

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 21 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420901

研究課題名(和文) Gdを含む無機シンチレーターの入射粒子識別能に関する研究

研究課題名(英文) Study of pulse shape discrimination of inorganic scintillator including Gd

研究代表者

玉川 洋一 (Tamagawa, Yoichi)

福井大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：40236732

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：Gd(ガドリニウム)を含むシンチレーターについて、放射線入射時の発光波形を観測し、その信号波形から入射放射線の種類を同定する研究を行った。シンチレーターはGSO結晶とGAGG結晶の2種類、入射放射線としては線と線を用いた。その結果、GSOシンチレーターは室温においては線と線の識別は困難であるが、GAGG結晶においては室温から低温まで識別が可能であった。この結果から、大型GAGG結晶を用いて二重ベータ崩壊観測実験の基礎検討項目である内部不純物由来の線と線・線の識別を試みたところ、/の事象を明確に区別できた。

GAGGシンチレーターの / 消光係数のエネルギー依存についても調べた。

研究成果の概要(英文)：The study of pulse shape discrimination for the inorganic scintillators including Gd was performed. GSO and GAGG crystals were used for the scintillator and alpha ray and gamma ray were used for the incident particles. As the result, It was found that GSO crystal can not separate the events of these two particles using PSD method at the room temperature, but GAGG crystal can separate the events using shape indicator method clearly. From this result, we tried the internal alpha/gamma event separation using large GAGG crystal for the basic study of the double beta decay experiment using GAGG. The quenching factor for alpha/gamma was also investigated using He ion beam.

研究分野：原子核実験 放射線計測

キーワード：GAGGシンチレーター 入射粒子識別 発光波形 線 線 消光係数

1. 研究開始当初の背景

Gdを含む高性能シンチレーターには、代表的なものとしてCeをドープしたGd₂SiO₅ (GSO)、(Lu, Gd)₂SiO₅ (LGSO)、Gd₃Al₂Ga₃O₁₂ (GAGG)等があり、光量が大きく応答が速い特徴がある。また、密度が大きいためガンマ線の検出効率が大きいと同時に、Gdが熱中性子に対して非常に大きな捕獲断面積を有するために、中性子検出器への期待も大きい。GSOは密度6.71g/cm³の無色透明な無機結晶で、ガンマ線や荷電粒子の入射に伴いピーク長430nmの光を放つ優秀なシンチレーターである。ドープするCe濃度により若干応答にちがいはあるが、Ce濃度0.5%molの結晶は透明度も高く、立ち上がり時間約10ns、減衰30-60nsと高速応答する特徴がある。近年では医療診断装置PETのガンマ線検出器として広く用いられるようになってきた(表1)。また、ガンマ線に対する大きい検出効率と早い応答速度から、原子核、高エネルギー物理実験におけるカロリメータ用シンチレーターにも用いられるようになっている。

申請者らは、これまで、直径2インチ、長さ25cmの大型GSO結晶を用いたダブルベータ崩壊観測実験をはじめとして、断面積1cm²角、長さ20cmのGSO結晶を複数個連結した系での両側読み出しにより反応イベントの位置とエネルギー損失を精度良く測定する方法や、出力波形によるアルファ線/ガンマ線識別法の開発を行ってきた。また最近、GAGG結晶での α/γ の出力波形が大きい違いを示すことを発見した(図1)。

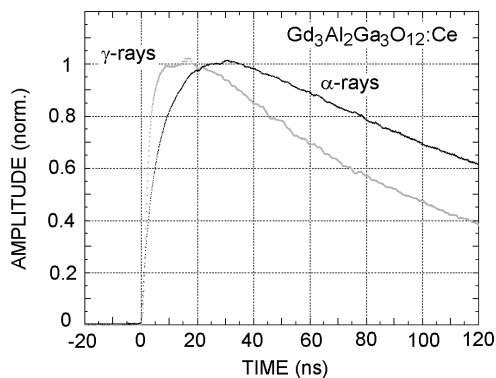


図1 GAGGシンチレーターの応答波形

GAGGはまだ新しいが、GSOに比べて重さやGdの重量比がやや小さい欠点にも拘わらず、光量が4倍大きく、上述の様に α/γ 波形弁別の可能性があるなど優れた特性を持っている。今後の大型化や応用についての研究が期待される。

2. 研究の目的

本研究では、申請者らがこれまで行ってきたGSO等の入射放射線への応答特性に関する実験的研究を発展させて、これらのGdを含むシンチレーターでの光量や波形等から荷電粒

