

KS 研究会セッション | 一般セッション(ポスター講演): KS.1 固体量子センサ研究会

[9a-P07-1~8] KS.1 固体量子センサ研究会

[9a-P07-1]

マイクロ波とラジオ波による二重ドレスト状態を利用した連続波による広帯域交流磁場センサの開発

○(D)岡庭 龍聖^{1,2}、松崎 雄一郎³、鈴木 琉生^{1,2}、徳田 規夫⁴、早瀬 潤子^{1,2} (1.慶大理工、2.慶大CSRN、3.中大理工、4.金大ナノマリ)

[9a-P07-2]

無冷媒ヘリウムクライオスタット中ダイヤモンドNV中心アンサンブルの光検出磁気共鳴スペクトル

○東 勇佑¹、渡邊 幸志²、柏谷 聡³、野村 晋太郎¹ (1.筑波大数理物質、2.産総研、3.名古屋大工)

[9a-P07-3]

ダイヤモンドNVセンタを用いた温度測定の精度の検討

○橋崎 光里¹、土方 泰斗¹、清水 麻希¹ (1.埼玉大院理工)

[9a-P07-4]

ダイヤモンド中電子スピンの二重共鳴現象を用いた温度・交流電流の広範囲同時イメージング

○(M2)板橋 佑真^{1,2}、大坪 楓季^{1,2}、田中 貴久¹、松崎 雄一郎³、徳田 規夫⁴、早瀬 潤子^{1,2} (1.慶大理工、2.慶大 CSRN、3.中大理工、4.金大ナノマリ)

[9a-P07-5]

分子注入法による近接2 NV含有走査NVプローブの開発

○(M2)上杉 俊輔¹、林 都隆¹、Prananto Dwi¹、小野田 忍²、安 東秀¹ (1.北陸先端大、2.量研)

[9a-P07-6]

ボロンドープダイヤモンド回路を用いた高温高圧力環境下の量子センシング

○(PC)大隈 理央¹、松本 凌²、小野田 忍³、太田 健二¹、高野 義彦²、荒井 慧悟¹ (1.Science Tokyo、2.NIMS、3.QST)

[9a-P07-7]

(001)面ダイヤモンド基板上{111}面逆ピラミッド型ホールに生成した高配向窒素空孔中心の特性比較

○(M2)伊牟田 航基^{1,2,4}、及川 耀平^{1,2}、鈴木 琉生^{1,2}、林 寛³、徳田 規夫³、渡邊 幸志⁴、早瀬 潤子^{1,2} (1.慶大理工、2.慶大CSRN、3.金沢大ナノマリ、4.産総研)

[9a-P07-8]

垂直・水平方向反応性イオンエッチングによる温度イメージングに適したバルクダイヤモンド薄板構造の作製

○(M2)土屋 宏樹^{1,2,4}、板橋 佑真^{1,2}、伊牟田 航基^{1,2,4}、渡邊 幸志⁴、石田 悟己³、松清 秀次³、西岡 政雄³、岩本 敏³、早瀬 潤子^{1,2} (1.慶大理工、2.慶大CSRN、3.東大先端研、4.産総研)

マイクロ波とラジオ波による二重ドレスト状態を利用した 連続波による広帯域交流磁場センサの開発

Development of a Broadband AC Magnetic Field Sensor Using Continuous Waves Based on Double-Dressed States with Microwave and Radio Wave

慶大理工¹, 慶大 CSRN², 中大理工³, 金大ナノマリ⁴

○(D)岡庭 龍聖^{1,2}, 松崎 雄一郎³, (D)鈴木 琉生^{1,2}, 徳田 規夫⁴, 早瀬 潤子^{1,2}

Keio Univ.¹, Keio CSRN², Chuo Univ.³, Kanazawa Univ.⁴

°Ryusei Okaniwa^{1,2}, Yuichiro Matsuzaki³, Rui Suzuki^{1,2}, Norio Tokuda⁴, Junko Ishi-Hayase^{1,2}

E-mail: oknw-20000207_ryu@keio.jp

【背景・目的】ダイヤモンド中窒素空孔中心(NV センター)は室温下で磁場を高感度に測定できる固体量子センサである^[1]。NV センターは、電子スピン状態をマイクロ波(MW)で制御、レーザーで初期化・読み出しを行って磁場を検出し^[2]、MW やレーザーは連続波(CW-ODMR)またはパルス状に照射する 2 方式がある。ここで、我々は NV センターと 2 周波のラジオ波(RF 波)がコヒーレントに結合した RF-RF 二重ドレスト状態を用いることで、CW-ODMR による簡便かつ周波数可変な MHz 帯磁場センサを実証した^[3]。しかし、検出可能周波数は従来比で約 2 倍増大したが、その範囲は十数 MHz 程度に留まる。これは回転波近似で決定され^[4]、かつダイヤモンドの歪みが数 MHz であることに起因する^[5]。そこで、我々は連続波の MW と RF を NV センターとコヒーレントに相互作用させた MW-RF 二重ドレスト状態を用いて上記課題の解決を試みる。文献[3]と異なりドレスト状態生成に利用する準位のエネルギー差が~GHz のため、原理上サブ GHz までセンシングが可能と期待される。

【原理・方法】NV センターの基底状態は $S=1$ の三準位からなり、通常の NV 磁場センサは平行な静磁場下で発現するエネルギー固有状態のうち二準位のみ使用する。しかし、本研究では Fig. 1 に示すような垂直な静磁場下における固有状態 $\{|B\rangle, |D\rangle, |0\rangle\}$ を利用する。本研究に使用する外場は MW と RF の 2 つである。RF は本研究における検出対象の磁場である。はじめにマイクロ波を $|D\rangle$ - $|0\rangle$ 間に印加し Fig. 1 右側に示すように MW ドレスト状態を生成する。ここで、生成されたドレスト状態に対して共鳴する RF を印加して MW-RF 二重ドレスト状態を生成させる。RF により $|B\rangle$ への駆動が発生し $|0\rangle$ の占有率が下がるため、発光量が低下する。これを定量的に評価して RF を検出できる。実験では CW-ODMR を採用する。

【結果】NV センターに MW と RF を印加した際のハミルトニアンを考え、Lindblad 方程式を用いて定常状態における $|0\rangle$ の占有率を解析した結果を Fig. 2(a)に示す。 $|0\rangle$ 状態にいる確率の低下(dip)、発光量の低下が共鳴 RF 周波数で確認される。さらに、Fig. 2(b)の通り MW の強度(λ_d)に応じて dip の位置が変化するため、 λ_d によってターゲット磁場である RF 周波数を制御できることがわかった。これらは理論的解析と整合する。今後はこのシミュレーション結果を基に、実験による実証やアンチクロス構造の影響などを吟味する予定である。

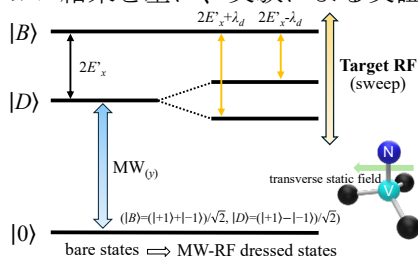


Fig. 1 Energy levels in NV center at different conditions

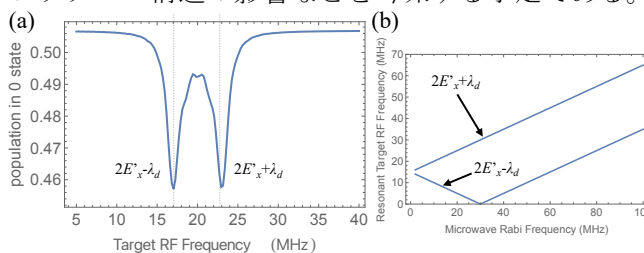


Fig. 2 (a) Population change of the $|0\rangle$ at each target frequency
(b) Microwave power dependence of the resonance frequency

Acknowledgement

This work was supported by MEXT Q-LEAP (Grant No. JPMXS0118067395), JSPS KAKENHI (Grant No. JP25K01292), JSPS Grant-in-Aid for JSPS Fellows (Grant No. JP24KJ1964), SIP Program and CSRN, Keio University. This work was also supported by Leading Initiative for Excellent Young Researchers, JST, PRESTO (Grant No. JPMJPR245B), CREST (Grant No. JPMJCR24A5, JPMJCR2315), Moonshot R&D (Grant No. JPMJMS226C), Japan and Program for Forming Japan's Peak Research Universities (J-PEAKS).

References

- [1] J. F. Barry, *et al.*, Rev. Mod. Phys. **106**, 063111 (2020). [2] C. L. Degen, *et al.*, Rev. Mod. Phys. **89**, 035002 (2017). [3] R. Okaniwa, *et al.*, J. Appl. Phys. **135**, 044401 (2024). [4] T. Mikawa, *et al.*, Phys. Rev. A **108**, 012610 (2023). [5] R. Lordin, *et al.*, Rep. Prog. Phys. **77**, 056503 (2014).

無冷媒ヘリウムクライオスタット中 ダイヤモンド NV 中心アンサンブルの光検出磁気共鳴スペクトル Optically Detected Magnetic Resonance Spectra of Diamond NV Center Ensembles in a Cryogen-free Helium Cryostat

筑波大数理物質¹, 産総研², 名古屋大工³

○(D)東 勇佑¹, 渡邊 幸志², 柏谷 聡³, 野村 晋太郎¹

Univ. of Tsukuba¹, AIST², Nagoya Univ.³

○Yusuke Azuma¹, Hideyuki Watanabe², Satoshi Kashiwaya³, Shintaro Nomura¹

E-mail: azuma.yusuke.sj@alumni.tsukuba.ac.jp

ダイヤモンド中の窒素-空孔(NV)中心アンサンブルは、高感度磁場量子センシングを可能にする固体量子センサとして近年大きな注目を集めている。当研究室ではこれまで ^{15}N 同位体を注入した NV 中心アンサンブルを用いて研究を進めてきた[1]。NV 中心は室温でも量子操作時間を大幅に上回る長い量子コヒーレンス時間を示すが、低温($T < 10\text{ K}$)ではフォノン励起の熱的抑制によりスピン格子緩和時間 T_1 とコヒーレンス時間 T_2^* が一段と延長し、光検出磁気共鳴(ODMR)の線幅が室温時と比較して狭まることから、磁場感度の向上が見込まれる。

一方、低温では室温のとき熱的平均化で隠れていたスピン準位間遷移やスピン-スピン相互作用が顕在化し、ODMR スペクトルが複雑化することも報告されている[2]。本研究では、無冷媒ヘリウムクライオスタット中にバイアス磁場印加のために3軸超伝導ヘルムホルツコイル[図 1(a)]を導入して静磁場の大きさと向きを可変とした。さらに NV 中心アンサンブルを3軸ピエゾステージ上に配置することにより低温下で微動可能とした測定系を構築した[図 1(b)]。この系を用いて室温および低温でパルス ODMR を測定した。得られた共鳴周波数・線幅・コントラストの温度依存性を解析して、これらパラメータが磁場感度に及ぼす影響について議論する。

[1] Shunta Onodera *et al.*, *Journal of Applied Physics* **136**, 166601 (2024).

[2] Stefan Ernst *et al.*, *Physical Review Letters* **131**, 086903 (2023).

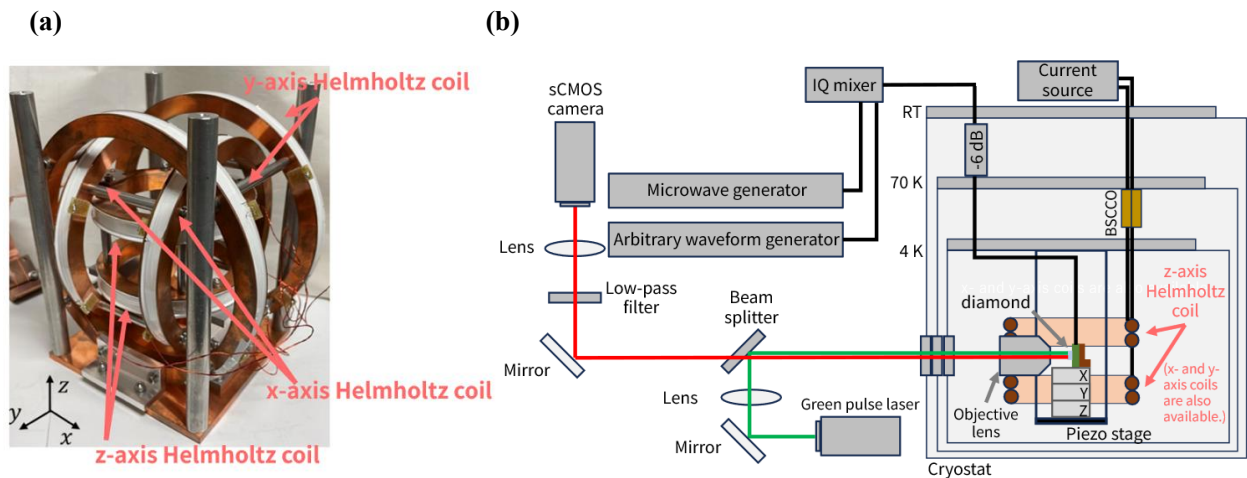


図 1 (a) 3 軸超伝導ヘルムホルツコイル. (b) 実験セットアップの概略図.

ナノダイヤモンド NV センタを用いた温度測定の精度の検討

Investigation of the accuracy of temperature measurement using NV center in nanodiamond

埼玉大院理工¹ ◯(M2) 橋崎 光里¹, 土方 泰斗¹, 清水 麻希¹

Saitama Univ.¹ ◯Misato Hashizaki¹, Yasuto Hijikata¹, Maki Shizamizu¹

E-mail: m.hashizaki.890@ms.saitama-u.ac.jp

【背景】ナノダイヤモンド中の窒素空孔中心 (NV センタ) は、幅広い範囲(100K[1]~1000K[2])でナノサイズの温度測定が可能とされており、生体[3]やデバイス上の温度測定[4]など様々な応用が期待されている。NV センタを用いた温度測定には光検出磁気共鳴 (ODMR) の中心周波数のシフトを用いた方法[5]や、温度に対するスペクトルのゼロフォノン線 (ZPL) のピークの変化を用いた方法[6]がある。幅広い温度において温度測定する際、それぞれの測定方法においてどれほどの温度精度を得られ、どのような温度域に適しているかは議論の余地がある。測定方法を判断する上で必要となる指標を得るために、NV ナノダイヤモンドの ODMR 中心周波数のシフト量と発光スペクトルの変化を同じ温度下で測定し、それぞれの温度精度を比較した。

【実験方法】シリコン基板上にナノダイヤモンド (FND BIOTECH 100nm Red FND) を散布した。基板を加熱・冷却が可能な台座にのせ、基板表面に接触させた熱電対による測定温度を基準として、ナノダイヤモンドから得られた二つの方法による測温パラメータを比較検討した。

【結果】基板の温度を 30℃~38℃まで2℃ずつ変化させ、ODMR の中心周波数のシフトを測定した (Fig.1)。スペクトルも同様の温度で測定し、NV⁰ と NV⁻ のピークの面積比と FWHM をフィッティングにより求めた (Fig.2(a), (b))。グラフの傾きをフィッティングする際の測定値の偏差を温度のばらつきに変換すると、ODMR を用いた方法では±0.35℃、スペクトルの面積比によるものでは±1.0℃、FWHMでは NV⁰ で±1.4℃、NV⁻ では±5.0℃となった。そのため、室温近傍では ODMR を用いた温度測定の方が精度よく測定されることがわかった。本研究は文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」事業 (課題番号 JPMXP1224NM0051) JSPS 科研費 JP24K07353 の支援を受けて行った。

【参考文献】 [1]Fukami M et al, Phys. Rev. Appl. 12 014042 (2019). [2] Liu G Q et al, Acc.Chem.Res.56,95-105(2023).[3] Fujiwara et al , Sci. Adv. 6 ,eaba9636 (2020). [4] M. Shimizu et al, Appl. Phys. Express. 17, 095001 (2024). [5] Acosta.V.M et al, Phys. Rev. Lett. 104 070801 (2010). [6] F.A.Pedroza-Montero et al, Appl. Phys. Lett. 125, 073701 (2024).

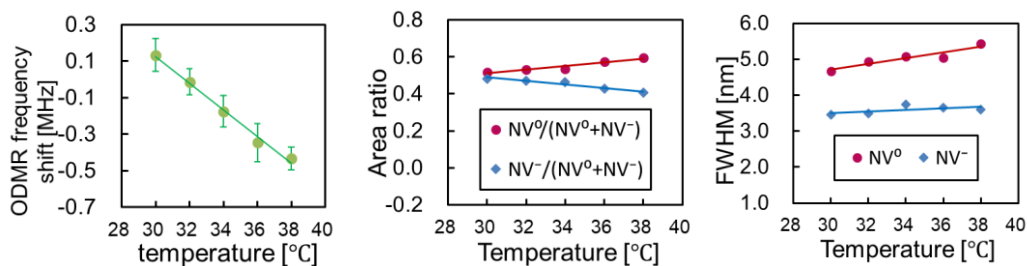


Fig.1 ODMR frequency shift

Fig.2(a) Area Ratio of NV⁰ peak and NV⁻ peak

Fig.2(b) FWHM of NV⁰ peak and NV⁻ peak

ダイヤモンド中電子スピンの二重共鳴現象を用いた 温度・交流電流の広範囲同時イメージング

Wide-field simultaneous imaging of temperature and AC current using double resonance phenomenon of electron spins in diamond

慶大理工¹, 慶大 CSRN², 中大理工³, 金大ナノマリ⁴

○(M2)板橋 佑真^{1,2}, 大坪 楓季^{1,2}, 田中 貴久¹, 松崎 雄一郎³, 徳田 規夫⁴, 早瀬 潤子^{1,2}

Keio Univ.¹, Keio CSRN.², Chuo Univ.³, Kanazawa Univ.⁴,

○(M2) Yuma Itabashi^{1,2}, Fuki Otsubo^{1,2}, Takahisa Tanaka¹,

Yuichiro Matsuzaki³, Norio Tokuda⁴, and Junko Ishi-Hayase^{1,2}

E-mail: yuma.basel@keio.jp

【背景・目的】ダイヤモンド中窒素空孔中心 (NV センター) は、室温大気圧下で高感度量子センサとして利用でき、磁場イメージングから微小領域における電流分布の再構成が可能であること、磁場・温度を同時に測定できることから、マイクロデバイスの解析・故障検査への応用が期待されている^[1]。しかし MHz 帯交流磁場と温度の複合測定やバルクダイヤモンドでの温度イメージングが困難であった。それに対し我々は、電子スピン二重共鳴下で観測される RF-dressed 状態を利用することで、連続波による交流電流と温度の同時イメージングやバルクダイヤモンドによる高感度な温度イメージングの実証を行った^[2-4]。本発表においては、 μm スケールの微小回路における温度と交流電流の同時イメージング測定結果とシミュレーションとの比較等により、より定量的な交流電流・温度分布の評価を行う。また直流電流印加時との比較も併せて行う予定である。

【方法】NV 配向軸に対して垂直なバイアス磁場下での NV 電子スピンの固有状態は $|0\rangle, |B\rangle, |D\rangle = (|+1\rangle \pm |-1\rangle)/\sqrt{2}$ と表される。 $|B\rangle - |D\rangle$ 間を MHz 帯のラジオ波で共鳴励起すると、RF-dressed 状態が生成される (Fig. 1(a))。RF-dressed 状態の分裂幅 ($\Delta\omega$) はラジオ波の振幅に比例し、レーザー・マイクロ波・ラジオ波同時照射時に得られる CW-ODMR スペクトル上に 4 つの dip が観測される。ゼロ磁場分裂のシフト (ΔD) は温度依存性があるため、CW-ODMR スペクトルから $\Delta\omega$ と ΔD を分離して見積もることにより、MHz 磁場振幅と温度を同時に測定できる。位相測定は、外部から参照となるラジオ波を印加し、測定対象との合成波の観測により行う。位相情報を利用して、交流磁場振幅を直流磁場のように扱うことで交流電流再構築が可能となる。

【結果】 μm スケールの微小回路に交流電流 (9.1 MHz) を流した時に得られた交流磁場分布を Fig. 1(b)、温度分布を Fig. 1(c)、交流磁場振幅・位相分布からアンペールの法則・チコノフ正則化を用いて再構成した交流電流密度分布を Fig. 1(d)に示す。Fig. 1(b)では回路から発生するアンペール磁場が、Fig. 1(c)では回路のジュール熱による温度上昇が観測された。この結果は μm スケールの高空間分解能で sub-K オーダーの熱分布の測定が可能であることを示している。また、Fig. 1(d)では交流電流が回路中のみを通っているという結果が得られ、交流電流密度の再構築ができたといえる。これらの結果と有限要素法によるシミュレーション結果を比較することにより、ダイヤモンドが測定対象の温度に与える影響や NV 層の厚さによる測定の平均化などを評価し、より定量的なイメージング測定を実現する。

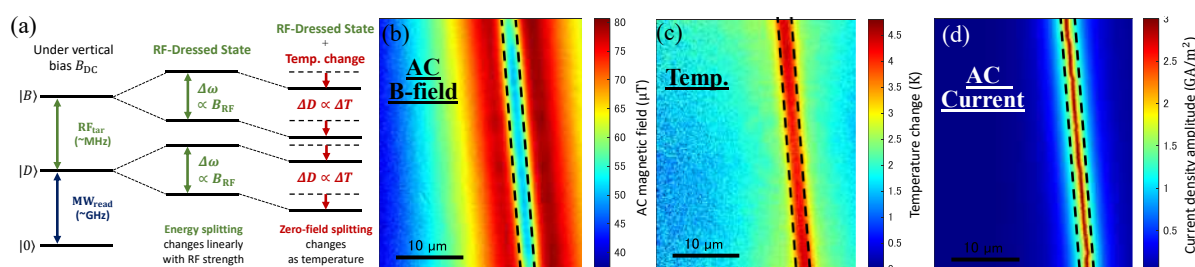


Fig. 1(a)エネルギー準位図 (b-d) 微細回路の(b)交流磁場分布 (c)温度分布 (d)交流電流密度分布

【謝辞】本研究の一部は、科研費 (Nos. JP22H01558, JP23K22828, JP23H04390, JP25K01292), 文科省 Q-LEAP (No. JPMXS0118067395), JST CREST (Nos. JPMJCR24A5, JPMJCR23I5), JST Moonshot R&D (No. JPMJMS226C), JST Presto (No. JPMJPR245B), 文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ事業 (No. JPMXP1225NM0062), 慶大次世代研究プロジェクト推進プログラム, 慶大 CSRN, J-PEAKS, NICT Quantum Camp 探索型人材育成プロジェクトの支援を受けて行われた。

[1] M. Garsi, *et al.*, Phys. Rev. Appl. **21**, 14055 (2024). [2] S. Saijo, *et al.*, Appl. Phys. Lett., **113**, 082405 (2018).

[3] H. Tabuchi, *et al.*, J. Appl. Phys. **133**, 024401 (2023). [4] Y. Itabashi, *et al.*, NDNC 2025, II-08-6 (May, 2025).

分子注入法による近接 2 NV 含有走査 NV プローブの開発

Development of a scanning proximal two NVs probe via molecular implantation

北陸先端大¹, 量研²

○(M2)上杉 俊輔¹, 林 都隆¹, Dwi Prananto¹, 小野田 忍², 安 東秀¹

JAIST¹, QST²

°Shusnuke Uesugi¹, Kunitaka Hayashi¹, Dwi Prananto¹, Shinobu Onoda², Toshu An¹

E-mail: s2410013@jaist.ac.jp

量子センシングは古典的なセンサーでは到達できない高感度測定を可能とする技術として注目されている。中でも、NV 中心と呼ばれるダイヤモンド格子中の窒素とその隣り合う空孔からなる格子欠陥は室温で動作する高感度、高空間分解能の量子センサーとして幅広く研究されている。我々は先端を収束イオンビーム (FIB) 加工により先鋭化したダイヤモンドピラーチップと水晶振動子型原子間力顕微鏡を複合化した走査 NV プローブ顕微鏡を開発してきた[1]。近年、分子注入法により、ダイヤモンド内に 10 nm 程の距離で近接する複数の NV 中心が形成可能なことが報告された[2]。この複数の NV 中心の情報を利用してナノスケールの高空間分解能プローブとして用いたりや、近接した NV 中心をエンタングルメント状態にすることで、更なる高感度、高空間分解能化を実現する手法が提案されている[3,4]。

本研究では、上記の手法の実現に向けて、近接 NV を含有する走査 NV プローブの作製を試みた (Fig.2)。まず、約 50 μm の厚みに研磨した Electronic grade ダイヤモンド基板を、レーザー加工により 50 μm 程のダイヤモンドチップとし、続いて FIB 加工によりピラー形状に先鋭化する (Fig.1)。音叉型水晶振動子にタングステンワイヤーを取り付け、その先端にダイヤモンドチップを取り付ける。まず、 $\text{C}_{32}\text{N}_8\text{H}_{18}$ 分子イオンを注入・アニールしたバルクダイヤモンド基板において、NV 中心からの蛍光像及び ODMR 測定により、単 1NV、2 NV の生成を確認した (Fig.3)。さらに、2NV 含有ピラープローブ作製へ向けた結果について報告する。

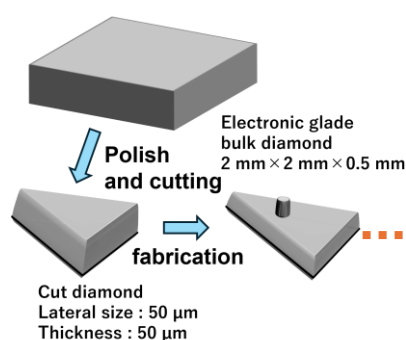


Fig.1. Fabrication process of a diamond pillar chip

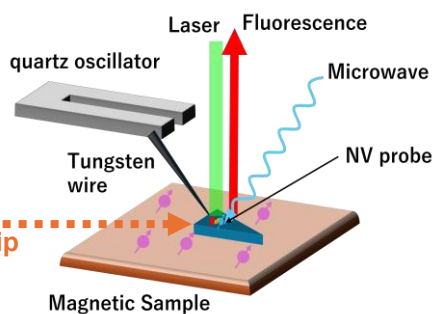


Fig.2. A scanning diamond pillar NV probe

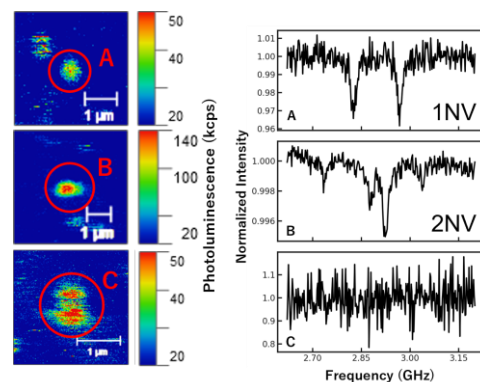


Fig.3. Photoluminescence images from NV centers from $\text{C}_{32}\text{N}_8\text{H}_{18}$ molecules implanted diamond sample, and ODMR spectra measured from the three bright spots

[1] Y. Kainuma, et al., J. Appl. Phys, **130**, 242903 (2021), [2] K. Kimura, et al., Appl. Phys. Exp, **15**, 066501 (2022).

[3] X. Zhou, et al., 10.48550/arXiv.2504.21715 (2025), [4] W.S. Huxter, et al., 10.48550/arXiv.2407.19576 (2024).

ボロンドープダイヤモンド回路を用いた 高温高圧力環境下の量子センシング

Quantum sensing under high-temperature and high-pressure conditions using boron doped diamond circuit

Science Tokyo¹, NIMS², QST³ °大隈 理央¹, 松本 凌², 小野田 忍³,

太田 健二¹, 高野 義彦², 荒井 慧悟¹

Science Tokyo.¹, NIMS², QST³ °Masahiro Ohkuma¹, Ryo Matsumoto², Shinobu Onoda³,

Kenji Ohta¹, Yoshihiko Takano², Keigo Arai¹

E-mail: okuma.m.36c3@m.isct.ac.jp

ダイヤモンド中の点欠陥である負に帯電した窒素-空孔(NV)中心は、高温や高圧力下においても量子コヒーレンスを保持するため、極限環境下における量子センシングへの展開が期待される [1, 2]。これまでに、高圧力下における圧力イメージングやマイスナー効果検出などが報告されているものの [3, 4]、高温かつ高圧力環境における NV センシングを実現させた例は未だない。

最近、我々はボロンドープダイヤモンド (BDD) 回路を用いて NV スピンを操作することに成功した [5]。BDD は高温・高圧でも電極として機能する [6, 7]。本研究では、ダイヤモンドアンビルセル (DAC)と BDD 回路を用いた高温・高圧力下での光検出磁気共鳴 (ODMR) を実施した。

図 1a にダイヤモンドアンビルの実体顕微鏡像を示す。1b ダイヤモンドアンビルのキュレット表面へ炭素イオン照射した後に高温アニーリングにより NV 中心を形成し、その後プラズマ CVD によって BDD 回路を作製した。図 1b に DAC の加圧部の概略図を示す。圧力は室温のルビー蛍光法により決定し、温度は熱電対を用いて測定した。図 1c に 6.6 GPa における各温度の ODMR スペクトルを示す。高圧力下かつ 470 K における NV 中心の駆動に成功した。室温近傍ではゼロ磁場分裂(ZFS)は-74 kHz/K で変化するが、昇温に伴い高周波数側にシフトしている。これは、昇温により試料室内の圧力が上昇したためだと考えられる。実際、加熱後の圧力は上昇している。当日は実験の詳細およびその他の結果についても報告する。本研究は、国立研究開発法人科学技術振興機構 (JST) 先端国際共同研究推進事業 (ASPIRE) グラント番号 JPMJAP24C1 の支援を受けて行われた。

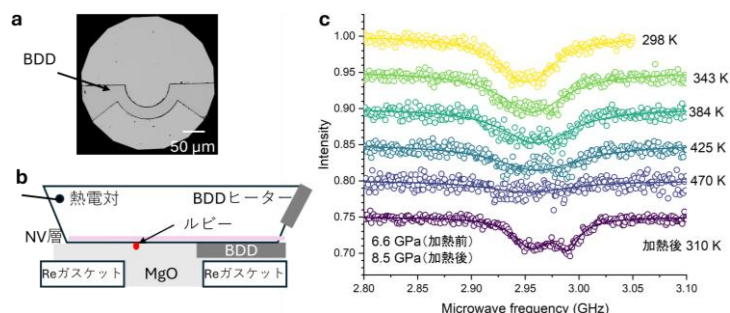


図 1 (a) ダイヤモンドアンビルの実体顕微鏡像 (b) DAC の加圧部の概略図 (c) 高圧力下における各温度の ODMR スペクトル

- [1] G.-Q. Liu *et al.*, Nat Commun **10**, 1 (2019). [2] M. W. Doherty *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 047601 (2014). [3] S. Hsieh *et al.*, Science **366**, 1349 (2019). [4] P. Bhattacharyya *et al.*, Nature **627**, 73 (2024). [5] M. Ohkuma *et al.*, arXiv:2412.15586 (2024). [6] R. Matsumoto *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **87**, 076103 (2016). [7] R. Matsumoto *et al.*, Chem. Mater. **37**, 1648 (2025).

