プラスチック・シンチレータを用いたユニット型 ヒューマン・カウンタ (I) プラスチック・シンチレータ・ユニットの γ 線特性

飯沼 武, 野原功全, 田中栄一, 平本俊幸, 石原十三夫

放射線医学総合研究所物理研究部

1964年10月31日 受理

放医研のユニット型プラスチック・シンチレータ・ヒューマン・カウンタは8個のシンチレータ・ユニットを用いているが、本報ではヒューマン・カウンタの動作特性の基礎となる1個のユニットの γ 線特性につき述べる。ユニットは50 cm $\times$ 50 cm $\times$ 15 cmの大型プラスチック・シンチレータの一面を4本の5 in 直径光電子増倍管で見る構造をもつ。4種の単一エネルギー γ 線 (^{137}Cs , ^{65}Zn , ^{40}K および ThC'' : 0.662 $\sim$ 2.62 MeV) によるスペクトルは非対称なピークを示し、その波高値と一次コンプトン反跳電子の最大エネルギーとは直線関係を有する。ピークの高波高側の広がり
に寄与する3つの因子につき解析した結果、分解能は現在の検出器ではほぼ限界に近いことがわかった。

1. 緒 言

人体放射能測定装置（ヒューマン・カウンタ：HCと略）には大別して (1)NaI スペクトロメータと (2)有機シンチレータ型の2種があることはよく知られている。

NaI型はエネルギー分解能が良好なため、 γ 放射性核種の分析が容易に行なわれうる。一方、有機シンチレータの場合には十分な分解能をうることができない。しかし形状がきわめて大きいものを安価に入手できるので、人体に対する立体角をほぼ 4π に近くすることも可能となり、短時間の計数でよい統計の精度が得られる。したがって、大容積有機シンチレータ型HCは人体内に存在する核種が既知の場合（たとえば ^{40}K と ^{137}Cs のように）の定量にはNaI型よりもすぐれており、かつ多数の人間を何回も測定しなければならない場合には、この型のHCがどうしても必要になる。

有機シンチレータ型HCには液体シンチレータを使用したものと、プラスチック・シンチレータを用いたものがあり、典型的なものとしては前者が米国 Los Alamos 研究所¹⁾に、後者が英国 Leeds 大学²⁾に建設された。検出器の幾何学的配置は前者が1個の非常に大きなシンチレータにより、人体をほぼ 4π の立体角で見こむのに対し、後者は3個のシンチレータ・ユニットを用い、検出効率を多少犠牲にして、信号-雑音（自然計数を含む）比をよくした構造を有する。

われわれは建設および取扱いが液体シンチレータに比し簡単であることと、国産の大型シンチレータの入

手が可能である点から、プラスチック・シンチレータを選び、さらにのちの保守・改良に便利なユニット型を採用してHCを建設した*。HCは8個のシンチレータ・ユニットからなり、上・下に4個ずつ配置して人体をサンドイッチ状に挟む構造とし、中心から見た立体角はほぼ 3π である (Fig. 1 参照)。したがって本器はプラスチック・シンチレータ・ユニットを使用した Los Alamos 型に近い高効率 HC といえる。本論では HC の基礎となる1個のシンチレータ・ユニットの γ 線にたいする特性について記述する。

Fig. 1 Schematic diagram of a plastic-scintillator whole body counter at National Institute of Radiological Sciences.

2. 構 造

本器に使用するシンチレータ・ユニットに要求される特性としては、シンチレーション検出器としての一般的要求のほかに、(1)ユニットの数をあまり多くせず、人体を大立体角で見込めるように表面積の大きなシンチレータを用いること（ユニットの数の少ないほ

* 製作は三菱原子力工業 KK が担当。

うがのちの保守・調整に便利である), (2)約 3 MeV までの γ 線を十分高い効率で検出できる厚さを有すること, (3)大容積のシンチレータに起こりやすい集光効率の低下と不均一性を少なくするため, シンチレータの全表面積にたいする光電子増倍管 (PM と略) の光電面 (PC と略) の面積の割合を大きくすることなどがあげられる。

