



Title	新しいパルス波形解析を利用した多層シンチレータ弁別による高分解能PET装置の検討
Author(s)	小川原, 亮
Citation	北海道大学. 博士(医学) 甲第12546号
Issue Date	2017-03-23
DOI	10.14943/doctoral.k12546
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/68562
Type	theses (doctoral)
Note	配架番号 : 2287
File Information	Ryo_Ogawara.pdf



[Instructions for use](#)

学 位 論 文

新しいパルス波形解析を利用した多層シンチレータ弁別による
高分解能 PET 装置の検討

(Feasibility study on a high performance PET device using multi-layer
scintillation detector with novel pulse shape discrimination method)

2017 年 3 月

北 海 道 大 学

小 川 原 亮

目 次

発表論文目録および学会発表目録	1 頁
緒言	4 頁
略語表	6 頁

第 1 章

LaBr₃:Ce シンチレータを用いた新しい信号パルス波形解析による

アルファ崩壊自己放射能の除去

1. 緒言	7 頁
2. 方法	
2-1 データ収集システム	12 頁
2-2 高周波ノイズ除去とその影響について	12 頁
2-3 Peak-to-charge discrimination (PQD) 法における閾値の決定	14 頁
2-4 PQD 法によるアルファ崩壊自己放射能除去精度の評価	15 頁
3. 結果	
3-1 高周波電気ノイズ除去とその影響について	16 頁
3-2 PQD 法における閾値の決定	18 頁
3-3 PQD 法によるアルファ崩壊自己放射能除去精度の評価	23 頁
4. 考察	
4-1 PQD 法とバックグラウンド減算法	27 頁
4-2 信号パルス波形のピーク値 V_p における飽和現象	29 頁
4-3 V_p/Q 値の供給電圧依存性	30 頁
4-4 信号パルス波形のサンプリングレートによる精度変化	32 頁

4-5 測定システムの不感時間による影響	32 頁
4-6 低放射能環境放射線の測定	33 頁
4-7 PQD 法の発展性	34 頁
5. 小括	34 頁

第 2 章

新しい信号パルス波形解析による積層シンチレータ検出器の性能評価

1. 緒言	35 頁
2. 方法	
2-1 DOI 検出器用シンチレータの選定	39 頁
2-2 PQD 法による DOI 検出器のパルス波形弁別精度	40 頁
2-3 PQD 法による DOI 検出器のエネルギー分解能	43 頁
2-4 PQD 法と charge comparison 法における信号弁別精度	43 頁
3. 結果	
3-1 DOI 検出器用シンチレータの選定	47 頁
3-2 PQD 法による DOI 検出器のパルス波形弁別精度	54 頁
3-3 PQD 法による DOI 検出器のエネルギー分解能	56 頁
3-4 PQD 法と charge comparison 法における信号弁別精度	58 頁
3-5 シンチレータの発光特性と V_p/Q 値	64 頁
4. 考察	
4-1 GSO:Ce シンチレータにおける Ce 添加濃度と減衰時定数	66 頁
4-2 PQD 法と charge comparison 法の比較	66 頁
4-3 PQD 法を用いた DOI 検出器の PET 装置への実装	68 頁

5. 小括	69 頁
第 3 章	
新しいパルス信号パルス波形解析による積層シンチレータ検出器 を用いたテーパー状 PET 装置の実現可能性検討	
1. 緒言	70 頁
2. 方法	
2-1 Geant4 モンテカルロコード	75 頁
2-2 積層型テーパー状 PET 装置のシミュレーション体系	76 頁
2-3 積層型テーパー状 PET 装置の感度分布と検出効率	77 頁
2-4 積層型テーパー状 PET 装置の空間分解能	79 頁
3. 結果	
3-1 積層型テーパー状 PET 検出器の感度分布と検出効率	80 頁
3-2 積層型テーパー状 PET 検出器の空間分解能	89 頁
4. 考察	
4-1 再構成画像における画素サイズの不均一性の影響	91 頁
4-2 テーパー状デザインによる検出効率の増加	92 頁
4-3 FOV 辺縁部における空間分解能の低下	92 頁
4-4 今後の展望	93 頁
5. 小括	94 頁
総括および結論	95 頁
謝辞	96 頁
引用文献	97 頁

発表演題目録および学会発表目録

本研究の一部は以下の論文に発表した。

1. Ryo Ogawara and Masayori Ishikawa
“Feasibility study on signal separation for spontaneous alpha decay in LaBr₃: Ce scintillator by signal peak-to-charge discrimination”
Review of Scientific Instruments, 86, 085108 (2015).
2. Ryo Ogawara and Masayori Ishikawa
“Signal pulse emulation for scintillation detectors using Geant4 Monte Carlo with light tracking simulation”
Review of Scientific Instruments, 87, 075114 (2016).

本研究の一部は以下の学会に発表した。

1. 小川原亮、石川正純
「LaBr₃:Ce シンチレータにおける波形解析を用いた α 線自己放射能除去方法の研究開発」
第 62 回応用物理学会 春季学術講演会
2015 年 3 月 11~14 日、東海大学 湘南キャンパス
2. 小川原亮、石川正純
「Vp/Q Discrimination 法による DOI-PET 検出器の実現可能性の検討」
第 76 回応用物理学会 秋季学術講演会
2015 年 9 月 13~16 日、名古屋国際会議場
3. Ryo Ogawara and Masayori Ishikawa
“Novel Alpha-Gamma Discrimination Method for LaBr₃:Ce Scintillator”
2015 IEEE Nuclear Science Symposium & medical Imaging Conference
2015.10.31-11.7, San Diego, California, USA
Town and Country Resort and Convention Center

4. Ryo Ogawara and Masayori Ishikawa
“Feasibility study on 10-layer DOI-PET detector”
2015 IEEE Nuclear Science Symposium & medical Imaging Conference
2015.10.31-11.7, San Diego, California, USA
Town and Country Resort and Convention Center
5. 小川原亮、石川正純
「Peak-to-Charge Discrimination (PQD) 法による GSO:Ce (0.4, 1.0, 1.5 mol%)シンチレータを用いた時定数分解能の評価」
第 63 回応用物理学会 秋季学術講演会
2016 年 3 月 19~22 日、東京工業大学 大岡山キャンパス
6. 小川原亮、石川正純
“Feasibility Study on Novel Depth-of-Interaction Detector using V_p/Q Discrimination Method”
第 111 回医学物理学学会
2016 年 4 月 14~17 日、パシフィコ横浜
7. 小川原亮、石川正純
“Simulation Study on Novel Depth-Of-Interaction Detector by the V_p/Q Discrimination Method using GEANT4 Monte Carlo Code”
第 111 回医学物理学学会
2016 年 4 月 14~17 日、パシフィコ横浜
8. 小川原亮、石川正純
“Performance evaluation of a novel 4-layer DOI detector using peak-to-charge discrimination method”
第 112 回医学物理学学会
2016 年 9 月 8~10 日、沖縄コンベンションセンター
9. Ryo Ogawara and Masayori Ishikawa
“A Novel 4-layer DOI Detector using Peak-to-Charge Discrimination Method”
2016 IEEE Nuclear Science Symposium & medical Imaging Conference
2016.10.30-11.6, Strasbourg, France, Convention Center

本研究の一部は以下の発明として特許出願中である。

1. 小川原亮、石川正純

発明の名称：LaBr₃ シンチレーション検出器及び特定イベント排除方法

出願人：国立大学法人北海道大学

出願番号：特願 2015-035788

出願日：平成 27 年 2 月 25 日

2. 小川原亮、石川正純

発明の名称：シンチレーション光検出装置および放射線検出装置

出願人：国立大学法人北海道大学

出願番号：特願 2015-172498

出願日：平成 27 年 9 月 2 日

緒言

放射線計測は原子力関係分野のほか、医療においても幅広く利用されている。したがって、新しい放射線計測技術の開発は、医療機器の性能向上や新しい医療装置の開発に繋がる。北海道大学保健科学研究所医用生体理工学分野・石川研究室（旧医学研究科医学物理工学分野）では、新しい放射線計測技術の開発を主たる研究テーマとしており、これまでに多くの医療現場で役立つ計測機器の開発を行い、製品化に至っている。

最初に与えられた研究テーマとして、シンチレーション検出器として最も高いエネルギー分解能を持つ $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータについて、信号波形解析に基づいた自己放射能に伴うバックグラウンドノイズの低減を試みた。 $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータは、結晶に含有される放射性核種によってアルファ線を自己放射能として発生させてしまうという欠点を有している。しかし、アルファ崩壊に伴う信号波形とガンマ線による信号波形には僅かな違いがあるという先行研究からヒントを得て、信号波形の最高値（ピーク値）と全積分電荷量の関係からこれらの信号を弁別できるのではないかと着想し、新しいパルス波形弁別法である PQD (peak-to-charge discrimination) 法を開発した。PQD 法を用いることにより、信号波形の形からアルファ線とガンマ線を高い精度で識別することに成功した。ピーク値と全積分電荷量はいずれも計測可能な量であり、計測技術も確立していることから、実装の可能性も十分に高いと考えられる。

PQD 法は波形のピーク値と全積分電荷の比を解析するだけの簡単な方法であるが、シンチレータの特性、特に発光減衰時間に対して高い感度を有していることが分かっており、このことは核医学分野にて利用されている PET (positron emission tomography) 装置において重要な意味を持つ。PET 装置では、FOV (field-of-view) 中心に比べて辺縁部で再構成画像の分解能が低下することが知られている。PET 装置でよく利用される Ce ドープシンチレータでは、微量添加物である Ce の濃度を変化させることにより、発光減衰時間が変化することが知られている。Ce 濃度の異なる $\text{GSO}:\text{Ce}$ ($\text{Gd}_2\text{SiO}_6:\text{Ce}$) シンチレータを積層することで、シンチレータ内での深さ方向の相互作用位置情報を取得する DOI (depth-of-interaction) 法を利用して辺縁部の分解能低下を改善した DOI-PET 装置が開発されている。PQD 法は高精度で Ce 濃度の異なる $\text{GSO}:\text{Ce}$ シンチレータからの信号を弁別できるため、PQD 法を DOI-PET 装置に応用可能であると考え、PQD 法を用いた DOI-PET 検出器の基礎検討を行った。実測による検討として、異なる 4 種類の Ce 濃度を持つ $\text{GSO}:\text{Ce}$ シンチレータを用いて 4 層 DOI 検出器の実現可能性検討を実施した。その結果 PQD 法を用いること

により誤検知率 3%以下という高い精度で各シンチレータからの信号を弁別できることを確認した。また積層状態における 662 keV 全エネルギーピークに対するエネルギー分解能は FWHM (Full width at half maximum) で約 10.95 %であり、DOI-PET 装置への実装において十分な性能を示した。

DOI-PET 装置の実現可能性が実測により証明されたことから、より現実的な DOI-PET 装置についてデザインの検討を行った。DOI 法を用いた PET 装置では、FOV 径が小さいほど DOI 法の効果が顕著であることから、モンテカルロコード Geant4 を用いて PQD 法を実装した小動物用 PET 装置のデザインの検討と性能評価を行った。現在小動物用 PET 装置に要求される理想的な空間分解能は 0.5mm とされているが、既存の装置では要求される空間分解能は達成されていない。また小動物用 PET 装置では検出効率が空間分解能に大きく寄与するが、PET 装置では検出器と読み出し素子の形状の関係から検出器が設置できない空間が生じてしまい検出効率が低下している。そこで検出器をテーパ状とすることで、検出器が設置されていない空間を極力減らすことによる検出効率の改善に着想した。現在製品化されている装置に実装されている積層型 DOI 検出器では、テーパ状の検出器配置が困難であるが、PQD 法を用いた DOI 検出器であれば積層型テーパ状の検出器配置が可能である。また先行研究で検討されているテーパ状のデザインでは、DOI 情報を取得する際エネルギー分解能が低下するという報告があり、またシンチレータ自体をテーパ状に加工しているため製作コストの増加が懸念されている。本研究で開発した PQD 法による 4 層 DOI 検出器を応用することで、これらの問題を解決するテーパ状 PET 装置が可能であると考えた。本研究では従来の PET 装置とテーパ状の PET 装置における検出効率の差と、OSEM (order-subset expectation maximization) 法による画像再構成を用いた空間分解能を比較した。

本論文ではテーパ状 PET 装置の実現可能性の検討に至るまでの各技術開発の研究課程を 3 章構成で論じていく。第 1 章では $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータによるアルファ線とガンマ線の弁別を行うための PQD 法の具体的な手法を論じ、第 2 章では PQD 法を用いた $\text{GSO}:\text{Ce}$ シンチレータによる 4 層 DOI 検出器の性能を実測によって評価した結果が論じられている。第 3 章では第 1, 2 章の結果に基づいた 4 層 DOI 検出器を利用した高検出効率を示すテーパ状 PET 装置の実現可能性について論じている。

本文中および図中で使用した略語は以下のとおりである。

ADC	Analog-to-digital converter
BG	Background
CAMAC	Computer-Aided measurement and control
DC	Direct current
DOI	Depth-of-interaction
FFT	Fast Fourier transform
FOM	Figure of merit
FOV	Field of view
FPGA	Field programmable gate array
FWHM	Full width at half maximum
GAGG	$Gd_3Al_2Ga_3O_{12}$, Gadolinium Aluminum Gallium garnet
GSO	Gd_2SiO_6
GPU	Graphics processing unit
LOR	Line of response
LuAG	$Lu^3Al^5O_{12}$, Lutetium Aluminum garnet
PET	Positron emission tomography
NIM	Nuclear instrument modules
OSEM	Order-subset expectation maximization
PMT	Photomultiplier tube
PQD	Peak-to-charge discrimination
Si-PM	Silicon photomultiplier
TOF	Time of flight
VOR	Volume of response

第 1 章

LaBr₃:Ce シンチレータを用いた新しい信号パルス波形解析によるアルファ崩壊自己放射能の除去

1. 緒言

放射線計測を行う場合検出器の選定は非常に重要であり測定粒子やエネルギー、また測定環境も考慮して適切な放射線検出器を選択する必要がある。現在多種多様な放射線検出器が存在するが、多くの場合入射放射線と検出器の相互作用を電気信号として取得している。電離箱などのガス検出器は直接電離量を測定し、半導体検出器では入射放射線によって生成されたホール正孔対を測定している。一方シンチレーション検出器は入射放射線のエネルギー付与に比例した発光強度を持つため、光電子増倍管などを用いて光子を電子に変換し測定を行うのが一般的である。上記の様に放射線検出器とは測定に至るまでの物理過程が異なるため同様の放射線を測定しても検出器によって応答が異なり、特に検出効率やエネルギー分解能、時間応答などに注目して検出器は選択される。検出効率は物質の密度や原子番号、また検出素子のサイズに依存し一般的に重い元素を用いた無機シンチレータの検出効率が優れている。検出効率は透過性の高い高エネルギーガンマ線の測定や、多くのイベント数を必要とするイメージングデバイスにおいて重要である。エネルギー分解能は複数の核種が存在する環境放射線などにおいてそれらを識別するために重要であり、一般的に半導体検出器が高い性能を有している。また 511keV 対消滅ガンマ線を測定している PET (Positron emission tomography) 装置ではコンプトン散乱によってエネルギーが低下した成分が画質を低下させるが、十分なエネルギー分解能を持つ検出器であれば 511keV の γ 線のみを測定し散乱線を除去することが可能である。ガンマ線スペクトロメトリーや放射線計数などの測定は放射線を 1 つ 1 つ識別し解析することが前提であるが、入射放射線の数が多くなると検出器の時間応答が長い場合それらの識別が困難になり複数の信号が同時に計測されてしまう。一般的に検出器の時間応答は有機シンチレータ、無機シンチレータ、半導体検出器の順に早くこれらは物理過程に起因しているため検出素子の材質に依存している。

近年様々な材質を用いた無機シンチレータが研究開発され性能が飛躍的に向上している。主要なシンチレータの特性をまとめた表 1-1 から分かるように、LaBr₃:Ce

シンチレータは発光量が多く非常に高いエネルギー分解能と早い時間特性を有している^{1,3}。LaBr₃:Ce シンチレータは現在個体検出器において最もエネルギー分解能の高い高純度 Ge 半導体検出器の代替機としても注目されている^{1,2}。また LaBr₃:Ce シンチレータは非常に短い発光時間を有しており時間特性も優れている³。さらに LaBr₃:Ce シンチレータは発光特性に温度依存性が少なく、広い温度範囲でガンマ線のエネルギーと発光量の線形性が維持している⁴。しかしシンチレータを用いて放射線検出器を作成する場合、一般的に光電子増倍管や Si-PM (Silicon photomultiplier) といった温度依存性が存在する光子電子変換装置を用いるので、LaBr₃:Ce シンチレータの温度特性を十全に発揮するためには読み出し素子にも注意する必要がある^{5,6}。LaBr₃:Ce シンチレータは放射線損傷にも強い耐性を示しており、放射能の高い環境でも安定して動作可能であり重粒子や中性子の計測でも利用されている^{7,8}。それらの高い性能は環境放射線計測用のサーベイメータや TOF (Time of flight) 測定、また PET 装置の検出器への応用が可能であり LaBr₃:Ce シンチレータを用いた装置開発は世界中で行われている^{3,9}。一方 LaBr₃:Ce シンチレータの欠点として潮解性があることが挙げられ、結晶そのものを大気中で取り扱うことは困難である。また LaBr₃:Ce シンチレータに含有される放射性核種の崩壊に起因して、常にシンチレータ内部から自己放射能バックグラウンド信号が発生しているという欠点がある¹⁰ (図 1-1)。

LaBr₃:Ce シンチレータに含有される放射線核種は複数存在し、アルファ線、ベータ線、ガンマ線のすべてが自己放射能として計測される¹⁰。含有される¹³⁸La は電子捕獲(66.4%)により¹³⁸Ba になり、1436 keV のガンマ線と 32 keV の Ba K-X 線を放射する。また¹³⁸La は、ベータ崩壊(33.6%)により終端エネルギー255keV のベータ線と 789keV のガンマ線を放出する。LaBr₃:Ce シンチレータは²²⁷Ac 系列の核種を含有しており、それらは 5~6 MeV のアルファ線を放出すると同時に 100~500keV 程度の特徴ガンマ線を放出している。一般的にシンチレータは発光量の入射粒子依存性(アルファベータ比)が存在し¹¹、光子や電子に比べ原子番号の大きな粒子ほど発光量は少なくなる。LaBr₃:Ce シンチレータでは 5~6 MeV のアルファ線は 1.6~3 MeV 程度のガンマ線のエネルギー付与による発光量と等価である¹⁰。アルファベータ比はシンチレータの材質や添加物に依存し、LaBr₃:Ce シンチレータではさらに Sr などの添加物を加えることでアルファベータ比を小さくすることが可能である¹²。上記の様に LaBr₃:Ce シンチレータは広いエネルギー範囲にわたって様々な粒子の自己放射能を持っているが、¹³⁸La 崩壊に起因する 1436 keV のガンマ線などはエネルギー校正にも利用可能であり、自己放射能を利用した測定も可能である。これらの自己放射は比較的イベント数が少なく、計数率が高いイベントを測定する場合は無視できるが、計数率が低い実験に用いる場合は無視できない。一般的な

対策として自己放射能の情報を事前を取得し測定後にそのデータを減算するというバックグラウンド除去法があるが、減算の誤差伝搬により統計誤差は加算されてしまい微弱な信号を検出する場合はシグナルノイズ比の低下が問題となる。また事前に測定した自己放射能にはその環境における環境放射線も混在するため、高精度で自己放射能のみを測定するには遮蔽室などが必要である。近年検出効率増加のため巨大な $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータも多く作成されているが¹³、巨大化に付随しこれらの自己放射の計数率も大きくなるので、この自己放射に対する研究は結晶の巨大化技術の進歩と共に進められるべき必要不可欠なものである。

表 1-1 シンチレータ特性表。

シンチレータ の名称	密度 [g/cm ³]	発光 波長* [nm]	発光量**	減衰 時定数 [ns]	エネルギー 分解能***	潮解性	自己 放射能
NaI:Tl	3.67	415	45000	230	5.6%	Yes	No
BGO	7.13	480	8000	300	12%	No	No
GSO:Ce	6.71	435	9000	30~60	10%	No	No
LYSO:Ce	7.4	428	20000	40	9%	No	Yes
GAGG:Ce	6.63	520	60000	88	6.3%	No	No
LuAG:Pr	6.7	312	22000	20	4.2%	No	Yes
$\text{LaBr}_3:\text{Ce}$	5.3	380	63000	16	3%	Yes	Yes
CeBr_3	5.2	380	60000	17	4%	Yes	No
$\text{SrI}_2:\text{Eu}$	4.6	430	80000	800	3.4%	No	No

* 発光波長分布の最大値における波長。

** 1 MeV あたりの発生光子数。

*** 622 keV ガンマ線全エネルギーピークにおけるエネルギー分解能(FWHM)。

LaBr₃:Ce シンチレータ 自己放射能概念図

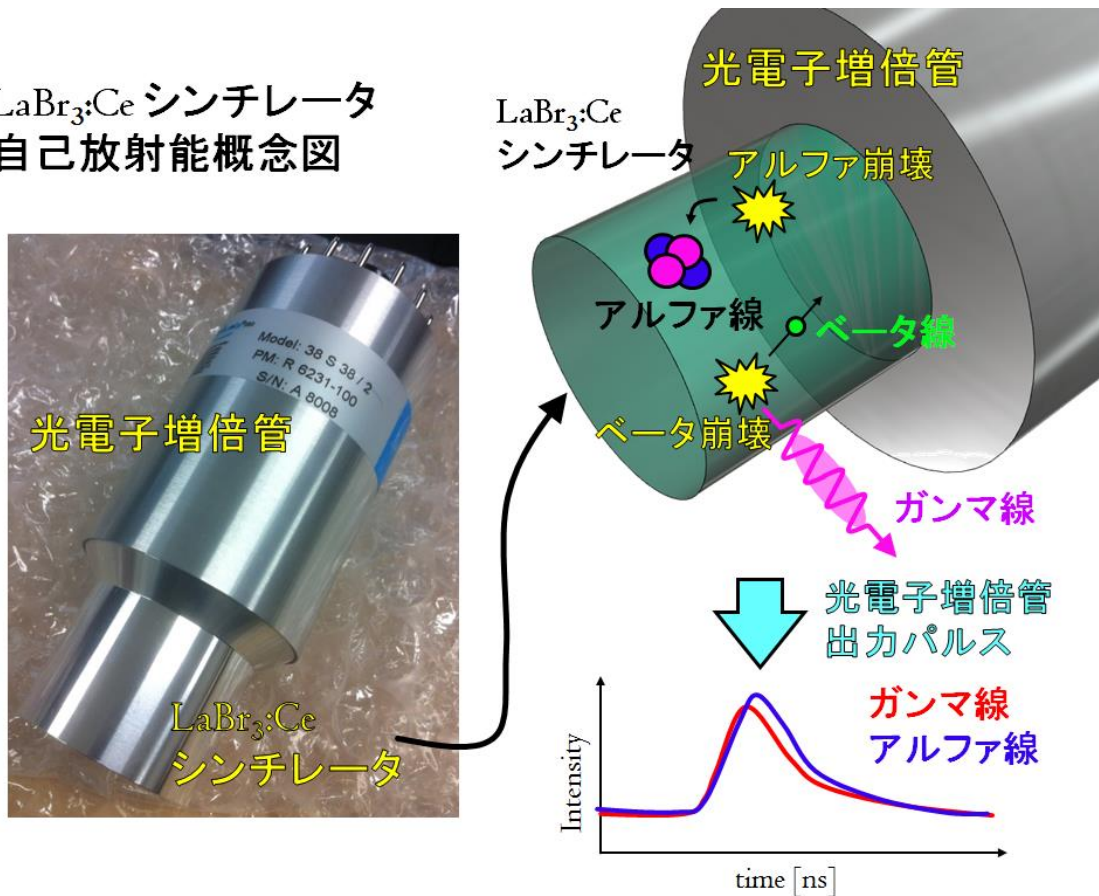


図 1-1 LaBr₃:Ce シンチレータは含有する放射性核種の崩壊によってアルファ線、ベータ線、ガンマ線の自己放射能を有する。またアルファ線とガンマ線のイベントにおける光電子増倍管の出力波形はピーク付近に僅かな差が存在する。

一方多くのシンチレータでは発光時間特性の入射粒子依存性が報告されている¹⁴⁻¹⁷。特に有機シンチレータでは中性子とガンマ線において発光時間が大きく異なる特性を示すものがあり、測定したパルス波形からその差を検出し波形の情報から入射粒子を識別するパルス波形弁別という解析方法がある^{14, 15}。放射線計測において粒子識別を行う方法は多数存在するが、このパルス波形弁別は単一の読み出しで複数の粒子が識別可能という点で優れている。無機シンチレータにも入射粒子に依存した発光時間特性の変化は報告されており^{16, 17}、パルス波形弁別を用いた LaBr₃:Ce シンチレータのアルファ線バックグラウンド除去はすでに検討されている^{18, 19}。先行研究によると LaBr₃:Ce シンチレータが接続された光電子増倍管の出力パルス波形において、アルファ線とガンマ線による波形はピーク付近に僅かな差があるという報告がある¹⁹(図 1-1)。しかしその差が微小であるため多くの

先行研究で $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータにおけるパルス波形弁別は適切ではないと報告されている¹⁸。先行研究として成功が報告されているものは、波形のピーク付近に適切な大きさの積分窓を作成し、その領域の積分電荷と波形の全積分電荷の比を用いてアルファ線とガンマ線のイベントを識別しているが、完全な識別には至っていない¹⁹。またこの方法では任意に決めた積分窓の範囲に精度が強く依存してしまい、積分窓を測定回路で作成する場合電圧ノイズに起因して積分窓が時間方向にばらついてしまうという現象も生じていると考えられる。

一方ガンマ線スペクトロメトリーにおいて、極端にエネルギーが低い領域(光電効果領域)や高エネルギー領域(飽和領域)でなければ、信号パルス波形のピーク値はエネルギーと線形であり信号パルス波形の全積分電荷 Q も同様であるとされている。したがってその比 V_p/Q は一つの信号パルス波形に対して一意に定められ、線形性が保証されているエネルギー領域では定数となると考えられる。しかしアルファ崩壊に起因する信号パルス波形は、ピーク付近でガンマ線の信号パルス波形と形が異なるので V_p/Q の定数がガンマ線と異なるはずである。そこで、時間方向の情報を用いない信号パルス波形のピーク値 V_p と全積分電荷 Q という、いずれも測定可能な値だけを用いた V_p/Q 値によってパルス波形弁別が可能ではないかと考えた²⁰。第1章では開発した PQD (peak-to-charge discrimination) 法の詳細な説明と、本手法を用いた $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータのアルファ線自己放射能除去精度について説明する。

2. 方法

2-1 データ収集システム

PQD 法では、信号パルス波形データの形状が最も重要であることから、信号パルス波形に影響を与えるような波形整形増幅器等の回路は使用せず、 $\Phi 1.5'' \times 1.5''$ LaBr₃:Ce シンチレータ(38S38/2/B380, BrillLanCeTM, Saint-Gobain)に接続された光電子増倍管(R6231-100, 浜松ホトニクス(株))の出力を直接オシロスコープ (Wave Runner 64xi, LeCroy, 5GS/s) に入力して波形データを取得した(図 1-2)。オシロスコープの周波数帯域幅は 600 MHz であり、入力インピーダンスは 50 Ω に設定した。また本測定では光電子増倍管に 1000 V の供給電圧を与えた。PQD 法を行うための解析コードは C++言語を用いて作成した。自作の解析コードでは DC (Direct current) offset correction, normalize, FFT (Fast Fourier transform) noise analysis, moving average などのフィルタ処理を自由に設定できるように工夫を施した。

2-2 高周波電気ノイズ除去とその影響について

一般的にシンチレータを装着した光電子増倍管の出力パルス波形における全積分電荷 Q は、シンチレータへのエネルギー付与と比例関係にあるとされている。本研究では LaBr₃:Ce シンチレータの自己放射能から得られた信号パルス波形の全積分電荷に対してヒストグラム解析を行い、自己放射能エネルギースペクトルを取得した。また PQD 法で使用する信号パルス波形のピーク値 V_p は高周波の電気ノイズの影響を大きくうけることが容易に想像される。したがって高周波電気ノイズ除去の為に信号パルス波形の移動平均(2ns 幅)をとる解析や、FFT によるノイズの周波数解析から 50MHz ローパスフィルターを用いる解析を行った。本研究ではノイズ除去前後ピーク電圧と全積分電荷の変化に対する検討を行った。

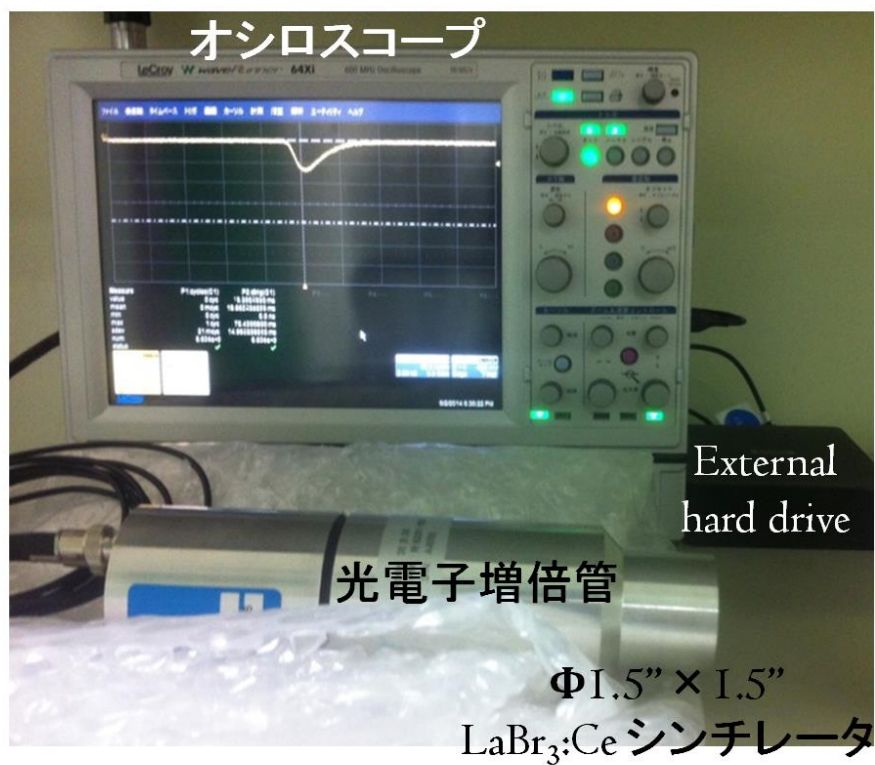
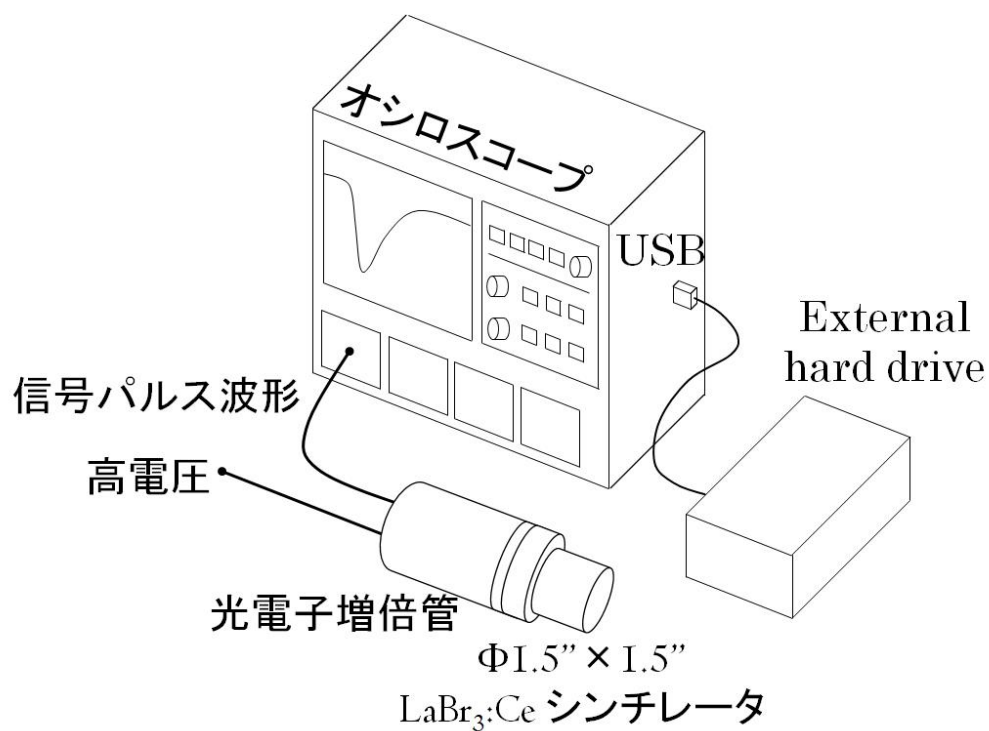


図 1-2 LaBr₃:Ce シンチレータの自己放射能によるパルス波形データ取得のための実験体系。

2-3 Peak-to-charge discrimination (PQD) 法における閾値の設定

一般的に放射線計測において、信号パルス波形のピーク値 V_p と全積分電荷 Q におけるヒストグラムは十分な統計数があれば正規分布をとる。したがって V_p と Q はそれぞれ正規分布における σ_{V_p} 、 σ_Q という標準偏差をもち、その比である V_p/Q は誤差伝播により決定される $\sigma_{V_p/Q}$ という標準偏差が存在する。PQD 法ではこの $\sigma_{V_p/Q}$ からアルファ線とガンマ線のイベントを識別する閾値を決定する。誤差伝播の式を理論的に解くと式(1-1)が得られる。

$$\begin{aligned}\sigma_{V_p/Q} &= \sqrt{\left(\frac{1}{Q}\sigma_{V_p}\right)^2 + \left(\frac{V_p}{Q^2}\sigma_Q\right)^2} \\ &= \frac{1}{Q}\sqrt{\sigma_{V_p}^2 + \left(\frac{V_p}{Q}\right)^2\sigma_Q^2}\end{aligned}\tag{1-1}$$

