
高計数率用途を目的とした 超高速な透明セラミックスシンチレータの開発

Development of Ultrafast Transparent Ceramic Scintillator for High Counting-Rate Applications

H24助自70

代表研究者 柳田 健之 九州工業大学 若手研究者フロンティア研究アカデミー 准教授
*Takayuki Yanagida Associate Professor, Frontier Research Academy for Young Researchers,
Kyushu Institute of Technology*

Scintillators are one of the phosphors which convert high energy ionizing radiation to thousands of ultraviolet-visible photons immediately. Spectrum of applications of scintillators are quite wide and they are used in medical, security, well-logging, environmental monitoring, and basic physics sectors. Among these applications, one of the most famous ones is Positron Emission Tomography (PET). PET is a powerful tool to observe cancers in very early stages. Most recently, Ce-doped Lu_2SiO_5 (Ce:LSO) or Y admixed counterpart Ce:LYSO scintillators are mainly used in PET. In next generation PET, most researchers in this field pay their effort to develop time-of-flight (TOF) PET. In TOF-PET, spatial resolution and signal to noise ratio would be improved dramatically by using timing information. In order to develop TOF-PET, development of ultrafast scintillators with high effective atomic number is strongly required. The aim of this study is to develop transparent ceramic Yb-doped sesqui oxide scintillators for future TOF-PET application. By the vacuum sintering technique, I developed Yb differently doped sesqui oxide scintillators and examined their optical and scintillation responses. Due to Yb^{3+} charge transfer, scintillation wavelength of developed materials resulted ultraviolet to visible wavelengths and it well suited to conventional photodetectors, especially photomultiplier tube. Their scintillation decay time was ultrafast and resulted sub-ns. By irradiating ^{137}Cs gamma-ray, scintillation light yield was evaluated and it resulted several hundreds to thousands photons/MeV. As a result, optimum dopant concentration turned out to be few% in these material systems.

研究目的

シンチレータは核医学 (PET、X線CT)、サーベイメータ、資源探査、セキュリティ (空港、港湾の荷物検査機)、宇宙/素粒子物理、活断層探査などに利用されている放射線検出器のメインデバイスであり、単一の高エネルギー光子・粒子 (MeV) を数千から数万の可視光子

(eV) に変換する一種のコンバータである。特に高エネルギー光子は物質と相互作用しにくいいため、数-数十 cm厚の大型素子を使用する必要があるため、従来は単結晶が利用されてきた。しかしながら近年、レーザー分野において開発がなされた透明セラミックス材料の登場により、シンチレータ用途においても透明セラミックス化の研究が盛んに行われるようになった。

これまで私は Yb^{3+} を添加した Sc_2O_3 、 Y_2O_3 、 Lu_2O_3 (セスキオキサイド)が常温でも一般的な検出器系で計測可能でなおかつ高速な発光を示すことを発見した(T. Yanagida et al., APPL. Phys. Express, accepted 2011)。私はこれらの材料を用い、常温で明瞭な ^{137}Cs 照射時の光電吸収ピークを検出したが、従来のYb系シンチレータ研究では100 K程度での低温データですら光電吸収ピークの検出は一例しかなされておらず、Yb添加シンチレータにおいて室温での明瞭な波高値スペクトル観測は正にブレイクスルーである。大型研究機関ではガーネット、ペロブスカイト、リン酸塩などシンチレータとして考えられる組成はほぼ試行されていたが、そもそも Ce^{3+} 等他の賦活剤を添加してもシンチレータとしては全く発光しないセスキオキサイド系は材料探索の網から漏れていたためである。

そこで本研究では、ホストを Lu_2O_3 に絞って、最適な合成条件・賦活剤濃度を決定することを目的とする。当該研究はその堵についたばかりであるため、最適な Yb^{3+} の添加濃度を決定するに至っておらず、また当然その組成での最適な合成条件を見出すにもたっていない。一般にシンチレータは当初の発見時よりも組成の最適化によって大幅な特性向上が図られることが多く、その意味で当該材料はまだ多くのポテンシャルを秘めていると考えられる。本研究では、サンプルの合成、SEMによる粒界観察、光物性、放射線応答特性評価の一連の実験を垂直統合的に行うことで、 Yb^{3+} の最適な添加濃度および最適な合成条件を明らかにする。