(001)面ダイヤモンド基板上{111}面逆ピラミッド型ホールに生成した 高配向窒素空孔中心の特性比較

Characteristics comparison of preferentially-oriented nitrogen-vacancy centers generated on {111} facets inverted pyramid holes in (001) diamond substrate

慶大理工¹, 慶大 CSRN², 金沢大ナノマリ³, 産業技術総合研究所⁴

○(M2)伊牟田 航基^{1,2,4}, 及川 耀平^{1,2}, (D)鈴木 琉生^{1,2}, 林 寛³, 徳田 規夫³, 渡邊 幸志⁴, 早瀬 潤子^{1,2}

Keio Univ.¹, Keio CSRN², NanoMaRi, Kanazawa Univ.³, AIST⁴

○(M2)Koki Imuta^{1,2,4}, Yohei Oikawa^{1,2}, (D)Rui Suzuki^{1,2},

Kan Hayashi³, Norio Tokuda³, Hideyuki Watanabe⁴, and Junko Ishi-Hayase^{1,2}

E-mail: Koki_Imuta_0510@keio.jp

【背景・目的】ダイヤモンド中窒素空孔中心(NV センター)は、室温大気圧下で高感度磁場センサとして応用できる^[1]。センサの高感度化には N と V の結合方向(配向方向)が揃った高配向 NV センターの生成が重要である。我々の研究グループでは、Ni 異方性エッチング^[2]により{111}面逆ピラミッド型ホールを形成した(001)基板上に窒素ドーブ CVD 成長を施して NV センターを生成することで、1 基板上で異なる方向に配向率95%以上の高配向 NV センターを含むサンプルの作製に成功した^[3]。本手法で生成される NV センターの特性は、ホールの構造や表面状態、CVD 成長条件により決定される成長モードに大きく依存する。前回の発表^[4]では、CVD 成長時の窒素ドーブ濃度が NV 特性に与える影響について考察したが、結果として基板表層の結晶欠陥が大きく影響しているという示唆が得られた。そこで本研究では、加工前の基板表層に存在する結晶欠陥の影響を低減する複数の手法を適用し、生成される NV 特性への影響を比較したので報告する。

【方法】結晶欠陥の影響を比較するため、Fig. 1 のように 3 つの異なるサンプル A~C を作製した。高純度(001)ダイヤモンド基板上に Ni 薄膜をパターンニング蒸着し、高温水蒸気雰囲気下でアニールすることで、4つの{111}斜面を持つ逆ピラミッド型ホール構造を作製した。サンプル A では結晶欠陥層の影響除去を行わず、サンプル B ではホールの作製後に基板表層の研磨を施した。また、サンプル C では、ホールの作製前に反応性イオンエッチング(RIE)により結晶欠陥層の除去を行った。これらの上に窒素ドーブ CVD 成長を施し、高配向 NV センターを生成した。

評価においては、独自に実装した、特定マイクロ波周波数のみでの連続波光検出磁気共鳴(CW-ODMR)を利用してホール全体の配向率分布をマッピングできる測定プログラムを用いた。

【結果】測定結果のうちサンプル A(口径 $\cong 35 \mu\text{m}$ 、深さ $\cong 15 \mu\text{m}$)の配向率マッピングの結果を Fig. 2 に示す。Fig. 2 より、4つの{111}斜面で面ごとに異なる方向の優先配向が得られていることが観測された。また、ホール底面の(001)面においても隣接する{111}斜面の影響を受け、4分割に高配向となった特徴的な配向率分布が観測された。発表では、欠陥層除去の有無や除去手法の違いが NV 特性に与える影響を分析した結果についても発表する。

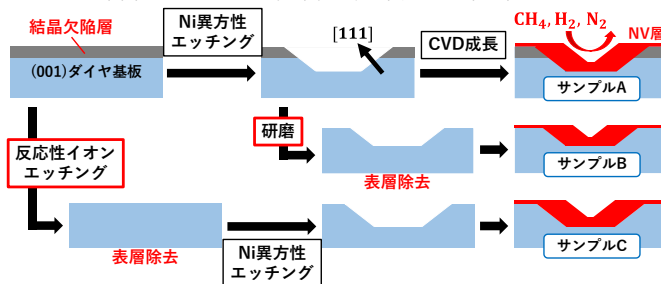


Fig. 1 サンプル作製手順の概要

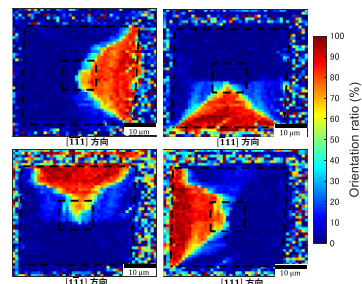


Fig. 2 サンプル A の配向率マッピング

【謝辞】本研究の一部は、JST CREST (No. JPMJCR24A5)、Q-LEAP (No. JP-MXS0118067395)、科研費 (No. 20H05661, 22H01558, 23K22828, 25K01292, 25K00931)、地域中核・特色ある研究大学強化促進事業(J-PEAKS)、慶應義塾大学次世代研究プロジェクト推進プログラムの支援を受けて行われた。サンプルは文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」事業(課題番号: JPMXP1225NM0062, JPMXP1225AT0167)の支援の下で作製された。

[1] L. Childress, *et al.*, Science **314**, 281 (2006). [2] M. Nagai, *et al.*, Scientific Report **8**, 6687 (2018). [3] 及川耀平他, 第 68 回応用物理春季学術講演会, 18p-Z13-4 (2021). [4] 伊牟田航基他, 第 72 回応用物理春季学術講演会, 17a-K502-6 (2025).

垂直・水平方向反応性イオンエッチングによる温度イメージングに適したバルクダイヤモンド薄板構造の作製

Fabrication of bulk diamond thin structure using vertical and horizontal RIE for temperature wide-field imaging

慶大理工¹, 慶大 CSRN², 東大先端研³, 産総研⁴

○(M2) 土屋宏樹^{1,2,4}, 板橋 佑真^{1,2}, 伊牟田 航基^{1,2,4}, 渡邊 幸志⁴, 石田 悟己³,
松清 秀次³, 西岡 政雄³, 岩本 敏³, 早瀬 潤子^{1,2}

Keio Univ.¹, Keio CSRN², RCAST U-Tokyo³, AIST⁴

○(M2) Hiroki Tsuchiya^{1,2}, Yuma Itabashi^{1,2}, Koki Imuta^{1,2}, Hideyuki Watanabe⁴, Satomi Ishida³,
Hidetsugu Matsukiyo³, Masao Nishioka³, Satoshi Iwamoto³, and Junko Ishi-Hayase^{1,2}

E-mail: hivyoshi01234@keio.jp

【背景・目的】ダイヤモンド中の窒素-空孔中心(NV センタ-)は、局在した電子スピンの量子状態を利用することで、温度の 2 次元空間分布を高感度・高空間分解能に測定できる量子センサとして活用できる。したがって集積回路やナノデバイスの評価、生体測定など様々な分野への応用が期待されている。一般に温度の空間分布測定(イメージ手法)を行う際には、ナノダイヤモンドシートかバルクダイヤモンドを用いる。しかし前者は測定点が離散的であること、測定において重要な NV 配向軸がバラバラであること、感度が低いことが問題であった。それに対し後者は熱拡散の大きいことが課題であった。近年我々のグループではダイヤモンド中の NV センターの電子スピン二重共鳴励起下で起こる RF-Dressed 状態を測定に利用することで、バルクダイヤモンドを用いて従来よりも高感度に温度イメージングを実現することに成功したが、熱拡散に問題がある。そこで本研究では、熱拡散の問題を克服し、連続測定点・広い測定領域・高感度での温度イメージングを実現するために、バルクダイヤモンド薄板構造を作製することを目指す。具体的には、垂直・平行方向への反応性イオンエッチング(RIE)を組み合わせることで、厚さが 1 μm 以下のバルクダイヤモンド薄板構造を作製する。さらに薄板構造の表面を熱伝導率の低いガラスで覆う、もしくは周りを真空にすることで熱放射の影響を抑える。

【方法・結果】Fig. 1 にバルクダイヤモンド単一薄板構造の作製方法を示す。はじめに SiO₂ とレジストを塗布し、電子線描画 (EB 描画)・現像によりマスクパターンを作製した。次に垂直方向のみを削り出す異方性 RIE と、垂直・平行方向を同時に削り出す等方性 RIE により加工を行った。垂直 RIE では、マスクパターン以外の部分の表面に RIE の影響を受けない SiO₂ を残存させることにより、そのパターンのみを垂直方向に削り出しを行った。それに対して等方性 RIE では、垂直方向の削り出しに伴って現れる目的の形状を覆った上で、それよりも深い位置の側面を平行方向に削り出した。Fig. 2 に作製したバルクダイヤモンド単一薄板構造 (厚さ 0.5 μm) の SEM 像を示す。作製した単一薄板構造は、マイクロピペットで水を垂らして吸引することにより、水圧で分離する。発表では、作製した単一薄板構造における NV 特性について議論する。

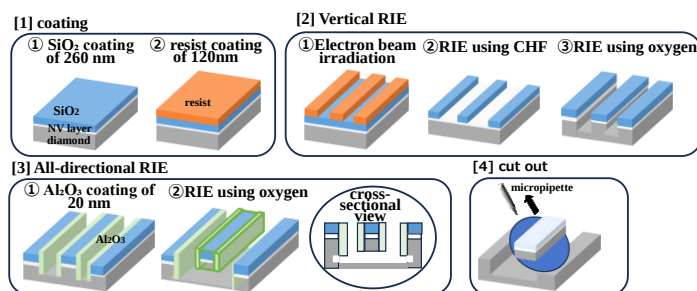


Fig. 1 バルクダイヤモンド単一薄板構造の作製方法

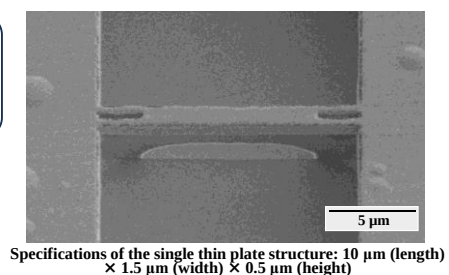


Fig. 2 単一薄板構造の SEM 像

本研究の一部は、MEXT/JSPS Q-LEAP (No. JP-MXS0118067395), Q-LEAP (No. JP-MXS0118067395), 科研費 (No. JP25K01292), 文科省 JST CREST (No. JPMJCR24A5), JST Moonshot R&D Grant Number (No. JPMJMS2062), SIP プログラム, 慶大次世代研究プロジェクト推進プログラム, 慶大 CSRN の支援を受けて行われた。

[1] Y. Chen, *et al.*, npj. Quant. Tech. **8**, 8 (2021). [2] Y. Itabashi *et al.*, ICDCM 2024, P5.26 (Sep, 2024).

[3] H.Tabuchi, *et al.*, J.Appl.Phys.**133**,024401(2023). [4] Noel H. Wan, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 141102 (2018).

KS 研究会セッション | 一般セッション(口頭講演) : KS.1 固体量子センサ研究会

[9p-N303-1~10] KS.1 固体量子センサ研究会

[9p-N303-1]

[第58回講演奨励賞受賞記念講演] ダイヤモンドNV中心による光電流検出磁場センシング法の最適化

○重松 英^{1,2}、八尾 肇¹、森岡 直也^{1,2}、西川 哲理^{1,2}、森下 弘樹^{3,4}、小野田 忍⁵、阿部 浩之⁵、大島 武^{5,6}、水落 憲和^{1,2} (1.京大化研、2.京大CSRN、3.東北大CSIS、4.東北大WPI AIMR、5.量研、6.東北大院工)

[9p-N303-2]

高圧合成ダイヤモンド結晶中のNVセンターの電荷状態およびRabiコントラスト分布

○増山 雄太¹、真栄 力^{2,3}、阿部 浩之¹、谷口 尚²、寺地 徳之² (1.QST、2.NIMS、3.筑波大)

[9p-N303-3]

ダイヤモンドNVセンターを用いたグラフェンFETの電流磁場分布測定

○(D)西原 一樹¹、吉川 颯真¹、秋田 成司¹、有江 隆之¹ (1.大阪公立大学大学院工)

[9p-N303-4]

走査NV中心顕微鏡を用いた連続波電子スピン二重共鳴による微細回路のMHz帯交流磁場イメージング

○小室 俊太郎^{1,2}、大倉 和真^{1,2}、岡庭 龍聖^{1,2}、林 都隆³、安 東秀³、早瀬 潤子^{1,2} (1.慶大理工、2.慶大CSRN、3.北陸先端大)

[9p-N303-5]

ダイヤモンド中の転位のストレステンソルイメージング

○(PC)辻 起行¹、原田 俊太²、寺地 徳之¹ (1.物材機構、2.名古屋大)

[9p-N303-6]

ヘテロエピCVDダイヤモンド量子センサによる ± 1000 Aの電流計測○波多野 雄治¹、梶山 健一¹、春山 盛善²、加藤 宙光²、小倉 政彦²、牧野 俊晴²、野口 仁³、谷川 純也⁴、中園 晃充¹、関口 武治¹、関口 直太¹、岩崎 孝之¹、波多野 睦子¹ (1.科学大工、2.産総研、3.信越化学、4.矢崎総業)

[9p-N303-7]

マイクロ波照射用導波路下の4H-SiC結晶中シリコン空孔のスピン特性

○田村 伸一¹、田原 康佐¹、遠山 晴子¹、朽木 克博¹、山崎 雄一²、大島 武^{2,3} (1.豊田中研、2.QST、3.東北大)

[9p-N303-8]

4H-SiC中単一シリコン空孔の電氣的スピン検出と光電流生成経路の決定

○西川 哲理¹、森岡 直也^{1,2}、阿部 浩之³、村田 浩一⁴、岡島 和希¹、大島 武^{3,5}、土田 秀一⁴、水落 憲和^{1,2,6} (1.京大化研、2.京大CSRN、3.量研、4.電中研、5.東北大、6.QUP KEK)

[9p-N303-9]

4H-SiC中単一スピンの高感度光電流検出の実現

○西川 哲理¹、森岡 直也^{1,2}、阿部 浩之³、村田 浩一⁴、岡島 和希¹、大島 武^{3,5}、土田 秀一⁴、水落 憲和^{1,2,6} (1.京大化研、2.京大CSRN、3.量研、4.電中研、5.東北大、6.QUP KEK)

[9p-N303-10]

Investigation of photocurrent excitation wavelength dependence of a single V2 center in 4H-SiC

○(DC)Kazuki Okajima¹, Naoya Morioka^{1,2}, Tetsuri Nishikawa¹, Hiroshi Abe³, Koichi Murata⁴, Takeshi Ohshima^{3,5}, Hidekazu Tsuchida⁴, Norikazu Mizuochi^{1,2,6} (1.Kyoto Univ., 2.CSRN Kyoto Univ., 3.QST, 4.CRIEPI, 5.Tohoku Univ., 6.QUP KEK)

ダイヤモンド NV 中心による光電流検出磁場センシング法の最適化

Optimization of measurement protocols for photocurrent-detected magnetic field sensing by using diamond NV center

京大化研¹, 京大 CSRN², 東北大 CSIS³, 東北大 WPI AIMR⁴, 量研⁵, 東北大院工⁶, ○重松英^{1,2},
八尾肇¹, 森岡直也^{1,2}, 西川哲理^{1,2}, 森下弘樹^{3,4}, 小野田忍⁵, 阿部浩之⁵, 大島武^{5,6}, 水落憲和^{1,2}
Kyoto Univ. ICR¹, Kyoto Univ. CSRN², Tohoku Univ. CSIS³, Tohoku Univ. WPI AIMR⁴, QST⁵,
Tohoku Univ.⁶, ○Ei Shigematsu^{1,2}, Hajime Yao¹, Naoya Morioka^{1,2}, Tetsuri Nishikawa^{1,2},
Hiroki Morishita^{3,4}, Shinobu Onoda⁵, Hiroshi Abe⁵, Takeshi Ohshima^{5,6}, Norikazu Mizuochi^{1,2}

E-mail: shigematsu.ei.2r@kyoto-u.ac.jp

ダイヤモンド NV 中心スピンを用いたセンシング技術[1]は常温で動作する高感度検出可能なセンサーとして社会実装への期待が高まっている。とりわけ、NV 中心スピンを電気的に検出する光電流検出磁気共鳴(PDMR)法[2]を利用したスピン状態の検出技術は、光学系の簡略化や周辺電子回路との統合の観点からも有望視されており、AC 磁場センシングの動作実証[3]がなされている。本研究では、デバイス応用を主眼に成熟した電気検出技術であるロックイン検出を導入した上で、パルスシーケンス上の改善により磁場センシング感度の向上を目論んだ。初期の PDMR 法においては NV 中心スピンの読み出しと初期化の目的を兼ねて単一強度のレーザー照射が採用されていたが、その後、目的別に強度と照射時間をそれぞれに最適化することによって、NV 中心の PDMR 信号コントラストの最大化[4]や、最近では SiC 単一量子スピンの PDMR において光検出磁気共鳴(ODMR)法を凌ぐ信号雑音比の実現[5]が報告されている。本実験ではこのレーザー強度の最適化をダイヤモンド NV 中心アンサンブルによる AC 磁場センシングに導入した(Fig. 1)。

その結果、PDMR 法に基づく AC 磁場センシングとしては最高感度である約 $13 \text{ nT/Hz}^{0.5}$ が得られた。発表ではレーザー強度と照射時間時間の最適化手順や高感度磁場センシングの詳細について述べるほか、さらなる磁場感度向上にむけた最近の取り組みについて紹介する。本研究は MEXT Q-LEAP (No. JPMXS0118067395)、JST ASPIRE (JPMJAP24C1)、京大ナノハブ拠点の支援を得て実施された。デバイス作製において京大化研の小野輝男氏と塩田陽一氏の支援を受けた。また、森下は東北大学 CSIS の CSRN の支援を受けた。

参考文献： [1] C. L. Degen *et al.*, Rev. Mod. Phys. **89**, 035002 (2017). [2] E. Bourgeois, *et al.*, Nat. Commun. **6**, 8577 (2015). [3] H. Morishita *et al.*, Phys. Rev. Appl. **19**, 034061 (2023). [4] F. M. Hrubesch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **118**, 037601 (2017). [5] T. Nishikawa *et al.*, Nat. Commun. **16**, 3405 (2025).

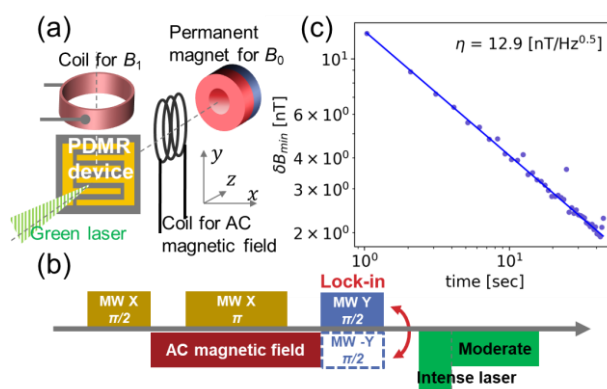


Fig. 1. (a) Schematic of the experimental setup. (b) Pulse sequence used in the measurement. (c) Time dependence of the minimum detectable magnetic field.

高圧合成ダイヤモンド結晶中の NV センターの 電荷状態および Rabi コントラスト分布

Charge state and Rabi contrast distributions of NV centers in HPHT diamond crystal

QST¹, NIMS², 筑波大³, [○]増山 雄太¹, 真栄力^{2,3}, 阿部浩之¹, 谷口尚², 寺地徳之²

QST¹, NIMS², Univ. of Tsukuba³, [○]Yuta Masuyama¹, Chikara Shinei²,

Hiroshi Abe¹, Takashi Taniguchi³, Tokuyuki Teraji³

E-mail: masuyama.yuta@qst.go.jp

【研究背景と概要】 ダイヤモンド量子センサは、結晶全体の均一性を向上させることで高感度になる [1]。しかし、ミリメートルスケールの量子特性を評価することが困難であったことから、結晶内でのコヒーレンス時間や Rabi コントラストなどの量子特性の空間的ばらつきについては未解明な点が多い。本研究では、我々が開発した柱状励起蛍光顕微鏡 (CEFM) [2] を用いてミリメートルスケールでの NV センターの量子特性や電荷状態の空間分布およびレーザーパワー依存性を評価し、結晶内の量子特性のばらつきの理解を深め、高感度化への指針を得ることを目的とする。

【実験手法・結果】 測定には、炭素同位体¹²C 濃縮を行った高温高压合成 {111} 単結晶ダイヤモンド (置換型窒素濃度: 約 0.79 ppm) を用いた。この試料に対して 2 MeV の電子線を $5.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ の条件で照射し、その後 $1375 \pm 25^\circ\text{C}$ で真空アニールを行い、NV センタ集団を形成した (NV-濃度: 約 0.05 ppm)。この結晶に対して、電荷状態 [図 1(a)]、Rabi 振動、コヒーレンス時間の空間分布を計測した。その結果、NV-の飽和レーザーパワー密度 (約 100 kW/cm^2) の 1/200 程度の領域 [図 1(b) ①] から高いレーザーパワー [図 1(b) ②] になるにつれて電荷状態が NV- から NV⁰ へ変化し、Rabi コントラストが大きく減少する振る舞いを観測した [図 1(c)]。これらの結果は、有効体積内の量子特性を最大化するための励起条件や材料品質の最適化に不可欠な知見を与えるものである。

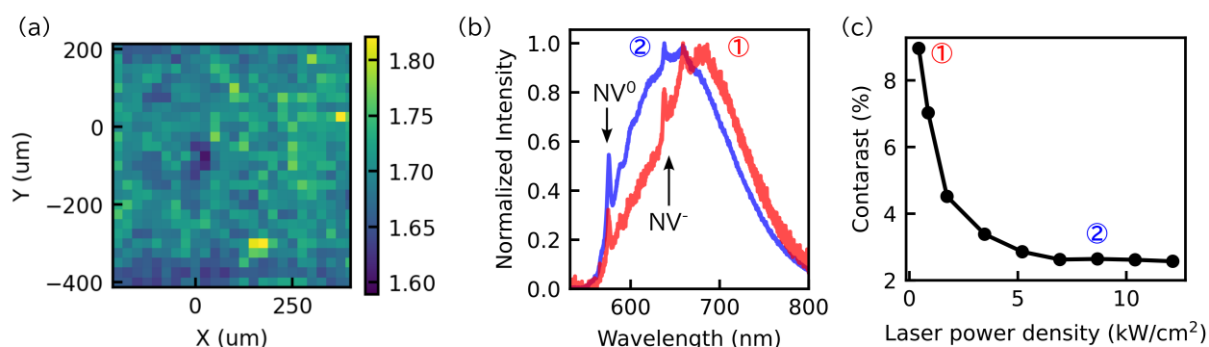


Fig. 1 (a) Intensity ratio of the zero-phonon lines of NV⁰ and NV⁻. (b) Photoluminescence spectrum at the position (x, y) = (0, 0) μm. Labels ① and ② correspond to the labels in Fig. 1(c). (c) Laser power dependence of Rabi contrast at the position (x, y) = (0, 0) μm.

【謝辞】 本研究は JSPS 科研費 JP24K16997, 文部科学省 Q-LEAP (JPMXS0118068379、JPMXS0118067395)、JST ムーンショット型研究開発事業 (JPMJMS2062)、総務省グローバル量子暗号通信網構築のための研究開発 (JP MI00316) の助成を受けたものです。

【参考文献】 [1] J. F. Barry et al., Rev. Mod. Phys. 92, 015004 (2020). [2] Y. Masuyama et al., Sci. Rep. 14, 18135 (2024).

ダイヤモンド NV センターを用いたグラフェン FET の電流磁場分布測定 Measurement of Current-Induced Magnetic Field Distribution in Graphene FET Using NV Centers in Diamond

大阪公立大工, °(D)西原 一樹, (M1)吉川 颯真, 秋田 成司, 有江 隆之

Osaka Metropolitan Univ., °Kazuki Nishibara, Soma Yoshikawa, Seiji Akita, Takayuki Arie

E-mail: su23434l@st.omu.ac.jp

グラフェン内の電流分布をナノスケールで可視化する手法として、NV センターを用いた電流磁場測定法が注目されている[1, 2]。しかしこれまで、NV センターを含むダイヤモンド基板上に直接デバイスを作製するか、NV プローブ顕微鏡を開発する必要がある、工程上の難易度や装置導入のハードルが存在していた。本研究では、既存の Si 基板上に作製されたグラフェン電界効果トランジスタ (FET) にダイヤモンド基板を後置するという簡便な構成により、デバイス動作中の電流分布評価を NV センターを用いて実現することを目的とした。

Si 基板上にフォトリソグラフィーとリフトオフにより Cr/Au 電極を形成し、化学気相合成された単結晶グラフェンをウェット転写してグラフェン FET(Fig. 1)を作製した。リングアンテナ中央に貫通穴を設け、そこにダイヤモンド基板を両面テープで固定することで、ダイヤモンド基板へのレーザーおよび蛍光の入出射を確保した。ダイヤモンド付きアンテナを上から Si 基板が固定されたステージにねじ留めした。FPGA 制御により AC 電圧出力と同期させた XY8-1 シーケンスを用いて AC 磁場の検出を行った。AC 電圧印加に伴い、XY8-1 のシグナルにおいて NV 蛍光強度にディップが現れた。自由歳差時間 τ を固定し、NV 軸方向の電流磁場によるコントラスト変化の大きさをマッピング測定した結果、電極内電流分布を反映した分布が得られた(Fig. 2)。本測定では、グラフェンチャネル内の電流分布や電気伝導のエッジによる効果については未測定である。今後異なる NV 軸での測定と解析を進め、グラフェン内の電流磁場を詳細に可視化することで、グラフェンのエッジや同位体の電気伝導への影響が明らかになると期待される。

[1] Tetienne et al., *Sci. Adv.* **3**, e1602429 (2017). [2] Mark J. H. Ku et al., *Nature* **583** (2020).

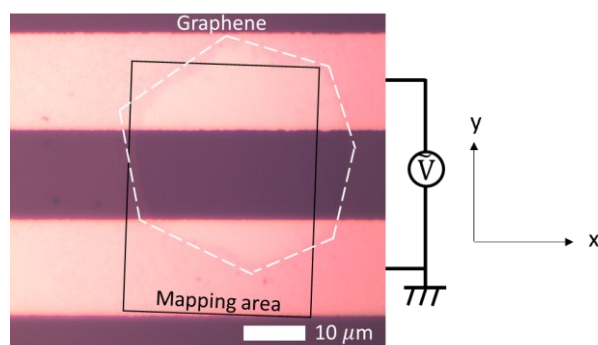


Fig. 1 Optical image of Graphene FET on Si/SiO₂ substrate.

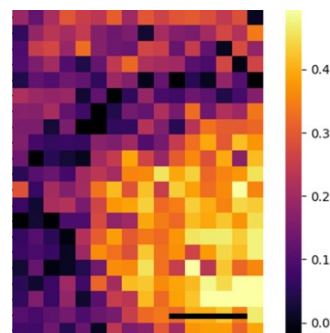


Fig. 2 B_{NV} mapping of graphene FET. The scale bar is 10 μm. The NV axis is approximately aligned perpendicular to the x axis.

走査 NV 中心顕微鏡を用いた連続波電子スピン二重共鳴による 微細回路の MHz 帯交流磁場イメージング

MHz-band AC Magnetic Field Imaging of Microcircuits Using Continuous-Wave Electron Spin Double Resonance by Scanning NV Microscopy

慶大理工¹, 慶大 CSRN², 北陸先端大³

○ (M1) 小室 俊太郎^{1,2}, 大倉 和真^{1,2}, 岡庭 龍聖^{1,2}, 林 都隆³, 安 東秀³, 早瀬 潤子^{1,2}

Keio Univ.¹, Keio CSRN², JAIST³

○ (M1) Shuntaro Komuro^{1,2}, Kazuma Okura^{1,2}, Ryusei Okaniwa^{1,2}, Kunitaka Hayashi³, Toshu An³,
and Junko Ishi-Hayase^{1,2}

E-mail: staro84625@keio.jp

【背景・目的】磁場分布をナノスケールでイメージング可能なセンサは、微細化されたエレクトロニクスデバイスの開発や故障解析において重要である。ダイヤモンド中窒素空孔中心 (NV 中心) は、室温大気圧下において磁場に高感度で応答する量子センサとして注目されている。近年、原子間力顕微鏡 (AFM) のプローブ先端に NV 中心を含むダイヤモンドを配置した走査 NV 中心顕微鏡 (SNVM) にパルス制御を用いた交流磁場測定手法を組み合わせることで、数百 kHz~数 MHz 帯域における交流磁場のイメージングが実証されている^[1,2]。しかし、この手法は複雑で高度な技術を要し、10 MHz 以上の高周波測定には制限がある。これに対し本研究では、電子スピン二重共鳴下で形成される RF-Dressed 状態を利用した連続波光検出磁気共鳴 (CW-ODMR) 手法^[3]を自作 SNVM に応用し、MHz 帯交流磁場測定の原理実証をおこなった^[4]。今回の発表では、電流を流した微細回路から発生する MHz 帯交流磁場イメージを示す予定である。

【方法】 Fig. 1(a)に実験セットアップを示す。ダイヤモンドプローブの作製では音叉型水晶振動子にケミカルエッチングしたタングステンワイヤを接着し、その先端にナノダイヤモンドまたは先鋭化されたダイヤモンドを接着した。自作 AFM により微細回路上を走査・距離制御し、電子スピン RF-Dressed 状態を用いた CW-ODMR 測定を行った。Fig. 1(b)に電子スピン RF-dressed 状態におけるエネルギー準位を示す。ゼロ磁場下もしくは NV 配向に対して垂直磁場下での NV 電子スピンの固有状態は $|0\rangle$, $|B\rangle = (|+1\rangle + |-1\rangle)/\sqrt{2}$, $|D\rangle = (|+1\rangle - |-1\rangle)/\sqrt{2}$ と表される。 $|B\rangle$ - $|D\rangle$ 間遷移に共鳴するラジオ波 (RF 波) を微細回路に印加すると、RF-Dressed 状態が形成され準位がラビ分裂する。この分裂幅から NV 軸に平行な交流磁場振幅 (B_{RF}) が測定可能である。

【結果】 Fig. 1(c) に、自作ダイヤモンドプローブ中の電子スピンを RF-Dressed 状態における CW-ODMR スペクトルを示す。スペクトルにおける共鳴分裂幅の周波数差から、RF 磁場振幅を算出できる。Fig. 1(d) の上段は、幅 2 μm 、厚さ 200 nm の微細回路の AFM 像、下段はその微細回路上を 1 ライン走査し、各位置における RF-Dressed 状態の分裂幅をプロットしたものである。回路近傍では RF 磁場振幅が大きいため、それに対応して分裂幅も大きくなっていることが分かる。また、上段に示す微細回路の形状に対して、下段の分裂幅の分布が非対称である。この非対称性は、ダイヤモンドプローブ中の NV 軸方向に起因し、NV 軸に平行な RF 磁場成分が最大となる位置が微細回路の中心からずれるためであると考えられる。

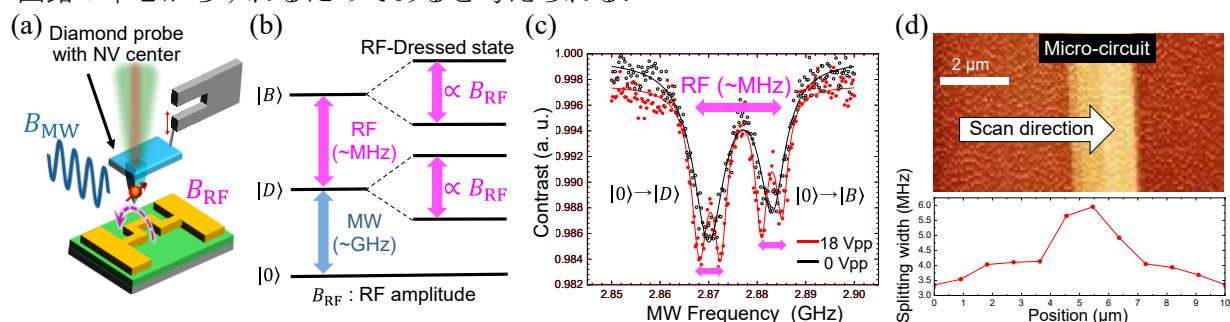


Fig. 1(a)実験セットアップ (b)RF-dressed 状態のエネルギー準位図 (c)電子スピン RF-dressed 状態における CW-ODMR スペクトル (d)上段: AFM 像 下段: 交流磁場振幅ラインスキャン測定
本研究の一部は、科研費 (No. JP22H01558, JP23K22828, JP25K01292), JSPS 特別研究員奨励費 (JP24KJ1964), 文科省 Q-LEAP (No. JPMXS0118067395), JST CREST (No. JPMJCR24A5), SIP プログラム, 慶大次世代研究プロジェクト推進プログラム, 慶大 CSRN の支援を受けて行われた。

[1] M. L. Palm, *et al.*, Phys. Rev. Appl. **17**, 054008 (2022). [2] G. P. Hellmann, *et al.*, IEEE IRPS, 1-6 (2024). [3] S. Saijo, *et al.*, Appl. Phys. Lett., **113**, 082405 (2018). [4] 小室他, 第 72 回応用物理学会春季学術講演会, 16p-P16-2 (Mar, 2025) poster award.

