

# Feature Article

特集論文

50周年記念製品

## ヨウ化ナトリウムシンチレータ

今川 恭四郎



【開発に携わったメンバー(国内)】

後列左から

伊藤浩史, 馬場康雄

前列左から

柳田祥男, 今川恭四郎



【開発に携わったメンバー(海外)】

左から

Hiro Chihara( HORIBA Instruments Inc. )

Kyoshiro Imagawa( HORIBA, Ltd. )

Manuel Qiros( HORIBA Instruments Inc. )

Dameian Austin( HORIBA Instruments Inc. )

Ahmed Abulfotuh( HORIBA Instruments Inc. )

Takeshi Yamada( HORIBA Instruments Inc. )

Monica Henson( HORIBA Instruments Inc. )

Steve Bower( HORIBA Instruments Inc. )

HORIBAは、会社設立翌年の1954年には赤外光学結晶の生産を始め、翌1955年からヨウ化ナトリウムを使用した放射線測定用シンチレータの開発を開始した。赤外光学結晶は、主力製品である赤外線ガス分析計の基盤技術としての地歩を占めている。一方、HORIBAの放射線技術の基礎を築いてきた放射線測定用シンチレータについて、今回、世界最大級の大型結晶開発に成功したことを踏まえ、結晶成長、シンチレーション検出器の製作及び応用例としてのガンマプレートを紹介する。

## はじめに

1948年、ヨウ化ナトリウム(NaI)の結晶に微量のタリウム(Tl)を添加することで、非常に大きなシンチレーション現象があることが報告された。HORIBAは、NaI(Tl)が発見されて、間もなくNaI(Tl)結晶の製造開発に着手した。1970年代には、ガンマカメラ用NaIプレートの開発を始めた。当初は1インチから3インチ直径のものが、核物理学実験、環境放射線測定あるいはラジオイムノアッセイの検出器として使われ、またガンマカメラ用として、直径5インチ程度のものから、大きさをカバーするためにモザイク型の製品も開発された。大型ガンマカメラが開発されるに及んで、年々結晶の大型化が要求され、近年はNaI(Tl)結晶の大きさとの戦いであった。

## NaI(Tl)結晶

ガンマカメラ用としてのNaI(Tl)結晶の開発は、40年前に遡る。直径5インチの結晶から始まり直径30インチを超えるものが現在商業的に用いられており、HORIBAも重量500 kgで直径31インチの結晶の大型結晶の製造に成功し市場に参入している(図1)。ヨウ化ナトリウム結晶を生産するアリゾナ工場を図2に示す。



図1 直径31インチ・重量500 kgのヨウ化ナトリウム結晶



図2 ヨウ化ナトリウム結晶を生産するアリゾナ工場

一方、NaI(Tl)の他CsI(Tl)や最近ではBi<sub>4</sub>Ge<sub>3</sub>O<sub>12</sub>などの新しい結晶が用途に応じて開発されているが、NaI(Tl)は今もその優位性を保ち、特に感度の点でNaI(Tl)に勝るものはない。

代表的なシンチレータ結晶の性能を表1に表す。

表1 代表的なシンチレータ結晶の性能

| 材質名                    | NaI(Tl) | CsI(Tl) | Bi <sub>4</sub> Ge <sub>3</sub> O <sub>12</sub> |
|------------------------|---------|---------|---|
| 密度(g/cm <sup>3</sup> ) | 3.67    | 4.51    | 7.13  |
| 時定数(ns)                | 230     | 1000    | 300   |
| 発光波長(nm)               | 420     | 565     | 480   |
| 相対光量                   | 100     | 45      | 7-10  |
| 屈折率                    | 1.85    | 1.79    | 2.15  |