子(アルファ線、ベータ線)やガンマ線、中性子線などの入射粒子を識別する方法を開発する。 α/γ の弁別を確立させる。

- ・GSO, GAGGの常温および低温における α/γ 波形弁別能の大きさを明らかにする。
- ・GAGG結晶の大型化とそれに伴う発光特性の変化を測定して必要な改良を行う。
- ・GSOおよびGAGGの n/γ 弁別の可能性を実験的に明らかにする。

3. 研究の方法

(1) GSO, GAGGの常温および低温における α/γ 波形弁別能に関する実験

実験に用いるシンチレーター(結晶)は、GSO, GAGG(図2)共に1cm立方とし、周囲をテフロン反射体で覆いその上で遮光した。その一面に直径1mm程度の穴を開け、 α 線の導入窓とし、 α 線照射の際にはその穴にアルファ線源を固定した。これらの結晶を反射材の無い一面を外側未配置して銅製のコールドフィンガーの先端に固定した。



図2 GAGG結晶(1cm立方体)

さらに、先端2mm程度の間隙の先に光電子増倍管(PMT)を配置して放射線入射時の光を収集した。結晶と銅製コールドフィンガーには複数個の白金温度測定素子を配置しすべての温度を外部のロガーで記録した。これらの装置を真空恒温槽内(図3)に入れ、真空引きしながら、液体窒素とヒーターを用いて室温から-100°Cまでの低温に冷却し、その後ゆっくり室温に戻した。各結晶の発光波形は10度毎に一定の温度を保つように制御し、発光波形を外部のデジタルオシロスコープにて波形を記録した。これらの一連の実験が終了したあと、放射線源を交換し同様の測定を繰り返し実施した。

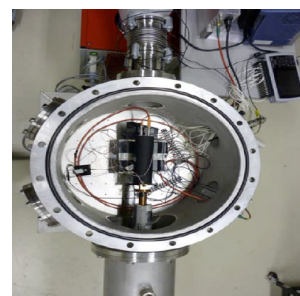


図3 低温実験用真空槽

(2) 大型 GAGG 結晶を用いた入射粒子識別能に関する実験

大型 GAGG 結晶 (直径 5 cm、長さ 11.5 cm) を用いて入射粒子識別実験を行った。大型結晶を用いた場合、粒子入射に伴う発光波形が小結晶と同じになる保証がない。また、発光を結晶両端に接続した PMT で読み出すため、結晶内の発光位置により 2 本の PMT の信号に時間的な変化が生ずるため、合成波形が変化し、波形による入射粒子の識別の可能性に変化がないか調べる必要がある。実験に用いた GAGG 結晶を図 4 に、両端に PMT を接続した姿を図 5 に示す。



図 4 大型 GAGG 結晶

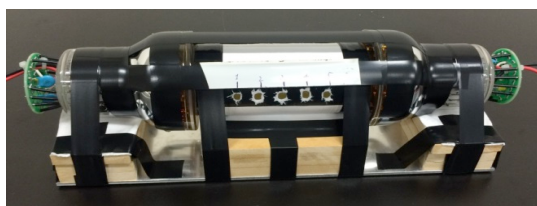


図 5 GAGG 両側読み出し PMT 接続図

信号の読み出しは 400MHzFADC を用いて、トリガーしたイベントをハードディスクに書き出し、実験後詳しく解析した。トリガーは両 PMT の閾値以上の信号の同時性を判定し、ノイズをできるだけ除去するため、同時事象のみとした。

図 5 に示すように、大型 GAGG 結晶側面には 1 cm 毎に α 線照射用の窓が開けられており、外部からの放射線 (γ 線と α 線) 照射はこの窓の位置を基準に行った。

(3) 大型 GSO 結晶によるバックグラウンド測定とイベント弁別の試み

上記の実験で、放射線入射位置と信号強度等の関係の情報を得て、大型結晶内部の事象発生位置を同定することが可能となったため、外部に放射線源を置かず、検出器上部から飛来する宇宙線事象も排除したうえで、GAGG 結晶内部の放射性不純物元素から放出される放射線を観測する実験を行った。その中から、典型的な α 線由来の事象のみを波形弁別法により選び出し、 α 線放出角の同定を試みた。

(4) GAGG 結晶における消光係数のエネルギー依存性測定 (加速器実験)

GAGG 大結晶実験において、内部不純物由来の α 線放出核種を絞り込むことが困難であったため、GAGG 結晶における、 γ 線・ β 線による発光量と α 線事による発光量の比である消光係数のエネルギー依存性について調べる実験を行った。加速した He 原子核を GAGG 結晶に照射し、照射エネルギーを変化させる (4MeV~12MeV) ことで、消光係数のエネルギー依存性を確認した。この実験は、若狭湾エネルギー研究センターの加速器を用いて実施した。

