

課題番号	LR008
------	-------

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)
実施状況報告書(平成23年度)**

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名	次世代癌治療用近赤外線発光シンチレータの系統的研究開発
研究機関・ 部局・職名	東北大学・金属材料研究所・教授
氏名	吉川 彰

1. 当該年度の研究目的

初年度に設計した物質に関して、我々独自の結晶育成方法であるマイクロ引下げ法(μ -PD 法)を用いて候補シンチレータ材料の合成、評価を行い、その結果を理解し、赤外発光シンチレータのデザイン・ルールを明確にすることが最大の目的となる。

具体的には酸化物ホスト + 希土類元素添加系、酸化物ホスト + 遷移金属添加系、フッ化物ホスト + 希土類元素添加系、フッ化物ホスト + 遷移金属添加系の4系統で探索合成を進める。200-300 種類の候補材料の合成が行えると考えられ、得られた結晶に対しては結晶性評価、組成分析、光物性評価、放射線応答特性評価を順次行い、系統的に特性を把握することを目的とする。

具体的には添加元素は希土類元素系では Nd、Ho、Er、Tm、Yb が、遷移元素系では Cr、Ti、Mn、Fe、Ni 等が候補となる。

目的特性に合致したシンチレータに関しては、テスト用として真球状に加工し、本学病院がんセンターに持ち込んで、LINAC 照射時における動物肉透過実験を行って頂くなど、実際の現場のデータを得て、その結果を踏まえて物質設計にフィードバックをかけることも目的とする。

これらの研究により、赤外発光シンチレータのデザイン・ルールを明確にする。
また、2年目からは国民との科学・技術対話にも積極的に取り組むことも重要な目的となる。

2. 研究の実施状況

平成23年度は、3月11日の東日本大震災の影響で、結晶育成装置が壊れ、当初に予定していた実施計画は多少の遅延が生じた。幸いなことに、結晶育成装置に致命的な損傷はなく、可及的速やかに修理を終了させて、シンチレータ材料候補について μ -PD 法を用いて合成し、材料探索を行った。候補シンチレータ材料としては、酸化物材料(母材)に希土類元素もしくは遷移金属を添加したもの、およびフッ化物材料に希土類元素もしくは遷移金属を添加した4パターンで探索合成を進めた。これら作製した結晶は順次、X線回折法を用いた結晶性評価(RIGAKU, ATX-E)や、SEM(Hitachi, S-3400N)、EPMA(Oxford, INCA WAVE500)、XRF(Ourstex, 160II)といった結晶元素組成分析、分光透過率測定装置(JASCO, V-530)、分光反射率測定装置(Shimadzu UV-2550)といった光物性評価を行っており、酸化物母材結晶(YAG, LuAG)に Ce、Pr、Nd、Tm、Er、Yb 等の希土類添加をした結晶における f-f 遷移発光が有望であることを示すことができた。

たとえば、Nd0.5%添加 LuAG 結晶は候補材料のひとつであり、Am-241 からの 5.5 MeV アルファ線

励起による発光スペクトルについて CCD カメラを用いて測定すると図 1 の通りになった。このことから、放射線にたいしてこれらのサンプルが反応することが確認され、またその際に発光される光が目的の赤外線領域であることがわかった。つまり、赤外線発光シンチレータの開発に成功した。そして真球状の加工についても試みており、最適化に向けた調整をおこなっている。

これらの結果をふまえて、東北大学医学部との打ち合わせおよび東北大学医学部の LINIAC に赴き、X 線照射に立ち会った。

以上の実験から赤外発光シンチレータのデザイン・ルールの明確化は行えた。さらに名古屋(TECH Biz EXPO2011、平成 23 年 10 月 20-22 日)や東京(東北大学イノベーションフェア、平成 24 年 3 月 15 日)での展示会といったイベントを通じて国民との科学・技術対話にも積極的に取り組むことができた。