式(1-1)より V_p/Q 値を一定と仮定すると、 V_p/Q の標準偏差は積分電荷 Q (エネルギー)に反比例することが分かる。つまり、全エネルギー領域で一定の閾値を決める方法は適切ではなく、得られた全積分電荷に従って閾値は決定されるべきである。したがって PQD 法で用いる閾値ではこれらの理論に基づき式(1-1)の傾きを持った全積分電荷の関数を用いる。この閾値関数を作成するためには、広いエネルギー範囲におけるガンマ線の V_p/Q 値の積分電荷依存性を測定する必要がある。一方 LaBr₃:Ce シンチレータには自己放射能として 1.468 MeV 以下にガンマ線とベータ線のイベントが分布したデータが存在する。したがってこの自己放射の分布から閾値関数の作成が可能であり、特に外部の線源を用意する必要がない。これらの理論を証明する為に、LaBr₃:Ce シンチレータの自己放射のみを利用した閾値関数の作成と、その関数を用いたアルファ線の識別を試みた。

2-4 PQD 法によるアルファ崩壊自己放射能除去精度の評価

PQD 法によるアルファ崩壊イベントの除去率を定量的に評価するためには、アルファ崩壊イベントの数を正確に知る必要がある。しかし、ガンマ線のイベントと混在するアルファ線イベントの数を正確に知ることは困難である。したがって本研究では広く一般に用いられているバックグラウンド減算解析によるアルファ線除去の結果と PQD 法による結果を比較した。

本実験ではアルファ崩壊に起因するイベントが存在するエネルギー領域(1.5～3MeV)の単色外部ガンマ線源を用い、弁別能の検証を行った。単色ガンマ線源には 1.883 MeV ガンマ線を放出する ^{68}Ga 線源として Ge/Ga-68 線源((CS-6-14, 12.4 kBq, Siemens Medical Solutions))を使用した。この線源は 511 keV 対消滅光の線源として、PET の校正によく利用される密封線源である。この単色ガンマ線を用いて線源の有無の状態を引き算するバックグラウンド減算解析を行い、アルファ線イベントと混在した分布から 1.883 MeV の全エネルギーピークのみ分布を取得する。バックグラウンド減算法で得られた結果を真の分布と仮定して、PQD 法によって正確にアルファ線イベントが除去できているか評価した。2つのアルファ線除去解析における結果を定量的に比較するため、1.883 MeV 全エネルギーピークの分布に対してガウス関数を用いたフィッティング解析を行った。

3. 結果

3-1 高周波電気ノイズ除去とその影響について

ノイズ除去操作前後の信号パルス波形と、そのピーク値と全積分電荷を図 1-3 (a-c) 示す。図 1-3 (a-c) に示す信号パルス波形はガンマ線が 511keV のエネルギー付与を $\text{LaBr}_3\text{:Ce}$ シンチレータに与えた場合の信号パルス波形である。また図 1-3 (a) に示す信号パルス波形はノイズ除去前であり、図 1-3 (b, c) はそれぞれ移動平均と FFT ローパスフィルターを用いてノイズ除去を行った信号パルス波形である。これらの結果より、ノイズ除去前後のピーク値を比較すると約 4.7% の差が生じていることが示された。ピーク値は真のピーク値にノイズの大きさが加算されるので、ノイズを除去する前の方が大きい値をとっている。また移動平均と FFT ローパスフィルターによるノイズ処理において、ピーク値はほとんど変化していないため、両者におけるピーク値に対するノイズ除去性能はほぼ同様であると示された。

信号パルス波形の全積分電荷はピーク値と異なりノイズ処理前後で大きく変化していないことが図 1-3 (a-c) で示されている。フーリエ解析によるとすべての波形は複数の三角関数の積算で表現可能である。したがって電気ノイズも三角波の積算で形成されているので、積分によってそれらの高周波ノイズが除去されている。つまり、全積分電荷を取得する際すでに高周波ノイズが除去されているので、図 1-3 (d) に示すようにノイズ処理前後でエネルギー分布は変化していない。本研究では全積分電荷を用いてエネルギースペクトルを取得しているため、図 1-3 (d) に示すノイズ除去前後のエネルギースペクトルにも差が生じていない。これらの結果より、ノイズ除去の操作によってデータ欠損が生じていないことが示された。

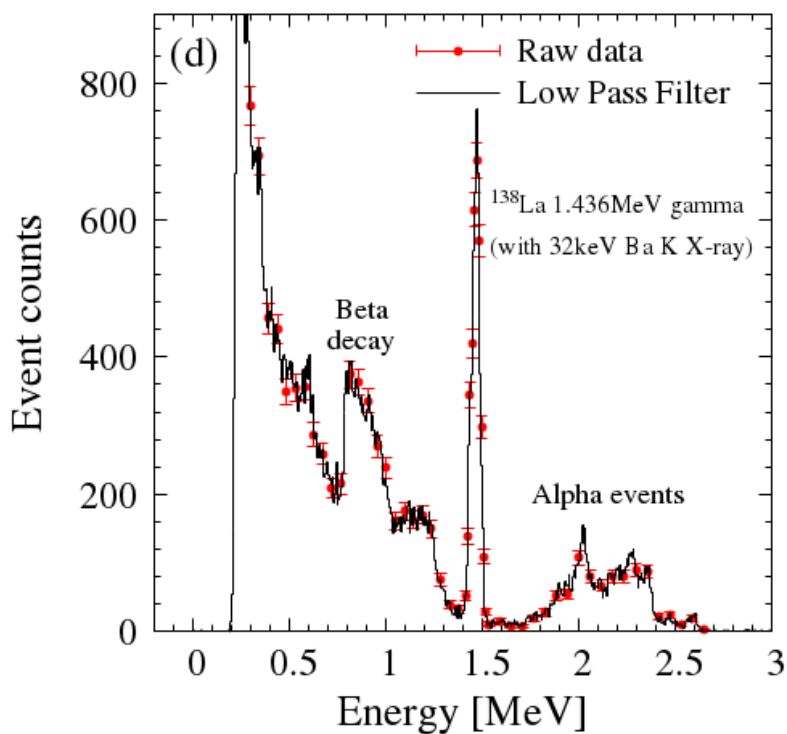
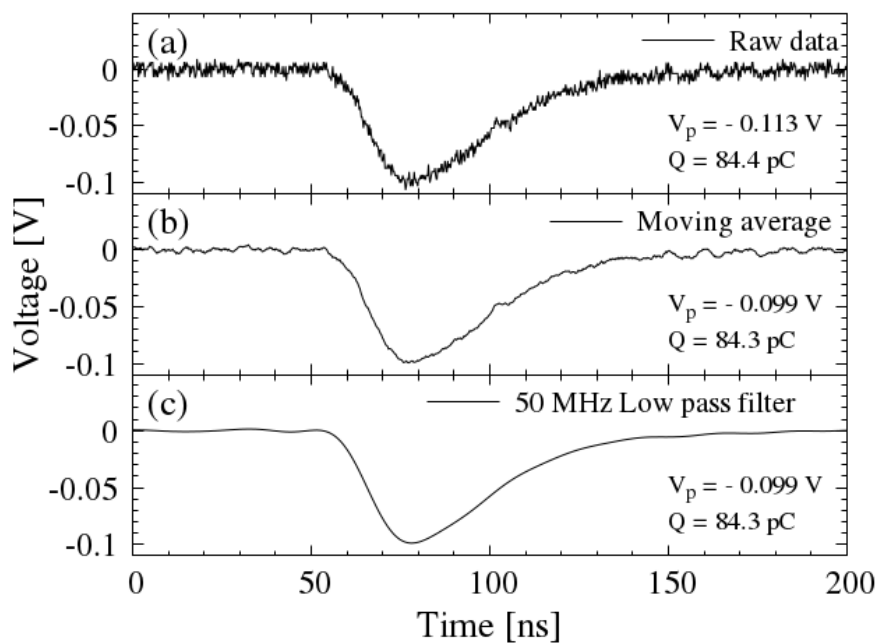


図 1-3 (a) ノイズ処理前、(b)移動平均、(c)FFT ローパスフィルタによるノイズ除去後の $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータ出力波形。(d)ノイズ処理前後の $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータ自己放射能エネルギースペクトル。

3-2 PQD 法における閾値の決定

図 1-4 (a) に LaBr₃:Ce シンチレータの自己放射能における、V_p/Q 値の積分電荷依存性(エネルギー依存性)を解析した結果を示す。図 1-4 (a) ではアルファ崩壊に起因するイベントが分布する 1.5~3 MeV の領域において 2 つの離散的な成分が確認できる。この 2 つの成分は等しい全積分電荷かつ V_p/Q 値が異なるということを示しており、アルファ線による信号パルス波形はガンマ線よりもピーク値が大きくなるという先行研究結果から¹⁹、V_p/Q 値が大きい方の分布がアルファ線であると示唆される。また 1.5~3 MeV の領域におけるガンマ線の要素は、コンクリート内に含まれる²⁰⁸Tl から発生する 2.615 MeV のガンマ線と考えられる。

図 1-4 (a) から、エネルギーが大きくなるにつれて V_p/Q 値が減少していることが分かる。ピーク値と全積分電荷がエネルギーに対して両者とも線形であれば、全エネルギー領域において V_p/Q 値は一定となるはずである。しかし図 1-4 (a) では明らかに全積分電荷に対して負の勾配となっているので、ピーク値と全積分電荷の線形性が破れていることが考えられる。PQD 法では一定の値をとる V_p/Q 値に対して誤差を関数化し閾値関数を作成するので、V_p/Q 値全体に負の勾配がある場合は閾値の設定が困難となる。この V_p/Q 値の負の勾配を補正するため、ピーク値の全積分電荷に対する依存性を調べた(図 1-4 (c))。図 1-6 (c)に示すように、低エネルギー領域ではピーク値と全積分電荷の線形性が保たれているが、1.5 MeV 以上では徐々に線形性が破れていることが示されている。本研究ではこのピーク値の飽和現象を補正するため、飽和曲線を適切な関数で再現しピーク値を補正した。飽和補正後の真のピーク値を V_{pCorr.} とすると、補正後は全積分電荷 Q に対して V_{pCorr.} = αQ (α=const.) と仮定できる。したがってここに飽和を表す項 1/(1 + βQ) (β=const.)を加えることで式(1-2)の関数が得られる。

$$V_p(Q) = \frac{\alpha Q}{1 + \beta Q} \quad (\alpha = const., \beta = const.) \quad (1-2)$$

$$V_{pCorr.} = \frac{V_p}{\left\{1 - \left(\frac{\beta}{\alpha}\right) V_p\right\}} \quad (1-3)$$

式(1-2)式を用いてピーク値と全積分電荷の飽和曲線に対してフィッティング解析を行い、補正用のパラメータである α と β が取得することが可能である。V_{pCorr.} = αQ と式(1-2) を用いて V_{pCorr.}について解くとピーク値の補正式(1-3)が得られる。またこの時 1.5~3MeV の領域に混在するアルファ線とガンマ線の 2 成分をフィッティング解析に使用すると精度が低下する可能性が高いため、高エネルギー領域ではアルファ線と考えられるデータを排除してフィッティング解析を行った。図

1-4(c) に示すピーク値の全積分電荷依存性と式(1-2)の関数における相関係数 R^2 は 0.9976 となり、非常に強い相関が得られ補正関数は妥当であると判断した。図 1-4 (b, d) はそれぞれ上記の過程でピーク値の飽和を補正した後の分布である。これらの結果から V_p/Q 値の全積分電荷に対する飽和現象が適切に補正されたことが示された。

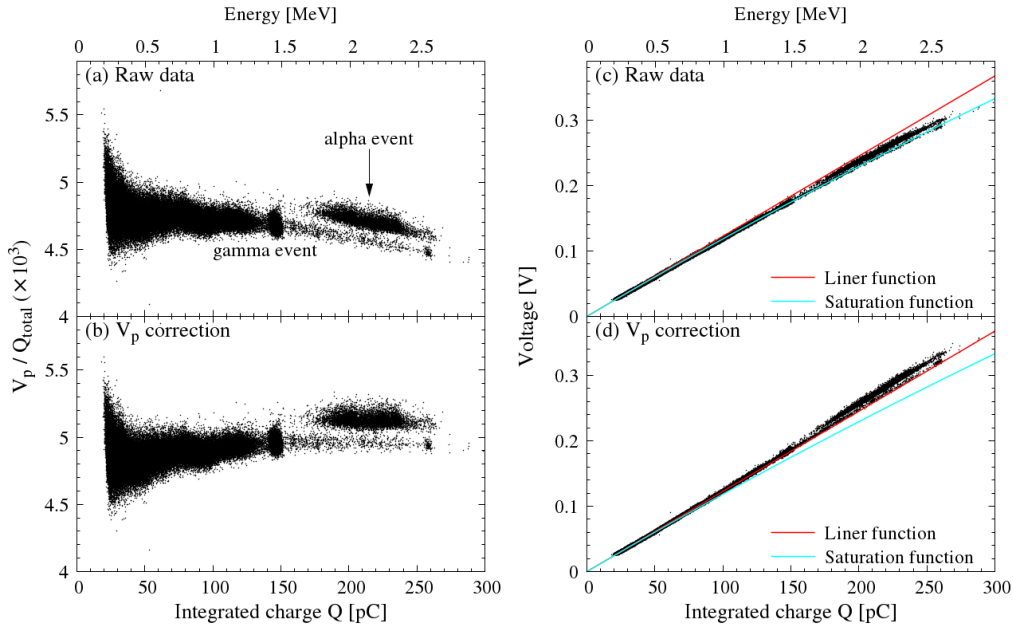


図 1-4 飽和現象補正前(a)と補正後(b)における V_p/Q 値の全積分電荷(エネルギー)依存性。また飽和補正前(c)と補正後(d)のピーク値 V_p と全積分電荷 Q の関係性を示している。

全エネルギー領域において効率良くアルファ線とガンマ線のイベントを弁別するため、式(1-1)を用いて閾値関数を作成した。この時式(1-1)のピーク値は飽和補正後の値を使用し、閾値関数は式(1-4)のように近似した。飽和補正後の V_p/Q 値の標準偏差に対して式(1-4)を用いてフィッティング解析を行うことで、閾値関数に必要な k と l のパラメータが取得可能である。

$$\sigma_{V_p/Q} = \frac{k}{Q} + l \quad (k = \text{const.}, l = \text{const.}) \quad (1-4)$$

図 1-5 (a) に V_p/Q 値の標準偏差 $\sigma_{V_p/Q}$ が $1 \sigma_{V_p/Q}$ 、 $2 \sigma_{V_p/Q}$ 、 $3 \sigma_{V_p/Q}$ (以下では $\sigma_{V_p/Q}$ を σ と記述)の状態におけるそれぞれの全積分電荷依存性とそのフィッティング結果を示す。フィッティング範囲はガンマ線のイベントのみが連続的に分布した 0.3~1.2 MeV のデータを用いた。図 1-5 (a) では実測による V_p/Q 値の標準偏差が、理論的に考察したフィッティング関数によって非常によく再現されたこと

を示している。図 1-5 (b) にそれぞれの閾値関数を図 1-4 (b) に示した V_p/Q 値の分布と同時に描写した結果を示す。この時全エネルギー領域において、この閾値関数より大きな値を取るイベントをアルファ線、小さな値をとるイベントをガンマ線と弁別した。

図 1-6 (a-c) に 1σ 、 2σ 、 3σ の閾値関数を用いたアルファ線除去前後のエネルギースペクトルを示す。また図 1-6 (a-c) では、 1.5MeV 以上のアルファ線イベントが分布しているエネルギー領域のイベント数を 10 倍に拡大している。PQD 法によってアルファ線イベントを除去した後も、環境放射線である ^{208}Tl の 2.615 MeV のガンマ線の寄与がエネルギースペクトルに分布していることが図 1-6 (a-c) で示されている。これらの結果から、 $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータの自己放射のみを用いて作成した閾値関数によって、アルファ線とガンマ線イベントの弁別が可能であることが示された。一方図 1-6 (d-f) では 1.5MeV 以下のガンマ線イベントのみが分布するエネルギー領域における、各閾値関数を用いたアルファ線除去前後の分布の差を百分率で示している。したがって、図 1-6 (d-f) ではガンマ線イベントが誤ってアルファ線だと誤検知された割合を示しており、閾値関数によってそれが大きく変動することを示している。 1.5MeV 以下のエネルギー領域におけるガンマ線の誤排除率は 1σ 、 2σ 、 3σ の閾値関数でそれぞれ平均 4.661% 、 0.809% 、 0.172% であり、 1% 以下の精度で測定を行う場合は 2σ 以上の閾値関数の使用が推奨される。

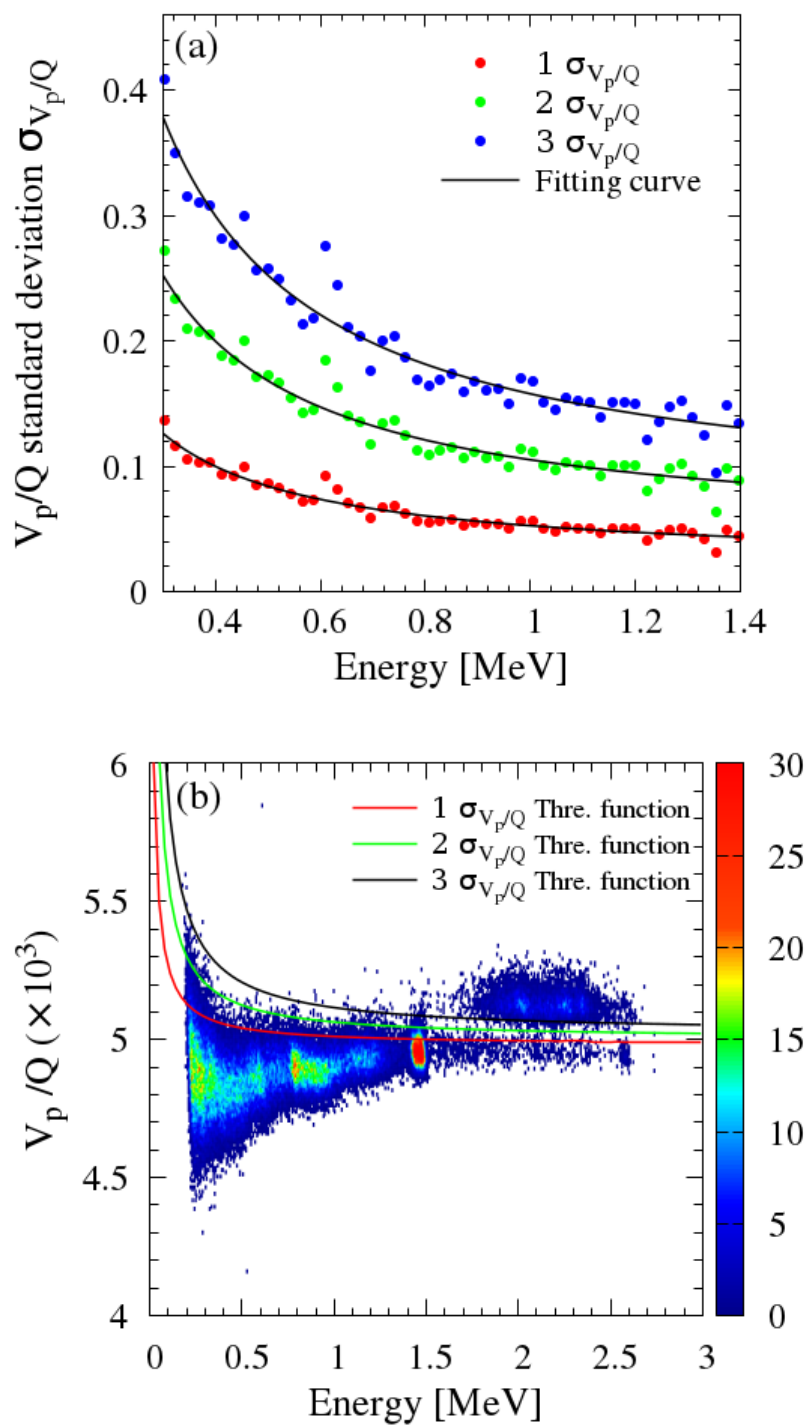


図 1-5 (a) V_p/Q の標準偏差 1σ 、 2σ 、 3σ の分布と式(1-4)によるフィッティング解析結果。(b) V_p/Q 値のエネルギー依存性とアルファ線とガンマ線を弁別する閾値関数。

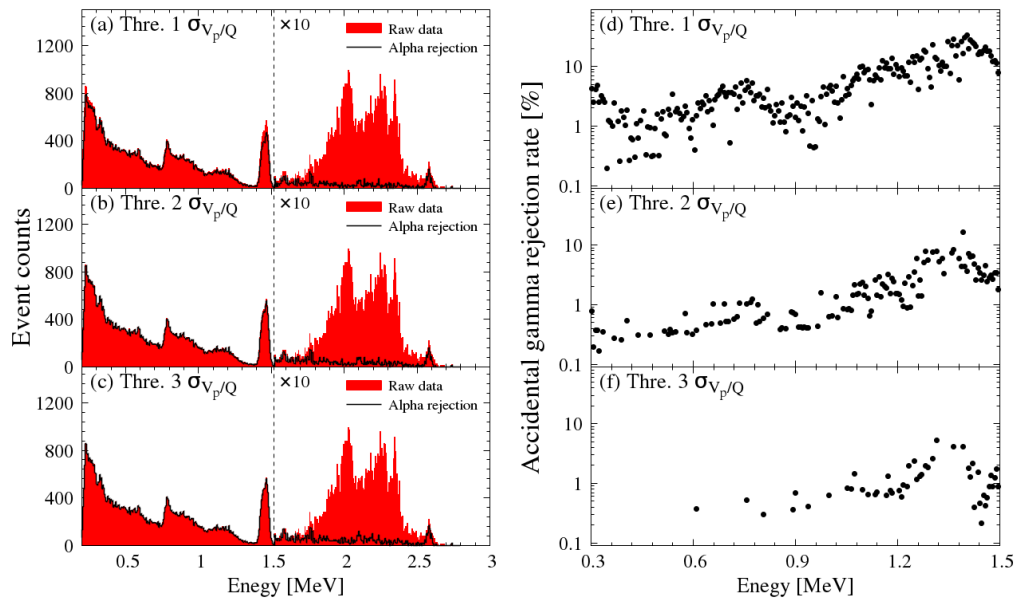


図 1-6 (a-c) 1σ 、 2σ 、 3σ の閾値関数を用いたアルファ線除去前後のエネルギースペクトル。ガンマ線のみが分布するエネルギー領域における、(d-f) 1σ 、 2σ 、 3σ の閾値関数によるガンマ線の誤排除の割合。

3-3 PQD 法によるアルファ崩壊自己放射能除去精度の評価

前節の解析では PQD 法によるガンマ線の誤排除率を評価したが、真のアルファ線イベント数が既知ではないためアルファ線の排除率を定量的に評価することができない。そこで、バックグラウンド減算法と PQD 法によってアルファ線を除去した後の分布を比較することで、PQD 法によるアルファ線除去の妥当性を評価した。 ^{68}Ga 線源から放出される 1.883 MeV ガンマ線を $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータで測定した結果を図 1-7 (a) に示す。また図 1-7 (a) では線源の有無両方を測定した結果を示しており、1.883 MeV 以上のエネルギー領域では互いに同様の分布をしているが、1.883 MeV 以下のエネルギー領域では顕著に線源からの寄与が示されている。バックグラウンド減算法では図 1-7 (a) の二つの分布を減算することでアルファ線イベントを除去し線源の寄与のみを取得した。一方図 1-7 (b) では 3σ の閾値関数を用いた PQD 法によるアルファ線除去前後のエネルギースペクトルを示している。図 1-8 (a-c) にバックグラウンド減算法と PQD 法のそれぞれでアルファ線除去解析を行った 1.883 MeV 全エネルギーピークの分布を示す。図 1-7 (b) の 1.883 MeV 全エネルギー分布には ^{208}Tl のコンプトン散乱成分がバックグラウンドとして分布しているので、分布を比較するときそれらのバックグラウンドは線形関数でフィッティングし減算解析を行った。図 1-8 (c) から PQD 法によって得られた 1.883 MeV 全エネルギーピークの分布はバックグラウンド減算法によって得られた分布を非常によく再現していることが示されている。定量的に評価するためそれぞれの分布に対してガウス関数を用いてフィッティング解析を行った結果を表 1-2 に示す。表 1-2 よりバックグラウンド減算法と PQD 法の実測ピークカウントの差は僅か 0.716% であり統計誤差の範囲内であることが示された。またフィッティングによって得られたガウス関数のパラメータの差も非常に小さく、ピークカウント、平均エネルギー、FWHM (Full width at half maximum) でそれぞれ 1.694%、0.021%、0.165% である。また、二つの解析方法で得られた分布は誤差範囲内で一致しているが、実測値の統計誤差に注目すると明らかにバックグラウンド減算法の方が PQD 法よりも大きいことが分かる。1.883 MeV 全エネルギーピークの $\pm 3\sigma$ の範囲における統計誤差はバックグラウンド減算法と PQD 法でそれぞれ 8.70% と 4.81% であり、PQD 法の方が約 55.2% 統計誤差が小さい。これらの結果から PQD 法はバックグラウンド減算法と同様の結果をより高精度で取得可能であるということを示した。

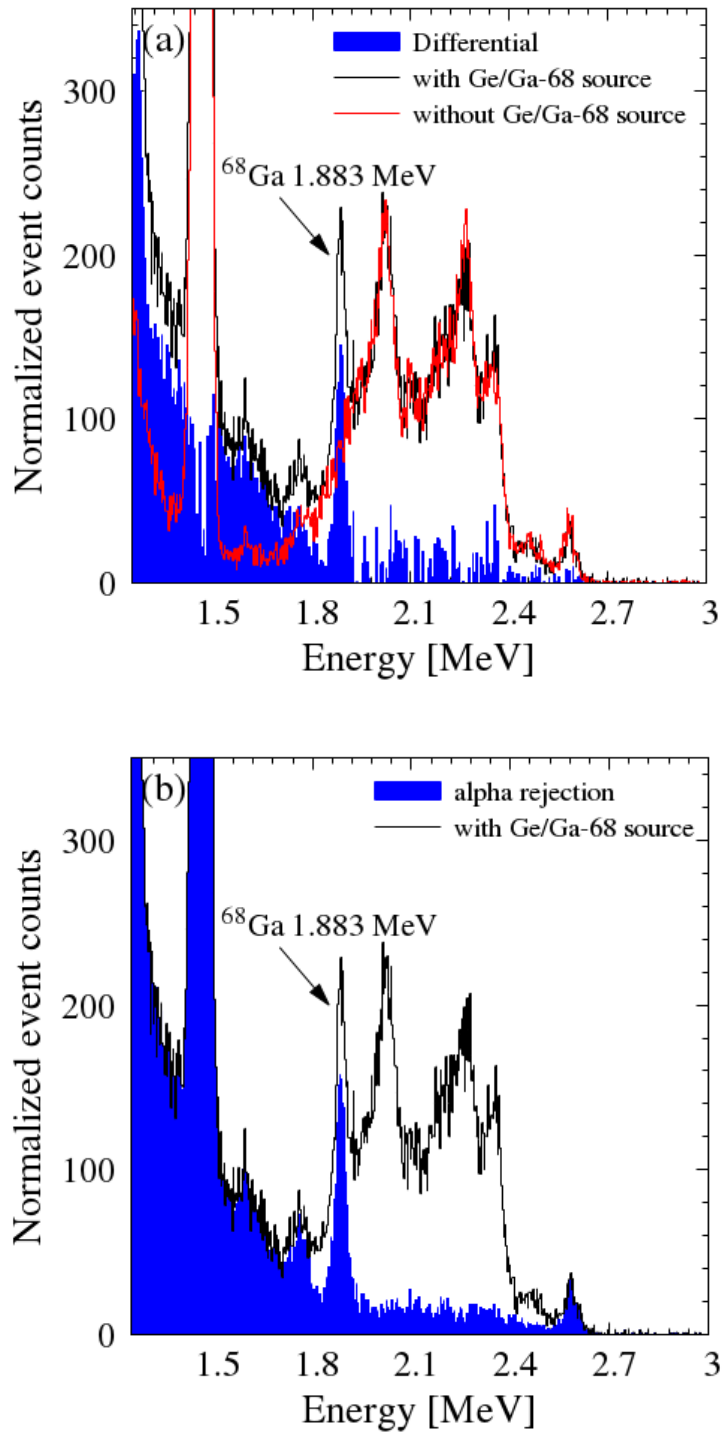


図 1-7 (a) Ge/Ga-68 線源の有無とそれらを差し引きしたエネルギースペクトル(バックグラウンド減算法)。(b) Ge/Ga-68 線源を設置した場合における、 3σ の閾値関数を用いた PDQ 解析によるアルファ線除去前後のエネルギースペクトル。

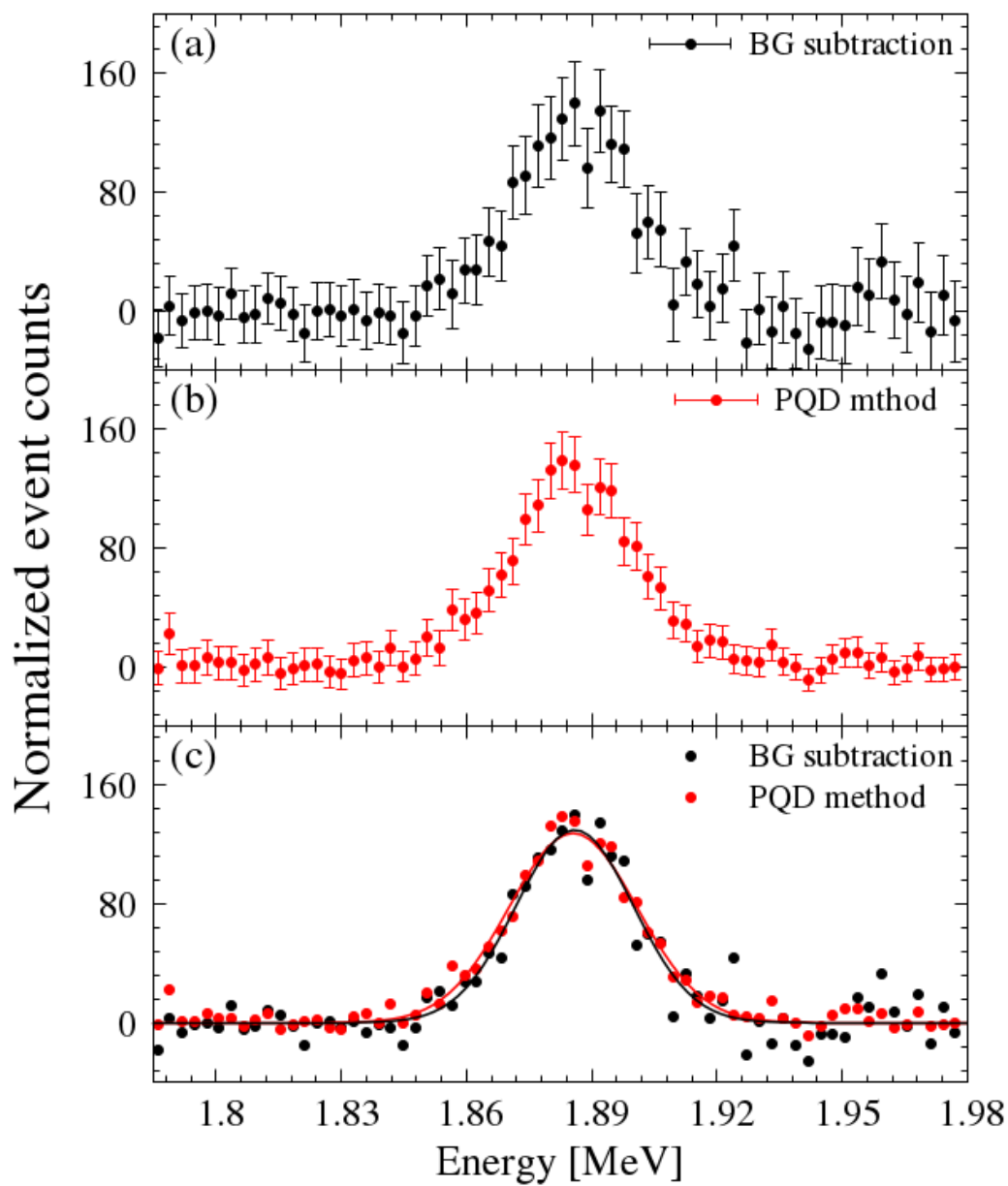


図 1-8 バックグラウンド減算法と PQD 法によってアルファ線イベント除去した後の 1.883 MeV 全エネルギーピークの分布。また図中では Background を BG と略している。

表 1-2 アルファ線イベント除去後の 1.883 MeV 全エネルギーピークにおけるガウス関数を用いたフィッティング解析結果。

	ピークカウント		平均エネルギー [MeV]	FWHM [MeV]
	実測値*	フィッティング		
バックグラウンド 減算法	139.6±28.54	129.9±6.34	1885.9±0.733	33.1±3.62 (1.75%)
PQD 法	138.6±19.22	127.7±4.46	1885.5±0.528	36.2±3.31 (1.92%)
差分	0.716%	1.694%	0.021%	0.165%

* 表中の誤差は実測値の場合統計誤差を示しており、それ以外はフィッティングによる誤差を示している。

4. 考察

4-1 PQD 法とバックグラウンド減算法

バックグラウンド減算法における統計誤差は、誤差伝播によりバックグラウンドと真のイベントの両方の統計誤差が加算されてしまうため、図 1-8 (a, b) に示す PQD 法とバックグラウンド減算法の比較では、分布の形状と共にその統計誤差にも注目すべきである。したがってバックグラウンド減算法を用いた場合、真のイベントがバックグラウンドに比べ少ない場合、十分な統計精度を取得するために非常に長い測定時間を要する場合もある。一方 PQD 法ではアルファ線を信号パルス波形の段階で弁別しているため、バックグラウンド計数に伴う誤差の影響を受けない。