概要

陽電子断層撮影 (Positron Emission Tomography: PET) は癌の初期診断において優れた効果を発揮しており、多くの医療機関に普及しているが、更なる高精度化には511 keV電子陽電子

対消滅線の到達時間差情報 (Time Of Flight: TOF) の利用が不可欠とされている。PET等の放射線診断機器にはシンチレータと呼ばれる素子が用いられている。シンチレータは単一のkeV-MeV程度のエネルギーをもつ高エネルギー光子や粒子を、数千から数万個のeVレベルのエネルギーを持つ光子へと、ホスト-発光中心間の大規模な量子分割によって変換するコンバータである。これまでのTOF-PET研究では、 BaF_2 、 CsF 等の内殻電子の遷移による発光を利用する手法が検討されてきているが、発光波長が真空紫外域である、検出効率の高い材料がない、遅い発光が伴い時間分解能を下げる、潮解性がある (CsF) 等の問題点が指摘されている。そのためTOF-PET研究は1980年代より行われているにも関わらず、未だ大きく実用化はされていない。幾つかのメーカーでは、 Ce:L(Y)SO シンチレータを用いた汎用PET機種にTOF機能を追加して販売を行っているが、汎用機にTOF機能を追加しただけでも、大幅な画質の向上が達成されており、仮にこれを高速シンチレータに代替出来れば、TOF-PETの本格的な普及につながると考えられる。PET用シンチレータは既に第一世代 (BGOシンチレータ)、第二世代 (Ce:LYSO) 搭載機が標準となっており、 Ce:LYSO を多少性能的に上回る程度では置き換えは起こらず、現在、多くの研究機関がTOF-PET用シンチレータの開発競争を行っている。

本研究では、 Yb^{3+} の電荷移動遷移を基づく新規透明セラミックスセスキオキサイドシンチレータの開発を行い、特にYb添加濃度の最適値を明らかとすることを目的とする。候補となる材料は私が発見した $(\text{Lu}_x\text{Re}_{1-x})_2\text{O}_3$ 型のホストに Yb^{3+} を添加したものとなる (Reは希土類)。私は透明セラミックスYb添加セスキオキサイドにおける高速な発光を発見しており (T. Yanagida

et al., Appl. Phys. Express 4 126402 2011)、本研究では組成・合成条件最適化によって特性の向上を目指す。当該材料は広くシンチレータとして用いられている単結晶では 2400℃以上の高温でなければ合成出来ないため、製造コスト的観点からは普及が困難であるが、透明セラミックスでは1800℃前後で合成が可能である。そのため普及までを考えると、透明セラミックスにて開発を行った方が、利点大きい。

材料の設計としては、 Yb^{3+} の添加濃度を0.1%-100%で変化させ、 Lu_2O_3 に添加した場合の最適な賦活剤濃度を決定する。合成自体は、放電プラズマ焼結装置を用いて行う。得られたサンプルに関しては、光学研磨を行った後に、異相の確認(粉末X線回折)、組成分布(電子線微小部分分析:EPMA)等の評価を行い、目標とする材料が得られているかを評価した。当該評価で問題がなかったサンプルに関しては、光学材料として必須である光物性(透過率、反射率、屈折率、励起・発光波長、PL蛍光寿命)の評価を行った。

これら積分型計測法によって Yb^{3+} の電荷移動遷移が発現した材料に対しては、実際の応用を模擬したパルスカウンティング型のガンマ線応答評価を行う。ここでは、PETと同様に電子陽電子対消滅線(511 keV)と高速波形整形増幅器を用いて絶対発光量を測定する。さらに私が開発した超短パルスX線励起ストリークシステムを用いて、高速な Yb^{3+} の電荷移動遷移発光を詳細に評価した。

以上のような実験を系統的に行った結果、Ybの最適添加濃度は1-3%前後と求まり、その際のシンチレーション蛍光減衰時定数はサブナノ秒、シンチレーション発光量は500-1000 ph/MeV、ホストにScを用いた場合には数千 ph/MeVとなった。

－以下割愛－