

令和 4 年 6 月 27 日現在

機関番号：12301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2021

課題番号：18K07664

研究課題名（和文）微細周期構造形成による放射線検出用蛍光体の高性能化を目指した基礎研究

研究課題名（英文）Study on fabrication of scintillation detectors with periodic microstructures

研究代表者

三浦 健太 (MIURA, Kenta)

群馬大学・大学院理工学府・准教授

研究者番号：40396651

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：医療分野で癌の診断などに用いられるPET（Positron Emission Tomography：陽電子放射断層撮像法）の研究開発においては、次世代型のTOF（Time of Flight）-PETが注目されており、TOF-PET用シンチレータ（放射線照射により蛍光を発する物質）として、LSO結晶が多く用いられている。本研究では、簡便かつ高スループットが期待できる、二光束干渉露光法を含んだ独自の作製プロセスを用い、ミクロンオーダーの周期を持つ微細周期構造をLSOシンチレータ結晶の表面に形成することで、放射線照射時に発生する蛍光のLSO結晶内部での全反射抑制の可能性を検討した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、シンチレーション検出器の光センサーへの蛍光の到達光量や到達時間の改善が見込まれ、LSO結晶を用いたシンチレーション検出器の時間分解能の向上が期待できることから、放射線医学における画像診断技術の発展への貢献および大きな社会的波及効果が期待できる。

研究成果の概要（英文）：The demonstration of integrating a simple one-dimensional (1-D) periodic microstructure and a light-emitting zinc oxide (ZnO) thin film on a silicon substrate using a simple process with two-beam interference lithography and sputtering was presented. A 1-D microstructure composed of ZnO was obtained using our fabrication process without using a photomask and dry etching. The intensity of a photoluminescence peak observed from a sample with the periodic microstructure was approximately six times stronger than that without it. The light-extraction efficiency from the ZnO thin film seems to be improved by the integration of the 1-D periodic microstructure. Such techniques are also expected to be applied to improve performance of medical diagnosis systems using scintillators such as positron emission tomography (PET).

研究分野：電子デバイス工学

キーワード：微細周期構造 蛍光体 光取り出し効率 スパッタ ZnO

1. 研究開始当初の背景

医療分野で癌の診断などに用いられる PET (Positron Emission Tomography : 陽電子放射断層撮像法) [1]の研究開発においては、次世代型として TOF(Time of Flight)-PET が盛んに研究されており、TOF-PET 用シンチレータ (放射線照射により蛍光を発する物質) として、LSO ($\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$) 結晶が多く用いられている [2]. LSO は、他のシンチレータ結晶に比べ、蛍光出力が高い上に蛍光減衰時間が短い (約 40ns) など、TOF-PET の時間分解能を向上させる上で多くの優位性を持つ。しかしながら、LSO は、他のシンチレータと同様、屈折率が高く (PET で利用する γ 線の照射時の発光波長 420nm に対し、屈折率 1.82)、光センサー受光部のガラス窓 (屈折率 1.5 程度) や接着剤 (屈折率 1.4 程度) との大きな屈折率差により、LSO 結晶内部からの発光の一部が境界面で全反射してしまい、光センサーに到達する蛍光の光量低下や到達時間の遅れが生じる。これが TOF-PET の更なる性能向上の妨げとなっている。

この問題を解決する手段として、Lecoq らは、シンチレータ表面に円孔型二次元微細周期構造を形成し、境界面での全反射を抑制する提案をしているが [3]、このタイプの構造は、高度な微細加工技術 (電子ビーム露光およびプラズマエッチング) を用いてパターンニングされるため、生産性 (スループット) の面で大きな課題がある。

2. 研究の目的

本研究では、簡便かつ高スループットが期待できる、二光束干渉露光法を含んだ独自の作製プロセスを用い、ミクロンオーダーの周期を持つ微細周期構造を LSO シンチレータ表面に形成することによる全反射の抑制を検討した。これにより、シンチレーション検出器の光センサーへの蛍光の到達光量や到達時間の改善が期待でき、LSO 結晶を用いたシンチレーション検出器の時間分解能の向上につながると考えられる。

3. 研究の方法

近年、微細周期構造を発光ダイオード(LED)に導入して光取り出し効率を向上させる試みがなされている [4]。一般に、LED を構成する半導体材料の屈折率は高いため、LED からの発光は、空気との境界で全反射される成分が存在し、これが観測される発光強度の低下につながる。ところが、境界に微細周期構造を付与すると、全反射される成分の一部が回折波として透過するようになり (全反射の抑制効果)、光取り出し効率を改善できる [5]。

研究代表者は、LSO に見立てた発光材料としての酸化亜鉛(ZnO)薄膜を Si 基板上にスパッタリング法で成膜し、更なるその試料の表面に、簡便な二光束干渉露光法およびリフトオフ法を組み合わせた独自のプロセス (プラズマエッチング無し) により、ZnO スパッタ膜からなる一次元微細周期構造を形成した。更に、この微細周期構造の効果を確認するため、作製した試料のフォトルミネッセンス(PL)スペクトルを、励起光源として He-Cd レーザー (波長 325nm) を用いて測定した。

