

赤色発光 GAGG および TbGG ナノ粒子シンチレータの開発

Development of red-emitting GAGG and TbGG nanoparticle scintillators

静岡大¹, 東北大院工² ○棚橋 和基¹, 藤本 裕², 浅井 圭介², 越水 正典¹

Shizuoka Univ.¹, Tohoku Univ.² ○Tanahashi Kazuki¹, Yutaka Fujimoto², Keisuke Asai², Masanori

Koshimizu¹

E-mail: tanahashi.kazuki.18@shizuoka.ac.jp

【はじめに】外部からの放射線照射により生体内部で光を発生させる技術の需要は、医療や生体研究において高まっている。最近では、ニューロンと光受容体にマイクロ粒子シンチレータを結合させ、外部からの X 線照射によるマウスの行動制御に成功した事例が報告されている[1]。この事例で用いられた Ce:GAGG ($\text{Gd}_3\text{Al}_{5-x}\text{Ga}_x\text{O}_{12}$) は、高い発光量と、高い密度および実効原子番号を有し、X 線を効率よく止めることができるため、生体投与に適している。また、非侵襲的な生体投与のためには、ナノ粒子とすることが望ましい。本研究では、用途の拡大を目的とし、赤色光を吸収する光受容体への適用を想定している。そこで、赤色発光粒子を作るための希土類添加物を探索すべく、添加物の種類や濃度、およびホスト組成比を変更し、ナノ粒子を合成した。更に、 Tb^{3+} から Eu^{3+} へのエネルギー移動を期待し[2], Tb を主成分として使用した TbGG ($\text{TbAl}_y\text{Ga}_{5-y}\text{O}_{12}$) の合成も行った。

【実験方法】ホスト組成に GAGG あるいは TbGG を採用し、含有すべきカチオンの硝酸塩を量論比で蒸留水に溶解し、全カチオンに対し 2 倍の物質量の酒石酸を溶解した。添加する希土類に Eu, Sm および Pr を採用し、Gd あるいは Tb サイトのカチオンに対し 0.1-100 mol%濃度となるようそれぞれ添加した。その後、室温で 24 時間攪拌し、80°C における 2 時間の加熱および 24 時間の乾燥を経て、1300°C で 6 時間の焼成によりナノ粒子を得、それらの XRL スペクトルと蛍光量子収率 (PL QY) を測定した。

【結果】ホスト組成や添加物の種類にかかわらず、50-200 nm 程度のやや楕円の粒子が得られた。

以下、特に断りがない場合 GAGG は $x=2$ のもの、TbGG は $y=0$ のものを指す。Sm:GAGG および Pr:GAGG の PL QY は 50-60%程度であったが、Eu:GAGG および Eu:TbGG の PL QY は 80%ほどとなり、特に 5 mol% Eu:GAGG は 98.4% と非常に高い PL QY を示した。0.1 mol%添加系において $x=2.5, 3$ と変化させたところ、いずれも PL QY が低下するか、同様であった。また、0.1 mol% Eu:TbGG でも同様に、 $y=0$ から $y=1, 2$ と変化させたが、PL QY は低下した。

Figure 1 に GAGG:Eu, Figure 2 に TbGG:Eu ナノ粒子の XRL スペクトルを示す。Eu 添加系では 591 および 705 nm に Eu^{3+} の遷移による鋭いピークが見られた。Pr 添加系では、486, 558, 610, 656, および 716 nm に Pr^{3+} の遷移による鋭いピークが見られた。Sm 添加系では、565, 611, 656, および 710 nm に Sm^{3+} の遷移による鋭いピークが見られた。また、どの添加系においても 480 および 780 nm 付近で幅広いピークが確認されたが、これらはホスト由来のものであると推察される。総括として、Eu, Pr および Sm のいずれの添加系も、目的とした赤色光の発光波長である 600 nm 付近のピークが得られた。

【文献】[1] Matsubara, Yanagida, et al., Nature Commun. 12, 4478 (2021).

[2] Yuxia Luo, Zhenyu Liu, et al., Adv. Sci., Volume 6, Issue 10, 1900487 (2019).

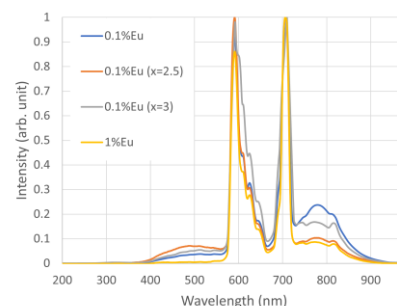


Figure 1. XRL spectra of Eu:GAGG.

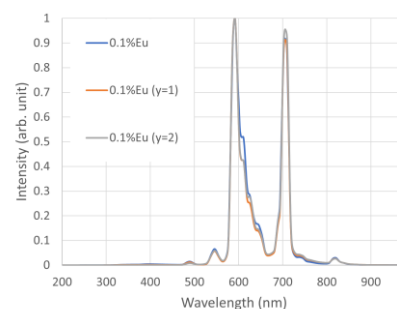


Figure 2. XRL spectra of Eu:TbGG.