

令和 3 年 6 月 24 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K22942

研究課題名（和文）透明半導体を用いた光子・電子ハイブリッド検出器によるチェレンコフPETの実現

研究課題名（英文）Realization of Cherenkov PET with photon-electron hybrid detectors using transparent semiconductors

研究代表者

人見 啓太郎（Hitomi, Keitaro）

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号：60382660

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究ではガンマ線に対して吸収効率が非常に高い臭化タリウム(TlBr)結晶に塩化タリウム(TlCl)を加えることにより、短波長の光に対して透過率が高いTlBrCl混晶の育成を行った。TlBrCl混晶に電極を形成し、さらに電極面以外の1面に光検出器を接続し、光子・電子ハイブリッド検出器を開発した。開発した検出器により、半導体検出器としての電気信号とチェレンコフ光信号の同時取得に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では超高速・高位置分解能・高エネルギー分解能を有するPET(positron emission tomography)用のガンマ線検出器を実現するために、臭化タリウム(TlBr)結晶の透過率を塩化タリウム(TlCl)との混晶とする事により改善し、TlBrClハイブリッド検出器から電気信号とチェレンコフ光信号の同時取得に成功した。本研究の成果はPET装置の高度化に繋がるためにその社会的意義は大きい。さらに本研究で開発した検出器はPETのみならず、医学、工学、物理学など他分野への応用も期待できることからその学術的意義も大きいと考えられる。

研究成果の概要（英文）：Thallium bromo-chloride (TlBrCl) is a transparent semiconductor. TlBrCl crystals were grown by the traveling molten zone method using zone-purified materials in this study. Semiconductor detectors were fabricated from the TlBrCl crystals by evaporating electrodes on the crystals. A TlBr<sub>0.7</sub>Cl<sub>0.3</sub> semiconductor detector exhibited an energy resolution of 6.4% full width at half maximum for 511-keV gamma rays at room temperature. A silicon photomultiplier (SiPM) was coupled optically to a TlBr<sub>0.3</sub>Cl<sub>0.7</sub> semiconductor detector. The TlBr<sub>0.3</sub>Cl<sub>0.7</sub> detector was irradiated with a <sup>22</sup>Na gamma-ray source at room temperature. The gamma ray interacting with the detector material creates electron-hole pairs and Cherenkov photons simultaneously in the crystal. Simultaneous detection of the charge signal and the photon signal was achieved with the device in this study. The TlBrCl detectors are attractive for applications in positron emission tomography.

研究分野：放射線計測学

キーワード：チェレンコフPET 半導体検出器 臭化タリウム 塩化タリウム ガンマ線

## 1. 研究開始当初の背景

陽電子放出断層撮影(positron emission tomography, PET)は、がんの早期発見、脳の高次機能の研究に大変有効である。PET では放射性薬剤から 180 度反対方向に放出される 511 keV の対消滅ガンマ線を検出する事により放射線源の分布画像を得る。PET 用のガンマ線検出器はこの一对のガンマ線を同時に検出する必要があるため、高速な応答が求められる。さらに、511 keV の対消滅ガンマ線の飛行時間差からガンマ線源の位置を限定する TOF(time of flight)情報を利用して高い S/N 比を実現する TOF-PET 用の検出器には非常に高い時間分解能が求められる。また、ガンマ線の検出位置の決定精度が画像の空間分解能に影響を与えるため、PET 用のガンマ線検出器には高い位置分解能が求められる。また、PET 用のガンマ線検出器には 511 keV のガンマ線に対する高い検出効率が求められ、散乱ガンマ線と 511 keV を区別するのに足るエネルギー分解能が求められる。

PET 用のガンマ線検出器にはシンチレーション検出器が用いられている。シンチレーション検出器はシンチレータと呼ばれる結晶中でガンマ線が相互作用を起こした際に放出される光子を光検出器で検出することによりガンマ線を検出する。シンチレーション検出器は高速応答が特徴であり 500 ps 程度の時間分解能を有する検出器が TOF-PET に応用されている。しかし、シンチレーション検出器はガンマ線による発光を検出するために位置分解能を高くすることが難しい。また、シンチレーション検出器はガンマ線を光に変換し、さらに電気信号へ変換して検出する間接変換型の検出器であるためエネルギー分解能が低い。