これらの要求を考慮して, シンチレータには手にはいりやすい国産の大型プラスチック・シンチレータ* (50 cm×50 cm×15 cm) を使い, これに 4 本の 5 in 直径 PM** を light guide を介して光学的に結合し, 1 個のユニットとした (Fig. 2 参照)。シンチレータを納める容器はステンレス・スチール製 0.5 mm 厚で, 反射材として MgO 粉末約 3 mm 厚が light guide の部分を除く全表面につめられた。light guide はルサイト製約 10 mm 厚で, シンチレータ面および光電面に透明シリコン・グリース** を介して光学的に接合された。

Fig. 2 A plastic scintillation detector unit.

4 本の PM には 1 台の電源より正の高電圧約 1,000V が供給された。ダイノード抵抗は PC と第 1 ダイノード

ド (D1) 間が 500 K, D1-D11 間が 250 K×10 で等分割された。終り 3 段のダイノード間は 0.01 μ F で decouple され, 陽極負荷は 1 M とした。また, PC とアース間に可変抵抗 (R) を入れ, PM の利得を変化させた。ついで各 PM の利得整合が行なわれた。すなわち, ThC'' の 2.62 MeV γ 線を直径 1.5 cm, 深さ 5 cm の鉛コリメータを通して, PM が結合されていない側の表面から 4 本の PM と同軸線上に沿って入射させたときに得られるコンプトン・ピークの位置を RCL-256 チャンネル波高分析器 (256 PHA) の 4 分割したチャンネル** 上に得, それらが一致するように R を変化した。4 本の PM の陽極からの出力は合計され, white cathode follower, 比例増幅器*** を経て, single channel PHA*** または 256 PHA により分析された。全系の直線性は精密級直流電圧計で更正された mercury pulser により integral linearity $\pm 0.2\%$ 以内であることを確かめた。

3. γ 線にたいする特性

プラスチック・シンチレータと 100 keV~3 MeV の γ 線との相互作用は主としてコンプトン散乱であって, ほかは無視しうるくらい小さい。したがって, 観測されるスペクトルも Klein-仁科の式であらわされるように低エネルギー側に広がりをもつ非対称なピーク (いわゆるコンプトン・ピーク) を示す。ただし, 大型シンチレータの場合には多重コンプトン散乱の影響により得られるスペクトルは一次コンプトン散乱のみによるスペクトルに比し, 高波高側にずれる傾向を有する¹⁾。

測定に使用した γ 線源は 0.662 MeV (^{137}Cs), 1.12 MeV (^{65}Zn), 1.46 MeV (^{40}K) および 2.62 MeV (ThC'') の 4 種で, びん状 (約 500 cc) の KCl を除き, ほかの 3 種は点線源であった。各線源はシンチレータの中心軸上, 表面より 40 cm の位置におかれスペクトルが測定された。

3.1 波高とエネルギーの関係

前記 4 種の γ 線によるスペクトルは Fig. 3 に示すごとく低エネルギー側に最小部を有する非対称なピーク

* 松下電工製 ナショナル・シンチライト

** Dumont 6364

*** 10^6 センチ・ストークス

** 0-63, 64-127, 128-191, 192-255 の各チャンネルをさす。

*** 三菱電機製 LTP Linear Amplifier

*** 三菱電機製 ND-1621

Fig. 3 Pulse height distributions for ^{137}Cs , ^{65}Zn , ^{40}K and ^{228}Th (2.62 MeV) obtained with a detector unit.

を示す。各ピークの波高値と4本の γ 線にたいする一次コンプトン反跳電子の最大エネルギーとの関係はFig. 4に見られるようによい直線性を示した。この結果はBurchらのプラスチック・シンチレータ*の場合と一致している^{3), 4)}。このことはシンチレータの厚さがほぼ同じであることから考えて妥当である。また、以上の結果は上記2種のシンチレータと同程度の寸法

Fig. 4 Relation between pulse heights at the maximum of Compton peak and maximum energies of Compton-recoiled electrons for the four different γ -rays. Linear relationship is observed in the energy range between 0.662 and 2.62 MeV and the extrapolated line intersects about 50 keV.

