

硬X線検出器シンチレータの内在バックグラウンドの測定

竹村 聡志 0972024G 高エネルギー物理研究室

要旨

我々は新しいシンチレータである GSO / YAP を用いた検出器を開発している。GSO / YAP はリニアリティが良く NaI の 20~40% という光量で 蛍光時間が 60~100sec というシンチレータである。

今回 シンチレータをつくる るつぼを新しくした GSO / YAP を入手した。そこで 本論文ではこれらの内在バックグラウンドを測定した。

測定には K を含まない光電子増倍管(PMT)を用い 周りを銅で囲い 更にその外側を鉛で囲った。これにより外部からのガンマ線 X線の侵入を防ぎ 更に PMT 自体が発するガンマ線 X線を抑えることができる。こうしてこれらのシンチレータの内在バックグラウンド測定し 従来の GSO / YAP に比べて問題ないレベルであることを確認した。

目次

1章 シンチレータについて

2章 シンチレータの内在バックグラウンドの測定

2.1 実験セットアップ

2.2 実験結果

3章 まとめ

1 章 シンチレータについて

ガンマ線吸収率が比較的大きく、蛍光時間が短く、光量出力のリニアリティが良いシンチレータが GSO(Ce)と YAP であり、最近になって一般的に使われはじめた。

GSO(Ce)や YAP は、 Ce^{3+} を発光中心とするシンチレータである。

Ce^{3+} の発光は自由電子 4 f → 5 d 遷移で起こり、その蛍光時間は 20 ~ 70ns と短い。

(Y,Ce)AlO₃ (YAP) は、放射性同位体をあまり含まないので、内在放射線が低いと思われるが、原子番号が小さく放射線吸収率が低いという欠点をもつ。

Y より原子番号の大きい Gd に置換した材料で、唯一蛍光を発するのが Gd₂SiO₅ (GSO)である。しかし GSO は YAP よりも放射性同位体を多く含む。

代表的なシンチレータと YAP、GSO の比較を下表に示した。

	NaI (Tl)	BGO	GSO (Ce)	YAlO ₃	CsI (Tl)	CWO
実効原子番号	50	74	59	35	54	65
密度 (g/cm ³)	3.7	7.1	6.7	5.5	4.5	7.9
蛍光出力 (相対値)	100	12	25		85	39
蛍光衰退時間 (ns)	230	300	60	30	1,000	5,000
最大発光波長 (nm)	410	480	430	347	565	540
エネルギー分解能 %	6	9	8	8	7	9

エネルギー分解能は ¹³⁷Cs 励起 (fwhm)

上の表には載せることができないが、シンチレータはそれぞれ内在放射線をだしている。目的のものが出すガンマ線をより正確に測定するためには PMT やシンチレータの出す内在放射線は障害になる。このため、PMT やシンチレータは内在放射線の少ないものが求められる。

今回入手したシンチレータは新しい GSO であり、これは上で述べたように放射線吸収率が比較的大きく蛍光衰退時間が短いという素晴らしいものであるが、内在放射線はどの程度かを調べる必要がある。

シンチレータの内在放射線を測定するには、低いバックグラウンド環境での測定が必要である。PMT やシンチレータの周囲のだす放射線が障害になる。

自然界には多くの放射核種があるが、そのうちで主な ^{40}K 及びウラン・ナトリウム系列について以下にまとめた。

^{40}K

半減期 $t_{1/2} = 1.27 \times 10^9 \text{ year}$ 、存在比 0.0117%。K 1g が 31Bq に対応する。電子捕獲 (^{40}Ar 10.72%)、崩壊 (^{40}Ca , 89.28%) の 2 種類の崩壊様式を持つ。

電子捕獲を行うと 99%以上の確率で 1461keV の γ 線放出を伴う。崩壊の場合は $E(\text{max}) = 1311\text{keV}$, $\langle E \rangle = 508\text{keV}$ の β 線の放出を行い、 γ 線は放出されない。

ウラン・ナトリウム系列

いずれも、最初の ^{238}U ($t_{1/2} = 4.468 \times 10^9 \text{ y}$)、 ^{232}Th ($t_{1/2} = 1.405 \times 10^{10} \text{ y}$) の半減期が圧倒的に長く、律速過程となっている。 ^{238}U 1g は 12kBq、 ^{232}Th 1g は 4.1kBq に対応する。

1つの ^{238}U 原子、 ^{232}Th 原子が安定な ^{206}Pb 、 ^{208}Pb に至るまでの間に、10%以上の確率で放出が期待される γ 線を、下の表にまとめた。

