

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24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

昨年度に引きつづき、X線等の放射線に感度をもつ赤外線発光シンチレータの開発を進めて、可視光同様にX線照射によって人体透過可能な赤外線領域(おおよそ 650 - 1100 nm)での高輝度材料を開発することを目的とする。

そのために、昨年度から引き続き、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て、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し、目的材料の開発を実現する。

2. 研究の実施状況

我々独自結晶育成方法であるマイクロ引下げ法(μ -PD法)などの育成法を用いて、次世代癌治療用近赤外線発光シンチレータ結晶の育成と評価を行ってきた。

具体的には(Gd,Y)3(Al,Ga)5O12, Gd2Si2O7, Gd3Ga5O12, Al2O3, CaYAlO4といった酸化物母材結晶およびCaF2, BaF2, SrF2といったフッ化物母材結晶にCe, Pr, Nd, Er, Ybといった希土類元素やCr, Ti等の遷移元素を賦活剤として添加した結晶の育成に成功した。作製した結晶はX線回折法を用いた結晶性評価や、SEM, EPMA, XRFといった結晶元素組成分析を実施した。

さらに本研究では、装置開発も進め、赤外分光装置の立ち上げを行った。また研究計画以上の成果を得ることが期待できることから高精度シンチレーション光検出装置といった独自の検出器を設計、立ち上げも行った。

その結果、いくつかの結晶でX線照射によって人体透過可能な赤外線領域(おおよそ 650 - 1100 nm)での発光を確認することができ、目的を達成することができた。特にCr添加Gd3Ga5O12(Cr:GGG)では図1の通り、パルスハイト測定に世界で初めて成功した。可視光領域で良く利用されるBGO結晶と比べて30%程度の発光量であったが、図1中の信号は放射線1個の入射による発光量を評価したもので、実際の治療モニタ等の応用ではこれらの入射放射線を積算させて線量を測定するので、十分に明るいことが示された。

さらに赤外シンチレータの探索という当事業で設定した目的を達成した後(研究期間後期から)は実際の医療応用を意識した取り組みも実施しており、応用に向けてイメージング(図2)など当初計画以上の研究

に取り組むことができた。このように、本研究を通して医療応用に向けた赤外線シンチレータの開発およびその評価が大いに進んだ。

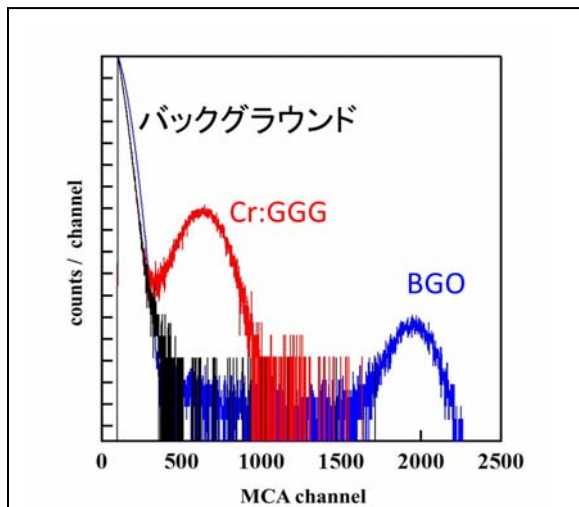


図1 Cr : GGG (赤外線シンチレータ) のパルスハイトスペクトル

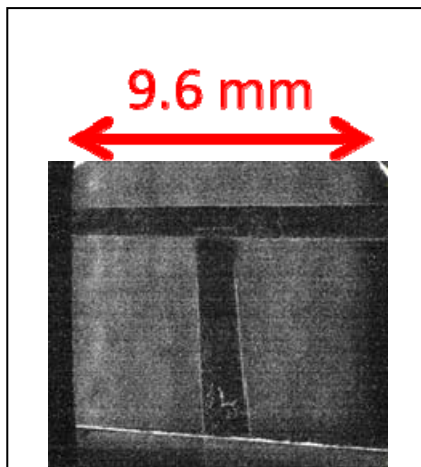


図2 Cr : GGG を用いた放射線照射によるイメージング例 (東北大の T をイメージ)

