

図 8 137Cs 線源を用いた各種 Ce 濃度における Ce:GAGG のエネルギースペクトル

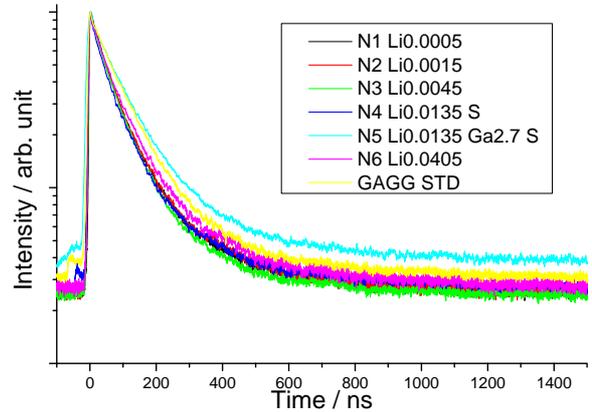


図 9 137Cs 線源を用いた各種 Ce 濃度における Ce:GAGG の蛍光寿命スペクトル

表 2 Li 共添加 GAGG のシンチレータ特性表

	発光量比	1 st decay time /ns		2 nd decay time/ns		時間分解能 ps
Non co-doped	100	88.9	81%	295	19%	454
Li166ppm	99.4	53.4	53.9%	165	46.1%	未測定
Li500ppm	92.7	54.2	52.7%	171	47.3%	未測定
Li1500ppm	96.6	51.3	48.2%	138	51.8%	未測定
Li4500ppm	86.9	48.2	45.2%	149	54.8%	未測定
Li13500ppm	86.8	62.1	54.3%	185	45.7%	未測定
Mg 1000ppm	82.3	41.5	41.7%	121	58.3%	218

-3. Mg共添加GAGG単結晶の3インチサイズまでの大型化

Cz法により、3インチサイズのMg1000ppm Ce1% GAGG単結晶の作製を行った。作製した結晶を図10に示す。結晶化率は22%であった。図 11 に137Cs線源を用いたエネルギースペクトル測定結果を示す。発光量はMg共添加無にたいし、77%となる44000 photo/MeVであった。また、図11に蛍光寿命スペクトルを示す。蛍光寿命は44.3ns(41%) 114ns(59%)に短寿命化した。さらに3x3x3mmサイズの各サンプルを、SiPMを用いて、時間分解能測定を行い1191 p s の時間分解能が得られた。今後、Li共添加についても大型・高品質化の検討を進める計画である。