図 1-9 (a) に PQD 法で識別したアルファ線とガンマ線の波形を示す。また図 1-9 (b) では 1.883 MeV 全エネルギーピークにおける V_p/Q 値のヒストグラムを示しており、図 1-9 (a) で示されている波形の差は極めて小さいが V_p/Q のヒストグラムでは明確に 2 成分を識別できていることが分かる。パルス波形弁別では一般的に二つの分布間の弁別能力の指標として、式(1-5)で定義される FOM (figure of merit) とよばれる量が用いられる。ここで m_1 、 m_2 は二つの正規分布の平均値、 s_1 、 s_2 はそれぞれの半値幅である。この FOM が大きいほど 2 つの分布の識別能力が高い。表 1-2 に示すフィッティングパラメータから FOM を解析すると、その値は 1.01 であり十分高い値を示している。これらの結果より、PQD 法はパルス波形の僅かな差を高精度で検出可能である有用な方法であると考えられる。

$$\text{Figure of merit (FOM)} = \frac{m_2 - m_1}{s_2 + s_1} \quad (1-5)$$

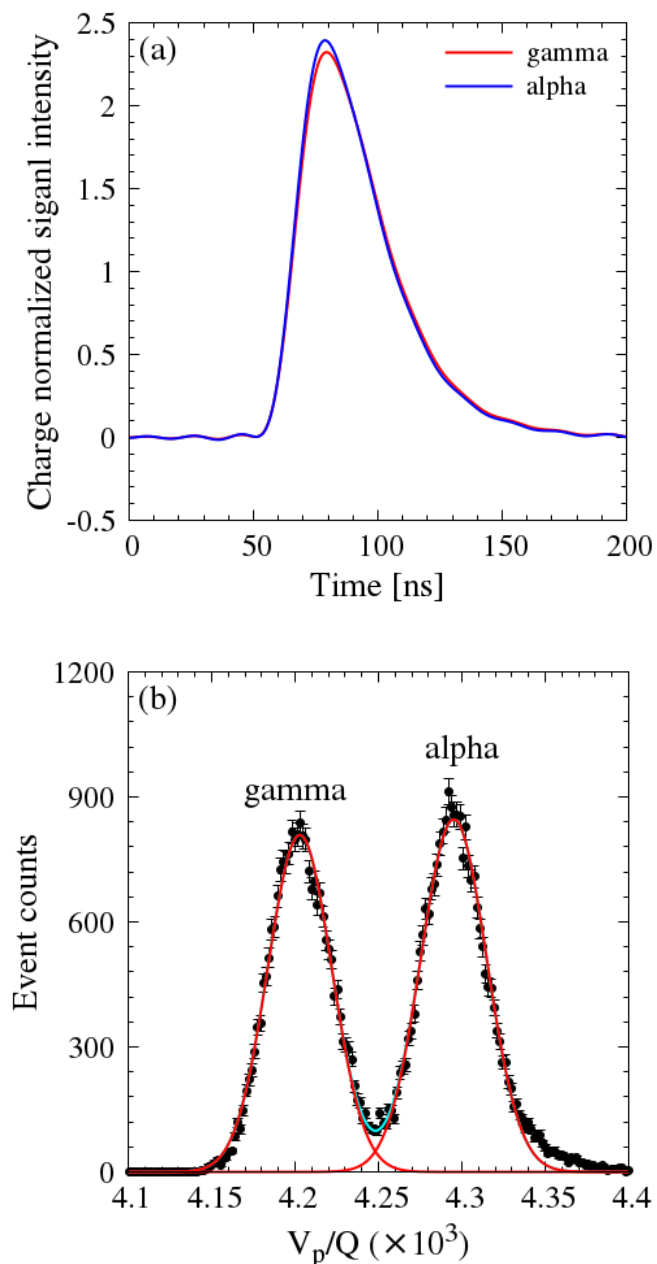


図 1-9 1.883 MeV ガンマ全エネルギーピークにおけるアルファ線とガンマ線イベントの(a) 全積分電荷で規格化した信号パルス波形と (b) V_p/Q ヒストグラム。

4-2 信号パルス波形のピーク値 V_p における飽和現象

図 1-4 (a-d)で示したように、 $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータ検出器ではピーク V_p が積分電荷 Q の増加に伴って飽和するような現象が確認できる。これは全積分電荷 Q が増加している状態において、ピーク値 V_p の増加率が減少していると考えられる。つまり入射光子のエネルギー付与の増加に伴い信号パルス波形が時間的に広がっていることが考えられる。光電子増倍管の増幅原理から考察すると、増幅する電荷が多くなるほど互いのクーロン力で反発しあい空間的な電荷の分布が変化する空間電荷効果が考えられる。また光電子増倍管の多段電極に電圧を供給するデバイダ回路にもこの飽和現象の原因が考えられ、回路のデザインによって電流供給の安定性が変化するため、光電子増倍管内の電荷の増加に伴い電流供給の速度が十分でなくなる可能性がある。

本研究では上記のデバイダ回路による飽和現象の有無を調べるため、浜松ホトニクス(株)製のパルスリニアリティ改善型のデバイダ回路(E1198-26 MOD)を入手し $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータによる V_p の飽和特性を測定した。図 1-10 に示す様に図 1-4 (a)で観測されていた V_p/Q の負の勾配は低減し、補正後の分布とほぼ同様の結果が得られた。したがって全積分電荷の増加に伴う V_p/Q 値に生じる負の勾配は光電子増倍管のデバイダ回路に大きな原因があると考えられる。このデバイダ回路は投稿論文執筆時には所有しておらず使用できなかったが、適切なデバイダ回路を用いることで飽和補正は不要であるということが示された。また $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータは現存する無機シンチレータにおいて発光量が多く発光波長も短いため、信号強度が強い検出器であるのでこのような飽和現象が起きたと考えられる。したがって信号強度の弱い検出器において PQD 法を利用する場合は、この飽和現象に対する対策も必要ないと考えられる。

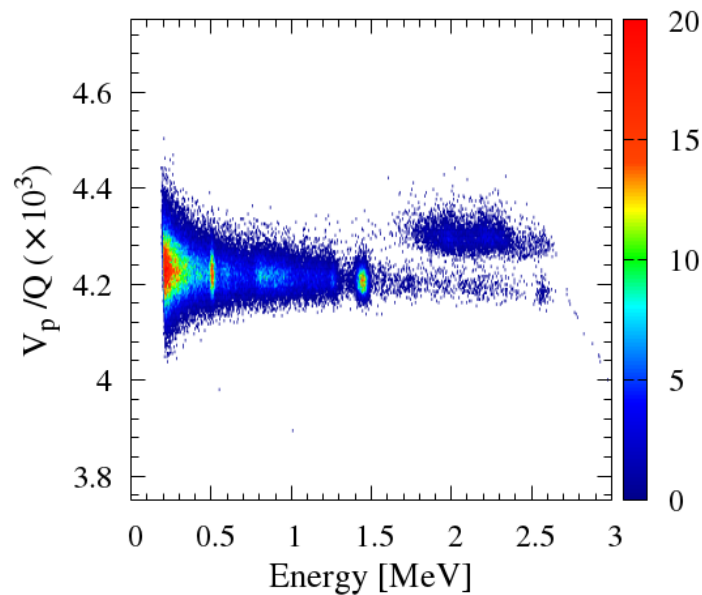


図 1-10 パルスリニアリティ改善型デバイダ回路を用いて測定した $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータ自己放射能における V_p/Q 分布。

4-3 V_p/Q 値の供給電圧依存性

光電子増倍管の供給電圧の増加に伴い、ある一定の電圧に至るまで出力パルス波形は細くなっていく²¹。したがってピーク値 V_p と全積分電荷 Q は光電子増倍管の供給電圧に依存し変化するため、結果的に V_p/Q 値も変化することが示唆される。本研究では光電子増倍管に供給する電圧を 600-1000V まで変化して V_p/Q 値の変化を測定し、実験的に V_p/Q 値の供給電圧依存性を確認した(図 1-11)。図 1-11 に示すデータを測定したときはパルスリニアリティ改善型のデバイダ回路を使用しているため、飽和現象は抑制されている。図 1-11 に示されるように、供給電圧が大きい方が大きい V_p/Q 値を示し、閾値関数は供給電圧ごとに決定するべきであることが示唆された。また光電子増倍管には個体差もあり、デバイダ回路によって信号パルス波形は変化する可能性がある。したがって図 1-4 (a-d)、図 1-5 (a, b)で示した閾値関数を取得するためのフィッティング解析は実験の直前に行うことが適切であると考えられる。一般的に実験の直前には検出器のエネルギー校正が必要であり、この校正用のデータは PQD 法の閾値取得にそのまま利用可能である。したがって $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータにおいて PQD 法によってアルファ線除去を行う場合、既存の測定方法に対して特に余分な測定を必要としない。

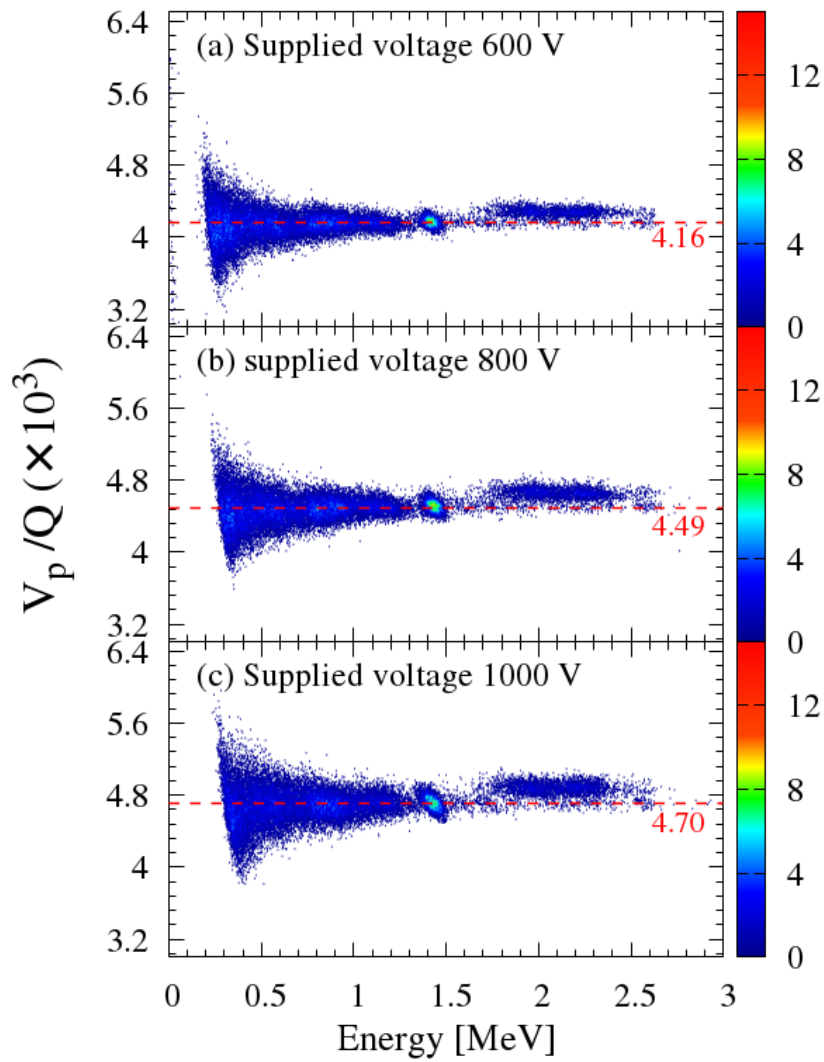


図 1-11 V_p/Q 値の光電子増倍管への供給電圧依存性。それぞれ(a) 600 V、(b) 800 V、(c) 1000 V の供給電圧を与えた場合の結果を示している。

4-4 信号パルス波形のサンプリングレートによる精度変化

今回の測定では 5 GS/s (5 GHz のサンプリングレート)のオシロスコープを用いて信号パルス波形データの測定を行っていたため、200 ps の間隔で信号パルス波形の情報を取得していた。信号パルス波形のサンプリングレートはピーク値 V_p の測定精度に大きく影響があると考えられる。したがってオシロスコープで得られた信号パルス波形からデータ点を間引きし、サンプリングレートがアルファ線除去精度にどのような影響を与えるか調べた。5 種類のサンプリングレート(125MS/s、250 MS/s、500 MS/s、1 GS/s、2.5 GS/s)で検討した結果、2.5 GS/s 未満のサンプリングレートではアルファ線とガンマ線のイベントの識別が不可能であった。したがって、LaBr₃:Ce シンチレータにおいて PQD 法を用いてアルファ線除去を行う場合 2.5 GS/s 以上のサンプリングレートが必要であるということが明らかになった。サンプリングレートによる V_p/Q 値の精度変化はシンチレータの時間応答によって変化すると考えられるので、無機シンチレータのなかでも短い減衰時定数(16 ns)を持つ LaBr₃:Ce シンチレータは特に高いサンプリングレートが要求されていることが示された。

4-5 測定システムの不感時間による影響

図 1-1 のデータ収集システムで測定した LaBr₃:Ce シンチレータの自己放射能スペクトルを先行研究¹⁰の結果と比較すると、2.65MeV 付近に分布するはずである²¹⁵Po のアルファ崩壊の成分がほぼ存在していないことが分かる。これは先行研究¹⁹で議論されている通り、²¹⁹Rn の崩壊により作られる²¹⁵Po は半減期が 1.785 ms と非常に短いことが原因であると考えられる。つまり²¹⁹Rn のアルファ崩壊によるイベントをオシロスコープで保存している不感時間の間に、²¹⁵Po のアルファ崩壊が起きている可能性が高い。1.785 ms という半減期の時間は、LaBr₃:Ce シンチレータの発光時間や一般的な放射線計測の回路においては問題なく取得できる時間である。しかし今回の実験系ではオシロスコープの保存機能の制約上、波形保存に数 100 ms 程度必要とするため、²¹⁵Po のカスケードアルファ崩壊イベントの数え落としが発生したと考えられる。しかし本研究では PQD 法を用いたアルファ線とガンマ線のイベントの弁別方法を示すことが目的であり、数え落としはパルス波形弁別の精度に寄与しないため今回の研究においては影響がないと判断した。

4-6 低放射能環境放射線の測定

図 1-6 (a-c)、図 1-7 (b)で示されたように本研究の測定環境では ^{208}Tl の 2.615 MeV の環境放射線が測定されており、また ^{208}Tl が観測されている場合 Th 系列の他核種も環境放射線として存在しているはずである。図 1-12 に高エネルギー領域の環境放射線だけを測定したエネルギースペクトル分布を示す。またこのとき PQD 法を用いて 3σ 閾値関数によるアルファ線の除去を行っている。図 1-12 から Th 系列の ^{212}Bi (1.620 MeV)や、U 系列の ^{214}Bi (1.764 MeV)の核種が同定され、 ^{208}Tl の 2.103MeV シングルエスケープピークと思われる成分も確認できる。これらの低計数率の環境放射線はバックグラウンド減算法では検出が困難であるので、アルファ線バックグラウンドのエネルギー領域に分布する高エネルギーガンマ線の計測において PQD 法は非常に有用であると考えられる。

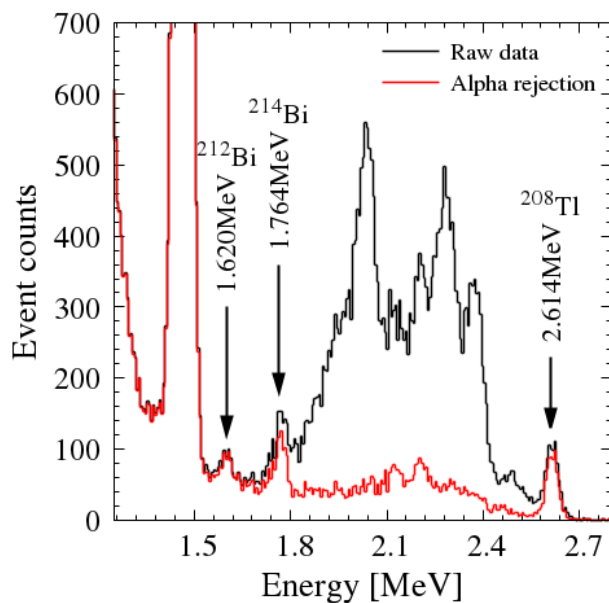


図 1-12 PQD 法(3σ 閾値関数)によるアルファ線除去前後の高エネルギー環境放射線スペクトル。

4-7 PQD 法の発展性

PQD 法はパルス波形弁別の一環であり、特に $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータのアルファ線除去に限定した方法ではない。パルス波形弁別は中性子とガンマ線の識別^{14, 15}や、Phosphor sandwich 検出器²²など発光特性の異なる複数のシンチレータを重ねた検出器にも応用可能である。さらに近年では PET 装置において DOI (Depth-of-interaction) 技術の応用が注目されており、減衰時定数の異なる結晶を積層した DOI 検出器において、その相互作用点をパルス波形弁別によって同定する方法が研究開発されている²³⁻²⁶。また本研究ではオシロスコープを用いて測定を行ったが、近年 flash ADC とよばれるパルス波形を高速で取得可能な素子も開発されている。また放射線計測における測定システムは NIM (Nuclear instrument modules) 規格や CAMAC (Computer-aided measurement and control) 規格などの汎用モジュールを組み合わせた測定系から、FPGA (Field programmable gate array) を用いて各回路素子を制御するような目的特化型の測定ボードを使用する測定系へと変化している。特に医療用の放射線計測システムは多くの場合 FPGA を用いた測定系を構築しており、PET 装置などの出力信号の多い装置では FPGA によるデータ収集は必要不可欠となっている。そして PQD 法は Flash ADC を FPGA で制御することによって回路実装することが可能である。測定系の簡便さは放射線計測において非常に重要な要素であり、PQD 法が回路実装されればサーベイメータや混合放射線場において非常に有用な方法として世界に広がる可能性がある。

5. 小括

$\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータにおけるアルファ崩壊自己放射能を除去するため、新しいパルス波形弁別法である PQD 法を研究開発した。また PQD 法を用いることで先行研究では非常に困難であるとされていたアルファ崩壊自己放射能を極めて高い精度で除去することに成功した。PQD 法が回路実装可能な方法である可能性も示唆し、様々な放射線計測分野に応用可能である可能性を示した。PQD 法は $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータにおけるアルファ線除去に特化した方法ではなく、信号パルス波形の僅かな差を高精度で検出可能であることから、PET 装置における DOI 検出器に応用可能であると考えられる。第 2 章では PQD 法を用いた DOI 検出器の性能について論じる。

第2章

新しい信号パルス波形解析による積層シンチレータ

検出器の性能評価

1. 緒言

近年医療現場における画像診断技術は飛躍的に向上しており、中でもPET(Positron emission tomography)装置は高い定量性から薬剤の作用を測定するための研究開発にも利用されている^{27,28}。一般的にPET装置では β^+ 崩壊によって陽電子を放出する核種を放射性薬剤として利用しており、放出された陽電子と電子の対消滅によって発生する2個の511 keVガンマ線を検出している。この対消滅ガンマ線は互いに180度方向に放出され、同時検出した検出器ペアの情報から体内の薬剤集積分布を解析することが可能である。同時検出した検出器ペアが結ぶ線をLOR (Line of response)と呼び、これはPET装置を用いた画像再構成や様々な解析で用いられる基本的な量となる。一般的に散乱線や角度揺動、偶発同時計数を排除した場合対消滅の位置はLOR上の一点であると考えられ、多数のLOR情報から画像再構成が行われる。しかし、LORを解析する場合検出器ペアの中心と中心を結ぶため検出器サイズによる誤差が生じてしまう。これらは視差誤差とよばれており図2-1で示すようにFOV(Field of view)辺縁部において最も画質低下に影響を及ぼす^{29,30}。視差誤差は検出器へ斜めに入射する成分が増加するFOVの小さなPET装置において大きな影響を及ぼす。この問題を解決するため検出器内部に位置分解能を与えたDOI (Depth of interaction) 検出器が開発され、小動物用PET装置ではDOI情報の利用が必要不可欠となっている。

DOI情報の測定方法は多数存在し放射線検出器にはシンチレータや半導体検出器が用いられている^{31,32}。シンチレータを用いたDOI情報の取得方法は大きく分類して4種類ほど報告がある。まず1つ目は特殊なパターンで反射材をシンチレータ間に挿入することでシンチレーション光の光学輸送経路を操作する方法であり、Light-sharing法と呼ばれている^{32,33}(図2-2(a))。一般的にPET装置の読み出しにはマルチアノードの光電子増倍管が近年ではSi-PM(Silicon photomultiplier)などが利用されており、Light-sharing法では特定の深さで発光した光子は特定の読み出し素子にしか到達しないようにデザインされている。したがって読み出し素子上にはDOI情報を含んだ2次元強度分布が形成される。図2-2(a)の方法では現在4

層の DOI 検出器が開発されており、DOI の分解能はシンチレータのサイズに依存する設計である。また図 2-2 (a)の他に、反射材の組み合わせではなく特殊な形状の反射材を利用し光学輸送経路を操作している先行研究も報告されている³⁴。

2 つ目はシンチレータの両端に読み出し素子を装着する方法であり Dual-ended readout 法と呼ばれている³⁵⁻³⁷(図 2-2 (b))。一般的にシンチレータでは一つの面に対してのみ読み出し素子を装着させるが、図 2-2 (b) の様に両端に読み出し素子を装着することで二つの信号強度比から相互作用点を同定することが可能である。この方法では分割したシンチレータを使用せずに DOI 情報の取得が可能であり、積層型に比べコストの面で優位である。一方反射材の選定やシンチレータの表面状態に DOI 分解能が依存し、また深さ方向によってエネルギースペクトルが大きく変化するという報告がある。光電子増倍管を使用した場合、コストや素子のサイズから PET 装置への応用の可能性が低いと考えられていたが、近年高性能かつ安価な Si-PM が開発されたので、Dual-read ended 法による DOI 検出器は世界的に注目されている。

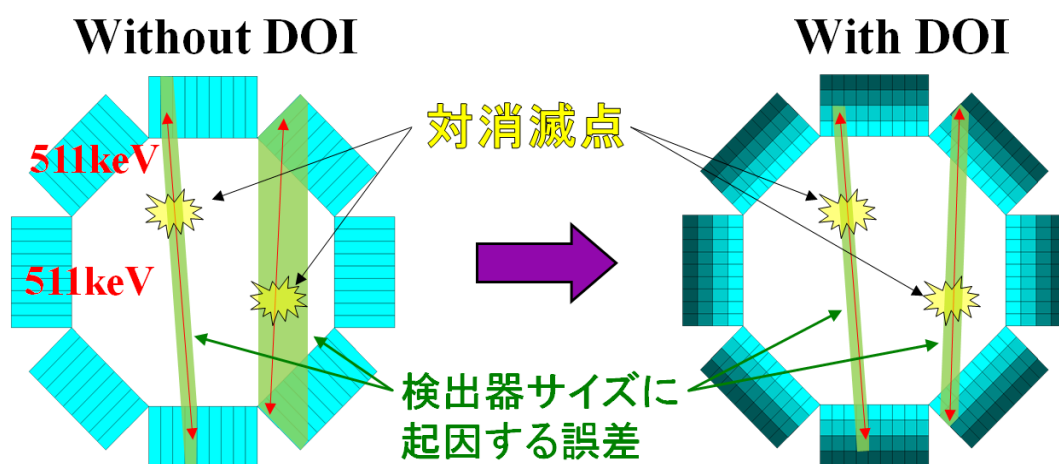


図 2-1 DOI 情報の有無による検出器サイズに起因する誤差。

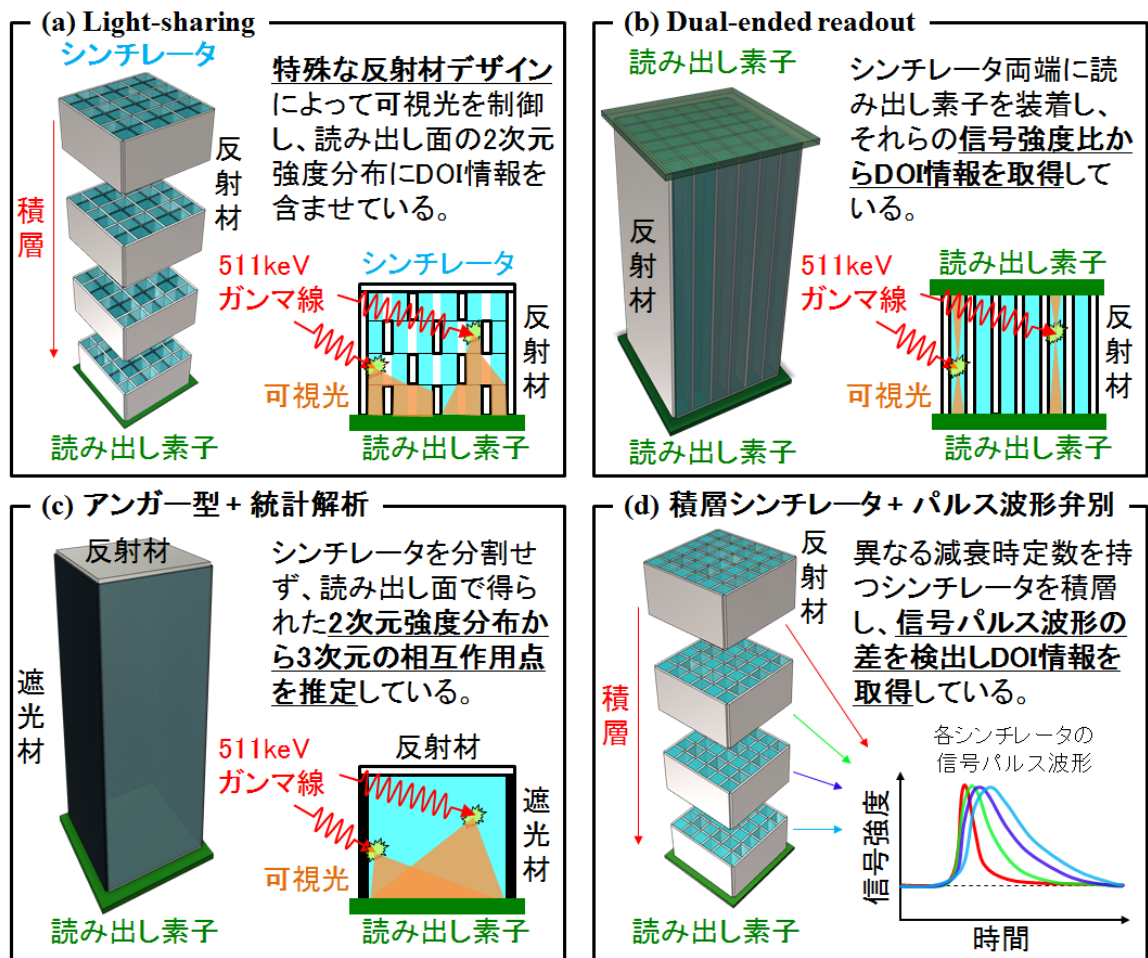


図 2-2 主要な DOI 情報の取得方法一覧。(a) Light-sharing 法、(b) Dual-ended readout 法、(c) アンガー型シンチレータと統計解析による DOI 解析法、(d) 積層シンチレータとパルス波形弁別による DOI 検出器。

3つ目の方法は図 2-3 (c) に示すようにアンガー型のシンチレータを用いた方法であり、大きなシンチレータに多数の読み出し素子を装着する DOI 検出器である^{38,39}。この方法では読み出し素子におけるシンチレーション光の2次元強度分布から、3次元的な相互作用点を解析している。一般的にこの方法では事前実験が必要であり、複数の任意の点で発光した場合に応答する2次元強度分布が要求される。この方法ではシンチレータの加工費用が極端に少なくコストを抑えられるが、相互作用点の同定におけるアルゴリズムへの依存性が高いため直接測定に比べ安定性が低い。また一般的に事前に用意する2次元強度分布は、検出器へ垂直に入射する条件でしか取得しないため、検出器に対して斜めに入射するイベントにおける精度低下が示唆されている。

4つ目の方法は異なる減衰時定数を持つシンチレータを積層し、パルス波形弁別を用いて相互作用したシンチレータを同定する方法である²³⁻²⁶(図 2-2 (d))。積層する以外にも 1 つのシンチレータの先端に他の減衰時定数を持つ蛍光体を塗布する方法も報告されている。これらの方法ではどのようなパルス波形弁別法を選定するかが重要であり、それは DOI 精度と測定回路の構成に直結する。パルス波形弁別には Zero-crossing time 測定法^{14, 15}や Charge comparison 法^{19, 23-26}が先行研究として報告されている。前者はバイポーラ波形におけるゼロクロス点からパルス波形弁別を行う方法であり、有機シンチレータにおけるガンマ線と中性子線の識別に広く利用されている。後者は複数の電荷積分窓を作成し、それらの積分電荷を比較する方法である。Charge comparison 法は最適な電荷積分窓を設定することで高精度なパルス波形弁別が可能であるが、3 種類以上のシンチレータを積層した場合最適化が困難である可能性がある。また電荷積分窓の時間方向の誤差が電荷積分値に影響を与えるため、勾配の大きな信号パルス波形(以下パルス波形)では十分な精度を達成できない可能性がある。

第 1 章で開発した PQD (peak-to-charge discrimination) 法は高精度に僅かな信号パルス波形の差を検出可能であり、図 2-2 (d) のような積層シンチレータを用いた DOI 検出器にも応用可能である。PQD 法は信号パルス波形のピーク値 V_p と全積分電荷 Q の比 V_p/Q を用いており、最適化を必要としない。また解析に時間情報を利用していないので、Charge comparison 法で生じる時間方向の誤差が存在しない。本研究では PQD 法を用いた DOI 検出器の実現可能性について検討することを目的とし、まずは複数のシンチレータの V_p/Q 値を測定し積層に適切なシンチレータの選定を行った。そして選定されたシンチレータを積層し DOI 検出器を作成した。DOI 検出器の信号パルス波形をオシロスコープによって測定し、PQD 法による DOI 検出器の性能を実測により評価した。また先行研究²³⁻²⁶である Charge comparison 法と PQD 法のパルス波形弁別精度の比較を行った。

2. 方法

2-1 DOI 検出器用シンチレータの選定

一般的に、無機結晶シンチレータでは Ce などの添加物の濃度によって発光減衰時定数が異なることが知られている^{40, 41}。本研究では Ce 濃度が異なる 4 種類の GSO:Ce シンチレータと LGSO:Ce (0.3 mol%) シンチレータ、また GSOZ:Ce (1.0 mol%) シンチレータ、さらに Ce 濃度が異なる 3 種類の GAGG:Ce (0.12, 0.41, 0.57 mol%) シンチレータと Pr 濃度が異なる 2 種類の LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータの計 11 種類の無機シンチレータを用いて V_p/Q 値の解析を行った。一般的に GSO:Ce シンチレータはチョクラルスキー法という結晶育成方法で作成され、この時生成された結晶インゴットは結晶内に Ce 添加物の濃度勾配が生じることが知られており、一般的に結晶インゴットにおける Ce 添加濃度は下部になるほど高濃度であるとの報告がある^{42, 43}。本研究では公称値 0.5, 1.5 mol% の添加濃度の GSO:Ce シンチレータにおける結晶インゴット最上部と最下部を用意し評価に用いた。

LGSO:Ce シンチレータと GSOZ:Ce シンチレータはそれぞれ Lu 元素と Zr 元素を GSO:Ce シンチレータに添加したシンチレータである。このようにシンチレータに新たな元素を共添加することで発光量や減光時定数、またシンチレーション光の透過率が変化し性能が向上する場合がある^{44, 45}。GAGG:Ce シンチレータと LuAG:Pr シンチレータは近年開発されたシンチレータであり潮解性がないため加工が容易であり、また高い阻止能を持っているためガンマ線イメージング用シンチレータとして注目されている。

光電子増倍管には R6231-100 (浜松ホトニクス(株))を利用し、デバイダ回路にはパルスリニアリティ改善型の回路(E1198-26 MOD, 浜松ホトニクス(株))を用いた。このとき光電子増倍管には 1000V の供給電圧を与えて測定を行った。各シンチレータは $2.5 \times 2.5 \times 25 \text{ mm}^3$ の形状で全面に鏡面研磨が施されており、 $2.5 \times 25 \text{ mm}^2$ の面のうち光電面と接続する面以外は反射材(BC642, Saint-Gobain)を巻いている。また光電面と接続する面には光学グリス(BC630, Saint-Gobain)が塗ってあり、シンチレータと光電面は光学的に接続されている。信号パルス波形データの取得はオシロスコープ(Wave Runner 64xi, LeCroy, 5GS/s)を用いており、C++言語による自作の解析コードで PQD 法の解析を行った。線源は ^{137}Cs (229.1 kBq) から放出される 662 keV ガンマ線を利用し、 V_p/Q ヒストグラムを解析する場合は 662keV 全エネルギーピークにおける標準偏差 2σ の範囲のデータを使用した。またそれぞれのシンチレータにおける発光特性を定量的に比較するため、式(2-1)を用いてパルス波形の発光減衰時定数 τ_D を評価した。またシンチレータによっては複数の減衰時定数を

持つ結晶も存在するため、式(2-1)に示すようにそれぞれ適切な i 個の減衰時定数成分を一次結合させた関数によってフィッティング解析を行った。このとき式(2-1)で用いている N_i の比によって各減衰時定数の強度比を取得することが可能である。

$$V(t) = \sum_i N_i e^{-\frac{t}{\tau_{Di}}} \quad (2-1)$$

またシンチレータにはそれぞれシンチレーション光の発光波長分布と、吸収波長分布(励起波長分布)が存在する。積層型 DOI 検出器ではそれぞれのシンチレータの発光は吸収されずに光電子増倍管に到達する必要があるため、発光・吸収波長帯域はシンチレータの選定において非常に重要な要素となる。一般的に発光・吸収波長の測定は外部より様々な波長の光を照射し、その応答を検出することで測定が可能である。本研究では蛍光分光光度計 RF-5300PC(島津製作所(株))を用いて各シンチレータの発光・吸収波長分布を測定し、積層に適切なシンチレータを選定した。

