

中性子イメージングプレートBAS-NDの開発

高橋 健治* , 田崎 誠二* , 鎌石 恵子* , 江藤 雅弘**

Development of "BAS-ND" Imaging Plate for Neutron Detection

Kenji TAKAHASHI*, Seiji TAZAKI*, Keiko NERIISHI* and Masahiro ETOH**

Abstract

BAS-ND is a new type of imaging plate (IP) that has been developed for neutron detection. BAS-ND is sensitized by Gd₂O₃ converter particles; these particles efficiently absorb neutrons and emit internal conversion electrons that excite photostimulable BaFBr:Eu²⁺ phosphor particles that are dispersed around them in the phosphor layer. This report describes the structure, imaging characteristics, and some application examples of BAS-ND. This new type of IP can be read by ordinary BAS readers has extremely superior characteristics compared with conventional neutron image receptors. For example, BAS-ND enables a wide dynamic range, high sensitivity, and high resolution. Thus BAS-ND is expected to enlarge the scope of applications in all technical fields that employ neutrons, including neutron radiography, neutron diffraction, etc..

1. はじめに

さまざまな元素に対する中性子の吸収・散乱係数はX線とはまったく異なり、原子番号の小さな水素やリチウムで比較的大きな値を持つ。一方、X線の場合のような原子番号との系統的な対応関係は存在せず、金属元素の中にも吸収・散乱係数の比較的小さなものもある。非破壊検査や構造解析の分野でX線では検出不可能な対象に対して有効な場合があり、一部で利用されている。しかし、従来は高感度かつ高分解能な検出器（構造解析用としては定量性も必要）がなかっただけでなく、原子炉や加速器などの大がかりな中性子源を用いる必要もあり、X線ほど一般的なものにはなっていない。

輝尽 (PSL = Photostimulated Luminescence) は、X線、電子線、紫外線などの放射線で蛍光体を励起して発光させた後、発光波長よりも長波長の光を照射することによって減衰していた発光が一時的に強くなる現象であり、この現象を示す蛍光体を輝尽性蛍光体という。イメージングプレート (IP) は輝尽性蛍光体を用いた二次元放射線検出器であり、1983年の医療診断用システムである富士コンピュータドグラフィ (FCR = Fuji Computed Radiography) の世界初の商品化を端緒とし、理化学実験用途のBAS (Bio-imaging Analyser System), FDL (Fuji Digital Luminography) などの開発、IPおよびシステムそれぞれの改良、などによって、医療診断分野、生化学分野、X線結晶構造解析分野、透過型電子顕微鏡分野などでの利用が一般化してきている。その大きな特長は、広範囲にわたる応答の直線性と高感度性、大面積かつ高分解能の実現、デジタル系への適合性、などである¹⁾²⁾。

富士写真フイルム (株) ではIPを中性子検出に用いる最初の試みに協力し、その結果は1989年に報告されている³⁾。その後、日本原子力研究所との共同研究として系統的な実験を行い、中性子用としても上記の特長を備えた優れた二次元検出器となることを明らかにした⁴⁾。これは中性子検出器としては画期的な性能であり、中性子ラジオグラフィや中性子回折・散乱装置に大きな影響を与えることは必至である。この成果を土台として1997年6月に中性子検出用IPで

本誌投稿論文 (受理1997年10月21日)

* 富士写真フイルム (株) 宮台技術開発センター
〒258-8538 神奈川県足柄上郡開成町宮台798

* Miyanodai Technology Development Center
Fuji Photo Film Co., Ltd.
Kaisei-machi, Ashigarakami-gun, Kanagawa 258-8538, Japan

** 富士写真フイルム (株)
機器事業部サイエンスシステムグループ
〒106-8620 東京都港区西麻布2-26-30

** Science System Group
Equipment Products Division
Fuji Photo Film Co., Ltd.
Nishiazabu, Minato-ku, Tokyo 106-8620, Japan

あるBAS-NDを商品化した。ここではその原理，特長，そして応用例などについて紹介する。

2. 中性子IPによる画像形成の原理

2.1 IPを用いた放射線画像形成

通常のIPは，支持体，BaF₂ : Eu²⁺ (X = Br, I) 輝尽性蛍光体 (平均粒径は5 μm前後) を用いた蛍光体層，表面保護層などから構成されている。蛍光体層は輝尽性蛍光体を有機バインダーで結合・保持したものであり，50～300 μm程度の厚みを持つ。バインダー素材としては各種の合成高分子素材が用いられる。