ガンマ線の検出には半導体を利用することも可能である。半導体検出器はガンマ線の相互作用によって生成される電子正孔対を電極で収集して電気信号を得る直接変換型の検出器であるためエネルギー分解能が高いという特徴がある。また、電荷収集電極の位置からガンマ線の相互作用位置を決定することができるため位置分解能も高いという特徴がある。しかし、半導体結晶中の電子および正孔の移動速度は光に比べて低いため、半導体検出器は時間分解能がシンチレーション検出器に比べて低い。

近年、チェレンコフ光を利用した高速な検出器の TOF-PET への応用が注目を集めている。チェレンコフ光はガンマ線と物質が相互作用した際に放出される電子の速度が  $cn$  ( $c$ :光速、 $n$ :屈折率)を超える時のみに放出されるので、シンチレーション検出器よりも高い時間分解能が得られる。しかし、チェレンコフ光は発せられる光子数が少ないために、位置情報やエネルギー情報を取得することが非常に困難である。この問題を解決するために透明な半導体を用いて、時間情報はチェレンコフ光から取得し、位置およびエネルギー情報は電気信号から得るといった光子・電子ハイブリッド検出器の開発が進められている。透明な半導体の一つである臭化タリウム(TlBr)結晶からチェレンコフ光が観測され、ハイブリッド検出器への応用が検討されている(G.A. Estrada et al., *Phys. Med. Biol.*, 63, 2018. )。しかし、TlBr 結晶は黄色いため発生したチェレンコフ光が自己吸収されてしまうという欠点がある。このため、光の吸収端波長がさらに短い、自己吸収が少ない透明半導体を用いた光子・電子ハイブリッド検出器の開発が求められている。

## 2. 研究の目的

本研究では透明な化合物半導体を用いて光信号と電子信号を同時に取得する光子・電子ハイブリッド検出器を開発し、超高速・高位置分解能・高エネルギー分解能を有する PET 用のガンマ線検出器を開発することを目的とする。

## 3. 研究の方法

TlBr は原子番号が Tl で 81 番、Br で 35 番と高く、密度も  $7.56 \text{ g/cm}^3$  と高いためにガンマ線の吸収効率が非常に高い化合物半導体であり PET 用検出器の材料として有望である。また、TlBr は屈折率が 2.6 と高いために良好なチェレンコフ放射体でもある。しかし、TlBr 結晶は発生したチェレンコフ光の自己吸収が問題となる。本研究では TlBr に塩化タリウム(TlCl)を加えて混晶とすることで吸収端波長を短波長化することができる事に着目して、チェレンコフ光子の自己吸収が少ない臭塩化タリウム(TlBrCl)結晶を用いた光子・電子ハイブリッド検出器の開発を行った。

### (1) TlBrCl 結晶育成

これまでの研究では TlBrCl 半導体検出器からは十分な特性が得られていない(T. Onodera et al., *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 59, 2012.)。そこで本研究では TlBrCl 素材の高純度化を行うことで特性改善を行った。

市販の TlBr 素材と TlCl 素材を結晶育成に用いた。石英管に TlBr 素材と TlCl 素材を封入し、溶解することで TlBrCl 結晶を得た。本研究では塩素濃度の異なる TlBr<sub>0.7</sub>Cl<sub>0.3</sub> 結晶と TlBr<sub>0.3</sub>Cl<sub>0.7</sub> 結晶の育成を行った。半導体材料には高い純度が求められるため、帯域精製法を用いて純化を行った。純化後に帯溶解を 1 回行い結晶育成を行った。

育成した結晶の透過率を評価するために、育成した結晶をワイヤーソーを用いて切り出し、分光光度計を用いて透過率の測定を行った。

## (2) 半導体検出器としての評価

育成した  $\text{TlBrCl}$  結晶の半導体検出器としての特性評価を行った。ワイヤーソーを用いて育成した  $\text{TlBrCl}$  結晶を切り出し、表面を研磨した。結晶サイズを約  $5\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$  に加工した。真空蒸着法を用いて  $\text{Tl}$  金属を主とした電極を結晶上に形成した。結晶の1面に平板型の電極を形成し陰極とした。陰極に対向する面にガード電極で囲まれた  $1.5\text{ mm} \times 1.5\text{ mm}$  の電極を形成して陽極とした。導電性の接着剤で電極と導線を接続してガンマ線検出器とした。

