

新規発光原理に基づく次世代シンチレータ結晶の開発

研究成果活用プラザ宮城における育成研究 平成14年度採択課題
「次世代シンチレータ結晶およびそのデバイス技術の開発」



代表研究者：東北大学・多元物質科学研究所 教授 福田 承生

本プロジェクトでは、医療や高エネルギー物理学、材料科学など、多彩な分野で用いられるシンチレータ結晶の新規材料開発を行った。新しい発光原理に基づいた、優れたシンチレータを開発することで、従来のシンチレータデバイスと比較し、より安価で高性能のデバイスの実現を目指した。

■ 研究内容、研究成果

現在 PET 用シンチレータとしては、Ce:LSO、BGO などが主に用いられているが、現在の装置は特に空間分解能が低いことから、Time-Of-Flight(TOF)型、Depth-Of-Image(DOI)型など、次世代型 PET 装置の開発が試みられている。しかし、現状では発光量・蛍光寿命・発光波長などの点で、これら次世代型 PET 装置に必要な要件を備えたシンチレータは見つかっていない。そこで本プロジェクトでは、特に Yb 系、フッ化物系、Pr 系など、従来材料とは異なる発光原理に基づくシンチレータ結晶の探索を行い、次世代 PET 装置に必要な特性を備えたシンチレータの開発を目指すと共に、見出した結晶の製造技術の開発を行った。Yb 系シンチレータの研究では、多様な結晶系に Yb イオンをドーブし、特性を評価した結果、CT からの発光は、蛍光寿命が室温で 1ns 以下(Yb:YAP, Yb:LuAG)と非常に早く、また温度消光効果により、温度によって発光量および蛍光寿命を制御可能であることが分かった。フッ化物系シンチレータの研究については、材料探索の速度向上のため、まずμ-PD 法によるフッ化物単結晶作製技術を開発した。さらに、一次相転移点を有するため、これまで融液からの単結晶作製が困難であった GdF₃ について、他の希土類フッ化物(YF₃, LuF₃)を固溶し、イオン半径を調整することによって、一次相転移のない新規希土類フッ化物単結晶を作製する事に成功した。このホスト結晶に Ce 及び Sr などのアルカリ土類金属フッ化物を添加することで Ce に特殊な状態が形成され、BGO の 3 倍の高発光量と 31.8nsec の短い蛍光寿命を持つ、優れたシンチレータとなることが分かった。ただし現在までのところ大型結晶については、完全な製造技術の確立には至っていない。Pr 系シンチレータの研究では、μ-PD 法による材料探索を行った結果、Pr:LuAG 結晶において開発目標である 発光量で BGO 以上、 蛍光寿命で従来材料(GSO・LSO)以下、 GSO 並の密度、を大きく上回る特性を持つことが分かった。そこで、この Pr:LuAG 結晶を Cz 法で作製し、作製技術の確立及び出発組成の最適化を行った。浜松ホトニクス(株)で評価した結果、密度は GSO と同程度、発光量は BGO の 3.3 倍、蛍光寿命については主成分が 17ns と非常に高い特性が確認された。従来材料で最高の特性を持つ Ce:LSO との比較では、発光量・密度で劣っているものの、蛍光寿命やエネルギー分解能、自己発光成分の少なさで上回るほか、融点・劈開性の有無・育成の際の酸素の必要性など、結晶作製の難易度ははるかに低いことから、実用化に十分に値する特性を持つことが分かった。量産化に向けた製造技術の開発についても、Cz 法による作製技術を確認し、2 インチサイズまでの大口径化に目処をつけた。

■ 今後の展開、将来の展望

今回の成果のうち、特に Pr:LuAG 結晶について、平成 19 年春までの事業化を目指す。Cz 法による大型結晶作製技術は確立されつつあるが、Pr イオンの偏析などの問題があることから、(株)福田結晶技術研究所が獲得済みの、平成 17 年度産学共同研究フォローアップ助成金「Pr:LuAG 結晶量産化に向けた Pr 偏析制御」などにより、この問題を解決し、量産化に目処をつける。また新技術であるμ-PD 法による量産製造法を確立し、低コスト化を図る。これについては既に(株)福田結晶技術研究所が獲得済みの、NEDO 産業技術実用化開発助成事業「マイクロ引下げ法による高機能単結晶材料の量産技術開発」(平成 17 年 1 月～平成 18 年 12 月)により開発中である。(株)コイケも Cz を用いて Pr:LuAG 結晶の量産の検討を続ける。高密度化・短蛍光寿命化などの更なる高性能化にあたっては、東北大学と複数企業が共同で NEDO 大学発事業創出実用化開発事業に申請予定である。シンチレータ結晶関連会社と共同で Pr 系結晶の周辺特許を固め、シーメンス、GE といった世界市場への売りこみも図る。