ダイヤモンド中の転位のストレステンソルイメージング

Imaging the stress tensor of dislocation in diamond

辻 越行¹、原田 俊太²、寺地 徳之¹ (NIMS¹、名古屋大²)

Takeyuki Tsuji¹, Shunta Harada², Tokuyuki Teraji¹

(National Institute for Materials Science¹, Nagoya University²)

TSUJI.Takeyuki@nims.go.jp

転位は半導体、金属、セラミックスなど様々な材料中に存在する欠陥である。一般的に転位はその材料の特性を劣化させる[1]。そのため、結晶に及ぼす転位のストレスの影響範囲を評価することは重要である。結晶中のストレスは本来、6つの要素(σ_{xx} , σ_{yy} , σ_{zz} , σ_{xy} , σ_{yz} , σ_{zx}) (ストレステンソルと呼ぶ)を用いて表現される。1953年に転位のストレステンソルは弾性論を用いて理論的に導出された[2]。しかしながら、X線トポグラフ[3]やラマン分光法[4]などの従来のストレス評価技術は、ストレステンソルのうちの1つの要素しか求めることができなかった。つまり、弾性論から導出された転位のストレステンソルの要素全てを実測したという報告がなかった。本研究は、ダイヤモンド中の窒素空孔 (NV) センタを用いて転位のストレステンソルの全要素($\sigma_{xx}+\sigma_{yy}+\sigma_{zz}$, σ_{xy} , σ_{yz} , σ_{zx})を測定し、弾性論による転位ストレスモデルの妥当性について検討した。

Ib(100)ダイヤモンド基板上に、NV センタを含む膜厚約 20 μm の CVD ダイヤモンド膜を成長させた。X線トポグラフ測定により、この CVD 膜中の 45°混合転位の位置を決定した。共焦点顕微鏡を用いて、45°混合転位周辺のストレステンソルのイメージングを実施した。Fig.1 の上段の図は 45°混合転位周辺のストレステンソル($\sigma_{xx}+\sigma_{yy}+\sigma_{zz}$, σ_{xy} , σ_{yz} , σ_{zx})の測定結果を示している。ダイヤモンド結晶中ではこの 45°混合転位によって、約 0.01 GPa 程度の局所ストレスが半径約 1~2 μm の範囲にわたって存在していることが分かった。さらに、そのストレスが転位を中心に対称的な分布をしていることも分かった。Fig.1 の下段の図は、弾性論[2]により導出された 45°混合転位周辺のストレステンソル($\sigma_{xx}+\sigma_{yy}+\sigma_{zz}$, σ_{xy} , σ_{yz} , σ_{zx})のシミュレーション結果を示している。Fig.1 に示すように、測定結果とシミュレーション結果がおおよそ一致していたことが分かった。本研究は弾性論から導出された転位のストレステンソルを実験的に実証したと考えられる。

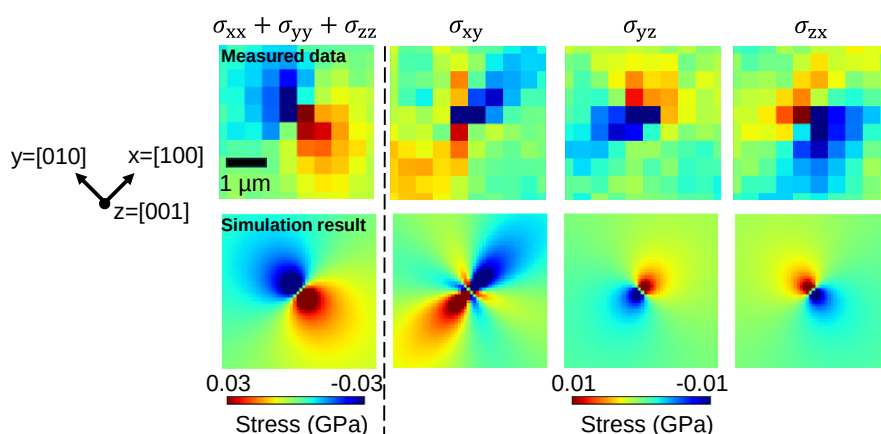


Fig.1 The upper pannel shows the experimental data of imaging the stress tensor components ($\sigma_{xx}+\sigma_{yy}+\sigma_{zz}$, σ_{xy} , σ_{yz} , σ_{zx}) around the dislocation, while the lower pannel displays the simulation results of the stress tensor components around a 45 ° mix dislocation using elasticity theory [2].

参考文献 [1] G. Zhao *et.al.*, *J. Appl. Phys.* 73 (1993) 1832–1837. [2] D.Hull *et.al.*, “*Introduction to Dislocations*”, 3 *rd ed.* Peragamon, (1984)[3] M. P. Gaukroger, *et.al.*, *Diam. Relat. Mater.* 17, 262–269 (2008). [4] A. Crisci, *et.al.*, *Phys. Status Solidi* 208, 2038–2044 (2011)

本研究は MEXT Q-LEAP (JPMXS0118068379), JST Moonshot R&D (JPMJMS2062), JST ASPIRE (JPMJAP24C1), JSPS KAKENHI (No. 24H00406, 24K22963)の支援によって行われました。

ヘテロエピ CVD ダイヤモンド量子センサによる $\pm 1000\text{A}$ の電流計測 $\pm 1000\text{A}$ Current Monitoring

Using Heteroepitaxial CVD Diamond Quantum Sensor

科学大工¹, 産総研², 信越化学(株)³, 矢崎総業(株)⁴

○波多野雄治¹, 梶山健一¹, 春山盛善², 加藤宙光², 小倉政彦², 牧野俊晴², 野口 仁³,
谷川純也⁴, 中園晃充¹, 関口武治¹, 関口直太¹, 岩崎孝之¹, 波多野睦子¹

Science Tokyo¹, AIST², Shin-Etsu Chemical Co. Ltd.³, YAZAKI Co. Ltd.⁴,

○Yuji Hatano¹, Kenichi Kajiyama¹, Moriyoshi Haruyama², Hiromitsu Kato²,

Masahiko Ogura², Toshiharu Makino², Hitoshi Noguchi³, Junya Tanigawa⁴, Akimichi Nakazono¹,

Takeharu Sekiguchi¹, Naota Sekiguchi¹, Takayuki Iwasaki¹, Mutsuko Hatano¹

E-mail: hatano.y.aa@m.titech.ac.jp

【背景】EV 電池電流計測応用に HPHT 法で製造されたタイプ Ib のダイヤモンド量子センサを用いた電流センサを試作し、10 mA から $\pm 1000\text{A}$ までの動作を確認している[1]。一方、ヘテロエピ CVD プロセスは、より工業的量产性に優れる可能性が有り、既に電流センサとして磁気シールド無しで 10 mA を検出可能であることを確認している[2]。今回、 $\pm 1020\text{A}$ までの動作検証も行ったので、報告する。

【実験装置】実験に使用した回路システムを Fig.1(a)に示す。EV 用電流計測では広いダイナミックレンジで電流と温度が同時に変化するため、2 個の共鳴周波数の同時追従が有効である。特に電流の変化が急速であるため共鳴周波数の高速追従が必要である。マイクロ波信号発生器(SG)に FM 変調機能が 2 つあると、一つをロックイン変調に、もう一つを周波数追従に用いることができる。ここでは SG として FM 変調機能が一つのみである小型のもの(Windfreak 社製)を用いるため、ロックイン変調は 2 個の SG 間のスイッチにより行い、FM 変調機能は周波数追従に使用した。スイッチ部分は PCB 上に搭載した(Fig.1(b))。これにより回路システム全体を小型可搬化した。ヘテロエピ CVD ダイヤモンド量子センサは 150 μm 厚のヘテロエピダイヤモンド基板に、150 μm 厚の高密度 NV 層を設けたもので、堅牢であり、マルチモードファイバの先端に接着した上、ホルダーでバスバーに固定した(Fig.1(c))。銅製バスバーの断面積は $20 \times 10\text{mm}^2$ であり、バスバー横にリング型磁石を配置し、15 mT の静磁場を印加した。ODMR スペクトルでは [111]への優先配向が確認できた(Fig.1(d))。

【計測結果】 $\pm 1020\text{A}$ の入力電流を 2 秒間隔の 15A ステップでバスバーに印加(Fig.2(a))し、ダイヤモンドセンサの共鳴周波数差の変化を計測し(Fig.2(b))、入力電流に追従する変化が計測できた。 $\pm 1020\text{A}$ 印加前後のバスバーの温度変化は 30°C 程度であった。

本研究は文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)JPMXS0118067395 の助成を受けています。[1] Hatano, Sci. Rep. 12, 13991 (2022). [2] Kajiyama, Adv. Quantum Technol. 2400400 (2025).

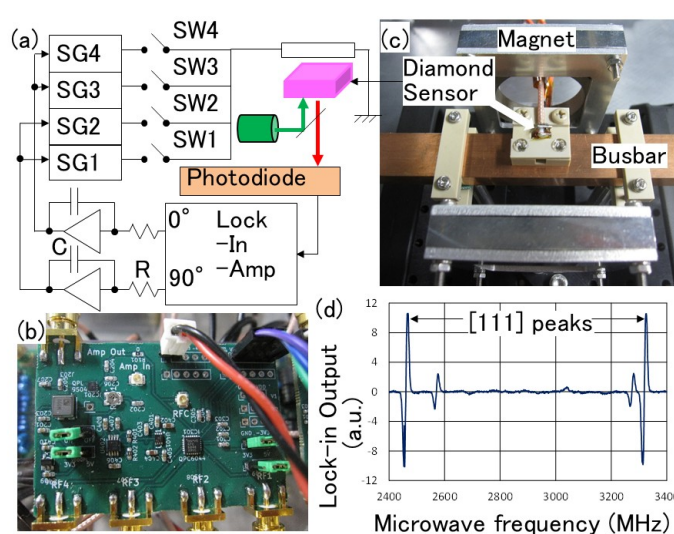


Fig.1 Measurement setup. (a) Circuit system to trace the two resonance frequencies simultaneously. (b) SW1~SW4 on PCB. (c) Diamond sensor attached on the busbar between the magnets. (d) ODMR spectrum with preferentially aligned NV-s to [111].

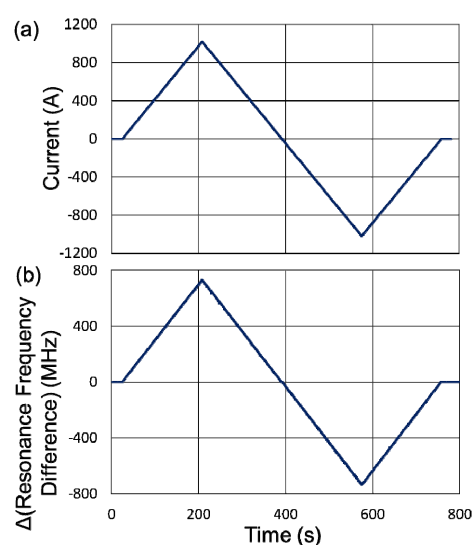


Fig.2 Measurement results. (a) $\pm 1020\text{A}$ busbar current. (b) Relative resonance frequency difference of the heteroepitaxial CVD diamond sensor.

マイクロ波照射用導波路下の 4H-SiC 結晶中シリコン空孔のスピン特性

Spin Characteristics of Silicon Vacancy in 4H-SiC under Microwave Waveguide

豊田中研¹, QST², 東北大³ ○田村 伸一¹, 田原 康佐¹, 遠山 晴子¹, 朽木 克博¹, 山崎 雄一²,
大島 武^{2,3}

Toyota Central R&D Labs., Inc.¹, QST², Tohoku Univ.³ °Shin-ichi Tamura¹, Kosuke Tahara¹,
Haruko Toyama¹, Katsuhiko Kutsuki¹, Yuichi Yamazaki², Takeshi Ohshima^{2,3}

E-mail: tamura@mosk.tytlabs.co.jp

量子センサは、温度と磁場、そして電場といった様々な物理量を高感度かつ高分解能に計測するセンサである。SiC 結晶中のシリコン空孔(V_{Si})を使用した SiC 量子センサは室温で動作し[1]、パワー半導体として広く普及する SiC デバイスの中に直接埋め込むことができる。SiC デバイス内の微弱な温度や磁場の变化を計測することは半導体の故障予知につながるため、我々は SiC 量子センサに注目している。SiC 量子センサでは、マイクロ波で操作された V_{Si} のスピンの発光を測定することで信号を得る。マイクロ波照射用導波路に金属薄膜パターンを用いることで、半導体プロセスを使用した導波路の精密配置が可能となり、任意の V_{Si} へのマイクロ波照射ができる。本研究では、金属薄膜パターンを導波路に用いた SiC 量子センサを作製し、光検出磁気共鳴 (ODMR)測定や Rabi 振動測定、Spin Echo 測定を行うことで、そのスピン特性を評価した。

4H-SiC 基板上的の SiC エピ層にエネルギー0.5 MeV で He イオン(ドーズ量 $3.3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$)を注入して、10 μm 間隔の V_{Si} のパターンを形成した[2]。SiC エピ層上に長さ 5 mm、幅 100 μm 、高さ 600 nm の Al パターンを成膜してマイクロ波用導波路を形成した。磁場強度に感度のある ODMR スペクトルの測定結果を Fig. 1 に示す。ODMR スペクトルのピーク強度は導波路に対して位置依存を示し(Fig. 1(a))、導波路直下で強いピーク強度の ODMR スペクトルが得られた(Fig. 1(b))。加えて、Rabi 振動の観察に成功するとともに、Spin Echo 測定からスピン-スピン緩和時間 T_2 を導出した。これらの特性は、今後 SiC デバイス中の SiC 量子センサ作製の設計につながるものである。

本研究は、内閣府 SIP プログラム「先進的量子技術基盤の社会課題への応用促進」(管理人: QST) によって実施された。

[1] T. M. Hoang et al., Appl. Phys. Lett. 118 (2021) 044001. [2] H. Kraus et al., Nano Lett. 17 (2017) 2865.

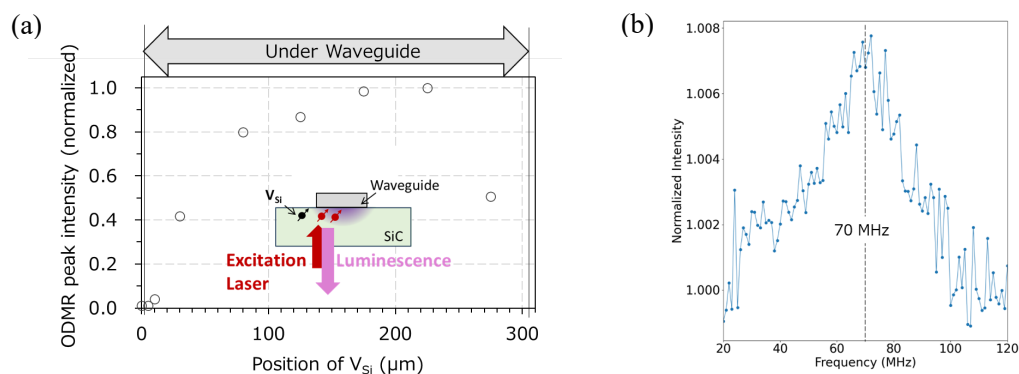


Fig. 1 (a) Position dependence of ODMR peak intensity. (b) ODMR spectrum of V_{Si} under waveguide.

4H-SiC 中単一シリコン空孔の電氣的スピンの検出と光電流生成経路の決定

Photoelectrical spin detection of single silicon vacancy in 4H-SiC and determination of photocurrent generation path

京大化研¹, 京大 CSRN², 量研³, 電中研⁴, 東北大⁵, QUP KEK⁶ ○西川 哲理¹, 森岡 直也^{1,2}, 阿部 浩之³, 村田 浩一⁴, 岡島 和希¹, 大島 武^{3,5}, 土田 秀一⁴, 水落 憲和^{1,2,6}

Kyoto Univ. ICR¹, Kyoto Univ. CSRN², QST³, CRIEPI⁴, Tohoku Univ.⁵, QUP KEK⁶ ○Tetsuri

Nishikawa¹, Naoya Morioka^{1,2}, Hiroshi Abe³, Koichi Murata⁴, Kazuki Okajima¹, Takeshi

Ohshima^{3,5}, Hidekazu Tsuchida⁴, Norikazu Mizuochi^{1,2,6}.

E-mail: nishikawa@dia.kuicr.kyoto-u.ac.jp

半導体中の電氣的検出可能な量子ビットは、電子回路と量子素子を集積したシステムオンチップ型量子デバイスへの応用が期待されており、ワイドバンドギャップ半導体中の点欠陥スピンはその候補の一つである。特に 4H-SiC 中のシリコン空孔は、室温における優れたスピンコヒーレンス特性と SiC の半導体デバイスへの親和性により、冷凍機フリーな小型かつ可搬な素子応用が期待されている。シリコン空孔の電氣的検出は光電流検出磁気共鳴(PDMR)法により実現されたが[1]、量子情報素子や高機能量子センサに不可欠な単一スピン検出は実証されていなかった。本研究では、デバイス構造および動作条件の最適化により高効率な光電流検出を実現し、単一シリコン空孔の PDMR 検出を実証した。また、解析によりシリコン空孔の光電流生成経路を明らかにした[2]。

4H-SiC エピタキシャル膜に電子線照射と熱処理により単一シリコン空孔を作製した。PDMR デバイスとして、我々はフラットバンド条件にバイアスした金属-半導体-金属ショットキーダイオードを用いた。本構造は、内部で発生する光電流のほぼ 100% の効率での捕集が期待でき[3]、かつ伝導帯・価電子帯に対して高いショットキー障壁を選定することでリーク電流も抑制できる。

共焦点レーザー顕微鏡を用いて欠陥の蛍光(PL)・光電流(PC)観察を行った。励起レーザーには 730 nm (PL)と 905 nm (PC)を用いた。PC 観察では、電極間にバイアス電圧を印加し、電流アンプとロックインアンプを用いて PC を検出した。ロックイン検出にはレーザー強度変調を用いた。

Fig. 1(a)に PL 検出と PC 検出によるデバイス内部のイメージング結果を示す。PL 検出において単一シリコン空孔(A)を観測し、対応する位置にスポット状の PC 像が観測された。このスポットの PC の電圧依存性(Fig. 1(b))は、設計フラットバンド電圧 9.1 V に近い 10 V 付近で飽和を示している。したがって、作製したデバイスが設計通りに動作し、単一欠陥レベルの光電流を高感度に検出可能であることが分かった。また、PC 像では PL 像で観測できなかった像(X)を観測することができた。次に、スポット A において PDMR スペクトルを測定したところ、ODMR と同じ周波数にピークを観測し(Fig. 1(c))、単一シリコン空孔の電氣的観測が実証された。さらに、PDMR 測定および光電流のレーザーパワー依存性測定より、シリコン空孔の PC 生成経路を決定できた。本発表ではこれらの詳細について議論する。

本研究は MEXT Q-LEAP (No. JPMXS0118067395)、科研費 (Nos. JP23K22796, JP21K20502, JP23K19120)、JST さきがけ (No. JPMJPR245C)、JST SPRING (No. JPMJSP2110)、村田学術振興・教育財団、JST ASPIRE (No. JPMJAP24C1)、京大ナノハブ拠点の支援を得て行われた。

[1] M. Niethammer *et al.*, *Nat. Commun.* **10**, 5569 (2019). [2] T. Nishikawa *et al.*, *Nat. Commun.* **16**, 3405 (2025). [3] S. M. Sze & K. K. Ng., *Physics of Semiconductor Devices*, 3rd ed. (Wiley, 2007).

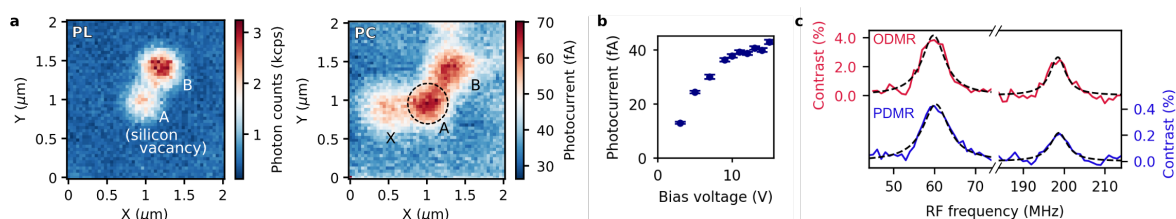


Fig. 1 (a) Photoluminescence (left) and photocurrent (right) images. (b) Bias-dependent photocurrent of defect A. (c) ODMR and PDMR spectra of defect A.

4H-SiC 中単一スピンの高感度光電流検出の実現

Highly efficient photoelectrical single-spin detection in 4H-SiC

京大化研¹, 京大 CSRN², 量研³, 電中研⁴, 東北大⁵, QUP KEK⁶ ○西川 哲理¹, 森岡 直也^{1,2},

阿部 浩之³, 村田 浩一⁴, 岡島 和希¹, 大島 武^{3,5}, 土田 秀一⁴, 水落 憲和^{1,2,6}

Kyoto Univ. ICR¹, Kyoto Univ. CSRN², QST³, CRIEPI⁴, Tohoku Univ.⁵, QUP KEK⁶ °Tetsuri

Nishikawa¹, Naoya Morioka^{1,2}, Hiroshi Abe³, Koichi Murata⁴, Kazuki Okajima¹, Takeshi

Ohshima^{3,5}, Hidekazu Tsuchida⁴, Norikazu Mizuochi^{1,2,6}.

E-mail: nishikawa@dia.kuicr.kyoto-u.ac.jp

4H-SiC 中のシリコン空孔は、優れたスピンコヒーレンス特性および SiC の材料特性により、小型かつ可搬な電子・量子複合集積素子応用が期待されている半導体量子ビット候補である。我々は光電流磁気共鳴(PDMR)法を用いることで単一シリコン空孔の電氣的スピン検出を実証している[1]が、そのスピンコントラストは光検出(ODMR)より約 10 倍低い。これによりスピン状態に無依存な背景光電流量に含まれるノイズがスピン読み出し効率を悪化させるため、実用的なデバイス開発に向けて改善が必要であった。そこで我々は、明らかにしたシリコン空孔の光電流生成経路[1]に着目した。シリコン空孔の PDMR 検出では ODMR と同様に、スピン信号はレーザー照射の初期に集中して生じる。PDMR におけるレーザー照射は光イオン化とスピン初期化の役割を担うが、イオン化に必要な高強度レーザーの長時間照射は、背景光電流量の増加によるコントラストと読み出し効率の悪化を招くと考えられる。そこで本研究では、PDMR コントラストの向上が報告されている、高パワー・短時間パルスと低パワー・長時間パルスからなる二段階のパルス構成[2]を用いることで、スピン依存光電流量の維持と背景電流量の低減を両立させ、PDMR コントラストだけでなくスピン読み出しにおける信号対雑音比(SNR)の向上を達成した。また、高効率な光電流捕集技術[1]との組み合わせにより、ODMR を越えるスピン読み出し SNR を実証した[3]。

本研究では単一シリコン空孔を有した 4H-SiC 上の PDMR デバイスを用い、共焦点レーザー顕微鏡(対物レンズ NA=1.45)で測定した。光検出では 730 nm レーザーを光源とし、Si APD で検出した。シリコン空孔の典型的な飽和蛍光強度 9.9 keps および ODMR コントラスト 4%が得られることを確認した。PDMR 用のレーザー(905 nm)は強度変調とパルス形状制御の後、光検出と同一の対物レンズで照射した。生成した光電流は電流アンプとロックインアンプにより検出した。Fig. 1(a)及び(b)に矩形パルスと二段階パルスを用いて得られた PDMR スペクトルを示す。二段階パルスを用いることで、信号強度はわずかに矩形パルスの時より減少している一方で、信号コントラストは約 6 倍、スピン読み出し SNR は約 2 倍の向上を達成した。次に、この二段階パルス PDMR と ODMR の SNR を比較したところ、ODMR の SNR は光ショットノイズ限界を達成しているが、PDMR はその 1.7 倍高い SNR を記録した(Fig. 1(c))。またシミュレーションから、レーザーパワーの増加と検出系のノイズ抑制により、PDMR の SNR はさらに 3 倍改善の余地があることが分かった。本発表ではこれらの詳細について議論する。

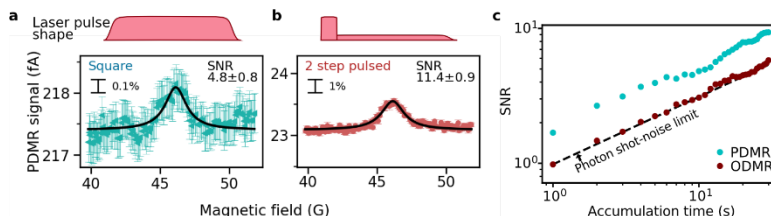


Fig. 1 (a,b) Laser pulse shapes (top) and PDMR spectra (bottom): (a) square and (b) 2-step pulse. (c) SNRs of ODMR and PDMR

本研究は MEXT Q-LEAP (No. JPMXS0118067395)、科研費 (Nos. JP23K22796,

JP21K20502, JP23K19120)、JST さきがけ (No. JPMJPR245C)、JST SPRING (No. JPMJSP2110)、村田学術振興・教育財団、JST ASPIRE (No. JPMJAP24C1)、京大ナノハブ拠点の支援を得て行われた。[1]西川 他, 応物秋季講演会(2025). [2] F. M. Hrubesch *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 037601 (2017). [3] T. Nishikawa *et al.*, *Nat. Commun.* **16**, 3405 (2025)

4H-SiC 中単一 V2 中心の光電流励起波長依存性の評価

Investigation of photocurrent excitation wavelength dependence

of a single V2 center in 4H-SiC

京大化研¹、京大 CSRN²、量研³、電中研⁴、東北大院工⁵、高エネ研 QUP⁶ ○(D1)岡島 和希¹、
森岡 直也^{1,2}、西川 哲理¹、阿部 浩之³、村田 晃一⁴、大島 武^{3,5}、土田 秀一⁴、水落 憲和^{1,2,6}

Kyoto Univ.¹, CSRN Kyoto Univ.², QST³, CRIEPI⁴, Tohoku Univ.⁵, QUP KEK⁶

○Kazuki Okajima¹, Naoya Morioka^{1,2}, Tetsuri Nishikawa¹, Hiroshi Abe³, Koichi Murata⁴, Takeshi
Ohshima^{3,5}, Hidekazu Tsuchida⁴ and Norikazu Mizuochi^{1,2,6}

E-mail: okajima.kazuki.65e@st.kyoto-u.ac.jp

【緒言】4H-SiC 中の立方晶位置シリコン空孔(V2 中心)は、室温で優れたスピンコヒーレンス特性を持つことから量子情報素子や量子センサーとしての活用が期待されている¹。V2 中心のスピンは光電流検出磁気共鳴 (PDMR) 法により電氣的に検出可能であり²、小型・集積化された量子デバイスの実現に貢献する。最近我々は単一 V2 中心における PDMR 検出を実証し³、単一 V2 中心の光イオン化効率を向上させることで信号強度をさらに改善する余地があることを明らかにした。励起波長は光イオン化における重要なパラメータである。最近、光イオン化レートの波長依存性が発光減衰の測定で調べられたが⁴、その結果は単一欠陥から発生する光電流量³と整合せず、光イオン化の波長依存性の更なる研究が必要である。加えて、我々はレーザー誘起バックグラウンド光電流の低減が効率的な読み出しに不可欠であることを見出しており³、バックグラウンド電流の波長依存性も PDMR の高感度化における重要な要素である。そこで本研究では、単一 V2 中心の光電流測定によって、光イオン化レートおよびバックグラウンド光電流の波長依存性を調査した。これにより光イオン化の詳細解明とバックグラウンド光電流の低減を目指した。

【実験と結果】エピタキシャル成長した 4H-SiC 試料に電子線照射および熱処理を行うことで V2 中心を作製し、基板表面に金ダブルショットキー電極を作製した³。この電極間に光電流が飽和するバイアス電圧 10V を印加し³、電極から捕集した光電流をプリアンプで増幅した後にロックインアンプで検出した。単一 V2 中心からの光電流像を測定することで、789 nm から 940 nm の励起波長範囲における光電流とバックグラウンド光電流のレーザーパワー依存性を評価した(FIG. 1 (a))。また、光電流の生成レートが励起状態からのイオン化によって制限されると仮定したうえで、このレーザーパワー依存性をフィッティングすることで各励起波長における光イオン化レートを計算した。結果として、測定範囲において、光イオン化レートは励起光子のエネルギーにほぼ線形に増加するのに対して、SBR は高レーザーパワー下において 890 nm で最大になった(FIG. 1 (b), c))。これはバックグラウンド光電流の波長依存性が反映されているためと考えられる。発表では、詳細な結果と考察を議論する。

本研究は、科研費(JP23K22796, JP23K19120)、村田学術振興・教育財団研究助成、JST さきがけ(JPMJPR245C)、MEXT Q-LEAP(JPMXS0118067395)、JST SPRING(JPMJSP2110)、ASPIRE(JPMJAP24C1)および Spin-RNJ の支援を受けた。デバイス作製においては、京都大学ナノテクノロジーハブ拠点の支援を受けた。

【参考文献】

¹ M. Widmann *et al.*, *Nat. Matter.*, **14**, 164-168 (2015). ² E. Bourgeois *et al.*, *Nat. Commun.*, **6**, 8577(2015). ³ T. Nishikawa *et al.*, *Nat. Commun.*, **16**, 3405 (2025). ⁴ T. Steidl *et al.*, *Nat. Commun.*, **16**, 4669 (2025).

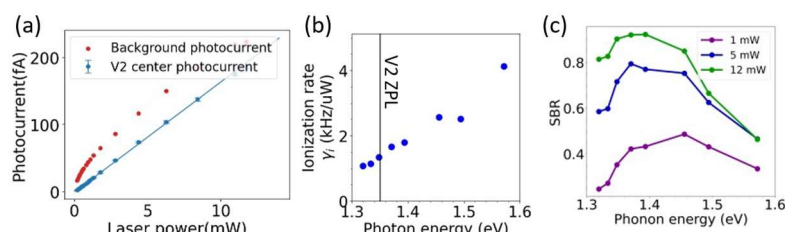


FIG. 1 (a) Laser power dependence of the photocurrent from a single V2 center and background at 905 nm. (b) Photoionization rate as a function of laser photon energy. (c) SBR as a function of laser photon energy at different powers.