のものでは多重散乱の影響がピークを顕著に高エネルギー側にずらすほどでないことを示している**。

直線を波高値=0に補外するとエネルギー軸で約50 keVを切る。これは有機シンチレータの発光効率が低エネルギー電子にたいして小さいことにも一部原因する。またここで使用しているような大型シンチレータの場合にはシンチレーション光子の発生場所も低エネルギーでは γ 線エネルギーとともに変化するから、エネルギーと波高値の関係は100 keV以下では非直線的になることが予想される。

3.2 エネルギー分解能とその成分因子の解析

有機シンチレータの単一エネルギー γ 線にたいするエネルギー分解能は、その波高分布についてFig. 5に示すごとく定義された“Half-Resolution ($\frac{1}{2}R$)”と“Peak-to-Trough Ratio (P/T)”とによってあらわすことができる⁹⁾。 $\frac{1}{2}R$ はコンプトン・ピークの最大値の高波高側の広がりを示す尺度で P/T は全計数のうちのコンプトン・ピーク下の計数の割合に関係する。したがって $\frac{1}{2}R$ が小で P/T が大であるほど、シンチレー

Fig. 5 Definitions of “Half-Resolution $\frac{1}{2}R$ ” and “Peak-to-Trough Ratio P/T ” which characterize the γ spectra observed with organic scintillators.

* NE101 (Nuclear Enterprise 社) 50 cm $\times$ 25 cm $\times$ 16.5 cm (厚), 長軸方向は12.5 cm 半径の円筒形

** Van Dilla らは 15.5 in 直径, 11 in 高さの液体シンチレータと同軸上で表面より1 in の距離においた点線源 ^{137}Cs 662 keV- γ 線によるスペクトルをモンテ・カルロ計算により求めた結果、コンプトン・ピークの波高値と662 keV γ 線に対する一次コンプトン反跳電子の最大エネルギー (480 keV) とがほぼ一致することを確かめた。しかし、Humco II で使用しているような大容積の中空円筒型シンチレータの中心に ^{137}Cs をおいた場合には、ピークの波高値が 662 keV に近くなる (pseudo-photopeak) ことも明らかにした。¹⁾

タのエネルギー弁別能がよい。

Table 1 に 4 種の γ 線スペクトルから得られた $\frac{1}{2}R$ と P/T を示す。 $\frac{1}{2}R$ は入射 γ 線のエネルギーの増大とともに小さくなり、 P/T は増加する傾向にあり、このことは理論的にも予想される。

Table 1 Spectral results with plastic scintillator and four 5 in photomultipliers

γ -Ray source	Energy (MeV)	Peak Trough	Half resolution(%)
Cs-137	0.662	1.84	28.6
Zn-65	1.12	2.28	18.3
K-40	1.46	2.32	15.7
Th-228	2.62	2.56	12.1

Burch³⁾ は使用した大型 プラスチック・シンチレータにおいて、ピークの最大値の高波高側の広がり方が正規分布によってよく近似され、かつ、その分散(標準偏差 σ) は、(1)光電面から放出される光電子の数および PM における増倍過程の統計的変動(σ_s)、(2)集光効率のシンチレータ内における局所の変動(σ_g)と(3)多重コンプトン散乱、主として 180° 後方散乱光子がふたたびコンプトン散乱をおこすことによる高波高側への広がり(σ_i)の 3 成分のベクトル和であらわされることを示した。ここで σ_s はピークの波高値(A)の $\frac{1}{2}$ 乗に比例し、($\sigma_s^2 = sA$)、 σ_g は A に正比例し($\sigma_g^2 = gA^2$)、 σ_i は 180° 後方散乱光子のエネルギーが 662 keV $\sim$ 2.62 MeV の範囲では一次 γ 線のエネルギーに大きく依存しないので、 A に無関係に一定と考える ($\sigma_i = i$)。これらの結果、つぎの関係式が導かれた。

$$\sigma^2 = \sigma_s^2 + \sigma_g^2 + \sigma_i^2 = sA + gA^2 + i$$

ただし、 s, g および i は A によらない定数。

いま少なくとも 3 つの異なった γ 核種により σ, A を

Table 2 Results of analysis of spectral results with plastic scintillator and four 5 in photomultipliers