4. 研究成果

(1) GSO, GAGG の常温および低温における α/γ 波形弁別能に関する実験

常温から低温に変化させた時の GSO シンチレーターの発光波形の立上り時間の変化を図 6 に示す。室温 20°C から -100°C まで α 線 (青) と γ 線 (赤) の間に大きな違いは見られない。これは立ち下がり時間についても同様であった。

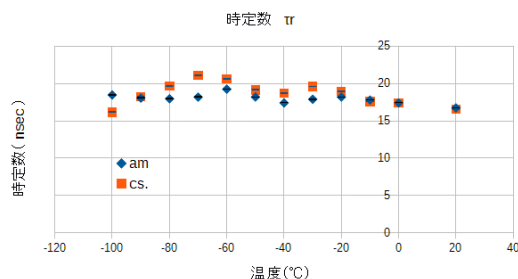


図 6 GSO シンチレーター発光波形の立上り時間の温度変化

一方、GAGG シンチレーターについて波形の立上り時間の変化を図 7 に示す。

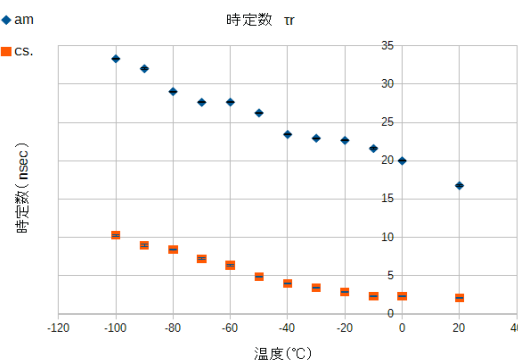


図 7 GSO シンチレーター発光波形の立上り時間の温度変化

GSO の場合とは大きく異なり α 線 (青色) と γ 線 (赤色) の立上り時間は室温から -100°C まで大きく異なっていることがわかる。このように、GAGG シンチレーターにおいては常温からすでに α 線と γ 線の間には波形の大きな違いが認められるため、波形弁別を目的として室温において使用可能であるといえる。

(2) 大型 GAGG 結晶を用いた入射粒子識別能に関する実験

図 8 に示すような実験系で測定を行った。大型シンチレーターの両端に付けられた 2 本の PMT で信号を読み出し、波形を記録した。

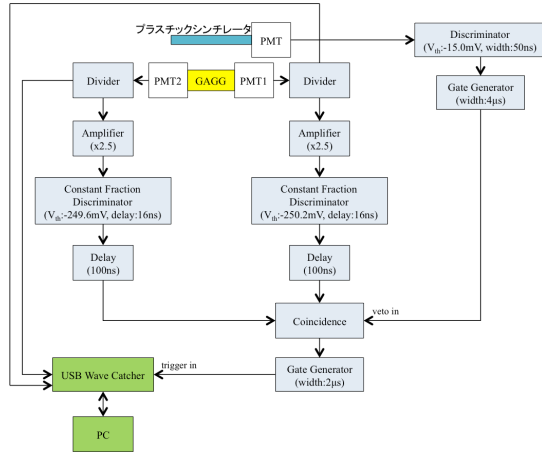


図 8 大型 GAGG シンチレーターの実験系

外部から照射する位置を変化させて、得られた信号の強度比をプロットさせると直線的な関係が得られ、信号強度から発光位置を逆算できることが確認された。図 9 に示すように α 線と γ 線による信号波形は立上り部分と減衰部分ともに違いが見られた。

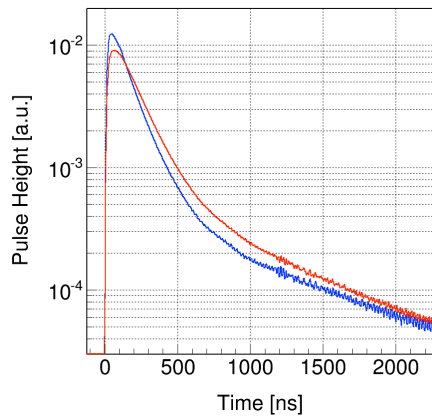


図 9 得られた平均波形 (α 線：赤、 γ 線：青)

この波形を基準 (平均波形) として、PMT から得られた全ての信号を SI (Shape Indicator) 値を計算してプロットしたものが図 10 である。SI の計算式を次に示す。

