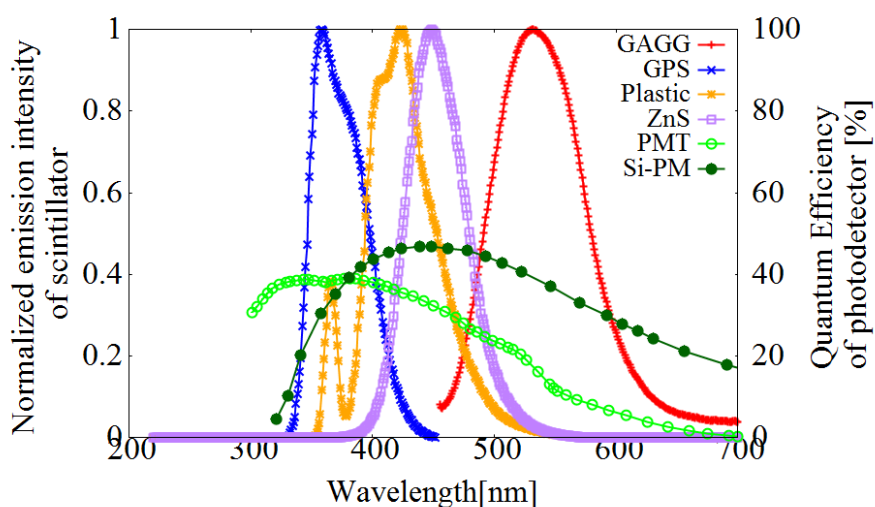


Fig. 2-7 Quantum efficiency distributions of PMT and SiPM and distributions of scintillation wavelengths of four scintillators

Table 2-4 Ratio of integral value (SiPM/PMT)

	GPS	ZnS(Ag)	GAGG	Plastic scintillator
Theoretical ratio (SiPM/PMT)	0.72	1.15	1.88	1.0

	GPS	ZnS(Ag)	GAGG	Plastic scintillator
Measured ratio (SiPM/PMT)	0.25	0.82	1.28	1.0

2-4 考察

エネルギー分解能の評価結果では、PMT と SiPM の両方の光センサーに対し GAGG が最も良い結果であった。この理由として、GAGG は単結晶構造であり、光学的な透明性を有することに加え、プラスチックシンチレータと比較し、発光量が大いいためであると考えられる。

GPS は GAGG に次ぐエネルギー分解能を有していた。GPS は GAGG と構造が異なり、単結晶のシンチレータを細かく粉砕し、ガラス基板上に光学結合したものである。結晶間のエポキシ樹脂の層で α 線のエネルギーの損失があり、エネルギー分解能の劣化をもたらすと考えられる。このような構造の違いがあるにもかかわらず、GPS

のエネルギー分解能は GAGG と大きく違いがなかったため、GAGG と同一の構造、例えば単結晶にすることができた場合には、GAGG を上回るエネルギー分解能が得られる可能性がある。

光学的に透明でない ZnS(Ag)のエネルギー分解能は悪く、PMT に対し～42.8% FWHM、SiPM に対し～43.6%FWHM であった。この悪いエネルギー分解能は、シンチレーション光が ZnS(Ag)に部分的に吸収されることに起因すると考えられる。プラスチックシンチレータのエネルギー分解能は標準的で、PMT に対し～16.1% FWHM、SiPM に対し～24.2%FWHM であった。

2-5 まとめ

GPS、GAGG、ZnS(Ag)、プラスチックシンチレータの4種のシンチレータの比較測定を行った。エネルギー分解能はPMTとSiPMの両方の光センサーに対しGAGGが最も良かった。パルス波高値は、PMTに対してはGPSが、SiPMに対してはZnS(Ag)が最も大きかった。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との関係から、GPSとPMTが、GAGGとSiPMが最適な組み合わせであることが明らかになった。

第3章 SiPM を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の開発

3-1 緒言

軽水炉や高速増殖炉に用いられる MOX 燃料の製造施設での Pu 汚染の検知は作業者の内部被ばくを防ぐため極めて重要なものである。Pu の汚染検知のためには、一般に α 線用サーベイメータやハンドフットクロズモニタが用いられる。これらの機器が有意な α 線の計数を示したとき、その α 線計数が Pu 汚染によるものかラドン子孫核種によるものか判定がなされる。現在は、SSBD を用いた α 線のスペクトル測定や ZnS(Ag)増感オートラジオグラフィ法を用いて Pu とラドン子孫核種の弁別が行われている。これらの手法には、幾つかの問題点が存在する。SSBD を用いる方法は、ラドン子孫核種の濃度が高い場合、例えば、空気捕集ろ紙の採取直後の測定は、Pu とラドン子孫核種の識別が困難である。ZnS(Ag)増感オートラジオグラフィ法は汚染箇所の直接の測定が不可能であり、汚染が確認された場所から試料を採取しなければならないため、大きな労力を要する。さらに、ZnS(Ag)増感オートラジオグラフィ法は長い露光時間を要し、Pu の迅速な判断が難しい⁸⁾。

この問題を解決するため、0.05 mm 厚のプラスチックシンチレータと PSPMT を用いた α 線位置検出器が開発された¹⁰⁾。この α 線位置検出器は、5.5 MeV の α 線に対し、3 mmFWHM の空間分解能と $\sim 15\%$ FWHM のエネルギー分解能を有していた。しかしながら、迅速な Pu 検知のためには、より高い空間分解能、エネルギー分解能が要求される。また、PSPMT は厚みが大きいため、現場設備の汚染検査を行う際、測定できない領域が存在する。例えば、GB のバッグイン・バッグアウトポート内の隙間や配管のフランジ部等の測定は困難である。

近年、新しい光検出器である SiPM が開発され、陽電子放射型断層撮像装置 (Positron Emission Tomography: PET) や高エネルギー物理の研究領域で SiPM を用いた装置開発が行われている²⁵⁻²⁷⁾。SiPM は PSPMT に対し、高い増倍率を有する、高い光の検出効率を有する、低電圧で動作する、サイズがコンパクトである等の、多くの利点を有する。そこで、SiPM を用い、Pu の迅速検知に有効な、高空間分解能、高エネルギー分解能を有し、かつ検出器サイズの小さなエネルギー弁別・位置検出器の開発を行った。

3-2 SiPM を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の開発

3-2-1 検出器部

開発したエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の概念図を Fig. 3-1 に示す。2章の結果で SiPM に対して最もエネルギー分解能の良かった GAGG をシンチレータとして用いた。用いた GAGG の外観写真を Fig. 3-2 に示す。GAGG は 3mm 厚のアクリルライトガイドを介して SiPM アレーに光学結合した。光学結合には、信越化学工

業（株）のシリコーンシーラント、KE-420 を用いた。検出器表面は、SiPM と反対方向に放出される発光も効率よく収集するために、反射材であるアルミ蒸着マイラーで GAGG を覆った。また、シンチレータ内の迷光を防ぐため、検出器の側面をマジックで黒く塗った。実際の性能評価では、 ^{241}Am の線源をアルミ蒸着マイラーの上に置き、5.5 MeV の α 線を照射した。アルミ蒸着マイラーを通過した α 線は GAGG 内で吸収され、シンチレーション光を生じる。シンチレーション光はライトガイド内で広がり、SiPM アレーの各チャンネルで検出される。アンガー原理に基づく重心計算²⁸⁾により、 α 線の入射位置が決定される。

SiPM アレーには浜松ホトニクス（株）の MPPC、S11064-050P を用いた。Fig. 3-3 にその外観写真を示す。このアレーは、SiPM のチャンネルサイズが $3 \times 3 \text{ mm}^2$ であり、このチャンネルが 4×4 に配列されている。ピクセル数は 3600 で、1 ピクセルのサイズは $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ であった。SiPM アレーのサイズは $18 \text{ mm} \times 16 \text{ mm}$ 、厚みは 3.3 mm である。

GAGG は自己放射能を有さず、密度は 6.6 g/cm^3 、減衰時間が 90 ns、発光量は 46,000 photons/MeV である²⁹⁾。GAGG の最適な厚みを推定するため、ラドン子孫核種のうち ^{214}Po の 7.7 MeV α 線の GAGG 内での飛程をモンテカルロ法による放射線輸送計算コードで計算した。輸送計算コードには Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) を使用した³⁰⁾。PHITS を用いたシミュレーションの体系図を Fig. 3-4 に示す。シミュレーション内の GAGG の密度は実際と同様 6.6 g/cm^3 、 α 線入射エネルギーは 7.7 MeV とした。 α 線を GAGG に対し垂直方向に入射し、深さ方向の線量分布を Deposit Tally[T-deposit]で計算した。GAGG 内の深さ方向の線量分布を Fig. 3-5 に示す。7.7 MeV α 線の最大飛程は約 $20 \mu\text{m}$ であった。しかしながら、厚みを $20 \mu\text{m}$ にするには技術的に困難であるため、今回は製造上の限界である 0.1 mm の厚みのものを用いた。