図 10 3インチサイズ Mg 共添加 GAGG 単結晶

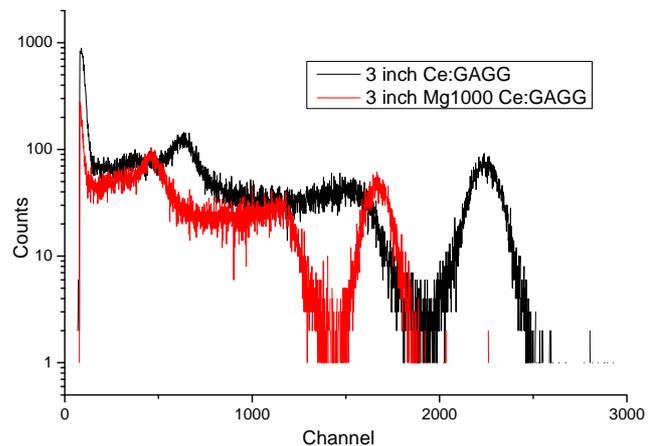


図 11 137Cs 線源を用いた3インチ Mg 共添加 Ce:GAGG のエネルギースペクトル

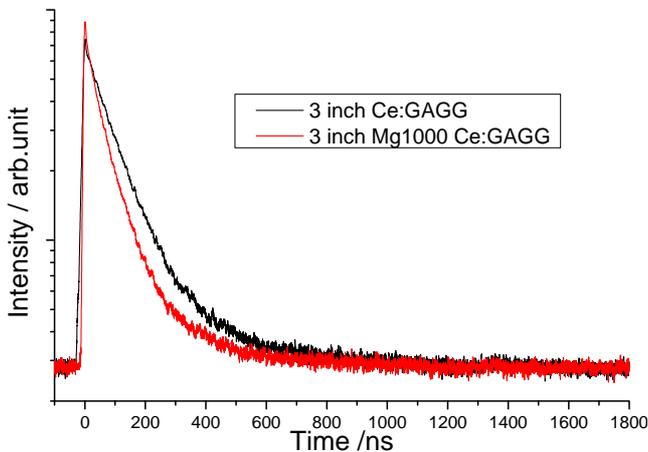


図12 137Cs線源を用いた3インチMg共添加Ce:GAGGの蛍光寿命スペクトル

結晶作製、シンチレータアレー作製

昨年度までに0.5mm角のシンチレータピクセルを有するGAGGアレーを作製した。今年度は、より位置分解能の高いアレーを実現すべく、0.4x0.4x20mmおよび0.2x0.2x5mmのシンチレータピクセルを有するそれぞれ48x48chのシンチレータアレーを作製した。シンチレータピクセルの加工は、ワイヤーソーによる切断後、ケミカルエッチングを行うことで、高精度な微細シンチレータピクセルの加工を可能とした。高精度アレー作製治具を設計し、アレー作製プロセスを最適化することで、図13, 14に示すアレーの作製に成功した。現在東大にて性能評価中である。

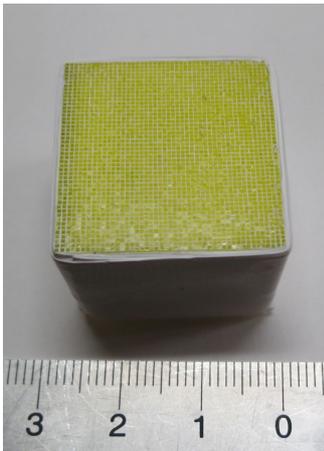


図13 0.4x0.4x20mm ピクセルによる48x48chアレー

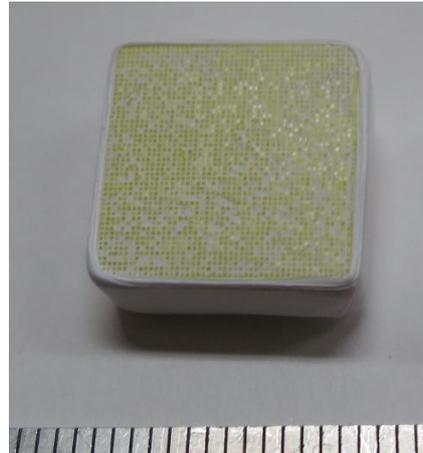


図14 0.2x0.2x5mm ピクセルによる48x48chアレー

D.考察

GAGGシンチレータに対し、MgおよびLiを共添加することで、時間特性を向上できることを確認した。Mg共添加では、添加量が増加するほど、蛍光寿命が高速化し、発光量が減少した。Mg共添加により、バンドギャップ内に Ce^{4+} のエネルギー準位を発現させ、本準位を経ることで、エネルギー輸送・発光プロセスが促進することができたと考えられる。Mg1000 ppm添加で添加無しに対し80%程度の発光量となる44000 photo/MeVの発光量、時間分解能は191psとなった。一方、Li共添加においても同様の蛍光寿命の高速化が確認され、発光量の低下はMgに対し少なく、共添加なし品の90%程度の発光量であった。Li添加については、今後の時間分解能測定、大型化による高品質高性能化が期待でき、Mg添加品を上回る性能も期待できる。一価のアルカリ金属イオン添加によるシンチレータ特性の改善効果はこれまでに報告が無く、新規性が高い。さらに、世界最小サイズとなる、0.2x0.2x5mmのシンチレータピクセルからなる48x48chのシンチレータアレー作製技術の開発に成功した。当該アレーにより、高分解能PET検出器が実現可能となると考えられる。

