

ダイヤモンドのイオン照射後の発光に関する理論研究

梅本 篤宏 高エネルギー加速器研究機構 量子場計測システム国際拠点

梅本 篤宏^{*1}, 宮本 良之^{*2}^{*1} 高エネルギー加速器研究機構・量子場計測システム国際拠点, ^{*2} 産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域

キーワード: ダイヤモンド, 放射線検出器, 第一原理計算, 時間依存密度汎関数理論

1. 序論

ダイヤモンドは他に類を見ない稀有な物性を持つワイドギャップ半導体である。世界中の幅広い分野において応用研究が進められており、放射線検出器としても広く関心が集められている。ダイヤモンドの優れた放射耐性は、高線量環境下での放射線計測に適した特性を有する。

本研究では、放射線検出器の中でもシンチレータとしてのダイヤモンドに着目する [1][2]。ダイヤモンド中に存在する不純物や結晶欠陥は発光中心として機能するため、結晶成長条件や不純物濃度を適切に制御することで、発光量や時定数を調整したダイヤモンドシンチレータの開発が期待される。本目的は、シンチレータ開発の指針を理論的側面から示すことであり、時間依存密度汎関数理論 (TDDFT) を用いた計算手法の開発を進めた。放射線によって誘発される状態密度 (DOS) の変化を解析することで、放射線励起後の電子挙動を明らかにし、不純物との関係性について評価を行った [3]。

2. 計算条件

計算は、地球シミュレータ (ES4) の ES4VE (NEC SX-Aurora TSUBASA) を用いて行った。分子動力学 (MD) シミュレーションを実施し、ダイヤモンド結晶中に運動エネルギー $E = 5 \text{ MeV}$ のアルファ線 (He イオン) を通過させ、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 TDDFT で計算した。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いて取り扱った。時間依存 Kohn-Sham 軌道は、64 Ry のカットオフエネルギーを持つ平面波基底で表現し、スプリットオペレーター法で数値計算を行った [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用いた。価電子とイオン間の相互作用は、非局所項が分離可能なノルム保存型擬ポテンシャルを用いた。

ダイヤモンドモデルは、バルク構造の立方晶ユニットセルを用周期的に複製した $3 \times 3 \times 3$ のスーパーセルを採用し、約 1.08 nm の格子長を持つ周期構造とした。このスーパーセルは 216 個の炭素原子を含む。ダイヤモンドシンチレータに関連する発光色中心との相関を評価するため、セル中心付近の 1 つの炭素原子を不純物原子に置換

した。代表的なドナーであるリンをドーブして不純物元素の有無による DOS 変化を評価した。

3. 計算結果

ダイヤモンド構造に He イオンを 10 回通過させたときの、リンドーブの有無による DOS 分布の比較を図 1 に示す。それぞれ右図に示したものはフェルミ準位付近の拡大図である。リンドーブによってフェルミ準位 (図 1 中では P-levels と表記) が伝導帯に近づいており、n 型半導体として典型的な特性が再現された。このことは、本計算手法とダイヤモンドモデルの妥当性を支持する結果である。次に、エネルギー軸に沿って DOS を積分し、励起状態電子数を見積もると、ドーパントの有無によらず、その値はおおよそ $0.3 e$ であった。これは、DFT 特有の近似や DOS のブロードニングの影響で誤差が大きいことに起因する。今後、統計数を増やし、計算を改善することで有意な評価が可能になると期待される。

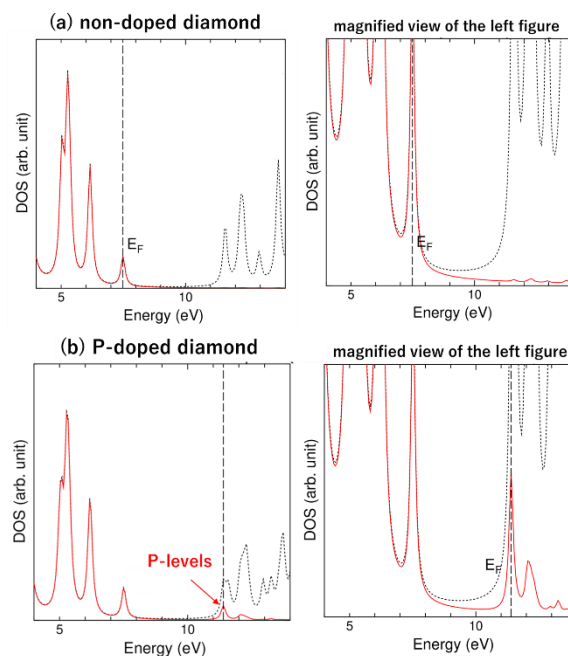


図 1: $E = 5 \text{ MeV}$ の He イオンを 10 回通過させたときの DOS 分布。(a) 不純物ドーブなし。(b) リンドーブ

リンドーブダイヤモンドに関しては、He イオン通過後の DOS 時間発展の計算も行った。10 回の通過の後でイオンをダイヤモンドモデルから取り除き、約 200 fs 経過まで

の DOS を計算した。結果を図 2 に示す。励起電子の DOS には大きな減少が見られず、P-levels は 200 fs の間で励起状態を維持した。200 fs は励起状態の安定性を評価するのに十分な時間スケールであると考えられ、これらの高いエネルギーが基底状態に戻るには何らかのプロセスによるエネルギー放出が必要であることを示唆する。つまりは、シンチレータ発光などの粒子信号として検出できる可能性を示す結果が得られた。

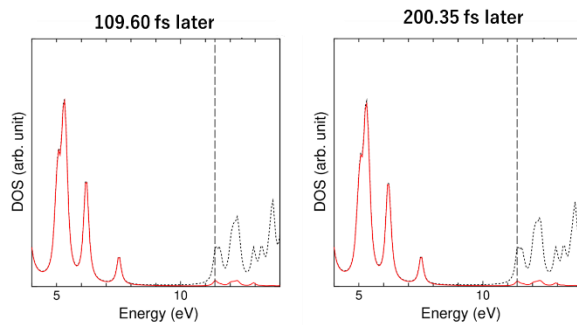


図 2: リンドーブダイヤモンドモデルに $E = 5 \text{ MeV}$ の He イオンを 10 回通過させ取り除いた後の DOS の時間変化。

4. まとめと展望

ダイヤモンドを用いた放射線検出器開発と性能向上を理論的観点から推進するため、バルク構造のダイヤモンドモデルを構築し、TDDFT を用いた計算を行った。エネルギー 5 MeV の He イオン通過後における DOS を計算し、ドナー不純物の有無による変化およびその時間発展を評価した。本研究で開発した計算フレームワークは、ダイヤモンドシンチレータにとどまらず、他の放射線検出器への応用も期待される。粒子検出器としてのダイヤモンドのさらなる高度化への寄与と広い波及効果を目指し、さらなる研究開発を進める所存である。

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 (2-24004)、および令和 7 年度地球シミュレータ公募課題(1-25021)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に感謝を申し上げます。

文献(10 ポイント太字)

- [1] A. Umemoto, et al., Nucl. Instrum. Methods A, 1057:68789 (2023)
- [2] A. Umemoto, et al., Prog. Theor. Exp. Phys., vol 2025, 12 (2025)
- [3] A. Umemoto and Y. Miyamoto. Nucl. Instrum. Methods B, 570:165925 (2026)
- [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)