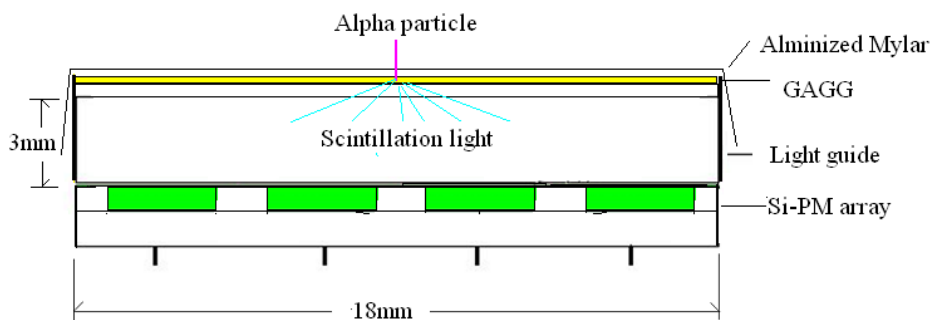


Fig. 3-1 Schematic diagram of our developed detector

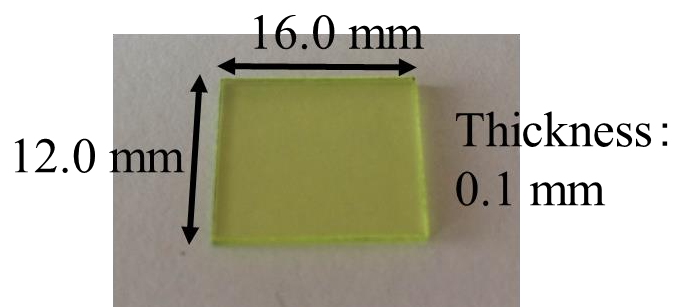


Fig. 3-2 Photograph of GAGG scintillator

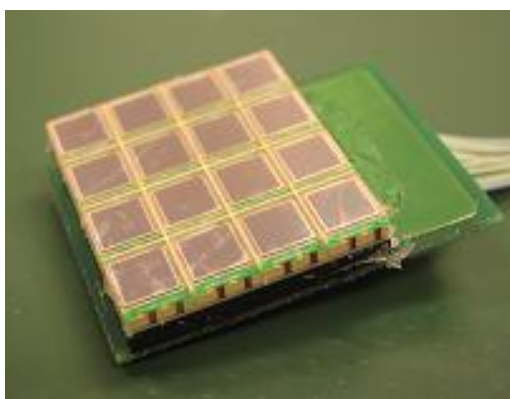


Fig. 3-3 Photograph of SiPM array used for detector (S11064-050P)

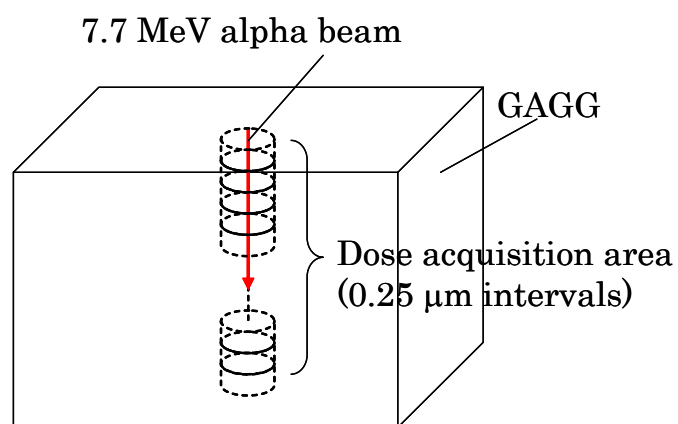


Fig. 3-4 Schematic diagram of simulation of absorbed dose of 7.7-MeV alpha particles in GAGG

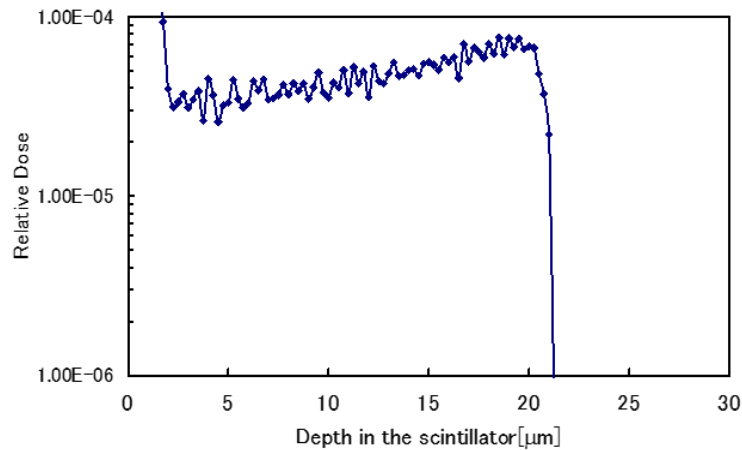


Fig. 3-5 Depth dose in GAGG with 7.7-MeV alpha particles

3-2-2 データ収集部

SiPM アレーの 4×4 の信号は 16 本の同軸ケーブルで読みだされ、高速のアンプに導かれる。アンプからの出力が重みづけ加算回路に導かれた後、データ収集システムの AD 変換器でサンプリング周波数 100 MHz でアナログ信号がデジタル信号に変換される。デジタル的に位置情報とエネルギー情報はメモリに格納され、PC に伝送される。データ収集システムは 2 章で説明したものと同一ものを用いた。

3-2-3 基本性能の評価方法

エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の基本性能の評価を行った。すべての項目において、 α 線源には、 ^{241}Am を使用した。SiPM は温度依存があるため³¹⁾、室温を 24°C で維持した。SiPM アレーに対する印加電圧は -71V とした。

3-2-3-1 空間分解能

空間分解能は PuO_2 粒子の識別性能の指標となる重要な性能である。空間分解能は、X 線イメージング装置に用いられるタングステン分解能チャートを用い評価した。タングステン分解能チャートの外観写真を Fig. 3-6 に示す。タングステン分解能チャートをエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の上に置き、その上に ^{241}Am 線源を配置し、 α 線を照射した。タングステン分解能チャートのスリットの 1.25、1.6、2.0 line pairs/mm の部分の画像を取得した。得られたスリットの画像に対し、垂直方向の強度プロファイルを画像解析ソフトウェア、ImageJ を用い測定し、強度プロファイルの山と谷の比 (Peak-to-valley ratio : P/V) を評価した。空間分解能の値は、強度プロファイルの山と谷が弁別できる最小のスリット幅で決定した³²⁾。以下の式で空間分解能を求めた。

SR=1/LP

(1)

ここで、SRは空間分解能、LPは弁別できる最小 line pairs/mm である。LPはP/Vの値から決定した。



Fig. 3-6 Tungsten resolution chart used for spatial resolution evaluation

3-2-3-2 空間直線性

空間直線性は、直線性評価ファントムを用いて評価した。Fig. 3-7に直線性評価ファントムの外観写真を示す。スリット幅は1 mmで4 mm間隔、厚みは2 mmである。空間直線性評価ファントムをエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の上に置き、その上に ^{241}Am 線源を配置することで、 α 線を検出器に照射した。空間直線性ファントムの画像を取得した後、ImageJを用い、画像の垂直方向と水平方向の強度プロファイルを取得した。

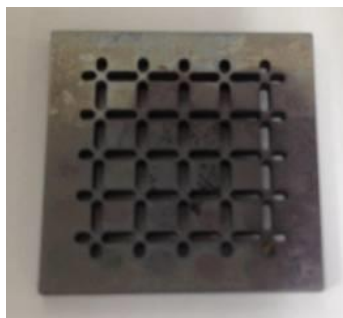


Fig. 3-7 Linearity phantom for evaluation of spatial linearity

3-2-3-3 均一性

均一性の評価のため、エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の上にファントムがない状態で、検出器表面から ^{241}Am 線源の距離を1 cm程度離すことで、均一に α 線を照射し画像を得た。ImageJを用い、得られた画像の垂直方向と水平方向の強度プロファイルを取得した。

3-2-3-4 エネルギー分解能

エネルギー分解能は、 PuO_2 とラドン子孫核種の識別性能の指標となる重要な性能である。エネルギー分解能の評価のため、 ^{241}Am 線源を検出器の上に密接して置き α 線を照射し画像を得た。得られた画像に対し中心付近に関心領域を設定し、関心領域内の波高スペクトルを求めた。波高スペクトルに対し、ガウス分布フィッティングを行い、半値幅を評価した。またその半値幅からエネルギー分解能を評価した。

3-2-3-5 文字のファントムの画像化

総合的な画像の評価のため、“B”の文字のファントムをエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の中心に置き、画像を取得した。Fig. 3-8 に文字のファントムの外観写真を示す。“B”の文字のファントムを検出器上に置き、その上に ^{241}Am 線源を配置することで α 線を照射し画像を得た。使用した文字ファントムの文字の部分のスリットは 1 mm 幅で、ファントムの厚みは 2 mm であった。

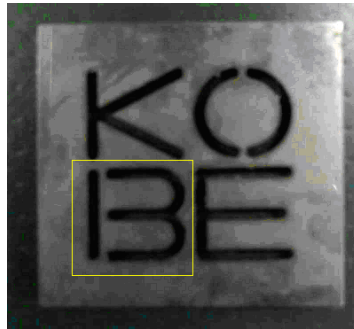


Fig. 3-8 Character phantom used for image evaluation. Yellow square is the imaged area.