2-2 PQD 法による DOI 検出器のパルス波形弁別精度

詳細は後述するが V_p/Q 値とシンチレータの発光・吸収波長から、公称値 0.5, 1.5 mol% の添加濃度の GSO:Ce シンチレータにおける、それぞれの結晶インゴット最上部と最下部である 4 種類の結晶が DOI 検出器に適切であるという結果が得られた。本研究ではこれらの 4 種類の GSO:Ce シンチレータ(2.5×2.5×6 mm³)を用いて 4 層 DOI 検出器を作成し性能評価を行った。精度よくシンチレータの積層を行うため、反射材(22E6SR, TORAY(株))を用いてシンチレータホルダーを作成し、Ce 添加濃度の低い順(Ce 添加濃度 0.5mol% 上部、下部、1.5mol% 上部、下部)に光電子増倍管から GSO:Ce シンチレータを積層した(図 2-3)。また各 GSO:Ce シンチレータの間は光学グリッド(BC630, Saint-Gobain)によって光学接続した。4 層 DOI 検出器の読み出し部分には光電子増倍管(R6231-100, 浜松ホトニクス(株))を使用し、パルスリニアリティ改善型のデバイダ回路(E1198-26 MOD, 浜松ホトニクス(株))を利用した。測定における光電子増倍管への供給電圧は 1400 V とした。線源は ¹³⁷Cs (229.1 kBq) を利用し、本研究では図 2-3 のような実験体系を構築し、コリメータ(直径 30 mm、長さ 10 mm×3 個、コリメータ径 1.5 mm)を用いて積層した 4 種類の GSO:Ce シンチレータの中心に個別に照射を行った。信号パルス波形データの収集にはオシロスコープ(Wave Runner 64xi, LeCroy, 5GS/s) を使用した。自作の解析コードを用いて信号パルス波形のピーク値 V_p と全積分電荷 Q を解析し、 V_p/Q 値の全積分電荷依存性と 662 keV 全エネルギーピークにおける V_p/Q ヒストグラムを解析した。 V_p/Q ヒストグラムに対してガウス関数を用いたフィッティング解析を行い、

4種類のGSO:Ceシンチレータにおける V_p/Q ヒストグラムの平均値とFWHM(Full width at half maximum)を取得した。一般的に二つの正規分布の差を表す指標として式(2-2)に示すFOM (figure of merit) が用いられ、式(2-2)における m_1, m_2 と s_1, s_2 は正規分布の平均値とFWHMを表している。本研究では隣接する各シンチレータの2分布に対してFOMを解析し、PQD法によるパルス波形弁別精度を評価した。また各シンチレータのフィッティング関数の交点から閾値を定義し、それぞれのシンチレータにおける弁別成功割合を求めた。

$$\text{Figure of merit (FOM)} = \frac{m_2 - m_1}{s_2 + s_1} \quad (2-2)$$

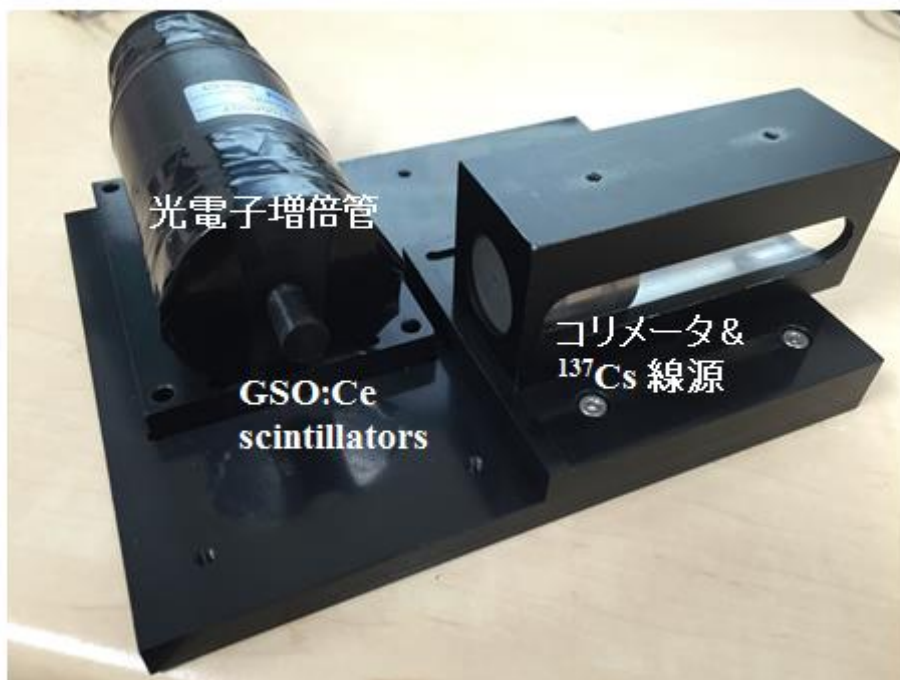
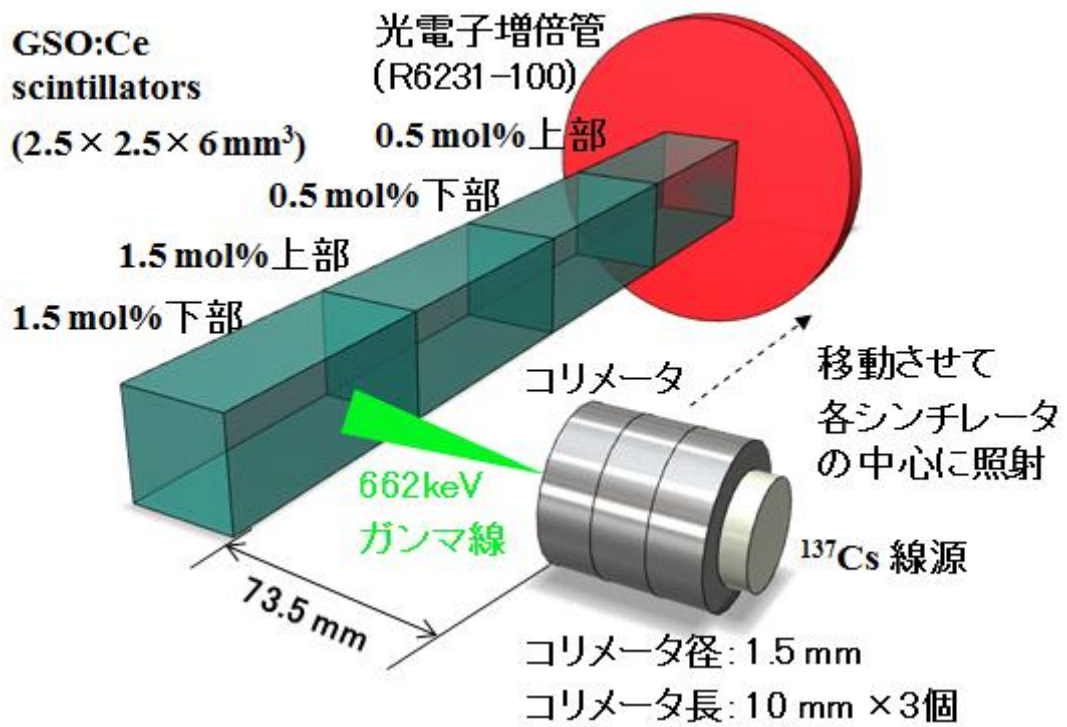


図 2-3 4 層 DOI 検出器の性能評価における実験体系。

2-3 PQD 法による DOI 検出器のエネルギー分解能

DOI 検出器では識別した相互作用点ごとに十分なエネルギー分解能を有したエネルギースペクトルを取得する必要がある。PET 装置に実装した場合 511 keV のイベントのみを利用することが理想的であると考え、エネルギー分解能の低下は散乱線の混入を増加させるため画質が低下する可能性がある。本研究では図 2-3 にしめす実験体系において、作成した 4 層 DOI 検出器から得られた信号パルス波形における全積分電荷に対してヒストグラム解析を行いエネルギースペクトルを取得した。線源は ^{137}Cs (229.1 kBq) を使用し、662 keV 全エネルギーピークにおけるエネルギー分解能を評価した。エネルギー分解能の評価にはガウス関数を用いたフィッティング解析によって得られた FWHM を用いた。また積層の有無におけるエネルギー分解能の差を調べるため、積層した 4 種類の GSO:Ce シンチレータを個別に光電子増倍管に接続し、662 keV 全エネルギーピークにおけるエネルギー分解能を評価した。GSO:Ce シンチレータを個別に測定したときは光電子増倍管に 1000 V の供給電圧を与えた。

2-4 PQD 法と Charge comparison 法における信号弁別精度

現在パルス波形弁別を用いた DOI 検出器の研究開発は広く行われているが、その多くは Charge comparison 法を利用した検出器である²³⁻²⁶。Charge comparison 法は時間軸上に複数の電荷積分窓を作成し、それらの電荷積分窓から得られた積分電荷の比を用いてパルス波形弁別を行う方法である(図 2-7)。一般的に積分範囲が広いほど高周波ノイズによる影響が小さいため、一つの電荷積分窓はパルス波形の全積分電荷を取得する場合が多い。Charge comparison 法は電荷積分窓の最適化が非常に重要であり、不適切な箇所に電荷積分窓を設置した場合パルス波形弁別精度は著しく低下する。しかしパルス波形における電荷積分窓の位置は非常に多数の選択肢が存在し最適化が困難である。また 3 種類以上のパルス波形を弁別する場合は最適値が存在しない可能性もある。一方 PQD 法はすべての波形で一意に決定されるピーク電圧 V_p と全積分電荷 Q の比を用いているため、最適化の必要がなく高い精度でパルス波形弁別が可能である。

PQD 法と Charge comparison 法の違いの一つは前述の最適化の有無であるが、実装する場合の回路構成も大きく異なっている(図 2-7)。Charge comparison 法は基本的に複数のアナログ回路を使用して部分積分電荷と全積分電荷を取得するが、信号を電荷積分窓作成用と測定用に分岐させる必要がある^{23,46}。図 2-4 に示すように電荷積分窓作成のため、まずは Discriminator というアナログ信号をデジタル信

号に変換する回路を使用し、パルス波形のタイミング情報が含まれたデジタル信号を作成する。そのデジタル信号を Gate generator という回路に入力することで任意の時間幅の電荷積分窓を作成する。この電荷積分窓作成用の回路構成では Discriminator でタイムジッターと呼ばれる時間方向の誤差が生じる可能性がある。またこの回路構成では信号を分岐し、多くの回路素子を必要とするため信号ノイズ比が低下しパルス波形弁別の精度低下が懸念される。

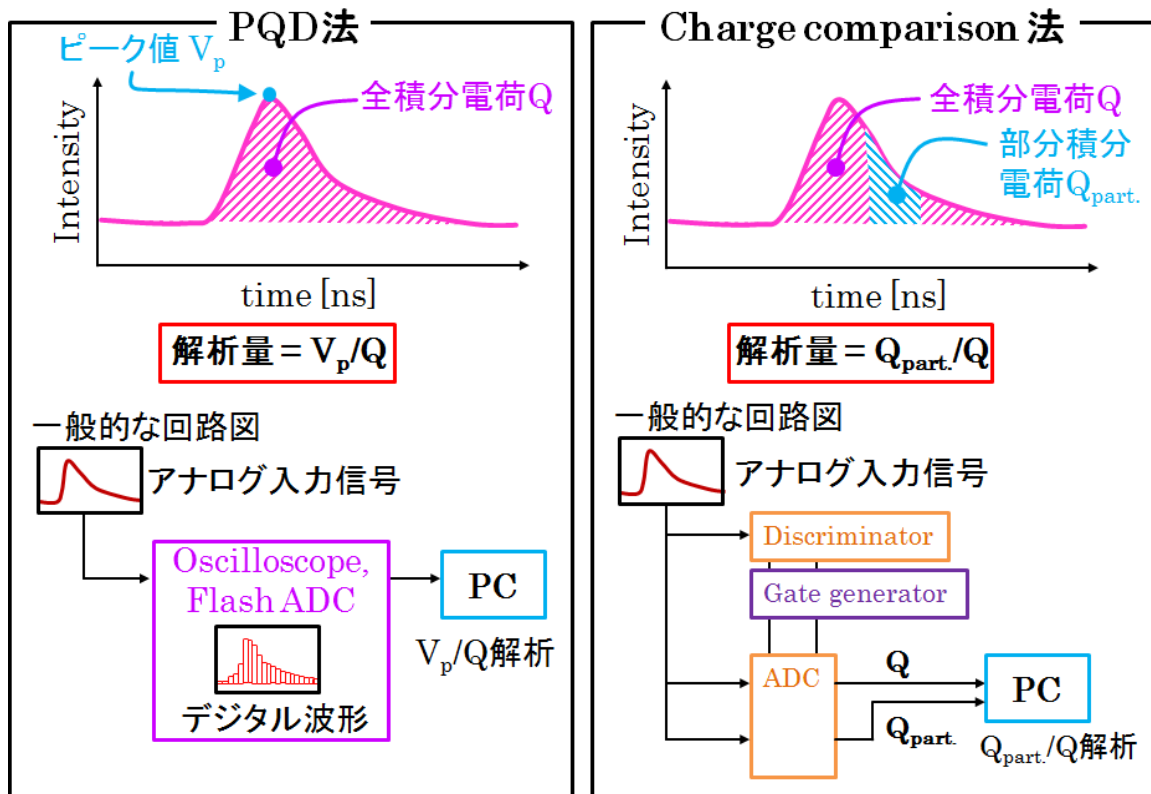


図 2-4 PQD 法と Charge comparison 法。

一方 PQD 法ではピーク値を取得するアナログ回路(ピークホールド型 ADC (Analog-to-digital converter))と積分電荷を取得するアナログ回路(電荷積分型 ADC)を用いた回路構成が考えられる。このとき前述した Charge comparison 法における回路による精度低下と同様の現象が懸念されるが、一般的にピーク値を取得する回路はシンチレータのような早いパルス波形には不適切である。したがって PQD 法ではパルス波形を直接取得するオシロスコープや Flash ADC などの使用が適切であると考えられ、この場合信号分岐も必要ない(図 2-4)。また初段で信号のデジタル化を行うため使用する回路素子が少なく電気ノイズも小さくなることが期待される。しかし第 1 章でも述べたようにパルス波形をデジタル化した場合、PQD

法ではデジタルのサンプリングレートが精度に大きな影響を与える可能性がある。またパルス波形を初段でデジタル化する回路構成では Charge comparison 法の解析も可能であり、この場合 PQD 法と同様に信号分岐と複雑な回路素子も必要なくなる。そこで本研究では同条件で PQD 法と Charge comparison 法におけるパルス波形弁別の精度を比較するため、オシロスコープで測定したパルス波形を用いて両者の解析を行った。解析には図 2-3 に示す 4 層 DOI 検出器を用いた実験体系で取得した信号パルス波形データを利用した。

本研究では Charge comparison 法における電荷積分窓を最適化するため 16 個の電荷積分窓を作成し解析を行った。電荷積分窓の時間方向の位置決定には実際の Discriminator を模擬し、閾値電圧 5mV の電圧信号を検出した時間から特定の遅延時間を与え電荷積分窓の開始位置を定義した。定義したピーク付近、減衰初期、減衰中期、減衰終期における電荷積分窓の開始時間は、閾値電圧 5mV の電圧信号を検出した時間からそれぞれ 0, 40, 80, 120 ns 遅延させ、それぞれ 40, 80, 120, 160 ns の 4 種類の幅の電荷積分窓を作成した(図 2-5)。これら 16 個の積分窓を用いた Charge comparison 法による解析を行い、最も高いパルス波形弁別精度を達成した条件を最適な電荷積分窓とした。このとき 662 keV 全エネルギーピークにおける標準偏差 2σ の範囲内のデータを用いてヒストグラム解析を行い、ガウス関数を用いたフィッティング解析から式(2-2)に示す FOM を取得し精度評価に用いた。

前述したように PQD 法と Charge comparison 法はパルス波形のサンプリングレートが精度に影響する可能性が高い。両者のパルス波形弁別精度のサンプリングレート依存性を調べるため、5GHz のサンプリングレートであるオシロスコープの波形データからデータを間引くことでサンプリングレートの低下した波形を作成した。本解析では 5 GS/s ~ 50 MS/s の範囲のサンプリングレートで解析を行い、PQD 法と Charge comparison 法における FOM のサンプリングレート依存性を解析した。

Charge comparison 法における電荷積分窓最適化
 各領域において40, 80, 120, 160 ns の4種類の電荷積分窓を作成

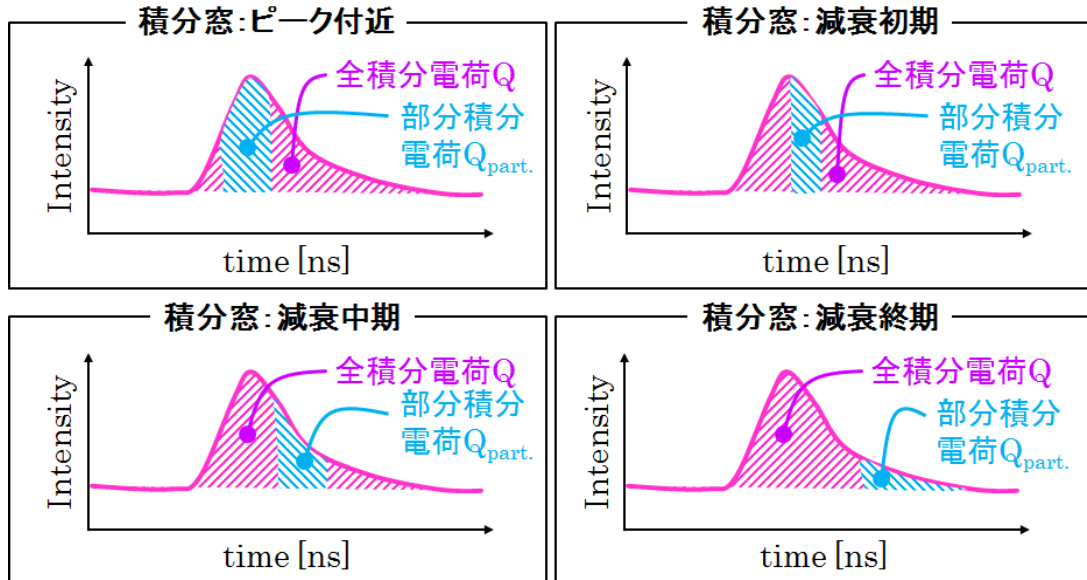


図 2-5 Charge comparison 法における最適な電荷積分窓を決定するために試した電荷積分窓の位置。

3. 結果

3-1 DOI 検出器用のシンチレータの選定

図 2-6(a-d) に DOI 検出器用のシンチレータを選定するため性能を調べた各シンチレータにおける信号パルス波形を示す。信号パルス波形の形を比較するため、図 2-6(a-d) に示す信号パルス波形はそれぞれ全積分電荷によって規格化した。図 2-6(a) に公称値 0.5, 1.5 mol% の Ce 添加濃度の GSO:Ce シンチレータにおける結晶インゴット最上部と最下部である 4 種類の結晶を用いた場合の光電子増倍管の出力パルス波形を示す。図 2-6(a) に示すように同様の公称 Ce 濃度である GSO:Ce シンチレータにおいて、信号パルス波形に差が生じていることが分かる。図 2-6(b) には LGSO:Ce (0.3 mol%) シンチレータと GSOZ:Ce (1.0 mol%) シンチレータにおける信号パルス波形を示し、図 2-6(c, d) には GAGG:Ce (0.12, 0.45, 0.57 mol%) シンチレータと LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータを用いた場合の出力パルス波形を示す。図 2-6(c) に示すように、GAGG:Ce (0.12, 0.45, 0.57 mol%) シンチレータでも Ce 添加濃度によって異なる信号パルス波形が得られている。一方図 2-6(d) に示す様に Pr を添加した LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータにおける信号パルス波形はほぼ同様の形状を示した。式(2-1)を用いたフィッティング解析によって得られたそれぞれのパルス波形における減衰時定数を表 2-1 に示す。これらの結果より、図 2-6(a-d) に示すパルス波形はすべて 662 keV 全エネルギーピークにおける波形データを 100 個平均した信号波形だが、シンチレータの材質や添加物の濃度に依存して減衰時定数が顕著に変化していることが分かる。

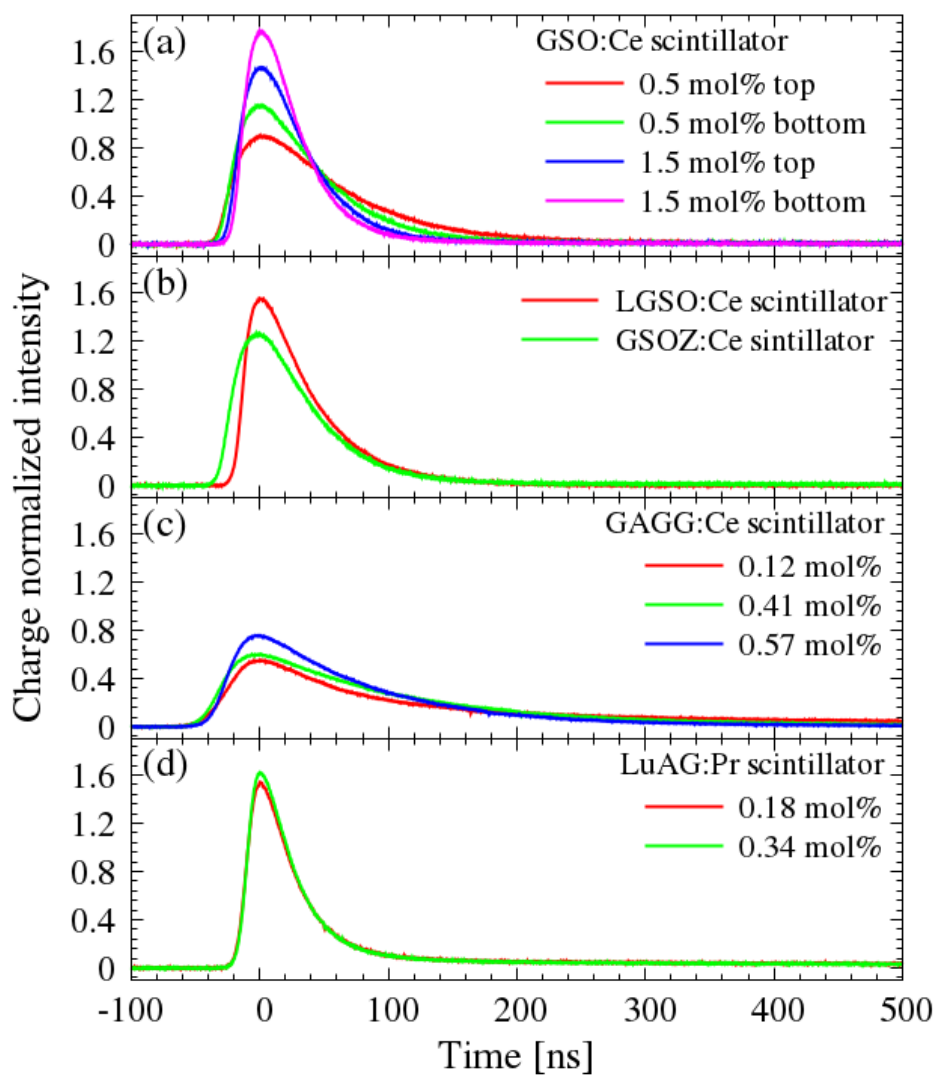


図 2-6 (a) GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部)、(b) LGSO:Ce、GSOZ:Ce、(c) GAGG:Ce (0.12, 0.41, 0.57 mol%)、(d) LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータにおける信号パルス波形。それぞれ強度は全積分電荷で規格化している。

表 2-1 PQD 法を用いた DOI 検出器作成のために特性評価を行ったシンチレータの一覧。

シンチレータ	添加濃度 [mol%]	減光時定数(強度比) [ns]	発光・吸収 波長* [nm]	V _p /Q 値
GSO:Ce	0.5 (上部)	61.3±0.21 (0.95), 1135±151.4 (0.05)	435, 328	1.78 ± 0.10
	0.5 (下部)	41.3±0.17 (0.94), 608±40.1 (0.06)	439, 355	2.31 ± 0.09
	1.5 (上部)	27.3±0.22(0.9), 266±29.8(0.1)	441, 343	2.92 ± 0.10
	1.5 (下部)	23.4±0.18(0.9), 239±19.8(0.1)	440, 342	3.53 ± 0.11
LGSO:Ce	0.3	40.1±0.04	414, 372	3.10 ± 0.10
GSOZ:Ce	1.0	34.5±0.31(0.91), 481±181.4(0.09)	441, 325	2.55 ± 0.10
	0.12	62.5±0.18(0.53), 374±19.8(47)	523, 462	1.09 ± 0.06
GAGG:Ce	0.41	118.1±2.11(0.97), 2037±208.1(0.03)	531, 478	1.23 ± 0.05
	0.57	86.1±0.81(0.87), 922±76.4(0.13)	534, 470	1.54 ± 0.06
LuAG:Pr	0.18	26.1±0.28(0.84), 180.3±5.63(0.16)	310, 269	2.81 ± 0.12
	0.34	25.2±0.11(0.83), 218.9±5.32(0.17)	311, 252	2.97 ± 0.13

* 発光・吸収波長分布におけるピーク値の波長。

図 2-7 (a, b) に公称 Ce 添加濃度 0.5, 1.5 mol% のそれぞれ上部下部における 4 種類の GSO:Ce シンチレータと LGSO:Ce シンチレータ、さらに GSOZ:Ce シンチレータを用いた場合の、662 keV 全エネルギーピークにおける V_p/Q ヒストグラムを示す。図 2-7 (a) より 4 種類の GSO:Ce シンチレータが互いに離散的に分布していることが分かる。LGSO:Ce(0.3 mol%)シンチレータと GSOZ:Ce(1.0 mol%)シンチレータも互いに離散的に分布している。しかし LGSO:Ce(0.3 mol%)シンチレータは GSO:Ce (1.5mol% 上部)シンチレータと、GSOZ:Ce (1.0 mol%)シンチレータは

GSO:Ce (0.5 mol% 下部)とそれぞれ分布が重なり十分に弁別できていない。図 2-7 (c) に GAGG:Ce (0.12, 0.41, 0.57 mol%) シンチレータと LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータを用いた場合の V_p/Q ヒストグラムを示す。図 2-7 (c) から GAGG:Ce (0.12, 0.57 mol%)と GAGG:Ce(0.41, 0.57 mol%) シンチレータの分布は互いに離散的に分布していることが示されている。一方 LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータは表 2-1 に示すように近い減衰時定数を示しており、 V_p/Q ヒストグラムも互いに重なるように分布している。これまでの結果では、表 2-1 に示す減衰時定数に差が生じているシンチレータは、 V_p/Q ヒストグラムにおいても離散的に分布している傾向を示した。しかし、GAGG:Ce (0.12, 0.41 mol%) シンチレータのみそれぞれ異なる減衰時定数を示しているにも関わらず、 V_p/Q ヒストグラムは互いに重なり合うように分布している。

表 2-1 にそれぞれ V_p/Q ヒストグラムに対してガウス関数を用いたフィッティング解析によって得られた、分布の平均値と標準偏差を示す。表 2-1 に示した各シンチレータにおける V_p/Q 値の平均値と標準偏差から、互いに 2σ 以上 V_p/Q 分布が離れているシンチレータを積層に使用すると考えると、GAGG:Ce (0.12 mol%) シンチレータと GSO:Ce (0.5 mol% 下部、1.5 mol% 下部) シンチレータを用いた 5 層積層が可能であることが示された。また GAGG:Ce (0.12, 0.57 mol%) シンチレータ、GSOZ:Ce (1.0 mol%) シンチレータ、LGSO:Ce (0.3 mol%) シンチレータ、GSO:Ce (1.5 mol% 下部) シンチレータを用いた 5 層積層も考えられる。互いに 2σ 以上離散的な V_p/Q 値で分布しているという条件のもと、表 2-1 に示すすべてのシンチレータにおける組み合わせを検討した結果、5 層積層が最高の積層数と示された。

積層した場合各シンチレータにおける発光・吸収波長帯域は非常に重要であり、それらの特性によっては他のシンチレータが発したシンチレーション光を別のシンチレータが吸収してしまう可能性がある。図 2-8 (a) に 4 種類の GSO:Ce (0.5, 1.5 mol% 上部、下部) におけるシンチレータの発光・吸収波長帯域を測定した結果を示す。これらの 4 種類の GSO:Ce シンチレータの発光・吸収波長帯域はそれぞれ非常に近い分布が得られ、これらの GSO:Ce シンチレータを用いた 4 層積層は実現可能であることが示された。図 2-8 (b) に GSOZ:Ce (1.0 mol%) シンチレータと LGSO:Ce(0.3 mol%) シンチレータにおける発光・吸収波長帯域を示す。前述した 4 種類の GSO:Ce (0.5, 1.5 mol% 上部、下部) シンチレータと GSOZ:Ce (1.0 mol%) シンチレータの発光・吸収波長帯域は近い分布であるが、LGSO:Ce (0.3 mol%) シンチレータはそれらに比べて発光波長帯域が低波長側に分布している。したがって、図 2-8 (a) の GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部, 1.5 mol% 上部下部) シンチレータと図 2-8 (b) に示す LGSO:Ce (0.3 mol%) シンチレータを積層した場合、LGSO:Ce (0.3 mol%) シンチレータの発光は僅かだが GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部, 1.5 mol% 上

部下部)シンチレータに吸収される可能性を示している。図 2-8 (c)に GAGG:Ce (0.12, 0.41, 0.57 mol%) シンチレータと LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータにおける発光・吸収波長帯域を測定した結果を示す。GAGG:Ce (0.12, 0.41, 0.57 mol%) シンチレータの発光・吸収波長帯域は非常に近い分布をし、互いに積層が可能であることを示している。しかし GAGG:Ce (0.12, 0.41, 0.57 mol%) シンチレータの吸収波長帯域は GSO:Ce (0.5, 1.5 mol% 上部、下部)シンチレータ、GSOZ:Ce (1.0 mol%)シンチレータ、LGSO:Ce (0.3 mol%)シンチレータの発光波長帯域と同様の帯域に分布し、これらの積層は適切ではないことが示された。また図 2-8 (d) に示す LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータの発光波長帯域からは、LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータの発光は GSO:Ce (0.5, 1.5 mol% 上部、下部)シンチレータ、GSOZ:Ce (1.0 mol%)シンチレータ、LGSO:Ce (0.3 mol%)シンチレータに吸収される可能性が高く、互いの積層には適切ではないと判断した。

これらの結果より、本研究で用いたシンチレータでは異なる材質間における積層は適切ではないことが示された。したがって互いに 2σ 以上離散的に分布する V_p/Q 値を有し、なおかつ積層に適切な発光・吸収波長帯域を持つという条件で積層シンチレータを選定すると、GSO:Ce (0.5, 1.5 mol% 上部、下部)シンチレータが最も積層に適切であると判断できる。また同種のシンチレータは光学特性が非常に近いことから、同種のシンチレータのみで積層が可能であることは、屈折率などを考慮すると光学的に大きな利点がある。

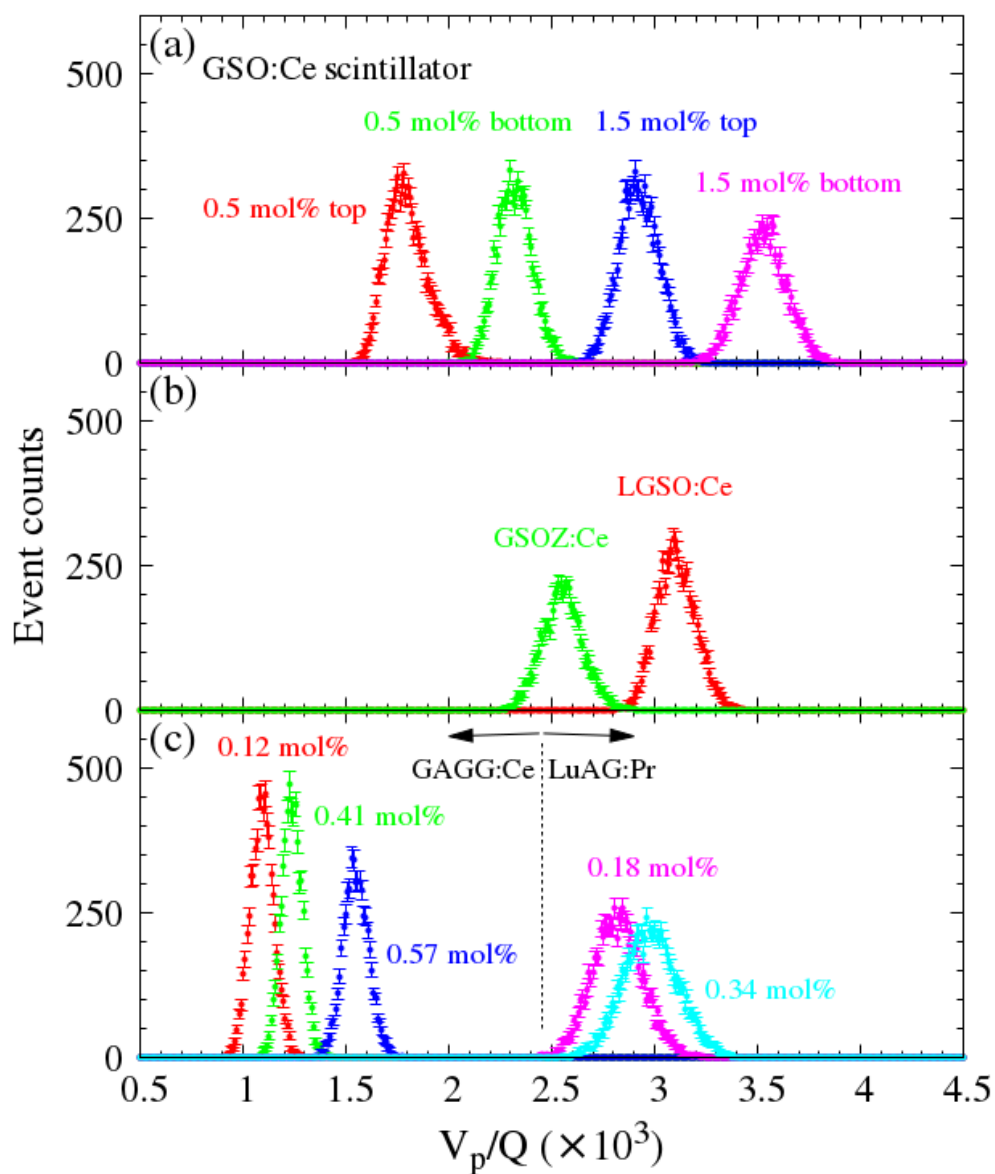


図 2-7 (a) GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータ、
 (b) LGSO:Ce、GSOZ:Ce シンチレータにおける V_p/Q ヒストグラム。(c)
 GAGG:Ce (0.12, 0.41, 0.57 mol%) シンチレータと LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%)
 シンチレータにおける V_p/Q ヒストグラム。