IPに放射線を照射すると蛍光体結晶中に吸収放射線エネルギーに比例した多数の電子・正孔対が生成される。電子と正孔はすぐに再結合してEu²⁺の励起状態からの発光を起こすだけではなく，それと同時に電子は蛍光体中に最初から形成されているF[•]中心にトラップされて準安定状態であるF中心を生成し，正孔はEu²⁺イオンにトラップされる (撮影)。次にF中心が吸収する波長の光である赤色レーザ光でIP面上を二次元走査すると，トラップされた電子は解放されてEu²⁺にトラップされた正孔と再結合し，Eu²⁺の励起状態からの発光が起こる⁵⁾。この光を光電子増倍管によって電気信号に変え，デジタル化して画像情報を得ることができる (読取)。IPには読み取り後でも多少のエネルギーが残存しているが，全面に消去光を照射して撮影前の状態に戻すことができるので，繰り返し使用が可能である (消去)。

2.2 中性子IP

中性子はそれ自身の持つエネルギーにより，速中性子，熱中性子，冷中性子などに分類されるが，ここではラジオグラフィーや回折実験に通常用いられる熱中性子を指すものとする。中性子は電離作用を持たないため，その検出には中性子との核反応で電離放射線を放出する元素をコンバータとして利用することが行われてきた。中性子に対する吸収係数が特異的に大きい^{nat}Gd (天然の同位体組織を持ったGd) を金属箔の形でフィルムと接触して用いる直接撮影法，放出される二次放射線のエネルギーが非常に大きい⁶LiFをZnS : Ag蛍光体と混合した蛍光板を撮影する間接撮影法，³Heを用いた気体比例計数管エリアディテクター法，などがその実例として挙げられる。Table 1に中性子検出に広く利用される核種とその反応を示す。なお，全散乱断面積の値は波長1 Åの中性子に対するものである。

Table 1 Converter Elements for Neutron Detection

核反応	全散乱断面積 (バーン)	二次放射線の種類とエネルギー (MeV)
¹⁰ B (n,) ⁷ Li	2100	:1.47 ⁷ Li : 0.83
³ He (n, p) ³ H	3000	p : 0.57 ³ H : 0.20
⁶ Li (n,) ³ H	520	:2.05 ³ H : 2.74
^{nat} Gd (n, , e)	17000	: 0.3, 0.4, 1.2 e : 0.074, 0.034

2.1に示した通常の構成のIPでは中性子の吸収は少ない。検出効率を飛躍的に増すためには，上記のような中性子コンバータを蛍光体層へ導入することが有効である。中性子と反応したコンバータから放出される電離放射線である二次放射線は周囲の原子を電離してエネルギーを失う。^{nat}Gd，⁶Liからの画像形成に主に関与する二次放射線の蛍光体層内での飛程を計算で求めたところ，いずれも数10 μm以内に入っており，中性子検出器として十分な位置分解能が期待される。

Fig. 1にコンバータとしてGd₂O₃および⁶LiFの微粒子を蛍光体層に混入して実験的に作成したGd-IPおよびLi-IP (コンバータ/蛍光体比および蛍光体層厚を変更したものの) の波長2, 3 Åの中性子吸収と輝尽発光量の関係を示す⁶⁾。Li-IPの多くはGd-IPよりも強い輝尽発光を示すが，これは発生する二次放射線のエネルギーの違いを反映したものである。したがって，^{nat}Gdから出る二次放射線で輝尽中心の生成に主として寄与するのは線ではなく内部転換電子であると言える。また，同一の中性子吸収効率ではGd-IPとLi-IPのいずれの場合もコンバータ比の低いものほど強い輝尽発光を示す。これはコンバータ比が高くなると発生した二次放射線のコンバータ自身による吸収が多くなり，エネルギーロスが多くなるためであると考えられる。