γ -Ray source	Energy (MeV)	Peak position (A)	Half resolution (W/A%)	Half width (W)	σ (W/1.18)	σ^2	σ_s^2	σ_g^2	σ_i^2
Cs-137	0.662	1	28.6	0.286	0.242	0.059	0.022	0.031	0.005
Zn-65	1.12	2.03	18.3	0.372	0.315	0.099	0.045	0.031	0.022
Th-228	2.62	5.47	12.1	0.662	0.561	0.315	0.122	0.031	0.162

3.3 解析結果の検討

前節の数値を文献(4)の値と比較して見ると、 σ_s^2 は 3.6 倍(ThC^{II} で 0.034 から 0.122)、 σ_g^2 は 1.3 倍 (0.122 から 0.162)に増加したのに反し、 σ_i^2 は逆に 0.78 倍 (0.40 から 0.31)に減少している。

σ_s^2 の増加はわれわれの使用したシンチレータの発光

求めれば、上式を解いて、3 成分の寄与を知ることができる。ただし、 σ と W (Fig.5 参照)の関係は、正規分布のとき、 $W = 1.18\sigma$ 。

われわれのプラスチック・シンチレータの場合も、その厚さが Burch らのものとはほぼ同じでエネルギー・波高特性が類似していることから、同じ解析法が適用できると考えられる。この解析には同じ点状線源の 3 つの核種 (^{137}Cs , ^{65}Zn と ThC^{II}) の $\frac{1}{2}R$ と ^{137}Cs の場合を 1 とした相対値の A を用いた。結果を Table 2 に示す。これからわかるように γ 線エネルギーが小さい場合は σ_s と σ_g の寄与が大きく、エネルギーが大きくなると σ_i の寄与が大となる。

σ_g は A に比例するので、 σ_g のみの $\frac{1}{2}R$ への寄与 ($\sigma_s = \sigma_i = 0$ として)は核種によらず、8.7%である*。ThC^{II} の場合、集光効率の場所による不均一性がまったくない ($\sigma_g = 0$) とすると、 σ_s と σ_i によって $\frac{1}{2}R$ は 12.1%から 8.4%に減少する。しかし、 ^{137}Cs の場合は 28.6%から 27.1%にしか減らない。

σ_i は A に無関係なので A が小さいほどその寄与が大きい。 $\frac{1}{2}R$ への σ_i のみの寄与は ^{137}Cs の場合 20.8%であるのに対し、ThC^{II} では 3.8%にすぎない。

σ_s の $\frac{1}{2}R$ にたいする寄与は、 ^{137}Cs で 17.5%、ThC^{II} で 7.5%にすぎず、シンチレータの発光効率・光電面の変換効率が大きいとしても ($\sigma_g \neq 0$)、 σ_s と σ_g がこのために $\frac{1}{2}R$ は ^{137}Cs で 22.4%、ThC^{II} で 9.5%となり、大巾に改善されない。この点は NaI スペクトロメータで単一エネルギー γ 線の全吸収ピークを測定する場合と非常に異なる。たとえば、直径 3 in、高さ 3 in 以下の NaI 結晶では γ 線エネルギーが 3 MeV 以下のとき、全吸収ピークの分解能は主として σ_s によって決まるので、 $\sigma_s \neq 0$ であればエネルギー分解能はきわめて大きくなる。

効率がかれらの使用した NE101 に比し、約 $\frac{1}{2}$ であること、シンチレータの全表面積にたいする光電面の面積の比がかれらの 0.1 にたいし、われわれの 0.06 であること、およびシンチレータの寸法・透過率、反射材の

