

訪問日 2015年8月24日

東北大学 金属材料研究所 先端結晶工学研究部 黒澤 俊介 助教

研究題名：資源探査センサーへの応用を目指したパイロクロア結晶構造をもつ高輝度発光体の開発

東北大学・黒澤俊介先生を訪ねて

先生の研究室は放射線を検出するシンチレータ、圧電材料となる結晶を育成する研究室です。先生は元々結晶を作るのが専門ではなく宇宙物理学で、宇宙の起源、宇宙を構成する元素の成り立ちなどを研究する為に、宇宙から飛来する放射線を測定するべく、そのカメラの開発に携わっていました。カメラの開発の段階で適切なシンチレータ材料がないので、それでは自分で作ろうと思い、分野を転向したとのことです。研究室の体制は、先生自体は光物性、高エネルギーを専門としていますが、他に結晶成長とか構造化学の専門家もおり、バックボーン異なるメンバーが、協力関係を作っているようです。特に研究室ではマイクロ引き下げ法という小さい結晶の作製を得意としており、1日に1～2個を簡単に作れ、評価もできますので、非常に速いサイクルで研究ができます。その上でチョクラルスキー法（CZ法）などで大きな結晶を作るとのことです。素材づくりから応用までワンストップでやり、数多くの企業と共同研究も実施しています。

シンチレータ結晶中に放射線が入ると電離し、飛び出た電子はエネルギーが高い状態になり、それが元の状態になる段階で発光します（下図）。実際にシンチレータ結晶にUVライトを当て紫色にひかるのを見せていただきましたが、実際の放射線では目視できる程の光量はないとのこと。放射線のエネルギー自体は普通のUVランプより何千倍も高いのですが、飛来する光子個数がUVランプよりも圧倒的に少ないようです。紫外線では1個当たりのエネルギーは1 eV程度ですが、ガンマ線、たとえばCe-137ではその約60万倍になります。電離電子の個数が入射する放射線のエネルギーに対応し、発光量を比べることで、どのエネルギーの放射線であるか分かります。福島でのCe-137、Ce-134、I-131はそれぞれ異なったエネルギーを持ち、放射線の入射1回あたりの発光量とその入射回数により何がどれ位あるのか分かります。

最大の市場は核医学で、癌を早期に発見する為のPETカメラです。癌細胞は普通の細胞と比しブドウ糖を消費しやすく、ブドウ糖に放射線源を付けて薬として投与します。結果、癌細胞の所でガンマ線がより多く出るので、どこにあるのか分かります。福島での放射線測定の話は聞けましたが、紙面の都合で詳細は省きますが、魚の放射線検査の話題で、魚は回遊中に自然バックグラウンドとして放射性銀（AG110m）を摂取しており、事故による放射線と区別ができなくなります。自然バックグラウンドとは言いながら福島由来とそうでないものを分けたいとの要望で、感度の良いものが必要で、この時エネルギー分解能と言う指標が重要になります。この指標はエネルギースペクトル上での半値幅を中心値で割った量でよく表現され、半値幅が広いとCe-137、Ce-134、Ag-110m由来の信号が重なり、核種の分別能力が低下します。今回の研究対象のCe:La-GPS（Ceを添加した $(La,Gd)_2Si_2O_7$ ）のエネルギー分解能は5%程度ですので、Ce-137のエネルギーは662keVですので、Ce-137とCe-134を分けられます。既存のシンチレータCe:LaBr₃は3%のエネルギー分解能を持ちますが、空気中の水分で潮解し、封止などでコストが高くなります。希土類元素は放射性物質を含むことがあり、材料を選ぶときには元素の由来にも注意するそうです。

発光量の温度依存性を見ると、代表的材料であるNaIは温度を上げていくとだんだん発光量は下がり、他の酸化物結晶では急激に低下します。Ce:La-GPSは温度依存性が少なく、エネルギー分解能の温度安定性も良いです。この特性が重要視されるのは資源探査用で、近年シェールガス・オイルが注

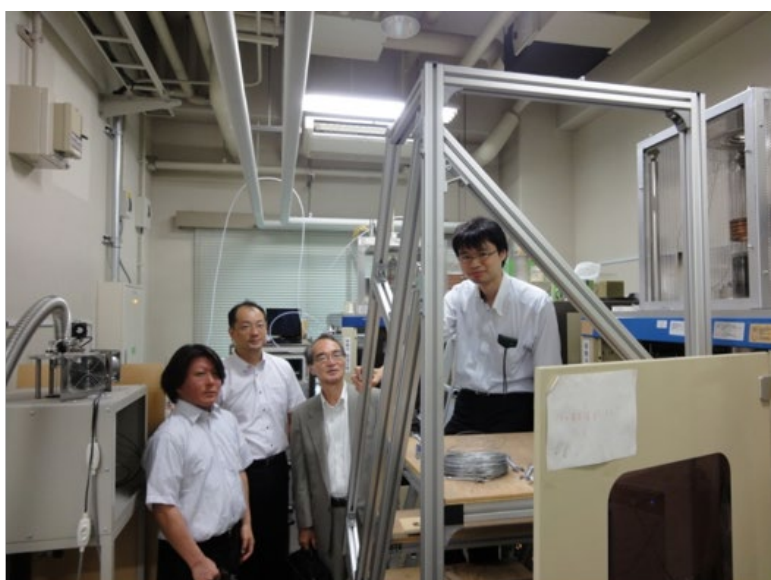
目されています。従来の掘削深度は 3000~4000m ですが、シェールガスなどは 5000~6000m で、その周辺温度は 150℃以上です。資源の周りには放射性物質が多く、放射線を読み取ることで資源の存在を知ることができます。Ce:La-GPS は 150℃でも発光量が低下せず、S/N 比が大きくノイズと分離できます。現在 CZ 法による 2 インチサイズの結晶の育成に取り組んでいるとのこと。シンチレータは光学材料で透明である必要があり単結晶にします。透明セラミックシンチレータの研究も実施していますが、透明になりやすい結晶構造は立方晶ですが、Ce:La-GPS は立方晶でないために透明になりにくいようです。