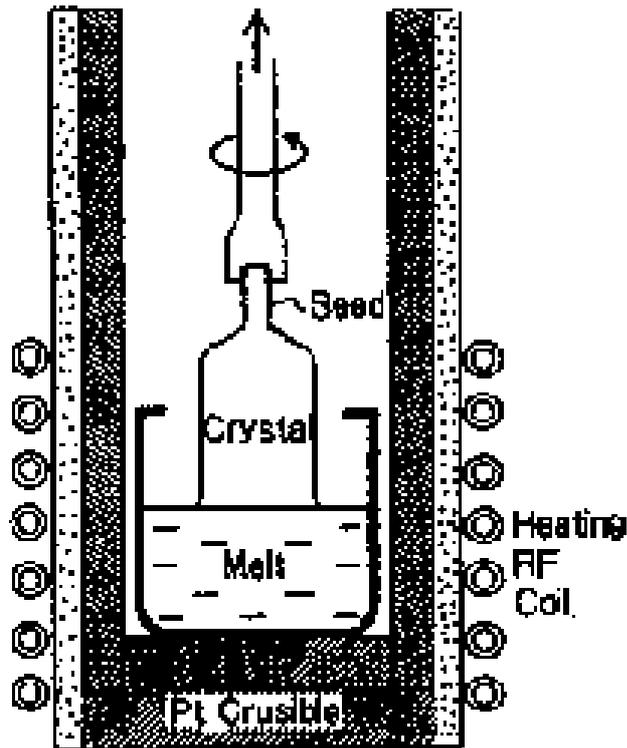
ウラン系列 (表上) トリウム系列 (表下) の崩壊で放出される γ 線

E (keV)	放出率 (%)	過程	備考
352	35.8	$^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$	多くの場合、他の γ 線を伴う
295	18.5	$^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$	
609	44.2	$^{214}\text{Bi} \rightarrow ^{214}\text{Po}$	
1764	15.4	$^{214}\text{Bi} \rightarrow ^{214}\text{Po}$	
1120	14.8	$^{214}\text{Bi} \rightarrow ^{214}\text{Po}$	
911	26.6	$^{228}\text{Ac} \rightarrow ^{228}\text{Th}$	多くの場合、他の γ 線を伴う
969	16.2	$^{228}\text{Ac} \rightarrow ^{228}\text{Th}$	
338	11.3	$^{228}\text{Ac} \rightarrow ^{228}\text{Th}$	
239	43.3	$^{212}\text{Pb} \rightarrow ^{212}\text{Bi}$	
2615	35.7	$^{208}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$	
583	30.4	$^{208}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$	

周囲からの放射線は鉛および銅でつくったケイブの中に入れることによって防ぐことができるが、PMT 自体のだす放射線を減らす必要がある。そこで、K を含まない PMT を計測に使用する必要がある。

シンチレータの製造法の 1 つにチェクラルスキ法があるが、これは、融点の高い BGO,CWO,GSO などの酸化物シンチレータの製造に採用されている。

チェクラルスキ法の概要を下図に示した



るつぼ材料としては通常は白金を用い、高周波を印加して直接加熱し、るつぼ中の原料を溶解する。インゴットの作成は始めに所定の方位の単結晶を融液に浸し、回転しつつ緩やかに引き上げ、温度制御して太らせる。今日では自動制御により高品質なシンチレータがつくられている。不純物の精製による高品質化、再現化などの点で最も実用的方法といえる。

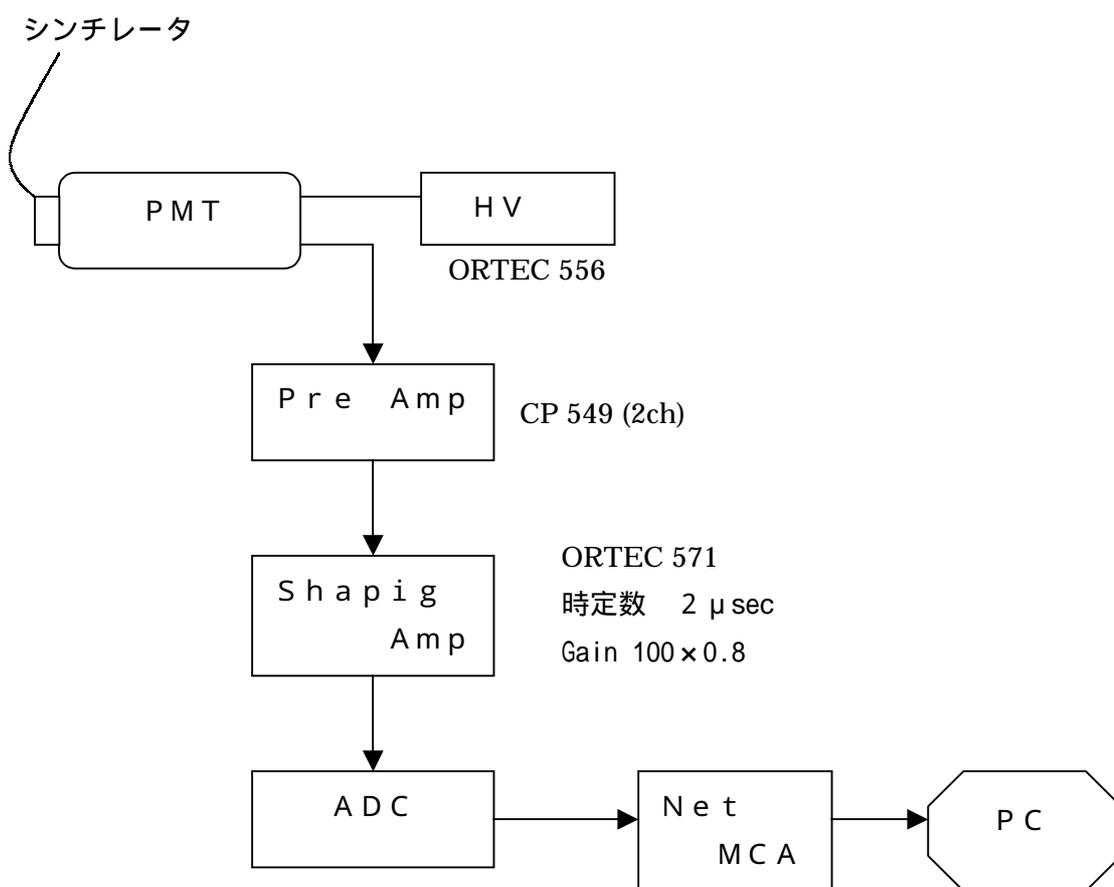
同じるつぼから同時につくられたシンチレータは、ほぼ同じ特徴を示すべきである。即ち、シンチレータの内在バックグラウンドも非常に似ているべきである。そうでないならば、シンチレータ結晶をつくる際に、融液が均一になっていなかったことになる。