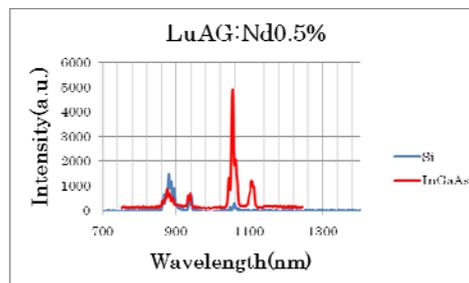


図1 Nd0.5%添加 LuAG の近赤外域におけるラジオルミネッセンススペクトル。横軸が波長、縦軸が発光強度。ここでは Si-CCD および InGaAs-CCD の2つの CCD カメラで測定した。

3. 研究発表等

雑誌論文	(掲載済み一査読有り) 計 11 件
計 14 件	<p>1, T. Yanagida, K. Kamada, Y. Fujimoto, Y. Yokota, A. Yoshikawa, H. Yagi, T. Yanagitani "Scintillation properties of transparent ceramic and single crystalline Nd:YAG scintillators " Nucl. Instrum. Meth-A, (2011), vol. 631, pp.54-57.</p> <p>2, Y. Fujimoto, Y. Yokota, T. Yanagida, V. V. Kochurikhin, A. Yoshikawa "Comparison study about optical, scintillation characterizations of YVO4, (Y, Lu)VO4, and LuVO4 single crystals " Nucl. Instrum. Meth-A, (2011), vol. 635 (1), pp. 53-56.</p> <p>3, A. Fukabori, V. Chani, K. Kamada, F. Moretti, A. Yoshikawa "Growth of Tm³⁺ doped Y2O3, Sc2O3, and Lu2O3 crystals by the micro-pulling down technique and their optical and scintillation characteristics " Cryst. Growth Des., (2011), vol. 11(6), pp. 2404-2411.</p> <p>4, G. Boulon, T. Epicier, W., V. I. Chani, T. Yanagida, and A. Yoshikawa "Absence of Host Cation Segregation in the (Gd,Y)3Al5O12 Mixed Garnet Optical Ceramics " Jpn.J.Appl.Phys., (2011), vol. 50, p 090207</p> <p>5, D. Totsuka, T. Yanagida, Y. Fujimoto, J. Pejchal, Y. Yokota, A. Yoshikawa "Crystal growth and scintillation properties of Pr-doped oxyorthosilicate for different concentration " Nucl. Instrum. Meth-A, (2011), vol. 643(1), pp. 64-68</p> <p>6, M. Sugiyama, Y. Fujimoto, T. Yanagida, Y. Yokota, J. Pejchal, Y. Furuya, H. Tanaka, A. Yoshikawa "Crystal growth and scintillation properties of Nd-doped Lu3Al5O12 single crystals with different Nd concentrations " Opt. Mater., (2011), vol. 33(6), pp. 905-908</p>