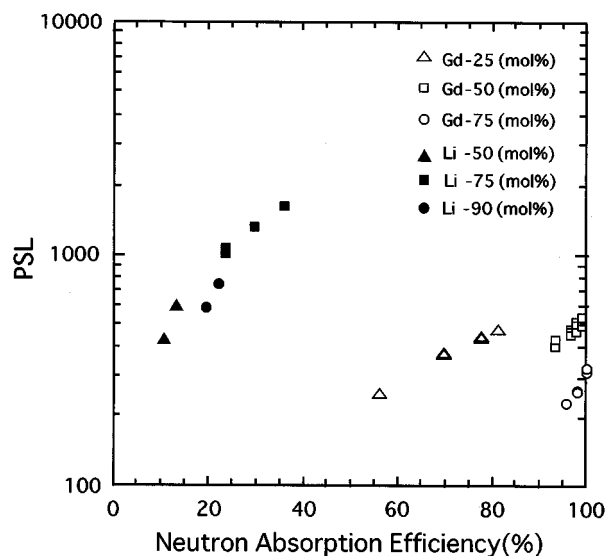
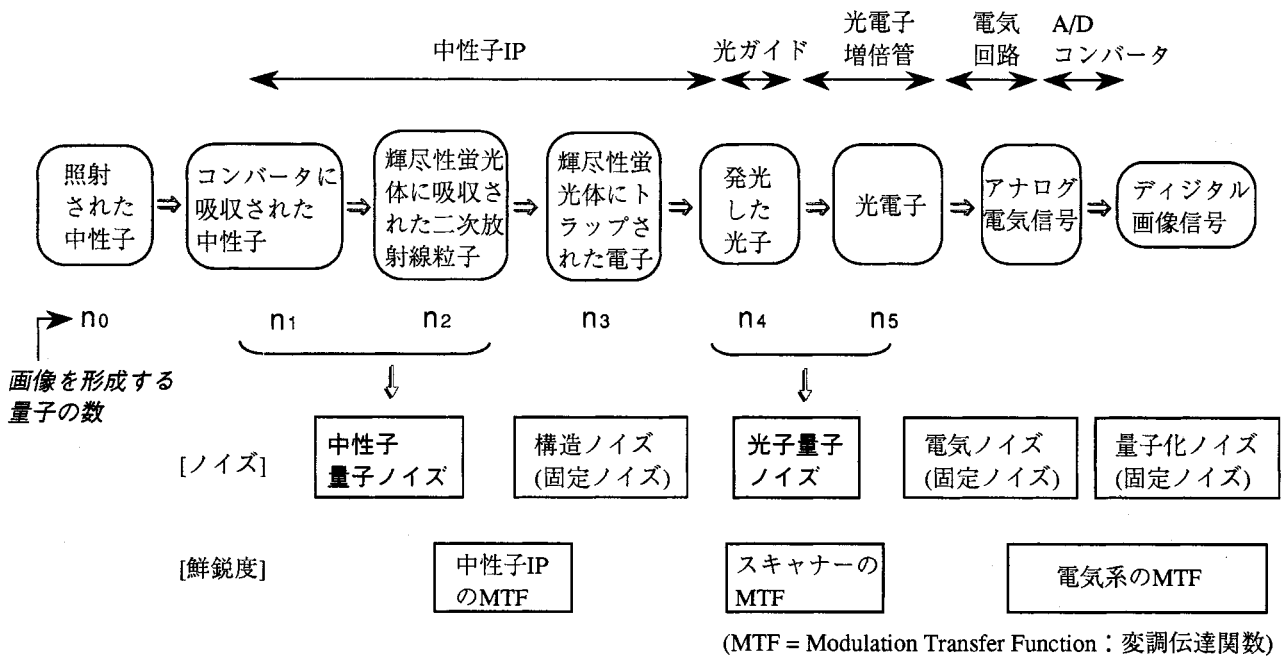


Fig. 1 The relationship between the neutron absorption efficiency and the PSL of the experimental Gd-IPs and Li-IPs

2.3 中性子画像形成プロセスと画質決定因子

中性子IPを用いた画像形成プロセスとその際の画質決定因子をFig. 2に示す⁶⁾。励起過程を除けばX線画像形成と同一である。X線の場合と同様のシステムノイズの考察から，構造ノイズが無視できる低線量条件下では，二次放射線のエネルギーの小さなGd-IPの場合でも中性子数のゆらぎに起因する成分が支配的になると考えら



$$(\text{系全体の量子ノイズパワー}) = 1/n_0 + 1/n_1 + 1/n_2 + 1/n_3 + 1/n_4 + 1/n_5$$

- 固定ノイズが無視できるほど小さい場合、もっとも小さい n_x の段階が画質に一番影響する。
- X線画像形成との比較から推測すると、 n_1 と n_2 が系のノイズを決める。

