

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 19 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2014

課題番号：22360035

研究課題名(和文)全身用PET装置のための臭化タリウム半導体センサーの実用化に関する研究

研究課題名(英文)Development of thallium bromide semiconductor detectors for whole-body PET scanners

研究代表者

人見 啓太郎 (HITOMI, KEITARO)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：60382660

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,300,000円

研究成果の概要(和文)：全身用PET装置のための臭化タリウム(TlBr)半導体センサーの開発を行った。大型のTlBr結晶の育成に成功し、5 mm × 5 mm × 5 mmのTlBrセンサーを安定的に製作できる技術を確立した。開発したセンサーは6.5 nsと高い時間分解能を示した。センサーは室温において連続48時間安定に動作し、PET用センサーとして実用に耐える安定性を有していることが分かった。また、開発したセンサーは室温で662 keVのガンマ線に対して1.1%と世界最高のエネルギー分解能を示した。開発したTlBrセンサーはPET装置への応用だけでなく、その他のガンマ線高度利用分野への応用に大変有望である。

研究成果の概要(英文)：Thallium bromide (TlBr) semiconductor detectors were developed for whole-body positron emission tomography (PET) scanners. Large volume TlBr crystals were grown successfully and technologies for stable fabrication of 5 mm × 5 mm × 5 mm TlBr detectors were established in this study. The developed TlBr detector exhibited a timing resolution of 6.5 ns. The TlBr detectors operated stably for 48 hours at room temperature and the result indicates that the TlBr detectors have sufficient stability as gamma-ray detectors for PET scanners. The TlBr detector exhibited the best energy resolution of 1.1% FWHM for 662-keV gamma rays at room temperature. The TlBr detectors developed in this study are very promising not only for PET applications but also for other advanced gamma-ray applications.

研究分野：工学

キーワード：PET 半導体検出器 化合物半導体 ガンマ線検出器 臭化タリウム

1. 研究開始当初の背景

陽電子断層撮影装置(positron emission tomography: PET)は脳の高次機能研究、がんの超早期発見などへの応用が期待されている。PET では生体内から放出される 511 keV のガンマ線を検出することにより画像を得る。しかしながら、既存の PET 装置はシンチレータと呼ばれる結晶を用いてガンマ線を光に変換した後に、光電子増倍管と呼ばれる真空管を用いてシンチレーション光を電気信号へ変換している。このため、既存の PET 装置ではセンサーの大きさが制限となって空間分解能が数 mm 程度に制限されてしまうという欠点がある。この欠点を解決する方法の一つが半導体を用いたガンマ線センサーの利用である。半導体センサーはガンマ線を直接電気信号へ変換するために小型化が容易であり、電極を小さくすることで高い空間分解能を得ることができるという利点を持つ。近年、化合物半導体の一つであるテルル化カドミウム(CdTe)を用いた半導体 PET が開発され、1 mm 以下の空間分解能が実現されている。しかしながら、CdTe はガンマ線の吸収効率が低く、また、融点が 1092 °C と高く、結晶育成が困難で非常に高価であるという欠点がある。このため、多数のセンサーを必要とするヒト全身用 PET 装置を CdTe センサーを用いて実現することは難しい。

臭化タリウム(TlBr)はガンマ線の吸収効率が非常に高い化合物半導体である。TlBr の融点は 460 °C と低いために結晶の育成が容易であり、低価格でガンマ線センサーを製作できる可能性がある。このため、TlBr センサーが実用化されれば、高い空間分解能を持つヒト全身用半導体 PET 装置を実現することが可能になると期待されている。TlBr はガンマ線センサー材料として研究がなされてきたが、PET 用センサーとして実用化を考えた場合、大型結晶の育成、時間分解能の改善、センサーの安定性の改善が求められている。

2. 研究の目的

本研究ではヒト全身用半導体 PET 装置実現に向けて化合物半導体 TlBr を用いたガンマ線センサーの開発を行い、その実用化を目指した研究を行うことが目的である。この目的を達成するために、TlBr 大型結晶の育成、時間分解能の改善、センサーの安定性の改善を行う。

3. 研究の方法

TlBr 半導体センサーの実用化を目指して以下の研究を実施した。

(1)結晶育成

半導体ガンマ線センサーの性能はその母材となる半導体の品質で決定される。このため本研究では高純度の TlBr 結晶の育成を行った。さらに、センサー実用化にとって重要