KS 研究会セッション | 一般セッション(口頭講演) : KS.2 量子情報工学研究会

[9a-N304-1~10] KS.2 量子情報工学研究会

[9a-N304-1]

[第58回講演奨励賞受賞記念講演] ダイヤモンド量子メモリによる発光吸収型量子中継

○レイエス ラウスティン^{1,5}、藤原 太朔¹、関口 雄平^{2,3}、牧野 俊晴^{2,4}、加藤 宙光^{2,4}、小坂 英男^{1,2,3} (1. 横国大院理工、2. 横国大QIC、3. 横国大IAS、4. 産総研、5. NTT未来ねっと研究所)

[9a-N304-2]

ダイヤモンド窒素空孔中心を用いた高効率光読み出し用インターフェースモジュール

○上牧 瑛^{1,2}、関口 雄平^{1,2}、伊藤 大輔³、藤原 太朔³、牧野 俊晴^{1,2,4}、加藤 宙光^{1,2,4}、小坂 英男^{1,2,3} (1. 横国大QIC、2. 横国大IAS、3. 横国大院工、4. 産総研)

[9a-N304-3]

ダイヤモンドナノフォトニック構造中のSnV中心における電気機械変調

○関口 雄平^{1,2}、ナースィル アブドゥル^{1,2}、黒川 穂高^{1,2}、鎌田 幹也^{1,3}、羽中田 祥司^{1,3}、国井 昌樹^{1,3}、玉貫 岳正^{1,2,3}、石田 悟己⁴、松清 秀次⁵、ポンセン ナタチャック⁵、西岡 政雄⁵、池 尚玟⁵、大槻 秀夫⁴、木村 晃介⁶、竹中 康太⁶、小野田 忍^{2,6}、馬場 俊彦^{1,2,3}、岩本 敏^{2,4,5}、小坂 英男^{1,2,3} (1. 横国大IAS、2. 横国大QIC、3. 横国大院工、4. 東大RCAST、5. 東大IIS、6. 量子科学技術研究開発機構)

[9a-N304-4]

マイクロ波—光量子インターフェースに向けたSiN導波路結合型ダイヤモンドオプトメカニカル結晶デバイスの光学評価

○佐藤 清貴¹、黒川 穂高^{2,3}、関口 雄平^{2,3}、鎌田 幹也^{1,2}、羽中田 祥司^{1,2}、国井 昌樹^{1,2}、玉貫 岳正^{1,2,3}、石田 悟己⁴、松清 秀次⁵、ポンセン ナタチャック⁵、西岡 政雄⁵、池 尚玟⁵、大槻 秀夫⁴、木村 晃介⁶、竹中 康太⁶、小野田 忍^{3,6}、馬場 俊彦^{1,2,3}、岩本 敏^{3,4,5}、小坂 英男^{1,2,3} (1. 横国大院工、2. 横国大IAS、3. 横国大QIC、4. 東大RCAST、5. 東大IIS、6. 量子科学技術研究開発機構)

[9a-N304-5]

マイクロ波—光量子インターフェースの実現に向けた超伝導ナノワイヤ共振器における光応答の局所空間分解測定

○黒川 穂高^{1,2}、廣津留 蓮斗³、高木 佳寿代⁴、寺井 弘高⁴、小坂 英男^{1,2,3} (1. 横国大QIC、2. 横国大IAS、3. 横国大院工、4. 情報通信研究機構)

[9a-N304-6]

量子デバイス向け単結晶ダイヤモンド接合基板の薄化技術

○宮武 哲也¹、ヤン イェティン¹、伏見 直樹¹、肥田 勝春¹、高木 一旗¹、宮澤 俊之¹、河口 研一¹、石原 良一²、佐藤 信太郎¹ (1. 富士通、2. デルフト工科大)

[9a-N304-7]

Fabrication of diamond- Al2O3 waveguide hybrid structure for diamond-spin-based quantum computer application

○Yeting Yang¹, Tetsuya Miyatake¹, Naoki Fushimi¹, Ryota Kitagawa¹, Toshiki Iwai¹, Masaharu Hida¹, Hidetsugu Matsukiyo², Masao Nishioka², Teruya Ishihara², Sangmin Ji², Satomi Ishida², Satoshi Iwamoto², Toshiyuki Miyazawa¹, Kenichi Kawaguchi¹, Ryoichi Ishihara³, Shintaro Sato¹ (1. Fujitsu, 2. University of Tokyo, 3. TU Delft)

[9a-N304-8]

単結晶ダイヤモンドを用いたエアブリッジブルズアイ型光共振器の作製

○JI SANGMIN¹、ポンセン ナタチャック¹、松清 秀次¹、西岡 政雄¹、石田 悟己^{1,2}、岩本 敏^{1,2} (1.東大生研、2.東大先端研)

[9a-N304-9]

通信波長帯域におけるスピナーフォトン変換インターフェースに向けたGe ブルズアイ光共振器の作製と評価

○JI SANGMIN¹、吉川 修²、澤野 憲太郎²、大岩 顕³、岩本 敏¹ (1.東大生研、2.東京都市大、3.阪大産研)

[9a-N304-10]

ブルズアイ光学共振器中のゲート制御GaAs量子ドットの作製

○(M2)佐藤 穂有¹、Sangmin Ji²、深井 利央¹、森 正芳¹、藤田 高史^{1,3}、岩本 敏²、木山 治樹⁴、Arne Ludwig⁵、Andreas Wieck⁵、大岩 顕^{1,3} (1.阪大産研、2.東大先端研、3.阪大QIQB、4.九大工、5.ルール大ボーフム)

ダイヤモンド量子メモリによる発光吸収型量子中継

Emission and absorption type quantum repeaters by diamond quantum memories

横国大院理工¹, 横国大 QIC², 横国大 IAS³, 産総研⁴, NTT 未来ねっと研究所⁵

○レイエスラウスティン^{1,5}, 藤原太翔¹, 関口雄平^{2,3},

牧野俊晴^{2,4}, 加藤宙光^{2,4}, *小坂英男^{1,2,3}

Grad. Sch. Eng., Yokohama Natl. Univ.¹,

QIC, Yokohama Natl. Univ.², IAS, Yokohama Natl. Univ.³, AIST⁴,

NTT Network Innovation Laboratories⁵

○Raustin Reyes^{1,5}, Taichi Fujiwara¹, Yuhei Sekiguchi^{2,3},

Toshiharu Makino^{2,4}, Hiromitsu Kato^{2,4}, and *Hideo Kosaka^{1,2,3}

*E-mail: kosaka-hideo-yp@ynu.ac.jp

量子通信は直接光子の伝送を行う方式から始まり、量子メモリを有した量子中継器によって長距離間の通信を実現すべく世界的に研究が行われている。我々は量子中継器を実現する物理系としてダイヤモンド中の窒素空孔中心 (以下、NV 中心) に着目し研究を行なっている。

量子中継は光子の干渉やもつれ二光子源を用いた手法が開発されているが、光子の状態を物質に吸収し、物質ともつれた光子を再度放出する発光-吸収型は、物理系に由来する周波数揺らぎに対して耐性を持つことから、注目されている。

本研究では、発光-吸収型の量子中継の実証を目指して、NV 中心に入射した光子の偏光状態を窒素スピンに保存し、窒素スピンの量子状態を保持しながら、もつれ光子の発光と電子-窒素スピン間のベル測定を行う。この結果、量子テレポーテーションによって入射光子から発光光子に偏光状態が転写される。もつれ光子の発光を繰り返すにつれて転写忠実度が減少するが、転写レートは向上する (Fig. 1)。本研究で示した光子の偏光状態転写の過程を遠隔 2 ノードの NV 中心で実行することで、量子メモ

リを用いた量子中継が可能となる。本講演では、これらについて詳細な議論を行う。

日頃から、ご協力いただき、小野田忍氏、寺地徳之氏、松崎雄一郎氏に感謝します。本研究は JST「ムーンショット型研究開発事業」(JPMJMS2062)、総務省「量子インターネット実現に向けた要素技術の研究開発」(JPMI00316)、JST-CREST(JPMJCR1773)、科研費基盤研究 (S)、挑戦的研究 (開拓)、科研費特別研究員奨励費 (23KJ0983) の支援を得た。

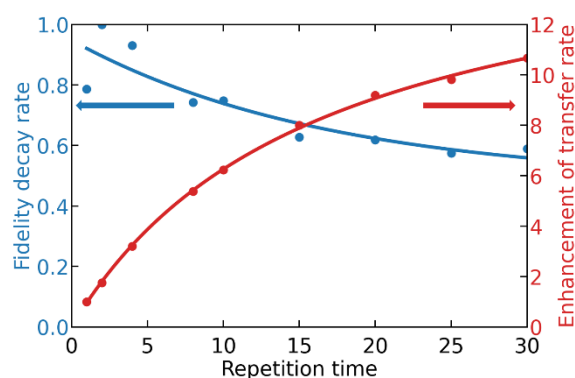


Fig. 1 The enhancement of transfer rate by the diamond quantum memory. Although the transfer fidelity decreases as the entangled photons are repeatedly emitted (blue line and blue dots), the transfer rate increases (red line and red dots).

ダイヤモンド窒素空孔中心を用いた高効率光読み出し用インターフェースモジュール Modular interface for efficient optical readout using nitrogen vacancy centers in diamond

横国大 QIC¹, 横国大 IAS², 横国大院工³, 産総研⁴

○上牧 瑛^{1,2}, 関口 雄平^{1,2}, 伊藤 大輔³, 藤原 太朔³, 牧野 俊晴^{1,2,4}, 加藤 宙光^{1,2,4}, 小坂英男^{1,2,3}

QIC, Yokohama Natl. Univ.¹, IAS, Yokohama Natl. Univ.², Grad. Sch. Eng., Yokohama Natl. Univ.³, AIST⁴,

○Akira Kamimaki^{1,2}, Yuhei Sekiguchi^{1,2}, Daisuke Ito³, Taichi Fujiwara³,

Toshiharu Makino^{1,2,4}, Hiromitsu Kato^{1,2,4}, Hideo Kosaka^{1,2,3}

E-mail: kamimaki-akira-sx@ynu.ac.jp

ダイヤモンド中の窒素空孔(NV)中心は、その高効率なスピン制御性や長いコヒーレンス時間、フォトニック統合性を有することから、量子メモリに基づく量子中継器や量子メディア変換器に向けた物理系として注目されている。NV 中心を量子メモリとして用いる場合、これらの実装に向けた大きな課題の一つは、高屈折率と低 Debye-Waller 因子に起因する低い光読み出し効率の向上である[1]。近年では、フォトニックデバイスとしての集積化や光ファイバ付きのパッケージ開発が盛んに行われているが、これには NV 中心からの光読み出しの高効率化とともに、熱サイクル耐性を含む動作安定性や広帯域化といった多くの要件を満たすことが求められる[2]。

本研究では、こうしたデバイス統合型の光読み出し技術とは対照的に、NV 中心からの光読み出し機能に焦点をあてた、量子メモリ光インターフェースモジュールについて報告する[3]。一般的に NV 中心の光読み出しに用いられる共焦点顕微鏡光学系において、対物レンズからシングルモード光ファイバ結合部までをモジュール化し、高効率な光読み出しを可能にした(図 1)。本モジュールは、従来系と比較して体積比 1/100 以下に小型化され、それと同等以上の光読み出し効率が得られている。また本モジュールは、ダイヤモンドデバイスと光ファイバとが機械的に孤立しながら光学的に高精度で結合しており、当該部分における熱サイクル起因のミスアライメントが生じない。こうした安定動作可能な量子メモリ光インターフェースモジュールは、様々なデバイスや多様な物理系における共通基盤技術として活用可能である。

本研究は総務省「量子インターネット実現に向けた要素技術の研究開発」(JPMI00316)、JST「ムーンショット型研究開発事業」(JPMJMS2062)、JST-CREST(JPMJCR1773)、科研費基盤研究(A,S)、挑戦的研究(開拓)の支援を得た。

[1] M. Pompili, *et al.*, Science **372**, 259 (2021).

[2] R. Bernson, *et al.*, arXiv:2503.14704 (2025).

[3] A. Kamimaki *et al.*, in preparation.

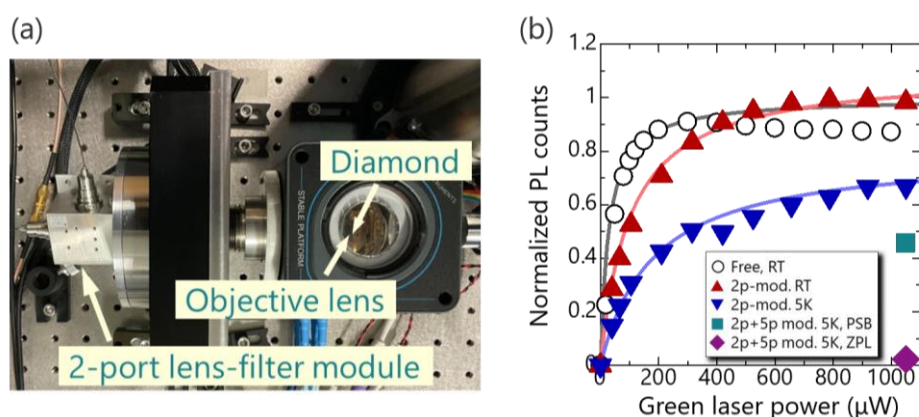


Fig. 1 Developed modular interface between the nitrogen-vacancy center used as a quantum memory and single-mode optical fibers. (a) Configuration for non-resonant photoluminescence (PL) measurements. The main part is the 2-port lens-filter module (2p-mod.). (b) The laser-power dependence of the PL counts compared with that of conventional free space at room temperature (free, RT). The results at cryogenic temperature (2p-mod. 5K) and the saturated counts with spectroscopy of phonon sideband/zero-phonon line photons are simultaneously plotted, where the additional 5-port filter module is connected (2p+5p mod 5K, PSB/ZPL, respectively). The photon counts are normalized by free-space saturated counts at RT.

ダイヤモンドナノフォトニック構造中の SnV 中心における電気機械変調

Electromechanical Modulation of a SnV Center in a Diamond Nanophotonic Structure

横国大 IAS¹, 横国大 QIC², 横国大院工³, 東大 RCAST⁴, 東大 IIS⁵, 量子科学技術研究開発機構⁶○関口雄平^{1,2}, ナースィル アブドゥル^{1,2}, 黒川穂高^{1,2}, 鎌田幹也^{1,3}, 羽中田祥司^{1,3}, 国井昌樹^{1,3},玉貫岳正^{1,2,3}, 石田悟己⁴, 松清秀次⁵, ポンセン ナタチャック⁵, 西岡政雄⁵, 池尚玖⁵,大槻秀夫⁴, 木村晃介⁶, 竹中康太⁶, 小野田忍^{2,6}, 馬場俊彦^{1,2,3}, 岩本敏^{2,4,5}, 小坂英男^{1,2,3}IAS Yokohama Natl. Univ.¹, QIC Yokohama Natl. Univ.², Grad. Sch. Eng. Yokohama Natl. Univ.³,RCAST Tokyo Univ.⁴, IIS Tokyo Univ.⁵, QST⁶ ○Y. Sekiguchi^{1,2}, A. Nasir^{1,2}, H. Kurokawa^{1,2}, M.Kamata^{1,3}, S. Hachuda^{1,3}, M. Kunii^{1,3}, T. Tamanuki^{1,2,3}, S. Ishida⁴, H. Matsukiyo⁵, N. Pholsen⁵, M.Nishioka⁵, S. Ji⁵, H. Otsuki⁴, K. Kimura⁶, K. Takenaka⁶, S. Onoda^{2,6}, T. Baba^{1,2,3}, S. Iwamoto^{2,4,5},H. Kosaka^{1,2,3*} E-mail: kosaka-hideo-yp@ynu.ac.jp

近年、ダイヤモンド中の色中心は、マイクロ波と光の変換を担う量子トランスデューサへの応用が提案されている[1]。色中心をオプトメカニカル結晶中に配置することで、従来より極めて低いポンプ光強度で動作でき、極低温環境における熱負荷の問題を解決することが期待されている。

この実現には、色中心の光学安定性と機械モードとの結合性が重要である。SnV 中心は、反転対称性によりナノ構造中でもスペクトルが安定するため有力な候補である。一方、ダイヤモンドは圧電性を持たないため、機械モードの励起には圧電材料を組み合わせたデバイスが必要であるが、デバイスプロセスの複雑化や損失の増加を招く可能性がある。最近、同様の問題に対しカルフォルニア工科大のグループは、シリコンオプトメカニカル結晶において電気機械結合を利用して、圧電材料を使わずに機械モードを励起する手法の有効性を示した[2]。

本研究では、電気機械結合をダイヤモンド系に適用し、マイクロ波が機械モードを介して SnV 中心に結合した可能性を示唆する結果を得た。SiN 光導波上に配置したダイヤモンドナノフォトニック構造にバイアス電圧とマイクロ波を印加し(図 1a)、単一 SnV 中心の励起蛍光スペクトルのサイドバンド変調からマイクロ波応答を測定した。複数の共鳴ピークが確認され、なかでも 7.7 GHz 付近のモードでは Q 値 160 を示した(図 1b)。本成果は、色中心を用いたトランスデューサの実現に向けた重要な一歩である。

[1] H. Kurokawa, et.al, Phys. Rev. Applied 18, 064039 (2022).

[2] H. Zhao, et.al, Nat. Nanotechnol. 20, 602–608 (2025).

謝辞：本研究は JST「ムーンショット型研究開発事業」(JPMJMS2062)、総務省「量子インターネット実現に向けた要素技術の研究開発」(JPMI00316)、JST-CREST(JPMJCR1773)、科研費基盤研究(A,S)、挑戦的研究(開拓)の支援を得た。

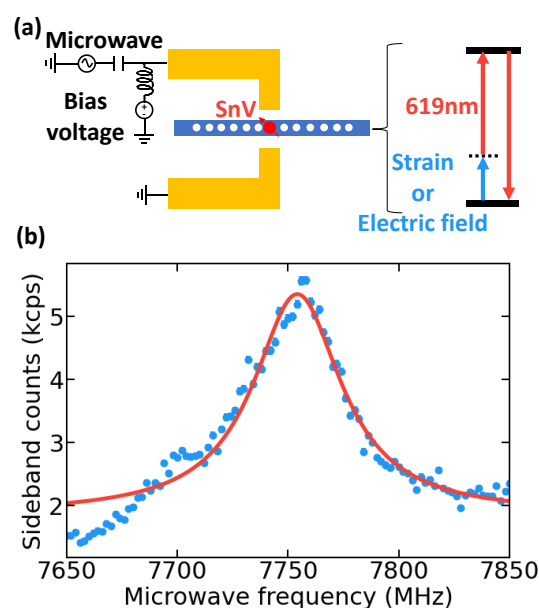


Fig. 1. (a) Schematic of the experimental setup for biased microwave modulation of a SnV center in a diamond nanophotonic structure. (b) Microwave frequency dependence of sideband counts in the photoluminescence excitation spectrum.

マイクロ波-光量子インターフェースに向けた

SiN 導波路結合型ダイヤモンドオプトメカニカル結晶デバイスの光学評価

Fiber-Integrated Diamond Optomechanical Crystal with Embedded NV centers

横国大院工¹, 横国大 IAS², 横国大 QIC³, 東大 RCAST⁴, 東大 IIS⁵, 量子科学技術研究開発機構⁶○佐藤清貴¹, 黒川穂高^{2,3}, 関口雄平^{2,3}, 鎌田幹也^{1,2}, 羽中田祥司^{1,2}, 国井昌樹^{1,2}, 玉貫岳正^{1,2,3},石田悟己⁴, 松清秀次⁵, ポンセン ナタチャック⁵, 西岡政雄⁵, 池尙玟⁵,大槻秀夫⁴, 木村晃介⁶, 竹中康太⁶, 小野田忍^{3,6}, 馬場俊彦^{1,2,3}, 岩本敏^{3,4,5}, 小坂英男^{1,2,3}Grad. Sch. Eng. Yokohama Natl. Univ.¹, IAS Yokohama Natl. Univ.², QIC Yokohama Natl. Univ.³,RCAST Tokyo Univ.⁴, IIS Tokyo Univ.⁵, QST⁶ ○K. Sato¹, H. Kurokawa^{2,3*}, Y. Sekiguchi^{2,3}, M.Kamata^{1,2}, S. Hachuda^{1,2}, M. Kunii^{1,2}, T. Tamanuki^{1,2,3}, S. Ishida⁴, H. Matsukiyo⁵, N. Pholsen⁵, M.Nishioka⁵, S. Ji⁵, H. Otsuki⁴, K. Kimura⁶, K. Takenaka⁶, S. Onoda^{3,6}, T. Baba^{1,2,3}, S. Iwamoto^{3,4,5},H. Kosaka^{1,2,3*} E-mail: kosaka-hideo-yp@ynu.ac.jp

誤り耐性超伝導量子コンピュータの実現には 100 万を超える量子ビットが必要とされており、それに伴う配線数の増大も空間の制約や熱流入の増大の観点から解決すべき課題となっている。マイクロ波配線を広帯域かつ低熱流入の光ファイバに変えることで配線数の劇的な削減が期待されているが、それには高効率かつ低ノイズ、超低消費電力の量子トランスデューサが必要となる。ただし、これらの要求性能を実用に十分なレベルで両立させたシステムは未だ開発途上である。

我々のグループでは、オプトメカニカル共振器中のダイヤモンド色中心と単一光子の相互作用を利用した超低消費電力量子トランスデューサの実現を目指し開発を進めている。この量子トランスデューサにおいて、光導波路を介したダイヤモンドオプトメカニカル結晶内の色中心へのアクセスは、空間照射と比較して光の取出し効率と協働係数が向上することから、超低消費電力および高変換効率の観点から最も重要な機能の一つである。しかし、この実現には光導波路上での結晶の精密な位置決めが不可欠であり、技術的な課題となっている。本研究では、先端直径 200nm のタングステンプローブを用いたオプトメカニカル結晶の精密位置調整により、光共振器の共振ピークの観測に成功した。この結果は、光導波路を介してダイヤモンドオプトメカニカル結晶内の色中心への再現性のあるアクセスが可能であることを示している。本成果は、ダイヤモンドマイクロ波-光量子変換器の実現に向けた重要な技術的進歩である。

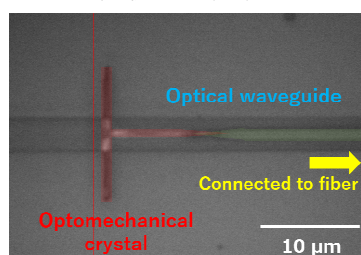


Fig.1 Optical microscope image of an optomechanical crystal aligned to an SiN optical waveguide.

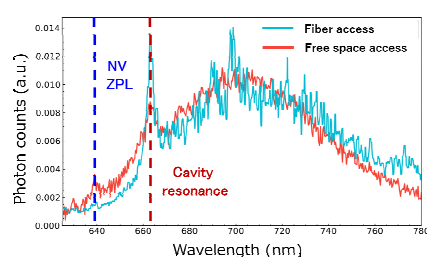


Fig.2 Comparison of PL spectra measured using a fiber-coupled system and a free-space system.

謝辞：本研究は JST「ムーンショット型研究開発事業」(JPMJMS2062)、総務省「量子インターネット実現に向けた要素技術の研究開発」(JPMI00316)、JST-CREST(JPMJCR1773)、科研費基盤研究(A,S)、挑戦的研究(開拓)、JST 先端国際共同研究推進事業(ASPIRE) グラント番号 JPMJAP24C1 の支援を得た。

**マイクロ波—光量子インターフェースの実現に向けた
超伝導ナノワイヤ共振器における光応答の局所空間分解測定**

Spatially Resolved Optical Responses of a Superconducting Nanowire Microwave Resonator

横国大 QIC¹, 横国大 IAS², 横国大院工³, 情報通信研究機構⁴ ○黒川 穂高^{1,2}, 廣津留 蓮斗³,
高木 佳寿代⁴, 寺井 弘高^{1,4}, 小坂 英男^{1,2,3} QIC Yokohama Natl. Univ.¹, IAS Yokohama Natl. Univ.²,
Grad. Sch. Eng. Yokohama Natl. Univ.³, NICT⁴, ○Hodaka Kurokawa^{1,2}, Rento Hirotsuru³,
Kazuyo Takaki⁴, Hirotaka Terai^{1,4}, Hideo Kosaka^{1,2,3} E-mail: kurokawa-hodaka-hm@ynu.ac.jp

超伝導マイクロ波共振器は、超伝導ビットの読み出し回路、ボソニック量子ビットのメモリ、固体中の欠陥との強結合の実現、単一光子検出器、マイクロ波と光の量子インターフェースといった、最先端の量子技術のいたるところにおいて欠くことのできない構成要素である。これらの応用先の中でもマイクロ波—光量子インターフェースは、超伝導量子コンピュータ間の光接続を可能とし、量子コンピュータの大規模化を実現しうることから極めて大きな注目を集めている。

我々のグループでは、ダイヤモンド色中心を用いたマイクロ波—光インターフェースに着目し開発を進めているが、ここでもマイクロ波と場、あるいはマイクロ波とダイヤモンド色中心との相互作用を増強するために超伝導マイクロ波共振器が必要となる。ただし、マイクロ波と光の変換の際のポンプ光照射は超伝導体中に準粒子を生成し、意図しない共振器特性の劣化も同時に引き起こす。特に、高いゼロ点電圧から注目を集めている高インピーダンスのナノワイヤ超伝導体マイクロ波共振器は準粒子生成に対する応答が大きく、光照射の影響が顕著である。本研究では、ナノワイヤ超伝導体マイクロ波共振器の光応答・光耐性を詳細に理解すべく、開発したレーザ走査型マイクロ波分光システムでナノワイヤ共振器における光応答の位置・モード依存性を観測した [1]。観測した光応答が共振器の局所電場に依存したことから、光応答も環境中の 2 準位系(TLS)の影響を受けることが示唆された。本研究ならびに本手法は、マイクロ波—光量子インターフェースの動作理解、設計に貢献するだけでなく、超伝導デバイスへの高エネルギー粒子の衝突を再現できるという点で量子プロセッサのエラー機構の理解の深化にも繋がるものである。

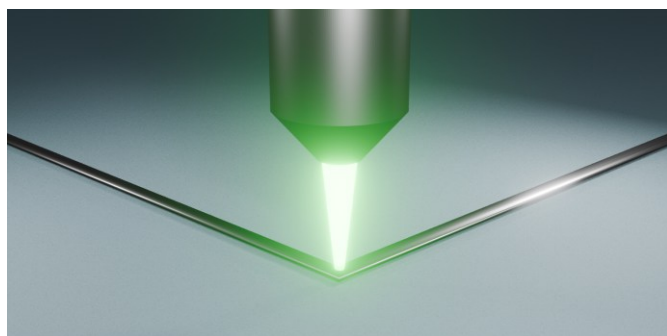


Fig.1 Schematic of the spatially-resolved optical response measurement of the microwave resonator.

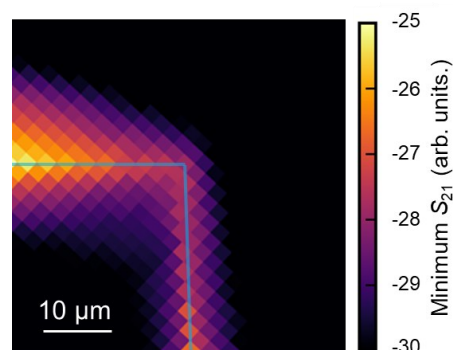


Fig.2 Two-dimensional optical response map of the resonator.

謝辞:本研究は JST「ムーンショット型研究開発事業」(JPMJMS2062)、「量子インターネット実現に向けた要素技術の研究開発」(JPMI00316)、JST-CREST(JPMJCR1773)、科研費基盤研究(A.S)、挑戦的研究(開拓)の支援を得た。

引用: [1] R. Hirotsuru *et al.*, arXiv:2504.05899.

量子デバイス向け単結晶ダイヤモンド接合基板の薄化技術

Thinning Technology for Single-Crystal Diamond Bonded Substrates for Quantum Devices

富士通¹, デルフト工科大² ○宮武 哲也¹, ヤン イェティン¹, 伏見 直樹¹, 肥田 勝春¹,
高木 一旗¹, 宮澤 俊之¹, 河口 研一¹, 石原 良一², 佐藤 信太郎¹

Fujitsu Ltd.¹, TU Delft² ○Tetsuya Miyatake¹, Yeting Yang¹, Naoki Fushimi¹, Masaharu Hida¹,
Itsuki Takagi¹, Toshiyuki Miyazawa¹, Kenichi Kawaguchi¹, Ryoichi Ishihara², Shintaro Sato¹

E-mail: miyatake.tetuya@fujitsu.com

ダイヤモンド単結晶中に形成したカラーセンターを利用したダイヤモンドスピン方式量子コンピュータは、モジュール化が可能であるため高集積化に有利であると期待されている[1]。この方式の量子コンピュータでは、量子ビットを有するダイヤモンドと量子状態の読み出しや操作を行うための可視光導波路が積層されたハイブリッド構造が必須である。この構造を実現するために、我々はレーザースライスとドライエッチングにより接合ダイヤモンドを量子ビットとして機能する微小ダイヤモンド構造(ナノビーム)の厚さまで薄化加工する技術を開発した。

サイズ 4 mm×4 mm で 500 μm 厚のダイヤモンド基板と 0.3 μm 厚のアルミナ成膜基板の直接接合基板に対して[2]、接合した基板のダイヤモンド基板に対して側面から YAG レーザーを走査照射し、厚さ 30 μm 程度を残して大部分のダイヤモンドを除去した後、レーザ加工面を鏡面研磨した。この加工後の表面粗さ(Ra)は 0.5 nm 以下、基板全体の平坦度(PV)は 4.5 μm を達成した。その後、ドライエッチングにより接合ダイヤモンドをナノビーム厚さ(0.2 μm)まで薄化した。このドライエッチングでは、エッチング面の残留物に起因する微小突起(マイクロマスク)の発生を防ぐため、Ar と Cl₂ の混合ガスによるクリーニングエッチングと O₂ による薄化エッチングの 2 段階エッチングを繰り返すサイクルエッチングを採用した。この 2 段階サイクルエッチングにより、マイクロマスクは大幅に抑制され、接合ダイヤモンドを 1 μm 以下まで薄化してもデバイス作製に影響するようなマイクロマスクは形成されなかった。ドライエッチング後の表面粗さ(Ra)は 1~2 nm で、基板全体の平坦度(PV)はダイヤモンドが一部消失して 1.5 μm に減少した。表面粗さは若干劣化したが、ナノビームのサイズを考慮すると、ほとんど影響ないと考えられる。このようにして薄化されたダイヤモンドに対して、室温 PL 測定を行った結果、ダイヤモンドに自然に含まれる NV センターからの発光が確認できた。この測定結果は、プロセスダメージの影響が小さいことを示唆している。我々が開発した基板直接接合技術と接合ダイヤモンド基板の薄化加工技術により、ダイヤモンドスピン量子デバイスを形成するための基板を作製できることを実証した。

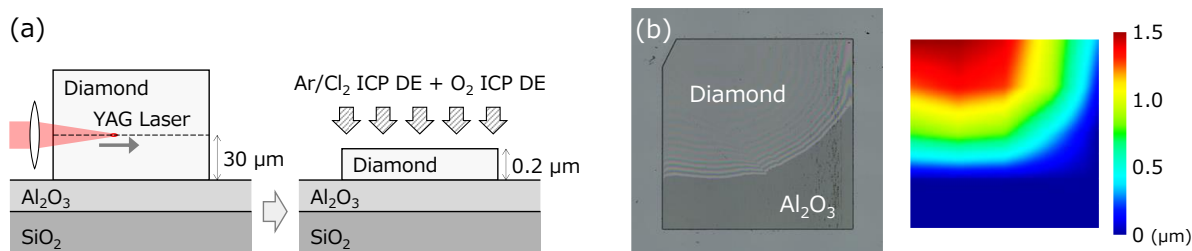


Fig. 1: (a) Process flow for thinning directly bonded diamond substrate. First, the diamond is thinned to 30 μm or less by laser slicing, and finally, the diamond is dry-etched to a thickness of 0.2 μm . (b) Image of diamond substrate after thinning processing and diamond thickness distribution. The diamond in the lower part of the diamond-bonded region disappears and alumina is exposed. The thickness of diamond is reduced below 1.5 μm .

参考文献: [1] R. Ishihara et al., in 67th IEEE IEDM (2021), p. 14.5.1. [2] T. Miyatake et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* 62, 096503 (2023).