E. 結論

GAGG シンチレータに対し、Mg および Li を共添加することで、時間特性を向上できることを確認した。さらに 3 インチサイズの Mg1000ppm Ce1% GAGG 単結晶の作製に成功し、44000 photo/MeV の発光量、蛍光寿命 44.3ns(41%) 114ns(59%)を確認し、時間分解能は 191ps であった。これは既存の PET 用シンチレータである LYSO に対し、時間特性は同等、発光量で 1.7 倍の性能が得られ、自己放射能を有さない利点や低融点・低コスト原料による低コスト化を勧告し、LYSO を凌駕するシンチレータの開発に現時点で成功した。Li 添加については、今後の時間分解能測定、大型化による高品質高性能化が期待でき、Mg 添加品を上回る性能も期待できる。

さらに、世界最小サイズとなる、0.2x0.2x5mm のシンチレータピクセルからなる 48x48ch のシンチレータアレイ作製技術の開発に成功した。

F.健康危険情報

特になし

G.研究発表

1.論文発表

1. "Alkali Earth Co-doping Effects on Luminescence and Scintillation Properties of Ce doped $Gd_3Al_2Ga_3O_{12}$ scintillator" Opt. Mater. DOI 10.1016/j.optma 93 – 296 t.2014.10.008(in press)

Kei Kamada, Martin Nikl, Shunsuke Kurosawa, Alena Beitlerova, Aya Nagura, Yasuhiro Shoji, Jan Pejchal, Yuji Ohashi, Yuui Yokota, and Akira Yoshikawa

2. "Growth of Nd doped $(Lu, Gd)_3(Ga, Al)_5O_{12}$ single crystal by the micro pulling down method and their scintillation properties" Opt. Mater. DOI 10.1016/j.optmat.2014.10.007 (in press)

Kei Kamada, Shunsuke Kurosawa, Yasuhiro Shoji, Jan Pejchal, Yuji Ohashi, Yuui Yokota, and Akira Yoshikawa

3. "Growth of 2 inch size Ce-doped $Lu_2Gd_1Al_2Ga_3O_{12}$ single crystal grown by the Czochralski method and their scintillation properties" 10.1016/j.jcrysgro.2014.10.004 (in press)

Kei Kamada, Akira Yoshikawa, Takanori Endo, Kousuke Tsutsumi, Yasuhiro Shoji, Shunsuke Kurosawa, Yuui Yokota, Petr Prusa, and Martin Nikl

4. "Cz grown 2-inch size Ce: $Gd_3(Al, Ga)_5O_{12}$ single crystal; relationship between Al, Ga site occupancy and scintillation properties, Opt. Mater. 36(2014)1942-1945

Kei Kamada, Shunsuke Kurosawa, Petr Prusa, Martin Nikl, Vladimir V. Kochurikhin, Takanori Endo, Kousuke Tsutsumi, Hiroki Sato, Yuui Yokota, Kazumasa Sugiyama, Akira Yoshikawa

5. "Growth of Sc doped $RE_3Al_5O_{12}$ (RE = Y, Lu) single crystals by micro-pulling-down method and their scintillation properties" Opt. Mater. 36(2014) 1934–1937

Kei Kamada, Jan Pejchal, Martin Nikl, Shunsuke Kurosawa, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa

6. "Development of a Prototype Detector Using APD-Arrays Coupled With Pixelized Ce:GAGG Scintillator for High Resolution Radiation Imaging" IEEE Trans. Nucl. Sci., 61 (2014) 348-352

Kei Kamada, Kenji Shimazoe, Shigeki Ito, Masao Yoshino, Takanori Endo, Kousuke Tsutsumi, Jun Kataoka, Shunsuke Kurosawa, Yuui Yokota, Hiroyuki Takahashi, and Akira Yoshikawa

7. "Czochralski growth and scintillation properties of Ce: $(Gd, Y, Lu)_3(Al, Ga)_5O_{12}$ single crystals" IEEE Trans. Nucl. Sci., 61 (2014) 293 – 296

Kei Kamada, Takayuki Yanagida, Shunsuke Kurosawa, Yuui Yokota, Takanori Endo, Kousuke Tsutsumi and Akira Yoshikawa

8. "Czochralski growth of $Gd_3(Al_{5-x}Ga_x)O_{12}$ (GAGG) single crystals and their scintillation properties" J. Cryst. Growth 393 (2014) 134-137