製作した検出器に電荷有感型前置増幅器を接続し、その出力信号をデジタイザで取得することでガンマ線の測定を行った。511 keV の対消滅ガンマ線を放出する  $^{22}\text{Na}$  密封線源を用いて室温において製作した検出器によりガンマ線の波高値スペクトルを得ることで検出器の評価を行った。

## (3) 光子・電子同時読み出し

育成した  $\text{TlBrCl}$  結晶を約  $3\text{ mm} \times 3\text{ mm} \times 3\text{ mm}$  に加工し、結晶の1面に半導体光検出器(SiPM)を光学接続することにより、チェレンコフ光の計測を行った。基準検出器として  $\text{LYSO}$  シンチレーション検出器を用いて対消滅ガンマ線の同時計数を行った。各検出器からの信号をデジタイザで取得し、得られたデータの波形解析を行い、511 keV 消滅ガンマ線の検出タイミングを決定し、時間分解能を導出した。

$\text{TlBrCl}$  結晶に陰極と陽極を形成し半導体検出器として、さらに電極面以外の1面に SiPM を光学接続した。 $\text{TlBrCl}$  検出器の陽極に電荷有感型前置増幅器を接続し、その出力信号をデジタイザに入力した。さらに、SiPM からの信号もデジタイザに入力した。 $^{22}\text{Na}$  からのガンマ線を  $\text{TlBrCl}$  結晶に照射して電荷有感型前置増幅器からの電気信号と SiPM からの光信号の同時読み出しを行った。

## 4. 研究成果

### (1) $\text{TlBrCl}$ 結晶育成

本研究により得られた  $\text{TlBrCl}$  結晶を図1に示す。図から分かるように本研究では透明な  $\text{TlBrCl}$  結晶を育成することができた。塩素濃度を増加させる事により、結晶の色がより淡色となり、短波長の光の透過率が向上している事が目視でも確認できる。

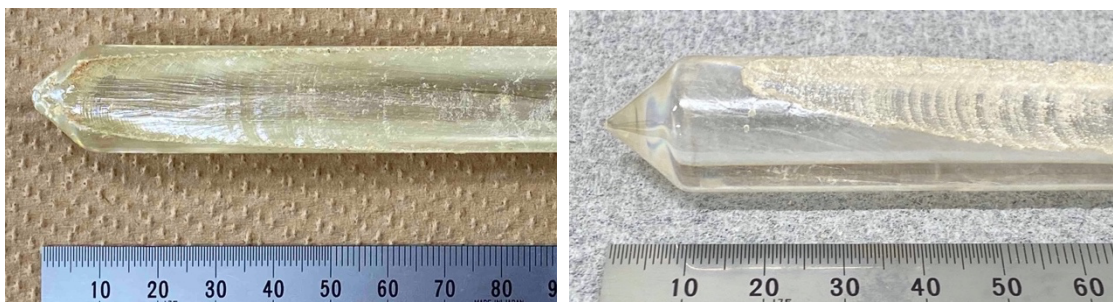


図1. 本研究で得られた  $\text{TlBr}_{0.7}\text{Cl}_{0.3}$  結晶(左)と  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  結晶(右)。

本研究で育成した  $\text{TlBrCl}$  結晶の透過率の測定結果を図2に示す。図には参照用に  $\text{TlBr}$  結晶の透過率の測定結果も示している。図から分かるように  $\text{TlBr}$  に  $\text{TlCl}$  を加えることにより短波長の光の透過率が改善していることが分かる。 $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  結晶が最も短い吸収端波長を示しており、この結果は図1の結晶の色と一致している。