ダイヤモンドスピン量子コンピュータ応用に向けたダイヤモンド-アルミナ導波路構造の作製 Fabrication of diamond- Al_2O_3 waveguide hybrid structure for diamond-spin-based quantum computer application

富士通¹, 東京大学², デルフト工科大³,

○楊 燁亭¹, 宮武 哲也¹, 伏見 直樹¹, 北川 涼太¹, 岩井 俊樹¹, 肥田 勝春¹, 松清 秀次², 西岡 政雄²,
石原 照也², 池 尚政², 石田 悟己², 岩本 敏², 宮澤 俊之¹, 河口 研一¹, 石原 良一³, 佐藤 信太郎¹
Fujitsu¹, University of Tokyo², TU Delft³, ○Yeting Yang¹, Tetsuya Miyatake¹, Naoki Fushimi¹, Ryota Kitagawa¹,
Toshiki Iwai¹, Masaharu Hida¹, Hidetsugu Matsukiyo², Masao Nishioka², Teruya Ishihara², Sangmin Ji²,
Satomi Ishida², Satoshi Iwamoto², Toshiyuki Miyazawa¹, Kenichi Kawaguchi¹, Ryoichi Ishihara³, Shintaro Sato¹

E-mail: yang.yeting@ip.fujitsu.com

Diamond spin systems offer long coherence times and high-fidelity control, making them attractive for scalable quantum computing. [1,2] To realize scalability, we propose a modular architecture where multiple diamond nodes are interconnected via integrated photonic circuits [3]. As shown in Fig. 1a, the hybrid structure combines a diamond nanobeam with an underlying Al_2O_3 waveguide for photon routing. Building on our previous high-Q cavity design on a waveguide platform [4], we now demonstrate the experimental realization of the hybrid diamond- Al_2O_3 structure, which forms the basis for future cavity integration.

We fabricated a hybrid structure from a pre-thinned diamond bonded to an Al_2O_3 layer atop a SiO_2/Si wafer. One-micrometer-wide Al_2O_3 waveguides, designed to support both red and green wavelengths, were patterned on both the diamond and Al_2O_3 layers with high alignment accuracy. To protect the underlying SiO_2 , the etching time was precisely controlled, and a hard mask thicker than 600 nm was used to ensure durability during two-layer etching. Dry etching was performed using Cl_2/BCl_3 plasma for Al_2O_3 and O_2 plasma for diamond, achieving high etch selectivity. A nanobeam structure was then defined on the diamond layer. A key challenge was achieving vertical ($\sim 85^\circ$) sidewalls and smooth surfaces on the chemically inert diamond by carefully increasing the Bias-to-ICP power ratio and decreasing the gas flow, while maintaining precise alignment with the underlying Al_2O_3 waveguide. The resulting device (Fig. 1b) integrates a 200-nm-thick, 300-nm-wide diamond nanobeam with a 300-nm-thick Al_2O_3 waveguide. To the best of our knowledge, this is the first demonstration of such a hybrid platform toward scalable quantum systems.

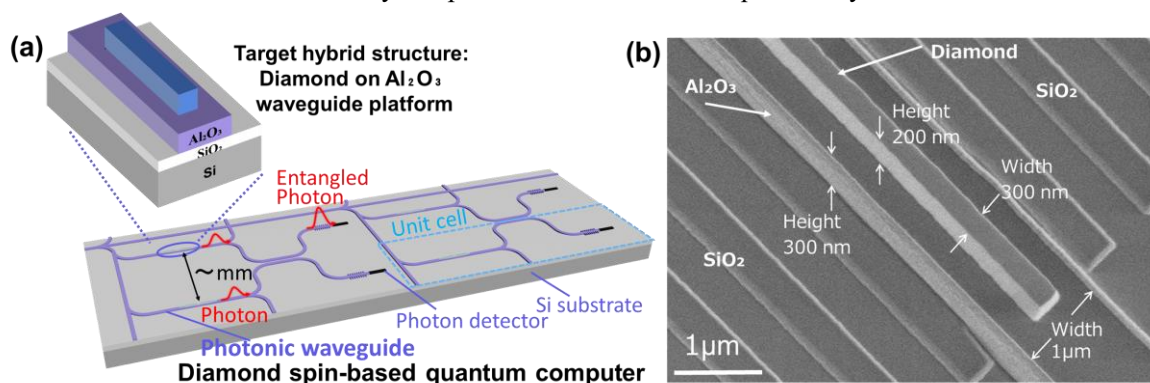


Fig.1 (a) Schematic of a diamond spin-based quantum computer chip. The figure shows the photonic waveguide connect multiple diamond nodes for modular scaling. Inset: shows the diamond on Al_2O_3 waveguide platform. (b) Tilted SEM images (20° tilt) of diamond nanobeams on an Al_2O_3 waveguide.

References: [1] J. Wrachtrup, *et al.*, J. Phys.Condens. Matter. 18 S807 (2006). [2] Andrew D. Greentree, *et al.*, Materials Today, 11(9), 21-31 (2008). [3] R. Ishihara, *et al.*, International Electron Device Meeting (IEDM) (2022) [4] Y, Yang, *et al.* JSAP Conference, 22p-12C-6 (2024)

単結晶ダイヤモンドを用いたエアブリッジブルズアイ型光共振器の作製

Fabrication of Air-bridge Bullseye Cavity from Single-crystal Diamond

東大生研¹, 東大先端研², [○]池 尚玖¹, ポンセン ナタチャック¹, 松清 秀次¹,

西岡 政雄¹, 石田 悟己^{1,2}, 岩本 敏^{1,2}

IIS Univ. Tokyo¹, RCAST Univ. Tokyo², [○]Sangmin Ji¹, Natthajuks Pholsen¹,

Hidetsugu Matsukiyo¹, Masao Nishioka¹, Satomi Ishida^{1,2}, and Satoshi Iwamoto^{1,2}

Email: smji@iis.u-tokyo.ac.jp

ダイヤモンド中に作製した光ナノ共振器は、量子系（NV 中心など）におけるスピンと光子の相互作用を増強し、高効率な光量子インターフェースを可能にする [1]。我々は、より優れた量子系の特性を有する単結晶バルクダイヤモンド [2] 上で比較的平坦な裏面形状のエアブリッジ構造が作製可能な等方性エッチング [3] を用い、国内では初めてエアブリッジ型フォトニック結晶共振器 (PhC) を実証した [4][5]。また、転写プリント法 [6] を用い、作製したエアブリッジ PhC の異種基板への集積にも成功している [7]。単結晶ダイヤモンドに形成したエアブリッジ型 2 次元ナノ構造は、より大きな光との相互作用増強が期待できる一方、均一かつ大面積な周期構造を作製するための技術的難易度が高い。現在までに、中空化面積が長方形に限られた L3 型 PhC [8] が報告されているが、対称性を有する H1 型やブルズアイ型光共振器の報告例はない。今回、エアブリッジブルズアイ型光共振器の作製及び異種基板への集積に関して初期的な成果が得られたので報告する。

作製したブルズアイ型光共振器は、周期 $a = 332 \text{ nm}$ 及び空気層の割合 0.3 のグレーティングが直径 $1.05 \times a$ の共振器を囲む構造になっている。また、幅 70 nm の直交するチャンネルが全体を支えており、エアブリッジ構造が可能である。図 1(a)((b)) に等方性エッチング途中（後）の光学顕微鏡（SEM）像を示す。光学顕微鏡像により、ブルズアイ構造とブリッジ（基板とのつながり）の中中空化程度を把握できる。図 1(c) に、シリコン基板上転写したエアブリッジブルズアイ構造裏面の SEM 像を示す。外側のグレーティングは中空化しているものの、共振器中央部にはピラミッド型のダイヤモンドが残っている様子が分かる。酸素プラズマを用いた等方性エッチングではエッチング速度の結晶方位依存性が報告 [9] されており、今回使用した [100] ダイヤモンド基板では最もエッチング速度が遅いとされている [11] 斜面が残りがち。今後、露出したダイヤモンド裏面の物理的 [10]・化学的 [11] 研磨を行い、デバイスとしての評価を行う。

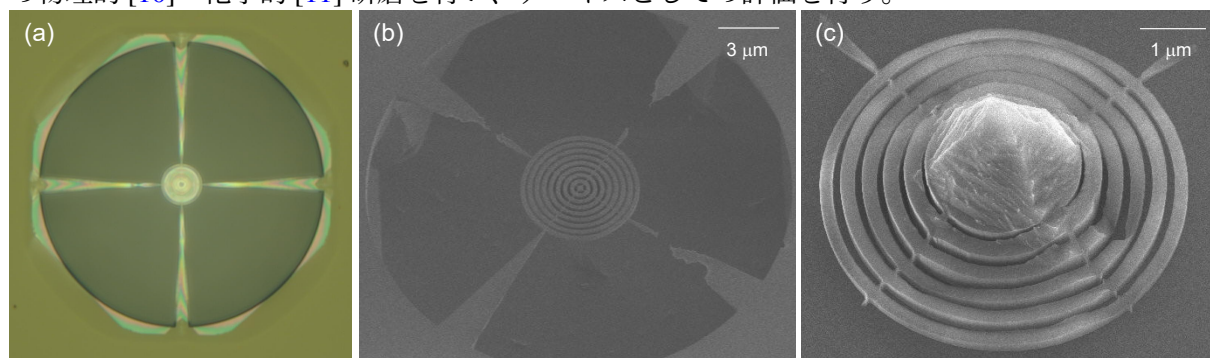


Fig. 1. (a) Optical microscopic image and (b) SEM image of the fabricated bullseye structure on a single-crystal diamond substrate. (c) SEM image of the backside of the diamond bullseye structure transfer printed to a silicon substrate

参考文献) [1] P. K. Shandilya *et al.*, *J. Light. Technol.* **40**, 7538 (2022). [2] A. Faraon *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 033604 (2012). [3] S. Mouradian *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 021103 (2017). [4] 石田 悟己 他, in 第 84 回秋季応用物理学会 (2023), 21p-A308-5. [5] 池 尚玖 他, in 第 85 回秋季応用物理学会 (2024), 18a-A32-8. [6] R. Katsumi *et al.*, *Optica* **5**, 691 (2018). [7] 石田 悟己 他, in 第 85 回秋季応用物理学会 (2024), 17p-A34-1. [8] N. H. Wan *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 141102 (2018). [9] L. Xie *et al.*, *Adv. Mater.* **30**, 1705501 (2018). [10] A. Kubota *et al.*, *Diam. Relat. Mater.* **101**, 107644 (2020). [11] Y. Zheng *et al.*, *J. Mater. Res.* **35**, 462 (2020).

謝辞) 本研究は JST Moonshot R&D (JPMJMS2062)、科研費 (23K19197、24K17579) 及び池谷科学技術振興財団 (0361158-A) の支援を受けて遂行された。

通信波長帯域におけるスピンフォトン変換インターフェースに向けた Ge ブルズアイ光共振器の作製と評価

Fabrication and Optical Characterization of Ge Bullseye Optical Cavity Toward Telecommunication-band Spin-Photon Interface

東大生研¹, 東京都市大², 阪大産研³, ○池 尚玟¹, 吉川 修², 澤野 憲太郎², 大岩 顕³, 岩本 敏¹

IIS Univ. Tokyo¹, Tokyo City Univ.², SANKEN Osaka Univ.³,

○Sangmin Ji¹, Shu Yoshikawa², Kentarou Sawano², Akira Oiwa³, and Satoshi Iwamoto¹

Email: smji@iis.u-tokyo.ac.jp

ゲート制御量子ドット (QD) 中の電子スピンと光をコヒーレントに変換するスピンフォトン変換インターフェースは、大規模量子ネットワーク構築に向けた量子中継器のコアデバイスとして注目されている [1]。対称的な構造により偏光依存性を持たないブルズアイ型光共振器 [2] は、スピンの量子状態とフォトンの量子状態 (偏光) を正しく結びつつ、高効率な変換が可能な構造として有望である。これまでに我々は、GaAs 量子井戸 (QW) 及び QD 形成のためのゲート電極を含むブルズアイ型光共振器の開発に成功 [3]、偏光によらない大きな吸収増大を実証 [4] した。しかし、GaAs の光吸収はやや短波長 (810 nm) であるため、長距離間のネットワーク化には通信波長帯域への展開が必要である。今回は、通信波長帯域での光吸収増大を目指し、Ge-On-Insulator 基板にブルズアイ光共振器を作製、光学評価より共振器モードの存在を確認したので報告する。

図 1(a) に、作製したブルズアイ光共振器の SEM 写真を示す。周期 a 及び空気層の割合 0.36 のグレーティングが直径 $A_C = 1.95 \times a$ の共振器を囲む構造になっている。また、電極作製のためのチャンネル (幅 $W_G = 100$ nm) および電気伝導のためのチャンネル (幅 $W_T = 150$ nm) が設けられている。Ge スラブの厚みは 211 nm で、下部の約 500 nm の酸化膜を除去することでエアブリッジ構造になっている。図 1(b) は、いくつか異なるグレーティングの周期 a における白色光源の反射スペクトルを表している。共振器モードの共鳴に起因した、周期 a の増加に伴う反射スペクトルのディップのシフトする様子が確認できる。

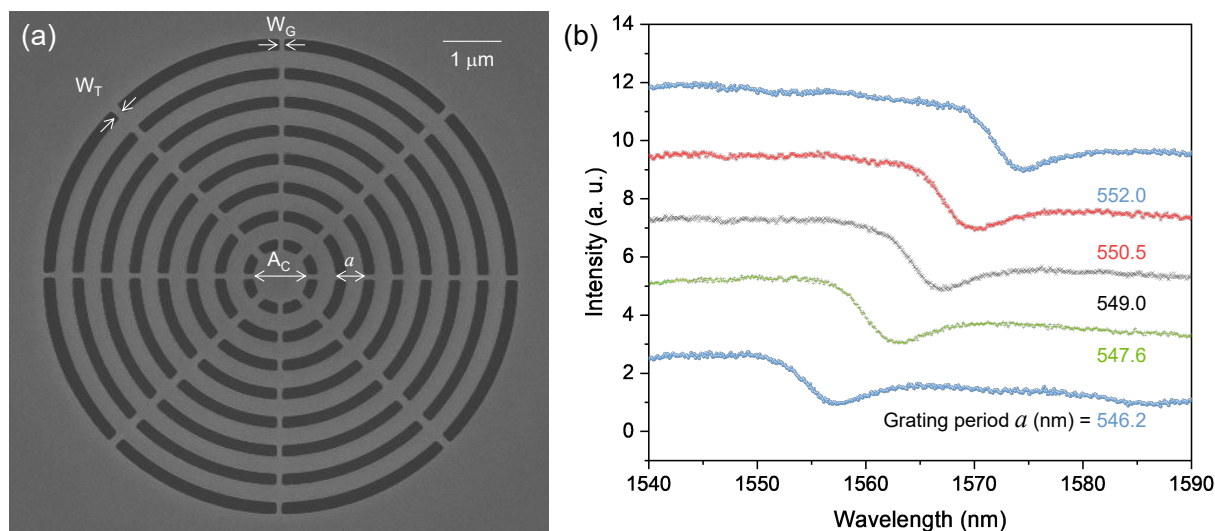


Fig. 1. (a) SEM image of a fabricated Ge bullseye cavity. The grating period, diameter of the center region, channel width for the gate fabrication and the electrical transport are a , A_C , W_G , and W_T , respectively. (b) Reflection spectra measured on the cavities with various grating period a .

参考文献 [1] A. Oiwa *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 011008 (2017). [2] M. Davanço *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 041102 (2011). [3] S. Ji *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **60**, 102003 (2021). [4] S. Ji *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **62**, SC1018 (2023).

謝辞 本研究は科研費 (23H05458, 23K19197, 24K17579) 及び池谷科学技術振興財団 (0361158-A) の支援を受けて遂行された。

ブルズアイ光学共振器中のゲート制御 GaAs 量子ドットの作製

Fabrication of gate-defined GaAs quantum dot in a bull's eye optical cavity

阪大産研¹, 東大先端研², 阪大 QIQB³, 九大⁴, ルール大ボーフム⁵,

佐藤 穂有¹, Sangmin Ji², 深井 利央¹, 森 正芳¹, 藤田 高史^{1,3}, 岩本 敏², 木山 治樹⁴,

Arne Ludwig⁵, Andreas D. Wieck⁵, 大岩 顕^{1,2}

SANKEN Univ. Osaka¹, RCAST Univ. Tokyo², QIQB Univ. Osaka³, Kyushu Univ.⁴, Ruhr Univ.

Bochum⁵, (M2) Hosumi Sato¹, Sangmin Ji², Rio Fukai¹, Masayoshi Mori¹, Takafumi Fujita^{1,3},

Satoshi Iwamoto², Haruki Kiyama⁴, Arne Ludwig⁵, Andreas D. Wieck⁵, Akira Oiwa^{1,3},

hosumi21@sanken.osaka-u.ac.jp

ゲート制御半導体量子ドット (GQD) において単一光子の偏光状態を電子スピン状態へ変換できることが実証されたことにより、GQD に基づくスピン量子ビットは量子通信において有望なプラットフォームとなる可能性を有する[1,2]。高い電気制御性、優れた集積性、完全ベル測定の実装、さらに吸収波長の設計など、量子通信の中核を成す量子中継器開発が可能である。しかし、GQD 単独では光子—電子変換効率が低い($10^{-5} \sim 10^{-4}$) という課題がある[3]。我々は GQD とブルズアイ光学共振器を組み合わせることで、この変換効率の大幅な向上を目指している。ブルズアイ共振器の同心円回折格子は局所的な光学状態密度を増強するとともに入射光を活性領域へ導き、光子が吸収されて GQD に電子が生成される確率を高める。シミュレーションでは吸収率が 410 倍に向上することが示されている [4]。本研究では、エアブリッジ型 GaAs ブルズアイ共振器と GaAs GQD の複合デバイス作製と低温電気伝導について報告する。

ドライエッチング(RIE)とウェットエッチング(HF)によりエアブリッジ構造を形成する。従来の作製では HF プロセスにより微細ゲート電極が剥離する課題があったが、電極幅をわずかに大きくすることで顕著な剥離は改善された (Fig. 1)。こうして完成して複合デバイスの輸送特性を測定した。共振器を支える梁を GQD への伝導チャネルとして利用した。チャネルの導電性を確保するため、量子井戸基板のキャリア濃度を比較的高い値 (約 10^{12} cm^{-2}) に設定した結果、空乏化はせず、ゲート依存伝導特性を測定できた。しかし、高キャリア濃度のため空乏化電圧とピンチオフ電圧はいずれも大きく負側へシフトし、さらにゲート電圧が約 -3 V でゲート電極からリーク電流が観測された。

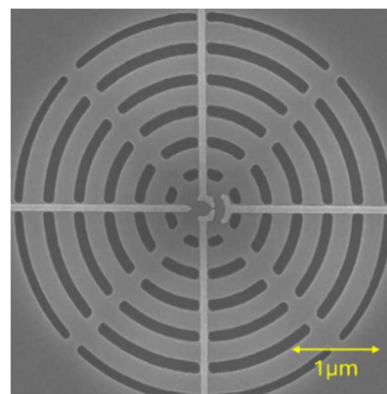


Fig.1 SEM image of a hybrid device of bull's eye optical cavity and a GDQD

本研究は、科研費 (23H05458)、JST (Moonshot R&D) (JPMJMS2066、JPMJMS226B)、JST CREST (JPMJCR24A1) の支援を受けて遂行された。

[1] T. Fujita et al., Nat. Commun. **10**, 2991 (2019). [2] K. Kuroyama et al., Phys. Rev. B **99**, 085203 (2019).

[3] A. Oiwa et al., J. Phys. Soc Jpn. **86**, 011008 (2017). [4] S. Ji et al. Jpn. J. Appl. Phys. **60**, 102003 (2021).

KS 研究会セッション | 一般セッション(口頭講演): KS.2 量子情報工学研究会

[9p-N304-1~15] KS.2 量子情報工学研究会

[9p-N304-1]

ダイヤモンド中の色中心を介したマイクロ波-光量子変換

○(M1)後藤 京介¹、黒川 穂高^{2,3}、小坂 英男^{1,2,3}、越野 和樹⁴ (1.横国大院理工、2.横国大QIC、3.横国大IAS、4.東京科学大ILA)

[9p-N304-2]

光接続超伝導量子プロセッサにおける物理・論理もつれ生成レートおよび忠実度の高効率化

○(M2)小林 拓海¹、黒川 穂高^{2,3}、鈴木 泰成⁴、小坂 英男^{1,2,3} (1.横国大院理工、2.横国大QIC、3.横国大IAS、4.理研量子コンピュータ研究センター)

[9p-N304-3]

アクティブインターポーザに実装されたシリコン量子ドットデバイスの評価

○(M2)和田 陸久¹、溝口 来成¹、東桃 一磨²、松岡 竜太郎¹、田口 美里²、三木 拓司²、永田 真²、小寺 哲夫¹ (1.東京科学大、2.神戸大)

[9p-N304-4]

電圧パルス印加によるシリコン量子ドット二準位ゆらぎのスイッチング特性変調

○(DC)松岡 竜太郎¹、溝口 来成¹、米田 淳²、小寺 哲夫¹ (1.Science Tokyo、2.東大新領域)

[9p-N304-5]

Sidewall spacer構造を有するフルエピタキシャルNbN/AlN/NbN接合を用いた超伝導トランズモン型量子ビット

○(M2)本田 浩輝¹、栗原 大輝¹、内田 徳之新¹、沓間 弘樹¹、寺井 弘高²、山下 太郎¹ (1.東北大院工、2.情通機構)

[9p-N304-6]

超伝導磁束量子ビットの単一井戸領域における摂動理論

○(D)内田 徳之新¹、沓間 弘樹¹、山下 太郎¹ (1.東北大院工)

[9p-N304-7]

超伝導共振器を用いたバイノミナル符号の符号化とゲート操作

○見川 巧弥¹、竹中 崇了¹、角柳 孝輔¹、齊藤 志郎¹ (1.NTT物性基礎研)

[9p-N304-8]

共通制御線を用いた周波数固定型トランズモンの同時ゲート解析

○伴 昂一郎¹、牧野 かれん¹、町野 明徳^{2,3}、塩見 英久³、隅田 土詞¹、Nilton Filho²、松田 亮²、宮永 崇史³、小川 和久³、根来 誠^{1,3}、大平 龍太郎¹ (1.キューエル、2.阪大基礎工、3.阪大QIQB)

[9p-N304-9]

周波数固定型トランズモン量子ビットにおける多ラウンド繰り返し符号の実装と論理エラー率の評価

○隅田 土詞¹、フィーリョ ニュートン²、小川 和久²、町野 明徳^{1,2}、塩見 英久^{1,2}、宮永 崇史²、伴 昂一郎²、松田 亮²、大平 龍太郎¹、森榮 真一^{1,2}、小池 恵介³、三好 健文^{1,2,3}、栗本 佳典¹、杉田 祐也¹、伊藤 陽介¹、鈴木 泰成⁴、スプリング ピーター⁴、田淵 豊⁴、玉手 修平⁴、中村 泰信^{4,5}、根来 誠^{1,2} (1.キューエル、2.大阪大学、3.イーツリーズ・ジャパン、4.理研、5.東京大学)

[9p-N304-10]

Qiskit エコシステムを活用した量子コンピュータ制御システム

○徳永 新吾^{1,2} (1.富士通、2.理研RQC-富士通連携センター)

[9p-N304-11]

時間多重化電圧制御による多電極イオントラップ駆動システムの開発とその評価

○大平 龍太郎¹、森榮 真一^{1,2}、宮本 真成³、中村 一平⁴、野口 篤史^{4,5,6}、田中 歌子^{2,3,7}、三好 健文^{1,2,8}
(1.キューエル、2.阪大 QIQB、3.阪大院基礎工、4.東大、5.理研 RQC、6.InaRIS、7.NICT、8.イーツリーズ・ジャパン)

[9p-N304-12]

NISQデバイスへの時間遅延量子極限学習マシンの実装と時系列予測性能の検討

○川名部 美桜¹、金刺 拓海¹、津嘉山 大輔¹、白樫 淳一¹、渋谷 哲朗²、今井 浩² (1.東京農工大、2.東京大)

[9p-N304-13]

All Valid States HOB Encoding for Travelling Salesperson Problem in Quantum Computing

○Juncheng Wang¹, Daisuke Tsukayama¹, Takumi Kanezashi¹, Jun-ichi Shirakashi¹, Tetsuo Shibuya², Hiroshi Imai² (1.Tokyo Univ.Agr.&Tech., 2.Tokyo Univ.)

[9p-N304-14]

Utility-Scaleに向けたQubit-Reuseによるエラー軽減：Au原子接合作製における実験パラメータ最適化

○金刺 拓海¹、津嘉山 大輔¹、汪 俊誠¹、川名部 美桜¹、白樫 淳一¹、渋谷 哲朗²、今井 浩² (1.東京農工大、2.東京大)

[9p-N304-15]

伝導予測シミュレーションにおける量子計算の応用

○(M1)山内 一馬¹、植本 光治¹、小野 倫也¹ (1.神戸大工)

ダイヤモンド中の色中心を介したマイクロ波－光量子変換

A resonant microwave-to-optical quantum transducer with a diamond color center

横国大院理工¹, 横国大 QIC², 横国大 IAS³, 東京科学大 ILA⁴

○(M1)後藤 京介¹, 黒川 穂高^{2,3}, *小坂 英男^{1,2,3}, 越野 和樹⁴

Grad. Sch. Eng., Yokohama Natl. Univ.¹, QIC, Yokohama Natl. Univ.²,

IAS, Yokohama Natl. Univ.³, ILA, Inst. of Science Tokyo⁴

○Kyosuke Goto¹, Hodaka Kurokawa^{2,3}, *Hideo Kosaka^{1,2,3}, Kazuki Koshino⁴

*E-mail: kosaka-hideo-yp@ynu.ac.jp

近年、複数の量子計算モジュールを接続して処理を行う分散型の量子計算が注目されている。実用的な誤り耐性量子計算を行うために必要な論理ビットを構成するには、数 10 万から数 100 万の物理量子ビットが要求されると見積もられている。しかし、これを単一のシステムで構成することはハードウェアの物理的制約や量子コンピュータチップの歩留まりなどの観点から極めて困難である。そのため、複数のシステムで論理ビットを構成することが誤り耐性量子計算の実現のために重要である。

量子コンピュータを実現する物理系として有望な超伝導量子ビットでは光接続による分散化が注目を集めている。光は広帯域・室温伝送可能・高い接続自由度という、超伝導量子ビットと直接相互作用できるマイクロ波にはない利点を持ち、両者の融合は量子情報処理の自由度を大きく拡張すると期待されている。そこで必要となるのがマイクロ波と光を接続する量子トランスデューサである。ただ、現状の量子トランスデューサはマイクロ波－光変換の際に強いポンプ光が必要であり、大規模実装や熱雑音の観点から課題がある。

本研究では、上記の課題を解決すべくダイヤモンド中の色中心の共鳴準位を介したマイクロ波－光変換の理論的評価を行った。我々のト

ランスデューサはダイヤモンド色中心・マイクロ波共振器・フォノン共振器・光共振器の結合系である。超伝導量子ビットの量子状態ともつれたマイクロ波光子はマイクロ波共振器を介してオプトメカニカル結晶のフォノンモードを駆動する。駆動されたフォノンとポンプ光の共鳴吸収によって色中心が励起され、光共振器を介してこの励起を取り出す。この系のハミルトニアンの解析から、最適ドライブ条件 (FIG. 1) では従来のトランスデューサに比べてポンプ光を数桁小さくできる可能性が示唆された。これは光－超伝導ハイブリッド量子コンピュータの可能性を拓く結果である。

謝辞: 本研究はJST「ムーンショット型研究開発事業」(JPMJMS2062), 総務省「量子インターネット実現に向けた要素技術の研究開発」(JPMI00316), JST-CREST (JPMJCR1773), 科研費基盤研究 (A, S), 挑戦的研究 (開拓) の支援を得た。

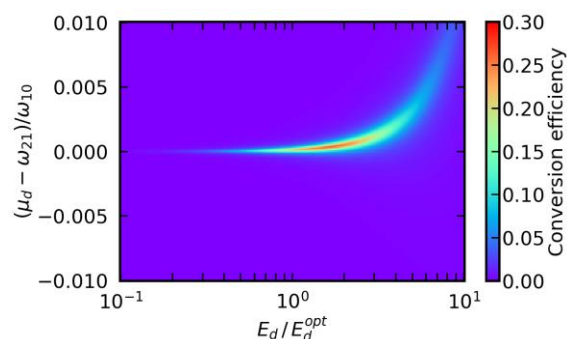


FIG. 1 Microwave-to-optical transduction efficiency as functions of the optical driving pump power and the pump detuning.

光接続超伝導量子プロセッサにおける
物理・論理もつれ生成レートおよび忠実度の高効率化

Efficient generation of high-fidelity physical and logical entanglements
via entanglement purification using a superconducting entanglement buffer

横国大院理工¹, 横国大 QIC², 横国大 IAS³, 理研量子コンピュータ研究センター⁴

◦(M2) 小林拓海¹, 黒川穂高^{2,3}, 鈴木泰成⁴, *小坂英男^{1,2,3}

Grad. Sch. Eng., Yokohama Natl. Univ.¹, QIC, Yokohama Natl. Univ.²,
IAS, Yokohama Natl. Univ.³, RIKEN Center for Quantum Computing⁴

◦(M2) Takumi Kobayashi¹, Hodaka Kurokawa^{2,3}, Yasunari Suzuki⁴, and *Hideo Kosaka^{1,2,3}

*E-mail: kosaka-hideo-yp@ynu.ac.jp

分散型量子計算には、分散配置された論理量子ビット間における遠隔論理もつれが不可欠であり、その実現には高忠実度な遠隔物理もつれを高速かつ大量に供給する必要がある。特に超伝導量子計算機においては光リンクを利用した大規模化が期待されているが、遠隔ノード間の通信はもつれ生成レートと忠実度の観点からシステム統合への大きな壁が存在する。本研究ではその課題に対処するべく、バッファ・通信路の多重化 (Fig. 1)による通信の高速化・物理もつれ状態の高忠実度化の可能性を探った。最終的には量子計算機としてのシステム性能まで見積もる計画の中で、本発表では効率的なもつれ蒸留方式の選定 (Fig 1)と、結果として得られる遠隔物理・論理もつれのエラーレート及び生成レートの見積りを中心に講演する。

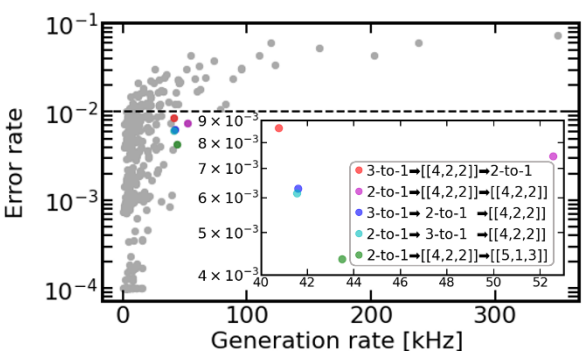


Fig. 2 Entanglement generation rate and infidelity for different entanglement purification protocols.

本研究は JST「ムーンショット型研究開発事業」(JPMJMS2061, JPMJMS2062)、科研費(20H05661, 20K20441, 23KJ0983)、JST-CREST(JPMJCR23I4, JPMJCR24I4)、MEXT Q-LEAP(JPMXS0120319794, JPMXS0118068682)の支援を得た。

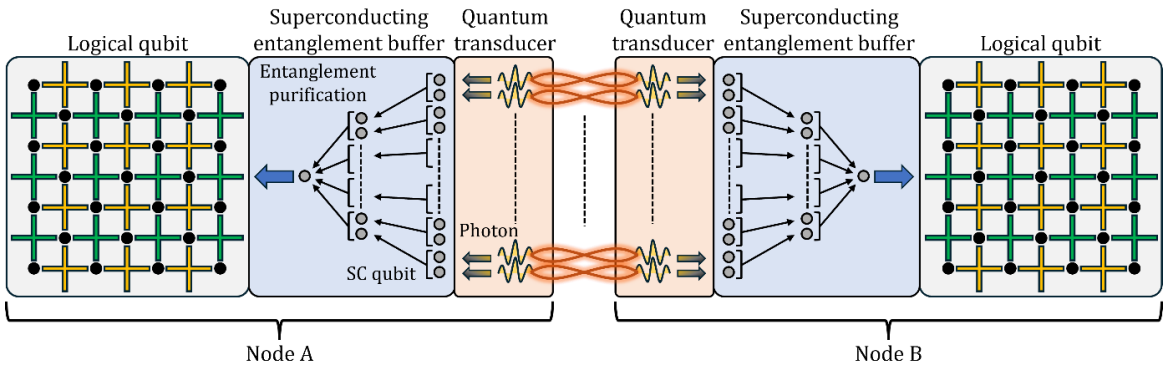


Fig. 1 Schematic of efficient physical entanglement distribution between remote logical qubits using the superconducting entanglement buffers and the optical links.