今回入手した GSO には、同じるつぼから同時につくられたものが 4 つあり、それらを同じ条件のもとでバックグラウンドを計測し比較した。

2章 シンチレータの内在バックグラウンド測定

2.1 実験セットアップ

下図は実験装置の概要である。



実験では光電子増倍管(PMT)の周りを銅(厚さ 5.0cm)で囲い、更にその外側を鉛(5.0cm)で囲った。これにより外部からのガンマ線、X線の侵入を防ぐことができる。

また PMT 自体が発するガンマ線を減らすために ^{40}K を含まないものを使用した。

実際 PMT が ^{40}K を含む場合とそうでない場合に、どの程度の違いができるかを先に測定した。

また、PMT を銅、鉛で囲まない場合、鉛のみで囲った場合も比較のため測定した。

測定したシンチレータの種類

以下では、これらを5つのカテゴリーに分けて調べた

シンチレータの種類	サイズ (cm ³)	比較 1	比較 2	比較 3	比較 4	比較 5
GSO Ce0.5mol%	2.4*2.4*0.5	○		○	○	
GSO-530 Ce0.5mol%	2.4*2.4*0.5		○	○	○	
GSO-530 Ce0.5mol%	2.4*2.4*0.5		○			
GSO-530 Ce0.5mol%	2.4*2.4*0.5		○			
GSO 340 Ce0.5mol%	2.4*2.4*0.25			○		
GSO 464-2 Ce0.3mol%	2.4*2.4*0.25				○	
GSO 469-2 Ce0.3mol%	1.0*1.0*1.0				○	
YAP Ce	2.4*2.4*1.5					○
BGO	1.0*1.0*1.0					○

GSO-530 , , , は、同じインゴットからつくられた GSO

比較 1 ~ 5 の結果は、2.2 の実験結果に載せた。

下の写真は計測で使った PMT を覆うケイブである。



2.2 実験結果

・ 比較1 測定環境によるバックグラウンドの違い

ここでは、いろいろな環境でのバックグラウンドの違いを、同じPMT、GSOを用いてバックグラウンドが最低になる条件を求めた。

使用した PMT BA0929 (本体に ^{40}K を含む)

シンチレータ GSO Ce0.5mol% 24*24*5 mm

測定時間 71002 sec

	PMTの周りを何で囲ったか	5keV~2500keVのカウント数
グラフ1	なし	990,006
グラフ2	鉛(厚さ5.0cm)	91,797
グラフ3	鉛(外側)と銅(内側)	81,885

考察

PMTの周りを何も囲まない場合と、鉛で囲った場合とを比較すると、大幅に鉛で囲った方がカウントが少ないことが確認できる。

更に、鉛と銅で囲った場合は、鉛のみの場合の89.20226%にカウント数が減っている。より低バックグラウンドの環境をつくるためには、鉛だけでなく銅で囲うことが必要なことがわかる。

・ 次にPMTによるバックグラウンドの違いを調べた

グラフ3 同上

グラフ4 PMT JJ4850 (本体に ^{40}K を含まない)