重み付け

$$P(t) = \frac{f_{\alpha}(t) - f_{\gamma}(t)}{f_{\alpha}(t) + f_{\gamma}(t)}$$

$f_{\alpha}(t)$: 時間 t の α 線の平均波形の値
 $f_{\gamma}(t)$: 時間 t の γ 線の平均波形の値

Shape Indicator(SI)の導出

$$SI = \frac{\sum f(t) \cdot P(t)}{\sum f(t)}$$

t : 波形の時間成分
 $f(t)$: 時間 t の波形の値

横軸は γ 線換算エネルギー、縦軸は SI 値をとってある。赤色の点が α 線を照射した際の

信号波形、青色の点は γ 線照射時のものである。

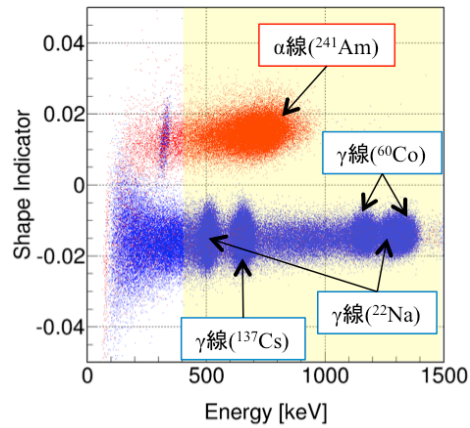


図 10 SI のエネルギー分布

この分布を SI に投影して図 11 を得る。

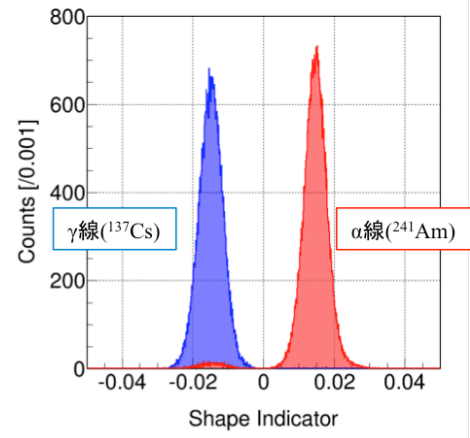


図 11 SI の分布 ($E > 0.4\text{MeV}$)

これにより、SI=0 付近で弁別を行うことにより、 γ 線 (β 線) を 99.87% 活かしながら α 線イベントを 1.25% まで減らすことができた。

(3) 大型 GSO 結晶によるバックグラウンド測定とイベント弁別の試み

大型 GAGG 結晶 (シンチレーター) による波形弁別により、 α/γ 弁別が可能であることがわかったので、同結晶を用いて、内部放射性不純物によるバックグラウンド事象を排除できるかを試みた。382 時間測定した結果を図 12 に示す。青が γ 線および β 線と α 線イベントを含む総イベントを表す。赤色は SI 値を計算し α 線イベントと認識されるものを抜き出したものである。赤色の α 線イベントに着目すると、低エネルギー部分の 300 keV 付近に GAGG シンチレーターの Gd に含まれる Gd-152 から放出される 2.14MeV の α 線のピークである。その右側 (高エネルギー側) にある 2 つのピークは γ 線エネルギー換算で 730keV, 870keV に相当する。Gd-152 の α 線ピークから得られる α/γ 消光係数 (Quenching factor) = 0.122 を用いて

α 線エネルギーに換算するとそれぞれ、4.8 MeV, 5.7MeVに相当し、ウラン系列の Ra-226, トリウム系列の Ra-224 からの α 線に対応すると考えられるが、これらから系列崩壊する核種からの α 線ピークが顕著には見られないことから確実には同定できない。一般に、 α/γ 消光係数は α 線のエネルギーに依存するとされているため、この消光係数とエネルギーとの関係を明らかにする必要があると結論づけた。

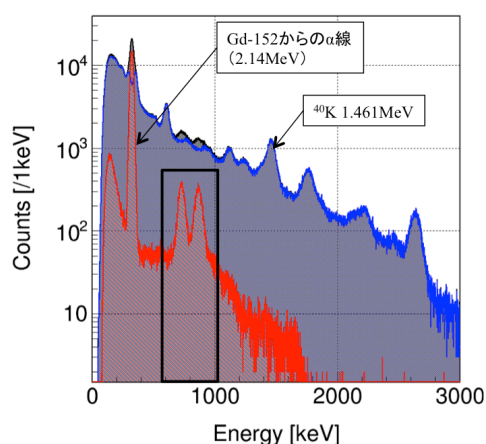


図 12 大型 GAGG シンチレーターのバックグラウンドのエネルギースペクトル

(4) GAGG 結晶における消光係数のエネルギー依存性測定 (加速器実験)