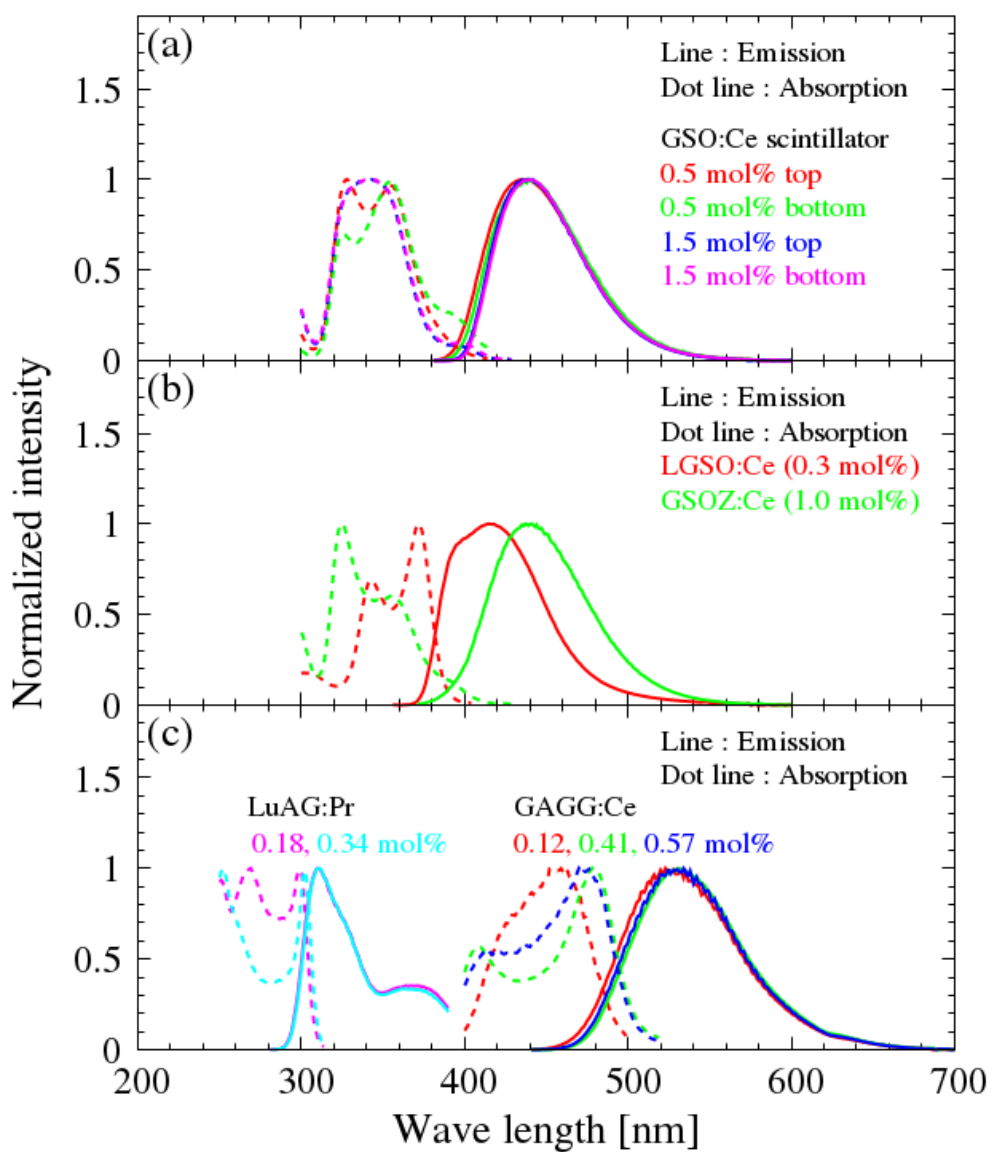


図 2-8 (a) GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータ、(b) LGSO:Ce、GSOZ:Ce シンチレータ、(c) GAGG:Ce (0.12, 0.41, 0.57 mol%) シンチレータと LuAG:Pr (0.18, 0.34 mol%) シンチレータにおける発光・吸収スペクトル。

3-2 PQD 法による DOI 検出器のパルス波形弁別精度

本研究では Ce 添加濃度の低い順(Ce 添加濃度 0.5mol% 上部下部、1.5mol% 上部下部)の順で光電子増倍管に GSO:Ce シンチレータを積層し、4 層 DOI 検出器を作成した。4 層 DOI 検出器における V_p/Q 値の全積分電荷依存性を図 2-9 に示す。図 2-9 に示すように GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータの寄与がそれぞれ離散的に分布していることが分かる。より定量的に V_p/Q 値の弁別能力を評価するため、662 keV 全エネルギーピーク における標準偏差 2σ の範囲のデータを用いてヒストグラム解析を行った結果を図 2-10 に示す。図 2-10 よりこれらの分布は互いに高精度で弁別できていることが示されている。図 2-10 の V_p/Q ヒストグラムに対してガウス関数を用いたフィッティング解析を行った結果を表 2-2 に示す。また表 2-2 にはフィッティング解析によって得られたガウス分布の平均値と FWHM を用いて FOM を解析した結果も同時に示している。得られた FOM は GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部)シンチレータでは 1.16, GSO:Ce (0.5 mol% 下部、1.5 mol% 上部)シンチレータでは 1.05, GSO:Ce(1.5 mol% 上部下部)シンチレータでは 0.90 という数値が得られた。またそれらの分布から隣り合うガウス分布の交点をそれぞれの閾値とした場合、GSO:Ce(0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータでそれぞれ 99.76%, 99.01%, 97.42%, 98.36%の精度で弁別に成功した。これらの結果から、GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータを用いた PQD 法による 4 層 DOI 検出器は、実測で 3%以下の誤検知率で DOI 情報を取得できていることが示された。

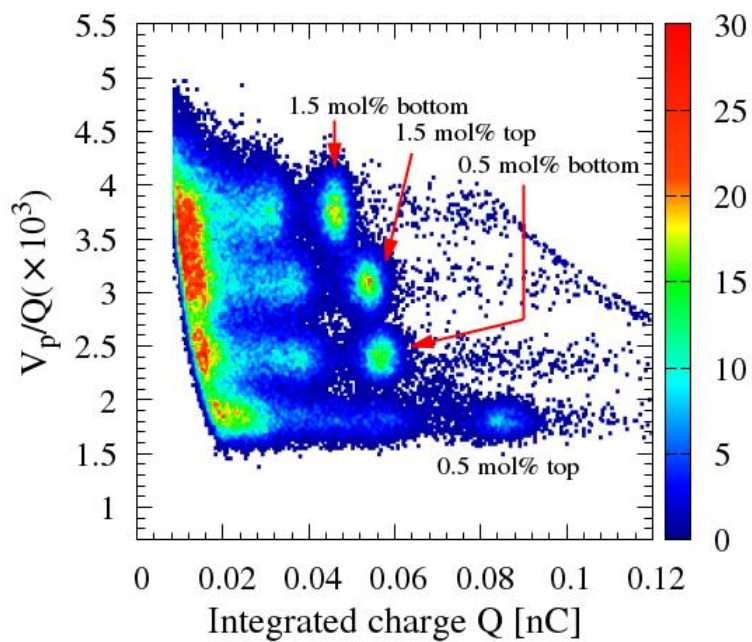


図 2-9 GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部)シンチレータを用いた 4 層 DOI 検出器における V_p/Q 値の全積分電荷(エネルギー)依存性。

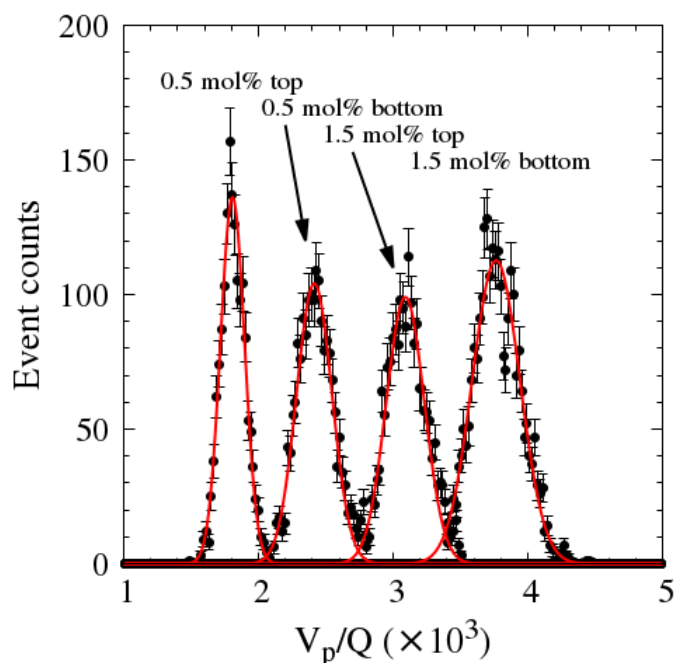


図 2-10 GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部)シンチレータを用いた 4 層 DOI 検出器における V_p/Q ヒストグラム。

表 2-2 4 層 DOI 検出器における V_p/Q ヒストグラムに対してガウス関数を用いたフィッティング解析を行った結果。

シンチレータ	ピーク値	平均値	FWHM	Figure of merit (FOM)
GSO:Ce 0.5mol% 上部	136.1	1.80	0.21 (11.6%)	1.16
GSO:Ce 0.5mol% 下部	104.0	2.41	0.31 (12.9%)	
GSO:Ce 1.5mol% 上部	99.04	3.09	0.33 (10.7%)	0.90
GSO:Ce 1.5mol% 下部	112.6	3.76	0.41 (11.1%)	

3-3 PQD 法を用いた DOI 検出器のエネルギー分解能

図 2-11(a) に GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータを個別に測定した実験で得られたエネルギースペクトルを示す。また図 2-11 (b) に、GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータを用いた 4 層 DOI 検出器における、各 GSO:Ce シンチレータのエネルギースペクトルを示す。図 2-11 (a,b) より、個別測定と 4 層積層状態においてエネルギースペクトルが著しく変化していることが分かる。これらのエネルギースペクトルにおける 662 keV 全エネルギーピークをガウス分布によってフィッティングした結果を表 2-3 に示す。個別状態における光電子増倍管の供給電圧は 1000V であり、4 層積層状態における供給電圧が 1400V であるため、表 2-3 に示すガウス分布の平均値(信号強度)は個別状態の方が小さくなっている。また個別測定では各シンチレータにおける信号強度は大きく変化していないが、4 層積層状態では各シンチレータにおける信号強度に大きな差が示された。これは光電子増倍管から遠いシンチレータにおけるシンチレーション光の到達光量が減少し、信号強度が減少しているためと考えられる。また表 2-3 から、積層によってそれぞれの GSO:Ce シンチレータにおけるエネルギー分解能が約 2%劣化したことが示された。4 層積層によってエネルギー分解能は低下したが、一般的に PET 装置に用いられている無機シンチレータのエネルギー分解能は 10~20% である。したがって本研究で使用した 4 層 DOI 検出器は DOI-PET 装置への実装において十分なエネルギー分解能を達成したと考えられる。

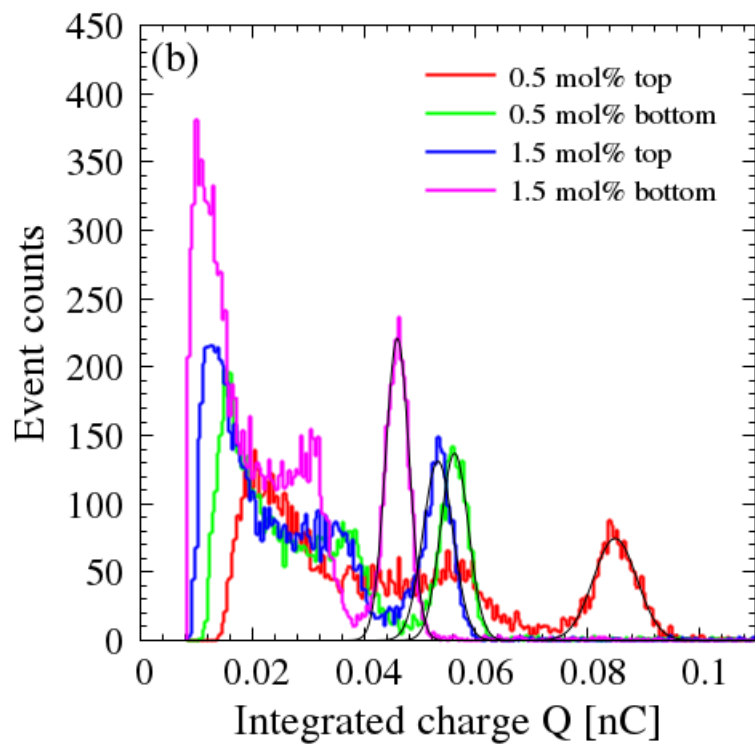
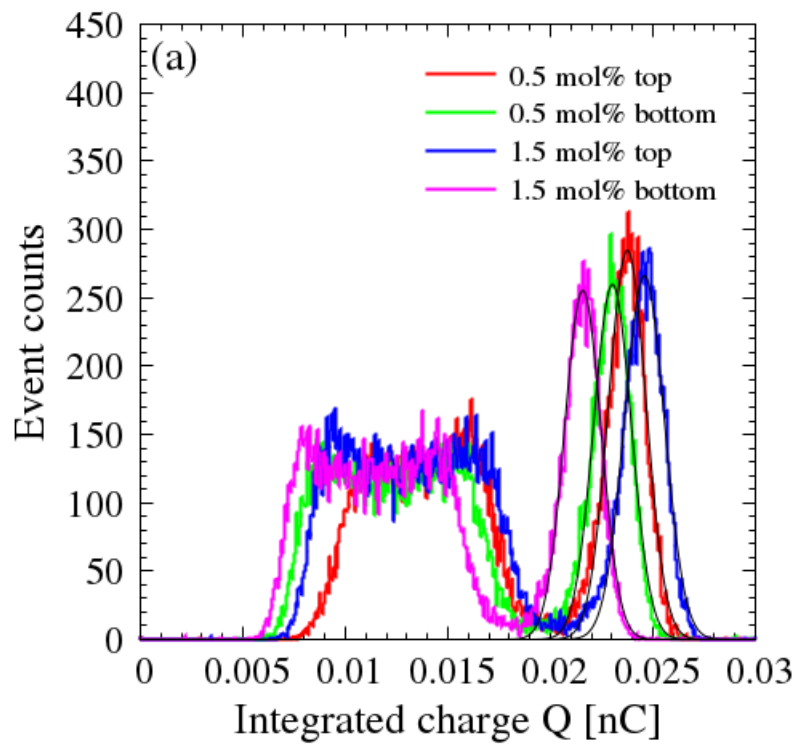


図 2-11 (a) 個別測定と(b) 4層積層状態における GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータのエネルギースペクトル。

表 2-3 個別測定と 4 層積層状態における測定において、662 keV 全エネルギーピークに対してガウス分布を用いたフィッティング解析を行った結果。

シンチレータ	個別測定			4 層積層状態		
	ピーク値	平均 [pC]	FWHM [pC]	ピーク値	平均 [pC]	FWHM [pC]
0.5 mol% 上部	284.7	23.7	2.17 (9.12%)	74.56	84.9	3.89 (10.7%)
0.5 mol% 下部	259.7	23.0	2.17 (9.4%)	136.8	56.1	2.48 (10.4%)
1.5 mol% 上部	266.1	24.5	2.23 (9.3%)	131.1	53.2	2.69 (11.9%)
1.5 mol% 下部	255.2	21.5	2.09 (9.6%)	220.9	45.9	2.11 (10.8%)

3-4 PQD 法と Charge comparison 法における信号弁別精度

GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータによる 4 層 DOI 検出器の出力パルス波形において、ピーク付近、減衰初期、減衰中期、減衰終期の 4 つの位置で図 2-12 (a-d) に示すようにそれぞれ 40, 80, 120, 160 ns の 4 種類の幅の電荷積分窓を作成した。ピーク付近、減衰初期、減衰中期、減衰終期はそれぞれ図 2-12 (a-d) において 120, 160, 200, 240 ns が電荷積分窓の始点となっている。16 個の電荷積分窓による Charge comparison 法を用いた 4 層 DOI 検出器における各 FOM を解析した結果を図 2-13 (a-d) に示す。また図 2-13 (a-d) には PQD 法による FOM も同時に示している。図 2-13 (a) よりピーク付近に電荷積分窓を設置した場合、40, 80 ns の電荷積分窓を用いた Charge comparison 法は GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータの弁別において PQD 法より高精度であることが示された。また 80 ns の電荷積分窓を用いた Charge comparison 法では 40 ns の電荷積分窓の条件と比べて GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部) シンチレータにおいて高精度な弁別を達成しているが、GSO:Ce (1.5 mol% 上部下部) シンチレータの弁別では 40 ns の電荷積分窓の方が高い精度を示した。また図 2-13 (b) より減衰初期に電荷積分窓を設定した場合、GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部) シンチレータにおいては PQD 法の方が Charge comparison のすべての条件より高精度な弁別を達成した。しかし GSO:Ce (1.5 mol% 上部下部) シンチレータの弁別では 80, 120, 160 ns の電荷積分窓を用いた Charge comparison 法の方が PQD 法より高

い精度を実現し、ピーク付近における電荷積分窓の設定条件と精度の関係とは逆の傾向を示した。図 2-13 (c) の減衰中期における両者の比較では 80, 120, 160 ns の長い電荷積分窓を使用した Charge comparison 法で高精度が得られている。また図 2-13 (d) に示すように減衰終期に電荷積分窓を設置した条件でも GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部) シンチレータの弁別では、広い電荷積分窓を使用した Charge comparison 法で高い精度を実現している。しかし GSO:Ce (1.5 mol% 上部下部)シンチレータの識別では PQD 法の方が Charge comparison 法より高精度を示している。

これらの結果より電荷積分窓の条件によっては Charge comparison 法は PQD 法よりも高精度であることが示された。しかし Charge comparison 法が電荷積分窓の選定に強い依存性があることも示され、GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータの 4 種類を弁別する場合それぞれ最適化の条件が異なることも示された。また GSO (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータを用いた場合、ピーク付近では狭い積分窓が適切であり、減衰部分では広い積分窓が適切であることが示された。一般的に 1 を超える FOM の場合は十分な精度で 2 つの分布を弁別できていると考えられる。図 2-13 (a-d) の結果より、すべての GSO:Ce シンチレータにおいて FOM が 1 を超えている積分窓の条件はピーク付近に 40ns の積分窓(図 2-13 (a) 120-160 ns)を設置した場合である。したがって、この条件が今回の検討における Charge comparison 法において最適な積分窓であると考えられる。図 2-14 に電荷積分窓最適化における Charge comparison 法を用いたパルス波形弁別の結果を示す。

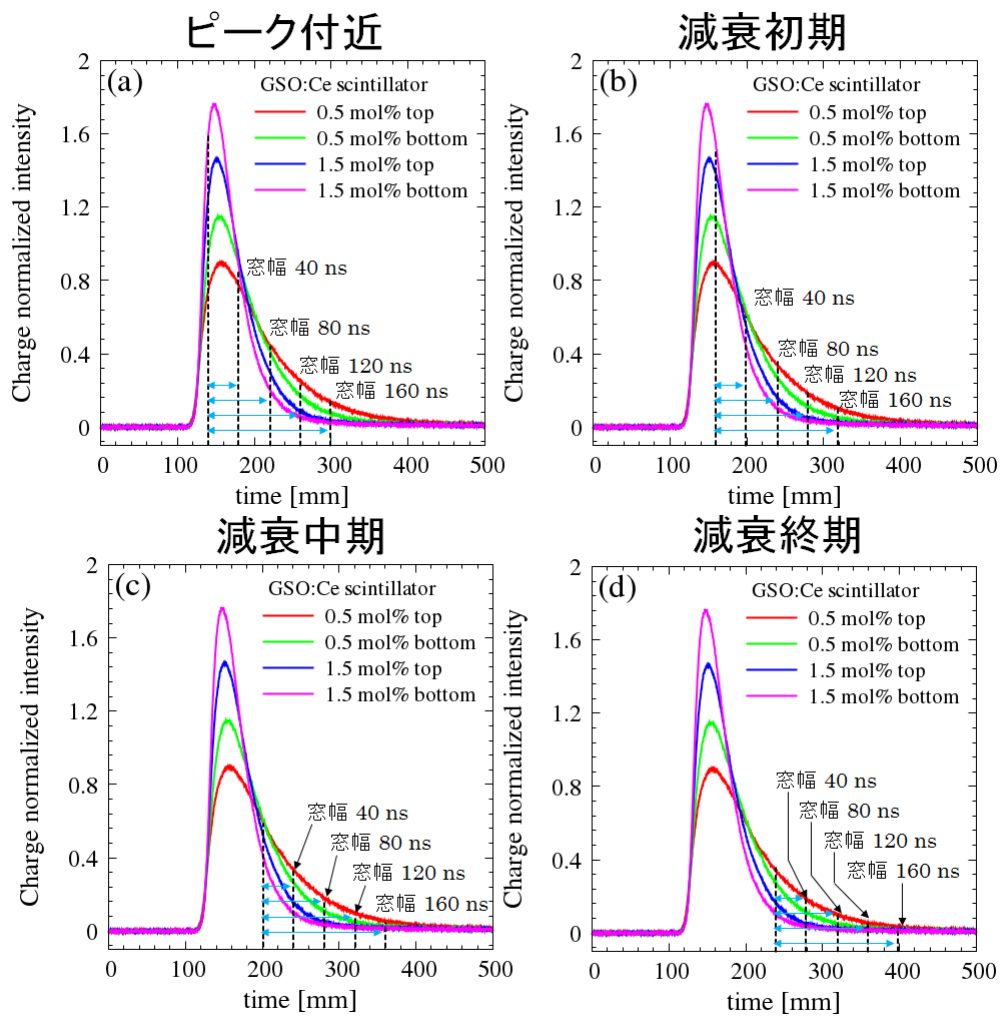


図 2-12 信号パルス波形と電荷積分窓の設定位置((a)ピーク付近、(b)減衰初期、(c)減衰中期、(d)減衰終期)。

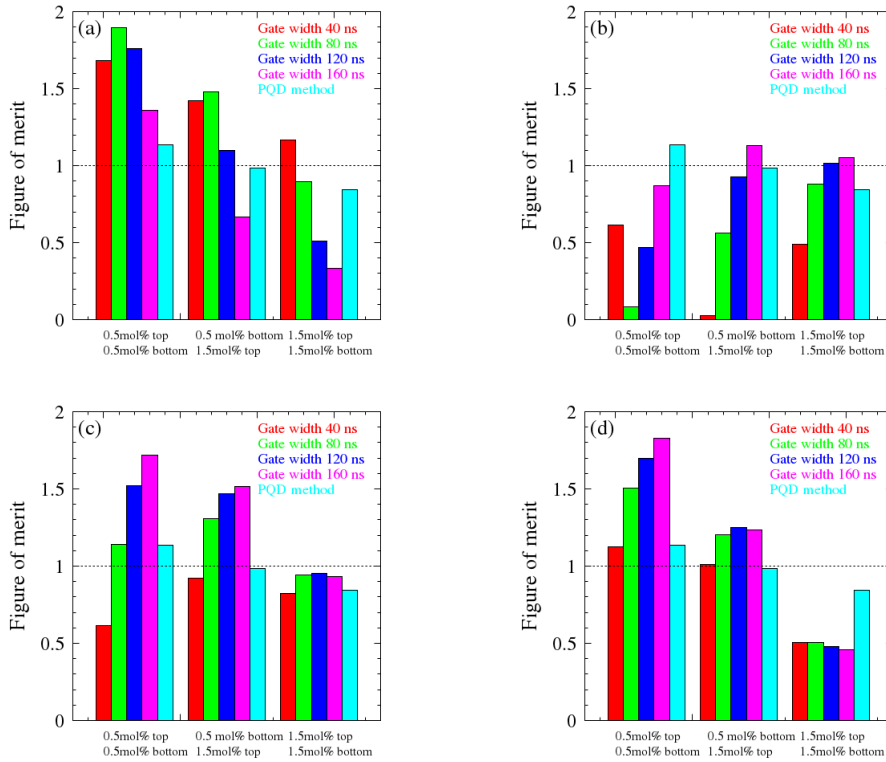


図 2-13 Charge comparison 法において(a)ピーク付近、(b)減衰初期、(c)減衰中期、(d)減衰終期にそれぞれ 40, 80, 120, 160 ns の電荷積分窓を設置した場合と PQD を用いた場合の、GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部)シンチレータ弁別における figure of merit。

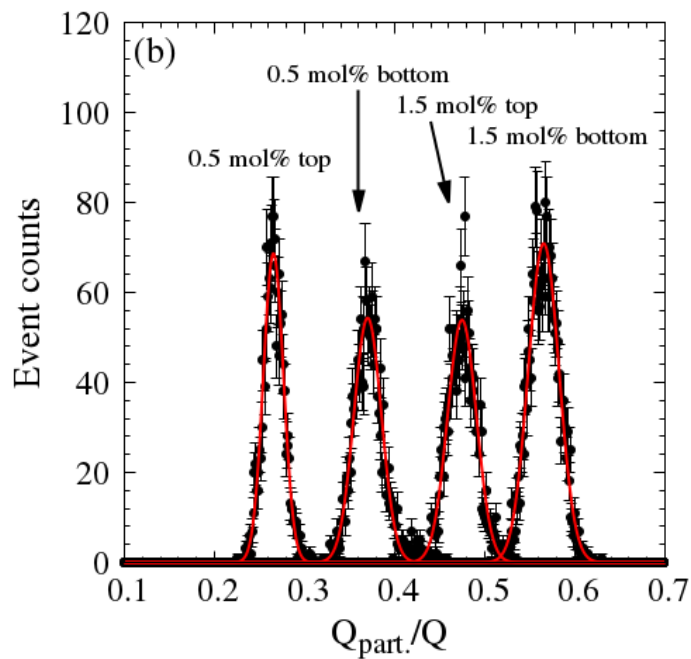
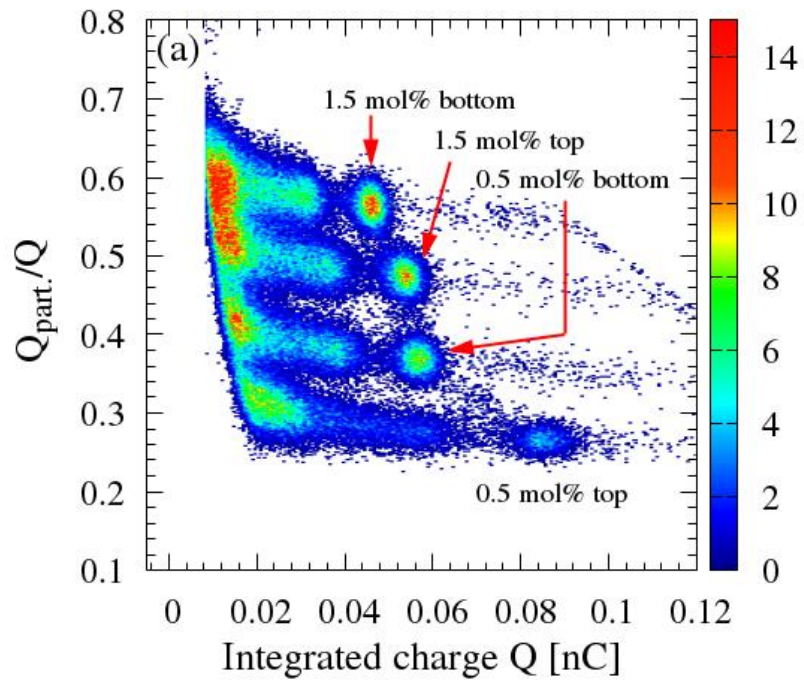


図 2-14 電荷積分窓最適化における Charge comparison 法を用いて解析した、部分積分電荷 $Q_{\text{part.}}$ と全積分電荷 Q の比における(a)分布と(b)ヒストグラム。

PQD 法と Charge comparison 法(電荷積分窓最適化)における FOM のサンプリングレート依存性を解析した結果を図 2-15 に示す。図 2-15 からすべてのシンチレータの組み合わせにおいて、PQD 法では約 100 MS/s (サンプリング時間 10 ns) 以上のサンプリングレートでほぼ精度の低下が観測されなかった。一方 Charge comparison 法では 1 GS/s 以下のサンプリングレートから顕著な精度低下が観測され、225 MS/s 以下のサンプリングレートでは PQD 法より小さな FOM が示された。これらの結果より GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータを用いた 4 層 DOI 検出器において、PQD 法は低いサンプリングレートでも高い精度でのパルス波形弁別が可能であり、225 MS/s 以下では最適化した Charge comparison 法よりも高い精度を実現することが示された。

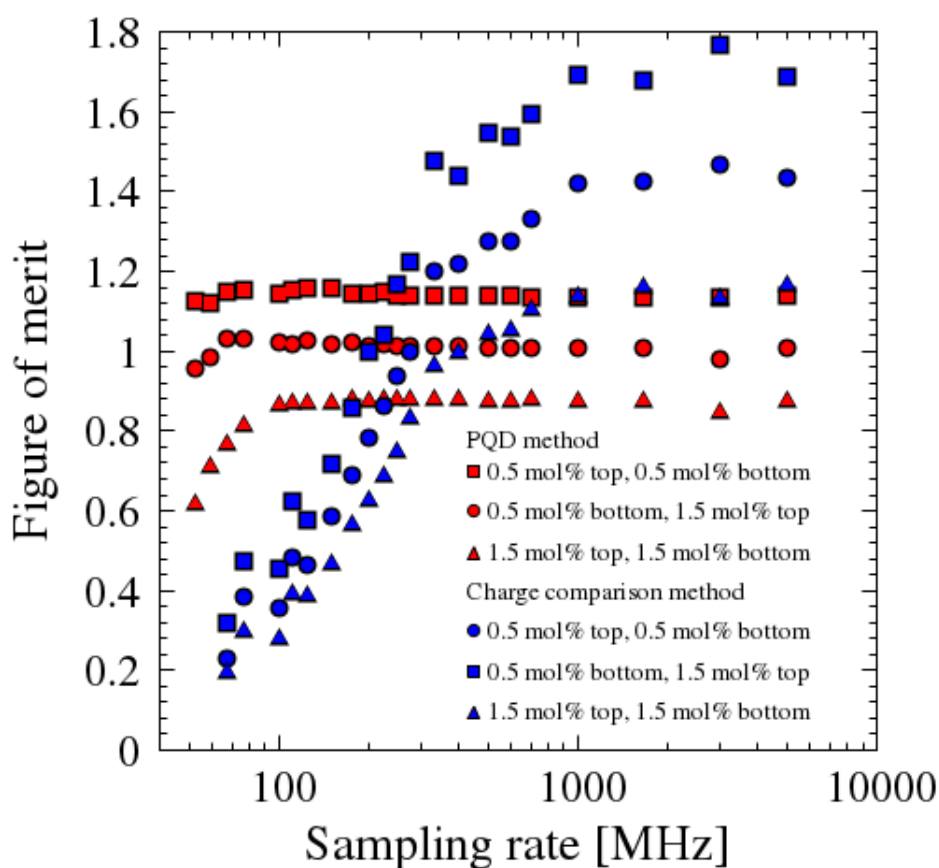


図 2-15 PQD 法と Charge comparison 法におけるパルス波高弁別精度のサンプリングレート依存性。

3-5 シンチレータの発光特性と V_p/Q 値

図 2-6 (a-d)、図 2-7 (a-c) よりシンチレータの材質や添加物濃度の変化によって異なる信号パルス波形が得られ、またそれを V_p/Q 値によって弁別可能であることが示された。しかし V_p/Q 値がシンチレータの発光特性におけるどのパラメータに感度を持つかは不明である。シンチレータの発光過程における時間構造は現在も様々な研究が行われているが、一般的に励起電子の挙動とエネルギー順位の構造によって現象が理解されている^{47,48}。また現在は式(2-1)を用いた信号パルス波形に対するフィッティング解析により、シンチレーション光の時間構造を近似的に数値化している。本研究では最もパルス波形への寄与が大きいと考えられる減衰時定数に注目し解析を行った。最も強度比が強い減衰時定数と V_p/Q 値の関係性を調べた結果を図 2-16 に示す。図 2-16 より V_p/Q 値はシンチレータの減衰時定数に強く依存し、それらはシンチレータの材質に依存せず共通な関数で表現できる可能性を示している。しかし LGSO:Ce (0.3 mol%) シンチレータと GAGG:Ce (0.12 mol%) シンチレータにおける V_p/Q 値の減衰時定数依存性は他のシンチレータと異なった挙動を示している。この現象は表 2-1 に示したように、この 2 つのシンチレータが他のシンチレータに比べ減衰時定数の強度比が異なるためと考えられる。LGSO:Ce (0.3 mol%) シンチレータは 1 つの強い成分によって発光特性が表現され、GAGG:Ce (0.12 mol%) シンチレータは 2 つの減衰時定数の強度比がほぼ等しい。したがってこれらの結果より、減衰時定数の強度比が近いシンチレータであれば、減衰時定数から V_p/Q 値が見積もることができる可能性が示された。また図 2-16 に示す GSOZ:Ce (1.0 mol%) シンチレータと LGSO:Ce シンチレータの V_p/Q 値から、減衰時定数が近い場合でもシンチレーションの発光特性における時間構造が異なる場合、 V_p/Q 値が大きく変化することが明らかになった。