シンチレータ GSO Ce0.5mol% 24*24*5 mm

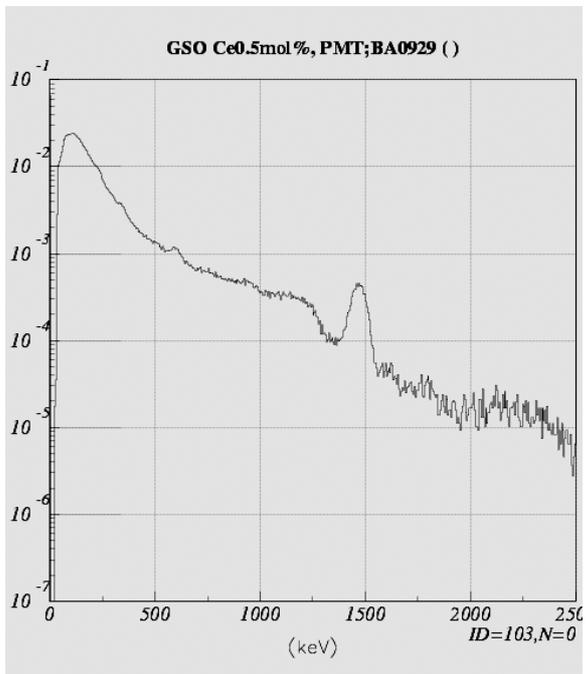
測定時間 71002 sec

5~2500keVのカウント数 20,547

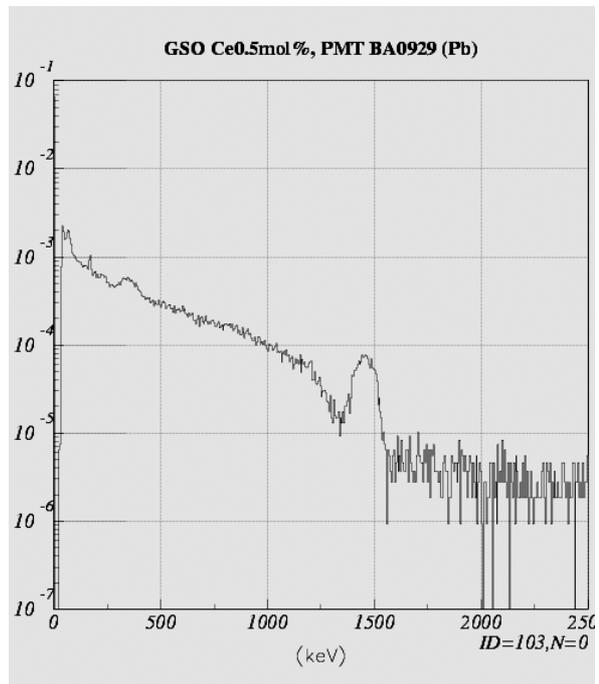
考察

グラフ3は ^{40}K の電子捕獲による線によると思われるピークが1461keVにある。更にそのコンプトン散乱により1300keV以下にもなだらかに分布している。

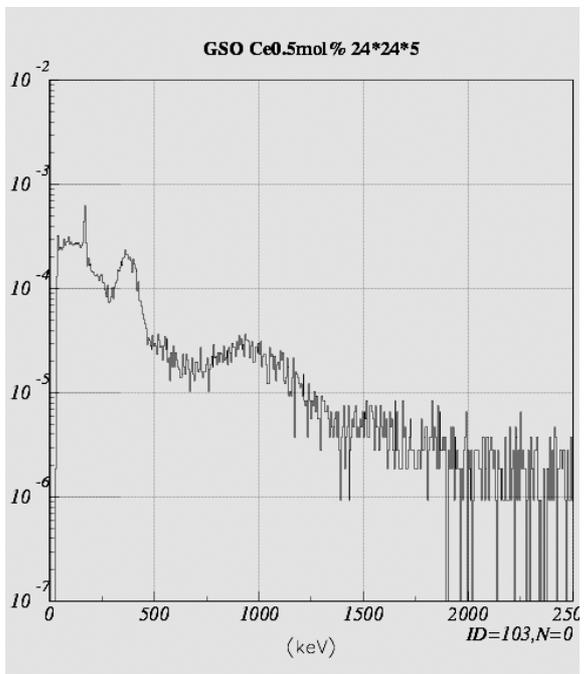
一方、グラフ4にはそのようなピークは見られず、全体的にカウント数が少ないのがわかる。5~2500keVのカウント数はグラフ4はグラフ3の25.0925%である。シンチレータのバックグラウンドの計測などの低バックグラウンドな環境を必要とする計測にはPMTに ^{40}K を含んでいては良くないことがわかる。