様式19 別紙1

	<p>7, Y. Furuya, H. Tanaka, K. Fukuda, N. Kawaguchi, Y. Yokota, T. Yanagida, V. Chani, M. Nikl, A. Yoshikawa "Crystal growth and characterization of (NaxCa1-2xLux)F2 single crystals" J. Cryst. Growth, (2011), vol. 320, pp. 63-68.</p> <p>8, A. Fukabori, K. Kamada, T. Yanagida, V. Chani, K. Aoki, Y. Yokota, S. Maeo, M. Nikl, A. Yoshikawa "Optical and scintillation properties of Sr7%:Ce15%:GdF(3) single crystal " J. Cryst. Growth, (2011), vol. 318, pp. 1175-1178</p> <p>9, Y. Fujimoto, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Ikesue, A. Yoshikawa "Evaluation of Characterization of Rare-earth doped Sesquioxide Ceramic scintillators " Opt. Mat., (2011), vol 34, pp. 448-451.</p> <p>10, Y. Fujimoto, T. Yanagida, Y. Yokota, N. Kawaguchi, K. Fukuda, D. Totsuka, K. Watanabe, A. Yamazaki, A. Yoshikawa "Scintillation characteristics of Tm3+ in Ca3(BO3)2 crystals " Rad. Meas., (2011), vol. 46, pp. 1506-1508.</p> <p>11, M. Sugiyama, Y. Fujimoto, T. Yanagida, D. Totsuka, Y. Yokota, A. Yoshikawa "Scintillation properties of Tm-doped Lu3Al5O12 single crystals " Opt. Mat., (2011), vol. 34, pp. 439-443.</p> <p>(掲載済み一査読無し) 計1件</p> <p>1, M. Sugiyama, Y. Fujimoto, T. Yanagida, D. Totsuka, Y. Furuya, Y. Yokota, A. Yoshikawa "Scintillation properties of rare-doped Lu3Al5O12 single crystals " The 6th International Workshop on Individual Monitoring of Ionizing Radiation Proceedings (2011), pp. 317-319</p> <p>(未掲載) 計2件</p> <p>1, M. Sugiyama, T. Yanagida, Y. Fujimoto, D. Totsuka, Y. Yokota, S. Kurosawa, Y. Futami, A. Yoshikawa "Crystal Growth and Scintillation Properties of Ho-doped Lu3Al5O12 single crystals " IEEE Trans. Nucl. Sci., accepted (受理済み,印刷中)</p> <p>2, K. Kamada, T. Yanagida, T. Endo, K. Tsutumi, M. Yoshino, J. Kataoka, Y. Usukia, Y. Fujimoto, A. Fukabori, A. Yoshikawa "Large size single crystal growth of Lu3Al5O12: Pr and their uniformity of scintillation properties " Journal of Crystal Growth, 2011, inpress (受理済み,印刷中)</p>
<p>会議発表 計9件</p>	<p>専門家向け 計9件</p> <p>1, A. Yoshikawa "Development of novel rare earth doped fluoride and oxide scintillators, and 2 dimensional imaging " Wroclaw, POLAND, 2011.6.13-15, The Second International Conference on RARE EARTH MATERIALS (REMAT): 招待講演</p> <p>2, M. Sugiyama, Y. Fujimoto, T. Yanagida, D. Totsuka, Y. Yokota, A. Yoshikawa "Crystal Growth and Luminescence Properties of Cr-doped YAlO3 Single Crystals " Suntec, Singapore, 2011.6.27-7.1, The 5th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology (CGCT-5)</p> <p>3, M Sugiyama, Y Yokota, Y Fujimoto, T Yanagida, A Yoshikawa</p>

様式19 別紙1

	<p>“Dopant segregation in rare earth doped lutetium aluminum garnet single crystals grown by the micro-pulling down method ” Monterey, California, 2011.7.31-8.5, The 18th American Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ACCGE-18)</p> <p>4, S. Kurosawa, D. Totsuka, T. Yanagida, Y.Yokota, A. Yoshikawa “Crystal Growth of Ho:YAP Scintillator and Its Properties ” Giessen, Germany, 2011. 9.12-16, 11th International Conference on Inorganic Scintillators and their Applications (SCINT 2011)</p> <p>5, Y. Fujimoto, T. Yanagida, Y.Yokota, A. Yoshikawa “Scintillation Characteristic of Yb³⁺-Doped Gadolinium Gallium Garnets with Different Dopant Concentrations ” Giessen, Germany, 2011. 9.12-16, 11th International Conference on Inorganic Scintillators and their Applications (SCINT 2011)</p> <p>6, M. Sugiyama, Y. Fujimoto, T. Yanagida, D. Totsuka, Y.Yokota, A. Yoshikawa “Growth and Scintillation Properties of Ho-Doped Lutetium Aluminum Garnet Single Crystals,” Giessen, Germany, 2011. 9.12-16, 11th International Conference on Inorganic Scintillators and their Applications (SCINT 2011)</p> <p>7, S. Kurosawa, D. Totsuka, T. Yanagida, Y. Yokota, A. Yoshikawa “Scintillation Properties of Ho:YAP Scintillator using an APD” Valencia, Spain, October 23-29, 2011, 2011 IEEE Nuclear Science Symposium</p> <p>8, 杉山誠, 柳田健之, 藤本裕, 横田有為, 吉川彰 “ガーネット構造を有する透明セラミックスのシンチレーション特性評価” 東京, 早稲田大学, 2012. 3.15-18, 2012年春季第59回 応用物理学関係連合講演会</p> <p>9, 藤本裕, 杉山誠, 山路晃広, 横田有為, 吉川彰, 柳田健之, 池末明生 “Tm³⁺:Y₂O₃ 及び Nd³⁺:Lu₂O₃ セラミックスの発光特性と放射線応答 ” 北海道, 北海道大学, 2011. 9. 7-9、日本セラミックス協会 第24回秋季シンポジウム</p> <p>一般向け 計0件</p>
<p>図書 計2件</p>	<p>杉山 誠, 柳田 健之, 横田 有為, 伊藤 暁彦, 福田 健太郎, 河口 範明, 山路 晃広, 深堀 明博, Liqiong An, 藤本 裕, 古谷 優貴, 田中 秀彦, 後藤 孝, 吉川 彰 解説記事 “新規無機シンチレータ材料の開発 ” レーザー研究 vol 39 (5) (2011) 306-311</p> <p>吉川 彰, 柳田 健之, 福田 健太郎, 河口 範明, 鎌田 圭, 藤本 裕, 横田 有為、黒澤 俊介 解説記事 “シンチレータとそれを用いた放射線モニター ” レーザー研究 Vol. 40(3) (2012) 171-176</p>
<p>産業財産権 出願・取得状 況 計0件</p>	<p>(取得済み) 計0件 (出願中) 計0件</p>