* 一般に σ_g が正規分布をすることはないが、正規分布と仮定した場合の値。

反射係数, 光電面の光電変換効率がほぼ等しいことから, 同一エネルギー吸収によって放出される光電子数はわれわれの場合1/3.3になることで説明される。

σ_0 については上記の解析と独立にシンチレータ内の場所による集光効率の変動を求めた。方法はThC²²⁸点線源からの2.62 MeV γ 線を直径1.5 cm, 深さ5 cmの鉛コリメータを通してシンチレータ表面上の各点から入射させ, コンプトン・ピークの波高値を256PHAで測定し, 等波高値線を得た。この方法ではシンチレータ内部での集光効率が実測できない上, コリメーションが完全でないため, 局所的な効率の変化を過少評価してしまう欠点があるが, 不均一性の大体の傾向を知ることができる。これによって3次元の等効率分布を描いたのが, Fig. 6に示す結果である。Fig. 6中の数字は平均波高値を100としたときの明るさを示す。それによると光電面直下がもっとも明るく, シンチレータの四隅がもっとも暗くなっており, 変動は約 $\pm 5\%$

Fig. 6 Local variations in light collection efficiency in the scintillator. Figures show relative collection efficiencies, average being 100.

である。この値は $\sigma_0(\pm 8.7\%)$ よりも小さいが, 上述の理由により, 実測値の偏差が少なめにでたためと考えられる。Fig. 6からわかるようにシンチレータの4隅を円形に切削すれば集光効率の変動を減少させることができる。文献(4)の σ_0 に比してわれわれの場合がやや大きくなったことも, 四角の形状のシンチレータを用いたためであろう。

σ_0 はわれわれの場合がやや小さくなっているのは, シンチレータの厚さがかれらの16.5 cmにたいし, われわれが15 cmであることに原因すると考えられるが, 厳密には, モンテ・カルロ法により, コンプトン散乱光子のヒストリーを追跡して, 多重散乱の高波高側のスペクトルへの寄与をださなければならない*。

4. 考 察

前述のごとく1個のシンチレータ・ユニットに要求される特性は, (1)高検出効率(表面積と厚が大)と(2)高分解能($\Rightarrow$ 低エネルギー測定可能限界が大)である。一般にこの2つの要求は相反する。なぜなら大容積のシンチレータでは集光効率の低下と不均一性が増し, さらに何本かのPMを結合せねばならないため, それらの光電変換効率の不一致によっても分解能が劣化する。また, シンチレータの厚さの増加によるシンチレーション光子の吸収も悪影響をおよぼす因子となる。

Van Dilla らの¹⁾計算によると直径56.6 inの液体シンチレータを表面より9 inの距離の中心軸上にある点線源¹³⁷Cs 662 keV γ 線で照射した場合, シンチレータの厚さを4 inから28 inに増加すると, 検出効率**と分解能**はともに単調によくなっていく。検出効率は約15 inでほぼ飽和値($\sim 90\%$)に達し, それ以上では増加しない。6 in厚では28 inに比して約90%の検出効率を示す。一方, 分解能は6 inの50%から28 inの15%まで単調に減少するとしているが, かれらの計算にはシンチレータ内での光子の吸収が考慮されていないので分解能が実験的には計算どおりに向上するとは考えられない。

現在使用しているシンチレータ・ユニットでは, 得

* Van Dilla らのモンテ・カルロ計算によると, 15 in直径, 11 in高さくらいの寸法の液体シンチレータを662 keV γ 線で照射したときのスペクトルにおいて, 多重コンプトン散乱による高エネルギー側の広がりが見られる¹⁾。