3-2-3-6 バックグラウンド計数の評価

環境放射線からのバックグラウンド計数の評価は低レベルの PuO_2 汚染を検知する際に重要である。バックグラウンド計数率とその波高スペクトルは、周りに線源等がない状態で 12 時間の測定を行い、評価した。

3-2-4 基本性能の評価結果

3-2-4-1 空間分解能

タングステン分解能チャートのスリットの 1.25、1.6、2.0 lp/mm の画像を Fig. 3-9 に示す。1.6 lp/mm のスリットは視覚的に山と谷が識別できている。1.6 lp/mm のスリットに対し垂直方向に測定した強度プロファイルを図 3-10 に示す。P/V の平均値は 1.27 でありスリットの山と谷が識別できていた。式 (1) で空間分解能を評価したところ、空間分解能は 0.6 mm FWHM であった。

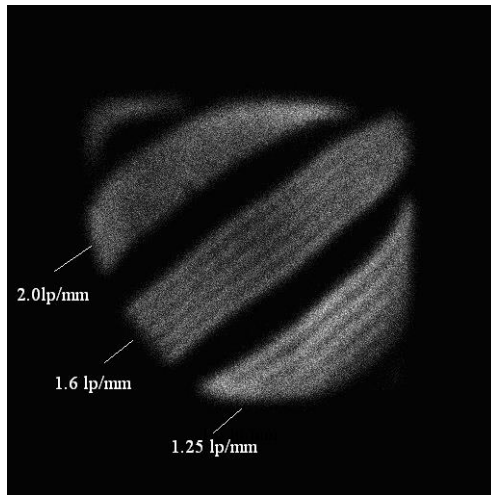


Fig. 3-9 Image of slit chart measured by alpha-particle imaging system

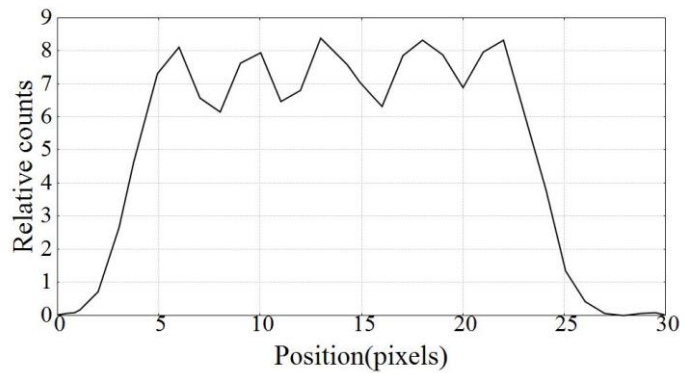


Fig. 3-10 Intensity profile of 1.6 lp/mm slit

3-2-4-2 空間直線性

直線性ファントムを撮像した画像を Fig. 3-11 に示す。1mm のスリットを完全に弁別できている。また視覚的に、画像上に大きな歪みは確認されなかった。

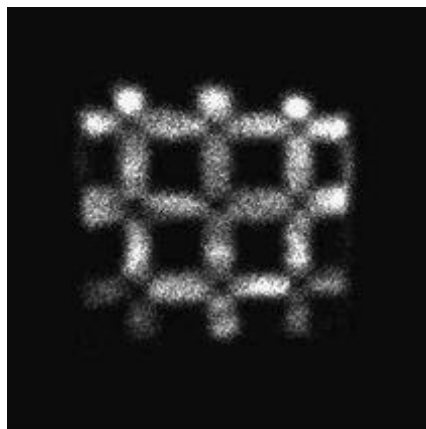


Fig. 3-11 Image of spatial linearity phantom measured by alpha-particle imaging system

3-2-4-3 均一性

^{241}Am 線源から均一に α 線を照射した得られた画像を Fig. 3-12 に示す。Fig. 3-13 に水平方向に測定した強度プロファイルを、Fig. 3-14 に垂直方向に測定した強度プロファイルを示す。有効視野内の中心 75%以内の均一性は $\pm 24\%$ であった。

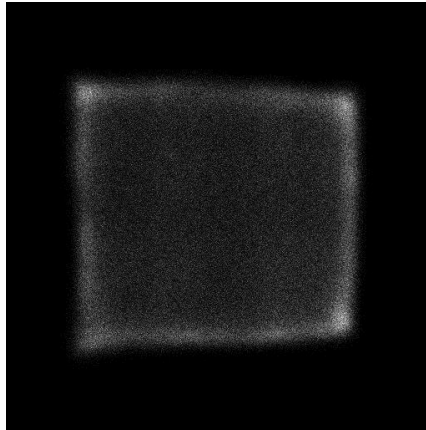


Fig. 3-12 Image of uniform source

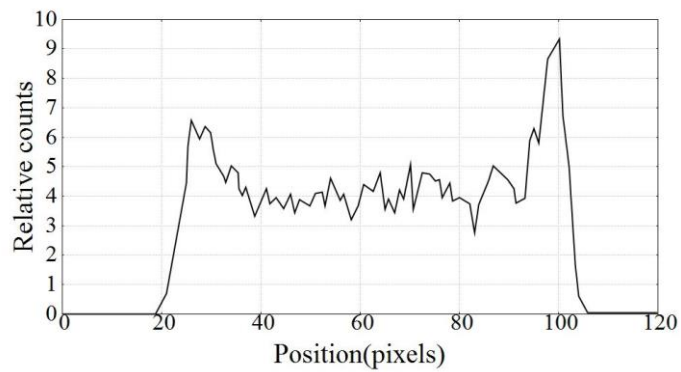


Fig. 3-13 Intensity profile of horizontal direction

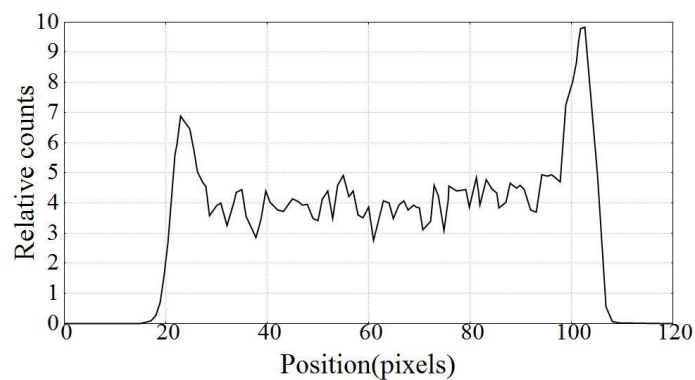


Fig. 3-14 Intensity profile of vertical direction

3-2-4-4 エネルギー分解能

測定した ^{241}Am のパルス波高スペクトルを Fig. 3-15 に示す。エネルギー分解能は 13 %FWHM であった。

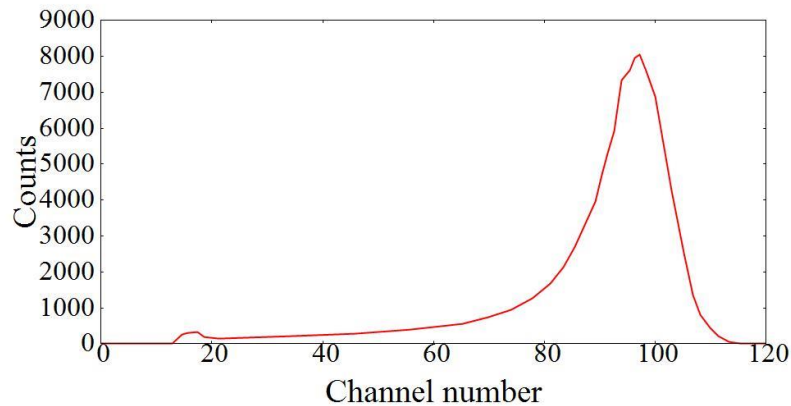


Fig. 3-15 Energy spectrum of system for ^{241}Am alpha particle

3-2-4-5 文字のファントムの画像化

Fig. 3-16 に”B”の文字のファントムを撮像し得られた画像を示す。”B”の文字の 1mm のスリットがはっきりと識別できている。

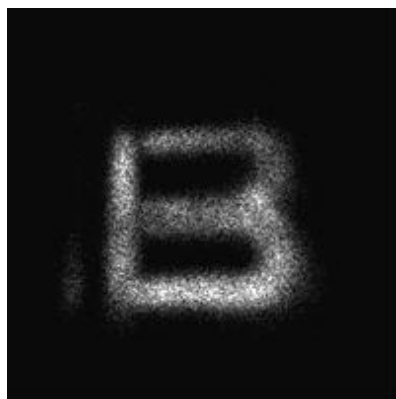


Fig. 3-16 Image of character phantom “B” measured by imaging system

3-2-4-6 バックグラウンド計数の評価

Fig. 3-17 にバックグラウンド計数を測定した画像を、Fig. 3-18 にバックグラウンド計数のパルス波高スペクトルを示す。バックグラウンド計数率は 0.066 cps であった。画像上に均一に計数が確認され、パルス波高スペクトルは低エネルギーの領域に分布していた。

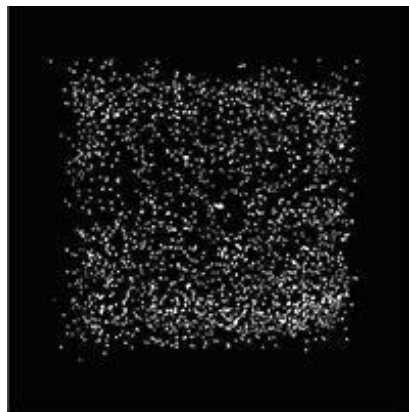


Fig 3-17 Image of background measured for 12 hours

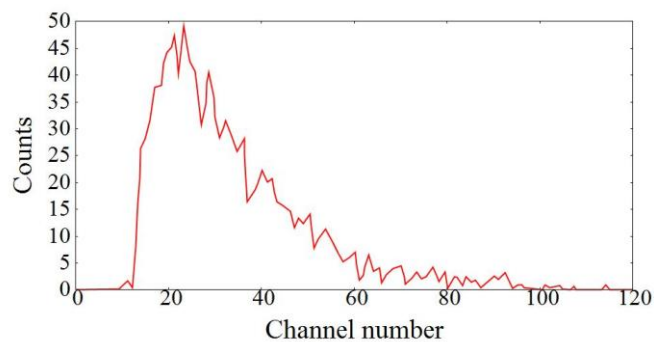


Fig 3-18 Energy spectrum of background measured for 12 hours

3-3 考察

SiPM と GAGG を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発した。その空間分解能は 0.6 mm FWHM であり、過去に開発されたプラスチックシンチレータと PSPMT を用いた α 線位置検出器の空間分解能 3.0 mm FWHM を上回るものであった。空間分解能が高い場合、 PuO_2 粒子のスポットが少ないピクセルの範囲に集まって計測されるため、ラドン子孫核種の存在下における PuO_2 粒子の検知能の向上につながる。エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器のエネルギー分解能は 13%FWHM であり、過去に開発されたプラスチックシンチレータと PSPMT を用いた α 線位置検出器の 15%FWHM より良かった。エネルギー分解能が高い場合、 ^{238}Pu の 5.5 MeV や ^{239}Pu の 5.15 MeV の α 線とラドン子孫核種の ^{214}Po の 7.7 MeV の α 線との識別性能が向上する。

エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器のバックグラウンド計数率は比較的 low、0.066 cps であった。これは環境中の β 線や γ 線によるものと考えられる。環境中の β 線や γ 線の吸収されるエネルギーは α 線により吸収されるエネルギーよりも低く、Fig3-18 の波高スペクトルからも分かる通り、低いチャンネルに計数が確認される。低いチャンネルの計数を除去することにより、バックグラウンド計数率は PuO_2 のモニタリングに大きく影響しないと考えられる。GAGG の厚みを α 線の飛程相当まで薄

くすることができれば、さらなるバックグラウンドの計数率の低減が期待できる。

Fig. 3-12 の均一性の評価の画像で辺縁に高い計数の領域が見られる。この高い計数の領域は、画像の歪みによるものである。この歪みは Fig.3-11 でも同様に確認される。この歪みはアンガー原理による計算のため生じるものであり、シンチレーションカメラでは同様の歪みが確認される。この歪みを低減するためには、画像の歪み補正法^{33) 34)}が有用であろう。

今回開発したエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器には SiPM に対する温度補償回路を含めていない。そのため測定中は室温を一定に保っている。しかしながら、施設内における測定では、温度変化の影響を受けるものと考えられる。その場合、SiPM に対する温度補償回路を用いることにより、温度変化の影響を改善することができると考えられる³¹⁾。

PSPMT を用いた α 線位置検出器はその厚みが 30 mm より厚い。一方で、開発した、SiPM を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器は、その厚みが約 6 mm と非常に薄い。薄い検出器は、Pu 施設における設備の狭い領域のダイレクトサーベイ、例えば GB のバッグイン・バッグアウトポート内の隙間や配管のフランジ部等の PuO₂ の検知に有効であると考えられる。

3-4 まとめ

SiPM と GAGG を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発した。エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器は、高空間分解能、高エネルギー分解能を有しており、ラドン子孫核種存在下における PuO₂ の検知に有効であると考えられる。検出器の厚みが薄いという利点も有するため、特に設備の狭い領域での PuO₂ の検知に有用であると期待される。

第4章 TSV-SiPM を用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の開発

4-1 緒言

SiPM と GAGG を用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、過去に開発されたプラスチックシンチレータと PSPMT を用いた α 線位置検出器を上回る空間分解能、エネルギー分解能が得られた。しかし、開発したエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器のサイズは、用いた SiPM アレーである S11064-050P のサイズである 18 mm \times 16 mm に限られた。現場での実用性を考慮すると、より大きな有効視野を有するエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の開発が必要となる。例えば、現場の放射線管理では、作業者の身体や設備の汚染検査に加え、作業環境空気のモニタリングのため、空気をろ紙上に捕集し測定を行っているが、ろ紙のサイズは 48 mm ϕ のものが用いられている。ろ紙上の PuO₂ の汚染の測定を行うためには、エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の有効視野が 50 mm \times 50 mm 程度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 が浜松ホトニクスで開発された³⁵⁻³⁸⁾。この TSV-SiPM は小さいギャップでアレーを構成することができ、ギャップでの光のロスが少ない利点がある。さらに、従来の SiPM である 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 α 線検出器を開発した。

4-2 TSV-SiPM を用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の開発

4-2-1 検出器部

大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の光検出器には、浜松ホトニクスの TSV-MPPC、S12642-0404PA-50 を用いた。その外観写真を Fig.4-1 に示す。また、Table4-1 に用いた SiPM アレーと TSV-SiPM アレーの性能の比較を示す^{39,40)}。TSV-SiPM はギャップが小さいことに加え、ノイズ成分であるダークカウントが低減している。TSV-SiPM アレーは、1つのアレーあたり 4 \times 4 チャンネルの構成であるが、開発した検出器では、このアレーを 2 \times 2 に配置し、チャンネルを 8 \times 8 に配置して用いた。この検出器のサイズは 26 mm \times 26 mm である。TSV-SiPM アレーに対して、-65V の電圧を印加し、2 \times 2 の TSV-SiPM アレーが同じゲインとなるように調整した。

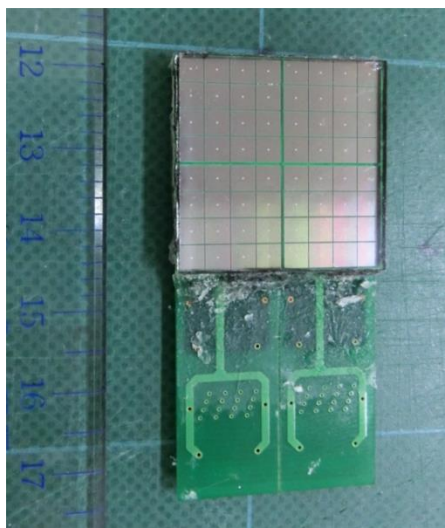
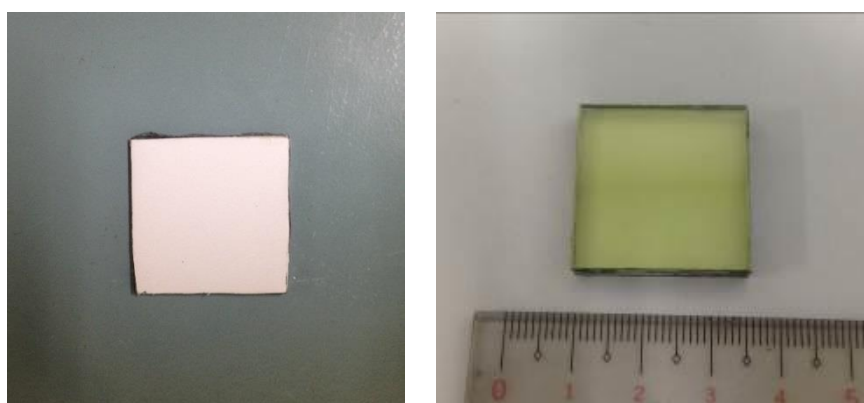


Fig. 4-1 Photograph of TSV-SiPM

Table 4-1 Comparison between SiPM and TSV-SiPM^{39 40)}

	SiPM	TSV-SiPM
Effective area (mm)/channel	3x3	3x3
Pixel size (μm)	50x50	50x50
Number of pixels/channel	3584	3600
Gap between active areas (mm)	1.05 and 1.5	0.2
Dark count, Typ.(Mcps)	6	2

TSV-SiPM と光学結合するシンチレータには、今回 2 種類のシンチレータ、ZnS(Ag) と GAGG を用いた。シンチレータのサイズは TSV-SiPM アレーと同じ 26 mm×26 mm とした。GAGG に加え ZnS(Ag)を用いた理由は、2 章の評価において、SiPM に対し ZnS(Ag)が最も大きなパルス波高を示しており、GAGG と異なる利点を有するエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器が開発できると考えたためである。Fig. 4-2 に ZnS(Ag)と GAGG の外観写真を、Table4-2 に ZnS(Ag)と GAGG の基本的な特性を示す。ZnS(Ag)の厚みは 10 mg/cm²、GAGG の厚みは 0.1mm ものをを用いた。GAGG は 1mm 厚のガラス基板に光学的に結合されたものを用いた。



(a)

(b)

Fig. 4-2 Photographs of ZnS(Ag)(a) and GAGG (b)

Table 4-2 Basic properties of ZnS(Ag) and GAGG

	ZnS(Ag)	GAGG
Light output (photons/MeV)	49,000	46,000
Density(g/cm ³)	4.09	6.63
Hygroscopy	No	No

開発した大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の概念図を Fig. 4-3 に示す。シンチレータとアクリルライトガイド及び TSV-SiPM アレーを光学的に結合した。アクリルライトガイドには三菱レイヨン（株）の Acrylite No.000 を、光学結合には、信越化学工業（株）の KE-420 を用いた。アクリルライトガイドの厚みを変えながら画像を取得し、最終的に画像上の歪みの少ない厚みとした。ライトガイドの厚みは、ZnS(Ag)は 3 mm、GAGG では 2 mm とした。シンチレータとライトガイドの側面は、迷光を防ぐためマジックで黒く塗った。

GAGG が ZnS(Ag)に比べライトガイド厚が薄い理由は、GAGG は単結晶の構造でかつ屈折率が 1.93 と高いため、シンチレーション光が屈折し、外側に広がるためである。シンチレータは反射材であるアルミ蒸着マイラーで覆った。開発した大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の外観写真を Fig. 4-4 に示す。