な低コスト化を目指し、育成結晶の大型化を試みた。

(2)結晶評価

育成した TlBr 結晶の純度を評価するために ICP-MS 法を用いて不純物の元素分析を行った。また、TlBr 結晶中の電子の移動度、寿命時間の評価を行った。

(3)時間分解能評価

PET 用センサーにとって重要な時間分解能測定を行った。TlBr センサーとフッ化バリウムシンチレーションセンサーの同時計数測定を行うことにより、タイミングスペクトルを測定し、時間分解能を評価した。

(4)安定性評価

センサーにとって重要なセンサー特性の安定性の評価を行った。TlBr センサーを室温および -20 °C において連続動作させて、特性変化を観察した。

(5)ガンマ線スペクトル評価

TlBr センサーは PET への応用のみならず、その他のガンマ線高度利用への応用が期待されている。このため TlBr センサーの基礎特性であるエネルギー分解能、電子正孔対生成エネルギーの評価を行った。

4. 研究成果

(1)大型結晶の育成に成功

TlBr センサーを実用化するためには、低コスト化が重要となる。このため育成結晶の大型化を試みた。図 1 は本研究で開発した TlBr 結晶育成用の水平帯域炉である。結晶育成管の内径を 18.5 mm とすることで従来よりも大型の TlBr 結晶を育成することに成功した。結晶の大型化により、5 mm × 5 mm × 5 mm の TlBr センサーを安定的に製作できる技術を確立した。図 2 は 5 mm × 5 mm × 5 mm の TlBr 結晶である。本研究の成果を基に結晶の更なる大型化を図ることで TlBr センサーの低コスト化による量産が今後の展望として考えられる。

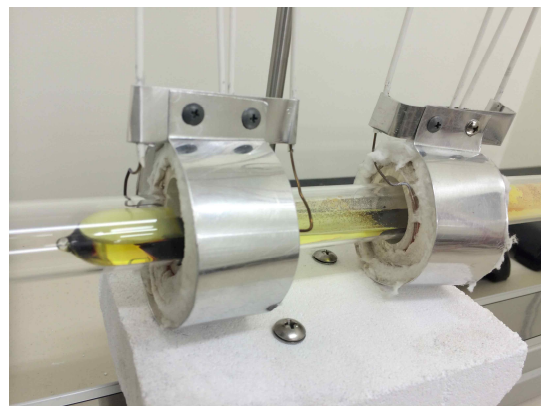


図 1 TlBr 結晶育成用の水平帯域炉

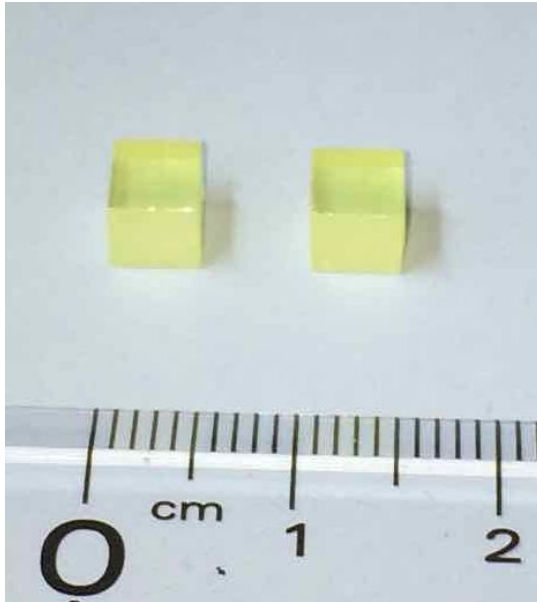


図2 TlBr 結晶(5 mm × 5 mm × 5 mm)

(2)結晶の高純度化に成功

ガンマ線センサーに用いられる半導体結晶には高い純度が求められる。本研究では水平帯域炉を用いて結晶の純化を行い、結晶育成を行っている。本手法による不純物除去効果を確認するために ICP-MS 法を用いて育成した結晶の不純物元素の分析を行った。測定対象とした元素は Ag、Al、Bi、Ca、Cd、Co、Cr、Cs、Cu、Fe、La、Mg、Mn、Na、Ni、Pb の 16 元素である。ICP-MS 法による元素分析の結果、測定を行った全ての元素の濃度が定量下限値以下(< 1 ppm)であった。このことから、本手法により高純度の TlBr 結晶が育成できることが確認できた。