Fig. 2 The image formation process and the image quality factors by means of the IP for neutron detection

れる。したがって、コンバータによる中性子吸収とそこから放出された二次放射線による蛍光体励起の効率は画質を決める要因として最も重要なものと言える。具体的には Gd_2O_3 コンバータ粒子と $BaFBr:Eu^{2+}$ 蛍光体粒子をBa/Gdモル比がほぼ1になるように混合した系が最善の結果を与えることが示されている⁷⁾。

中性子IPは使用している蛍光体の特性から線にも感度を持っている。この影響を取り除くために通常のIPを重ねて使用してサブトラクション処理を行うことも試みられている⁴⁾。

3. 中性子回折への応用の試み

中性子回折実験に良く使用されてきた二次元検出器であるガス封入型比例計数管と中性子IPの特徴をTable 2にまとめた。比例計数管は微分型ディテクターであり、放射線検出ごとに出る電気パルスを計数するために計数率の限界がある。積分型の中性子IPでは計数率には特に限度はない。逆に、ダイナミックレンジはIPでは5桁程度であるのに対して、比例計数管では特に限度はない。このように計数率と、ダイナミックレンジはこれらのディテクターで相補的であると言える。

中性子IPの位置分解能はその層設計と読取条件で決ま

るが、100 μ mあるいはそれ以下の分解能は十分に得られる。比例計数管では、封入ガス(コンバータ)中での二次放射線の飛程が1mm程度であるので、これが分解能の限界となる。実際の比例計数管では2mm程度の分解能が限界である。

Table 2 Comparison of the Characteristics between Neutron IP and Gas Proportional Counter

	中性子IP	ガス比例計数管
検出器としての基本形式	積分型	微分型
計数率	最大限度: 特になし	$10^4 - 10^5$ cpsが限度
ダイナミックレンジ	5桁	最大限度: 特になし
位置分解能	100 μ m程度	最良 ~ 2mm

実際に中性子回折のデータ取りを行う際には、ダイナミックレンジは5桁で充分実用的であるため、中性子回折において中性子IPは圧倒的に有利なディテクターであると言える。また、中性子ラジオグラフィーに用いられる写真フィルムとGd箔をコンタクトする検出方法は分解能の点では優れているが、直線性が悪くダイナミックレンジも狭い。さらに、中性子検出効率が中性子IPと比較して2桁程度劣ることもあり、実験時間の観点でも中性子回折の実用には適さない。

日本原子力研究所の原子炉 (JRR-3M) の生体物質中性

子回折計BIXに、試作した中性子IPをセットし、リゾチームの単結晶からの単色中性子回折像を得た例をFig. 3に示す。このような生体物質の中性子結晶構造解析では微弱なブラッグ斑点を数千個集めなければならないので、中性子IPの高分解能性と検出器が試料を見込む立体角を大きくすることを可能にする湾曲性が大きな威力を発揮する。日本原子力研究所ではすでに中性子IPを装備した生体物質専用の結晶構造解析用中性子回折計BIX-IIが稼働し、活躍している。

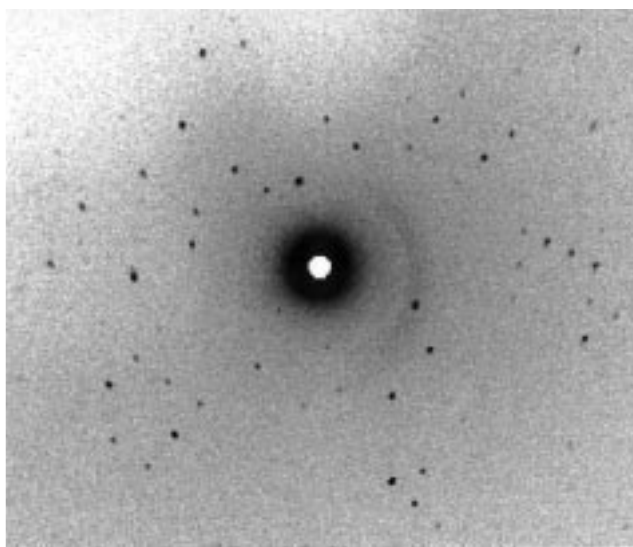


Fig. 3 The monochromatic neutron diffraction image of a single crystal of lysozyme (Provided by Dr. Niimura, Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute)