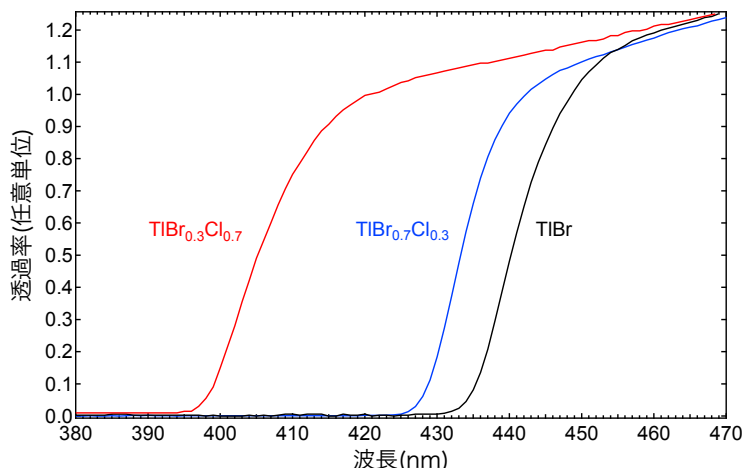


図2. 本研究で育成した  $\text{TlBrCl}$  結晶の透過率。

(2) 半導体検出器としての評価

図3に本研究で製作した  $\text{TlBrCl}$  検出器の例を示す。図3は  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  結晶を用いた検出器であり、陽極のガード電極に囲まれた  $1.5\text{ mm} \times 1.5\text{ mm}$  の電極が見えている。

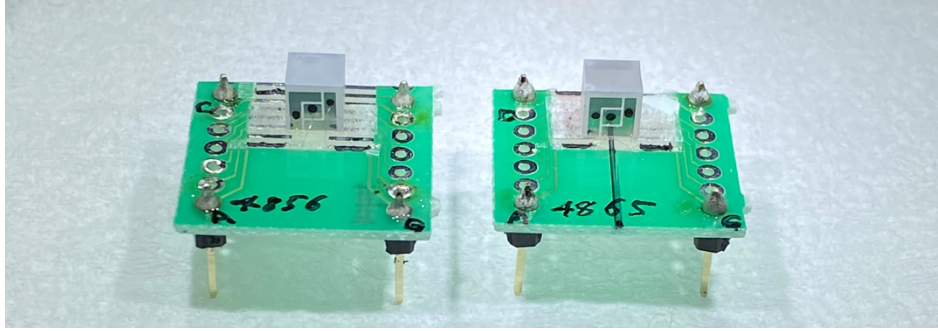


図3. 本研究で製作した  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  検出器。

$\text{TlBrCl}$  検出器を半導体検出器として動作させた際に得られた波高値スペクトルを図4に示す。 $\text{TlBr}_{0.7}\text{Cl}_{0.3}$  検出器からは  $^{22}\text{Na}$  から放出される  $511\text{ keV}$  と  $1275\text{ keV}$  のガンマ線の全エネルギーピークが明確に得られた。 $511\text{ keV}$  のピークのエネルギー分解能は  $6.4\%$  であった。明確なピークが得られたことから  $\text{TlBr}_{0.7}\text{Cl}_{0.3}$  結晶は良好な電荷輸送特性を有していることがわかる。一方、 $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  検出器からは  $511\text{ keV}$  と  $1275\text{ keV}$  の全エネルギーピークを得ることができなかった。これは  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  結晶の電荷輸送特性が低いことを意味している。本研究で製作した検出器では陰極と陽極の波高値の比を取ることで検出器中でのガンマ線の相互作用深さを決定することができる。陽極の波高値が高く出力される深さでの事象のみを用いたスペクトルを図4下の差し込み図に示す。この図から分かるように深さ弁別を行ったスペクトルからは明確な  $511\text{ keV}$  のピークが得られた。この結果から  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  検出器は相互作用深さ情報を用いることでエネルギー分解能が改善できることが示唆される。