## NaI(Tl)結晶の製法

NaI(Tl)結晶は1948年に開発された後、1970年代頃からガンマプレートの開発が活発になり、この30年間はガンマプレートの大型化に伴い、結晶の巨大化の競争であった。NaI(Tl)結晶は、NaClなどの他のアルカリハライドと同様に、引き下げ法ともいわれるBridgman-Stockbarger法で製造される。この方法は、坩堝に充填された粉体原料を高温で融かし、温度の低い冷却部へ徐々に下げることによりゆっくりと固化させる方法である。その原理模式図を図3に、炉の外観を図4に示す。

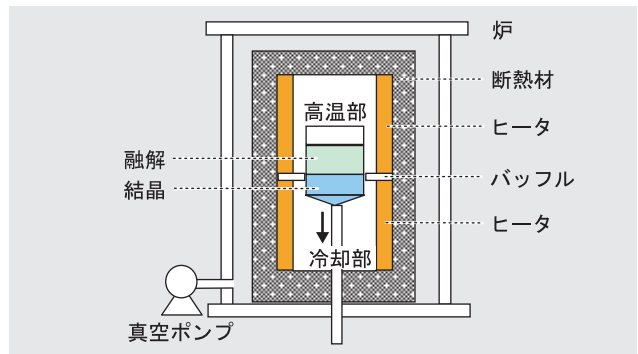


図3 原理模式図



図4 炉の外観図



原料は特別に合成されたシンチレーション用グレードの粉末原料で、特に自然界にある<sup>40</sup>Kなどはそのバックグラウンドと区別するため2 ppm以下にするなど特別の注意を払って製作される。またヨウ化ナトリウムは著しい潮解性を持つため、十分に乾燥した状態で保存する必要がある。

このように準備された原料を慎重に坩堝に充填し、更にシンチレータ現象のアクチベータであるタリウムを微量混合する。次にその坩堝を結晶成長炉に充填し、まず真空乾燥及び脱水処理を行う。このプロセスはヨウ化ナトリウムが潮解性を持っていることから、結晶の光学的品質を決める上で非常に重要なプロセスである。

次に、昇温プロセスで炉を約700℃にし坩堝内の原料を十分に溶解する。その後エレベータで炉の冷却部である下部へゆっくりと下げ、坩堝の先端部から固化させ全体を結晶化させる。このプロセスは最も重要なプロセスで、慎重な温度管理技術が要求され、その期間も最大30日にも及ぶ。

このようにしてできたインゴットは、大きな熱容量(質量にして240 kgから500 kg)にも及ぶため、更に1ヶ月のアニール工程を経て素材として扱われる結晶インゴットとなる。

## 放射線検出器としての機能

NaI(Tl)結晶はそのシンチレーション性能を高めるため、アクチベータとして約0.1%(モル比)のタリウム(Tl)を添加している。そのメカニズムはNaI結晶に入射したガンマ( $\gamma$ )線で作成された電子が電離したアクチベータにつかまり、その励起状態の遷移で光が放出される。NaI(Tl)の場合、そのガンマ線の変換効率は約13%程度と言われ、この時の光の波長は420 nmである。

このままでは信号として処理できないため、このシンチレータから発せられた微弱な光を光電子増倍管で集めて放射線に応じたパルス電気信号に変換し、パルスを計数することで放射能強度を測る。図5に代表的なシンチレータと、図6にそのスペクトルデータを示す。