Fig. 4はAl₂O₃粉末の中性子回折パターンである。中性子回折は単結晶の構造解析のみではなく、粉末構造解析の分野でも有力な手段となることが期待される。

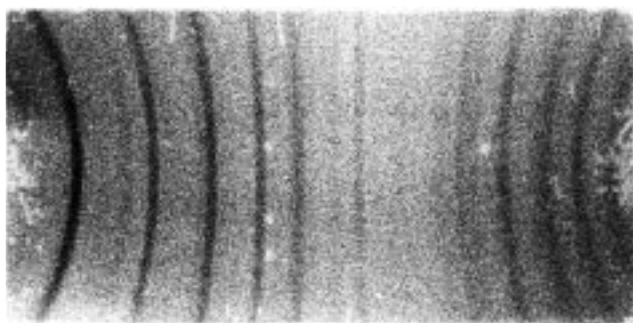


Fig. 4 Neutron diffraction pattern of Al₂O₃ powder (Provided by Dr. Niimura, Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute)

4. BAS-NDの層構成と基本特性

上記の日本原子力研究所との共同研究の成果をもとに、中性子ラジオグラフィへの応用を念頭に置いて

BAS-NDの開発を行った。ここではその層構成と基本特性を示す。

4.1 層構成

Fig. 5にBAS-NDの構造の概要を示す。基本構造は従来の高鮮鋭度タイプBAS用IPであるBAS-SRに準じ、中性子に感度を持たせるため蛍光体層にコンバータを混合している。コンバータとしては酸化ガドリニウム(Gd₂O₃)を選択した。Gd₂O₃は、中性子を効率よく吸収して蛍光体を励起させる放射線を発生する核反応を起こすこと、蛍光体中への混合が容易なように蛍光体と同レベルのサイズの粉体であること、発光吸収による感度低下がないように白色であること、の条件をすべて満たす物質である。2.2の試作IPに用いた⁶LiFは輝尽発光量を稼げるものの、中性子吸収の点では大きく劣っており、低線量時の画質が落ちると考えられる。

蛍光体 (BaFBr : Eu²⁺) とコンバータ (Gd₂O₃) の比率は2.3に示した理由から蛍光体中のBa原子とコンバータ中のGd原子がモル比1 : 1となる組成とした。蛍光体層を厚くすれば中性子吸収効率が高くなるが、読取光の蛍光体層内での拡がりが大きくなり、分解能が低下する。この読取光の拡がりを抑えて分解能を高くするためには、蛍光体層への読取光を吸収するが発光光は吸収しない着色剤の添加が有効である。BAS-NDは中性子ラジオグラフィに対応できるように、読取ピッチ50 μm / 25 μmに最適化した蛍光体層厚と着色剤量とした。表面保護層はIP表面の強度を保つとともに中性子の吸収・散乱、読取光・発光光のぼけをなるべく小さくするために6 μm厚のPETを採用した。IP裏面は読取装置内の搬送のために磁気吸着層を付設している。

表面保護層 : PET 6μm



裏面保護層 : PET 25μm

Fig. 5 Structure of BAS-ND

4.2 MTF

Fig. 6にBAS-NDのMTFを示す。MTFは中性子を吸収するボロンカーバイドタイル (B₄C, 厚さ10mm) のエッジ照射プロファイルより求めた。照射は日本原子力研究所の原子炉JRR-3Mからの中性子 ($\lambda = 2.2$ Å), 読取はBAS5000 (読み取りピッチ25 μm) で行った。