3. 研究発表等

雑誌論文	(掲載済み－査読有り) 計 13 件
計 19 件	<ol style="list-style-type: none"> Shunsuke Kurosawa, Makoto Sugiyama, Takayuki Yanagida, Yuui Yokota and Akira Yoshikawa “Temperature dependence of the scintillation properties of Ce:GSO and Ce:GSOZ” NIMA vol. 690, pp. 53 – 57 (2012). Akihiro Fukabori, Liqiong An, Akihiko Ito, Valery Chani, Kei Kamada, Takashi Goto, Akira Yoshikawa “Scintillation characteristics of undoped Sc2O3 single crystals and ceramics” IEEE TNS vol. 59, pp. 2594 – 2600 (2012). Akihiro Fukabori, Valery Chani, Kei Kamada, and Akira Yoshikawa “Growth of Yb-doped Y2O3, Sc2O3, and Lu2O3 single crystals by the micro-pulling-down technique and their optical and scintillation characterization” JCG vol. 352, pp.124 – 128 (2012). Akira Suzuki, Shunsuke Kurosawa, Jan Pejchal, Vladimir Babin, Yutaka Fujimoto, Akihiro Yamaji, Mafuyu Seki, Yoshisuke Futami, Yuui Yokota, Kunio Yubuta, Toetsu Shishido, Masae Kikuchi, Martin Nikl and Akira Yoshikawa “The effect of different oxidative growth conditions on the scintillation properties of Ce:Gd3Al3Ga2O12 crystal” p.s.s. (c) 9 pp. 2251 – 2254 (2012). Yutaka Fujimoto, Takayuki Yanagida, Shingo Wakahara, Hideki Yagi, Takagimi Yanagidani, Shunsuke Kurosawa, Akira Yoshikawa “Scintillation properties of Yb3+-doped YAG transparent ceramics” Opt. Mat. vol. 35, pp. 778 – 781 (2013). Shingo Wakahara, Takayuki Yanagida, Yuui Yokota, Yutaka Fujimoto, Valery Chani, Makoto Sugiyama, Yoshisuke Futami and Akira Yoshikawa “Phosphorescent Luminescence of Pure Magnesium Oxide Transparent Ceramics Produced by Spark Plasma Sintering” Opt. Mat. vol. 35, pp. 558 – 562 (2013).

	<p>7. Akira Suzuki, Shunsuke Kurosawa, Toetsu Shishido, Jan Pejchal, Yuui Yokota, Yoshisuke Futami, and Akira Yoshikawa “Fast and High-Energy-Resolution Oxide Scintillator: Ce-Doped (La,Gd)2Si2O7” Appl. Phys. Express vol. 5, 102601, (2012).</p> <p>8. Vladimir Babin, Akihiro Fukabori, Vitezslav Jary, Alena Beitlerova, Valery I. Chani, Akira Yoshikawa, and Martin Nikl “Luminescent properties of RE2O3 (RE = Lu, Sc, Y) singlecrystals and ceramics” The European Physical Journal B 86, p93 (2013)</p> <p>9. Makoto Sugiyama, Takayuki Yanagida, Daisuke Totsuka, Yuui Yokota, Yoshisuke Futami, Yutaka Fujimoto, Akira Yoshikawa Crystal growth and luminescence properties of Cr-doped YAlO3 single crystals JCG vol. 362 pp. 157 – 161 (2013).