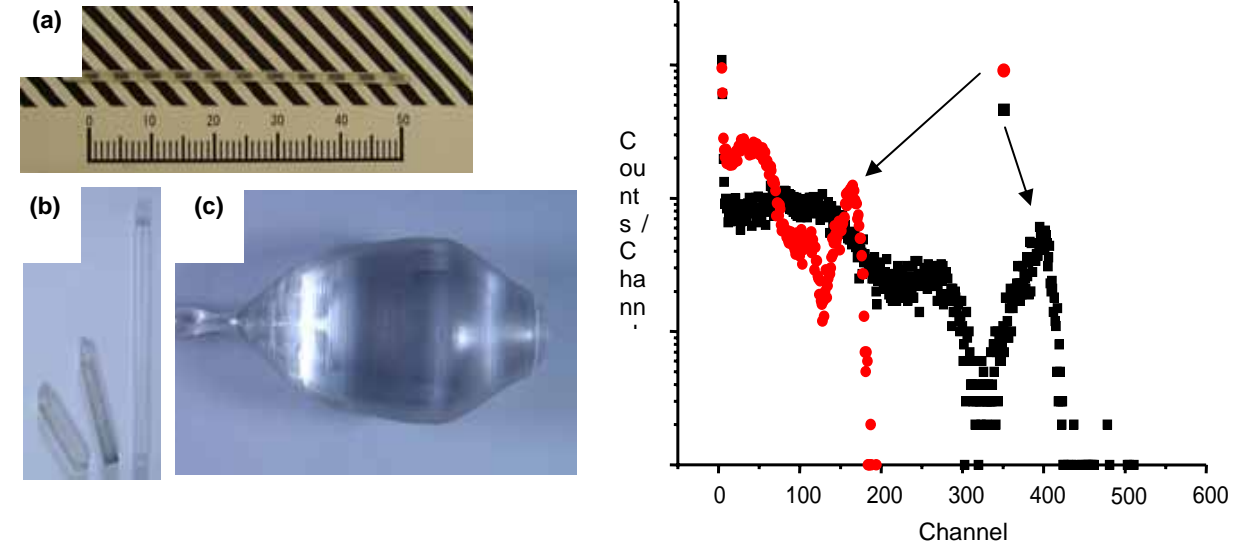


図1 μ-PD法及びCz法で作製した Ce:Gd_{0.5}Y_{0.5}F₃単結晶(a)、Pr:LuAG単結晶(b),(c)

図2 Pr:LuAG単結晶のBGOとの発光量の比較

表1 各種シンチレータ結晶の特性比較

シンチレータ	Pr:LuAG	Ce : LSO	Ce:GSO	BGO
密度 (g/cm ³)	6.7	7.39	6.7	7.13
光量 (BGO比)	330	500-600	200 ~ 300	100
蛍光寿命 (ns)	17(90%) / 72(10%)	40	60	300
融点 ()	1950	2150	1950	1050
長所	製造が容易 短蛍光寿命	密度・発光量 ・短寿命	実績	安価・実績
短所	Prの偏析	Ceの偏析 製造 難 高価、崩壊	Ceの偏析 加工性	光量 長蛍光寿命
発光中心	Prの5d-4f	Ceの5d-4f	Ceの5d-4f	Biの6p-6s
応用	PET DOI、TOF、高性能化	PET DOI、高性能化	PET (汎用)	PET (汎用)

■ 研究体制

- ◆ 代表研究者
東北大学 多元物質科学研究所 教授 福田 承生
- ◆ 研究者
吉川 彰(東北大学) 早稲田 嘉夫(東北大学) 福村 裕史(東北大学) 畑中 耕治(東北大学) 菊地 昌枝(東北福祉大学) 小池 光(株コイケ) 望月 正美(株コイケ) 三木 常義(株コイケ) 津崎 卓司(株福田結晶技術研究所) 庄子 育宏(株福田結晶技術研究所) Lee Jong-Ho* (科学技術振興機構) 荻野 拓(科学技術振興機構) Andrey Novoselov* (科学技術振興機構) *旧メンバー
- ◆ 共同研究機関
東北大学、東北福祉大学、株式会社コイケ、株式会社福田結晶技術研究所

■ 研究期間

平成 15 年 2 月 ~ 平成 17 年 9 月