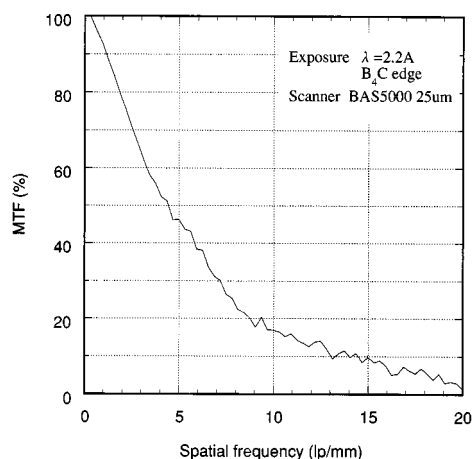


Fig. 6 MTF of BAS-ND

4.3 放射化の影響

中性子照射により、放射化してノイズを増加させる可能性があるBAS-NDの構成元素はGd (コンバータ), Eu (蛍光体), Mn (磁気吸着層) である。日本原子力研究所においての実験でもこれらの半減期にほぼ対応する影響が観測されている。しかし、放射化の影響によるノイズとなる発光量は中性子による本来の発光量の 10^{-5} から 10^{-6} と桁違いに小さいため、実使用ではほとんど無視できる。ただし、きわめて強い中性子を照射してしまった場合は、ノイズの観点ばかりでなく放射線管理上も留意する必要があることは言うまでもない。

5. 中性子ラジオグラフィへの応用

5.1 中性子ラジオグラフィの特徴

中性子ラジオグラフィ(NRG: Neutron Radiography)は、X線やγ線と同様に物質の透過像を得る技術であり、中性子の吸収特性 (水素やボロンなど、特定の元素で吸収係数が大きく、鉄やアルミニウムなどの金属の吸収係数が小さい) を利用して、特に金属容器内の高分子材料の検出などに使われてきた。また、最近では医学や農生物学分野の研究にも広がり始めている。

5.2 従来法

5.2.1 中性子源

中性子源は、大きく原子炉、加速器 (サイクロトロンなど)、放射性同位元素 (RI) に分けられる。得られるエネルギーも広い範囲を持っているが、NRGでは主に熱中性子が利用される。

5.2.2 中性子撮像方法

X線フィルムを用いた直接法、間接法、およびCCDカメラと蛍光コンバータを用いたリアルタイム検出法がある。ここでは現在主流である、X線フィルム直接法について簡単に解説する。

中性子はフィルムには直接作用しないため、下記の方法がとられる。CdやGdの金属箔 (厚さ約25 μm) をコンバータとしてX線フィルム上に密着配置し、中性子をコンバータに照射し、二次放射線としてコンバータから発生する電子線でX線フィルムを感光させる。この方法は感度の点から長時間の照射を要し、またダイナミックレンジの狭さから、照射条件、現像条件の微妙な差により、適正な画像を得るためには繰り返しの撮像が必要であった。