アクティブインターポーザに実装された シリコン量子ドットデバイスの評価

Evaluation of Silicon Quantum Dot Devices Integrated on an Active Interposer

東京科学大¹, 神戸大², [○](M2)和田 陸久¹, 溝口 来成¹, 東桃 一磨², 松岡 竜太郎¹,

田口 美里², 三木 拓司², 永田 真², 小寺 哲夫¹

Science Tokyo.¹, Kobe Univ.², [○](M2)Riku Wada¹, Raisei Mizokuchi¹, Kazuma Higashimomo²,

Ryutaro Matsuoka¹, Misato Taguchi², Takuji Miki², Makoto Nagata², Tetsuo Kodera¹

E-mail: wada.r.f50f@m.isct.ac.jp

シリコン量子ドット中のスピン量子ビットは、集積化に適した量子ビットとして注目を集めている。しかし将来的な大規模集積に向けて、高周波特性の劣化を伴う制御回路との過密な接続が課題となる。この課題に対して、インターポーザが有望なアプローチとして注目されている。インターポーザを用いることで、量子ドットデバイスと極低温の制御回路との接続が簡素化され、配線の集積密度の向上が期待できる[1][2]。更なる高度な実験に向けて、量子ドット測定用の CMOS 回路を実装したアクティブインターポーザの研究が進んでいる。

本研究では、インターポーザに実装された量子ドットデバイスが極低温下で正常に機能しているかを確認した。また配線の影響を含めた量

子ドットの制御信号の評価をするために ADC(analog-to-digital converter)を有するアクティブインターポーザに量子ドットデバイスをフリップチップ実装した。この実装により、印加した制御信号をデバイスの直前で読み取ることができ、室温から極低温までの配線によって歪んだ信号の評価ができる(Fig. 1.)。読み取った波形と理想的な波形の乖離から、最適な制御信号を計算することで、より高精度なシリコン量子ドット測定に貢献する。

本研究は JST Moonshot R&D Grant Number JPMJMS2065, MEXT Quantum Leap Flagship Program (MEXT QLEAP) Grant No. JPMXS0118069228, JST さきがけ(JPMJPR22B8), JST CREST grant no. JPMJCR24A1, 科研費(JP23H05455, JP23K17327)の支援を受けて遂行された。

[1] J. H. Lau, *IEEE Trans. Compon. Packag. Manuf. Technol.* **12**, 1271 (2022).

[2] T. Futaya, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **63**, 03SP64 (2024).

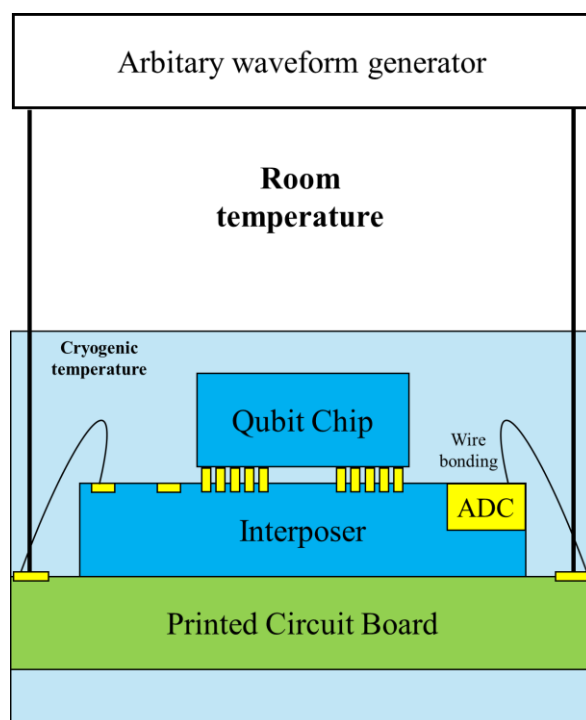


Fig. 1. Schematic of flip-chip mounting of a qubit chip and peripheral circuits on a silicon interposer.

電圧パルス印加によるシリコン量子ドット二準位ゆらぎのスイッチング特性変調

Voltage pulse-induced shift of the switching characteristics of a two-level fluctuator in a silicon quantum dot

Science Tokyo¹, 東大新領域² ○松岡 竜太郎¹, 溝口 来成¹, 米田 淳², 小寺 哲夫¹

Science Tokyo¹, Dept. of Adv. Mat. Sci., UTokyo²,

○Ryutaro Matsuoka¹, Raisei Mizokuchi¹, Jun Yoneda², Tetsuo Kodera¹

E-mail: matsuoka.r.90cb@m.isct.ac.jp

シリコンスピン量子ビットの高精度な制御にはノイズの理解が不可欠である。特に、電荷ノイズは、スピン軌道相互作用や微小磁石磁場を介してコヒーレンスを低下させることが知られている^[1]。しかし、その主要因とされる二準位ゆらぎ(Two-level fluctuator: TLF)の特性には未解明な点が多く、デバイス構造や制御の最適化には、その特性を統計的に把握する必要がある。TLF 特性評価の代表的なものとして、量子ドットのノイズ感度が高い特定の条件下で、電流ゆらぎを観測する手法があげられる。TLF のスイッチング特性は強いゲート電圧依存性を持つため^[2]、その正確な理解には電流ゆらぎの観測条件である高いノイズ感度を維持したまま、系統的にゲート電圧を掃引可能な測定が望ましい。

本研究では、ゲート電極にパルス信号を印加することで TLF のスイッチング特性を変調し、それにより生じる電流ゆらぎを最もノイズ感度が高い測定点で評価する手法を提案する。実験には 4.2 K の極低温下に設置された n-MOS 型シリコン量子ドットを用い、デバイスを流れる電流(I_{SD})を測定した(Fig. 1)。電流ゆらぎの測定点を最もノイズ感度が高い条件に保持したまま、ゲート電極にパルス信号を印加し、TLF のスイッチング特性変化を観測した(Fig. 2)。これは、電荷ノイズの測定条件を固定したまま TLF 特性のゲート電圧依存性が評価可能であることを示唆しており、今後の量子ビットの高集積化設計に向けて、TLF の理解を深める上で系統的な評価に有用であると期待される。

本研究は JST Moonshot R&D Grant No. JPMJMS2065, MEXT Quantum Leap Flagship Program (MEXT QLEAP) Grant No. JPMXS0118069228, JST CREST Grant No. JPMJCR24A1, 科研費(JP23H05455, JP23K26483, JP23K17327)の支援を受けて遂行された。

[1] J. Yoneda, et al., *Nat. Nanotechnol.* **13**, 102 (2018). [2] F. Ye, et al., *Phys. Rev. B* **110**, 235305 (2024).

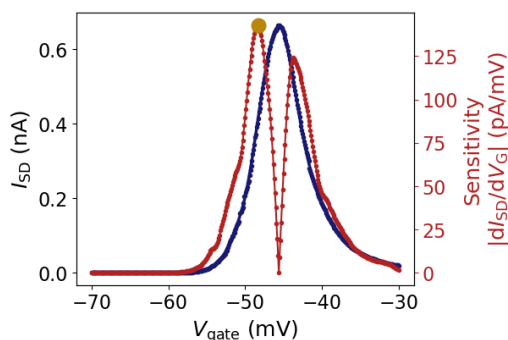


Fig. 1. Current (I_{SD}) through the device and noise sensitivity as functions of gate voltage (V_{gate}). Two-step voltage pulses are applied with one of the steps fixed to the yellow point ($V_{gate} = -48.3$ mV), where the noise sensitivity is maximized.

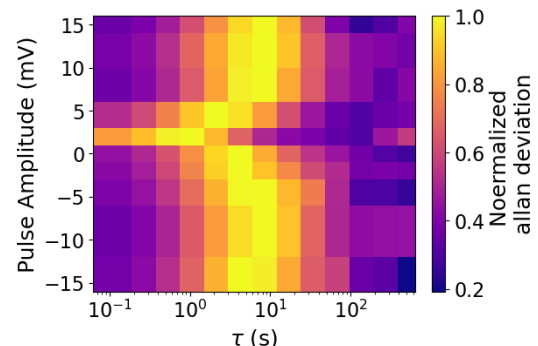


Fig. 2. Normalized Allan deviation showing the TLF characteristic switching time as a function of the pulse amplitude. The switching becomes faster for a pulse amplitude of ~ 2 mV.

Sidewall spacer 構造を有するフルエピタキシャル NbN/AlN/NbN 接合を用いた超伝導トランズモン型量子ビット

Superconducting Transmon Qubits with Sidewall Spacer Passivated

Fully Epitaxial NbN/AlN/NbN Junctions

東北大院工¹, 情通機構² ○(M2) 本田 浩輝¹, (D1) 栗原 大輝¹,

(D1) 内田 徳之新¹, 沓間 弘樹¹, 寺井 弘高², 山下 太郎¹

Tohoku Univ.¹, NICT², °Koki honda¹, Daiki Kurihara¹,

Tokunoshin Uchida¹, Hiroki Kutsuma¹, Hirotaka Terai², Taro Yamashita¹

E-mail: koki.honda.s6@dc.tohoku.ac.jp

近年、大規模集積化に向けて研究が進められる超伝導量子ビットには、作製技術の成熟した Al/AIO_x/Al ジョセフソン接合が広く用いられている。しかし、アルミニウム(Al)の低い超伝導転移温度と低い磁場耐性によりその動作環境は制限され、さらにトンネル障壁層の非晶質酸化アルミニウム(AIO_x)に含まれる多くの欠陥二準位系がデコヒーレンス源となることが知られている。最近では、Al 以外の接合材料を用いた量子ビットにおいてコヒーレンス特性の向上が報告されている [1, 2]。その中でも、フルエピタキシャル成長した NbN/AlN/NbN 接合を用いた量子ビットは、窒化ニオブ(NbN)の高い転移温度と高い磁場耐性に加え、障壁層に結晶化した窒化アルミニウム(AlN)を用いることで欠陥二準位系の低減が期待されている [1]。一方で、犠牲層 SiO₂ の平坦化を含む複雑な素子作製プロセスにより、本来のコヒーレンス特性が抑制されている可能性がある。また、量子ビットの損失源となる SiO₂ はプロセスの最終工程で除去する必要があるが、従来プロセスでは SiO₂ が基板全面に存在するため、エッチング残渣によるデコヒーレンスが懸念される。

そこで我々は、最近コヒーレンス特性の大幅な改善が報告された Nb/Al/AIO_x/Nb 接合を用いた量子ビットに導入された sidewall spacer 構造 [2]に着目し、同構造を有する NbN/AlN/NbN ジョセフソン接合の作製技術を開発した [3]。Sidewall spacer 構造では、SiO₂ が絶縁の必要な接合側壁近傍のみに存在するため、従来構造に比べてその体積が圧倒的に少ない。そのため、接合完成後に行うフッ酸による SiO₂ の除去が容易となり、デコヒーレンス源となる SiO₂ 残渣の低減が期待される。

本研究では、sidewall spacer 構造を有する NbN/AlN/NbN 接合を用いて超伝導トランズモン型量子ビットを作製した。Fig.1 に試作した量子ビットチップの顕微鏡写真を示す。4.26 – 4.73 GHz の周波数を有する 4 つのトランズモン型量子ビットが、共振周波数 6.50 – 6.92 GHz の読み出し共振器を介してフィードラインと結合した構造を持つ。発表では、作製プロセスの詳細と試作した量子ビットの測定結果について報告する。

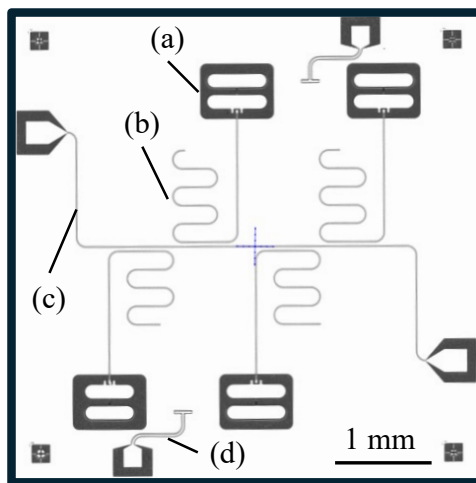


Fig. 1 Optical microscopy image of fabricated transmon qubits. The labeled components in the figure are as follows: (a) transmon qubit, (b) readout resonator, (c) feedline, (d) driveline.

謝辞 本研究の一部は、JSPS 基盤研究(S)(25H00406), JST CREST(JPMJCR24I5), JST ムーンショット型研究開発事業(JPMJMS2067), ならびに文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」事業(JPMXP1225TU0047)の支援により行われた。

[1] S. Kim *et al.*, *Commun. Mater.* **2**, 98 (2021). [2] A. Anferov *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **21**, 024047 (2024).

[3] 本田浩輝 他, 第 85 回応用物理学会秋季学術講演会 17a-A22-6 (2024).

超伝導磁束量子ビットの単一井戸領域における摂動理論

Perturbation Theory for Superconducting Flux Qubits in Single Well Regime

東北大院工¹ ○(D)内田 徳之新¹, 沓間 弘樹¹, 山下 太郎¹

Tohoku Univ.¹, ○Tokunoshin Uchida¹, Hiroki Kutsuma¹, Taro Yamashita¹

E-mail: tokunoshin.uchida.r2@dc.tohoku.ac.jp

様々なタイプが存在する超伝導量子ビットの一つである磁束量子ビットは、一般的に 2 つの同面積の Josephson 接合とそれらの α 倍 ($\alpha < 1$) の面積を有する小さな接合の 3 接合ループ構造で構成される。1999 年に提案された磁束量子ビットは、 $\alpha > 0.5$ において位相空間上で形成される 2 重井戸ポテンシャルの 2 つの極小値に対応する時計・反時計回りの永久電流状態間の相互作用によって記述される [1]。一方で、近年長い量子寿命を示しているのは $\alpha \leq 0.5$ の単一井戸領域における磁束量子ビットである [2]。この単一井戸領域における磁束量子ビットの物理的描像は解明されておらず、固有エネルギー及び固有ベクトルの解析式を得ることは、磁束量子ビットの高性能化や結合器等への応用に向けて重要である。

そこで本研究では、磁束量子ビットの Hamiltonian について $\alpha \leq 0.5$ における摂動理論を構築した。小さい α に対し、Hamiltonian を $\hat{H} = \hat{H}_0 + \alpha \hat{V}$ のように無摂動項 $\hat{H}_0$ と摂動項 $\alpha \hat{V}$ の和で表す。ここで、 $\hat{H}_0$ は磁束量子ビットの独立な 2 接合が保有する光子数 $|N_1, N_2\rangle$ を固有状態にもつ項となり、 $\alpha = 0$ の場合は α 接合以外の 2 つの接合のもつ合計光子数 N_{tot} に対して $|0, N_{\text{tot}}\rangle, |1, N_{\text{tot}} - 1\rangle, \dots, |N_{\text{tot}}, 0\rangle$ の $(N_{\text{tot}} + 1)$ 重の状態が縮退する。一方、 α が有限の場合はこれらの状態間に相互作用 $\alpha \hat{V}$ が生じ、固有エネルギー及び固有ベクトルは縮退がある場合の摂動論(永年方程式)により求められる。この永年方程式を代数的に解いた結果、任意の N_{tot} に対する固有エネルギー及び固有ベクトルの導出に成功し、Laguerre 多項式と Krawtchouk 多項式で表されることが分かった。導出には Krawtchouk 多項式の 3 項間漸化式や量子光学におけるビームスプリッタ、変位演算子間に成立する恒等式を用いた。さらに、得られた永年方程式の解を用いて α に対する 2 次摂動計算を行い、高階準位の周波数を求めた結果、Fig. 1 に示すように $0 \leq \alpha \leq 0.6$ の領域では数値計算で得られた値とよく一致し、非調和性を再現することが分かった。本研究により、磁束量子ビットの単一井戸領域における解析式や物理描像が明らかとなり、磁束量子ビットの開発における有効な理論基盤となることが期待される。

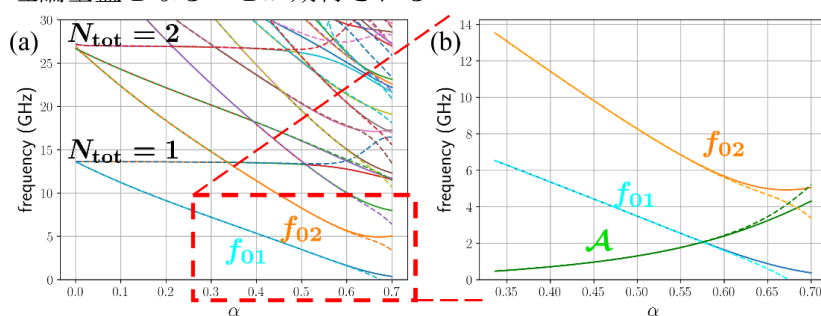


Fig. 1
(a) α -dependence of the energy levels of the flux qubit. Solid and dashed lines indicate the energy levels obtained by numerical diagonalization and perturbation theory, respectively.

(b) α -dependence of the first and second excitation frequency f_{01}, f_{02} , respectively, and anharmonicity $\mathcal{A} \equiv f_{02} - 2f_{01}$.

謝辞

本研究の一部は、日本学術振興会特別研究員奨励費(25KJ0535), JSPS 基盤研究(S)(25H00406), JST CREST(JPMJCR24I5)の支援により行われた。

[1] Mooij, *et al.*, *Science*, **285**, 1036-1039 (1999).

[2] Abdurakhimov, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **115**, 262601 (2019).

超伝導共振器を用いたバイノミナル符号の符号化とゲート操作

Encoding and gate operations of binominal code using superconducting cavity

NTT 物性基礎研 ○見川巧弥, 竹中崇了, 角柳孝輔, 齊藤志郎

NTT-BRL ○Takumi Mikawa, Takaaki Takenaka, Kosuke Kakuyanagi, Shiro Saito

E-mail: takumi.mikawa@ntt.com

無限個ある共振器内の光子数状態を利用して量子誤り訂正(QEC)を行う Bosonic 符号は、二準位系を利用した量子ビットのみで QEC を実装する方式に比べて物理的リソースを削減できるとして精力的に研究されている。Bosonic 符である 1 次のバイノミナル符号[bin(1, 1)]は、大きな光子数が必要ないため、忠実度の高い符号化やゲート操作が期待できる^[1,2]。本発表では、自己 Kerr 項と 2 次の強分散シフトの影響を調べ bin(1, 1)の符号化やゲート操作の忠実度の向上をめざす。

我々のデバイスは長寿命($T_1 = 300 \mu\text{s}$)の 3 次元メモリ共振器(自己 Kerr 項 $K' = -2.4 \text{ kHz}$)と $T_1 = 15 \mu\text{s}$, $T_2 = 4 \mu\text{s}$ の補助量子ビットで構成されており、強分散シフト $\chi = -1.37 \text{ MHz}$ (2 次項 $\chi' = -8.63 \text{ kHz}$) で結合している。その 2 つにパルスを印加することで量子状態を制御する。Boulder Opal^[4]を用いて自己 Kerr 項と 2 次の強分散シフトを考慮した/していない場合で数値最適化パルスを生成した。生成したパルスを用いて、実際のデバイスで bin(1, 1)の論理量子ビットの符号化を行い、Wigner トモグラフィ(左図)から密度演算子を再構成して忠実度を計算した。その結果、自己 Kerr 項と 2 次の強分散シフトを考慮した/しないときで平均忠実度がそれぞれ 0.855 と 0.847 と計算でき、2 次項を考慮することで忠実度の向上に成功した。本デバイスは典型的なデバイス($\chi \sim -2 \text{ MHz}$, $\chi' = -20 \text{ kHz}$)^[4]と比較して、2 次項の値が小さいため忠実度の差があまりないが、典型的なデバイスに適用したときには忠実度がより大きく向上すると考えられる。次に自己 Kerr 項と 2 次の強分散シフトを考慮せずに生成した数値最適化パルスを用いてゲート操作を実証した(右図)。発表ではゲート操作についても 2 次項の影響やさらに高次の項の影響について議論する。

樋田啓氏の助言に感謝する。本研究は JST Moonshot R&D(JPMJMS2067)の支援を受けて行われた。

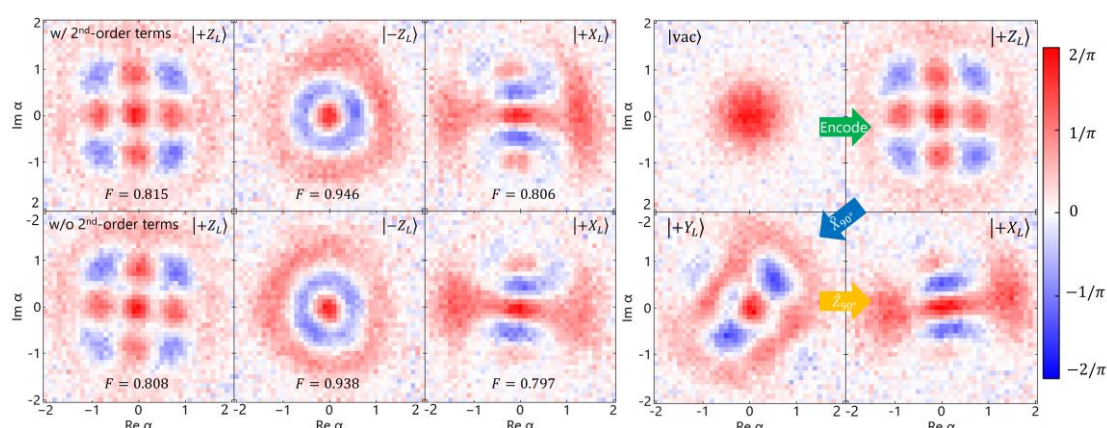


Figure: Experimental results of Wigner functions (Left) Logical states of binominal (1, 1) code encoded by a numerical optimized pulse with and without 2nd-order terms. (Right) Change of the logical state by encoding, the X-gate, and Z-gate pulses.

- [1] M. H. Michael *et al.*, Phys. Rev. X **6**, 031006 (2016).
- [2] A. Joshi, K. Noh, and Yvonne Y Gao, Quantum Sci. Technol. **6**, 033001 (2021).
- [3] H. Ball *et al.*, Quantum Sci. Technol. **6**, 044011 (2021).
- [4] R. W. Heeres *et al.*, Nat. Commun. **8**, 94 (2017).

共通制御線を用いた周波数固定型トランズモンの同時ゲート解析

Analysis of simultaneous gate operations

in fixed-frequency transmon qubits via shared wiring

キューエル¹, 阪大基礎工², 阪大 QIQB³ °伴 昂一郎¹, 牧野 かれん¹, 町野 明德^{2,3},
塩見 英久³, 隅田 土詞¹, Nilton Filho², 松田 亮², 宮永 崇史³, 小川 和久³,
根来 誠^{1,3}, 大平 龍太郎¹,

QuEL¹, Grad. Sch. Eng. Sci., The Univ. of Osaka², QIQB, The Univ. of Osaka³,

°Koichiro Ban¹, Karen Makino¹, Akinori Machino^{2,3}, Hidehisa Shiomi³, Toshi Sumida¹,

Nilton Filho², Ryo Matsuda², Takafumi Miyanaga³, Kazuhisa Ogawa³, Makoto Negoro^{1,3},

Ryutaro Ohira¹

E-mail: k.s.ban0427@gmail.com

超伝導量子ビットを用いた従来のシステムでは、1 量子ビットに対して 1 本のマイクロ波あるいはフラックスケーブルが必要となり、量子ビット数の増大に伴って配線の複雑さも増加する[1]。これにより冷凍機内の限られたスペースや冷却能力といった問題が顕在化するため、実用的な量子コンピュータを実現するためには、制御系の抜本的な簡素化と高効率化が求められている。

このような背景のもと、複数の量子ビットに対して単一の制御線を共有する周波数多重制御が有望な解決策として注目されている[2][3]。複数の周波数成分を含むマルチトーンマイクロ波パルスで 1 本の制御ラインを通して送ることで、複数の量子ビットを同時に操作でき、配線数を 1 桁以上削減することが可能となる。一方で、複数トーンの同時送信により古典的なクロストークが生じ、ゲート忠実度が低下するという課題も存在する[2]。

本研究チームでは、この周波数固定型トランズモンを用い、共有された制御リソースを介した量子ゲート操作の評価に焦点を当てる。本発表では、単一の制御線を通じて複数の量子ビットを駆動する状況を想定し、その際のゲート制御の忠実度や動作特性について報告する。

[1] S. Kriinner, et al. “Engineering Cryogenic setups for 100-qubit scale superconducting circuit systems,” EPJ Quantum Technology **6**(1): 2 (2019).

[2] J. P. G. van Dijk, et al. “Impact of classical control electronics on qubit fidelity,” Phys. Rev. Applied **12**(4): 044054 (2019).

[3] W. I. L. Lawrie, et al. “Simultaneous single-qubit driving of semiconductor spin qubits at the fault-tolerant threshold,” Nature Communications, **14**(1): 3617 (2023)

謝辞 本研究は、JST 共創の場形成支援プログラム（課題番号 JPMJPF2014）、JST ムーンショット型研究開発事業（課題番号 JPMJMS2067）、および文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム（課題番号 JPMXS0118068682、JPMXS0120319794）の支援を受けている。また、本研究で使用した超伝導デバイスの作製にご協力いただいた理化学研究所量子コンピュータ研究センターにも謝辞を呈する。

周波数固定型トランズモン量子ビットにおける
多ラウンド繰り返し符号の実装と論理エラー率の評価

Implementation of Multi-Round Repetition Code and Evaluation of Logical Error Rates
in Fixed-frequency Transmon Qubits

キューエル¹, 大阪大学², イーツリーズ・ジャパン³, 理研⁴, 東京大学⁵

○隅田 土詞¹, ニュートン・フィーリョ², 小川和久², 町野明德², 塩見英久^{1,2}, 宮永崇史², 伴昂
一郎², 松田亮², 大平龍太郎¹, 森榮真一^{1,2}, 小池恵介³, 三好健文^{1,2,3}, 栗本佳典¹, 杉田祐也¹,
伊藤陽介¹, 鈴木泰成⁴, ピーター・スプリング⁴, 田淵豊⁴, 玉手修平⁴, 中村泰信^{4,5}, 根来誠^{1,2}
QuEL, Inc.¹, The University of Osaka², e-trees.Japan, Inc.³, RIKEN⁴, The University of Tokyo⁵

○Toshi Sumida¹, Nilton F. G. Filho², Kazuhisa Ogawa², Akinori Machino², Hidehisa Sihomi^{1,2}, Takefumi
Miyanaga², Koichiro Ban², Ryo Matsuda², Ryutaro Ohira¹, Shinichi Morisaka^{1,2}, Keisuke Koike³,
Takefumi Miyoshi^{1,2,3}, Yoshinori Kurimoto¹, Yuuya Sugita¹, Yosuke Ito¹, Yasunari Suzuki⁴, Peter A.
Spring⁴, Shiyu Wang⁴, Yutaka Tabuchi⁴, Shuhei Tamate⁴, Yasunobu Nakamura^{4,5}, Makoto Negoro^{1,2}

E-mail: sumida@quel-inc.com

固定周波数のトランズモン量子ビットは、制御配線が単純になるという利点があり、大規模な量子コンピュータシステムの有望な候補である。このシステムで CNOT ゲートを実現するには、量子ビットへのマイクロ波のみを用いた交差共鳴照射が必要となるため、制御量子ビット周辺のクロストークが避けられない。これらの課題に対しては、周辺の量子ビットへの影響を考慮したスケジューリングやダイナミカルデカップリングの挿入といったパルスレベルの最適化技術が有効である。

本研究では、これらの手法を採用した上で、符号距離 3 のビット反転繰り返し符号について多ラウンドの測定を実装し、ラウンドごとの論理エラー率と量子ビットの平均縦緩和時間との比較を行なった。本発表ではこれらの結果と将来の展望について報告する。

謝辞: 本研究は、JST ムーンショット型研究開発事業 (課題番号 JPMJMS226A, JPMJMS2067)、JST 共創の場形成支援プログラム (課題番号 JPMJPF2014)、および文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム (課題番号 JPMXS0118068682) の支援を受けている。

Qiskit エコシステムを活用した量子コンピュータ制御システム

A quantum computer control system integrated with the Qiskit ecosystem

富士通¹, 理研 RQC-富士通連携センター²
○徳永 新吾^{1,2}
Fujitsu Limited, Japan¹, RIKEN RQC-FUJITSU Collaboration Center, Japan²
○Shingo Tokunaga^{1,2}
E-mail: tokunaga.shingo@fujitsu.com

近年、超伝導量子コンピュータの制御エレクトロニクス分野は、多数のベンダーが参入し、開発競争が激化している。異なる制御装置を使用する場合、同一の量子回路アルゴリズムを実行するためにも個別のソフトウェア開発が必要となり、開発コストの増大を招く。この課題を解決するため、制御装置の種類に依存しない共通的な制御・較正ソフトウェア基盤の確立が求められている。

本開発では、将来的な量子実機および量子制御装置の多様化を見据え、量子コンピュータのプログラミング用オープンソースソフトウェア開発キット (SDK) である Qiskit を基盤として、較正および制御ソフトウェアの統一化を試みた。Qiskit は、その豊富なドキュメント、活発なコミュニティサポート、そして実際の制御ハードウェア操作のためのフレームワークを有しており、広範な研究者コミュニティに支持されていることから、本開発におけるソフトウェア基盤として適切であると判断した。量子ビットの基礎測定およびゲート較正においては、Qiskit のサブセットとして提供されている Qiskit Experiments [1] を採用した。Qiskit Experiments は、ゲートフィデリティをはじめとする量子コンピュータの特性評価や較正を目的とした実験機能を提供し、Qiskit との連携が容易であるという利点がある。

当該量子コンピュータの量子ビット制御システムには Keysight Technologies の Quantum Control System (QCS) を採用した。しかし、Qiskit と接続して動作させた実績はまだなかった。また、Qiskit Experiments には豊富な実験プログラムが含まれているものの、読み出しの較正や処理速度、2 量子ゲートの較正精度には課題があった。Qiskit Experiments は、量子制御ハードウェアに依存しない汎用的なソースコードを生成可能である。しかしながら、Qubit Spectroscopy のように周波数のみを掃引する実験や、SRB のように多数の量子回路を必要とする実験においては、全ての量子回路を生成し、制御装置に転送する方式では、ソフトおよびハードの処理速度が律速となった。

Qiskit と Keysight QCS との連携にあたり、“backend”とよばれる Qiskit のハードウェア抽象化レイヤを活用した。これは、IBM 社のクラウドサービスでの利用のみならず、一般的なマイクロ波制御装置での利用も想定したフレームワークである。この backend の仕様に準拠する形で QCS とのインタフェースを開発することにより、Qiskit エコシステムとのシームレスな接続を実現した。また、Qiskit Experiments には、Resonator Spectroscopy のようにパルスレベルでの制御を必要とする実験と、Standard Randomized Benchmarking (SRB) のように Qiskit で生成されるプリミティブゲート (例: X, SX, RZ ゲート) の性能評価を目的とした実験が含まれる。本開発では、パルススペースの実験には Qiskit におけるパルス生成とタイミング制御である Qiskit Pulse を活用し、ガウシアンパルス等の波形生成と精密なパルス出力タイミングの構築を行った。一方、ゲートレベルの一部実験においては、高速化と実装の簡便性を考慮し、Keysight QCS のゲート生成機能を適用した。FIG. 1 に開発した新たな実験プログラムのソフトウェアスタックを示す。

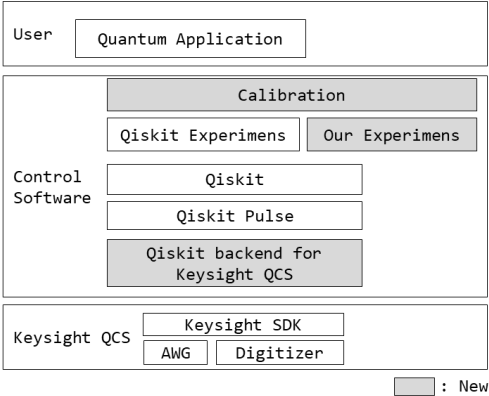


FIG. 1 Control System stack

クとなっている。並列処理の見直しやアルゴリズムの効率化による処理速度向上と、測定シーケンスの複雑さに応じて、一部の処理を QCS にオフロードし、ソフトウェアによる処理からハードウェアの処理に移行することを検討する。

Reference
[1] Qiskit Experiments, v0.7.0, <https://qiskit-community.github.io/qiskit-experiments/> (accessed May 28, 2025)

時間多重化電圧制御による多電極イオントラップ駆動システムの開発とその評価**Development and Evaluation of a Time-Multiplexed Voltage Control System****for Driving Multi-Electrode Ion Trap**キューエル¹, 阪大 QIQB², 阪大院基礎工³, 東大⁴,理研 RQC⁵, InaRIS⁶, NICT⁷, イーツリーズ・ジャパン⁸○大平龍太郎¹, 森榮真一^{1,2}, 宮本真成³, 中村一平⁴, 野口篤史^{4,5,6}, 田中歌子^{2,3,7}, 三好健文^{1,2,8}QuEL, Inc.¹, Univ. Osaka, QIQB², Grad. Sch. Eng. Sci., Univ. Osaka³, Univ. Tokyo⁴,RIKEN RQC⁵, InaRIS⁶, NICT⁷, e-trees.Japan, Inc.⁸○Ryutaro Ohira¹, Shinichi Morisaka^{1,2}, Masanari Miyamoto³, Ippei Nakamura⁴,Atsushi Noguchi^{4,5,6}, Utako Tanaka^{2,3,7}, Takefumi Miyoshi^{1,2,8}

E-mail: ohira@quel-inc.com

Quantum Charge-Coupled Device アーキテクチャは、大規模な冷却イオン量子計算機の実現に向けた有望な構成方式として注目されている[1,2]。この方式では、多数のトラップ電極に動的な電圧を印加することで、量子ビットを任意の演算領域に移動・配置し、各種の操作を実行する。一方で、量子ビット数の増加に伴い、制御対象となる電極数も増加し、制御システムの規模が拡大する点が課題とされている[3]。

この課題に対して我々は、少数の制御デバイスで多数の電極を効率的に制御可能とする手法として、時間多重化による電圧制御方式を提案した[4]。さらに、この提案方式に基づき、2 台の D/A コンバータで 10 個のトラップ電極を駆動する制御システムを開発した。本発表では、開発した制御システムの設計および性能評価の結果を報告するとともに、実際のイオントラップ実験への応用に向けた初期的な試みについても紹介する。

REFERENCES

- [1]: D. J. Wineland, C. Monroe, W. M. Itano, D. Leibfried, B. E. King, and D. M. Meekhof, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. **103**, 259 (1998).
- [2]: D. Kielpinski, C. Monroe, and D. J. Wineland, Nature **417**, 709 (2002).
- [3]: M. Malinowski, D. Allcock, and C. Ballance, PRX Quantum **4**, 040313 (2023).
- [4]: R. Ohira, S. Morisaka, I. Nakamura, A. Noguchi, and T. Miyoshi, arXiv:2504.01815 (2025).

