

ダイヤモンドの発光による放射線検出に関する計算論的研究

梅本 篤宏 高エネルギー加速器研究機構

梅本 篤宏^{*1}, 宮本 良之^{*2}

^{*1} 高エネルギー加速器研究機構, ^{*2} 産業技術総合研究所

キーワード: ダイヤモンド, シンチレータ, 第一原理計算, 時間依存密度汎関数理論

1. 序論

近年、ダイヤモンドを用いた研究が熱を帯びている。ダイヤモンドは他に類を見ない稀有な物性を持つデバイスであり、その物性は幅広い研究分野で重宝されている。放射線検出器としてのダイヤモンドも魅力的であり、これまで様々な検出メカニズムによる荷電粒子の信号検出が実証されている[1][2][3]。ダイヤモンドは高い放射耐性やγ線に対する低い反応断面積といった、高線量環境での放射線計測に適した特性を有する。

本研究ではシンチレータ検出器としてのダイヤモンドに着目し、理論的側面から発光機構のモデルを構築することを目的とする。シンチレータは検出器中の荷電粒子の反応を発光として捉える粒子検出器である。ダイヤモンドのような結晶の場合、結晶中に含まれる不純物欠陥が発光中心として機能することで知られ、適切な不純物ドーピングにより高い発光量や所望の発光波長が得られる。これまでの実験研究により炭素周囲のⅢ族(B, IV族(Si, Geなど), V族(N, P)元素などがダイヤモンドの発光中心となることが示されている。これら不純物がシンチレータ発光にどのように寄与するかを理解することは、シンチレータ開発を加速させる重要な研究内容である。本研究により、ダイヤモンドシンチレータの検出器性能向上と実用化につなげていく。

2. 計算条件

地球シミュレータ(ES4)のES4VE(NEC SX-Aurora TSUBASA)を用いて計算を行った。分子動力学(MD)シミュレーションを実施し、アルファ線(ヘリウムイオン, He)がダイヤモンド結晶中を通過する際のダイヤモンドの励起過程を計算した。MDシミュレーションと組み合わせ、電子の波動関数の時間発展を時間依存密度汎関数理論(TDDFT)により計算した。TDDFTにおける電子の波動関数の実時間発展は、時間依存Kohn-Sham方程式を数値的に解くことで取り扱った。時間依存Kohn-Sham軌道の表現には、64 Ryのカットオフエネルギーを持つ平面波基底を用い、数値計算はスプリットオペレーター法で行った[4][5]。多体電子間相互作用は密度汎関数理論(DFT)の枠組みで取り扱い、交換相関ポテンシャルは電子密度の汎関数として示した。局所密度近似(LDA)を採用し、電子気体の数値結果に合うように決められた汎関数形式を採用した。価電子とイオン間の相互作用は、非局所項が分離可能な形式のノルム保存型擬ポテンシャルを用いた。

ダイヤモンド結晶構造は、立方晶ユニットセルを $3 \times 3 \times 3$ のスーパーセルとして、約1.08 nmの周期で展開して構築した。ダイヤモンド構造としてスラブ模型も試みたが、Heの通過後にクーロン爆発で構造が破壊されたことから、今回はバルク模型の採用に至った。発光中心になり得る不純物原子の導入は、セル中心付近の1つの炭素原子を置換して行い、不純物元素の有無によるHe通過後の電子状態密度(DOS)の変化を評価した。

3. 結果

まずは不純物を含まないダイヤモンド構造を用いて計算を行った。運動エネルギー $E = 5$ MeVのHeを20回通過させたときのDOSを図1に示す。なお、Heは格子に衝突しない位置での通過とした。右図は左図の縦軸を10倍スケールした拡大図である。その割合は少ないながらもHeによる伝導帯への電子励起が確認できる。