今回の解析では V_p/Q 値は最も強度の強い減衰時定数に強く依存することが明らかになった。しかし減衰時定数のみで V_p/Q 値とシンチレータの発光特性の全ての関係性を示すことは困難であることも示された。また今回の検証に発光の立ち上がり時定数は含んでおらず、現在立ち上がりと減衰を同時に評価する関数が確立できていないため評価を行うことができなかった。したがって今後は立ち上がり部分を含んだパルス波形を再現する関数を明らかにし、その関数から V_p/Q 値とシンチレーション発光特性の関係を明らかにしていく必要があると考えられる。

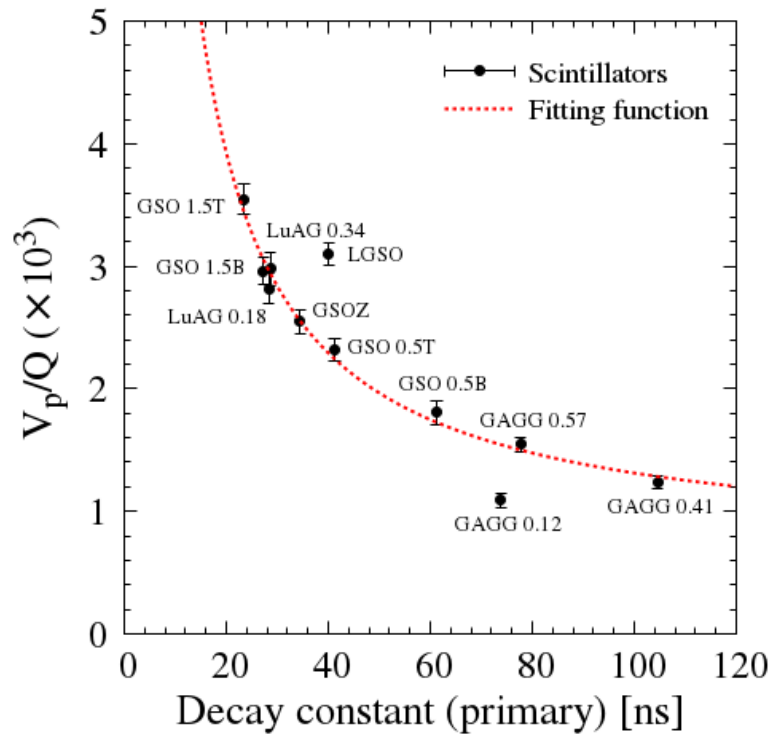


図 2-16 V_p/Q 値と減衰時定数の関係性。図中では各シンチレータの添加元素と添加濃度における mol% の単位を略し、GSO:Ce (0.5, 1.5 mol%) における結晶インゴット位置の上部(top)と下部(bottom)をそれぞれ T, B と略している。

4. 考察

4-1 GSO:Ce シンチレータにおける Ce 添加濃度と減衰時定数

先行研究では Ce 添加濃度を 0.1, 0.5, 0.95, 1.5, 2.0, 5.0 mol% と変化させた GSO:Ce シンチレータにおける減衰時定数と Ce 添加濃度の関係性が報告されている⁴⁰。それらのデータを利用して、今回使用した公称 Ce 添加濃度 0.5, 1.5 mol% の結晶インゴット上部、下部における GSO:Ce シンチレータの減衰時定数(表 2-1)から、各シンチレータの Ce 添加濃度を推定することが可能である。推定された Ce 添加濃度は GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータでそれぞれ約 0.45, 0.83, 1.95, 3.06 mol% という数値が得られた。したがって、0.5 mol% 上部下部と 1.5 mol% 上部下部でそれぞれ 1.85 倍と 1.57 倍の Ce 添加濃度比が存在している可能性が高い。

また量子科学技術研究開発機構、放射線医科学研究所、計測・線量評価部の吉井氏による蛍光 X 線分析(OURSTEX 100FA, アワーズテック(株))によって、相対的な GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータの Ce 添加濃度比を解析していただいた。その結果 GSO:Ce (0.5 mol%) シンチレータの上部と下部の Ce 濃度比は 1.96 ± 0.11 倍であり、GSO:Ce (1.5 mol%) シンチレータの上部と下部における Ce 濃度比は 1.57 ± 0.12 倍という結果が得られた。これらの実測によって得られた Ce 濃度比は先行研究のデータから推定した濃度比と非常に近い数値を示している。これらの数値は相対値ではあるが、本研究で 4 層 DOI 検出器に使用した 4 種類の GSO:Ce シンチレータが異なる Ce 濃度を有していることの実験的証明となっている。

4-2 PQD 法と Charge comparison 法の比較

図 2-13 (a) に示す最適化された電荷積分窓 (窓幅 40 ns) を用いた Charge comparison 法は PQD 法に比べ高いパルス波形弁別精度を取得した。しかし図 2-14 に示すようにサンプリングレートの低下に伴い Charge comparison 法は精度が大きく低下していき、200 MS/s 以下では PQD 法の方が高精度なパルス波形弁別精度を実現した。LaBr₃:Ce シンチレータを用いた場合、PQD 法はサンプリングレートによる精度低下が非常に大きいという結果が得られたが、GSO:Ce シンチレータを用いた今回の実験では異なる結果が得られた。これらはシンチレータの発光時間特性に依存すると考えられる。LaBr₃:Ce シンチレータは約 16 ns と非常に速い減衰時定数を持つため、高精度でピーク値を取得するには高いサンプリングレートが

必要であったのに対し、GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータは表 2-1 に示すように 23.4 - 63.1 ns と比較的長い。また一般的に GSO:Ce シンチレータの信号パルス波形の立ち上がり時間は約 10 ns と報告されておりこれも LaBr3:Ce シンチレータに対して長い時間である^{44, 49}。したがってこれらの発光特性より GSO:Ce シンチレータはピーク付近で比較的なだらかな勾配を持つパルス波形を形成しており、低いサンプリングレートにおける PQD 法でも十分な精度が得られたと考えられる。

一方 Charge comparison 法によるパルス波形弁別はサンプリングレートによる依存性が強く、十分な性能を達成するには Flash ADC に高いサンプリングレートを要求する必要があると示された。しかし一般的に Charge comparison 法を行う場合積分電荷はアナログ値で測定するため、無限のサンプリングレートでパルス波形弁別が可能である。したがって測定ボードの回路構成によっては PQD 法よりも高精度を実現する可能性がある。しかし前述したようにアナログ信号を扱う場合、回路素子による電気ノイズや時間方向に電荷積分窓が変動する誤差が生じてしまう可能性がある。また図 2-4 に示した様に Charge comparison 法は信号を分割するため信号ノイズ比が低下する可能性も示唆される。したがって Charge comparison 法を十分な性能で実装する場合、PQD 法に比べノイズなどの不確定要素を多く含む可能性が考えられる。

図 2-15 から、PQD 法では約 100 MS/s (10ns のサンプリング時間)までサンプリングレートを低下させても精度の低下が小さいことが示された。一方 Charge comparison 法では 1 GS/s 以下でパルス波形弁別の精度が低下していき、図 2-15 から PQD 法と同等の精度を達成するには約 275 MS/s のサンプリングレートが必要であると考えられる。一般的に Flash ADC はサンプリングレートが大きくなるにつれコストが増大し、2016 年 11 月現在の Texas Instruments Japan Limited から販売している Flash ADC では ADC12J4000 (4 GS/s, 1 ch) で 1949.99\$, ADS54J60 (1 GS/s, 2 ch) で 706.50\$, ADS42LB49 (250 MS/s, 2 ch) で 125.00\$, ADS52J90 (100 MS/s, 16 ch)で 120.00\$ である。Charge comparison 法を 250 MS/s で回路実装し PQD 法を 100 MS/s で回路実装した場合、ch あたり 8.3 倍 PQD 法の方が低コストである。PET 装置は一般的に多くの信号を処理する必要があり、一つ一つの信号を処理する際のコストは極力低い方が望ましい。PQD 法は 100 MS/s で十分な精度を達成できるため、Flash ADC を用いた回路実装が低コストで可能である。したがって Flash ADC を用いた PQD 法による DOI-PET 装置の開発は実現可能であると考えられる。

4-3 PQD 法を用いた DOI 検出器の PET 装置への実装

本研究では GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータを用いた PQD 法による 4 層 DOI 検出器の実現可能性を示した。しかし本技術を PET 装置に応用する場合、今回の検証実験とは異なるマルチアノードの光電子増倍管を使用する必要がある。現在 DOI 技術を必要としている小動物用 PET 装置では 256 ch のマルチアノード光電子増倍管がよく用いられており、コストの面から 256 ch の信号線から独立に信号を取得するのではなく、抵抗分割回路を利用した 4 ch の読み出しが一般的である^{50,51}。4 ch から読み出された電流信号は重心演算によって発光したシンチレータの位置を同定可能である。図 2-2 (a) に示す Light-sharing 法では特殊な反射材によってシンチレーション光の光電面到達位置を制御し、重心演算によって得られた 2 次元強度分布から DOI 情報を取得している^{32,33}。しかしパルス波形弁別では正確なパルス波形情報が必要であり、抵抗分割回路によってパルス波形の情報が変化してしまう可能性がある。したがって PQD 法を PET 装置に応用する場合、マルチアノード光電子増倍管と抵抗分割回路を用いて測定した場合においても高い精度でパルス波形弁別が可能かどうか検討する必要がある。

近年小動物 PET 装置において DOI 情報は必要不可欠な要素となっている^{29,30}。製品として販売されている小動物用 PET 装置には Light-sharing 法による 4 層 DOI 検出器が実装されており³³、研究段階の装置では 4 層以上の DOI 検出器も開発されている⁵²。本研究で開発した PQD 法は上記の Light-sharing 法による DOI 情報の識別とは全く独立した方法である。したがって Light-sharing 法と PQD 法は併用が可能であり、両者を併用した場合理論的には最大で $4 \times 4 = 16$ 層の DOI 検出器が実現できる可能性がある。

小動物用 PET 装置では高い空間分解能を得るために、再構成後の画素サイズを 0.2~0.5 mm と非常に小さく設定する場合が多い^{53,54}。したがって再構成後の各画素における信号ノイズ比は小さくなり、高画質な再構成画像を取得するためには高い統計精度が要求される。十分な統計精度を得るためには高い検出効率を実現する PET 装置のデザインが必要である。PET 装置には読み出し素子の干渉からシンチレータを設置できないデッドスペースが存在し、先行研究ではテーパー状の検出器を作成することによってデッドスペースを減少させ検出効率を向上させている⁵⁵⁻⁵⁷。しかし、このテーパー状のデザインでは積層 DOI 検出器と Light-sharing 法を用いた場合 DOI 情報の取得が困難である。先行研究ではテーパー状シンチレータのデザインにおいて、図 2-2 (b) に示す Dual-ended readout 法を用いて DOI 情報を取得しているが、エネルギー分布が歪み分解能の評価ができなかったという報告がある⁵⁷。またシンチレータの形状をテーパー状に加工しており、製作コストの

面も指摘されている⁵⁷。しかし PQD 法を用いた 4 層 DOI 検出器ならば図 2-11 (b) に示した様に、積層状態においても高いエネルギー分解能を達成しつつ、すべて同一形状のシンチレータを用いた積層型テーパ状 PET 装置のデザインが可能である。

5. 小括

本研究では PQD 法による積層型 DOI 検出器に適した 4 種類の GSO:Ce(0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部)シンチレータを選定し、実測によって PQD 法による 4 層 DOI 検出器の性能を評価した。その結果、誤検知率 3%以下の精度で 4 層の DOI 情報を取得することに成功した。また先行研究である Charge comparison 法と PQD 法のパルス波形弁別精度を比較し、333 MS/s(サンプリング時間 3 ns)以上のサンプリングレートでは Charge comparison 法の方が高精度を達成したが、200 MS/s以下では PQD 法の方が高精度を実現した。Flash ADC はサンプリングレートの上昇に伴いコストが増加するので、111 MS/s(サンプリング時間 9 ns)でも十分な性能を達成する PQD 法は Flash ADC を用いた PET 用の回路実装に非常に適切である。また単一読み出しにおいて 4 層 DOI 分解能を実現した PQD 法は、既存の Light-sharing 法ではデザインが困難であるテーパ状 PET 装置が実現可能である。第 3 章では PQD 法による積層型 DOI 検出器によって実現可能となった積層型テーパ状 PET 装置の性能をシミュレーションにより検討する。

第3章

新しい信号パルス波形解析による積層シンチレータ

検出器を用いたテーパー状 PET 装置の実現可能性検討

1. 緒言

核医学の分野では様々な原子核の崩壊に起因する放射線が利用され、PET (Positron emission tomography) 装置では陽電子放出核を利用している。陽電子は1928年にポール・ディラックがその存在を予言し、1932年にアンダーソンが霧箱を用いた宇宙線の観測中に存在を証明した。陽電子は電子と相互作用し180度方向に2つの511keVガンマ線を放出するが、この対消滅ガンマ線の同時計数を初めて医療に応用した研究は1951年に報告されている。製品としての診断用PET装置は1974年に初めてアメリカで開発され、日本でも1979年に放射線医科学研究所で頭部用のPET装置が開発された⁵⁸。その後世界中でPET装置の研究開発が盛んに行われ、より高い性能を実現するためのデザインや検出器が開発されている。初期の頭部用PET装置の空間分解能はFOV (Field of view) 中心で7.5 mmと報告されているが⁵⁸、現在製品として発表されている診断用PET装置の空間分解能は3.5 - 7 mmと大きく精度が向上している^{59, 60}。高い性能を実現している現在の診断用PET装置は様々な診断や測定に利用され、脳や心筋の血流、代謝測定や腫瘍判定で用いられている⁶¹。

研究段階の薬剤の応答や、腫瘍への放射線治療の影響を調べる場合マウスなどの小動物を実験に用いることがある。それらの実験では小動物用PET装置を用いた測定が行われる場合がある^{53, 54, 62}。市販されている診断用PET装置の多くはFOVが約500~700 mmであり、小動物用PET装置は35~200 mmと小径である⁵⁹⁻⁶²。小動物用PET装置は小径であるため角度揺動の影響が小さいが視差誤差が増加するのでDOI (Depth of interaction) 検出器の技術が応用されている場合が多い^{29, 30}。またラットの脳は約20mm程度であり、マウスの脳は10 mm程度であるので、詳細な情報を取得するため小動物用PET装置は人体用のPET装置よりも高い空間分解能が要求されている⁶³。小動物用PET装置に要求される理想的な空間分解能は0.5 mmと言われているが、現在報告されている世界最高の空間分解能は約0.7 mmである⁶³。空間分解能は画像再構成のアルゴリズムにも依存するが、最も大きな影響を与えるのはPET装置のデザインであり、特に検出素子のサイズによる寄与が大

きい。PET 装置に直方体の検出素子を使用した場合、検出素子の長さ方向は 511 keV のガンマ線の検出に十分な長さで設計する場合が多く、使用するシンチレータの材質によって必要な長さは変化する⁶⁴。空間分解能への寄与が大きいのは 511 keV ガンマ線が入射する面のサイズであり、人間用 PET 装置では一辺 2.0 - 3.0 mm だが前述した 0.7 mm の空間分解能を達成した装置では一辺 0.5 mm の微小なシンチレータを用いている^{61, 63}。ガンマ線入射面のサイズが小さくなることで設置可能なシンチレータ数が増加し、同時検出した検出器ペアの中心を結ぶ LOR (Line of response) のパターン数は空間分解能に大きく寄与する。しかし検出器サイズを小さくすると信号の読み出しに問題が発生する場合が多く、例えば 256 ch のマルチアノード光電子増倍管の場合 1ch のピクセルサイズは一辺 2~3 mm 程度の大きさなので、それ以下のサイズの検出素子を正確に検出することは困難である^{50, 51}。近年ではピクセルピッチ 0.05 mm 程度の Si-PM (Silicon photomultiplier) という素子が開発され、この素子は大きさにも自由度があるためマルチアノード光電子増倍管に代わる新たな PET 装置用の読み出し素子として注目を集めている^{63, 65}。Si-PM を読み出し素子として利用することで、検出器サイズの小型化が可能になり空間分解能の向上につながっている。しかし Si-PM は一般的に温度依存性が高く⁶、また光電子増倍管に比べノイズが多いため、光電子増倍管の方が安定した高い精度の信号を出力することが可能である。

小動物用 PET 装置では高い空間分解能を必要とするため、再構成画像における画素サイズが人間用 PET 装置よりも小さい^{53, 54}。一般的に人体用の PET 装置では 2 - 5 mm の画素サイズだが、小動物用 PET 装置では 0.2 - 0.5 mm 程度である。高い空間分解能を実現するため小さい画素を設定することは必要不可欠であるが、画素の細分化による空間分解能の低下が懸念されている⁶³。図 3-1 に示すように画素が細分化されるとそれだけ各画素に含まれる情報の統計精度が低下する。この各画素における統計精度の低下は画質低下を引き起こし、結果として再構成画像の空間分解能を低下させる。この問題を解決するためには十分な統計量が取得可能な測定を行う必要がある。その方法として、投与線量を増加するか特定時間を長くする方法、もしくは検出効率の高い PET 装置をデザインする方法などが考えられる。しかし PET 薬剤の投与量増加には限度があり、検出器の応答速度を上回る放射能を与えても正しい測定結果は得られない。したがって現在では長時間測定を行うことで十分な統計量を取得する方法が行われている⁶³。しかし長時間測定は経時変化の測定には対応できず、また生体を対象とする場合の長時間測定には様々な不安要素が考えられる。したがって近年の小動物用 PET 装置の研究開発では、検出効率の高い PET 装置のデザインに注目が集められている⁵⁴⁻⁵⁷。

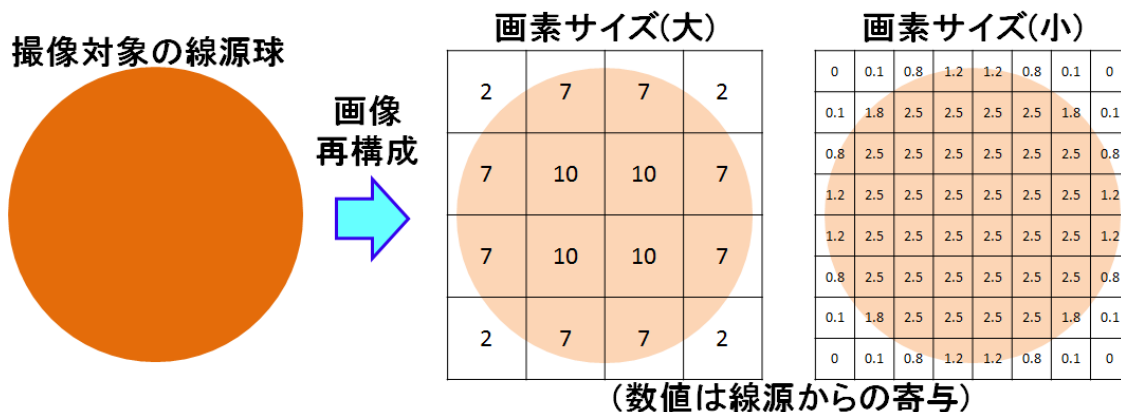
前述したように小動物用 PET 装置において高い空間分解能を達成するために

は、“検出素子の小型化”と“検出効率の向上”が非常に重要な要素となっている。前者は前述のとおり Si-PM を用いることによって達成している。後者は現在も研究段階であり、先行研究では LSO:Ce、LYSO:Ce シンチレータなどの高密度の結晶を用いて検出器デザインの最適化を行っている^{64, 66, 67}。また PET 装置は一般的に直方体のシンチレータを用いるため、リング状にシンチレータを設置した場合シンチレータの設置が不可能な空間(デッドスペース)ができてしまう(図 3-2)。このデッドスペースは検出効率の低下を引き起こし、また FOV 中の検出感度分布の一樣性を低下させる。先行研究ではテーパ状のシンチレータを作成し、シミュレーションと実測によってその性能を評価し、検出効率が約 41%向上したと報告している⁵⁴⁻⁵⁷。またこの先行研究のテーパ状 PET 装置では Si-PM を用いた Dual-ended readout 法を用いて DOI 情報を取得しており、20 mm の長さのシンチレータに対して約 2.6 mm の DOI 分解能を示している⁵⁷。Dual-ended readout 法はシンチレータの表面処理や反射材の選定が DOI 分解能や読み出しの位置精度、またエネルギー分解能に大きく影響を与える³⁵⁻³⁷。先行研究では表面状態と反射材の最適化を行っているが、読み出し素子辺縁部のシンチレータにおけるエネルギースペクトルに歪みが生じエネルギー分解能の評価が不可能であったと報告されている⁵⁷。PET 装置におけるエネルギースペクトルは非常に重要な要素であり、DOI 情報の取得による精度低下は極力避けるべきである。また先行研究の方法ではシンチレータの形状がすべて同じではなく、切断しながら表面処理と反射材の固定を行うため製作コストの増加が示唆される⁵⁷。さらに加工精度によって DOI 分解能やエネルギー分解能も変化すると考えられる。

第 2 章では PQD (peak-to-charge discrimination) 法を用いた 4 層 DOI 検出器の性能を実測で評価し、誤検知率 3%以下で DOI 情報を取得しつつ、積層状態におけるエネルギー分解能は 10-11%と高い性能を示した。本研究では PQD 法を用いた 4 層 DOI 検出器の技術を利用することで、シンチレータが干渉する領域の積層数を変化させ積層型テーパ状 PET 装置のデザインが可能ではないかと着想した(図 3-3)。図 3-3 に示すように積層型 DOI 検出器を用いてテーパ部分をデザインすることで、先行研究と異なりシンチレータはすべて同様の形状となる。この積層型テーパ状 PET 装置は、各チャンネルで独立した 4 層 DOI 検出器が実現可能ならばデザインすることが可能だが、先行研究で用いられている Light-sharing 法はその測定原理からそのまま適応することが困難である^{32, 33}。しかし PQD 法による 4 層 DOI 検出器であればそのまま積層型テーパ状 PET 装置への応用が可能である。

本研究では PQD 法を用いた積層型テーパ状 PET 装置の性能をシミュレーションによって評価した。テーパ部分が有る場合と無い場合の両方の PET 装置の検出効率と空間分解能をシミュレーションし、テーパ部分の有無による性能の

差を検証した。第3章ではPQD法による4層DOI検出器の技術を用いた積層型テーパ状PET装置の実現可能性について論じている。



各画素における線源球からの寄与は画素サイズが小さくなるほど小さくなり、小さな画素サイズで十分な精度の再構成画像を取得するためには統計精度の良いデータが必要になる。

図 3-1 画素の細分化による分解能への影響。

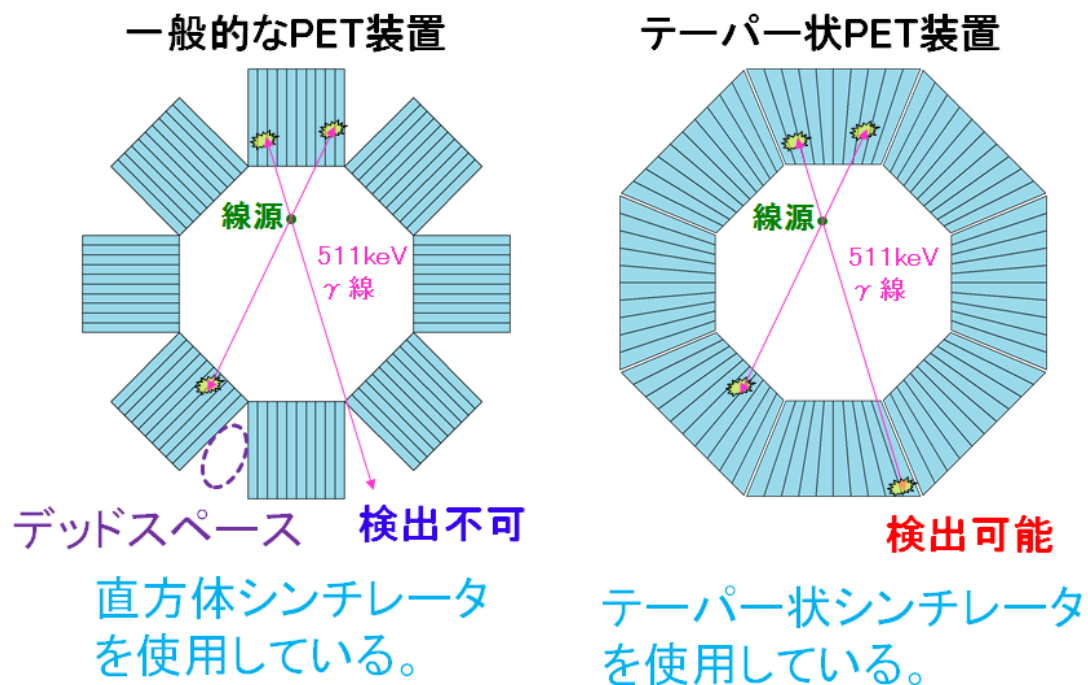
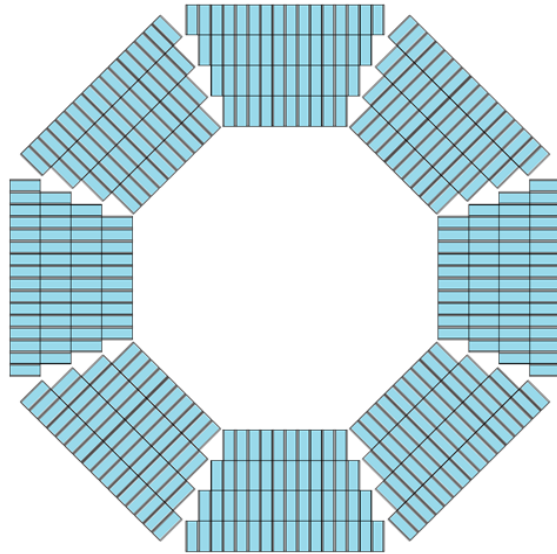


図 3-2 一般的な PET 装置におけるデッドスペースと先行研究におけるテーパ状 PET 装置。

積層型テーパ状PET装置



直方体シンチレータ
で作成が可能。

図 3-3 積層型 DOI 検出器を用いたテーパ状 PET 装置。

2. 方法

2-1 Geant4 モンテカルロコード

Geant4 は日本の研究者と欧州原子核研究機構(CERN)が共同で開発したモンテカルロシミュレーション用のツールキットであり、自由に設計した検出器と放射線の相互作用を高精度でシミュレーションすることが可能である^{68, 69}。1998年に最初のプログラムである Geant4.0.0 がリリースされ、2016年現在は Geant4.10.3 まで開発が進んでいる。Geant4 はソフトウェアではなくシミュレーションに必要な大量の情報を含んだプログラムの集合体である。したがって実際を使用する場合ユーザーがシミュレーションしたい実験体系に合わせて自らコードを作成する必要がある。設定すべき主たる要素は”検出器ジオメトリ”、”入射粒子とそのエネルギー”、”相互作用”、”スコアリング方法”である。検出器ジオメトリの設定では検出器を構成する元素を定義し、また形状とシミュレーション空間上の設置位置を定義する。CAD データの読み込みも可能であり、かなり複雑な検出器ジオメトリの再現も可能である。入射粒子とエネルギーは放射線と検出器における相互作用の決定に重要であり、放射線のエネルギーが単色ではなく連続スペクトルを持つ場合は注意して設定する必要がある。そしてユーザーは起こりうる相互作用も自ら定義する必要がある。したがって正確な検出器ジオメトリと詳細な入射粒子情報を定義しても、相互作用の情報に誤りがあった場合現実と異なったシミュレーション結果が得られる。相互作用の断面積データが存在しないエネルギー領域や粒子を用いた場合、現実を再現するシミュレーション結果は得られない。また Geant4 は飛跡やエネルギー付与などを計算しているが、どのようにデータスコアリングをするかはユーザーが決定する必要がある。Geant4 は C++ で記述されているため、複雑な解析も自由に Geant4 内部で計算させることが可能である。また近年 Geant4 に可視光のシミュレーションコードが実装され^{69, 70}、シンチレータなどの光学輸送過程が精度に直結する検出器の性能評価において Geant4 は非常に強力なツールとなった。Geant4 は乱数を用いたシミュレーションであり、シミュレーション体系によっては計算に非常に多くの時間が必要である。一般的にモンテカルロコードは並列計算に適しているといわれており、Geant4 も各粒子を独立に計算しているため並列化が可能である。近年では GPU (Graphics processing unit) を用いた Geant4 のシミュレーションコード開発が盛んに行われており、 10^{11} 個といった従来では考えられないほど多数の粒子を追跡するような計算が可能となっている⁷¹。

2-2 積層型テーパ状 PET 装置のシミュレーション体系

本研究では Geant4.9.5 を用いて図 3-4 に示す積層型テーパ状 PET 装置のジオメトリを作成しその性能評価を行った。積層型テーパ状 PET 装置のデザインの思想はデッドスペースを極力少なくすることであり、読み出し素子が干渉しない限界距離まで互いを近接させた。読み出し素子には 256ch のマルチアノード光電子増倍管 H9500(浜松ホトニクス(株))を再現した。光電子増倍管 H9500 は外寸が $52 \times 52 \text{ mm}^2$ 、受光面が $49 \times 49 \text{ mm}^2$ であり、ピクセルピッチは 3.04 mm である。この光電子増倍管を互いに干渉しないよう 45° 度間隔で 8 個設置した。検出素子は $2.5 \times 2.5 \times 7.5 \text{ mm}^3$ の GSO:Ce シンチレータを使用し、4 層積層することで 30 mm の長さの DOI 検出器となるように設計した。シンチレータはマルチアノード光電子増倍管の各グリッド中心に設置され、シンチレータ間は 0.27 mm のテフロン反射材によって区切られている。このとき $49 \times 49 \text{ mm}^2$ の受光面すべてにシンチレータを 4 層積層すると、隣接する光電子増倍管ユニットのシンチレータと干渉してしまう。したがって図 3-4 のようにシンチレータが互いに干渉する両端 3 個のシンチレータにおいて、端から 1 層、2 層、3 層の積層数にして積層型テーパ状 PET 装置をデザインした。このときデザインしたテーパ状の PET 装置の FOV は 75 mm であり、GSO:Ce シンチレータの数は 6656 個である。テーパ部分における寄与を調べるため、前述の積層型テーパ状 PET 装置のジオメトリにおいてテーパ部分のみを無くしたジオメトリも作成した。このとき使用した GSO:Ce シンチレータの数は 5120 個である。

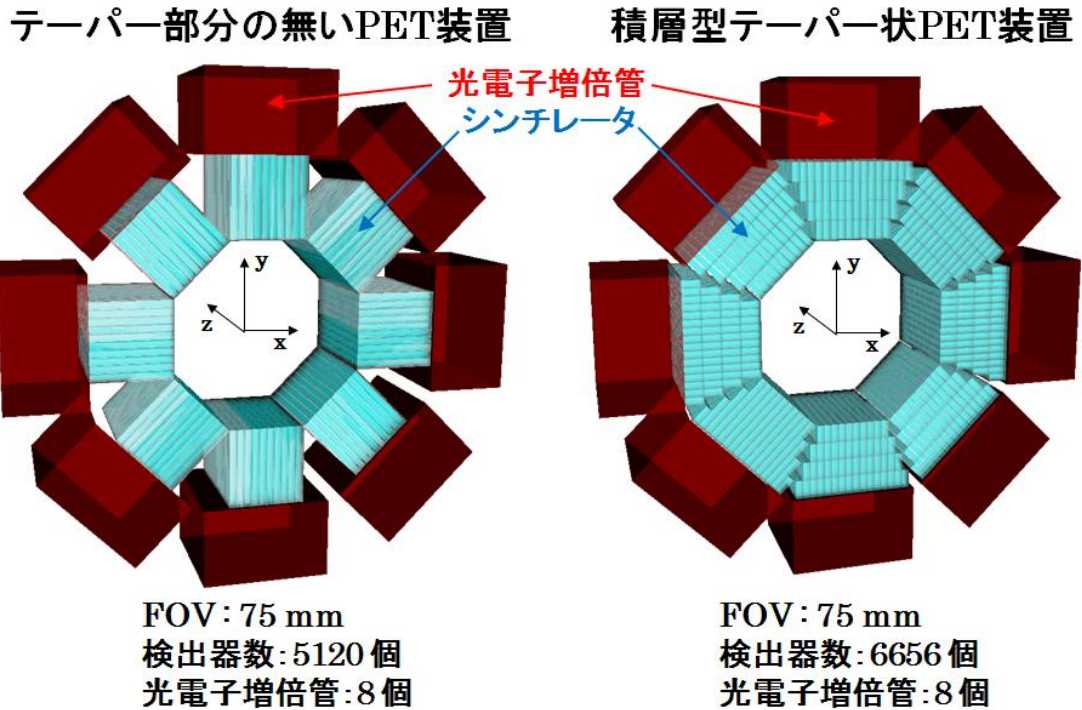


図 3-4 Geant4 によって作成したテーパ部分有り無しの PET 装置ジオメトリ。

2-3 積層型テーパ状 PET 装置の感度分布と検出効率

FOV 内の各画素における PET 装置の幾何学的な検出感度は各画素を通過する LOR の密度に依存する。したがって全検出器ペアにおいて、各画素を通過する LOR の長さを積算することで FOV 内の感度分布を解析することが可能である(図 3-5)。本研究では Siddon のアルゴリズムと呼ばれる方法を応用して LOR が通過する任意の面の座標を計算し、各画素の LOR 通過長を計算した⁷²。幾何学的な感度分布は画素サイズに依存して変化し、画素サイズが小さすぎる場合 LOR が全く通過しない画素が生じる可能性がある。したがって本研究では図 3-4 に示す積層型テーパ状 PET 装置が、小動物用 PET 装置に求められる画素サイズに対して十分な感度分布を得られるかどうか評価した。今回の検討では 0.2, 0.5, 1 mm の画素サイズにおける感度分布を解析した。また感度分布の均一性は式(3-1)によって数値化した。