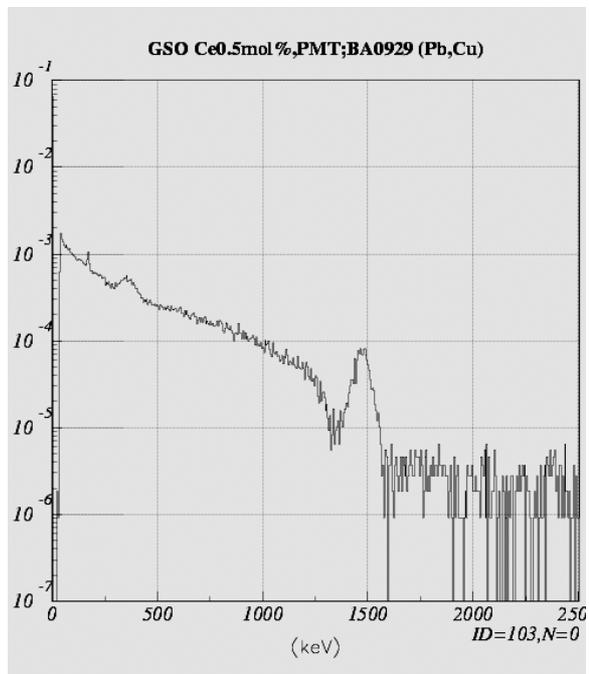
グラフ 1



グラフ 2



グラフ 3



グラフ 4

・比較2 新しい増埧からできた GSO の比較

同じインゴット(GSO-530 Ce0.5mol%)から切り出した GSO を 4 個用意し、同じ条件で測定し比較した。

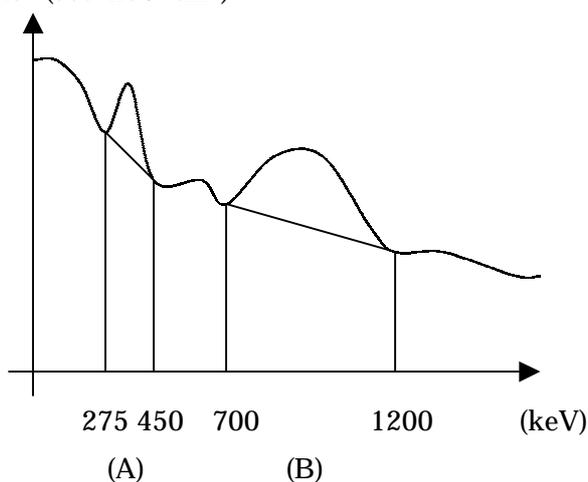
使用した PMT JJ4850

シンチレータ GSO-530 24*24*5 mm , , ,

バックグラウンドは下図のようになるが、ピーク(A)は GSO 内の Gd に由来する線のピークで、ピーク(B)は、ウラン・トリウム系列の崩壊に由来する多数のピークの重ね合わせである。ここでは、(B)の方が不純バックグラウンドになるので、これに注目する。(A)はどの GSO でも同じになるはずなのであり、それを確認して測定が正しいことを確認し、(B)が変化するかどうか調べた。

この為、(A)と(B)について、カウントレートを調べた。

Count / (sec*keV*cm³)



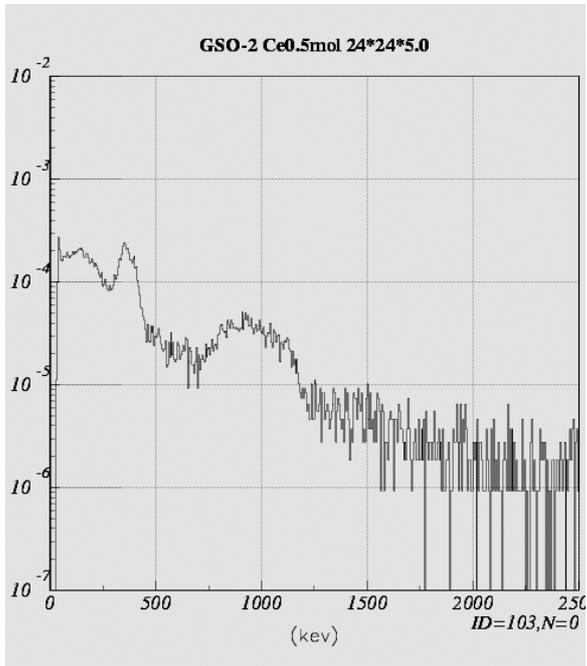
ピークになっている部分のカウント数を比較した。

(ピークを与える幅の全カウント数) = C_{TOT} (台形のカウント数) = C_B

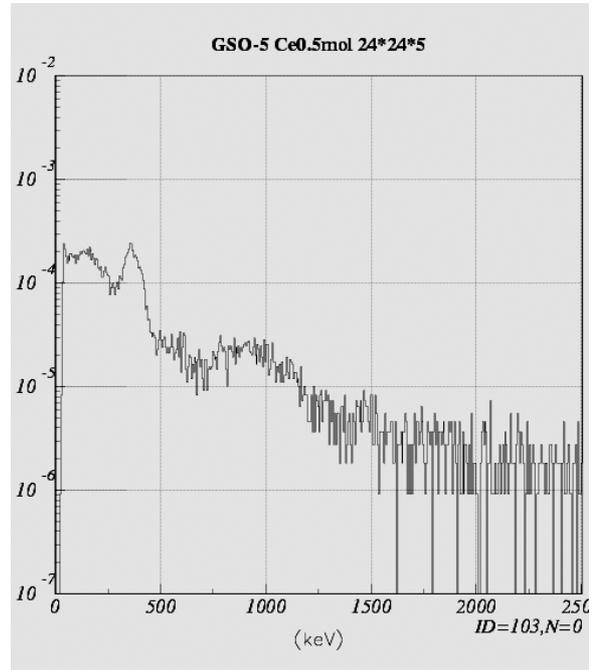
(ピークのカウント数) = $(C_{TOT} - C_B) \pm (C_{TOT} + C_B)^{1/2}$

下の表の値は (カウント数) / (sec*cm³*keV)

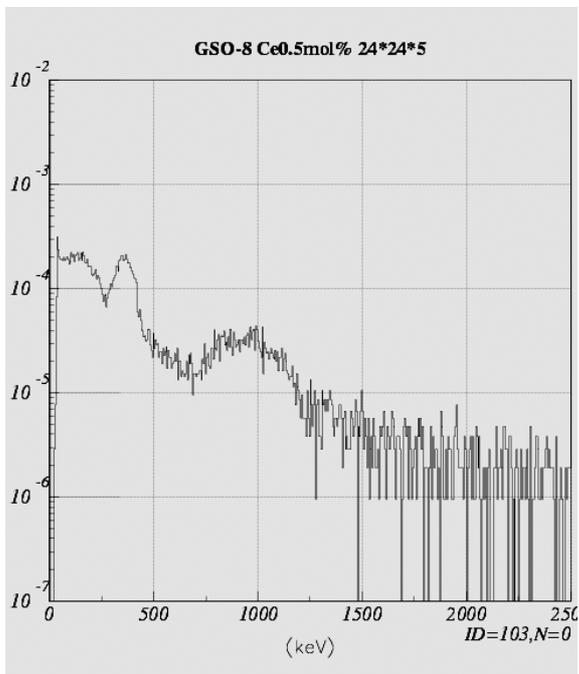
	ピーク(A)	ピーク(B)
GSO-530 (グラフ 5)	$(1.84 \pm 0.06)E-2$	$(1.21 \pm 0.05)E-2$
GSO-530 (グラフ 6)	$(2.06 \pm 0.06)E-2$	$(0.63 \pm 0.04)E-2$
GSO-530 (グラフ 7)	$(1.97 \pm 0.06)E-2$	$(1.10 \pm 0.05)E-2$
GSO-530 (グラフ 8)	$(1.85 \pm 0.06)E-2$	$(1.12 \pm 0.05)E-2$