** シンチレータ表面に達した γ 光子のうち, 出力パルスを生ずるものの割合。

** 3・2で述べた $\frac{1}{2}R$ であらわした。

られたエネルギー分解能はユニットを構成している部品の性能から見ては限界に近いと考えられる。がいして有機シンチレータの発光効率は無機シンチレータのそれに比し小さい上、コンプトン多重散乱による広がり(σ_c)はシンチレータの容積を小さくすることによってのみ減少されうる。したがって、分解能は検出効率を犠牲にせずに改善することが不可能である。従来有機シンチレータに重金属を混入して光電効果の断面積を増し分解能を改善しようとする試みがなされたが成功していない。ゆえに現在のところ、大型有機シンチレータのエネルギー分解能を大巾によくすることは期待できない。しかし、われわれのシンチレータにおいて今後の改良点として考えられることは以下のとおりである。(1)発光効率の大きなシンチレータ(アントラセンの65%くらいの効率を有するプラスチック・シンチレータがある。)を使って σ_c を小さくすること。これは検出器の低エネルギー γ 線に対する測定可能限界を拡大することにもなる。(2)現在5 inのPMを使っているが、これを7 in PM 4本に代え、集光効率をあげること。(3)シンチレータの四隅を円形に切削し、検出効率をあまり減らさずに σ_c を多少小さくする。同時に light guide を使用することも考えられる。

5. 結 論

HC に用いる大型プラスチック・シンチレーション

検出器ユニットの 662 keV $\sim$ 2.62 MeV の γ 線にたいする応答を研究した。波高分布はコンプトン散乱電子の分布に対応した低エネルギー側に広がりをもつ非対称なピークを示し、ピークの波高値と一次コンプトン反跳電子の最大エネルギーは上記のエネルギー範囲で直線関係を示した。ピークの高エネルギー側の分散には3つの因子が寄与するが、それらのおのおのにつき検討した結果、現在のユニットでは得られた分解能はBurchらのものと比較して妥当なものであることを示した。最後に前述の結果から今後の問題点につき考察を行なった。

この研究に終始ご指導を賜った物理研究部伊藤岳郎部長に感謝する。技術部八代重雄氏には実験の一部を手伝っていただいた。

文 献

- 1) M.A. Van Dilla and E.C. Anderson: Whole Body Counting, p.41, IAEA, Wien (1962)
- 2) P.R.J. Burch, D. Hughes, T.A. Iinuma, T.R. Overton and D.B. Appleby: Whole Body Counting, p.59, IAEA, Wien (1962)
- 3) P.R.J. Burch: *Proc. Phys. Soc.*, **77**, 483 (1961)
- 4) T.A. Iinuma and P.R.J. Burch: *Nucl. Instr. Meth.*, **16**, 247 (1962)
- 5) P.M. Bird and P.R.J. Burch: *Phys. Med. Biol.*, **2**, 217 (1958)

Abstract

A Whole Body Counter Employing Eight Units of Plastic Scintillation Detectors

I. γ -Ray Performance of a Plastic Scintillation Detector Unit

Takeshi A. INUMA, Norimasa NOHARA, Eiichi TANAKA, Toshiyuki HIRAMOTO,
and Tomio ISHIHARA

Physics Division, National Institute of Radiological Sciences, Chiba, Japan

A whole body counter has been built utilizing eight units of plastic scintillation detectors at National Institute of Radiological Sciences. A detector unit is made of a plastic scintillator (50 cm $\times$ 50 cm $\times$ 15 cm) and four 5 in diameter photomultipliers which are optically coupled to a surface of the scintillator via light guides. In the first report we describe the response of the unit to four kinds of monochromatic γ -rays (^{137}Cs , ^{65}Zn , ^{40}K and ThC'') in the energy-range between 0.662 and 2.62 MeV. Each γ -ray spectrum obtained showed an asymmetrical peak having a broad tail on the low energy side. A linear relationship was observed between pulse heights at the peak and the maximum energies of Compton-recoiled electrons at first collision, intersecting the energy axis at about 50 keV. "Half-Resolution" that is the relative half-width at half-maximum in the high energy side of the peak was calculated for the four

*spectra, and found to be 28.6% for ^{137}Cs , 18.3% for ^{65}Zn , 15.7% for ^{40}K and 12.1% for ThC'' , respectively. The "Half-Resolution" was analyzed following the method developed by Burch (Proc. Phys. Soc., **77**, 483, 1961), results of the analysis being compared with those of the plastic scintillator at Leeds University. It was found that the observed "Half-Resolution" was reasonable for the present set-up of the detector. Several modifications are suggested in order to extract better performance from the detector.*