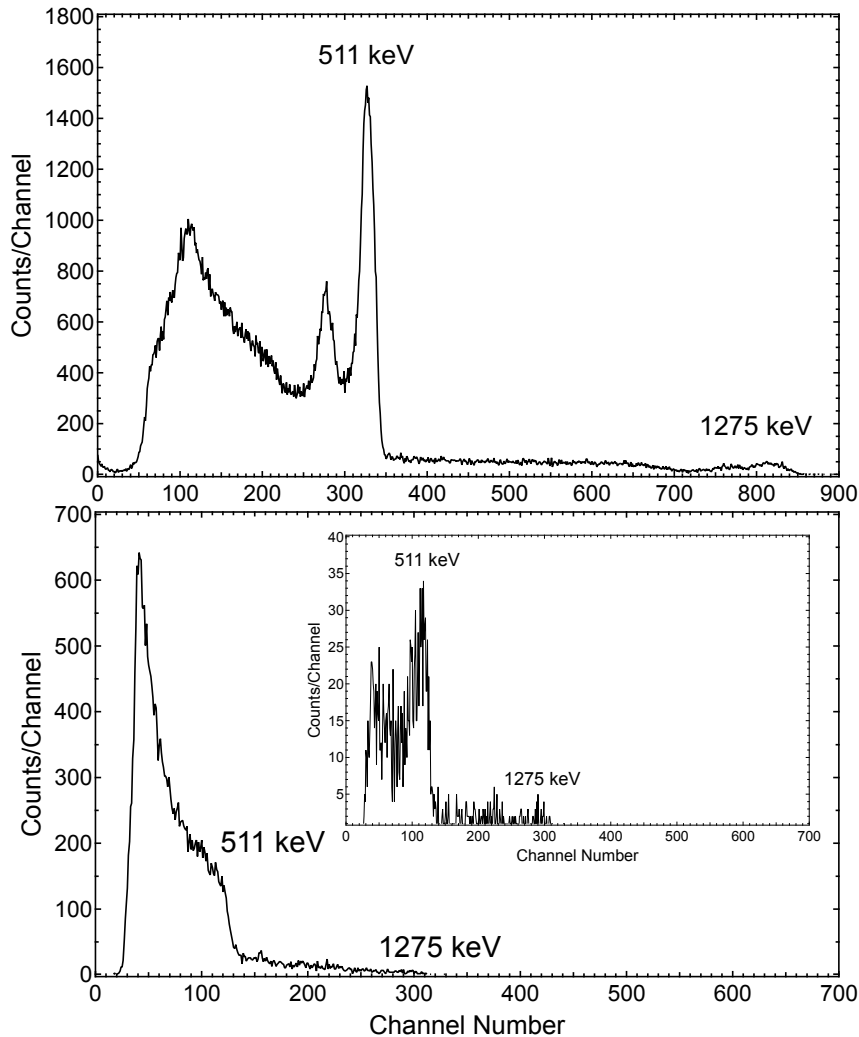


図4. 本研究で製作した  $\text{TlBr}_{0.7}\text{Cl}_{0.3}$  検出器(上)と  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  検出器(下)から得られた  $^{22}\text{Na}$  ガンマ線スペクトル。差し込み図は深さ弁別を行ったスペクトルである。

### (3) 光子・電子同時読み出し

結晶サイズ約  $3\text{ mm} \times 3\text{ mm} \times 3\text{ mm}$  の  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  結晶に SiPM を接続し、基準用の LYSO シンチレーション検出器と対消滅ガンマ線の同時計数測定を行ったところ、 $528\text{ ps}$  の時間分解能が得られた。さらに、トリガの閾値を上げたイベントに絞ることで、最大で  $439\text{ ps}$  の時間分解能が得られた。この結果から  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  結晶から SiPM を用いてチェレンコフ光を検出でき、高速応答が得られることが分かった。

$\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  検出器に電荷有感型前置増幅器と SiPM を接続し、 $^{22}\text{Na}$  からのガンマ線を照射した際に得られた出力信号波形を図 5 に示す。図から分かるように、ガンマ線と  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  結晶の相互作用により生成された電子・正孔を電極で収集する際に得られた誘起電荷信号と、相互作用により発生したチェレンコフ光を SiPM で検出した際のチェレンコフ光信号の同時計測に成功した。