図1 Heを20回通過させたときの、不純物を含まないダイヤモンドの電子状態密度(DOS)分布

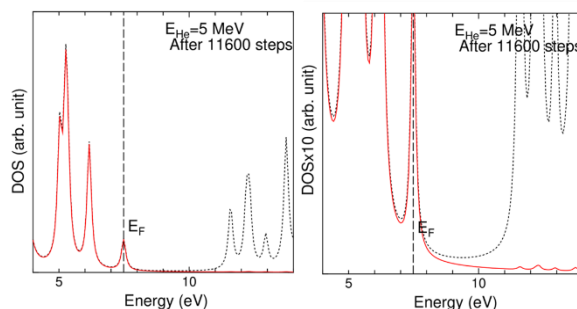
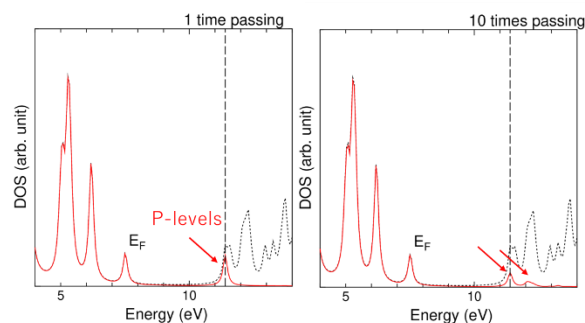


図2 Pを1つ含むダイヤモンド構造にHeを1回(左図)、10回(右図)通過させたときの電子状態密度(DOS)分布



次に不純物として P を 1 つ含んだダイヤモンド構造を用意し、He を通過させた。図 2 に結果を示す。こちらは He の通過回数を 1 回(左図)、10 回(右図)として DOS の変化をトレースした。He の通過回数の増加により P によるドナー準位が高いエネルギーに遷移していく様子が観測された。また同じエネルギーの He の通過にも関わらず、図 1 に示したドーピングなしダイヤモンドの場合よりも少ない通過回数で効率的に電子励起が行われる様子が示された。これは実験結果とも無矛盾な振る舞いといえ、今回使用したダイヤモンド構造と計算手法が問題なく機能することを示唆する。

4. まとめと展望

地球シミュレータを利用し、ダイヤモンドシンチレータの検出器性能向上を目的とした発光機構のモデル構築のための研究を行った。バルク上のダイヤモンド構造を考案し、アルファ線通過による電子状態密度の変化を MD シミュレーションと TDDFT を組み合わせて実装した。不純物として P を 1 つ含んだダイヤモンド構造と含まない構造で、アルファ線通過後の電子状態密度に有意な違いがみられ、不純物が電子励起を効率化させ発光に寄与する可能性を示唆する結果が得られた。

2025 年度も地球シミュレータ研究課題に採択されており、本研究を継続して推進する。今後は P 以外の不純物を取り込んだダイヤモンド構造での評価を行う予定で、ドナーやアクセプタ準位とのエネルギー差との相関に対する理解を深めていく。その結果を実際のダイヤモンド合成の現場にフィードバックし、ダイヤモンドシンチレータの改良へとつなげるのが今後の目標である。

謝辞

本研究は令和 6 年度地球シミュレータ機構戦略課題[チャレンジ利用] 研究課題：ダイヤモンドの発光に関する理論的研究 に採択され実施することができました。海洋研究開発機構の担当者の方々、また申請課題のカウンターパーソンになっていただいた数理学・先端技術研究開発センターの廣瀬重信様に感謝いたします。

文献

- [1] A. Umemoto, et al., Nucl. Instrum. Methods A, 1057:68789, (2023)
- [2] L. Canonica, et al., J. Low. Temp. Phys, 199:606, (2020)
- [3] C.S. Bodie, et al., Nucl. Instrum. Methods A, 989:11, (2021)
- [4] O. Sugino and Y. Miyamoto. Phys. Rev. B, 59:2579-2586, (1999)
- [5] O. Sugino and Y. Miyamoto. Phys. Rev. B, 66:089901(E), (2002)