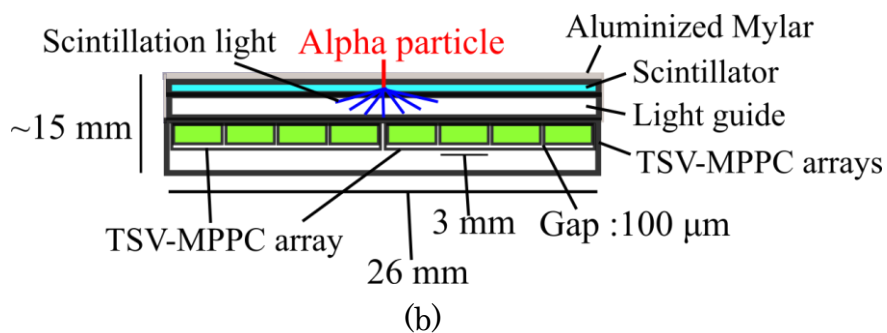
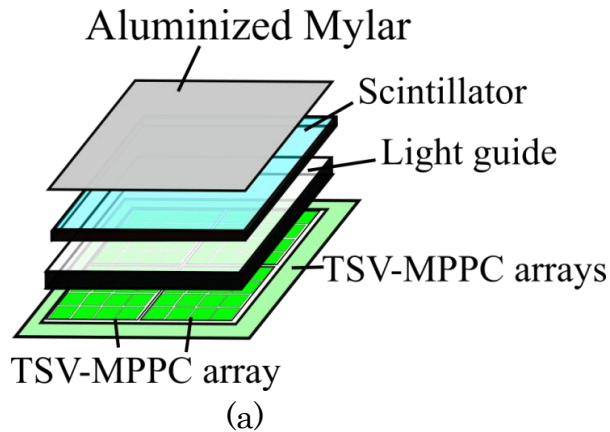


Fig. 4-3 Schematic drawing of developed large FOV alpha camera: Overview (a) and cross section (b)

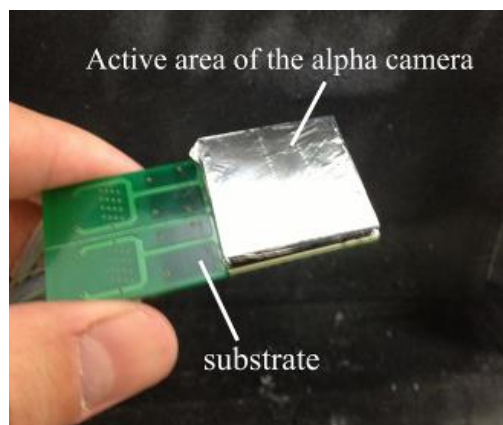


Fig. 4-4 Photograph of developed large FOV alpha camera

信号処理回路のブロック図を Fig. 4-5 に示す。TSV-SiPM アレーからの信号は、64本の同軸ケーブルで読み出され、重みづけ加算回路へ伝送される。重みづけ加算回路から X⁺、X⁻、Y⁺、Y⁻の信号が出力され、A-D 変換器でアナログ信号がデジタル信号に変換される。その後、FPGA で α 線の入射位置がデジタル的に重心計算され、エネルギー情報と位置情報が PC へと伝送される。データ収集システムは 2 章及び 3 章で説明したものと同一である。

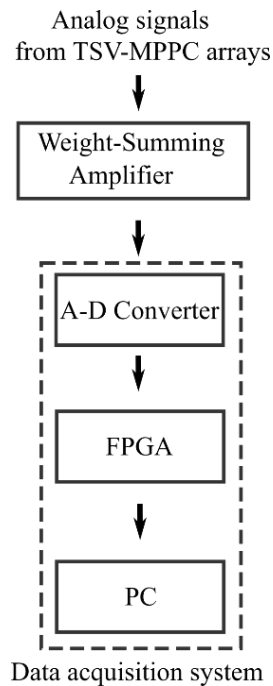


Fig. 4-5 Block diagram of signal processing

4-2-2 基本性能の評価方法

開発した大面積エネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の基本性能の評価を行った。基本性能の評価には ^{241}Am 線源を使用した。均一性の評価には $10\text{ cm}\times 10\text{ cm}$ の大面積 ^{241}Am 線源を、空間直線性の評価には $1\text{ cm}\times 1\text{ cm}$ の放射能 2 MBq の ^{241}Am 線源を用いた。SiPMは温度依存があるため、室温を 24°C で維持して測定を行った。

4-2-2-1 空間分解能

空間分解能は3-2-3-1と同様のタングステン分解能チャートを用いて評価した。タングステン分解能チャートをエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の上に置き、その上に ^{241}Am 線源を配置して、 α 線を照射した。得られたスリットの画像に対し、垂直方向の強度プロファイルを測定し、強度プロファイルのP/Vを評価した。空間分解能は3-2-3-1の式(1)を用いて評価した。

4-2-2-2 エネルギー分解能

エネルギー分解能の評価のため、 ^{241}Am 線源を検出器の上に密接して置き α 線を照射した状態で画像を得た。得られた画像に対し中心付近に関心領域を設定し、関心領域内の波高スペクトルを得た。波高スペクトルに対しガウス分布フィッティングを行い、半値幅を評価した。その半値幅からエネルギー分解能を評価した。

4-2-2-3 空間直線性

空間直線性は Fig. 4-6 の格子状のファントムを用いて評価した。格子状のファントムの孔の間隔は 2 mm、厚みは 5 mm であった。測定時間を短縮するために強度の強い 1 cm×1 cm の ^{241}Am の位置を変えながら測定を行った。得られた画像の強度プロファイルから画像上の孔間の距離を計算し、その相対標準偏差を評価した。

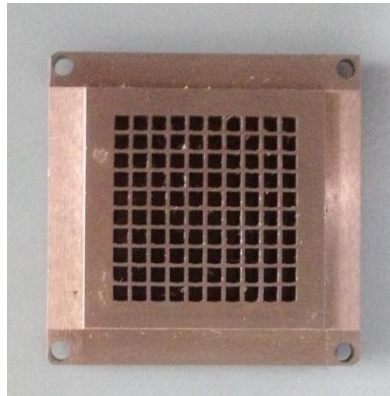


Fig. 4-6 Tungsten resolution chart used for grid phantom for linearity evaluation

4-2-2-4 均一性

均一性の評価のため、10×10 cm の 3kBq の大面積 ^{241}Am 線源を検出器の上に置き、測定を行った。得られた画像の中心付近に関心領域を設定し、各ピクセル値の相対標準偏差を評価した。測定時間は約 5 時間とした。

4-3 基本性能の評価結果

4-3-1 空間分解能

ZnS(Ag)をシンチレータに用い、タングステン分解能チャートを撮像して得た画像を Fig. 4-7 に、また、画像の 2.5 lp/mm のスリットに対して垂直方向に測定した強度プロファイルを Fig. 4-8 に示す。2.5 lp/mm のスリットに対する平均の P/V は 1.13 であり、スリットは弁別できていた。この結果から、空間分解能は 0.4 mmFWHM と評価された。

GAGG をシンチレータに用い、タングステン分解能チャートを撮像して得た画像を Fig. 4-9 に、画像の 1.6 lp/mm のスリットに対して垂直方向に測定した強度プロファイルを Fig. 4-10 に示す。1.6 lp/mm のスリットに対する平均の P/V は 1.25 であり、スリットが弁別できていた。この結果より、空間分解能は 0.625 mmFWHM と評価された。この空間分解能の値は、3-2-4-1 の SiPM アレーを用いた結果と同等であった。

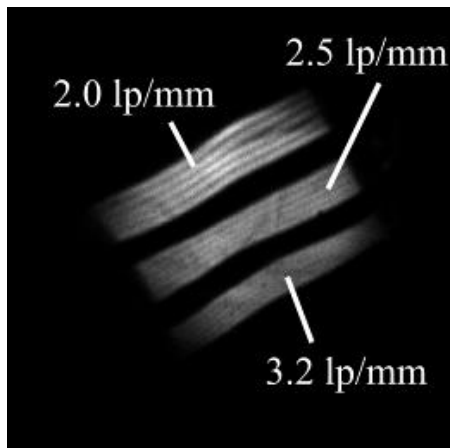


Fig. 4-7 Acquired images of tungsten resolution chart with ZnS(Ag)

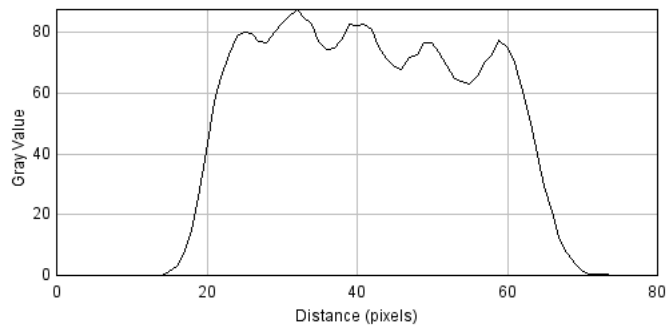


Fig. 4-8 Intensity profiles of the images with the smallest resolvable bar pattern of 2.5 lp/mm

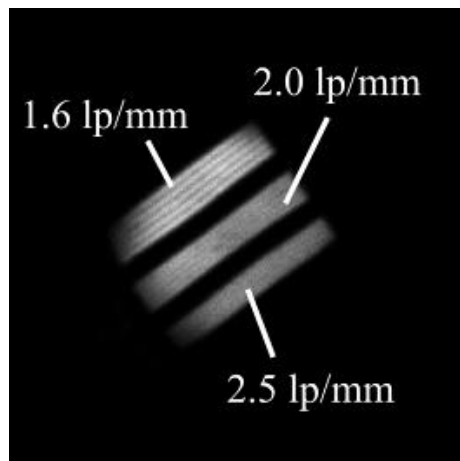


Fig.4-9 Acquired images of tungsten resolution chart with GAGG

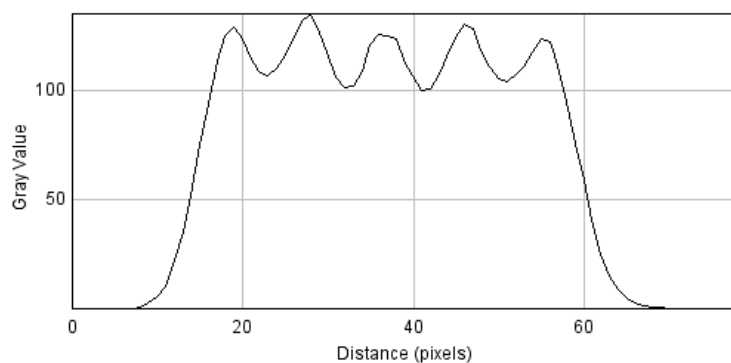


Fig. 4-10 Intensity profiles of the images with the smallest resolvable bar pattern of 1.6 lp/mm