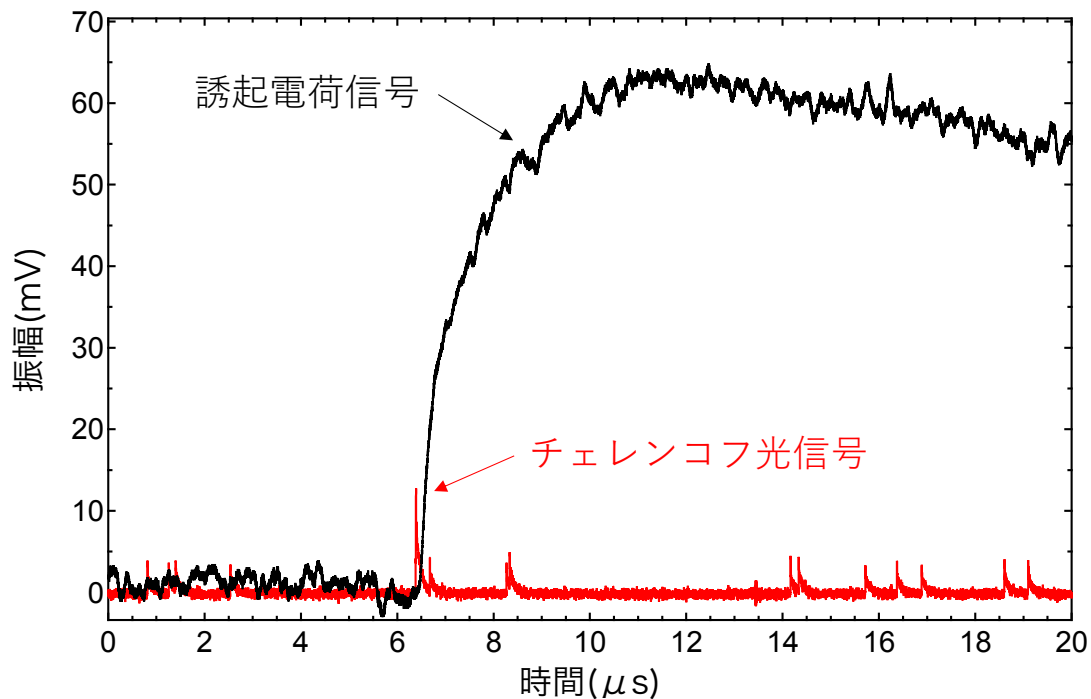


図 5. 本研究で製作した  $\text{TlBr}_{0.3}\text{Cl}_{0.7}$  検出器に電荷有感型前置増幅器と SiPM を接続した際に得られた出力波形。

本研究では高い透過率を示す  $\text{TlBrCl}$  結晶の育成に成功した。素材の純化を行うことで良好に動作する  $\text{TlBrCl}$  検出器の製作に成功した。本研究で製作した  $\text{TlBrCl}$  検出器はこれまでの研究よりも高いエネルギー分解能を示した。 $\text{TlBrCl}$  結晶からのチェレンコフ光を検出することで高い時間分解能が得られる事が分かった。さらに、本研究では  $\text{TlBrCl}$  検出器を半導体検出器として動作させると同時にチェレンコフ光の検出に成功した。 $\text{TlBr}$  に  $\text{TlCl}$  を加えて短波長の透過率を改善した検出器から誘起電荷信号とチェレンコフ光信号の同時計測に成功した例は国内外には無く、本研究の成果は今後の PET 用検出器の開発に大きなインパクトを与えるものと考えられる。

今後の展望としては本研究で開発した  $\text{TlBrCl}$  検出器の大型化、多ピクセル化による PET システムの構築が考えられる。 $\text{TlBrCl}$  検出器はガンマ線の検出効率が高く、電荷信号読み出しにより高いエネルギー分解能と位置分解能の実現が可能であり、さらに、チェレンコフ光読み出しにより高い時間分解能が得られることから、本研究の成果は今後の PET 装置の高性能化に大きく貢献できるものと考えられる。



5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 人見 啓太郎、野上 光博、小野寺 敏幸、錦戸 文彦、山谷 泰賀、金子 純一
2. 発表標題 チェレンコフPETへの応用を目指した臭塩化タリウム結晶の育成
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 人見 啓太郎、野上 光博、小野寺 敏幸、錦戸 文彦、山谷 泰賀、金子 純一
2. 発表標題 臭塩化タリウム半導体検出器のエネルギー分解能改善
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Hitomi, M. Nogami, T. Onodera, K. Watanabe, H. Tanaka, S. Kubo, N. Kimura, K. Ishii
2. 発表標題 Development of thallium halide gamma-ray detectors
3. 学会等名 The 27th International Symposium on Room-Temperature Semiconductor Detectors (国際学会)
4. 発表年 2020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
研究分担者	錦戸 文彦  (Nishikido Fumihiko)  (60367117)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・放射線医学総合研究所 先進核医学基盤研究部・主任研究員(非常)    (82502)	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究分担者	山谷 泰賀 (Yamaya Taiga)  (40392245)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・放射線医学総合研究所 先進核医学基盤研究部・グループリーダー（定常）  (82502)	
研究分担者	金子 純一 (Kaneko Junichi)  (90333624)	北海道大学・工学研究院・准教授  (10101)	
研究分担者	小野寺 敏幸 (Onodera Toshiyuki)  (10620916)	東北工業大学・工学部・准教授  (31303)	
研究分担者	野上 光博 (Nogami Mitsuhiro)  (10847304)	東北大学・工学研究科・助手  (11301)	

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