

平成22年 4月 10日現在

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2007～2010

課題番号：19686001

研究課題名(和文) 真空紫外域で発光する新機能シンチレータ結晶材料の開発

研究課題名(英文) Development of the novel scintillator crystal with UV luminescence

研究代表者

吉川 彰 (AKIRA YOSHIKAWA)

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号：50292264

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：結晶工学、先端機能デバイス、放射線、X線、粒子線、医療福祉

## 1. 研究計画の概要

放射線を検出するには、放射線を光に換えるシンチレータ結晶と光を電気信号に換える光電子増倍管もしくはフォトダイオードが用いられる。光電子増倍管は450 nm付近に、フォトダイオードは600 nm付近に最大感度波長域を有するため、1895年のレントゲンによるX線の発見以来100年余に渡り、全てのシンチレータ結晶開発者は、中・長波長域に発光する結晶を開発することが一つの重要な必要条件であることを「常識」として研究を行ってきた。それに対し、本研究では200 nm以下の極短波長域に発光するシンチレータ結晶の開発を行う。見方によっては、当該研究は、既存のシンチレータ設計指針(常識)に対する挑戦とも言えよう。

ただし、当該研究は、奇を衒った研究を妄想しているわけではなく、後述の通り、検出デバイスに、最近実用化レベルに急成長したNanoStrip Gas Counter (NSGC) 等の次世代ガスカウンタを用いることを想定した実践的技術基盤に則った構想である。成功すれば、現状、4 mm程度の分解能しか持っていないPETなどの機能性情報が得られる医療画像装置において、100-200  $\mu\text{m}$  の画期的な高分解能化が実現することとなる。

## 2. 研究の進捗状況

本研究では200 nm以下の極短波長域に発光する新規VUVシンチレータの開発を中心とし、その探索合成、発光メカニズム、クエンチメカニズムの理解、更には、高品質バルク単結晶および形状制御単結晶作製技術の確立までを研究開発対象としている。これに対し、200 nm以下の発光を実現する最適母結晶の決定、賦活剤、添加剤の最適量の決定、メカニズム説明のためのモ

デル構築、形状制御結晶成長技術の確立までを遂行した。

具体的にはフッ化物系の材料を中心に、 $\text{Nd}^{3+}5f-4f$ 遷移、 $\text{Er}^{3+}5f-4f$ 遷移、 $\text{Tm}^{3+}5f-4f$ 遷移、Core-valence発光等、室温で真空紫外に発光するメカニズムを有する材料の探索合成を行い、その添加剤最適量を決定した。100を超える探索合成した単結晶の中から、 $\text{Nd}:\text{LaF}_3$ 、 $\text{NdF}_3$ 、 $\text{Nd}:\text{LuLiF}_4$ 、 $\text{Er}:\text{LiCAF}$ 、 $\text{Tm}:\text{LiCAF}$ 、 $\text{KMgF}_3$ において、真空紫外の発光が確認された。中でも、 $\text{Nd}:\text{LuLiF}_4$ において強い発光が得られたので、これを用いて、ガスカウンタとアセンブルすることによる画像取得の検討を開始した。

材料中に酸素のコンタミネーションがあると真空紫外域で吸収が起こってしまい、真空紫外発光を効率良く得ることができない。そのため、合成炉の到達真空度を1桁向上させることも行った。また、賦活剤の固溶限界に関する追跡も行った。固溶限界を超えると第2相として析出して来るため、結晶の概観が不透明となっている箇所を、電子顕微鏡を用いて観察し、組成分析等を通じて、第2相の同定を行った。これらの知見に基づき、今後は引き上げ法を用いた大口径化・高品質化にも取り組んでいきたい。

## 3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

(理由)

当初目標としていたシンチレータ結晶の性能は達成することができ、計画を前倒してガスカウンタとの組み合わせによる画像取得も行うことができた。最終年度には、この画像取得の結果を踏まえてS/N比の向上等、残されている課題を改善することに注力する。

#### 4. 今後の研究の推進方策

研究計画の最終段階である画像取得は既に達成しているが、さらなる性能向上のために残された課題となる、酸素のコンタミネーションの除去、賦活剤の固溶濃度の最適化などを行う。また、引き上げ法を用いた大口径化も行いつつ、結晶性の均一化にも注力する。

#### 5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

- ① A. Yoshikawa 他 5 名, “Phase transition control, melt growth of (Gd, RE)F<sub>3</sub> single crystal and their luminescent properties”, J. Lum., 129, (2009) 1646-1650. (査読有)
- ② M. Cadatal 他 11 名 (研究代表者は 11 番目) “Vacuum ultraviolet luminescence from a micro-pulling-down method grown Nd<sup>3+</sup>:(La<sub>0.9</sub>, Ba<sub>0.1</sub>)F<sub>2.9</sub>” J. Lum., 129, (2009) 1629-1631. (査読有)

[学会発表] (計 41 件)

- ① A. Yoshikawa 他 8 名 (研究代表者は 1 番目), “Growth and luminescent properties of Nd:BaY<sub>2</sub>F<sub>8</sub> single crystal for VUV emitting scintillator” 5<sup>th</sup> International Symposium on Laser, Scintillator and Non Linear Optical Materials, 3-5 Sept. 2009, Pisa, Italy
- ② J. Martincik 他 7 名 (研究代表者は 8 番目), “VUV-UV-visible luminescence of Nd<sup>3+</sup>, Er<sup>3+</sup> and Tm<sup>3+</sup> in LiLuF<sub>4</sub> single crystal host” 7th International Conference on Luminescent Detectors and Transformers of Ionizing Radiation LUMDETR 2009, Jul. 12-17, 2009, Krakow, Poland.

[産業財産権]

○出願状況 (計 5 件)

①

名称: フッ化物結晶、真空紫外発光素子及び真空紫外発光シンチレーター

発明者: 吉川彰、柳田健之、横田有為、福田健太郎、河口範明、須山敏尚

権利者: 東北大学

種類: 特許権

番号: 特願 2009- 294829

出願年月日: 2009 年 12 月 25 日

国内外の別: 国内

②

名称: 希土類含有 K<sub>3</sub>LuF<sub>6</sub>、真空紫外発光素子及び真空紫外発光シンチレーター

発明者: 吉川彰、柳田健之、横田有為、福田健太郎、河口範明、須山敏尚

権利者: 東北大学

種類: 特許権

番号: 特願 2009-136181

出願年月日: 2009 年 6 月 5 日

国内外の別: 国内