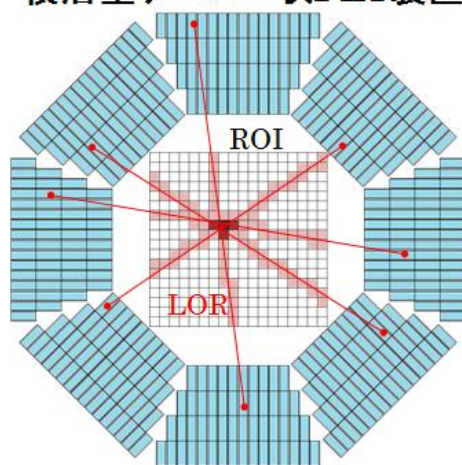
$$\text{均一性} = \frac{(\text{画素の最大値}) - (\text{画素の最小値})}{(\text{画素の平均値})} \quad (3-1)$$

LOR の通過長の解析では絶対的な検出効率は得られないので、Geant4 を用いて図 3-4 に示す積層型テーパ状 PET 装置における 511 keV ガンマ線に対する検出効率を計算した。線源は大きさの無い点線源を利用し、点線源を FOV 中心から辺縁部に向けて 0, 5, 10, 15, 20, 25, 30 mm と移動させ各点における検出効率を解析し

た。シミュレーションではエネルギーは 1 eV の陽電子を各点で 10^6 個発生させ計算を行った。実際には陽電子はそれぞれの放出核種に依存したエネルギーを持っており、それらのエネルギーを落とすまで走行してから対消滅を起こす。したがってそれらのエネルギーに依存した走行距離は対消滅点にバラつきを与え、これが空間分解能の限界精度を決定している。しかし本研究では各点における検出効率を調べるのが目的なので、上記のような低いエネルギーの陽電子を発生させた。また DOI-PET 装置のような検出器アレイでは、同一の読み出しにおける DOI 検出器において、一つのガンマ線が二つ以上の検出素子で相互作用を起こす現象が生じる。この現象は画質を低下させる除外されるべきイベントなので、今回の検出効率の評価ではこのイベントは除外した。また検出素子における詳細な相互作用点を解析し、積層型テーパ状 PET 装置においてどの位置の検出素子が多くの 511 keV ガンマ線を検出したか調べた。

これらの LOR 解析による FOV 内感度分布の計算と検出効率の計算は、図 3-4 に示すテーパ部分が無い PET 装置においても同様の計算を行い比較した。

積層型テーパ状PET装置



全ての検出器ペアの組み合わせでLORを解析し、LORが通過した画素に通過長を積算することで解析的な感度分布が取得可能。

図 3-5 LOR 解析によって取得できる感度分布の解析方法。

2-4 積層型テーパ状 PET 装置の空間分解能

小動物用 PET 装置では FOV 辺縁部における空間分解能の低下を防ぐため、画像再構成に DOI 情報が用いられている。PQD 法を用いて DOI 情報を取得した場合、GSO:Ce (0.5 mol% 上部下部、1.5 mol% 上部下部) シンチレータによって 4 層までの積層が可能である。本研究では図 3-4 に示した 4 層積層のテーパ状 PET 装置において、FOV 中心から 0, 5, 10, 15, 20, 25, 30 mm 離れた点における空間分解能を評価した。点線源は検出効率を計算したときと同様に 1 eV のエネルギーの陽電子を使用し、各点同時にシミュレーションを行った。この計算では 5×10^8 個の陽電子を発生させ、各点でそれぞれ約 7.1×10^7 個の対消滅ガンマ線が発生している。画像再構成アルゴリズムには OSEM (Order-subset expectation maximization) 法を使用しそれぞれ隣接した光電子増倍管におけるシンチレータ以外のペアで 20 subset 作成し、反復回数 (iteration) は 2 回で画像再構成を行った。再構成画像における各点線源に対してガウス関数を用いたフィッティング解析を行い、FWHM (Full width at half maximum) を取得し空間分解能として定義した。

上記の空間分解能の評価は、図 3-4 に示すテーパ部分が無い PET 装置においても同様の計算を行い、テーパ部分の有無による性能の比較を行った。

3. 結果

3-1 積層型テーパー状 PET 装置の感度分布と検出効率

図 3-6 (a-f) に Siddon のアルゴリズムを用いて各ボクセル内での積算 LOR 長を算出して解析した、積層型テーパー状 PET 装置における FOV 内の感度分布を示す。図 3-6 (a,b) に示す結果は 1mm の画素サイズであり、FOV 中心における図 3-4 で示す座標系の XY 平面と YZ 平面の感度分布を示している。図 3-6 (b) から YZ 平面における 1 mm の画素サイズの場合、感度分布の一様性が高いことが示されている。図 3-6 (c,d)、(e, f) はそれぞれ画素サイズが 0.5 mm と 0.2 mm における感度分布を示しており、画素サイズが小さくなるに伴い感度分布のバラつきが増大している。そのバラつきの増大は、図 3-6 (a-f) の $x=0$ と $z=0$ の座標におけるヒストグラムを示す図 3-7 (a-f) でより顕著に示されている。図 3-8 (a-f) はテーパー部分が無い PET 装置における感度分布を解析した結果を示し、積層型テーパー状 PET 装置と同様に画素サイズに依存して感度分布が変化している。

式 (3-1) によって均一性を解析した結果、積層型テーパー状 PET 装置における画素サイズ 0.2, 0.5, 1.0mm でそれぞれ 5.06, 0.87, 0.38 という数値が得られた。テーパー部分が無い PET 装置の場合、画素サイズ 0.2, 0.5, 1.0 mm でそれぞれ 6.45, 1.21, 0.74 という結果が得られた。式 (3-1) は数値が 0 に近いほど高い均一性を示し、テーパー部分の有無にかかわらず画素サイズが小さくなるに伴い感度分布の一様性は低下した。また積層型テーパー状 PET 装置の方がテーパー部分の無い PET 装置に比べて、画素サイズ 0.2, 0.5, 1.0 mm でそれぞれ 1.27, 1.39, 1.95 倍均一性が高いことが示された。

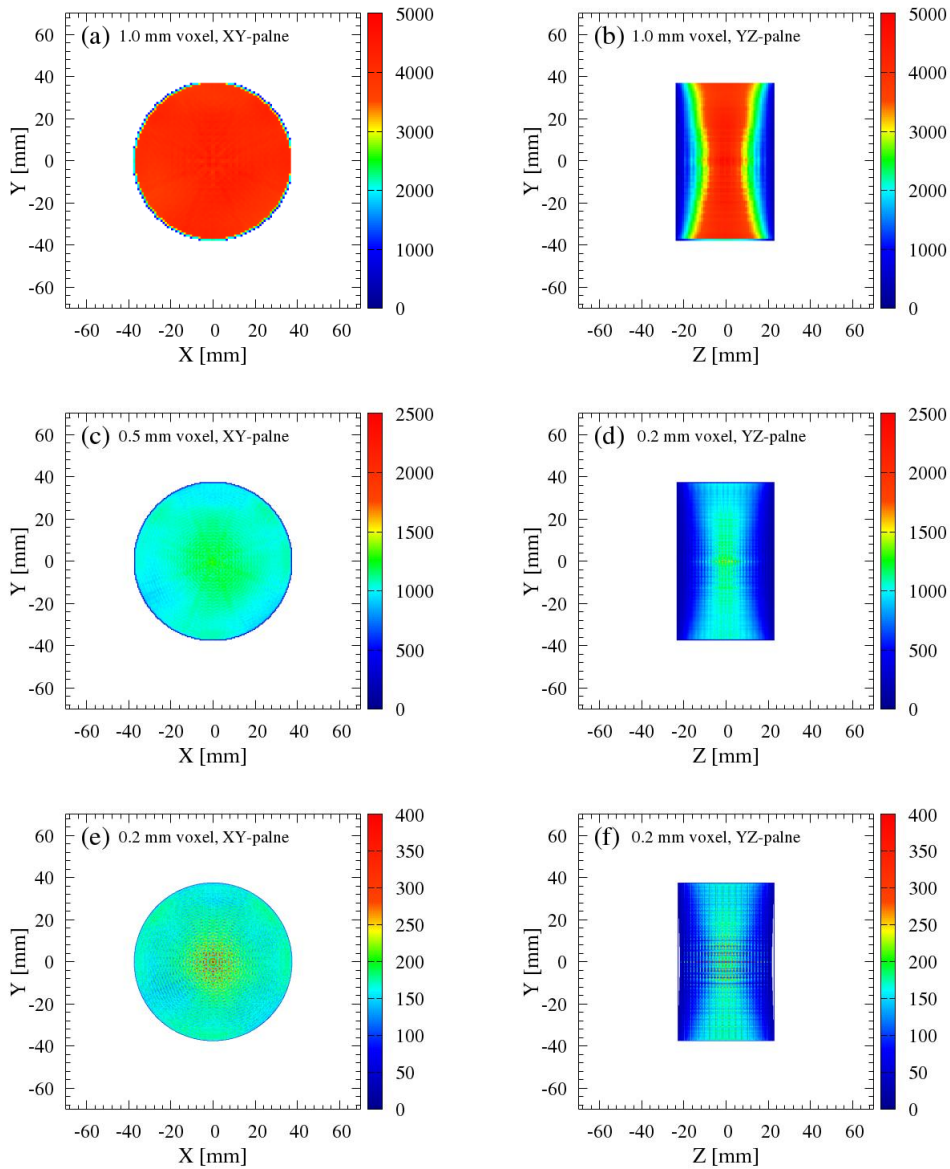


図 3-6 Siddon のアルゴリズムによって解析された積層型テーパ状 PET 装置の FOV 内の感度分布。それぞれ画素サイズ 1 mm における(a) XY 平面と(b) YZ 平面、0.5 mm における(c) XY 平面と(d) YZ 平面、0.2 mm における(e) XY 平面と(f) YZ 平面を示す。

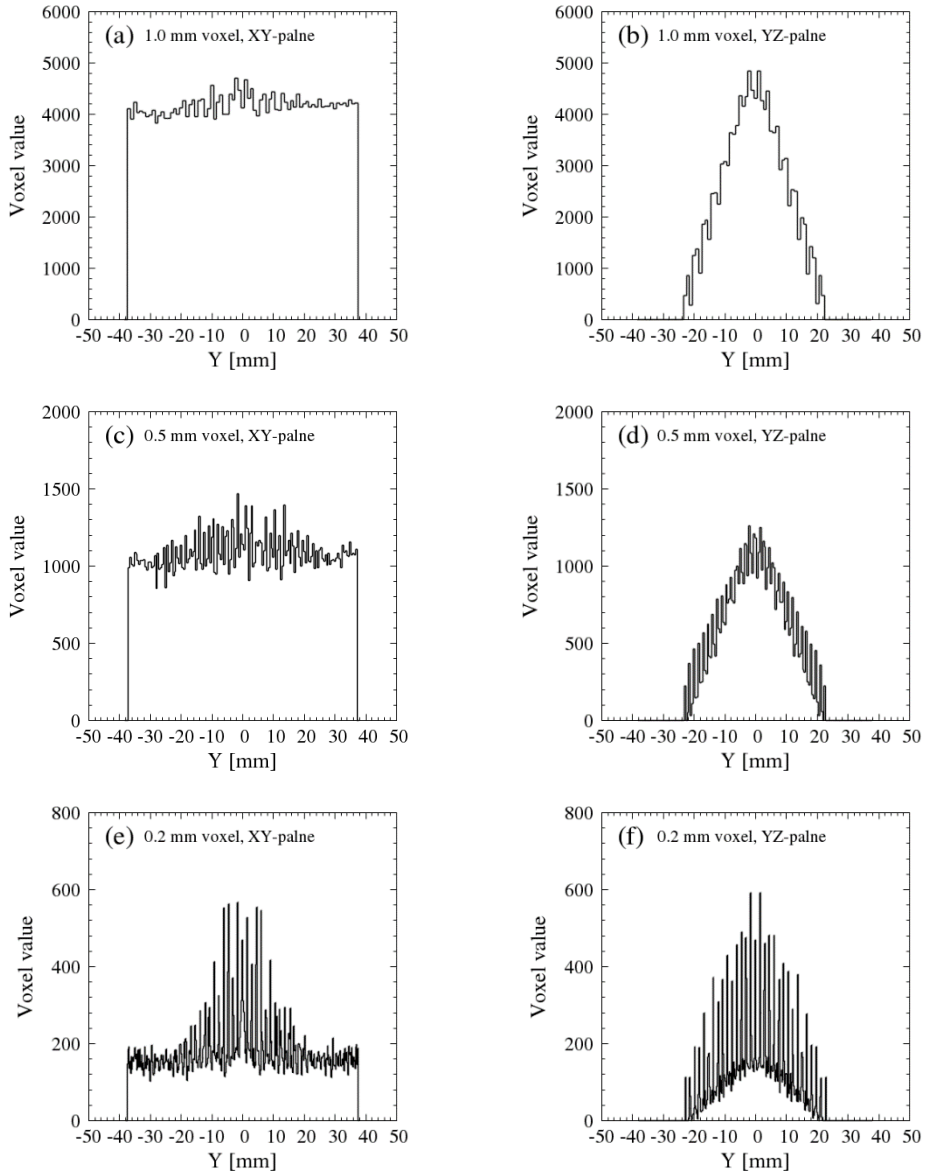


図 3-7 図 3-6 (a-f) における積層型テーパ状 PET 装置の感度分布における中心成分のヒストグラム。

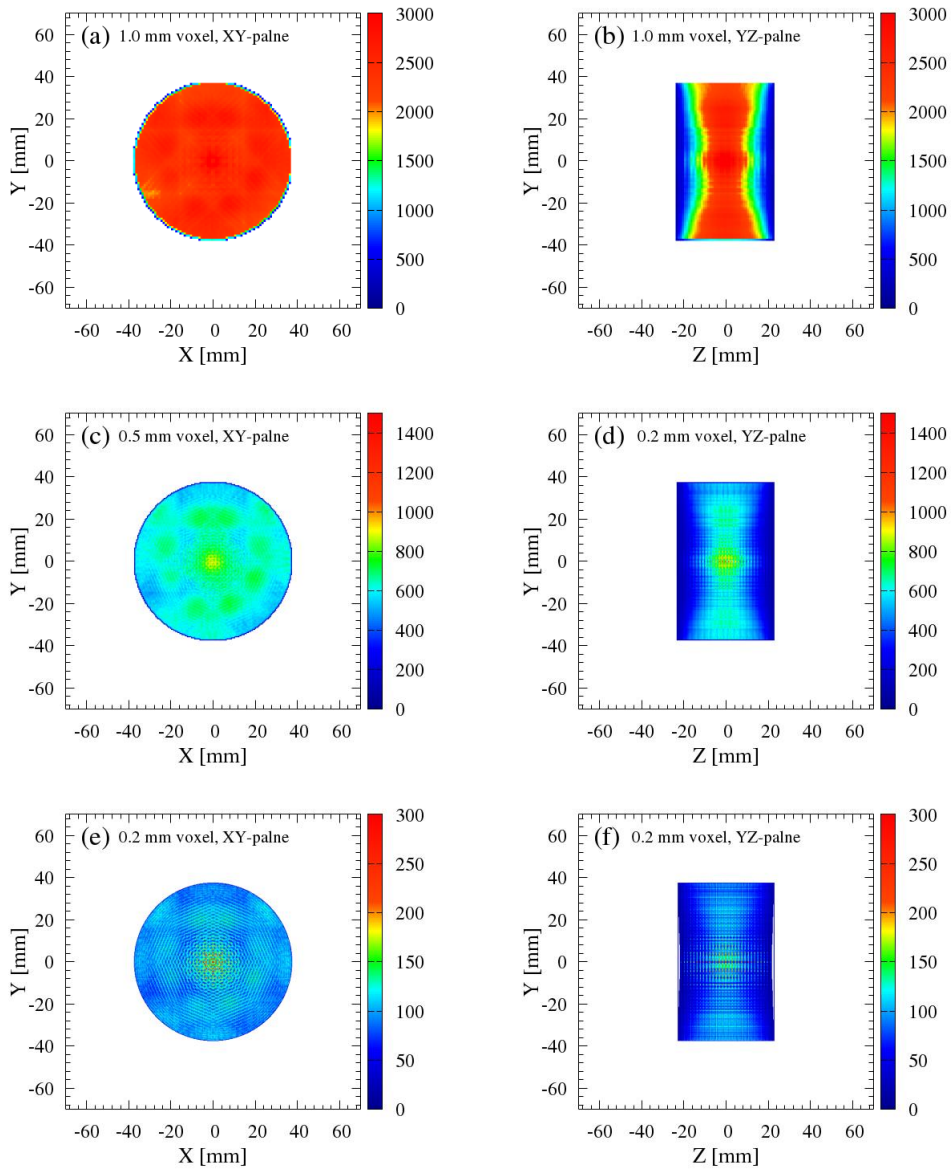


図 3-8 Siddon のアルゴリズムによって解析したテーパ部分の無い PET 装置の FOV 内の感度分布。それぞれ画素サイズ 1 mm における(a) XY 平面と(b) YZ 平面、0.5 mm における(c) XY 平面と(d) YZ 平面、0.2 mm における(e) XY 平面と(f) YZ 平面を示す。

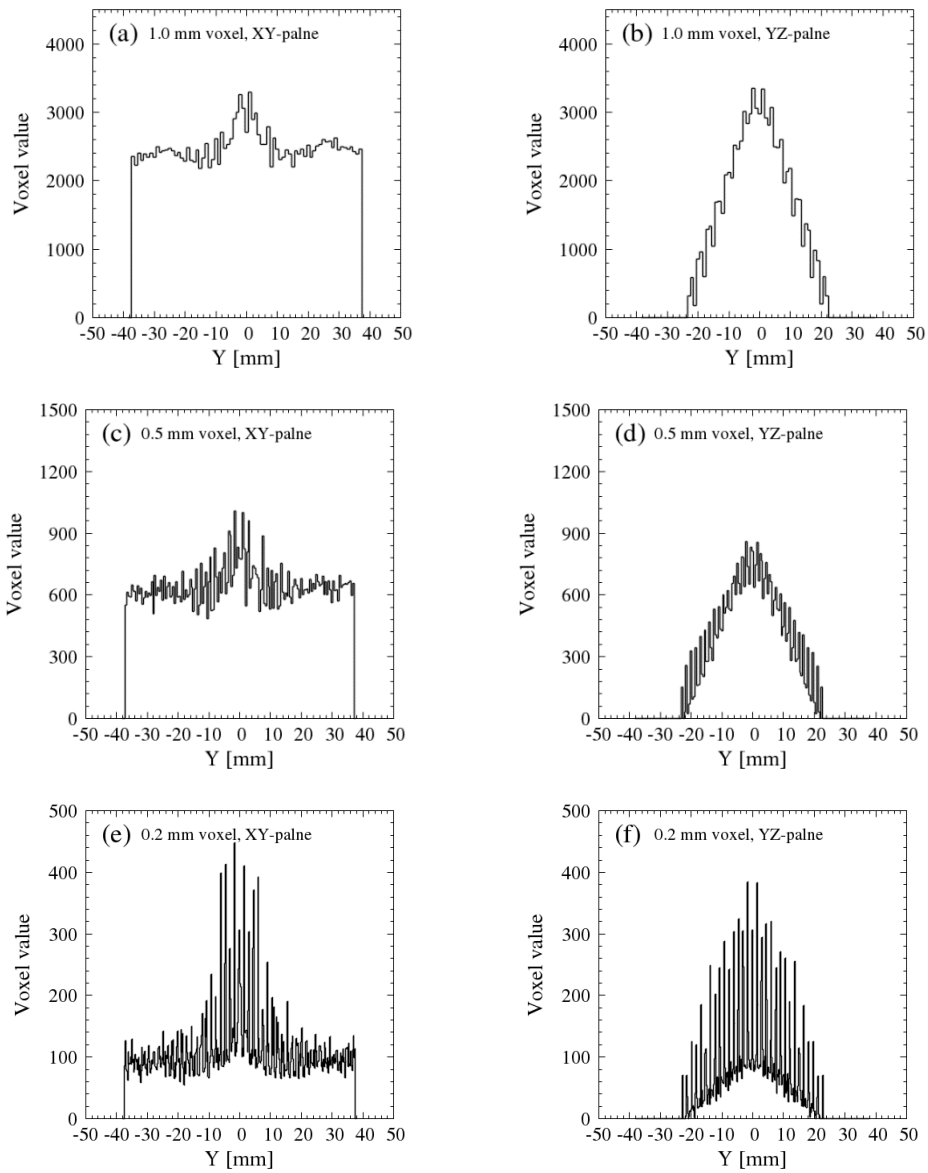


図 3-9 図 3-8 (a-f) におけるテーパ部分の無い PET 装置の感度分布における中心成分のヒストグラム。

積層型テーパー状 PET 装置とテーパー部分の無い PET 装置における、FOV 中心から 0, 15, 30 mm 離れた位置に点線源が存在する場合の 511 keV ガンマ線同時計数分布を図 3-10 (a-f) に示す。この時図 3-10 (a-f) z 軸の値は発生粒子数である 10^6 個で規格化している。積層型テーパー状 PET 装置において、線源が FOV 中心にある図 3-10 (a)では各検出器が等方的に対消滅ガンマ線を検出していることが確認できる。しかし図 3-10 (c, e)のように点線源が辺縁部へと移動すると検出位置に偏りが生じていることが示されている。図 3-10 (b, d, f) ではテーパー部分の無い PET 装置における、各位置に点線源を設置した場合の対消滅ガンマ線同時計数分布を示す。図 3-10 (b, d, f) から、テーパー部分が無い場合デッドスペースと対向する位置のシンチレータは、対消滅ガンマ線の検出に寄与できていないことが示され、その傾向は FOV 中心と辺縁部での間に線源がある場合に顕著である。

FOV 中心から 0, 5, 10, 15, 20, 25, 30 mm 離れた位置に点線源を設置した場合における検出効率を、Geant4 によって計算した結果を図 3-11 (a) に示す。このとき対消滅ガンマ線が同時計数された 2 つのシンチレータにおいて、両者とも 511 keV のエネルギーを検出したイベントのみの検出効率を示している。テーパー部分が有る場合、各点の平均で約 8.01% の絶対検出効率を達成しているが、テーパー部分がない場合は平均約 5.85% であった。また図 3-11 (b) に示す各点における検出効率を FOV 中心における検出効率で規格化した結果から、テーパー部分の有る方が FOV 内の検出効率の均一性が高いことが示された。これは Siddon のアルゴリズムを用いた感度分布解析の結果と一貫性がある結果となっている。テーパー部分の有無による各点での検出効率の比を図 3-12 に示す。テーパーが有る場合は無い場合に比べ FOV 中心と辺縁部でそれぞれ約 1.26 倍と約 1.33 倍の検出効率の増加を示した。最大の増加率を示したのは FOV 中心から 15 mm 離れた位置に点線源が存在する場合であり、約 1.51 倍の増加率を示した。また今回計算を行った 7 点におけるテーパー部分の存在による検出効率の平均増加率は 1.39 倍であり、先行研究の 41% の検出効率の増加と比べて非常に近い値が得られた⁵⁴⁻⁵⁷。

以上の結果より PQD 法による 4 層 DOI 検出器の技術を応用した積層型テーパー状 PET 装置は、FOV 内感度分布の均一性を向上させ、また検出効率を約 40% 増加させることが可能であることを示した。

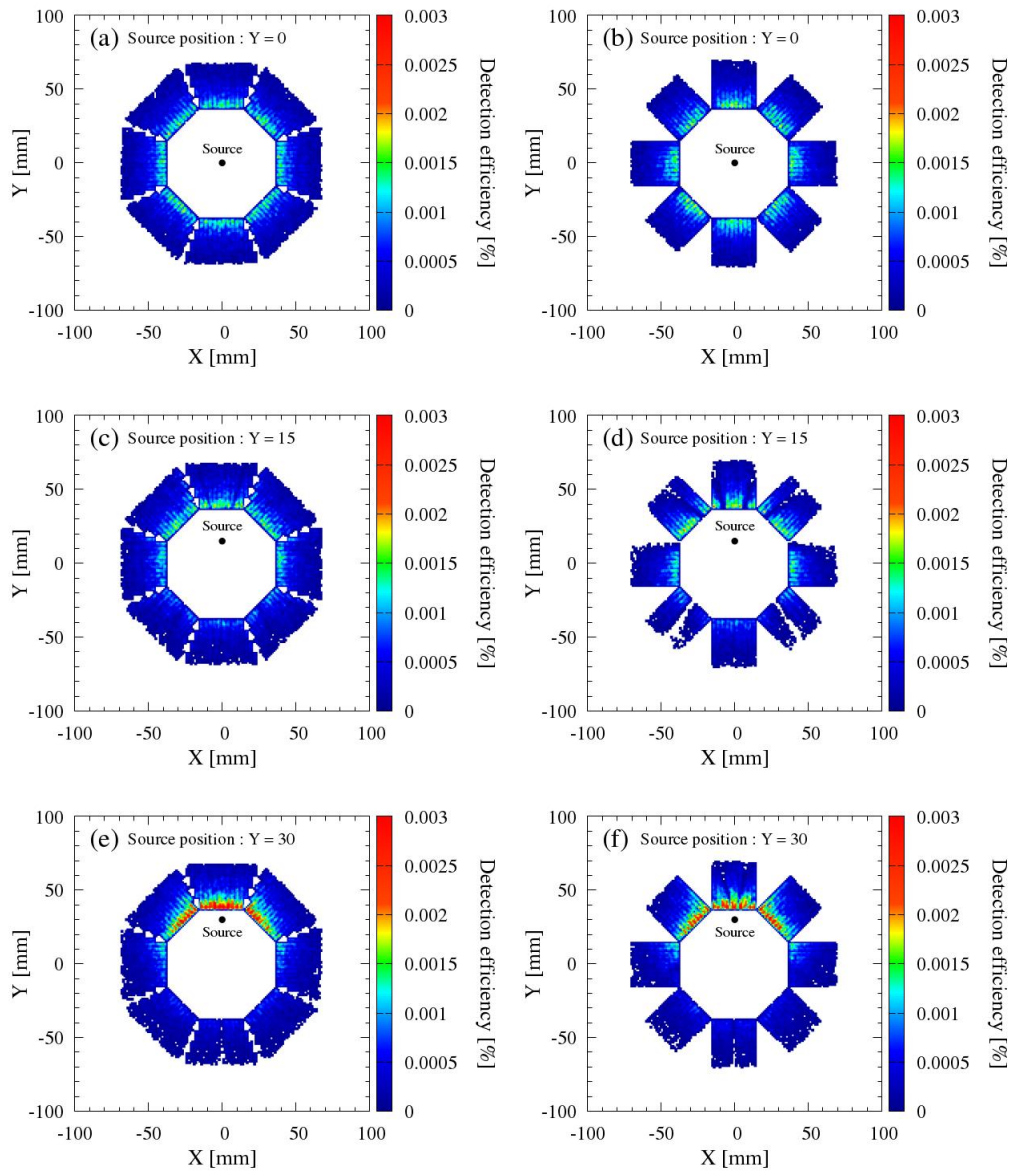


図 3-10 点線源が FOV 中心から 0, 15, 30 mm 離れた位置に存在する時の、積層型テーパ状 PET 装置とテーパ部分が無い PET 装置における対消滅ガンマ線同時計数分布。

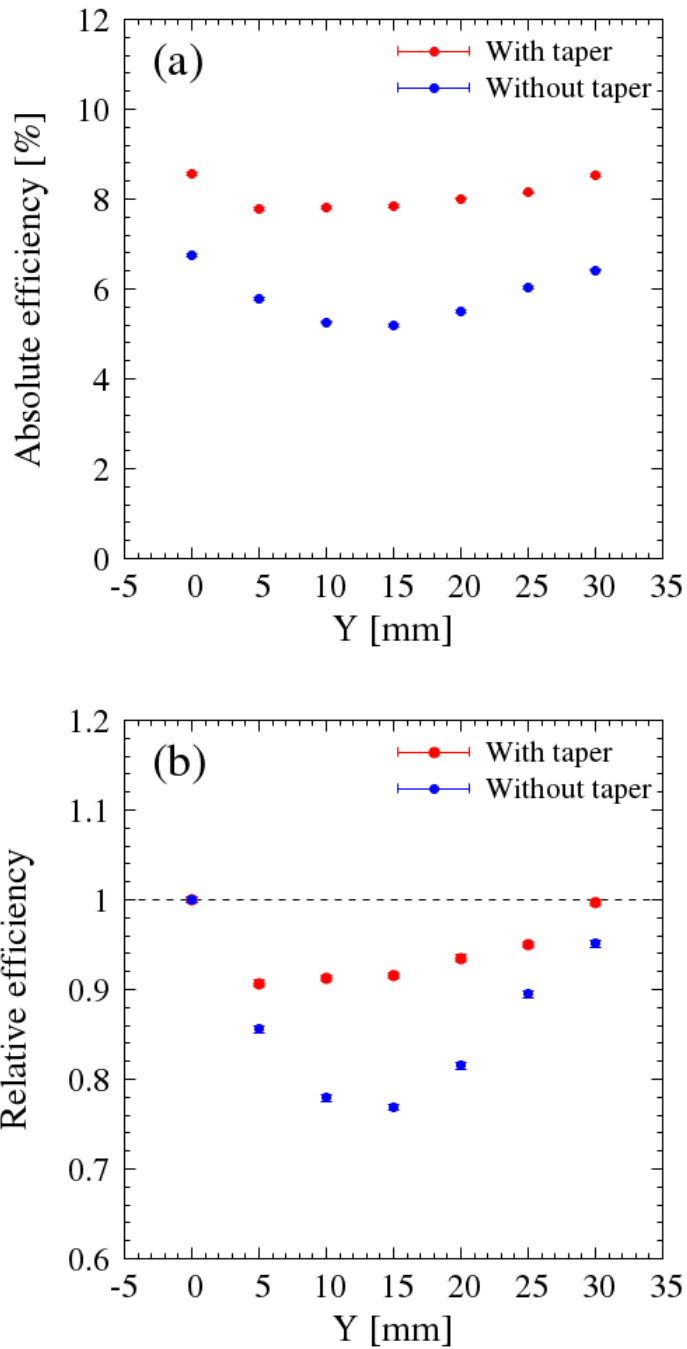


図 3-11 積層型テーパ状 PET 装置とテーパ部分の無い PET 装置における、FOV 中心から 0, 5, 10, 15, 20, 25, 30 mm の位置に点線源を設置した場合の(a)絶対値と(b)相対値の 511keV 対消滅ガンマ線の検出効率。

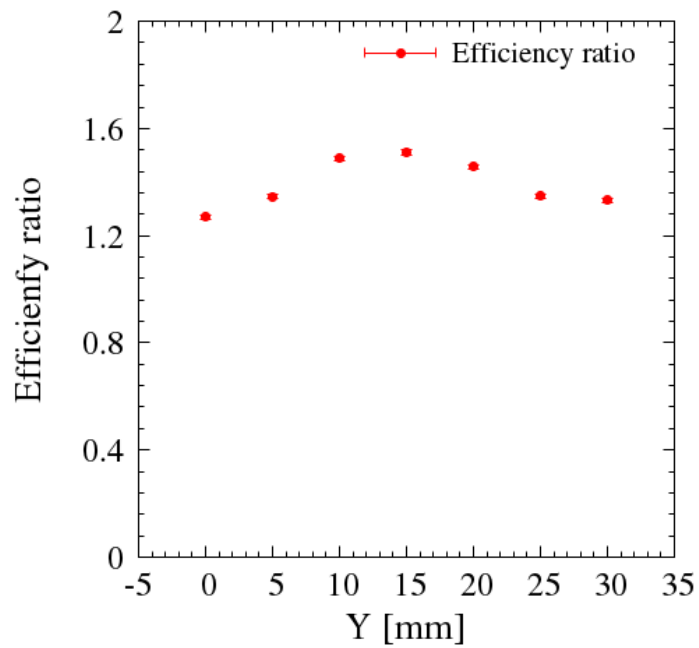


図 3-12 積層型テーパ状 PET 装置とテーパ部分の無い PET 装置における、FOV 中心から 0, 5, 10, 15, 20, 25, 30 mm の位置に点線源を設置した場合の 511keV 対消滅ガンマ線検出効率の比。

3-2 積層型テーパ状 PET 装置の空間分解能

本研究でデザインした4層積層型テーパ状 PET 装置における OSEM 法による再構成画像を図 3-13 (a, c) に示す。図 3-13 (a, c) から7つの点線源がそれぞれ離散的に分布し、互いに識別できていることが分る。図 3-14 (a, c) における $x=0$ の座標における画素値のヒストグラムを図 3-13 (b, d) に示す。FOV 中心と辺縁部を比較するとノイズの大きさが顕著に異なることが示され、画素値のバラつきは FOV 中心が最も小さいという結果が得られた。またその画素値のばらつきはテーパ部分の有り無しにかかわらず両者の再構成画像で同様に観測された。

図 3-13 (b, d) に示す7つの点線源の再構成画像ヒストグラムに対して、ガウス分布を用いたフィッティング解析から得られた空間分解能を図 3-14 に示す。このとき図 3-14 に示す空間分解能はフィッティング解析によって得られたガウス分布の FWHM を用いている。また図 3-14 における誤差棒はフィッティング誤差を示しており、図 3-13 (b, d) で示したように再構成画像における FOV 中心以外の画素値のバラつきが大きいため、FOV 中心のみ誤差が小さくなっている。FOV 中心における空間分解能はテーパ部分の有無でそれぞれ 1.02 mm と 1.01 mm であり、検出器サイズの約 0.4 倍の空間分解能を達成した。図 3-15 ではすべての点線源の位置においてテーパ部分の有無による空間分解能は、互いに誤差の範囲内であるという結果が得られた。また図 3-14 では FOV 中心から辺縁部に向かうにつれて空間分解能が低下する傾向を示し、FOV 中心から 30 mm 離れた点ではテーパの有無でそれぞれ 2.09 mm と 1.74 mm まで低下した。