ACKNOWLEDGMENT

This work was supported by MEXT Q-LEAP (JPMXS0120319794), JST (JPMJPF2014), and JST Moonshot R&D (JPMJMS226A, JPMJMS2063).

NISQ デバイスへの時間遅延量子極限学習マシンの実装と 時系列予測性能の検討

Implementation of Time-Delayed Quantum Extreme Learning Machine on NISQ Devices and Investigation of Time-Series Predictions

東京農工大学¹、東京大学²

○川名部美桜¹、金刺拓海¹、津嘉山大輔¹、白樫淳一¹、渋谷哲朗²、今井浩²

Tokyo University of Agriculture & Technology¹, The University of Tokyo²

○M. Kawanabe¹, T. Kanezashi¹, D. Tsukayama¹, J. Shirakashi¹, T. Shibuya², and H. Imai²

E-mail: s256771y@st.go.tuat.ac.jp

近年、量子計算機の機械学習分野への応用が期待されており、その一つとして時系列情報処理手法である量子リザーバーコンピューティング (Quantum Reservoir Computing: QRC) [1]が注目されている。QRC は量子系の重ね合わせや量子もつれといった性質を利用し、古典計算機を上回る高速かつ高精度な時系列情報処理を実現する手法として期待されている[2]。しかし、QRC は時系列データ長に比例して量子回路の層数が増大するため、ノイズやコヒーレンス時間の制約を持つ Noisy Intermediate-Scale Quantum (NISQ)[3]デバイス上での大規模な量子回路の実行は困難である[4]。この課題に対し前回の報告では、時間遅延入力により時系列データ長によらず一定の層数で実行可能な Time-Delayed Quantum Extreme Learning Machine (TD-QELM)を提案した[5]。シミュレーションにおいて TD-QELM と QRC を実装し、10th-Nonlinear Auto-Regressive Moving Average (NARMA10)を予測した。その際の正規化平均二乗誤差 (Normalized Mean Squared Error: NMSE)を算出したところ、QRC が 4.51×10^{-3} 、TD-QELM が 3.05×10^{-3} となり、シミュレーションにおいて提案手法の優位性が示唆された。今回は、提案手法の NISQ デバイス上での実装可能性を検討した。

本実験では、IBM 社が提供する NISQ デバイス「ibm_kawasaki」上に 6 量子ビットの量子システムからなる TD-QELM 及び QRC を実装し、NARMA10 の予測を行った。入力データを 500 Timestep とし、Washout, Train data, Test data としてそれぞれ 50, 350, 100 Timestep に分割した。図 1 は予測部分である 400~500 Timestep における出力波形を示す。図 1 から、TD-QELM による出力波形が QRC による出力波形よりも忠実に目標波形の変動を追従していることが視覚的に確認された。また NMSE の値は QRC が 3.95×10^{-2} 、TD-QELM が 1.86×10^{-3} となった。以上の結果から、提案手法である TD-QELM がシミュレーションのみならず、NISQ デバイスにおいても実装が容易かつ高精度な時系列予測が可能であることが示唆された。

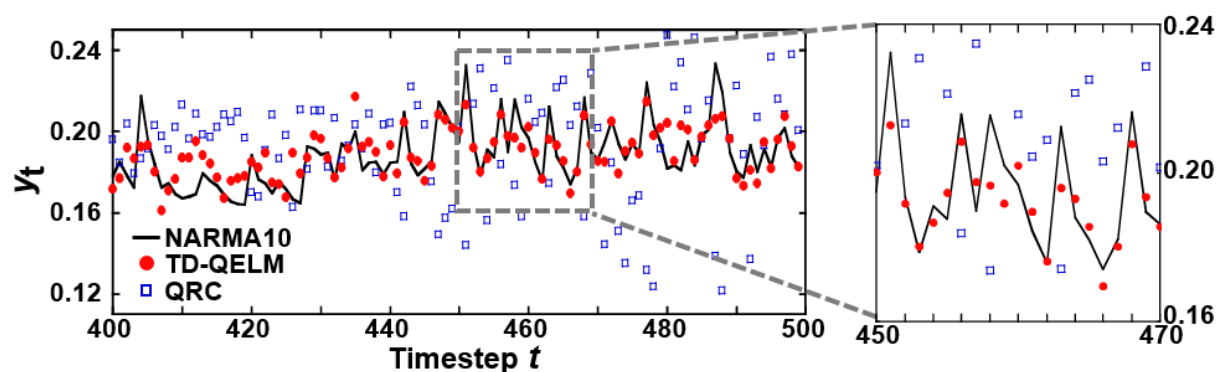


Fig. 1 Predicted and target outputs for the NARMA10 task.

References

- [1] K. Fujii and K. Nakajima, Phys. Rev. Appl. 8 (2017) 024030.
- [2] J. Biamonte, P. Wittek, N. Pancotti, P. Rebentrost, N. Wiebe, and S. Lloyd, Nature 549 (2017) 195.
- [3] J. Preskill, Quantum 2 (2018) 79.
- [4] Y. Suzuki, Q. Gao, K. C. Pradel, K. Yasuoka, and N. Yamamoto, Sci. Rep. 12 (2022) 1.
- [5] 川名部、津嘉山、金刺、白樫、渋谷、今井: 第 71 回応用物理学会春季学術講演会 15p-K406-4 (2025).

All Valid States HOBO Encoding for Travelling Salesperson Problem in Quantum Computing

Tokyo University of Agriculture & Technology¹, The University of Tokyo²

◦J. Wang¹, D. Tsukayama¹, T. Kanezashi¹, J. Shirakashi¹, T. Shibuya² and H. Imai²

E-mail: s241098s@st.go.tuat.ac.jp

Researchers are committed to applying quantum computing to practical problems. In this context, we turn our attention to the Traveling Salesperson Problem (TSP), a classical combinatorial optimization problem that closely resembles real-world scenarios. When addressing combinatorial optimization problems in quantum computing, the Quadratic Unconstrained Binary Optimization (QUBO) model [1] is often the first choice. However, due to the limited number of available qubits, the more efficient Higher-Order Binary Optimization (HOBO) model has been proposed, which reduces the required qubits from $O(N^2)$ to $O(N \log N)$ by employing a more compact binary encoding [2]. Nevertheless, the Hamiltonian constructed using this method often includes invalid states that cannot be utilized. To address this issue, we propose a cyclic mapping approach that effectively repurposes all invalid states.

Here, we focus on introducing the newly proposed method: All Valid States HOBO (AVS-HOBO). It is well known that a binary sequence of fixed length can represent up to 2^n distinct values. As illustrated in Figure 1, we utilize different states to represent city nodes. Assuming we use 5 states to denote 5 cities, at least $\lceil \log_2 5 \rceil = 3$ binary bits are required. Consequently, among the 8 possible binary states, the last three are considered invalid. To address this, we propose a transformation that systematically remaps each invalid state to a valid one in sequential order. Specifically, the sixth state is mapped back to the zeroth state, and so on, ensuring that all states in the resulting set are valid.

In the experiments, we employ the well-known Variational Quantum Eigensolver (VQE) algorithm [3]. For TSP setup, we follow standard practices and randomly select points from a 100×100 grid to generate their corresponding distance matrix[4]. To highlight the role of quantum entanglement in quantum computing, we adopt the Efficient SU2 ansatz [5], which is known to exhibit this property. By analyzing feasible solutions within the Hilbert space [6], we observe that AVS-HOBO achieves a higher proportion of feasible solutions compared to the original HOBO. Furthermore, the final converged results show that, in the original HOBO, the proportion of feasible solutions increases from 0.2 to 0.6 as the number of invalid states decreases. Remarkably, in AVS-HOBO, this proportion consistently reaches 1, demonstrating a significant improvement. Therefore, the proposed AVS-HOBO not only optimizes the additional constraints introduced by binary encoding, but also significantly increases the probability of generating feasible solutions. This improvement holds promise for solving larger-scale instances of the TSP.

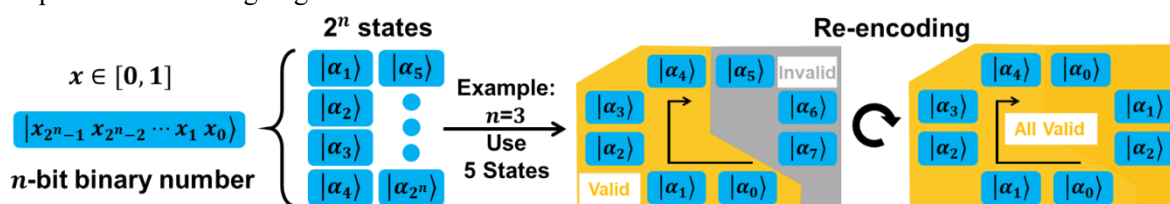


Fig. 1 Cyclic mapping in AVS-HOBO. An n -bit binary number can represent 2^n distinct states. Suppose we require 5 states; considering the minimal resource usage, this would result in 3 invalid states. Through re-encoding, all states are transformed into valid and usable ones.

References

- [1] A. Lucas, Front. Phys. 2 (2014) 5.
- [2] A. Glos, A. Krawiec, and Z. Zimborás, Npj Quantum Inf. 8 (2022) 39.
- [3] A. Peruzzo, et al., Nat. Commun. 5 (2014) 4213.
- [4] M. Schnaus, et al., arXiv:2404.05448 (2024).
- [5] G. Aleksandrowicz, et al., Qiskit: Open-source Framework for Quantum Computing. <https://doi.org/10.5281/zenodo.2562111> (2019).
- [6] Y. Chai, L. Funcke, et al., Phys. Rev. Applied 20 (2023) 064025.

Utility-Scale に向けた Qubit-Reuse によるエラー軽減： Au 原子接合作製における実験パラメータ最適化 Towards Utility-Scale Error Mitigation via Qubit Reuse: Optimizing Experimental Parameters for Fabrication of Au Atomic Junction

東京農工大学¹、東京大学²

○金刺拓海¹、津嘉山大輔¹、汪俊誠¹、川名部美桜¹、白樫淳一¹、渋谷哲朗²、今井浩²

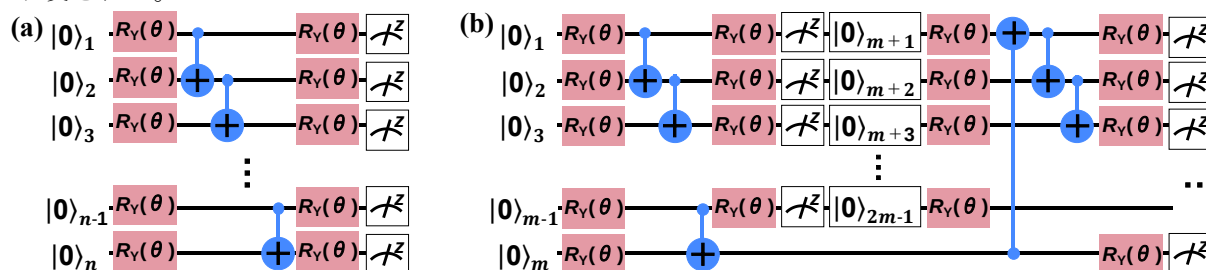
Tokyo University of Agriculture & Technology¹, The University of Tokyo²

○T. Kanezashi¹, D. Tsukayama¹, J. Wang¹, M. Kawanabe¹, J. Shirakashi¹, T. Shibuya², and H. Imai²

E-mail: s249961t@st.go.tuat.ac.jp

現在、ゲート型量子計算機は誤り訂正機能を持たない Noisy Intermediate-Scale Quantum (NISQ) デバイス[1]と呼ばれている。この NISQ を活用すべく、NISQ による量子状態の生成と古典計算機による期待値計算及び変分パラメータ最適化を組み合わせた変分量子固有値法 (Variational Quantum Eigensolver: VQE) [2]が研究されている。一方これまで我々は、原子接合の作製手法である Feedback-Controlled Electromigration (FCE)法における実験パラメータ探索を組合せ最適化問題として定式化し、イジングマシン[3]および量子アニーラ[4]、ゲート型量子計算機[5, 6]を用いて印加電圧のフィードバック量 V_{FB} (%)に関するスケジュールの最適化を行ってきた。前回の報告では、ゲート型量子計算機を用いた FCE 法の実験パラメータ探索を効率的に行うために、制約を満たした解のみを生成する One-Hot Encoding Ansatz を導入した[6]。今回は、使用する物理量子ビット数を削減可能な Qubit-Reuse[7]を導入し、エラー率の低い量子ビットを選択することで、NISQ デバイス上での FCE 法における実験パラメータ最適化の求解精度向上を検討した。

図 1 (a)に n 量子ビットの RealAmplitudes Ansatz、図 1 (b)に Qubit-Reuse により m 量子ビットに削減した RealAmplitudes Ansatz を示す。Qubit-Reuse は中間測定とリセットを活用し、リセット後の量子ビットに別の量子ゲート操作を再配置することで、使用する物理量子ビット数の削減を可能にする。これより、量子ビット数の削減により低エラー率の量子ビットを選択することができるため、求解精度の向上が期待される。本実験では、 V_{FB} を 9 段階に設定し、 V_{FB} のスケジュール周期 $N = 14$ ($9 \times 14 = 126$ 論理量子ビット)の条件下で IBM 社の 127 量子ビットを有する NISQ デバイス「ibm_kawasaki」によって求解を行った。その結果、126 物理量子ビット($n = 126$)を直接使用した場合の残留エネルギーは 8.5×10^3 に対して、Qubit-Reuse により 20 物理量子ビット($m = 20$)に削減し、エラー率の低い量子ビットを選択した場合の残留エネルギーは 6.4×10^3 に減少した。以上より、Qubit-Reuse を用いて使用する物理量子ビット数を削減し、さらに高品質の量子ビットを選択することで、NISQ デバイス上での FCE 法の実験パラメータ最適化における演算精度向上が示唆された。



Figs. 1 (a) N -qubit RealAmplitudes Ansatz and (b) RealAmplitudes Ansatz reduced to m qubits via Qubit-Reuse.

References

- [1] J. Preskill, Quantum 2 (2018) 79.
- [2] A. Peruzzo, et al., Nat. Commun. 5 (2014) 4213.
- [3] S. Sakai, Y. Hirata, M. Ito, and J. Shirakashi, Sci. Rep. 9 (2019) 16211.
- [4] Y. Yoneda, M. Shimada, A. Yoshida, and J. Shirakashi, Appl. Phys. Express 16 (2023) 057001.
- [5] T. Kanezashi, D. Tsukayama, J. Shirakashi, T. Shibuya and H. Imai, Appl. Phys. Express 18 (2025) 047001.
- [6] 金刺、津嘉山、汪、白樫、渋谷、今井: 第 72 回応用物理学会春季学術講演会 15p-K406-6 (2025).
- [7] M. DeCross, E. Chertkov, M. Kohagen, and M. Foss-Feig, Phys. Rev. X 13 (2023) 041057.

伝導予測シミュレーションにおける量子計算の応用

Application of quantum computing in transport prediction simulations

神戸大工¹

○(M1)山内 一馬¹, 植本 光治¹, 小野 倫也¹

Kobe Univ.¹

°Kazuma Yamauchi¹, Mitsuharu Uemoto¹, Tomoya Ono¹

E-mail: 251t265t@stu.kobe-u.ac.jp

量子コンピューティングは、特定の問題においてノイマン型の古典コンピュータを大きく上回る計算能力を示すことから、基礎研究、産業応用の両面から高い関心を集めている。しかしながら、量子コンピュータの実装には、量子ビットのデコヒーレンスやゲートエラーなど、量子ハードウェアの不完全性に起因する多くの課題が存在する。その中で、古典コンピュータによる量子計算のシミュレーションは、理論検証や応用展開において重要な役割を果たしている。

本研究では、ナノ構造による電子伝導解析に量子計算を応用させるために、Fortran 言語を用いて独自の量子計算シミュレータを実装した。具体的には、量子アルゴリズムの一つである HHL (Harrow-Hassidim-Lloyd) アルゴリズム(図 1)を用いて、ポテンシャル障壁による電子の透過・反射率計算を試みている。もっとも簡単なデモンストレーションとして、一次元階段型ポテンシャル障壁(図 2)におけるトンネル効果(図 3)を計算した。

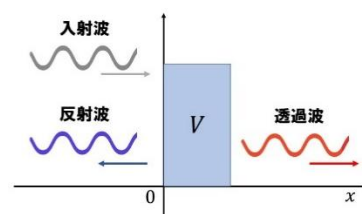
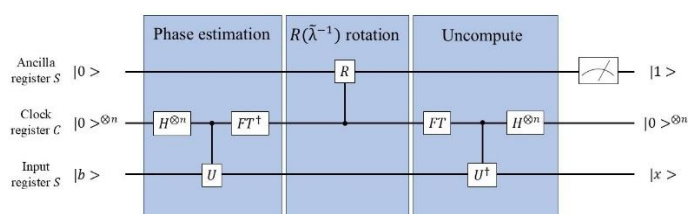


図 1 : HHL アルゴリズムの量子回路図

図 2 : 一次元階段型ポテンシャルの概略図

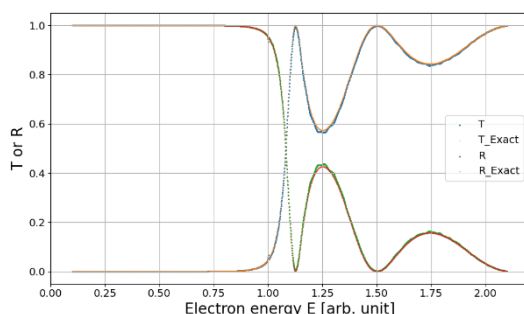


図 3 : 一次元階段型ポテンシャル下で計算されたトンネル効果

さらに、本発表では、量子コンピュータ実機での計算結果と、量子エラーを考慮した古典シミュレーションとの比較による誤差の影響の定量的な評価について触れる予定であり、量子誤差に対して比較的耐性を持つとされる VQLS (Variational Quantum Linear Solver) 法 [1] の有効性の検証、そしてより複雑な構造を持つ物理系への応用可能性について議論する予定である。

[1] Carlos Bravo-Prieto *et al.* “Variational Quantum Linear Solver”, Quantum 7, 1188 (2023)

KS 研究会セッション | 一般セッション(口頭講演) : KS4 量子エネルギー変換研究会

[7a-N303-1~12] KS4 量子エネルギー変換研究会

[7a-N303-1]

量子エネルギー変換現象の研究動向

○河口 範明¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7a-N303-2]

複合アニオン系Eu:BaF₂透光性セラミックスのシンチレータ応用と性能評価○尾竹 祥太¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7a-N303-3]

Eu添加CaCl₂透明セラミックスのシンチレーション特性○生方 丈士¹、尾竹 祥太¹、木村 大海²、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.産総研)

[7a-N303-4]

中性子検出用Yb添加LiBr単結晶の放射線誘起蛍光特性

○宮崎 慧一郎¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7a-N303-5]

Tm添加SrCl₂単結晶の蛍光およびシンチレーション特性○中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7a-N303-6]

垂直ブリッジマン法により作製したEu添加NaBr単結晶のシンチレーション特性評価

○市場 賢政¹、宮崎 慧一郎¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7a-N303-7]

有機無機層状ペロブスカイト型化合物PEA₂Pb_{1-x}Ca_xCl₄結晶のシンチレーション特性○若林 樹¹、山林 恵士¹、木村 大海²、中内 大介¹、河野 直樹³、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.産総研、3.秋田大理工)

[7a-N303-8]

18-クラウン6-エーテル-アルカリ金属錯体包接型ヨウ化銅(Ⅰ)単結晶の合成およびシンチレーション特性評価

○山林 恵士¹、岡崎 魁¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7a-N303-9]

溶液プロセスを用いたCu₄I₄(CH₃SCH₃)₃単結晶の作製とシンチレーション特性調査○権田 樹¹、山林 恵士¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7a-N303-10]

Er添加GeS₂-Ga₂S₃ガラスの放射線誘起近赤外蛍光特性○山田 慧史¹、西川 晃弘¹、宮島 溪太¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7a-N303-11]

Eu添加Lu₂O₃-Al₂O₃-SiO₂ガラスのシンチレーション特性

○西川 晃弘¹、白鳥 大毅²、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.東京理科大)

[7a-N303-12]

Sm添加BaO-B₂O₃ガラスのフォトルミネッセンスおよびラジオルミネッセンス特性

○宮島 湊太¹、西川 晃弘¹、岡崎 魁¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

量子エネルギー変換現象の研究動向

Research Trends of Quantum Energy Conversion Phenomena

奈良先端大, [○]河口 範明, 加藤 匠, 中内 大介, 柳田 健之

NAIST, [○]Noriaki Kawaguchi, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Takayuki Yanagida

E-mail: n-kawaguchi@ms.naist.jp

量子とは分割できない最小単位を意味し、例えば光を粒子として扱った場合の光子がそれに相当し、そのため光子、電子、中性子などに指向性を持たせたものは量子ビームと呼称される。高エネルギーの光子や素粒子を絶縁体や半導体に照射した場合、そのエネルギーにより物質中において多数の励起電子・正孔が生成する。その後の過程は物質によって異なるが、多数の低エネルギー光子やフォノンが生成するなどして、物質が吸収した量子のエネルギーが異なる形態に変換されることになる。このエネルギー変換（量子エネルギー変換）の素過程の理解を深めることは産業応用上も重要である。当現象を利用した単純な応用としては量子ビーム計測が挙げられる。量子ビームのエネルギーをシンチレーターと呼ばれる材料で多数の低エネルギー光子に変換し（シンチレーション）、光検出器と組み合わせることで計測することが可能で、その技術の進展において現象理解が必要である。しかし、シンチレーションは量子エネルギー変換現象の一部でしかなく、吸収されたエネルギーはそれ以外の形でも消費される。図 1 に示す模式図の通り、①のシンチレーションに加え、励起電子・正孔の捕獲中心への捕獲や物質中のイオンの価数変化などを含む②の物質変化、③のフォノンの生成にも使用され得るが、例えばエネルギー変換による放射性廃棄物による発電 [1] を実現するためには、所望の形態へのエネルギー変換効率の大幅向上が必要だと考えられる。

応用物理学会量子エネルギー変換研究会ではその一助としてこれまで各論的に検討されてきたこれら①～③の現象の統合的理解のため、各現象に関わる研究者が一堂に会する研究会を開催してきた。本講演では量子エネルギー変換研究会でこれまでに行われた研究発表について紹介し、それぞれが量子エネルギー変換現象におけるどの過程の研究に相当するか分類し、量子エネルギー変換現象の理解の深化につながる研究の動向を紹介する。

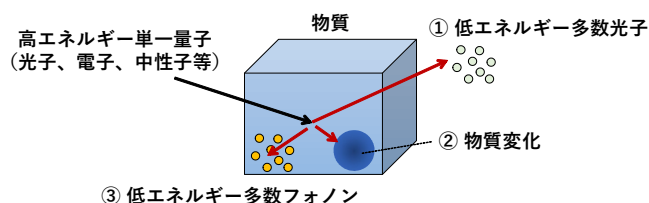


Fig. 1. Schematic diagram of quantum energy conversion phenomenon in matter.

参考文献 [1] T. Yanagida, K. Okazaki, K. Miyajima, T. Kato, D. Nakauchi, and N. Kawaguchi, “Basic Research on Scintillator-based Nuclear Battery”, Sens. Mater. 37, 453–461 (2025).

複合アニオン系 Eu:BaFI 透光性セラミックスの シンチレータ応用と性能評価

Scintillator application and performance evaluation of composite anion-based Eu:BaFI translucent ceramics

奈良先端大 °尾竹 祥太, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST °Shota Otake, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi, and Takayuki Yanagida

E-mail: otake.shota.os4@ms.naist.jp

シンチレータは放射線計測に用いられる即時発光型の蛍光体であり、これまでにハロゲン化物、酸化物、硫化物など様々な材料が用途に応じて応用されてきた。中でもハロゲン化物材料は発光量に優れ、Tl:NaI、Tl:CsI、Eu:SrI₂、Ce:LaBr₃などがX、 γ 線検出用のシンチレータとして広く利用されている。

我々はハロゲン化物材料のさらなる性能向上を目的として、Ba系複合アニオンシンチレータに着目した。Ba系複合アニオンは上記の実用化シンチレータに匹敵する高い放射線相互作用確率を有し、これまでに単結晶シンチレータの形態で盛んに研究されてきた [1, 2]。しかし、アニオン成分の揮発による偏析や欠陥生成の影響で、大型単結晶の作製が困難であり、シンチレーション性能の劣化が課題となっている。そこで本研究では、Ba系複合アニオン材料を透光性セラミックス形態で作製することで、試料の大型化と高性能化を図った。透光性セラミックスは融点以下の固相反応で作製できるため、アニオンの揮発を抑制し、良質な試料の大型化が期待される。また透光性セラミックスは、同組成の単結晶と比べシンチレーション発光量の向上が報告されており、性能面からも有望である [3]。本研究では、まずEu:BaFI透光性セラミックスを放電プラズマ焼結法により作製し、その発光特性を評価した。

Fig. 1 に作製した試料の Photoluminescence (PL) 励起蛍光スペクトルを示しており、縦軸が励起波長、横軸が発光波長にそれぞれ対応している。400 nm 付近に単一の発光スペクトルが観測され、そのスペクトル形状は典型的な Eu²⁺由来の発光と一致した [1, 2]。Fig. 2 には試料の PL 蛍光寿命の測定結果を示す。Fig. 1 の結果をもとに、励起波長を 340 nm、蛍光波長を 400 nm にそれぞれ設定し測定を行ったところ、試料の発光は単一成分の指数関数で近似された。得られた蛍光寿命の時定数 τ は約 460 ns であり、Eu²⁺由来の発光として妥当な値であった [1, 2]。講演当日はX、 γ 線照射下における放射線応答特性の実験結果についても報告し、作製した透光性セラミックス試料のシンチレータ応用の可能性について詳しく議論する。

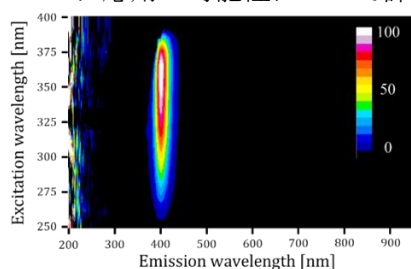


Fig. 1. PL excitation/emission map.

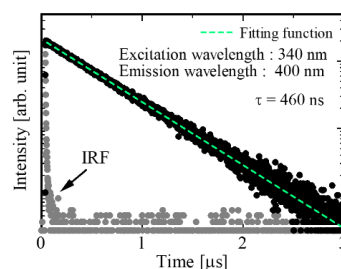


Fig. 2. PL decay curve.

参考文献: [1] R. Shendrik, *et al.*, Journal of Luminescence, **192**, 653 (2017). [2] E.D. Bourret-Courchesne, *et al.*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, **613**, 95 (2010). [3] T. Yanagida, *et al.*, Optical Materials, **35**, 2480 (2013).