(3)結晶の高品質化に成功

ガンマ線センサーに用いる半導体の性能指標の一つに担体の移動度-寿命時間積がある。本研究では電極面積 2 mm × 2 mm、厚さ 4.4 mm の TlBr センサーを製作し、結晶中の電子の移動度および寿命時間の評価を行った。育成した TlBr 結晶中の電子の移動度は 24.2 cm²/Vs であった。また、移動度-寿命時間積は 2.1 × 10⁻³ cm²/V であった。これらの値から電子の寿命時間は 86.8 μs と計算できる。本研究で育成した TlBr 結晶は非常に長い電子の寿命時間を持ち、市販の CdTe 結晶に匹敵する移動度-寿命時間積を示した。これは本研究により高品質の TlBr 結晶が得られたことを示している。

(4)高い時間分解能を達成

PET では 2 本のガンマ線を同時に検出することにより画像を得る。このため、PET 用のセンサーには高い時間分解能が要求される。本研究では低ノイズの TlBr センサーの開発に成功し、室温において 6.5 ns の時間分

解能を得た。図 3 に得られたタイミングスペクトルを示す。

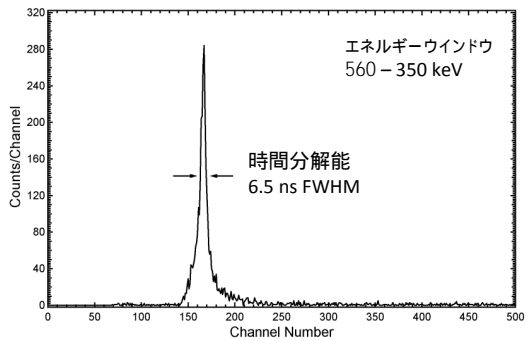


図3 TlBr センサー(0.5 mm 厚)とフッ化バリウムシンチレーションセンサーから室温で得られたタイミングスペクトル

(5)長期安定動作に成功

TlBr センサーは良好な性能を示すが、動作の安定性に問題があり、実用化が困難であった。本研究では TlBr センサーの安定動作を実現する Tl 電極を採用し、センサーの安定性の評価を行った。本研究で製作した TlBr センサーを室温で連続 48 時間動作させてガンマ線スペクトル測定を行ったところ、センサーは安定に動作し、特性変化が見られなかった。PET 装置は医療現場において実際に使用される場合は 8 時間程度安定に動作すれば実用上は問題ないと考えられることから、本研究で開発した TlBr センサーは PET 装置へ応用した場合に十分に実用に耐える安定性を有していることが分かる。また、センサーを電子冷却素子を用いて -20 °C 程度に冷却することによりセンサーの安定性は飛躍的に伸び、約 2 ヶ月間連続動作させても特性に大きな変化が見られないことを確認した。

(6)世界最高のエネルギー分解能を達成

エネルギー分解能はガンマ線センサーにとって重要な性能指標の一つである。本研究で製作した TlBr センサーを用いてガンマ線スペクトルの測定を行い、エネルギー分解能の評価を行った。開発したセンサーは室温で 662 keV のガンマ線に対して 1.1%と世界最高のエネルギー分解能を示した。図 4 に TlBr センサーから得られた ¹³⁷Cs スペクトルを示す。図に示すように TlBr センサーは NaI(Tl) シンチレーションセンサーを凌駕するエネルギー分解能を示した。また、TlBr センサーは室温で動作しているにもかかわらず、液体窒素温度で動作している Ge センサーに迫るエネルギー分解能を示した。開発した TlBr センサーは高検出効率、高エネルギー分解能を示すために PET 装置への応用のみならず、ガンマ線スペクトロメータやその他のガンマ線高度利用分野への応用に大変有望であることが分かった。