</p> <p>10. Yoshihiro Ohashi, Nobuhiro Yasui, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa, Toru Den “Submicron-diameter phase-separated scintillator fibers for high-resolution X-ray imaging” Appl. Phys. Lett. Vol 102, 51907 (2013).</p> <p>11. Development of LuAG-based scintillator M. Nikl, A. Yoshikawa, K. Kamada, K. Nejezchleb, C.R. Stanek, J.A. Mares, K. Blazek Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials 59 (2013) 47-72</p> <p>12. 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., vol. 59, pp. 2141-2145, (2012).</p> <p>13. 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, 352, pp. 91-94 (2012).</p> <p>(掲載済み一査読無し) 計 0 件</p> <p>(未掲載) 計 6 件</p> <p>1. Makoto Sugiyama, Yutaka Fujimoto, Takayuki Yanagida, Daisuke Totsuka, Valery Chani, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa “Nd-doped Lu3Al5O12 single-crystal scintillator for X-ray imaging” Rad. Meas. (受理済み,印刷中)</p> <p>2. Yuui Yokota, Masato Sato, Valery Chani, Yoshisuke Futami, Kazushige Tota, Shunsuke Kurosawa, Ko Onodera and Akira Yoshikawa “Growth of column-shaped and plate-like langasite-type piezoelectric single crystals and their physical properties” Sens. & Act. A. Phys. (受理済み,印刷中)</p> <p>3. Shunsuke Kurosawa, Takayuki Yanagida, Jan Pejchal, Kentaro Fukuda, Noriaki Kawaguchi, Sumito Ishizu, Toshihisa Suyama, Masanori Nakagawa, Yuui Yokota, Martin Nikl, Akira Yoshikawa “Evaluation of Nd:BaY2F8 for VUV scintillator” Rad. Meas. (受理済み,印刷中)</p> <p>4. Shunsuke Kurosawa, Jan Pejchal, Shingo Wakahara, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa “Optical Properties and Radiation Response of Ce:SrHfO₃ Prepared by the Spark Plasma Sintering Method” Rad. Meas. (受理済み,印刷中)</p> <p>5. Akira Yoshikawa, Yutaka Fujimoto, Akihiro Yamaji, Shunsuke Kurosawa, Jan Pejchal, Makoto Sugiyama, Shingo Wakahara, Yoshisuke Futami, Yuui Yokota, Kei Kamada, Kunio Yubuta, Toetsu Shishido, Martin Nikl “Crystal growth and characterization of Ce:Gd₃(Ga,Al)₅O₁₂ single crystal using floating zone method in different O₂ partial pressure” Opt. Mat. (受理済み,印刷中)</p> <p>6. Akihiro Yamaji, Yutaka Fujimoto, Takayuki Yanagid, Noriaki Kawaguchi, Kentaro Fukuda, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa “Luminescence properties of Nd³⁺ doped LiLuF₄ single crystals with different dopant concentrations” Opt. Mat. (受理済み,印刷中)</p>
--	--