4-3-2 エネルギー分解能

ZnS(Ag)をシンチレータとして用いた時のパルス波高スペクトルを Fig. 4-11 に示す。エネルギー分解能は 42.7 %FWHM であった。また、Fig. 4-12 に GAGG をシンチレータとして用いた時のパルス波高スペクトルを示す。エネルギー分解能は 13.8 %FWHM であった。この GAGG に対するエネルギー分解能の結果は、3-2-4-4 の SiPM アレーを用いた結果と同等であった。

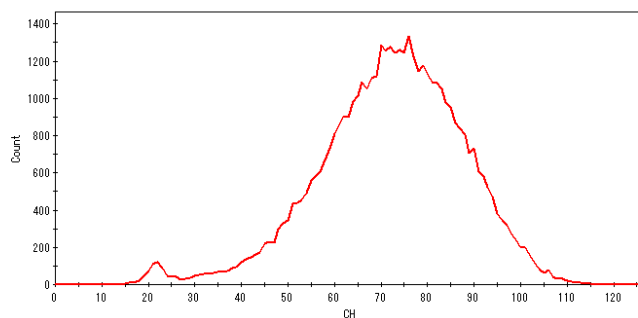


Fig. 4-11 Energy spectrum of 5.5 MeV alpha particles with ZnS(Ag)

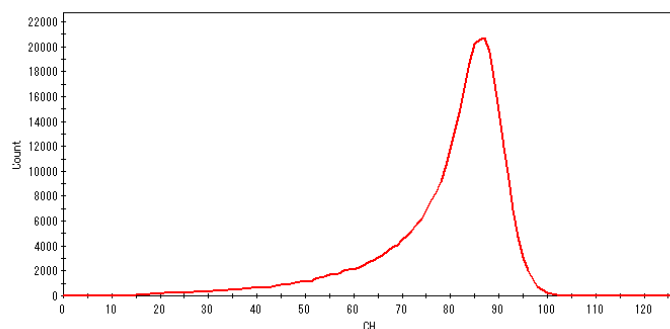


Fig. 4-12 Energy spectrum of 5.5 MeV alpha particles with GAGG

4-3-3 空間直線性

ZnS(Ag)をシンチレータとして用い、格子状のファントムを撮像した画像を Fig. 4-13 に、画像に対し水平方向に測定した強度プロファイルを示す。孔の間の距離の標準偏差は 8.46%であった。一方、GAGG をシンチレータとして用い、格子状のファントムを撮像した画像を Fig. 4-15 に、画像に対し水平方向に測定した強度プロファイルを示す。孔の間の距離の標準偏差は 6.46%であった。

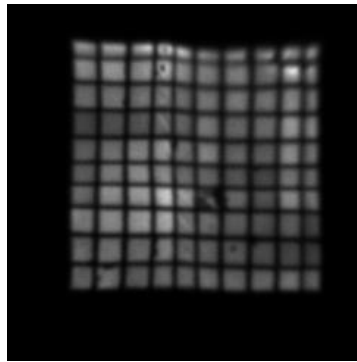


Fig. 4-13 Acquired image of grid phantom with ZnS(Ag)

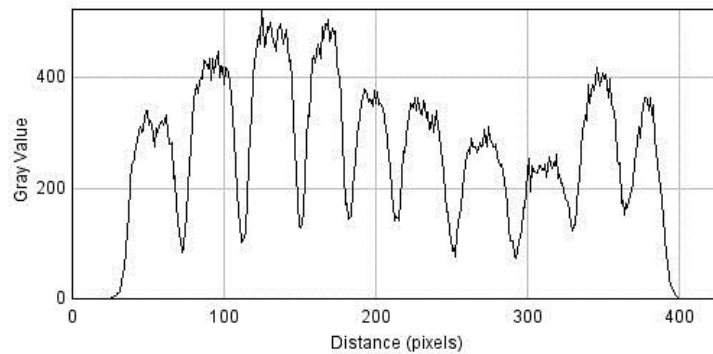


Fig. 4-14 intensity profiles of horizontal direction of acquired image

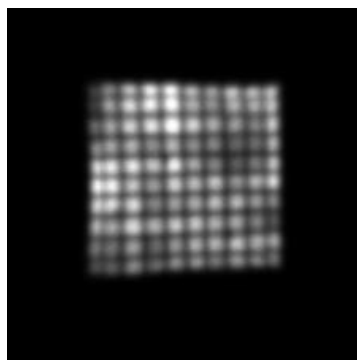


Fig. 4-15 Acquired image of grid phantom with GAGG

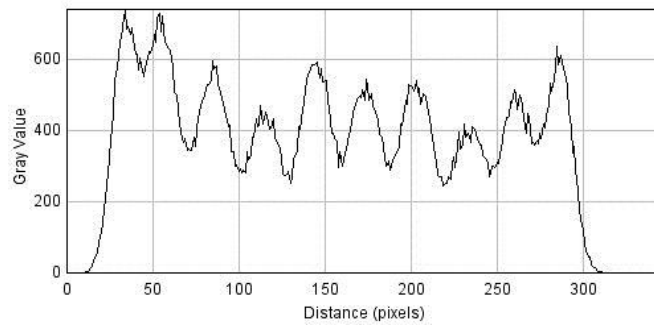


Fig. 4-16 intensity profiles of horizontal direction of acquired image

4-3-4 均一性

ZnS(Ag)をシンチレータとして用い、大面積の ^{241}Am α 線源を撮像した画像を Fig. 4-17 に示す。また GAGG シンチレータとして用い、大面積の ^{241}Am α 線源を撮像した画像を Fig. 4-18 に示す。図中の四角の領域は、評価に用いた関心領域を示す。相対標準偏差は、ZnS(Ag)をシンチレータとして用いた検出器に対して 25.1 %、GAGG をシンチレータとして用いた検出器に対しては 19.4 %であった。

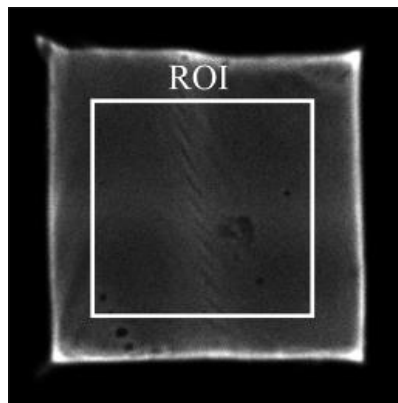


Fig. 4-17 Acquired images of large uniform source of ^{241}Am with ZnS(Ag)

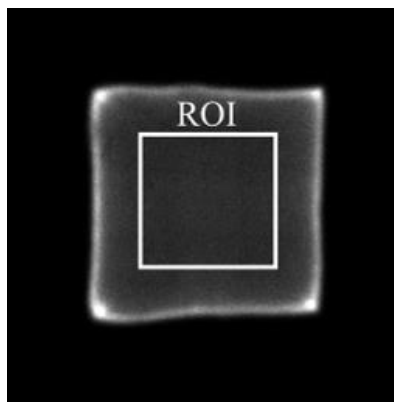


Fig. 4-18 Acquired images of large uniform source of ^{241}Am with GAGG

4-4 考察

TSV-SiPM アレーを用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、その基本性能の評価を行った。TSV-SiPM アレーを用いたこの検出器の空間分解能とエネルギー分解能は SiPM アレーを用いた時と、ほぼ同等であった。今回は、 2×2 で構成した $26 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$ のサイズの TSV-SiPM アレーを用いたが、より多くの TSV-SiPM アレーで構成することにより、さらなる大面積化が可能である。例えば、 4×4 の構成とすることによりサイズが $50 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$ が実現でき、 48 mm ϕ のろ紙を 1 度に測定することが可能になる。大面積化する際、一つ一つの TSV-SiPM の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大きいと、その影響を受け、空間分解能やエネルギー分解能が劣化する可能性があった。しかし、用いた TSV-SiPM アレーである S12642-0404PA-50 は、ウエハのプロセス等の改良により、ノイズ成分が大幅に低減しており、大面積化に適すと考えられる。検出器の厚みも 15 mm 以下であり、現場の GB 等の設備の狭い領域でも PuO_2 汚染検知に有用であると考えられる。

シンチレータである ZnS(Ag) と GAGG は異なる利点を有していた。GAGG はその透明性のため、エネルギー分解能が $13.8 \% \text{FWHM}$ と良い利点を有したが、空間分解能は 0.625 mmFWHM であり、ZnS(Ag) の 0.4 mmFWHM より劣っていた。2-2-2 の結果を見ると、GAGG のパルス波高値の大きさは、ZnS(Ag) の 0.44 倍である。光検出器に入射するシンチレーション光の数が多いほど空間分解能は向上するため、GAGG は ZnS(Ag) に比べ空間分解能が劣ると考えられる。GAGG のパルス波高値の大きさが ZnS(Ag) より小さい理由は、GAGG が単結晶構造であり屈折率が 1.93 と高く、ライトガイドとの境界でシンチレーション光の一部が内部で全反射し、側面へと到達してしまい、光検出器に届いていないためであると考えられる。この点を改善できれば、GAGG をシンチレータとして用いた時の空間分解能を向上できる可能性があると考えられる。