5.3 BAS-NDの利用

5.3.1 BAS-NDの特徴

すでに述べたように、BAS-NDは高感度で、かつ広ダイナミックレンジなので、写真フィルムに対し、約1/10の照射時間で中性子透過画像が得られる。そのため、

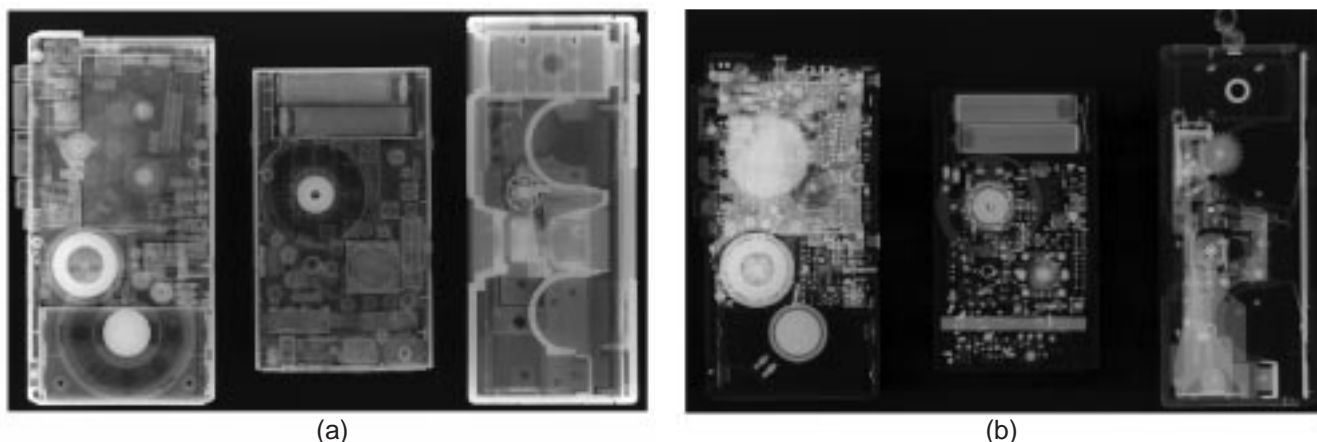


Fig. 7 Examples of a neutron radiograph (a) and an X-ray radiograph (b) of the same subject (Provided by Prof. Kobayashi, The Institute for Atomic Energy, Rikkyo University)

限られたマシンタイムの中で、データの収集のスピードと質を飛躍的に向上させることが可能となる。

Fig. 7に立教大学原子炉で撮影したNRGの一例を示す(a)。X線フィルムを使用した場合は約900秒の照射時間を要するが、BAS-NDを用いた場合は90秒の照射時間で鮮明な画像が得られた。また、比較例として同様のサンプルを用いたX線透過画像も同時に示した(b)。検出される内部構造の違いが一目瞭然である。また、BAS-NDにより得られた画像はデジタル情報であるため、階調処理や画像演算などが可能なことも大きな利点である。

5.3.2 各分野への応用

中性子ラジオグラフィーはその特徴を活かし、航空機関係、宇宙工業、自動車工業、芸術・美術、医学分野など、さまざまな分野で利用される。Table 3に期待される応用例を示す。

Table 3 Examples of Application of BAS-ND

応用分野	例
航空機関係	タービンブレードやハニカム構造材の非破壊検査
宇宙工業	固体ロケット、火工品の非破壊検査
自動車工業	燃料燃焼動作、エンジンの検査
原子力工業	金属配管等の非破壊検査
芸術・美術	文化遺産や絵画の非破壊検査
医学分野	癌腫瘍検出、中性子捕獲療法によるボロン検出、などの研究

6. まとめ

このように、BAS-NDは中性子によるラジオグラフィーと計測のすべての分野に応用可能な中性子エリアセンサーである。中性子は、その発生源の制約から一般に広く普及した実験手段とは言えないが、X線によるラジオグラフィーや計測を補完して非常に有益なデータを提供するポテンシャルを持っている。BAS-NDの商品化によって現有的中性子源の有効性が拡張され、新た

な用途が切り開けること、特に、その高感度性を活かした可搬型の微弱線源の活用と利用範囲の拡大が進むことを期待している。

7. 謝辞

中性子IPの開発とその応用に関する共同研究のパートナーであり、本報をまとめるにあたって多大なご協力を頂いた新村信雄博士(日本原子力研究所先端基礎研究センター生体物質中性子回折研究グループリーダー)と唐澤裕子さん(同グループメンバー=東北大学理学部博士課程)、およびBAS-NDの中性子ラジオグラフィーへの応用を試みて頂いた小林久夫教授(立教大学原子力研究所)に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) M. Sonoda, M. Takano, J. Miyahara, and H. Kato, Radiology, 148, 833 (1983)
- 2) J. Miyahara, K. Takahashi, Y. Amemiya, N. Kamiya, and Y. Satow, Nucl. Instrum. & Methods, A310, 572 (1986)
- 3) K. Okamoto et al., "Neutron Radiography (3)", S. Fujine et al., Eds., Kluwer Academic Publishers, 461 (1989)
- 4) N. Niimura, Y. Karasawa, I. Tanaka, J. Miyahara, K. Takahashi, H. Saito, S. Koizumu, and K. Hidaka, Nucl. Instrum & Methods, A349, 521 (1994).
- 5) Y. Iwabuchi, N. Mori, K. Takahashi, T. Matsuda, and S. Shionoya, Jpn. J. Appl. Phys., 33, 178 (1994)
- 6) K. Takahashi, S. Tazaki, J. Miyahara, Y. Karasawa, and N. Niimura, Nucl., Instrum & Methods, A377, 119 (1996)
- 7) 新村信雄, 唐澤裕子, 放射線, 23 (2), 77 (1997)

(本報告中にある“富士”, “FCR”, “Fuji Digital Luminography”は富士写真フイルム(株)の商標です。)