様式19 別紙1

<p>会議発表 計 25 件</p>	<p>専門家向け 計 25 件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. Akira Yoshikawa, Yuui Yokota, Shunsuke Kurosawa, Yutaka Fujimoto, Martin Nikl, Vladimir V. Kochurikhin “Development of Novel Scintillator Crystals and their applications” International conference on Solid State Chemistry, Stavropol, Russia, 2012/4/24 Oral (invited) 2. S. Kurosawa, V. V. Kochurikhin, M. A. Borik, Y. Yokota, T. Yanagida, A. Yoshikawa “Scintillation Properties of High-Melting Temperature Single Crystals Using Skull Melting Method” SORMA west, Oakland, CA, US, 2012, 2012/5/14 Poster 3. Jan Pejchal, Martin Nikl, Takayuki Yanagida, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa “Luminescence and Scintillation Properties of Rare-earth-doped BaLu₂F₈ Single Crystals Grown by Micropulling-down Method” ICOOPMA12, Nara, Japan, 2012/6/6 Oral 4. Akira Suzuki, Shunsuke Kurosawa, Jan Pejchal, Vladimir Babin, Akihiro Yamaji, Mafuyu Seki, Yoshisuke Futami, Yuui Yokota, Kunio Yubuta, Toetsu Shishido, Masae Kikuchi, Martin Nikl, Akira Yoshikawa “Scintillation Properties of Ce-doped Gd₃Al₂Ga₃O₁₂ Crystal Grown by Floating Zone Method” ICOOPMA12, Nara, Japan, 2012/6/4 Poster 5. Mafuyu Seki, Vladimir V. Kochurikhin, Shunsuke Kurosawa, Akira Suzuki, Akihiro Yamaji, Yutaka Fujimoto, Shingo Wakahara, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa Optical and Scintillation Properties of Y₃Al₅O₁₂ Crystals Doped with Rare Earth ICOOPMA12, Nara, Japan, 2012/6/4 Poster 6. Yutaka Fujimoto, Takayuki Yanagida, Shunsuke Kurosawa, Akira Yoshikawa “Growth and Scintillation Properties of Ce³⁺-doped (Y_x-1Gdx)AlO₃ Crystals” ICOOPMA12, Nara, Japan, 2012/6/4 Poster 7. Kei Kamada, Takayuki Yanagida, Takayuki Yanagida, Takanori Endo, Kousuke Tsutumi, Yoshiyuki Usuki, Akira Yoshikawa Crystal Growth and Scintillation Properties of Ce doped (Gd,Y)₃Al₅O₁₂ Single Crystal ICOOPMA12, Nara, Japan, 2012/6/4 Poster 8. S. Kurosawa, M. Sugiyama, Y. Yokota, S. Wakahara, T. Yanagida, A. Yoshikawa “Optical Property and Radiation Reaction of RE: SrHfO₃ (RE=Ce, Pr) prepared by the Spark Plasma Sintering Method” LUMDETR 2012, Halle (Saale), Germany, 2012/9/12 Oral 9. A. Yoshikawa, K. Kamada, Y. Fujimoto, S. Kurosawa, Y. Yokota, J. Pejchal, Y. Futami, M. Nikl Crystal chemistry of Cerium doped multicomponent [Gd,RE]₃[Ga,Al,M']₂(Ga,Al,M)₃O₁₂ single crystalline scintillators and their performance LUMDETR 2012, Halle (Saale), Germany, 2012/9/12 Oral (invited) 10. Y. Yokota, A. Yamaji, Y. Fujimoto, S. Kurosawa, N. Kawaguchi, K. Fukuda, A. Yoshikawa “Shape-Controlled Scintillator Single Crystals Grown by Micro-Pulling-Down Method” IEEE/NSS, Anaheim, CA, USA, 2012/10/29 Poster 11. A. Yoshikawa, S. Kurosawa, A. Suzuki, M. Seki, A. Yamaji, Y. Fujimoto, Y. Yokota, S. Nagata, T. Shikama, V. V. Kochurikhin “Crystal Growth and Luminescent Properties of Nd-Doped Ca₃(Nb,Ga)₅O₁₂” IEEE/NSS, Anaheim, CA, USA, 2012/10/29 Poster 12. S. Kurosawa, Y. Yokota, and A. Yoshikawa Optical and Scintillation Properties of Eu-doped Fluoride Scintillator and Its Eu³⁺/Eu²⁺ Ratio International Symposium on Rare Earths, Okinawa, Japan, 2012/11/8 Poster 13. Shunsuke Kurosawa, Yuui Yokota and Akira Yoshikawa “Temperature dependence of Ce: SrHfO₃ ceramics scintillator” IWIRM8, Oarai, Japan, 2012/12/2 Poster 14. Yasuhiro Shoji, Mafuyu Seki, Shunsuke Kurosawa, Yuui Yokota, Vladimir V. Kochurikhin and Akira Yoshikawa “Crystal growth and luminescent properties of Y₃Al₅O₁₂ and sapphire (α-Al₂O₃) for a dosimeter” IWIRM8, Oarai, Japan, 2012/12/2 Poster 15. Akira Suzuki, Shunsuke Kurosawa, Toetsu Shishido, Jan Pejchal, Yuui Yokota, Yoshisuke Futami, Akira Yoshikawa “Performance of Novel Oxide Scintillator Ce:(La,Gd)₂Si₂O₇ with a high energy resolution” VCI 2013, Vienna, Austria, 2012/12/13 Oral 16. Akira Yoshikawa, Shunsuke Kurosawa, Yuui Yokota, Kei Kamada
------------------------	--