発光量を検知する光電子増倍管 (PMT) は感度のピークが 390nm 付近にあるものが多く、この Ce:La-GPS の発光波長とマッチングします。現在、母材に Lu を入れるとか、Y を入れるとか、また発光中心は Ce ですが、これを Pr にするとか、組成を変えた研究をしています。例えば Y の添加により、Ce の周りの電場 (結晶場) が変わり発光波長が短くなります。

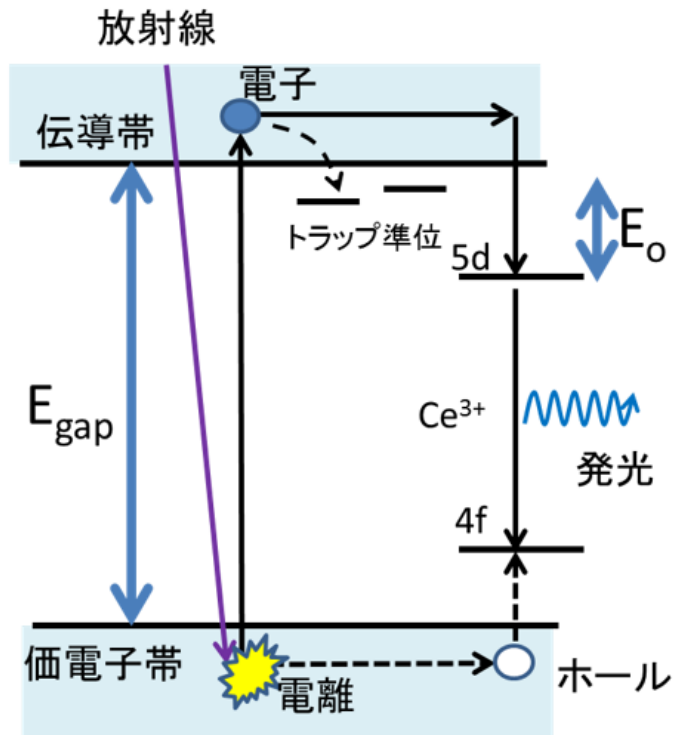
シンチレータの性能としては発光量や減衰時間などいくつかの性能を表す指標がありますが、応用ではどの性能が重視されるかを考えて、シンチレータの選択をしています。PET カメラの場合、薬として投与するガンマ線源は 511keV のエネルギーしか出さないのエネルギー分解能はそれ程気にしません。それより時間分解能が要求され、速い応答性 (サブナノ秒程度の時間分解能) を示す結晶が必要になります。一方で福島の実用では 1 μ 秒程度の時間応答性でも利用可能です。資源探査の場合、最も重要なのは高い温度でも発光量が維持できることです。さらに宇宙ステーションなどでの利用の場合には 100 MeV 程度の陽子といった宇宙線が飛来するので、加速器で作った陽子をシンチレータに入射させて、発光量の低下の有無を検査しています。Ce:La-GPS 結晶については、これから応用に向け進めると同時に、少し変えた組成でなにか良いものがあるか調べていきたいとのこと。検知器に PMT を使っていますが、より簡便な検出器の要望があり、半導体検出器用により長波長の結晶の探索も行っています。当日は、乳癌の検査装置の実用化、コンプトンカメラの説明、重粒子線治療など多岐に渡り説明いただきました。

普段どちらかと言うと関心が薄かったシンチレータですが、身近な医療、資源探査、放射能事故、更には宇宙科学と幅広く応用されており、認識を新たにしました。

(2015年8月24日訪問、技術参与・飯塚)



右端が黒澤先生(マイクロ引き下げ法実験装置の前で)



シンチレータとは

	$\Delta E/E$ (%) @662keV (FWHM)	発光量 (photons/MeV)	減衰時間 (ns)	密度 (g/cc)	減衰長(cm) @511keV	潮解性
NaI :Tl	5.5	41,000	230	3.7	2.91	Yes
GSO:Ce (Gd ₂ SiO ₅)	7.5	8,000	30-60	6.7	1.42	No
LYSO:Ce (LuYSiO ₅)	6.7	32,000	48	7.1	1.12	No
LaBr ₃ :Ce	3.0	61,000	20-35	5.3	2.13	Yes

$\Delta E/E$: PMTを用いて求めたエネルギー分解能

シンチレータの選択