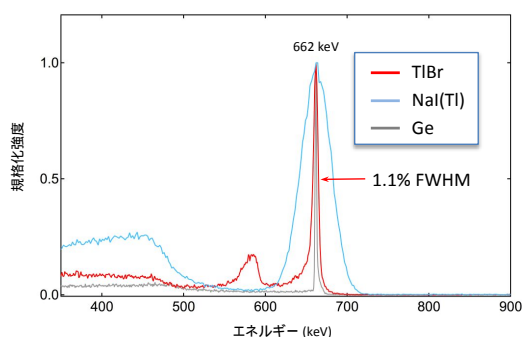


図 4 TlBr、Ge、NaI(Tl)センサーから得られた ^{137}Cs スペクトルの比較

(7)電子正孔対生成エネルギーの測定に成功
半導体ガンマ線センサーのエネルギー分解能を決定する重要な基礎特性である電子正孔対生成エネルギーの測定を行った。得られた TlBr 結晶中の電子正孔対生成エネルギーは 5.5 eV であった。この値は理論値よりも低く、TlBr 結晶がガンマ線センサー材料として大変有望であることが改めて示された。

5 . 主な発表論文等

(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 8 件)

1. K. Hitomi, T. Onodera, S.-Y. Kim, T. Shoji, K. Ishii, Characterization of pixelated TlBr detectors with Tl electrodes, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 747, 7-12, 2014. (査読有).
DOI: 10.1016/j.nima.2014.02.020
2. K. Hitomi, T. Shoji, K. Ishii, Advances in TlBr detector development, Journal of Crystal Growth, 379, 93-98, 2013. (査読有).
DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2013.03.002
3. K. Hitomi, T. Tada, T. Onodera, T. Shoji, S.-Y. Kim, Y. Xu, K. Ishii, Timing performance of TlBr detectors, IEEE Transactions on Nuclear Science, 60(4), 2883-2887, 2013. (査読有).
DOI: 10.1109/TNS.2013.2268855
4. K. Hitomi, T. Tada, T. Onodera, S.-Y. Kim, Y. Xu, T. Shoji, K. Ishii, TlBr capacitive Frisch grid detectors, IEEE Transactions on Nuclear Science, 60(2), 1156-1161, 2013. (査読有).
DOI: 10.1109/TNS.2012.2217155
5. K. Hitomi, T. Tada, S.-Y. Kim, Y. Wu, T. Tanaka, T. Shoji, H. Yamazaki, K. Ishii, Recent development of TlBr

gamma-ray detectors, IEEE Transactions on Nuclear Science, 58(4), 1987-1991, 2011. (査読有).
DOI: 10.1109/TNS.2011.2123115

[学会発表](計 40 件)

1. K. Hitomi, T. Onodera, S.-Y. Kim, T. Shoji, K. Ishii, Characterization of TlBr gamma-ray detectors, 2014 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, and 21st Symposium on Room-Temperature Semiconductor X-Ray and Gamma-Ray Detectors, Seattle, USA, Nov. 8 - 15, 2014.
2. K. Hitomi, T. Onodera, S.-Y. Kim, Y. Xu, T. Shoji, K. Ishii, Development of pixelated TlBr detectors, 2013 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, and Room-Temperature Semiconductor X-Ray and Gamma-Ray Detectors Workshop, Seoul, Korea, Oct. 27 - Nov. 2, 2013.
3. K. Hitomi, T. Tada, T. Onodera, T. Shoji, S.-Y. Kim, Y. Xu, K. Ishii, Timing performance of TlBr detectors, 2012 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, and Workshop on Room-Temperature Semiconductor X-Ray and Gamma-Ray Detectors, Anaheim, USA, Oct. 27 - Nov. 3, 2012.
4. K. Hitomi, T. Tada, S.-Y. Kim, Y. Wu, H. Yamazaki, T. Shoji, K. Ishii, Semiconductor detectors fabricated from TlBr crystals, 2011 MRS Spring Meeting and Exhibit, San Francisco, USA, Apr. 25 - 29, 2011.
5. K. Hitomi, K. Ishii, Y. Kikuchi, T. Tanaka, H. Yamazaki, S.-Y. Kim, T. Shoji, Evaluation of TlBr strip detectors for medical imaging applications, SPIE Optics + Photonics, Conference 7805, Hard X-ray, Gamma-Ray, and Neutron Detector Physics XII, San Diego, USA, Aug. 2 - 4, 2010.

6 . 研究組織

(1)研究代表者

人見 啓太朗 (HITOMI, KEITARO)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：60382660