様式19 別紙1

	<p>“Development of high light yield and high energy resolution inorganic scintillator crystals” VCI 2013, Vienna, Austria, 2013/2/12,14 Poster</p> <p>17. 鈴木 彬, 黒澤俊介, 藤本 裕, 永田晋二, 山路晃広, 四竈樹男, 横田有為, 吉川 彰 “Yb:Y3Al5O12 単結晶材料の育成および発光特性の評価” 第 73 回応用物理学会学術講演会(2012 年秋季講演会), 愛媛大学・松山大学, 2012/9/12 口頭発表</p> <p>18. 黒澤俊介, 横田有為, 鈴木彬, 吉川彰 “SPS 法によるシンチレータ材料の開発” セラミックス協会第 25 回秋季シンポジウム, 名古屋大学, 2012/9/19 口頭発表</p> <p>19. 黒澤俊介, 横田有為, 吉川彰 “シンチレータの開発” 大洗研究会、秋葉原 UDX, 2012/9/27 口頭発表</p> <p>20. 吉川 彰, 横田有為, 黒澤俊介, 藤本 裕, 山路晃広, 西本けい “フッ化物共晶体を使った新しいシンチレータの開発” 第 7 回日本フラックス成長研究発表会、物質・材料研究機構, 2012/12/7 口頭発表</p> <p>21. 黒澤俊介, 鈴木彬, 宍戸統悦, 横田有為, 吉川彰 “Ce 添加:(Gd, La)2Si2O7 シンチレータの開発” 研究会「放射線検出器とその応用」(第 27 回)、高エネルギー加速器研究機構(KEK)、2013/2/6 口頭発表</p> <p>22. 山路晃広, 黒澤俊介, 鈴木彬, 関真冬, 藤本裕, 横田有為, 永田晋二, 四竈樹男, V. V. Kochurikhin, 吉川彰 “Nd:Ca3(Nb,Ga)5O12 単結晶の育成及び発光特性” 研究会「放射線検出器とその応用」(第 27 回)、高エネルギー加速器研究機構(KEK)、2013/2/7 ポスター発表</p> <p>23. 吉川 彰 “マイクロ引下げ法を用いた新材料探索と形状制御結晶成長” 結晶成長学会 第 88 回バルク結晶分科会研究会、東北大学, 2013/2/22 口頭発表 (招待講演)</p> <p>24. 黒澤俊介, 原田晃一, 庄子育宏, 横田有為, 吉川彰 “高い放射線阻止能を有するシンチレータの開発” 日本物理学会 第 68 回年次大会、広島大学, 2013/3/27 口頭発表</p> <p>25. 吉川彰 新規シンチレータ結晶の開発および最近の開発動向 電気化学会創立第 80 周年記念大会、東北大学, 2013/3/31、口頭発表、(招待講演)</p> <p>一般向け 計 0 件</p>
<p>図 書</p> <p>計 0 件</p>	
<p>産業財産権 出願・取得状 況</p> <p>計 0 件</p>	<p>(取得済み) 計 0 件</p> <p>(出願中) 計 0 件</p>
<p>Web ペー ジ (URL)</p>	<p>東北大学 吉川研究室 http://yoshikawa-lab.imr.tohoku.ac.jp/</p>
<p>国民との科 学・技術対 話 の実施状 況</p>	<p>メッセナゴヤ2012、平成 24 年 11 月 7-9 日、名古屋(ポートメッセなごや)、対象者:一般、参加者:6 万人以上、赤外線シンチレータ開発などの研究室活動内容の紹介</p>

様式19 別紙1

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

特に該当なし

実施状況報告書(平成24年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されません

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	25,156,000	0	0
間接経費	34,800,000	27,253,200	7,546,800	0	0
合計	150,800,000	118,097,200	32,702,800	0	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 (未収利息を除 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	1,785,561	25,156,000	0	26,941,561	26,941,561	0	0
間接経費	2,207,080	7,546,800	0	9,753,880	9,753,880	0	0
合計	3,992,641	32,702,800	0	36,695,441	36,695,441	0	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	16,600,935	時間差エネルギー同時測定装置、LCRメータ 等
旅費	3,555,628	研究成果発表旅費(SORMA-West2012) 等
謝金・人件費等	5,418,151	研究員、実験補助員給与 等
その他	1,366,847	学会参加費、研究装置修理費 等
直接経費計	26,941,561	
間接経費計	9,753,880	
合計	36,695,441	

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
高精度シンチロン ン光検出装置	SPC- 212104282-001	1	8,179,500	8,179,500	2013/2/28	東北大学
TDC/E-SPL時間差エ ネルギー同時測定装置	TDC/E-SPL	1	1,890,000	1,890,000	2012/11/12	東北大学
LCRメータ	E4980A再生品	1	1,102,500	1,102,500	2012/7/20	東北大学
高温用光電子増倍 管	R1288AH-07	1	784,350	784,350	2012/7/3	東北大学
ソースメータ	2410	1	880,740	880,740	2012/6/21	東北大学
増幅器	A572A	1	521,136	521,136	2012/6/7	東北大学
中性子線源	N-252CE	1	886,200	886,200	2012/4/25	東北大学