4-5 まとめ

TSV-SiPM アレーを用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、その基本性能の評価を行った。今回、TSV-SiPM アレーを 2×2 に配置した構成とし、検出器サイズが $26 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$ のものを用いたが、例えば、 4×4 の構成とすることによりサイズを約 $50 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$ に拡大でき、 48 mm ϕ のろ紙を 1 度に測定することが可能になる。シンチレータには ZnS(Ag) と GAGG の 2 種を用いた。GAGG はエネルギー分解能が $\sim 13.8 \% \text{FWHM}$ と良かったが、空間分解能が 0.625 mmFWHM であり、ZnS(Ag) より劣っていた。

開発したエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器は厚みが 15 mm 以下と薄く、現場の GB 等の設備の狭い領域の PuO_2 汚染検知にも有用と考えられる。

第5章 結論

本研究では、 PuO_2 の迅速な識別のための、SiPMを光検出器に用いた高空間分解能、高エネルギー分解能のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、さらにTSV-SiPMを用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発した。本研究で得られた研究成果を纏めると、以下のようになる。

(1) GPS、GAGG、ZnS(Ag)、プラスチックシンチレータの4種のシンチレータのエネルギー分解能、パルス波高値の比較測定を2種の光検出器であるPMT、SiPMを用いた。PMTに対しては、GAGGが $\sim 8.4\%$ FWHMと、エネルギー分解能の評価結果では最も良い結果であった。この理由として、GAGGは単結晶構造であり、光学的な透明性を有するためであると考えられる。パルス波高の大きさはGPSが最大で、その値はプラスチックシンチレータの約14倍であった。SiPMに対しては、GAGGが $\sim 13.0\%$ FWHMとエネルギー分解能の評価結果では、最も良い結果であった。パルス波高値はZnS(Ag)が最も高く、その値はプラスチックシンチレータの約10倍であった。また、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との関係を調べたところ、GPSとPMTが、GAGGとSiPMが最も良い組み合わせであった。

(2) SiPMとGAGGを用いたエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発した。その空間分解能は 0.6 mmFWHM であり、過去に開発されたプラスチックシンチレータとPSPMTを用いた α 線位置検出器の空間分解能の 3.0 mmFWHM を上回るものであった。エネルギー分解能は $\sim 13\%$ FWHMであり、プラスチックシンチレータとPSPMTを用いた α 線位置検出器のエネルギー分解能の $\sim 15\%$ FWHMより良かった。開発したエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器の高い空間分解能と高いエネルギー分解能は、ラドン子孫核種存在下における PuO_2 の検知に有効であると考えられる。検出器の厚みが薄いという利点も有するため、設備の狭い領域での PuO_2 の検知にも有用であると考えられる。

(3) TSV-SiPMアレーを用いた大面積のエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器を開発し、その基本性能の評価を行った。TSV-SiPMアレーを用いた検出器の空間分解能とエネルギー分解能はSiPMアレーを用いた時と同等であった。TSV-SiPMアレーはダークカウントやアフターパルスといったノイズ成分も大幅に低減していることから、多数のTSV-SiPMアレーを用いた大面積化に適すると考えられる。検出器の厚みも 15 mm 以下であり、現場のGB等の設備の狭い領域での PuO_2 汚染検知にも有用であると考えられる。

TSV-SiPMと組み合わせたZnS(Ag)とGAGGは異なる利点を有していた。GAGG

はエネルギー分解能が 13.8 %FWHM と良いものの、空間分解能は 0.625 mmFWHM と ZnS(Ag)の 0.4 mmFWHM より劣っていた。この理由として、GAGG の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。この点を改善できれば、GAGG をシンチレータとして用いた時の空間分解能が向上できるものとする。

(4) 開発したエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器は、高空間分解能と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 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空気捕集ろ紙のラドン子孫核種の減衰を待たずに、ろ紙上の PuO_2 粒子の存在の有無を確認することができる。すなわち、空気中の PuO_2 粒子の存在の迅速な判断が可能になる。迅速な PuO_2 粒子の存在の判断が可能になれば、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と考えられる。

開発したエネルギー弁別・位置検出型 α 線検出器は、検出器の厚みが薄いという利点も有する。 α 線用サーベイメータで測定できない狭隘部の測定が可能になり、GB の設備の劣化や破損等による汚染源の特定に威力を発揮するものとする。精確な汚染源の特定ができれば、作業室内への汚染の漏洩を未然に防ぐことができるため、作業者の内部被ばくの防止につながるものとする。

参考文献

- 1) ICRP, "Individual Monitoring for Intakes of Radionuclides by Workers : Design and Interpretation," *Annals of the ICRP*, Vol.19, no.1~3, p.315, 1988.
- 2) K. L. Swinth, R. J. Traub, B. L. Murphy, and H. E. Palmer, "Factors Affecting the Assessment of Lung Deposits of Transuranics," *Ann. Occup. Hyg.*, vol. 32, inhaled particles VI, pp. 893–899, 1988.
- 3) J. D. Bess, M. P. Krahenbuhl, S. C. Miller, D. M. Slaughter, V. V Khokhryakov, V. F. Khokhryakov, K. G. Suslova, and V. V Vostrotin, "Uncertainties analysis for the plutonium dosimetry model, doses-2005, using Mayak bioassay data," *Health Phys.*, vol. 93, no. 3, pp. 207–19, 2007.
- 4) K. Duke, "Use of the Urinary Excretion of Creatinine in Plutonium in Urine Bioassay," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 79, no. 1–4, 1998.
- 5) J. J. C. Hsieh, F. P. Hungate, and S. A. Wilson, "Autoradiography: Technique for Drastic Reduction of Exposure Time to Alpha Particles," *Science*, vol. 150, no. 3705, pp. 1821–1822, 1965.
- 6) 大畑勉, 村田幹生, 中戸喜寄, 新野二男, "ZnS(Ag)増感オートラジオグラフによる α 放射性塵埃の粒子径決定," *保健物理*, vol. 7, 1972.
- 7) 小泉勝三, 大高正, 斎藤節子, "蛍光増感オートラジオグラフによる α 放射性塵埃の粒子径測定," *保健物理*, vol. 14, 1979.
- 8) T. Iida, S. Yamamoto, and Y. Ikebe, "AN ALPHA-PARTICLE IMAGING SYSTEM FOR DETECTING PLUTONIUM CONTAMINATION," *Nucl. Instruments Methods*, vol. 212, pp. 413–418, 1983.
- 9) 関昭雄, 大西俊彦, 岩月恒信, 秋山聖光, "現場放射線管理用 α 線イメージング装置によるプルトニウム試料撮影例集," PNC SN8450 87-08, 1987.
- 10) S. Yamamoto and T. Iida, "A position-sensitive alpha detector using a thin plastic scintillator combined with a position-sensitive photomultiplier tube," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 418, no. 2–3, pp. 387–393, 1998.

- 11) K. Takasaki, N. Sagawa, S. Kurosawa, and H. Mizuniwa, “An Autoradiographical Method Using an Imaging Plate for the Analyses of Plutonium Contamination in a Plutonium Handling Facility,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 46, no. 6, pp. 911–918, 2012.
- 12) H. Ohuchi, A. Yamadera, and M. Baba, “Development of a new passive integral dosimeter for gamma ray monitoring using an imaging plate,” *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 107, no. 4, pp. 239–46, 2003.
- 13) 浜松ホトニクス, “光半導体素子ハンドブック,”
(https://www.hamamatsu.com/jp/ja/hamamatsu/overview/bsd/solid_state_division/related_documents.html) (2016年2月2日アクセス)
- 14) N. A. Hallden and J. H. Harley, “An improved alpha-counting technique,” *Anal. Chem.*, vol. 32, no. 13, pp. 1861–1863, 1960.
- 15) G. F. Knoll, “Radiation Detection and Measurement, Fourth Edition,” 2010.
- 16) 井崎賢二, 猪野和生, 水庭春美, “ZnS(Ag)シンチレーション検出器による α 線波高弁別に関する検討,” *JAEA-Research 2008-107*, 2008.
- 17) J. L. Blankenship and C. J. Borkowski, “Silicon Surface-Barrier Nuclear Particle Spectrometer,” *IRE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 7, no. 2–3, pp. 190–195, 1960.
- 18) S. Nishiyama, S. Kawamura, J. H. Kaneko, M. Higuchi, S. Ueda, K. Kurashige, H. Ishibashi, A. Homma, and M. Furusaka, “Improvement of Scintillation Characteristics of FZ Growth Ce : GPS Crystals by Annealing in Air,” *Prog. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 1, pp. 279–281, 2011.
- 19) T. Shimaoka, J. H. Kaneko, K. Izaki, Y. Tsubota, M. Higuchi, and S. Nishiyama, “Development of scintillator plates with high energy resolution for alpha particles made of GPS scintillator grains,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 735, pp. 110–114, 2014.
- 20) J. Iwanowska, L. Swiderski, T. Szczesniak, P. Sibczynski, M. Moszynski, M. Grodzicka, K. Kamada, K. Tsutsumi, Y. Usuki, T. Yanagida, and A.