様式19 別紙1

Webページ (URL)	金属材料研究所 吉川研究室 http://yoshikawa-lab.imr.tohoku.ac.jp/
国民との科学・技術対話の実施状況	TECH Biz EXPO2011、平成 23 年 10 月 20-22 日、名古屋(ポートメッセなごや)、対象者:一般、参加者:1000人以上、赤外線シンチレータ開発などの研究室活動内容の紹介 東北大学イノベーションフェア、平成 24 年 3 月 15 日、東京(国際フォーラム)、対象者:一般、参加者:500人以上、赤外線シンチレータ開発などの研究室活動内容の紹介
新聞・一般雑誌等掲載計0件	特になし
その他	特になし

4. その他特記事項

特になし

実施状況報告書(平成23年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されず

1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

	①交付決定額	②既受領額 (前年度迄の 累計)	③当該年度受 領額	④(=①-②- ③)未受領額	既返還額(前 年度迄の累 計)
直接経費	116,000,000	90,844,000	0	25,156,000	0
間接経費	34,800,000	27,253,200	0	7,546,800	0
合計	150,800,000	118,097,200	0	32,702,800	0

2. 当該年度の収支状況

(単位:円)

	①前年度未執 行額	②当該年度受 領額	③当該年度受 取利息等額 (未取利息を除 く)	④(=①+②+ ③)当該年度 合計収入	⑤当該年度執 行額	⑥(=④-⑤) 当該年度未執 行額	当該年度返還 額
直接経費	90,744,000	0	0	90,744,000	88,958,439	1,785,561	0
間接経費	27,223,200	0	0	27,223,200	25,016,120	2,207,080	0
合計	117,967,200	0	0	117,967,200	113,974,559	3,992,641	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	75,316,825	超高温熱分析装置、恒温器光量測定システム
旅費	5,988,940	SCINT2011、IEEE2011 NSS/MIC、等学会参加費
謝金・人件費等	7,074,015	研究員、実験補助員給与
その他	578,659	学会参加費、研究装置修理 他
直接経費計	88,958,439	
間接経費計	25,016,120	
合計	113,974,559	

4. 当該年度の主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

物品名	仕様・型・性能 等	数量	単価 (単位:円)	金額 (単位:円)	納入 年月日	設置研究機関 名
恒温器光量測定システム	TKS-GYS	1	2,794,365	2,794,365	2011/9/26	東北大学
SETARAN社製 超高温熱分析装置	SETSYS Evolution24 Base Unit	1	14,271,075	14,271,075	2012/2/27	東北大学
赤外分光装置	NIR-1600-X	1	48,373,500	48,373,500	2012/3/30	東北大学
結晶方位測定・切断システム用検出	RASCO-TU	1	1,995,000	1,995,000	2012/3/26	東北大学
炭素鋼管	冷却水用配管	1	828,000	828,000	2011/11/24	東北大学