4. 研究成果

試作した一次元微細周期構造 (凹凸の深さを約 100nm に設定) の走査型電子顕微鏡(SEM)像を図 1 に示す。広範囲にわたり、微細周期構造を形成できていることがわかる。この試料の PL スペクトルの測定結果を図 2 に示す。波長 420nm 付近の発光ピーク強度が、当該微細周期構造の効果により、約 1.7 倍に向上することを確認できた。二光束干渉露光法を用いた微細周期構造作製プロセスにおいて、従来、リフトオフ法の適用は難しいとされていたが、研究代表者は、フォトリソの厚さや露光条件 (露光強度および露光時間)、ZnO スパッタ膜の膜厚などを最適化することで、これを実現した。図 1 の微細周期構造は、表面に粗さが見られるが、この粗さが、表面での回折だけでなく光散乱も生じさせ、より一層の全反射抑制効果が得られていると考えている。

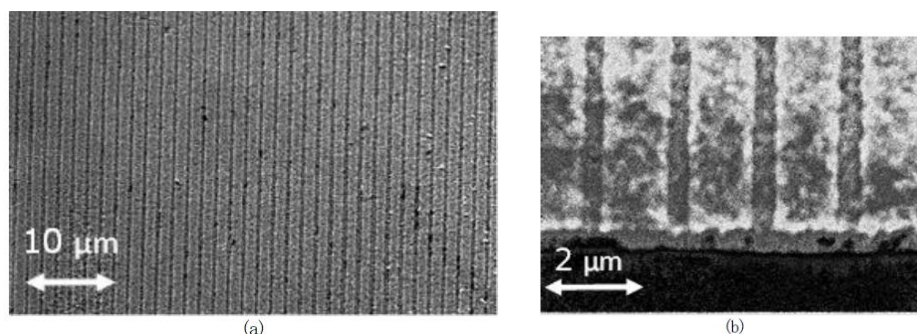


図 1. 作製した微細周期構造の(a)表面および(b)鳥瞰 SEM 像

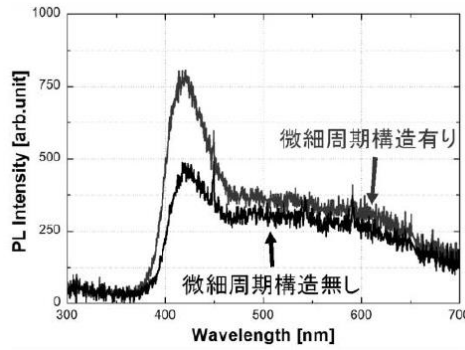


図 2. PL スペクトルの測定結果

図 3 には、深さを約 350nm に設定して作製した一次元微細周期構造の表面の SEM 像を示す。この深さ設定においても、問題なく微細周期構造を形成できることが確認された。図 4 は、この試料の PL スペクトルの測定結果である。波長 390~400nm 付近に発光ピークが観測され、微細周期構造が有る場合は、無い場合に比べ、観測されるピーク強度が約 6.0 倍にまで向上することを確認できた。以上の結果から、当該微細周期構造の凹凸の深さが、光取り出し効率に大きく影響することが確認され、現時点では、その深さを約 350nm に設定した場合が目的に適していることがわかった。

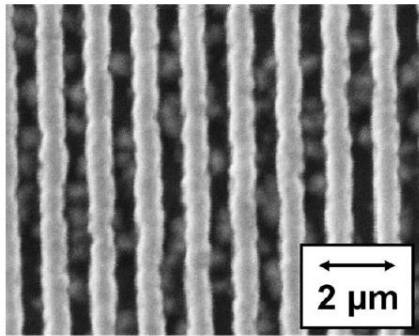


図 3. 作製した微細周期構造の表面の SEM 像

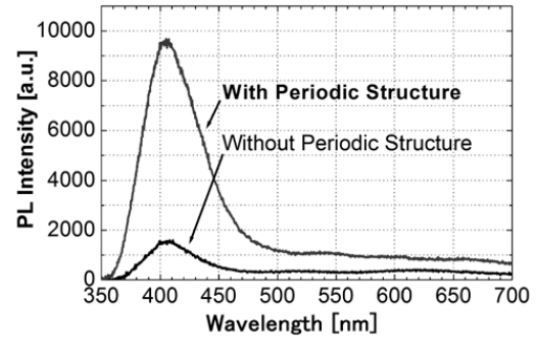


図 4. PL スペクトルの測定結果

このような微細周期構造は、LSO シンチレータ結晶の表面にも形成が可能であり、同様の光取り出し効率改善の効果（全反射抑制効果）が期待できる。これによって、LSO シンチレーション検出器の光センサーへの蛍光の到達光量や到達時間が改善され、検出器としての時間分解能が向上すれば、TOF-PET の診断画像の画質の向上につながり、薬剤投与量の削減（被ばくの低減）や検査時間の短縮および感度、特異度の向上が見込まれることから、放射線医学における画像診断技術の発展への貢献が大いに期待でき、大きな社会的波及効果が見込まれる。