- Yoshikawa, “Performance of cerium-doped $Gd_3Al_2Ga_3O_{12}$ (GAGG:Ce) scintillator in gamma-ray spectrometry,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 712, pp. 34–40, 2013.
- 21) J. Y. Yeom, S. Yamamoto, S. E. Derenzo, V. C. Spanoudaki, K. Kamada, T. Endo, and C. S. Levin, “First Performance Results of Ce:GAGG Scintillation Crystals With Silicon Photomultipliers,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 60, no. 2, pp. 988–992, 2013.
 - 22) M. Loidl, M. Rodrigues, B. Censier, S. Kowalski, X. Mougeot, P. Cassette, T. Branger, and D. Lacour, “First measurement of the beta spectrum of ^{241}Pu with a cryogenic detector.,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 68, no. 7–8, pp. 1454–1458, 2010.
 - 23) P. D. Henwood and R. G. McCain, “Discrimination of Radionuclides in High-Resolution Spectral Gamma Logging,” *WM’06 Conf. Febr. 26-March 2, 2006, Tucson, AZ, 2006*.
 - 24) S. Yamamoto, H. Watabe, K. Kato, and J. Hatazawa, “Performance comparison of high quantum efficiency and normal quantum efficiency photomultiplier tubes and position sensitive photomultiplier tubes for high resolution PET and SPECT detectors.,” *Med. Phys.*, vol. 39, no. 11, pp. 6900–7, 2012.
 - 25) S. Yamamoto, M. Imaizumi, T. Watabe, H. Watabe, Y. Kanai, E. Shimosegawa, and J. Hatazawa, “Development of a Si-PM-based high-resolution PET system for small animals.,” *Phys. Med. Biol.*, vol. 55, no. 19, pp. 5817–31, 2010.
 - 26) T. Yamaya, T. Mitsuhashi, T. Matsumoto, N. Inadama, F. Nishikido, E. Yoshida, H. Murayama, H. Kawai, M. Suga, and M. Watanabe, “A SiPM-based isotropic-3D PET detector X’tal cube with a three-dimensional array of 1 mm(3) crystals.,” *Phys. Med. Biol.*, vol. 56, no. 21, pp. 6793–807, 2011.
 - 27) H. S. Yoon, G. B. Ko, S. Il Kwon, C. M. Lee, M. Ito, I. Chan Song, D. S. Lee, S. J. Hong, and J. S. Lee, “Initial results of simultaneous PET/MRI

- experiments with an MRI-compatible silicon photomultiplier PET scanner,” *J. Nucl. Med.*, vol. 53, no. 4, pp. 608–14, 2012.
- 28) Anger, H.O., and Rosental, D.J., “Scintillation camera and positron camera,” *Proc. Seminar Med. Radioisotope Scanning*, IAEA, 1959
 - 29) K. Kamada, T. Yanagida, and T. Endo, “2inch diameter single crystal growth and scintillation properties of $\text{Ce: Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$,” *Journal of Crystal Growth*, vol. 352, no. 1, pp. 88-90, 2012.
 - 30) T. Sato, K. Niita, N. Matsuda, S. Hashimoto, Y. Iwamoto, S. Noda, T. Ogawa, H. Iwase, H. Nakashima, T. Fukahori, K. Okumura, T. Kai, S. Chiba, T. Furuta, and L. Sihver, “Particle and Heavy Ion Transport code System, PHITS, version 2.52,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 50, no. 9, pp. 913–923, 2013.
 - 31) S. Yamamoto, J. Satomi, T. Watabe, H. Watabe, Y. Kanai, M. Imaizumi, E. Shimosegawa, and J. Hatazawa, “A temperature-dependent gain control system for improving the stability of Si-PM-based PET systems.,” *Phys. Med. Biol.*, vol. 56, no. 9, pp. 2873–82, May 2011.
 - 32) B Kasal, and P F Sharp, “Gamma camera spatial resolution as measured by the bar phantom,” *Phys. Med. Biol.*, vol. 30, no. 3, pp. 263-266, 1985.
 - 33) C. B. Lim, P. B. Hoffer, F. D. Rollo, and D. L. Lilien, “Performance evaluations of recent wide field scintillation gamma cameras,” *J. Nucl. Med.*, vol. 19, no. 8, pp. 942–7, 1978.
 - 34) G. Muehlehner, J. G. Colsher, and E. W. Stoub, “Correction for field nonuniformity in scintillation cameras through removal of spastial distortion,” *J. Nucl. Med.*, vol. 21, no. 8, pp. 771–6, 1980.
 - 35) K. Sato and R. Yamada, “The reliability and reproducibility of MPPC,” *Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC)*, 2013 IEEE, pp. 1-3, 2013.
 - 36) K. Yamamoto, K. Sato, R. Yamada, N. Hosokawa, T. Nagano, K. Hayatsu, T. Shimohara, Y. Ohkuwa, and a. Oguri, “Assembly technology of 4-side

- buttable MPPC,” Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip., vol. 732, pp. 547–550, 2013.
- 37) T. Nakamori, T. Kato, and J. Kataoka, “Development of a gamma-ray imager using a large area monolithic 4×4 MPPC array for a future PET scanner,” Journal of Instrumentation, vol. 7, no. 1, pp. 1-13, 2012.
 - 38) K. Yamamura, K. Sato, K. Shogo, and O. Shinji, “Production and Development status of MPPC,” Proc. Sci. (PoS), Intl. Workshop on New Photon Detectors, PD09-017, 2009.
 - 39) HAMAMATSU PHOTONICS K.K., “MPPC (multi-pixel photon counter) S11064 series, Datasheet,” 2010.
 - 40) HAMAMATSU PHOTONICS K.K., “TSV MPPC array, Datasheet,” 2014.

略語・略号一覧

略語・略号	非省略名称	日本語名称・内容
AD converter	Analog to digital converter	アナログーデジタル変換器
BGO	$\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$	ゲルマニウム酸ビスマス
FPGA	Field-programmable gate array	フィールドで書き換え可能なゲートアレー
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
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
HQE	High Quantum Efficiency	高量子効率
IP	Imaging Plate	イメージングプレート
MCA	Multichannel Analyzer	多重波高分析器
MOX	Mixed Oxide	ウラン・プルトニウム混合酸化物
MPPC	Multi-Pixel Photon Counter	—
P/V	Peak-to-valley ratio	強度プロファイルの山と谷の比
PET	Positron Emission Tomography	陽電子放射型断層撮像装置
PMT	Photomultiplier tube	光電子増倍管
PSPMT	Position Sensitive Photomultiplier	位置有感型光電子増倍管
SiPM	Silicon Photomultiplier	シリコン光電子増倍管
SSBD	Silicon Surface Barrier Detector	シリコン表面障壁型半導体検出器
TSV	Through Silicon Via	シリコン貫通電極

本論文を構成する発表論文及び学会発表

論文発表

・ Y. Morishita, S. Yamamoto, K. Izaki, J. H. Kaneko, K. Toui, and Y. Tsubota, “Development of a Si-PM based alpha camera for plutonium detection in nuclear fuel facilities,” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 747, 81-86, 2014

・ Y. Morishita, S. Yamamoto, K. Izaki, J. H. Kaneko, K. Toui, Y. Tsubota, M. Higuchi, “Performance comparison of scintillators for alpha particle detectors,” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A 764, 383-386, 2014

学会発表

・ Y. Morishita, S. Yamamoto, K. Izaki, J. H. Kaneko, K. Toui, and Y. Tsubota, “Development of a Si-PM based alpha camera for plutonium detection in nuclear fuel facilities,” 2013 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, and Room-Temperature Semiconductor X-Ray and Gamma-Ray Detectors Workshop (2013 IEEE NSS/MIC/RTSD), 2013

・ Y. Morishita, S. Yamamoto, K. Izaki, J. H. Kaneko, K. Toui, Y. Tsubota, M. Higuchi, “Performance comparison of scintillators for alpha particle detectors,” 2014 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, and Room-Temperature Semiconductor X-Ray and Gamma-Ray Detectors Workshop (2014 IEEE NSS/MIC/RTSD), 2014

・ Y. Morishita, S. Yamamoto, K. Izaki, J. H. Kaneko, K. Toui, Y. Tsubota, “Development of a large field-of-view alpha-particle imaging system for alpha radionuclide therapy using Si-PM arrays,” 2014 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, and Room-Temperature Semiconductor X-Ray and Gamma-Ray Detectors Workshop (2014 IEEE NSS/MIC/RTSD), 2014

・ Y. Morishita, S. Yamamoto, K. Izaki, J. H. Kaneko, N. Nemoto, Y. Kashimura Development of flexible alpha camera and actual measurement of plutonium specimen, 2015 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging

Conference, and Room-Temperature Semiconductor X-Ray and Gamma-Ray
Detectors Workshop (2015 IEEE NSS/MIC/RTSD), 2015

謝辞

本研究は、終始熱心なご指導を賜りました名古屋大学大学院医学系研究科 山本誠一教授の下で遂行しました。学術的な考え方、振る舞いや文章の書き方など研究者として必要なあらゆる面についてご指導を賜りました。深く感謝の意を表します。

本論文をまとめるにあたり、名古屋大学大学院医学系研究科 石樽信人教授と磯田治夫教授には数々の貴重なコメントを賜りました。深く感謝の意を表します。

著者が博士課程に進学するきっかけとなった科学技術振興機構 先端計測分析技術・機器開発プログラム、リーダーの北海道大学工学研究院 金子純一准教授に深く感謝の意を表します。

GPS シンチレータとそれに関する有益なデータを提供頂いた北海道大学工学研究院（現 北陸電力株式会社）東井宏平氏に、データ収集システムに関して有益なご助言を賜りましたエスペックテストシステム株式会社 増野浩之氏に、また GAGG シンチレータに関して有益なご助言を賜りました古河機械金属株式会社 遠藤貴範氏に感謝の意を表します。

著者の博士課程進学を快諾頂き、終始ご支援いただいた日本原子力研究開発機構 安全・核セキュリティ統括部 井崎賢二課長代理、日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター 古田定昭前副所長、日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所 百瀬琢磨放射線管理部長に感謝の意を表します。

最後に、博士課程への進学および研究生活を支えていただいた両親、妻菜々に感謝の意を表します。

森下 祐樹