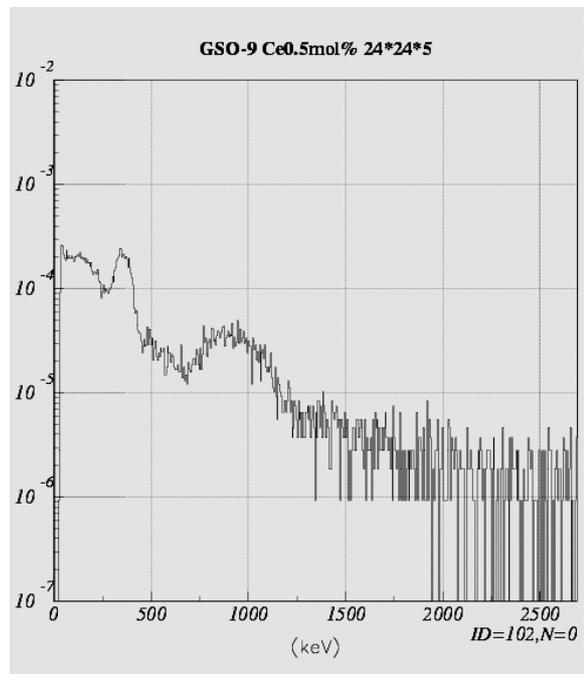
グラフ 5



グラフ 6



グラフ 7



グラフ 8

考察

、は近い数値を示したが、は大きく外れている。
これより、インゴットの段階で、不純物の濃度にばらつきがあることがわかる。
おそらく、結晶化に伴って不純物が濃縮されるので、は、早くに結晶化した部分
なのであろう。同じ特性のシンチレータを正確につくることには、まだ課題が残されている。

・比較3 異なるインゴットから切り出した GSO の比較

	サイズ (cm ³)	ピーク(A)	ピーク(B)
GSO 530 Ce0.5mol%	2.4*2.4*0.5	(1.84 ± 0.06)E-2	(1.21 ± 0.05)E-2
GSO Ce0.5mol%	2.4*2.4*0.5	(2.11 ± 0.06)E-2	(0.71 ± 0.04)E-2
GSO 340 Ce0.5mol%	2.4*2.4*0.25	(2.14 ± 0.09)E-2	(0.49 ± 0.06)E-2
GSO 464-2 Ce0.3mol%	2.4*2.4*0.25	(1.92 ± 0.10)E-2	(2.56 ± 0.09)E-2
GSO 469-2 Ce0.3mol%	1.0*1.0*1.0	(2.11 ± 0.07)E-2	(1.49 ± 0.06)E-2

考察

上の表を見ると、インゴットが異なると、Ceの濃度が同じでもピーク(B)のカウン트는大きく違う。

今回の新しいつぼでつくった GSO-530 は、従来のものに比べてピーク(B)が少し大きい
が、インゴットごとのばらつきの大きさを考えると、その大きさは問題になるレベルではない。
今回の計測では、特に新しいつぼの性能が悪いという結果にはならなかった。
融液の段階で不純物をどの程度含むかによって、ピーク(B)のカウン트는変わるが、まだ、同じ
つぼでもバックグラウンドまで同じインゴットを作ることは難しいようだ。今後、再現性
をよくしていく必要がある。

・比較4 Ce ドープ量が異なる GSO の比較

上の表の下列を参照

考察

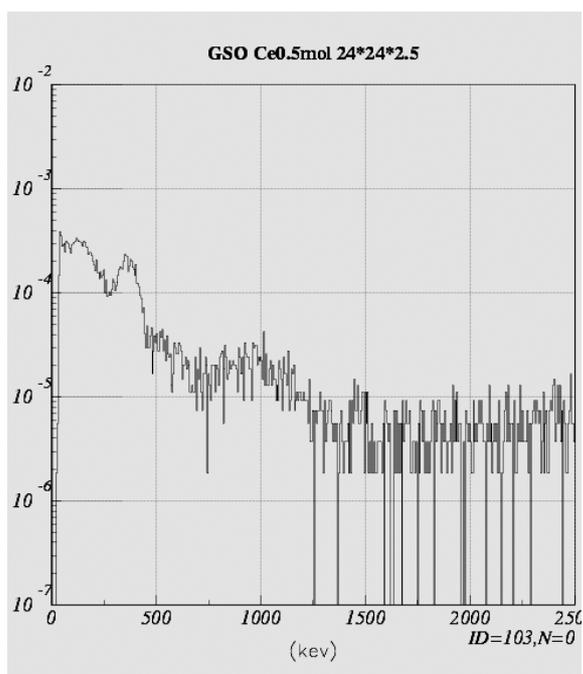
0.5mol%よりも0.3mol%のGSOの方がピーク(B)のカウンツ数が多い傾向に
にある。GSOは、0.6mol%あたりで蛍光出力が最大になる。バックグラウンド
の面からも、0.3mol%より0.5mol%の方が優れているようだ。