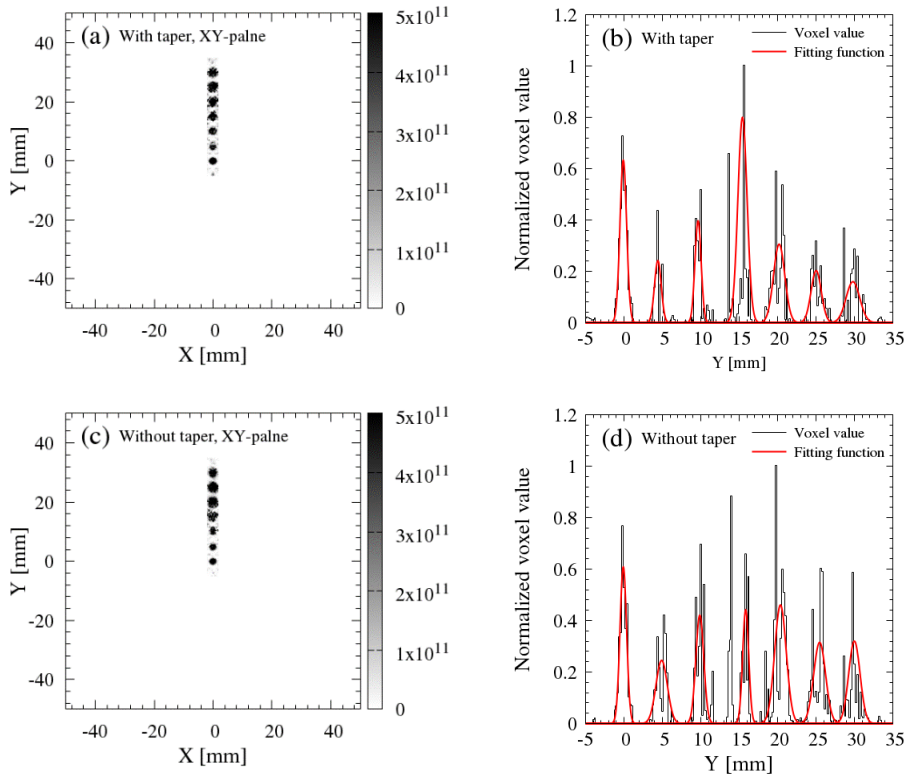


図 3-13 (a, b) 積層型テーパ状 PET 装置と(c, d) テーパー部分の無い PET 装置における再構成画像と、空間分解能評価のための画像中心の画素ヒストグラム。

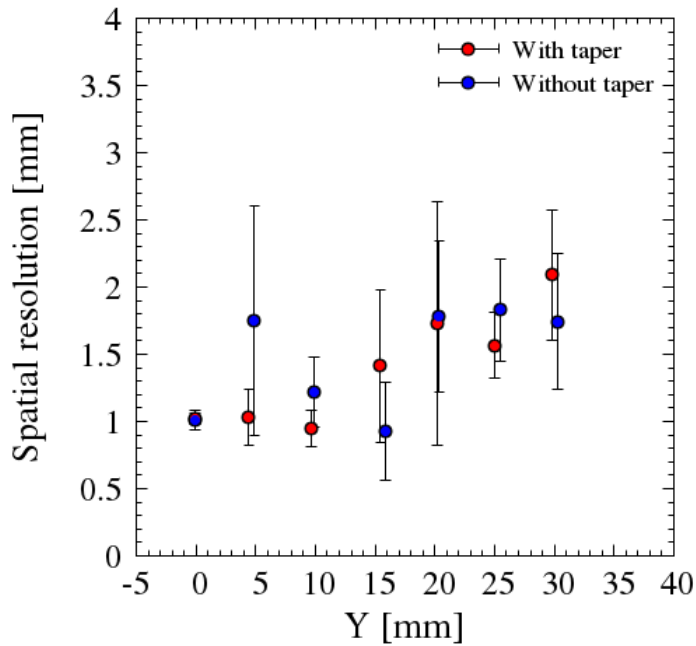


図 3-14 空間分解能評価結果。

4. 考察

4-1 再構成画像における感度分布の不均一性の影響

図 3-6(a-f) と図 3-8(a-f) から、画素サイズによって FOV 内の感度分布のバラつきが著しく変化していることが示された。しかし本来感度分布はなめらかに分布すべきであると考えられる。このような現象が起きた原因は LOR の計算方法に問題があると考えられる。LOR は 511keV ガンマ線を同時検出した検出器ペアの中心を結んでいるため、検出器サイズに起因する誤差が生じてしまう。その結果 LOR を用いて小さい画素サイズにおける通過長を計算すると、その値にバラつきが生じてしまう。DOI 検出器によってそれらは多少軽減されているが、本研究の結果から 0.2, 0.5 mm の画素サイズでは十分ではないことが示された。

LOR を用いて解析した感度分布は OSEM 法における画像再構成に用いられている。OSEM 法では感度分布で除算する解析が含まれているため、感度分布が極端に小さく計算されている画素は再構成後に大きな数値を持つことになり、逆の場合は小さな値で再構成される。前述したように 0.2, 0.5 mm の画素サイズでは十分に現実の感度分布を再現していないため、感度分布における画素間のバラつきが大きく表現されている。したがって図 3-13 (a, c) に示した 4 層の DOI 情報を与えた再構成画像の画素値ヒストグラムでは、感度分布の高い不均一性が原因でバラつきが大きくなったと考えられる。そしてそれらが原因でフィッティング解析の精度が低下し、図 3-14 に示した空間分解能の誤差が大きくなっていると考えられる。これらの問題を解決するには適切な感度分布を取得する必要があるが、検出器のボリュームを考慮した VOR (Volume of response) を用いた解析は調べた限り未だ確立されていない。したがって VOR 解析の方法を開発するか、モンテカルロシミュレーションや実測による感度分布測定によって、正確な感度分布の取得を行う必要があると考えられる。また、検出器サイズを小さくし検出器サイズに起因する誤差の影響を小さくすることで精度の良い感度分布を取得する方法が考えられる。この方法は先行研究で多く用いられており、検出器サイズを小さくすることで同様のジオメトリにおける検出器数の増加も見込める^{54-57,63}。しかし検出器数の増加は製作コストの増加に直結する。したがって解析的な感度分布の取得と検出器サイズの小型化の両方向から研究開発を行うべきであると考えられる。

4-2 テーパー状デザインにおける検出効率の増加

図 3-11 (a) で示したように、PET 装置にテーパー状のデザインを利用することで FOV 内における全領域で検出効率が向上した。テーパー部分の追加によって検出器数は 1.3 倍となったので、この比率以内の検出効率の向上は当然の結果であると考えられる。しかし図 3-12 では FOV 中心と辺縁部の中間領域において最大約 1.51 倍の検出効率の向上を示した。これは図 3-10 (c, d) に示す FOV 中心から 15 mm 離れた距離に点線源を設置した場合の結果で示されたように、テーパー部分以外にもデッドスペースに対向する領域のシンチレータが使用されていないことに原因があると考えられる。したがって PET 装置にテーパー部分を追加することによって、デッドスペースに対向する領域のシンチレータに感度が与えられ、単純な検出器数の増加率よりも高い検出効率の増加率が得られたと考えられる。また同様の理由で、FOV 中心と辺縁部に線源がある場合では、図 3-10 (a, b, e, f) に示すようにデッドスペースに対向するシンチレータはもともと検出に使用していないため、それぞれ 1.27 倍と 1.33 倍という検出器数の増加率に近い検出効率の増加率を示したと考えられる。

4-3 辺縁部における空間分解能の低下

図 3-14 で示すように本研究では 4 層 DOI 検出器を用いているにも関わらず、辺縁部における空間分解能の劣化が生じている。したがって本研究で使用している 4 層 DOI の分解能はまだ十分ではない可能性がある。先行研究では FOV 60 mm、検出器サイズ $0.5 \times 0.5 \times 20 \text{ mm}^2$ のシンチレータを 3920 個使用したテーパー状 PET 装置をデザインし、20 mm の長さの検出器において DOI 分解能を 1, 2, 5, 10 mm と変化させた場合の空間分解能をシミュレーションによって評価している⁵⁵。その結果本研究と同様に、全ての DOI 分解能において FOV 中心から辺縁部に向かうにつれて空間分解能が低下したと報告されている。しかし DOI 分解能を向上させることで辺縁部の空間分解能の低下は小さくなることも確認され、先行研究ではできる限り高い DOI 分解能が推奨されている⁵⁴⁻⁵⁷。本研究でデザインした積層型テーパー状 PET 装置では、より高い DOI 分解能を達成するためにはシンチレータの積層数を増加させる必要がある。しかし本研究で検討したシンチレータでは 4 層が限界であった。一方テーパー部分の影響によって Light-sharing 法による DOI 情報の取得は困難だが、テーパー部分以外では Light-sharing 法と PQD 法は併用して使用することが可能である。それぞれ 4 層×4 層で最大 16 層まで積層可能であるため、テーパー部分以外において積層数を増加させることは可能であると考えられ

る。

図 3-10 (a-f) より、PET 装置の検出器において最も相互作用が起きている位置は FOV 中心の方向における検出器の先端であることが示された。PQD 法などを用いた積層型 DOI 検出器は Dual-ended readout 法と異なり、DOI 分解能を検出器のサイズで決定することが可能である。したがって積層する各シンチレータのサイズを変化させ、多くのイベントを検出する検出器先端に小さいシンチレータを設置することで、より高い空間分解能を得られる可能性がある。

4-4 今後の展望

本研究でデザインした積層型テーパ状 PET 装置は、先行研究に比べ検出器の数が少ないため十分な性能を発揮できていない可能性がある^{54,57}。本研究では実測によって十分な性能が証明された 4 層 DOI 検出器のデザインを基準としたため、光電子増倍管を読み出し装置に使用した設計思想となりシンチレータサイズに制限が与えられた。したがって読み出し部分に Si-PM などを用いることでより小さいシンチレータの選定が可能となり、空間分解能の向上が見込める。しかし Si-PM を用いた場合、信号パルス波形は光電子増倍管と異なる可能性が高い^{6,65}。したがって Si-PM を用いた PQD 法による 4 層 DOI 検出器の性能を実験で示す必要がある。

シンチレータが小型化されればテーパ部分の精度が向上しデッドスペースをより小さくすることでさらなる検出効率の向上が期待できる。今後はシンチレータの小型化を視野にいたしたシミュレーションと実測による検討を行う。また DOI 検出器内部における検出器サイズを変化させ、検出イベント数の多い場所に小さいシンチレータを設置するデザインの検討も行う。これらの研究から、高い空間分解能を実現する積層型テーパ状 PET 装置の実現を目指したい。

本研究では点線源のみを用いた検討を行ったが、今後は実際のファントムやマウスなどを想定した検討が必要である。これらの検討によって十分な精度を達成するために要求される投与線量と測定時間の見積もりが可能であり、テーパ部分による検出効率増加の有用性が示されると考えられる。

本研究室ではシンチレータに装着した光電子増倍管の出力信号波形を正確に再現する研究を開発している⁷³。その方法を用いることで積層型テーパ状 PET 装置のシミュレーションに PQD 法を実装することが可能である。しかしこのシミュレーションは可視光シミュレーションを必要としており、GSO:Ce シンチレータの場合一つの 511 keV ガンマ線に対して平均約 4600 個のシンチレーション光が発生する。したがって今回の検討と同様に 5×10^8 個の粒子を発生させた場合、積層型

テーパー状 PET 装置の絶対検出効率を約 8% とすると約 1.84×10^{11} 個の粒子を追跡する必要がある。この発生粒子数は、近年モンテカルロシミュレーションの高速化に利用されている GPU (Graphics processing unit) を用いた場合実現可能な数値である⁷¹。積層型テーパー状 PET 装置のシミュレーションに PDQ 法を実装することで、より現実に近い検討が可能となる。

5. 小括

本研究では報告されている既存の方法ではデザインが困難であった積層型テーパー状 PET 装置の実現可能性をシミュレーションによって検討した。シミュレーションの結果、テーパー部分が存在する状態ではテーパー部分が無い場合と比べて FOV 内で平均約 1.39 倍の検出効率の増加を示し、また感度分布の均一性の向上が示された。空間分解能はテーパー部分の有無によらずほぼ同様の精度を示し、FOV 中心で約 1mm という結果が得られた。この空間分解能は使用するシンチレータを小さくすることでさらなる向上が期待される。これらの結果から、エネルギー分解能の低下が小さく同形のシンチレータを用いることが可能なテーパー状の PET 装置は、PQD 法による 4 層 DOI 検出器の技術を応用することで実現可能であると考えられる。

総括および結論

- ・ $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータにおけるアルファ線とガンマ線の弁別方法の研究開発を行い、新しいパルス波形弁別法である PQD (peak-to-charge discrimination) 法を開発した。

- ・ PQD 法はシンチレータの発光減衰時定数を敏感に検出できることから、 $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ シンチレータのみならず、PET (Positron emission tomography) 装置などで利用されている DOI (Depth-of-interaction) 検出器に応用可能である。

- ・ GSO:Ce シンチレータを用いた PQD 法による 4 層 DOI 検出器は、実測において DOI 情報の誤検知率が 3% 以下という十分な性能を示し、積層状態において約 10~11% の高いエネルギー分解能を達成した。

- ・ PQD 法は先行研究である Light-sharing 法と併用可能であり、理論的には 4 層×4 層の最大 16 段の DOI 検出器が実現可能である。

- ・ PQD 法による 4 層 DOI 検出器を用いることで、高い検出効率を実現する積層型テーパー状 PET 装置がデザイン可能である。

- ・ シミュレーションによって積層型テーパー状 PET 装置の性能評価をおこなった結果、従来型のテーパー部分の無い PET 装置に比べ空間分解能を損なわずに約 1.39 倍の検出効率の増加を示した。

- ・ 本研究で検討した積層型テーパー型 PET 装置は、読み出し素子の問題から検出器数が不足していた可能性が高いので、今後は読み出し素子に Si-PM (Silicon photomultiplier) を用いて検出器の数を増加させたデザインの検討を行っていく。

- ・ 本研究で検討した積層型テーパー型 PET 装置において再構成画像の画素サイズを 0.2 mm に設定した場合、LOR (Line of response) 解析で得られた感度分布の精度が不十分であった可能性が高いので、今後は VOR (Volume of response) 解析の手法を研究し画質の向上を行っていく。

- ・ 本研究は開発したパルス波形解析技術の広い応用性に注目し、今まで報告に無い新しい技術の開発や、新しい測定機器の実現可能性を示した。

謝辞

本論文における研究以外にも多くの研究の機会を与えてくださった、北海道大学大学院保健科学研究院医用生体理工学分野 石川正純 教授には、常日頃から多くの時間を割いていただき、熱心な研究指導をしていただいたことを心より感謝いたします。石川正純 教授のご指導のお蔭で、博士課程の4年間非常に充実した研究生活を送ることができ、自分の研究能力も大きく向上できたと実感しております。

英文投稿論執筆にあたり、北海道大学病院 Kenneth Lee Sutherland 研究員と北海道大学大学院保健科学研究院医用生体理工学分野 Joshi Suvekchya 学術研究員には英文校閲をはじめとして様々なご協力をいただきました。ここに感謝の意を表します。

量子科学技術研究開発機構、放射線医科学研究所、計測・線量評価部の吉井裕 研究員には、実験で使用した GSO:Ce シンチレータにおける Ce 添加濃度比の測定に多くの時間を割いていただき、非常に正確なデータを提供していただいたことを心より感謝いたします。

本研究における根幹の基礎技術開発において非常に重要な要素となった LaBr₃:Ce シンチレータを用いた実験において、長期間 LaBr₃:Ce シンチレータをお貸しいただいた Saint-Gobain 社にここで感謝の意を表します。

本研究における実験場を提供していただいた北海道大学アイソトープ総合センターと、北海道大学大学院保健科学研究院にここで感謝の意を表します。

また博士課程の4年間様々な面で支えていただいた家族に、この場をお借りして心より御礼申し上げます。

最後に、ご協力いただきましたすべての皆様に深く感謝いたします。

引用文献

1. Nicolini, R., Camera, F., Blasi, N., Brambilla, S., Bassini, R., Boiano, C., Bracco, A., Crespi, F. C. L., Wieland, O., Benzoni, G., Leoni, S., Million, B., Montanari, D. & Zalite, A. Investigation of the properties of a 1" × 1" LaBr₃:Ce scintillator. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 582, 554-561 (2007).
2. Loef, E. V. D., Dorenbos, P., Eijk, C. W. E., Krämer, K. & Güdel, H. U. High-energy-resolution scintillator: Ce 3+ activated LaBr₃. *J. Appl. Phys.* 79, 1573-1575 (2001).
3. Moszynski, M., Gierlik, M., Kapusta, M., Nassalski, A., Szczesniak, T., Fontaine, C. & Lavoute, P. New Photonis XP20D0 photomultiplier for fast timing in nuclear medicine. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 567, 31-35 (2006).
4. Moszynski, M., Nassalski, A., Syntfeld-Kazuch, A., Szczesniak, T., Czarnacki, W., Wolski, D., Pausch, G. & Stein, J. Temperature dependences of LaBr₃(Ce), LaCl₃(Ce) and NaI(Tl) scintillators. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 568, 739-751 (2006).
5. Foord, R., Jones, R., Oliver, C. J. & Pike, E. R. The use of photomultiplier tubes for photon counting. *Appl. Opt.* 8 (10), 1975-1989 (1969).
6. Seitz, B., Campos, R. N. & Stewart, A. G. Energy resolution and temperature dependence of Ce:GAGG coupled to 3 mm × 3 mm silicon photomultipliers. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 63 (2), 503-508 (2016).
7. Normand, S., Iltis, A., Bernard, F., Domenech, T. & Delacour, P. Resistance to gamma irradiation of LaBr₃:Ce and LaCl₃:Ce single crystals. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 572, 754-759 (2007).
8. Cazzaniga, C., Nocente, M., Tardocchi, M., Croci, G., Giacomelli, L., Angelone, M., Pillon, M., Villari, S., Weller, A., Petrizzi, L., Gorini, G., ASDEX Upgrade Team & JET-EFDA Contributors. Response of LaBr₃(Ce) scintillators to 2.5 MeV fusion neutrons. *Rev. Sci. Instrum.* 84, 123505_1-123505_8 (2013).
9. Daube-Witherspoon, M. E., Surti, S., Perkins, A., Kyba, C. C. M., Wiener, R., Werner, M. E., Kulp, R. & Karp, J. S. The imaging performance of a LaBr₃-based PET scanner. *Phys. Med. Biol.* 55, 45-64 (2010).
10. Milbrath, B. D., Runkle, R. C., Hossbach, T. W., Kaye, W. R., Lepel, E. A., McDonald, B. S. & Smith, L. E. Characterization of alpha contamination in lanthanum trichloride scintillators using coincidence measurements. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 547, 504-510 (2005).

11. Quarati, F., Bos, A. J. J., Brandenburg, S., Dathy, C., Dorenbos, P., Kraft, S., Ostendorf, R. W., Ouspenski, V. & Owens, A. X-ray and gamma-ray response of a $2'' \times 2''$ LaBr₃:Ce scintillation detector, *Nucl. Instr. and Meth. A.* 574, 115-120 (2007).
12. Alekhin, M. S., Biner, D. A., Krämer, K. W. & Dorenbos, P. Improvement of LaBr₃:5%Ce scintillation properties by Li⁺, Na⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Sr²⁺, and Ba²⁺ co-doping. *J. Appl. Phys.* 113, 224904_1-224904-7 (2013).
13. Menge, P. R., Gautier, G., Iltis, A., Rozsa, C. & Solovyev, V. Performance of large lanthanum bromide scintillators. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 579, 6-10 (2007).
14. Sperr, P., Spieler H., Maier, M. R. & Evers, D. A Simple pulse-shape discrimination circuit. *Nucl. Instr. and Meth.* 116, 55-59 (1974).
15. Roush, M.L., Wilson, M. A. & Hornyak, W. F. Pulse shape discrimination. *Nucl. Instr. and Meth.* 31, 112-124 (1964).
16. Winyard, R. A., Lutkin, J. E. & Mcbeth, G. W. Pulse shape discrimination in inorganic and organic scintillators 1. *Nucl. Instr. and Meth.* 95, 141-153 (1971).
17. Giacomelli, L., Zimbal, A., Reginatto, M. & Tittelmeier, K. Evaluation of a digital data acquisition system and optimization of n- γ discrimination for a compact neutron spectrometer. *Rev. Sci. Instrum.* 82, 013505_1-013505_6 (2011).
18. Hoel, C., Sobotka, L.G., Shah, K.S. & Glodo, J. Pulse-shape discrimination of La halide scintillators. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 540, 205-208 (2005).
19. Crespi, F.C.L., Camera, F., Blasi, N., Bracco, A., Brambilla, S., Million, B., Nicolini, R., Pellegrini, L., Riboldi, S., Sassi, M., Wieland, O., Quarati, F. & Owens, A. Alpha-gamma discrimination by pulse shape in LaBr₃:Ce and LaCl₃:Ce. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 602, 520-524 (2009).
20. Ogawara, R. & Ishikawa, M. Feasibility study on signal separation for spontaneous alpha decay in LaBr₃: Ce scintillator by signal peak-to-charge discrimination. *Rev. Sci. Instrum.* 86, 085108_1-085108_7 (2015).
21. Kyushima, H., Hasegawa, Y., Atsumi, A., Nagura, K., Yokota, H., Ito, M., Takeuchi, J., Oba, K., Matsuura, H. & Suzuki, S. Photomultiplier tube of new dynode configuration. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 40 (4), 725-729 (1994).
22. Alarja, J., Dauchy, A., Giorni, A., Morand, C., Pollaco, E., Stassi, P., Billerey, R., Chambon, B., Cheynis, B., Drain, D. & Pastor, C. Charged particles identification with a CsI(Tl) scintillator. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 242, 352-354 (1986).

23. Saoudi, A., Pepin, C.M., Dion, F., Bentourkia, M., Lecomte, R., Andreaco, M., Casey, M., Nutt, R. & Dautet, H. Investigation of depth-of-interaction by pulse shape discrimination in multicrystal detectors read out by avalanche photodiodes. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 46 (3), 462-467 (1999).
24. Roncali, E., Phipps, J. E., Marcu, L. & Cherry, S. R. Pulse shape discrimination and classification methods for continuous depth of interaction encoding PET detectors. *Phys. Med. Biol.* 57, 6571-6585 (2012).
25. Yamamoto, S., Okumura, S., Watabe, T., Ikeda, H., Kanai, Y., Toshito, T., Komori, M., Ogata, Y., Kato, K. & Hatazawa, J. Development of a prototype Open-close positron emission tomography system. *Rev. Sci. Instrum.* 86, 084301_1-084301_9 (2015).
26. Berg, E., Roncali, E., Kapusta, M., Du, J. & Cherry, S. R. A combined time-of-flight and depth-of-interaction detector for total-body positron emission tomography. *Med. Phys.* 43, 939-950 (2016).
27. Phelps, M. E. Positron emission tomography provides molecular imaging of biological processes. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.* 97 (16), 9226-9233 (2000).
28. Hong, H., Zhang, Y., Engle, J. W., Nayak, T. R., Theuer, C. P., Nickles, R. J., Barnhart, T. E. & Cai, W. In vivo targeting and positron emission tomography imaging of tumor vasculature with ⁶⁶Ga-labeled nano-graphene. *Biomaterials.* 33, 4147-4156 (2012).
29. Schmall, J. P., Karp, J. S., Werner, M. & Surti, S. Parallax error in long-axial field-of-view PET scanners—a simulation study. *Phys. Med. Biol.* 61, 5443-5455 (2016).
30. Soriano, A., González, A. J., Sánchez, F., Conde, P., Moliner, L., Orero, A., Rodríguez-Alvarez, M. J., Vidal, L. F. & Benlloch, J. M. Minimization of parallax error in dedicated breast PET. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 60 (2), 739-745 (2013).
31. Ueno, Y., Morimoto, Y., Tsuchiya, K., Yanagita, N., Kojima, S., Ishitsu, T., Kitaguchi, H., Kubo, N., Zhao, S., Tamaki, N. & Amemiya, K. Basic performance test of a prototype PET scanner using CdTe semiconductor detectors. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 56 (1), 24-28 (2009).
32. Yamaya, T., Yoshida, E., Inaniwa, T., Sato, S., Nakajima, Y., Wakizaka, H., Kokuryo, D., Tsuji, A., Mitsuhashi, T., Kawai, H., Tashima, H., Nishikido, F., Inadama, N., Murayama, H., Haneishi, H., Suga, M. & Kinouchi, S. Development of a small prototype for a proof-of-concept of OpenPET imaging. *Phys. Med. Biol.* 56, 1123-1137 (2011).
33. Nishikido, F., Inadama, N., Yoshida, E., Murayama, H. & Yamaya, T. Four-layer DOI PET detectors using a multi-pixel photon counter array and the light sharing method. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 729, 755-761 (2013).

34. Ito, M., Lee, M. S. & Lee, J. S. Continuous depth-of-interaction measurement in a single-layer pixelated crystal array using a single-ended readout. *Phys. Med. Biol.* 58, 1269-1282 (2013).
35. Shao, Y., Sun, X., Lan, K. A., Bircher, C., Lou, K. & Deng, Z. Development of a prototype PET scanner with depth-of-interaction measurement using solid-state photomultiplier arrays and parallel readout electronics. *Phys. Med. Biol.* 59, 1223-1238 (2014).
36. Morrocchi, M., Ambrosi, G., Bisogni, M. G., Cerello, P., Corsi, F., Ionica, M., Marino, N., Marzocca, C., Pennazio, F., Pirrone, G., Santoni, C., Wheadon, R. & Guerra, A. D. Development of a PET detector module with depth of interaction capability. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 732, 603-606 (2013).
37. Pizzichemi, M., Stringhini, G., Niknejad, T., Liu, Z., Lecoq, P., Tavernier, S., Varela, J., Paganoni, M. & Auffray, E. A new method for depth of interaction determination in PET detectors. *Phys. Med. Biol.* 61, 4679-4698 (2016).
38. Somlai-Schweiger, I. & Ziegler, S. I. CHERENCUBE: Concept definition and implementation challenges of a Cherenkov based detector block for PET. *Phys. Med. Biol.* 42, 1825-1835 (2015).
39. Cabello, J., Etxebeste, A., Llosa G. & Ziegler, S. I. Simulation study of PET detector limitations using continuous crystals. *Phys. Med. Biol.* 60, 3673-3694 (2015).
40. Melcher, C. L., Schweitzer, J. S., Utsu, T. & Akiyama, S. Scintillation properties of GSO. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 37 (2), 170-172 (1990).
41. Ishibashi, H., Shimizu, K., Susa, K. & Kubota, S. Cerium doped GSO scintillators and its application to position sensitive detectors. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 36 (1), 725-729 (1989).
42. Kurashige, K., Gunji, A., Kamada, M., Shimura, N., Ishibashi, H., Yoshida, K., Senguttuvan, N., Sumiya, K., Shimizu, S. & Murayama, H. Large GSO single crystals with a diameter of 100 mm and their scintillation performance. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 51 (3), 742-745 (2004).
43. Ishibashi, H., Kurashige, K., Kurata, Y., Susa, K., Kobayashi, M., Tanaka, M., Hara, K. & Ishii, M., Scintillation performance of large Ce-doped Gd₂SiO₅ (GSO) single crystal. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 45 (3), 518-521 (1998).
44. Shimizu, S., Sumiya, K., Ishibashi, H., Senguttuvan, N., Redkin, B. S., Ishii, M., Kobayashi, M., Susa, K. & Murayama, H. Effect of Mg-, Zr-, and Ta-doping on scintillation properties of Gd₂SiO₅:Ce crystal. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 50 (4), 778-781 (2003).

45. Sidletskiy, O., Grinyov, B., Kurtsev, D., Gerasymov, I., Zelenskaya, O., Tarasov, V., Artikov, A., Baranov, V., Budagov, J., Glagolev, V., Davydov, Y. & Tereshchenko, V. Evaluation of LGSO:Ce scintillator for high energy physics experiments. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 735, 620-623 (2014).
46. Blanc, P., Hamel, M., Dehé-Pittance, C., Rocha, L., Pansu, R. B. & Normand, S. Neutron/gamma pulse shape discrimination in plastic scintillators: Preparation and characterization of various compositions. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 750, 1-11 (2014).
47. Bizarri, G. & Dorenbos, P. Role of self trapped excitons in the scintillation process of cerium doped LaBr₃. *phys. stat. sol.* 3 (10), 3434–3437 (2006).
48. Dorenbos, P. Light output and energy resolution of Ce³⁺-doped scintillators. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 486, 208-213 (2002).
49. Glodo, J., Moses, W. W., Higgins, W. M., Loef, E. V. D., Wong, P., Derenzo, S. E., Weber, M. J. & Shah, K. S. Effects of Ce concentration on scintillation properties of LaBr₃:Ce. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 52 (5), 1805-1808 (2005).
50. Takasaki, F., Saito, H. & Fukui, T., Matsushita, T. & Suzuki, T. Development of multianode photomultiplier tube. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 2608, 447-450 (1987).
51. BaeKo, G., Yoon, H. S., Kwon, S. I., Lee, C. M., Ito, M., Hong, S. J., Lee, D. S. & Lee, J. S. Development of a front-end analog circuit for multi-channel SiPM readout and performance verification for various PET detector designs. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 703, 38-44 (2013).
52. Inadama, N., Murayama, H., Tsuda, T., Nishikido, F., Shibuya, K., Yamaya, T., Yoshida, E., Takahashi, K. & Ohmura, A. Optimization of crystal arrangement on 8-Layer DOI PET detector. *2006 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, M14-135, (2006).
53. Visser, E. P., Disselhorst, J. A., Brom, M., Laverman, P., Gotthardt, M., Oyen, W. J.G. & Boerman, O. C. Spatial resolution and sensitivity of the inveon small-animal PET scanner. *J. Nucl. Med.* 50, 139-147 (2009).
54. Yang, Y., Bec, J., Zhou, J., Zhang, M., Judenhofer, M. S., Bai, X., Di, K., Wu, Y., Rodriguez, M., Dokhale, P., Shah, K. S., Farrell, R., Qi, J. & Cherry, S. R. A prototype high-resolution small-animal PET scanner dedicated to mouse brain imaging. *J. Nucl. Med.* 57, 1130-1135 (2016).
55. James, S., Yang, Y., Bowen, S. L., Qi, J. & Cherry, S. R. Simulation study of spatial resolution and sensitivity for the tapered depth of interaction PET detectors for small animal imaging. *Phys. Med. Biol.* 55, N63-N74 (2010).

56. Zhang, M., Zhou, J., Yang, Y., Rodríguez-Villafuerte, M. & Qi, J. Efficient system modeling for a small animal PET scanner with tapered DOI detectors. *Phys. Med. Biol.* 61, 461-474 (2016).
57. Yang, Y., James, S., Wu, Y., Du, H., Qi, J., Farrell, R., Dokhale, P. A., Shah, K. S., Vaigneur, K. & Cherry, S. R. Tapered LSO arrays for small animal PET. *Phys. Med. Biol.* 56, 139-153 (2011).
58. Derenzo, S. E., Budinger, T. F., Cahoon, J. L., Greenberg, W. L., Huesman, R. H. & Vuletich, T. The Donner 280-crystal high resolution positron tomograph. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS-26 (2), 2790-2793 (1979).
59. 日本核医学技術学会学術委員会, FDG-PET 検査における撮像技術に関するガイドライン, 核医技術, 27, pp. 425-456 (2007)
60. Freedenberg, M. I., Badawi, R. D., Tarantal, A. F. & Cherry, S. R. Performance and limitations of positron emission tomography (PET) scanners for imaging very low activity sources. *Physica Medica*, 30 104-110 (2014).
61. http://www.jsnm.org/fdg_pet, FDG PET、PET/CT 診療ガイドライン、日本核医学学会 (2012)
62. Chatziioannou, A. F. Molecular imaging of small animals with dedicated PET tomographs. *Eur J Nucl Med.* 29, 98-114 (2002).
63. Yamamoto, S., Watabe, H., Kanai, Y., Watabe, T., Kato, K. & Hatazawa, J. Development of an ultrahigh resolution Si-PM based PET system for small animals. *Phys. Med. Biol.* 58, 7875-7888 (2013).
64. Li, X., Alessio, A. M., Burnett, T. H., Lewellen, T. K. & Miyaoka, R. S. Performance evaluation of small animal PET scanners with different system designs. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 60 (3), 1495-1502 (2013).
65. Yamamoto, S., Imaizumi, M., Watabe, T., Watabe, H., Kanai, Y., Shimosegawa, E. & Hatazawa, J. Development of a Si-PM-based high-resolution PET system for small animals. *Phys. Med. Biol.* 55, 5817-5831 (2010).
66. Nagarkar, V. V., Tipnis, S. V., Shah, K., Shestakova, I. & Cherry, S. R. A high efficiency pixelated detector for small animal PET. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 51 (3), 801-804 (2004).
67. Kao, C., Xie, Q., Dong, Y., Wan L. & Chen, C. A high-sensitivity small-animal PET scanner: development and initial performance measurements. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 56 (5), 2678-2688 (2009).
68. Agostinelli, S. *et al.* Geant4—a simulation toolkit. *Nucl. Instr. and Meth. A.* 506, 250-303 (2003).

69. Allison, J. *et al.* Geant4 developments and applications. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 53 (1), 270-278 (2006).
70. Levin, A. & Moisan, C. A more physical approach to model the surface treatment of scintillation counters and its implementation into DETECT. *IEEE Nuclear Science Symposium*, Anaheim, November 2-4 (1996).
71. Yan, H., Tian, Z., Shao, Y., Jiang, S. B. & Jia, X. A new scheme for real-time high-contrast imaging in lung cancer radiotherapy: a proof-of-concept study. *Phys. Med. Biol.* 61, 2372-2388 (2016).
72. Siddon, R. L. Fast calculation of the exact radiological path for a three - dimensional CT array. *Med. Phys.* 12, 252-255 (1985).
73. Ogawara, R. & Ishikawa, M. Signal pulse emulation for scintillation detectors using Geant4 Monte Carlo with light tracking simulation. *Rev. Sci. Instrum.* 87, 075114_1-075114_8 (2016).