【参考文献】

- [1] 北村 圭司, PET の原理と画像再構成, *Medical Imaging Technology*, 28 (2010) 381-383.
- [2] 澁谷 憲悟, 陽電子放射断層撮影(PET)装置とその検出器, *陽電子科学*, 1 (2013) 13-25.
- [3] M. Kronberger, E. Auffray, and P.R. Lecoq, Improving light extraction from heavy inorganic scintillators by photonic crystals, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 57 (2010) 2475-2482.
- [4] K. Orita, S. Tamura, T. Takizawa, T. Ueda, M. Yuri, S. Takigawa, and D. Ueda, High-extraction-efficiency blue light-emitting diode using extended-pitch photonic crystal, *Japanese Journal of Applied Physics*, 43 (2004) 5809-5813.
- [5] 菊田 久雄, 表面微細構造による光学機能の発現と応用技術, *精密工学会誌*, 74 (2008) 781-784.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 伊藤開, 橋本祐也, 三浦健太, 野口克也, 加田渉, 花泉修	4. 巻 J104-C
2. 論文標題 共スパッタ法を用いたAu添加Ta205薄膜の作製とその光学特性の評価	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 電子情報通信学会論文誌C	6. 最初と最後の頁 98-100
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.14923/transelej.2020PJF0001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 W. Kada, I. Sudic, N. Skukan, S. Kawabata, T. Satoh, J. Susaki, S. Yamada, T. Sekine, R.K. Parajuli, M. Sakai, K. Miura, M. Koka, N. Yamada, T. Kamiya, M. Jaksic, and O. Hanaizumi	4. 巻 450
2. 論文標題 Evaluation of scintillation properties of - and -SiAlON phosphors under focused microbeam irradiation using ion-beam-induced luminescence analysis	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B	6. 最初と最後の頁 157-162
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2018.09.002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 M. Kanakubo, K. Miura, K. Shimada, R. Fujii, K. Noguchi, W. Kada, and O. Hanaizumi	4. 巻 790
2. 論文標題 Photoluminescence properties of Yb and Ag co-doped Ta205 thin films	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Key Engineering Materials	6. 最初と最後の頁 43-47
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4028/www.scientific.net/KEM.790.43	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 M. Haruyama, Y. Suda, W. Kada, S. Onoda, T. Ohshima, K. Miura, and O. Hanaizumi	4. 巻 790
2. 論文標題 Fabrication of two-dimensional arrays of fluorescent centers in single-crystalline diamond using particle beam writing	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Key Engineering Materials	6. 最初と最後の頁 48-54
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4028/www.scientific.net/KEM.790.48	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 伊藤開, 橋本祐也, 三浦健太, 野口克也, 加田渉, 花泉修
2. 発表標題 共スパッタ法を用いた金添加酸化タンタル薄膜の作製と光触媒への応用に向けた基礎検討
3. 学会等名 電子情報通信学会 電子部品・材料研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 W. Kada, T. Satoh, S. Yamada, M. Koka, N. Yamada, K. Miura, and O. Hanaizumi
2. 発表標題 Ion beam induced luminescence spectroscopy and imaging for microscopic characterization of radiation-tolerant scintillator of SiAlON
3. 学会等名 24th International Conference on Ion Beam Analysis (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Yokoyama, W. Kada, M. Sakai, K. Miura, and O. Hanaizumi
2. 発表標題 Measurement of a therapeutic carbon beam with a G2000 glass scintillator
3. 学会等名 24th International Conference on Ion Beam Analysis (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小見航介, 吉田祥人, 三浦健太, 野口克也, 加田渉, 花泉修
2. 発表標題 スパッタリング法によるAl添加Ta2O5薄膜の作製とその近赤外発光特性の評価
3. 学会等名 第35回日本セラミックス協会関東支部研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 O. Matsumoto, M. Saito, D. Yamazaki, K. Noguchi, and K. Miura
2. 発表標題 Periodic microstructures for Improving light-extraction efficiencies of light-emitting ZnO/Si devices
3. 学会等名 23rd Microoptics Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 内堀智樹, 山本峻也, 小辻澄人, 三浦健太, 野口克也, 加田渉, 花泉修
2. 発表標題 スパッタリング法を用いて作製したZnO/Ag/ZnO透明導電膜の評価
3. 学会等名 電子情報通信学会2018年ソサイエティ大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山本峻也, 内堀智樹, 原祥大, 三浦健太, 野口克也, 加田渉, 花泉修
2. 発表標題 スパッタリング法によるZn過剰ZnO薄膜の作製と発光特性の評価
3. 学会等名 電子情報通信学会2018年ソサイエティ大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 名倉悠斗, 松井駿, 三浦健太
2. 発表標題 共スパッタ法による貴金属添加ZnO系薄膜の作製とその発光特性の評価
3. 学会等名 2021年度(第12回)電気学会東京支部栃木・群馬支所研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大貫裕也, 林義輝, 三浦健太
2. 発表標題 Cu/ZnOショットキー接合素子の作製と紫外光応答特性の評価
3. 学会等名 2021年度(第12回)電気学会東京支部栃木・群馬支所研究発表会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関