Shunsuke Kurosawa, Yasuhiro Shoji, Yuui Yokota, **Kei Kamada**, Valery I. Chani, Akira Yoshikawa

9. "Development of GAGG depth-of-interaction (DOI) block detectors based on pulse shape analysis" Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A767 (2014) 289-295

- Seiichi Yamamoto, Takahiro Kobayashi, Jung Yeol Yeom, Yuki Morishita, Hiroki Sato, Takanori Endo, Yoshiyuki Usuki, Kei Kamada, Akira Yoshikawa
10. “Development of a prototype of time-over-threshold based small animal PET scanner” Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A753 (2014) 84-90
K. Shimazoe, H. Takahashi, K. Kamada, A. Yoshikawa, K. Kumagai, J. Kataoka, S. Itoh, H. Sato, Y. Usuki
11. “Scintillation properties of Gd₃Al₂Ga₃O₁₂:Ce³⁺ single crystal scintillators” Ongsa Sakthong, Weerapong Chewpraditkul, Nucl. Instrum. Meth. A 751(2014) 1-5
Chalerm Wanarak, **Kei Kamada**, Akira Yoshikawa, Petr Prusa, Martin Nikl,
12. Luminescence properties and scintillation response in Ce³⁺-doped Y₂Gd₁Al_{5-x}Ga_xO₁₂ (x = 2, 3, 4) single crystals
Journal of Applied Physics 116 (2014) 083505
Warut Chewpraditkul, Dalibor Pánek, Petr Brža, Weerapong Chewpraditkul, Chalerm Wanarak, Nakin, Pattanaboonmee, Vladimir Babin, Karol Bartosiewicz, Kei Kamada, Akira Yoshikawa, and Martin Nikl,
13. “Defect Engineering in Ce-Doped Aluminum Garnet Single Crystal Scintillators” *Cryst. Growth Des.*, 14 (2014) 4827–4833
Martin Nikl, **Kei Kamada**, Vladimir Babin, Jan Pejchal, Katerina Pilarova, Eva Mihokova, Alena Beitlerova, Karol Bartosiewicz, Shunsuke Kurosawa, and Akira Yoshikawa
14. “Luminescent Properties of Ce:Gd₃(Al, Ga, Mg, M)₅O₁₂ Crystal (M=Zr, Hf)” Japanese Journal of Applied Physics (2014), 53 04EG14
Shunsuke Kurosawa, **Kei Kamada**, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa
15. “Time-Resolved Photoluminescence Spectroscopy of Ce:Gd₃Al₂Ga₃O₁₂ Crystals” Japanese Journal of Applied Physics (2014) 53 05FK01
A. Satoh, M. Kitaura, **K. Kamada**, A. Ohnishi, M. Sasaki, and K. Hara
16. “Studies of light yield as a function of temperature and low temperature thermoluminescence of Gd₃Al₂Ga₃O₁₂:Ce scintillator crystals” *Optical Materials*, 36 (2014) 1665–1669
W. Drozdowski, K. Brylew, M.E. Witkowski, A.J. Wojtowicz, P. Solarz, K. Kamada, A. Yoshikawa

2 . 学会発表

- (1) PRE'14 5th International Workshop on Photoluminescence in Rare Earths : Photonic Materials and Devices Kei Kamada Alkali Earth Co-doping Effects on Luminescence and Scintillation Properties of Ce doped Gd₃Ga₃Al₂O₁₂ scintillator
- (2) SORMA XV SORMA XV Kei Kamada Co-doping Effects on Luminescence and Scintillation Properties of Ce doped Lu₃Al₅O₁₂ scintillator
- (3) IEEE NSS 2014 IEEE NSS Kei Kamada Co-Doping Effects on Luminescence and Scintillation Properties of Ce Doped (Lu,Gd)₃(Ga,Al)₅O₁₂ Scintillator

H. 知的財産権の出願・登録状況

(予定を含む。)

1. 特許取得

- (1) PCT/JP2015/63032、発光体及び放射線検出器，出願人：東北大学、発明者：鎌田圭、黒澤俊介、横田有為、吉川彰

2. 実用新案登録

特になし

3 . その他

特になし