GAGG 結晶の内部崩壊事象観測から得られた α 線ピークのエネルギー同定を正確に行うために、 α/γ 消光係数と入射粒子エネルギーの関係を明らかにする実験を実施した。入射粒子のエネルギーを変化させるため、(財)若狭湾エネルギー研究センターのタンデム加速器を使用し、He 粒子のエネルギーを 4MeV から 12 MeV まで変化させて実験を行った。得られた消光係数を図 13 に示す。

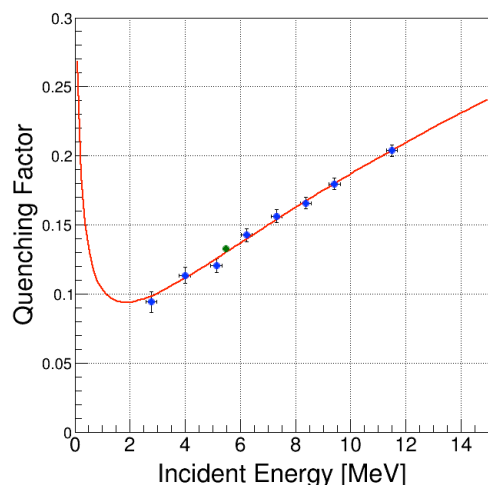


図 13 He 粒子入射時の GAGG 結晶の消光係数

これは外部から入射した He イオンに対する GAGG 結晶の消光係数である。実際の結晶中でのエネルギー損失量と消光係数の関係を表しているが、(3)で述べた大型 GAGG 結晶の内部崩壊事象から算出した 2.14MeV で 0.122 という値に比べて 20%程度小さめの値となっている。この結果については現在解析を進めているが、外部入射と内部入射の発光位置の違いによる収集光量の違いについても検討している。

まとめ

Gd (ガドリニウム) を含む無機シンチレーターは高速応答で比較的光量が多いため高エネルギー物理実験ばかりでなく医療分野での PET 装置へ応用が期待されている。さらに、Gd-160 は二重 β 崩壊を起こす貴重なターゲット核種であるため、この分野での利用も考えられている。今回、本研究では、Gd を含む無機シンチレーターの代表である、GSO 結晶と GAGG 結晶の 2 つについて、入射粒子識別能という観点から基礎的な検討を行った。その結果次のようなことがわかった。

- GAGG 結晶は室温で α/γ 弁別能が非常に高く、利用しやすい。
- 大型結晶を用いても粒子弁別能に差は見られず、SI を用いて有効に弁別が可能である。
- α/γ 消光係数の入射粒子のエネルギー依存性が確認され、ほぼバークスの式に適合していた。

しかしながら、GAGG 大型結晶を用いたバックグラウンド事象解析では α 線起因の大きな 2 つのエネルギーピークが得られたが、それらを構成する核種を同定するには至っていない。今後、消光係数等のさらなる詳しい解析を行い、これらを明らかにして、内部不純物由来のバックグラウンド事象を排除したい。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

① Tamagawa Yoichi, Inukai Yuji, Ogawa Izumi, Kobayashi Masaaki

“Alpha-gamma pulse shape discrimination in $Gd_3Al_2Ga_3O_{12}:Ce^{3+}$ using shape indicator” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A, NIMA-D-14-01268, 2015 査読有

[学会発表] (計 4 件)

① 増田旭、高橋成企、中島恭平、小川泉、玉川洋一、小林正明

“GAGG シンチレータ中の放射性不純物量の測定”

日本物理学会北陸支部 定例学術講演

2015年11月28日、金沢大学（金沢市）

② 犬飼裕司、小川泉、玉川洋一、小林正明
“GAGG シンチレータにおける内部バックグ
ラウンド事象の低減”
日本物理学会北陸支部 定例学術講演会
2014年12月13日 福井大学（福井市）

③ Y. Inukai, Y. Tamagawa, I. Ogawa,
M. Kobayashi
“Alpha-gamma pulse shape discrimination
in GAGG scintillator using shape
indicator”
Internal Workshop on “Double Beta Decay
and Underground Science” DBD2014 2014年
10月6日 ハワイ

④ 犬飼裕司、富田翔吾、小川泉、玉川洋一、
小林正明
“単結晶 GAGG シンチレータによる入射粒子
識別能”
日本物理学会北陸支部 定例学術講演会
2013年11月23日 富山大学（富山）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

玉川 洋一 (Tamagawa Yoichi)
福井大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：40236732

(2) 研究分担者

小川 泉 (Ogawa Izumi)
福井大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：20294142

小林 正明 (Kobayashi Masaaki)
大学共同利用機関法人高エネルギー加速
器研究機構・素核研・名誉教授
研究者番号：40013388