以下に、測定結果のグラフを載せた。

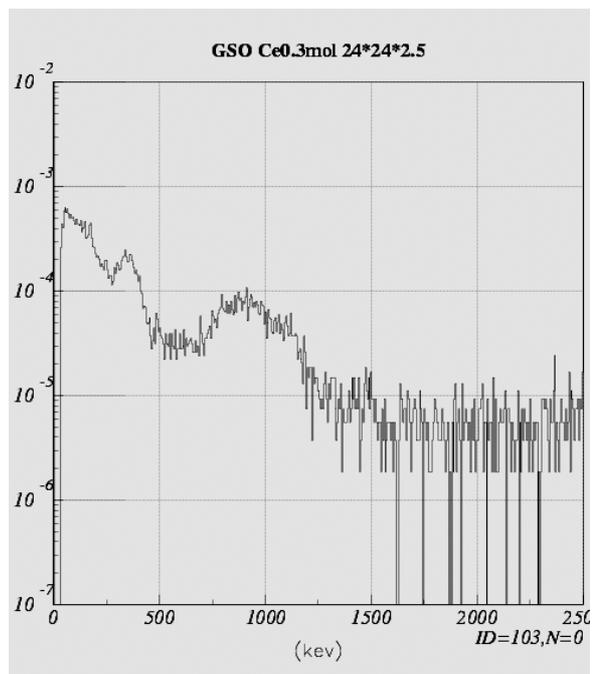
グラフ 9 GSO 340 Ce0.5mol% 2.4*2.4*0.25cm³

グラフ 10 GSO 464-2 Ce0.3mol% 2.4*2.4*0.25cm³

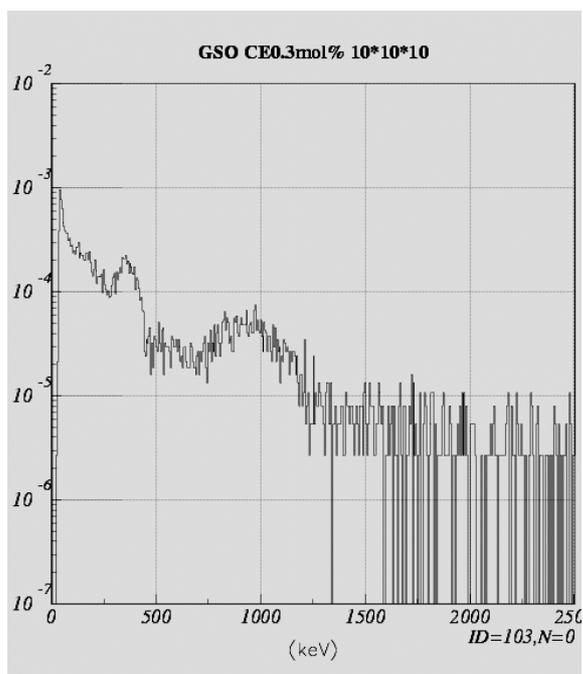
グラフ 11 GSO 469-2 Ce0.3mol% 2.4*2.4*0.25cm³