図5 代表的なシンチレータ

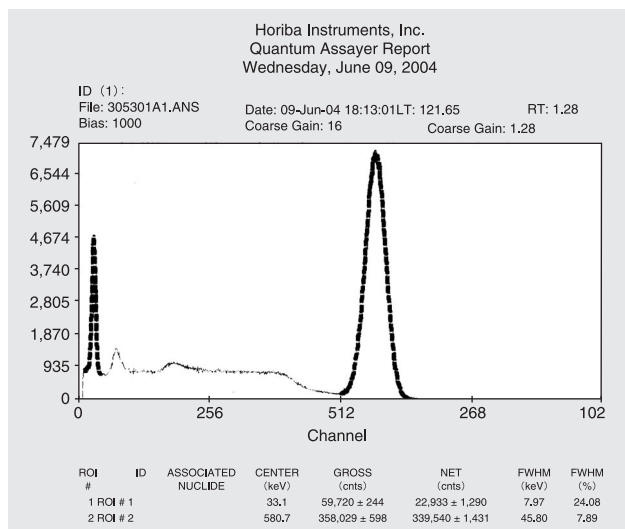


図6 スペクトルデータ

## ガンマプレート

ガンマプレートとは、体内に投与された放射性核種またはその化合物が癌細胞等に集合することを利用し、その部位から放射される放射能( $\gamma$ 線)を検出するものである。この原理を利用したガンマカメラは、1950年代に米国の物理学者アンガーが考案し、アンガーカメラとも呼ばれる。現在は投与した放射性検査薬が特定の臓器や組織に集まり、そこから発する線を検出し画像処理をすることにより異常な部位を見つけるだけでなく、脳の血流や心臓の動きをも検出する動態検査も可能になっている。

ガンマカメラは $\gamma$ 線を発生させる放射線検査薬、コリメータ、シンチレータ、光電子増倍管及び信号の処理回路から構成される(図7)。

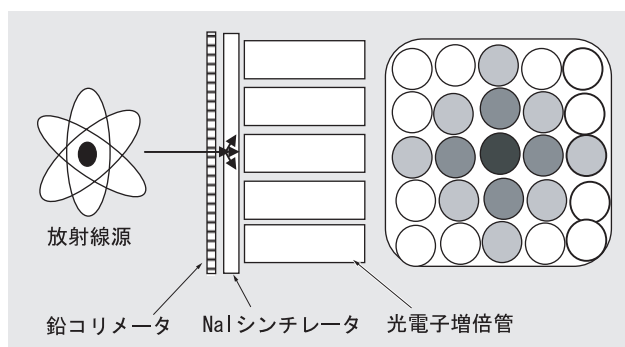


図7 ガンマカメラの構成

信号処理部では、各光電子増倍管からの出力信号の強弱からその発生位置を計算で求めそのデータを基に画像処理し、診断情報を提供する。

## ガンマプレートの製作

現在使用されているガンマプレートは、直径220 mmで厚さ8 mmのものから、大きさが500 mm × 600 mmで厚さが9.5 mmあるいは25 mmなどの大きなものが製作されている。ガンマプレートの例を図8に示す。



図8 ガンマプレートの例(480 mm × 550 mm)

ガンマプレートの製作プロセスは、NaIインゴットの切断、形状加工、表面研削、表面研磨などの機械加工の後、NaI結晶プレートをケースに入れるアSEMBル工程を経てガンマプレートに仕上がる。

これらすべての工程は、NaI結晶素材が持っている潮解性のため低湿度あるいは露点 - 30 以下に調湿されたドライルームで行われる(図9)。



図9 調湿されたドライルームでの作業

ガンマプレートの基本性能は、JISや米国NEMA規格できめ細かく決められているが、結晶メーカーから見た性能としてエネルギー分解能で9.5%( $^{57}\text{Co}$ にて)以下だけでなく、ガンマカメラのシステムとして要求される面内均一性や空間分解能等も、きめ細かく顧客ニーズに対応している。

## おわりに

NaI(Tl)の用途は、ガンマカメラや原子炉の管理を始めとする環境放射能の測定、あるいは放射線を利用した分析計などに利用されている。最近HORIBAは、NaI(Tl)の純度に着目し超低バックグラウンドの原料精製に成功したが、それから作られる超低バックシンチレータは宇宙物理学で非常に有用であることがわかってきた。また、NaI(Tl)シンチレータは、コスト面から小型マルチセグメント化をすることにより、宇宙物理だけでなく工業用CTなどへの利用も検討される機運が出てきている。更に、原子力発電分野で近い将来必ず必要となる廃炉解体技術に関する、超高性能微量放射能測定システムへの応用展開が見込まれている。