グラフ 9

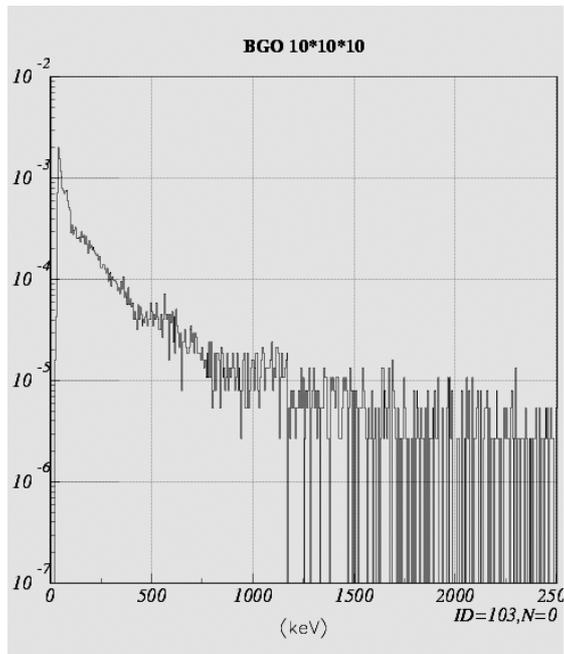


グラフ 10

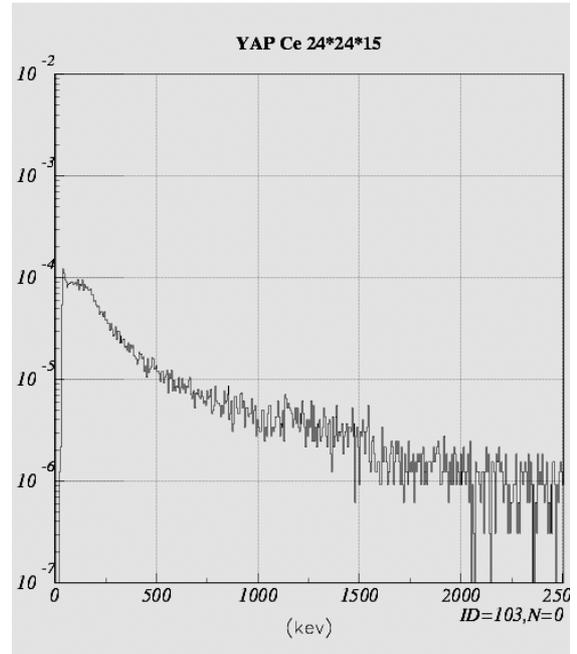


グラフ 11

・比較5 YAP と BGO のバックグラウンド



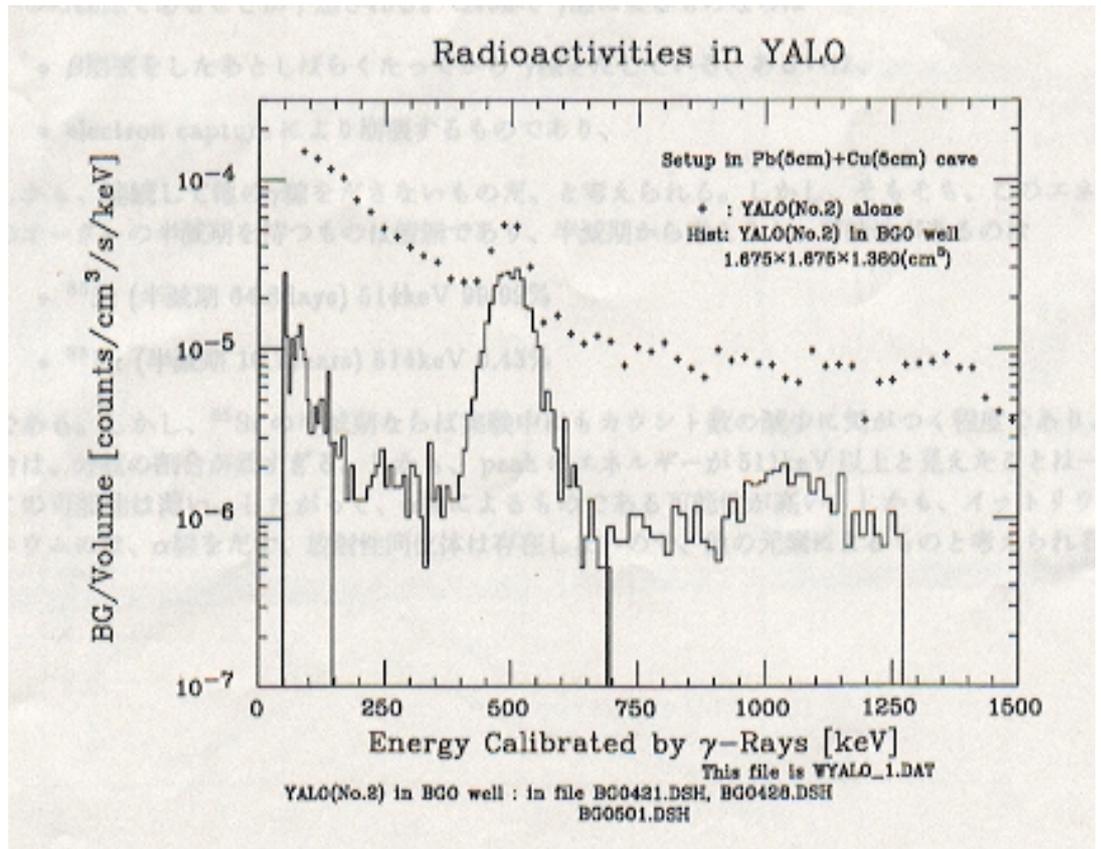
グラフ 12・・・BGO 1.0*1.0*1.0cm³



グラフ 13・・・YAP Ce 2.4*2.4*1.5cm³

比較のため下に過去の YAP (1.70*1.68*1.39 cm) の計測結果をのせた。

注目するのは、YALO(No.2)alone の点線



考察

新しいYAPのバックグラウンドは過去のYAPよりも全体的にカウント数が1/2程度に減っている。更に509keV付近にピークがなくなっているのがわかる。次にGSOと比較する。YAPのstopping powerは、35%程度であることを考慮すると1MeVあたりまで総カウント数は、ほぼGSOのバックラウンドと変わらないことがわかる。しかし、350keV付近のピークはなく、1MeV以上についてはGSOの場合、ウラン・ナトリウム系列の線による影響で、バックグラウンドが増えているのに対して、YAPにはその影響はみられない。

3章 まとめ

新しい坩堝からつくられた、1つのインゴットから切り出した GSO 4つのバックグラウンドは、1つを除いて非常に近い特性を示した。インゴット内での不純物の濃度は一部を除いて、一定に近いと思われる。

今回とは別の坩堝からつくられたインゴットから切り出された GSO のバックグラウンドは、1つのインゴットから切り出された場合に比べて、ばらつきが激しかった。

これより、新しくつくられた坩堝の性能は従来のものに比べて問題ないと思われる。

謝辞

この論文のせいさくの指導していただいた、深沢先生と高エネルギー研究室の皆様に深くお礼を申し上げます。

参考文献

放射線検出器 石橋浩之・石井満

YALO の結晶内バックグラウンドの測定 斎藤芳隆

各種素材に含まれる内在バックグラウンドの測定 高橋勲 磯部直樹

日立化成テクニカルレポート No.8(1987-1)