Eu 添加 CaCl₂ 透明セラミックスのシンチレーション特性

Scintillation properties of Eu-doped CaCl₂ transparent ceramics

奈良先端大¹, 産総研²・生方 丈士¹, 尾竹 祥太¹, 木村 大海², 加藤 匠¹, 中内 大介¹,
河口 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, AIST²・Takeshi Ubukata¹, Shota Otake¹, Hiromi Kimura², Takumi Kato¹,

Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: ubukata.takeshi.uv0@naist.ac.jp

シンチレータは X 線・ γ 線といった高エネルギーの電離放射線を低エネルギーの光子に即座に変換する蛍光体の一種であり、放射線検出の用途で医療・資源探査・宇宙物理学等の幅広い分野に利用されている。特に Eu 添加 SrI₂ や Ce 添加 LaBr₃ 等の希土類添加ハロゲン化物シンチレータは、高い発光量を示す傾向にあることが知られている。材料形態に関しては高い透光性を持ち、シンチレーション光を効率的に読み出し可能な単結晶が用いられることが多い。近年では焼結技術の向上に伴い、高い透光性を有するセラミックスのシンチレータ応用が検討されている。しかし、透明セラミックスシンチレータの研究は作製が比較的容易な酸化物に集中しており、ハロゲン化物を対象とした研究例は数少ない。

我々は新規シンチレータ材料として Eu 添加 CaCl₂ 透明セラミックスに注目した。CaCl₂ は実効原子番号が約 20 と低く、安価で環境負荷も少ない特長を有しており、主に荷電粒子計測分野への応用が期待される。加えて、Eu²⁺ は許容遷移に基づく高効率かつ広帯域な発光と短い減衰時定数を示す [1,2]。本研究では、Eu を添加した CaCl₂ 透明セラミックスを作製し、光学特性およびシンチレーション特性を評価した。

Fig. 1 に Eu 添加 CaCl₂ 透明セラミックスの外観を示す。全ての試料は透光性を示したが、大気中で撮影を行ったためサンプル表面が潮解している様子が確認された。また 325 nm の紫外線照射下では青色の発光を示した。Fig. 2 に X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。すべてのサンプルで Eu²⁺ の 5d-4f 遷移に由来する発光が 430 nm に観測された [3]。

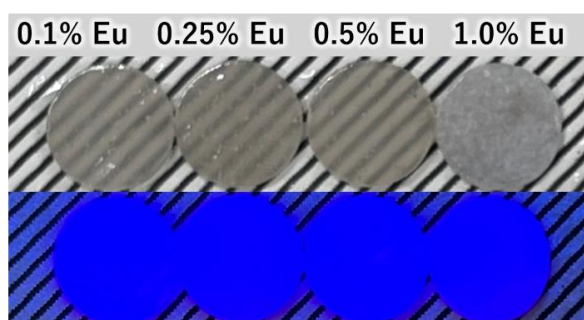


Fig. 1. Appearance of the Eu-doped CaCl₂ (top: room light, bottom: UV light).

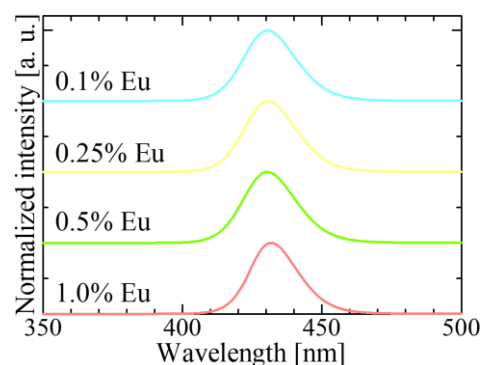


Fig. 2. X-ray-induced scintillation spectra of the Eu-doped CaCl₂.

参考文献

- [1] K. Yang, *et al.*, J. Lumin., **132**, 1824–1829 (2012).
- [2] F. Nakamura, *et al.*, Ceram. Int., **43**, 604–609 (2017).
- [3] T. Kobayasi, *et al.*, J. Lumin., **21**, 247–257 (1980).

中性子検出用 Yb 添加 LiBr 単結晶の放射線誘起蛍光特性

Radiation-induced luminescence of Yb-doped LiBr single crystals for neutron detection

奈良先端大[○]宮崎 慧一郎, 中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之NAIST, [○]Keiichiro Miyazaki, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi, Takayuki YanagidaE-mail: miyazaki.keiichiro.mg5@ms.naist.jp

従来の中性子検出器はセキュリティ分野、石油資源探査、放射線管理区域における環境モニタリング、医療分野等で利用されている。これまで中性子検出器には、 ^3He 比例計数管が中性子検出器として使用されてきたが、近年 ^3He ガスの枯渇が問題視されている[1]。そのため ^3He 比例計数管の代替検出器として、中性子検出用シンチレータの開発が求められる。これまでに我々は、大きい中性子捕獲断面積を有する Eu 添加 LiBr 単結晶の放射線誘起蛍光特性について調査を行ってきた [2]。その結果、 Eu^{2+} の 5d-4f 遷移に由来する発光は確認されたが、比較的長い蛍光寿命と低い発光量が課題となった。そこでスピン許容の 5d-4f 遷移に由来する早い蛍光寿命を示すことが知られている Yb^{2+} に着目した [3,4]。本研究では、 Yb^{2+} 添加 LiBr 単結晶を垂直ブリッジマン法により作製し、蛍光と放射線誘起蛍光特性の評価を行った。

Fig. 1 に Yb 添加 LiBr 単結晶の X 線誘起発光スペクトルを示す。すべての Yb 添加サンプルにおいて 415 と 450 nm に発光が観測された。この 2 つの発光は既報の Yb^{2+} 添加アルカリハライドの発光波長とほとんど同じであるため [3,4]、 Yb^{2+} のスピン許容と禁制の 5d-4f 遷移に由来すると考えられる。Fig. 2 に Yb 添加 LiBr 単結晶の X 線誘起減衰曲線を示す。すべての減衰曲線は 1 成分の指数関数により近似され、数十 ns の早い蛍光寿命が観測された。 Yb^{2+} 添加アルカリハライドの蛍光寿命と同じオーダーであることから [3,4]、 Yb^{2+} のスピン許容遷移に由来すると考えられる。本発表では、X 線照射下での発光特性以外にも、蛍光特性や中性子検出用シンチレータとしての性能も評価したので報告する。

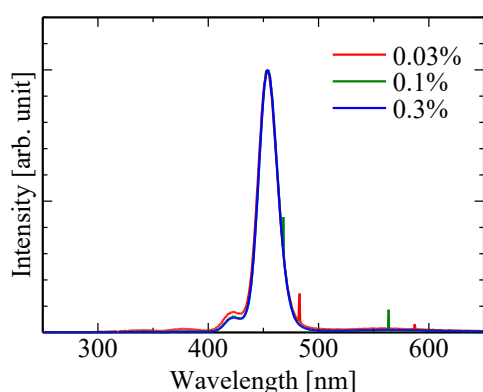


Fig. 1 Radioluminescence spectra of Yb-doped LiBr single crystals under X-ray irradiation.

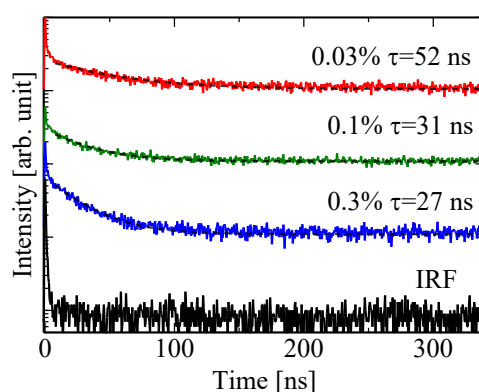


Fig. 2 Radioluminescence decay curves of Yb-doped LiBr single crystals under X-ray irradiation.

<参考文献>

- [1] R.T. Kouzes, United States, PNNL. (2009).
- [2] K. Miyazaki et al., J. Lumin. **274**, 120712 (2024).
- [3] D. Sofich et al., Crystals **500**, 14 (2024).
- [4] T. Tsuboi et al., Phys. Rev. B **48**, 62 (1993).

Tm 添加 SrCl₂ 単結晶の蛍光およびシンチレーション特性

PL and scintillation properties of Tm-doped SrCl₂ crystal

奈良先端大¹, [○]中内 大介¹, 加藤 匠¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹

Nara Institute of Science and Technology¹, [○]Daisuke Nakauchi¹, Takumi Kato¹,

Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: nakauchi@ms.naist.jp

シンチレータは放射線照射時に光子を発する放射線計測用蛍光体であり、医療・セキュリティ・資源探査などの分野における産業の発展に伴い、シンチレータ材料の需要が高まりつつある。Ce や Pr などの発光中心は 5d-4f 遷移由来のブロードな発光を示し、Ce:GAGG や Pr:LuAG に代表されるようにシンチレータとして盛んに検討がなされてきた有用な賦活剤である。Sm²⁺や Tm²⁺もまた近赤外領域にて 5d-4f 遷移由来の発光を示すが、シンチレータとして着目した報告は非常に少ない [1,2]。Tm²⁺は赤色から近赤外域に強い発光を示すことから Si 系の光検出器と相性が良いことやチェレンコフ光との区別が容易である点で今後有用となり得る発光中心である。我々は新たな発光中心として Tm²⁺発光の発現を企図し、Tm:SrCl₂ 結晶を垂直ブリッジマン法で結晶育成を行い、その蛍光および放射線検出器特性の評価を行った。

Fig. 1 には X 線照射時の Tm:SrCl₂ 単結晶の発光スペクトルを示す。すべてのサンプルにおいて 710 nm 付近に単一のブロードな発光が観測され、Tm²⁺の 5d-4f 遷移として典型的なスペクトル形状を示している。一部 3 価として残存しており、ホスト発光と Tm³⁺発光も観測された。Fig. 2 には X 線照射時の減衰曲線を示しており、すべての減衰曲線が一成分の指数関数で近似された。減衰時定数は γ 線のパルス計測が可能な範囲で変化しており、 γ 線計測にも適用可能であると考えられる。本研究ではフォトルミネセンススペクトル、蛍光寿命測定、残光特性などの諸特性についても併せて発表する。

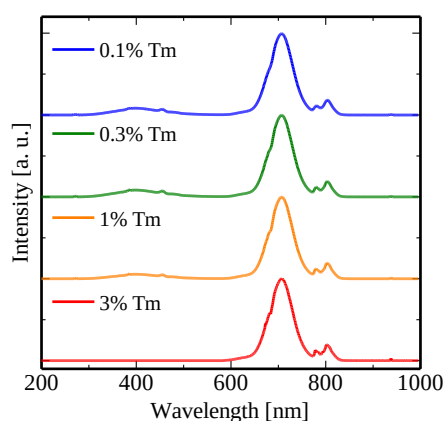


Fig.1. Emission spectra under X-ray irradiation.

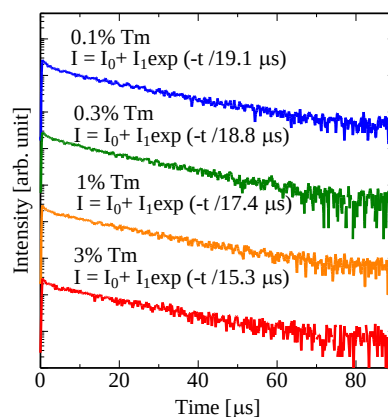


Fig. 2. Luminescence decay curves under X-ray irradiation.

- [1] L.C. Dixie, A. Edgar, C.M. Bartle, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 753 (2014) 131.
- [2] L.C. Dixie, A. Edgar, M.C. Bartle, J. Lumin. 149 (2014) 91.

垂直ブリッジマン法により作製した Eu 添加 NaBr 単結晶の シンチレーション特性評価

奈良先端大 [○]市場 賢政, 宮崎 慧一郎, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, [○]Kensei Ichiba, Keiichiro Miyazaki, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi,

Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: ichiba.kensei.if7@ms.naist.jp

シンチレータとは電離放射線のエネルギーを吸収し、即座に発光を示す蛍光体材料である。光検出器と組み合わせることで放射線検出器として利用されており、ガンマ線スペクトロメータ、空港の手荷物検査装置、陽電子放出断層撮影装置などに用いられている。シンチレータに求められる特性は用途によって異なるが、例えばガンマ線検出器に搭載されるシンチレータには高い化学的安定性、大きい実効原子番号、および高い発光量が挙げられる。加えてシンチレータの発光波長と光検出器との波長感度が一致することも重要である。

NaI はガンマ線スペクトロメータをはじめとするガンマ線検出器に用いられる代表的なシンチレータの母材である。当該材料は大きい実効原子番号を有するものの、潮解性を有するため化学的安定性が悪い。それゆえ長期の使用が困難であるといった欠点を有する。そこで本研究では NaI より実効原子番号は低いものの、潮解性が低い NaBr に着目した。さらに発光中心として一般的な光検出器 (e.g. 光電子増倍管) との感度波長が一致する Eu^{2+} を添加し [1]、そのフォトルミネッセンス特性およびシンチレーション特性の評価を行った。

Fig. 1 に 0.5% Eu 添加 NaBr 単結晶のシンチレーションスペクトルを示す。430 nm に発光を確認し、先行研究から Eu^{2+} の 5d-4d 遷移に由来する発光であると考えられる [1]。図 2 に 0.5% Eu 添加 NaBr 単結晶のパルス波高値スペクトルを示す。本測定では 7,000 ph/MeV の発光量を有する Gd_2SiO_5 (GSO) をリファレンスサンプルとして利用した。GSO では 297 チャネルに Eu 添加 NaBr 単結晶では 1197 チャネルに明瞭な光電吸収ピークが観測された。光電子増倍管の波長感度で補正後、GSO の発光量との比較から 0.5% Eu 添加 NaBr 単結晶の発光量は 27,000 photons/MeV と算出された。

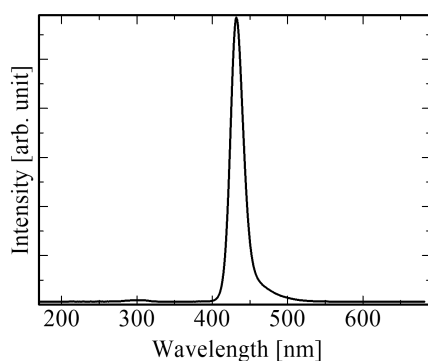


Fig. 1 Scintillation spectrum of Eu-doped NaBr single crystal.

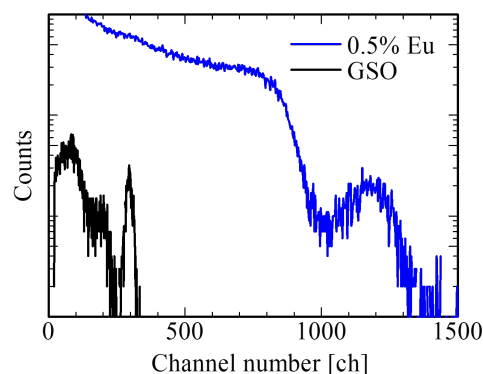


Fig. 2 Pulse height spectra of Eu-doped NaBr single crystal.

参考文献 [1] F.j. Lopez et al., J. Lumin., 26, 1-2, 129-140 (1981).

有機無機層状ペロブスカイト型化合物

PEA₂Pb_{1-x}Ca_xCl₄ 結晶のシンチレーション特性

Scintillation properties of organic-inorganic layered perovskite-type compounds

PEA₂Pb_{1-x}Ca_xCl₄ crystals奈良先端大¹, 産総研², 秋田大理工³ ○若林 樹¹, 山林 恵士¹, 木村大海², 中内 大介¹,河野 直樹³, 加藤 匠¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹NAIST¹, AIST², Akita Univ.³ °Itsuki Wakabayashi¹, Keishi Yamabayashi¹, Hiromi Kimura²,Daisuke Nakauchi¹, Naoki Kawano³, Takumi Kato¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: wakabayashi.itsuki.wj7@naist.ac.jp

シンチレータは電離放射線が照射された際に、即座に発光を呈する蛍光体であり、光検出器との併用によって、多様な分野の放射線計測に用いられている。なかでも、量子を個々に計数するフォトンカウンティング型計測用途には、高い発光量と短い蛍光寿命を有することが求められる。これらの要求特性を満たしうる有望材料として、2次元有機無機ペロブスカイト型化合物が注目されている。特に PEA₂PbX₄ (PEA = C₆H₅C₂H₂NH₃, X = ハロゲン) では無機構造に歪みが生じると、量子閉じ込め効果が強化され、高い発光量を示すことが報告されている [1, 2]。さらに PEA₂PbBr₄ においては Pb 部分が他の金属元素に置換されることで、構造歪みが促進され発光量が増加した例が報告されている [3]。しかし、PEA₂PbCl₄ に対する同様の検討は十分にされていない。本研究では PEA₂PbCl₄ の Pb 部分を Ca で置換した PEA₂Pb_{1-x}Ca_xCl₄ 結晶 (x = 0.01, 0.05, 0.1) を溶媒拡散法により合成し、そのフォトルミネセンスおよびシンチレーション特性について評価を行った。

Figure 1 に作製した PEA₂Pb_{1-x}Ca_xCl₄ 結晶の X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。全てのサンプルにおいて、450–700 nm にブロードな発光ピークが観測された。Figure 2 に X 線誘起シンチレーション減衰曲線を示す。全ての減衰曲線は励起源由来の成分を除いた 2 成分の指数関数の和で近似することができた。速い成分は無機層の自己束縛励起子に由来し [4]、遅い成分は、欠陥発光や束縛励起子発光等の内因性発光に由来すると考えられる。

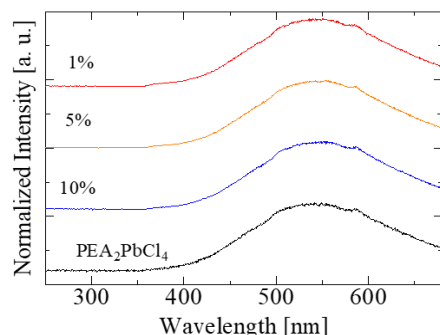


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of PEA₂Pb_{1-x}Ca_xCl₄ crystals.

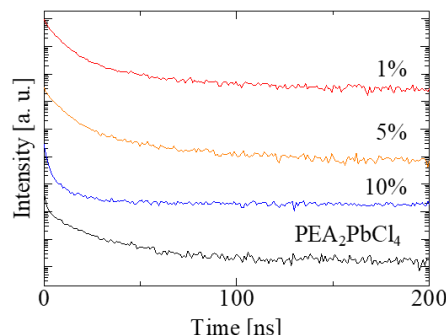


Fig. 2 X-ray-induced scintillation decay curves of PEA₂Pb_{1-x}Ca_xCl₄ crystals.

[1] N. Kawano et al., Sci. Rep. 7, 14754 (2017). [2] T. Suto et al., Jpn. J. Appl. Phys. 62, 010610 (2023). [3] D. Onoda et al., J. Mater. Sci. Mater. Electron. 31, 20798 (2020). [4] A. Horimoto et al., Sens. Mater. 32, 1395 (2020).

18-クラウン 6-エーテル-アルカリ金属錯体包接型ヨウ化銅(I)単結晶の合成およびシンチレーション特性評価

Synthesis and evaluation of scintillation properties of single crystals composed of CuI clusters and 18-crown-6 ether-alkali metal complexes

奈良先端大, °山林 恵士, 岡崎 魁, 中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, °Keishi Yamabayashi, Kai Okazaki, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: yamabayashi.keishi.yh2@ms.naist.jp

シンチレータは電離放射線照射下において即発的な発光 (シンチレーション) を呈する蛍光体である。シンチレータには、一般的に高い化学的安定性や高い発光量を有することが求められる。近年、有機金属錯体とヨウ化銅クラスターからなる低次元構造を有する蛍光体に関する研究が盛んであり、量子閉じ込め効果による高いフォトルミネセンス (PL) 量子収率 (QY) や放射線に対する高い感度を示すシンチレータが数多く報告されている [1]。本研究では低次元構造に基づく高い QY と、X 線照射下において高い発光量を示す 18-クラウン-6 エーテル-アルカリ金属錯体包接型ヨウ化銅(I)単結晶に着目した [2]。なかでもこれまで我々は(18-crown-6)₂Na₂(H₂O)₃Cu₄I₆ (NCI) が、¹³⁷Cs ガンマ線照射下において高い発光量 (59,000 photons/MeV) を示し、シンチレータとして有望材料であることを明らかにしてきた [3]。また他アルカリ金属種 (Cs, Rb, K, Li) が当該材料系のシンチレーション特性に与える影響を調査したため本発表で報告する。

合成した試料の組成はそれぞれ、(18-crown-6)₃Cs₂Cu₂I₄ (CCI), (18-crown-6)₂Rb₂(CH₃COCH₃)Cu₄I₆ (RCI), (18-crown-6)KCuI₂ (KCI), NCI, (18-crown-6)₂Li_{1.35}Na_{0.65}(H₂O)₂Cu₄I₆ (LCI) であった。室内光および UV 照射下における外観を Figure 1 に示し、X 線誘起シンチレーションスペクトルを Figure 2 に示す。試料は室内光下においてそれぞれ無色または黄色透明であり、UV および X 線照射下では、CCI と KCI が 450–550 nm に発光ピークを示し、RCI、NCI、LCI では 500–600 nm に発光ピークが観測された。当日はこれらの発光起源や詳細なシンチレーション特性について報告する。

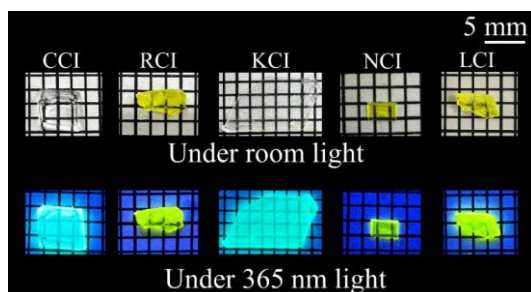


Fig. 1 Appearances of prepared samples under room light (top) and UV light at 365 nm (bottom).

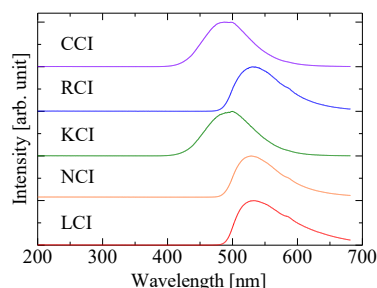


Fig. 2 X-ray-induced scintillation spectrum of prepared samples.

[1] Y. Ye et al., *Adv. Func. Mater.* Early view, 2401773 (2025). [2] A. M. Almushaikeh et al., *Chem. Commun.* **59**, 2401773 (2023). [3] 第 72 回応用物理学会春季学術講演会, 15p-K502-6.

溶液プロセスを用いた $\text{Cu}_4\text{I}_4(\text{CH}_3\text{SCH}_3)_3$ 単結晶の作製と シンチレーション特性調査

Scintillation properties of $\text{Cu}_4\text{I}_4(\text{CH}_3\text{SCH}_3)_3$ single crystals grown by the solution process

奈良先端大, °権田 樹, 山林 恵士, 中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, Itsuki Gonda, Keishi Yamabayashi, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato,

Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: gonda.itsuki.gm5@naist.ac.jp

シンチレータは高エネルギーの電離放射線を可視光や紫外光などの低エネルギー光子に即時に変換する蛍光体材料であり, シンチレーション光を光センサーで読み出すことで, 放射線のリアルタイム計測が可能なシンチレーション検出器として幅広く利用されている. 近年, 三重項クラスター中心 (^3CC) 発光を示す Cu_4I_4 クラスターを有する材料が, 広いストークスシフトによって再吸収を抑制し, 高効率な発光を実現することで注目されている [1]. また有機無機ハイブリッド材料は, 材料設計の自由度が高く, 配位子の変更によってその発光特性を調整できることが期待される. 本研究では, 高い化学的安定性と, 高い発光量を示すシンチレータの開発を企図し, Cu_4I_4 クラスターを有する有機無機ハイブリッド材料である $\text{Cu}_4\text{I}_4(\text{CH}_3\text{SCH}_3)_3$ 単結晶を溶媒拡散法にて作製し, シンチレーション特性の調査を行った.

溶質に CuI および RbI 粉末を, 溶媒にジメチルスルホキシド (DMSO) を用いて溶液を調製し, 還元剤として次亜リン酸 (H_3PO_2) を加えた. DMSO は H_3PO_2 により還元され, ジメチルスルフィド (CH_3SCH_3) として溶液中に存在する. ここに貧溶媒としてテトラヒドロフラン (THF) を注ぎ数日静置して $\text{Cu}_4\text{I}_4(\text{CH}_3\text{SCH}_3)_3$ 単結晶を製出した. 得られた結晶をエタノールで洗浄して試料とした. Fig. 1 に試料の X 線誘起ラジオルミネセンス (XRL) スペクトルを示す. 550 nm 付近にピークを有する Cu_4I_4 クラスター系の ^3CC 発光 [2] に近い発光帯が現出した. Fig. 2 に XRL 減衰時間プロファイルを示す. 減衰曲線は時定数 $0.8 \mu\text{s}$ と $4.7 \mu\text{s}$ 成分の 2 成分指数減衰挙動を示した. 後者は Cu_4I_4 クラスターの ^3CC 発光に近い [3]. $0.8 \mu\text{s}$ 成分については現在調査中である.

[1] K. Kiralci *et al.*, *Inorg. Chem.*, **56**, 4609–4614 (2017).

[2] Q. H. Zou *et al.*, *Inorg. Chem. Front.*, **12**, 692–700 (2025).

[3] J. V. Garcia *et al.*, *Chem. Commun.*, **59**, 14455–14458 (2023).

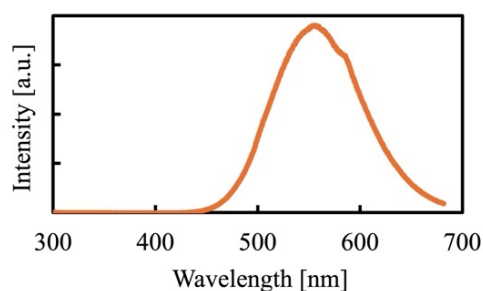


Fig. 1 XRL spectrum of $\text{Cu}_4\text{I}_4(\text{CH}_3\text{SCH}_3)_3$.

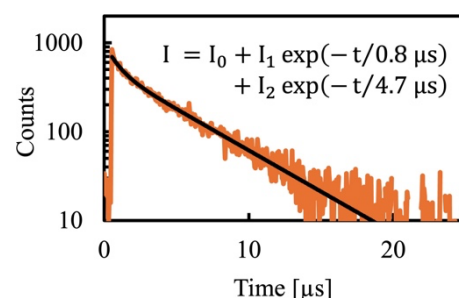


Fig. 2 XRL decay profile of $\text{Cu}_4\text{I}_4(\text{CH}_3\text{SCH}_3)_3$.

Er 添加 $\text{GeS}_2\text{-Ga}_2\text{S}_3$ ガラスの放射線誘起近赤外蛍光特性

Radiation-induced near infrared luminescence properties

of Er-doped $\text{GeS}_2\text{-Ga}_2\text{S}_3$ glasses

奈良先端大[○]山田 慧史, 西川 晃弘, 宮島 溪太, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST,[°] Satoshi Yamada, Akihiro Nishikawa, Keita Miyajima, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi,

Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: yamada.satoshi.yw1@naist.ac.jp

シンチレータとは、電離放射線のエネルギーを吸収し即発的に発光する蛍光体の一種である。従来のシンチレータは紫外・可視光領域のものが主であったが、近年は近赤外領域に感度を持つ光検出器が実用化され、近赤外発光シンチレータの開発も盛んに行われている。近赤外光は、紫外・可視光に比して光ファイバでの伝達効率が良く、光ファイバを用いた高線量場モニタリングへの応用が提案されている。しかし、現状実用化に足る高強度の近赤外光シンチレータはない。シンチレータのシグナル強度は、放射線阻止能と発光効率に比例する。放射線阻止能の向上には重元素の含有が有効であり、発光効率の向上には狭いバンドギャップと小さいフォノンエネルギーをもつ材料の選定が有効である。 $\text{GeS}_2\text{-Ga}_2\text{S}_3$ ガラスは、狭いバンドギャップと小さいフォノンエネルギーを持つ材料であり、 Ga_2S_3 は希土類元素の溶解性に優れる[1]。加えて発光中心として Er を添加した際のフォトルミネッセンス特性が報告されており[2]、シンチレータとしても期待できる材料である。しかし、シンチレーション特性についての研究報告はない。そこで本研究では、Er 添加 $\text{GeS}_2\text{-Ga}_2\text{S}_3$ ガラスのシンチレーション特性を調査した。また Er の仕込み濃度を母材に対して 0.1, 0.3, 1.0, 3.0% と変化させ、シンチレーション特性の Er 濃度依存性についても調査した。

図 1 に本研究で作製した Er 添加 $\text{GeS}_2\text{-Ga}_2\text{S}_3$ ガラスの外観を示す。Er 濃度 0.1, 0.3, 1.0% 試料は、室内光下で透明であったが 3.0% 試料は不透明であった。またいずれの試料についても、黄色の着色を確認した。図 2 に、Er 添加 $\text{GeS}_2\text{-Ga}_2\text{S}_3$ ガラスの X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。すべての試料で、980 nm, 1540 nm 付近にシンチレーションを確認することができた。これらは Er^{3+} の 4f 軌道における $^4\text{I}_{11/2} \rightarrow ^4\text{I}_{15/2}$, $^4\text{I}_{13/2} \rightarrow ^4\text{I}_{15/2}$ 遷移に由来すると考えられる[3]。本講演では、フォトルミネッセンス特性やより詳細なシンチレーション特性について報告する。

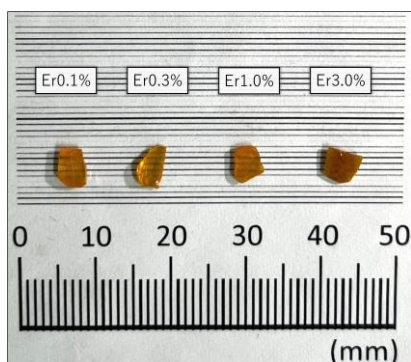


Fig. 1 Appearance of Er-doped $\text{GeS}_2\text{-Ga}_2\text{S}_3$ glasses.

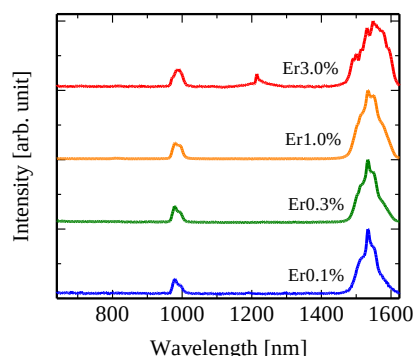


Fig. 2 Scintillation spectra of Er-doped $\text{GeS}_2\text{-Ga}_2\text{S}_3$ glasses.

[1] Qin Xu et al., Mater. Res. Express. **6** (2019) 085212.

[2] Z.G. Ivanova et al., J. Phys. Chem. Solids. **64** (2003) 107.

[3] V. Moizan et al., Opt. Comp. Mater. IV. **6469** (2007) 20.

Eu 添加 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスのシンチレーション特性

Scintillation properties of Eu-doped $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ glasses

奈良先端大¹, 東京理科大² 西川 晃弘¹, 白鳥 大毅², 加藤 匠¹, 中内 大介¹, 河口 範明¹,
柳田 健之¹

NAIST¹, TUS² Akihiro Nishikawa¹, Daiki Shiratori², Takumi Kato¹, Daisuke Nakauchi¹,

Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: nishikawa.akihiro.nc6@ms.naist.jp

シンチレータとは、放射線との相互作用により発光する蛍光体の一種である。シンチレータの応用先は多岐にわたり、医療やセキュリティ、宇宙物理学、環境測定等に利用される。シンチレータの材料形態は主にバルク多結晶、ガラス、単結晶などの無機材料である。これらの無機材料の中でもガラス材料は、高い透明性、生産コストの低さ、加工の容易さ、組成の自由度といった点で優れており、シンチレータとしての応用が期待されている。しかし、単結晶シンチレータと比較してガラスシンチレータの実用化例は少ないのが現状である。特に $X\cdot\gamma$ 線検出におけるガラスシンチレータの課題として、 $X\cdot\gamma$ 線との相互作用確率と相互作用後のキャリアの輸送効率が低い傾向にあることが挙げられる。そこで我々は、 $X\cdot\gamma$ 線検出用ガラスシンチレータの開発に向けて Eu 添加 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスに着目した。 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスは高い機械的強度と化学的安定性を有するためシンチレータの母材として期待できる。さらに先行研究により Eu^{2+} に由来するシンチレーションを確認し、 ^{241}Am の α 線照射時に 1400 photons/MeV の発光量を示すことを明らかにした [1]。本研究では $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスに原子番号の大きい Lu を加えることで相互作用確率の向上を図り、 γ 線照射における発光量の定量化を目指した。Eu 濃度の異なる Eu 添加 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ガラスを溶融急冷法により作製し、シンチレーション特性を調査した。

図 1 に全サンプルのシンチレーションスペクトルを示す。すべてのサンプルが X 線照射下において $\text{Eu}^{2+,3+}$ に由来する発光を示した [2]。Eu 濃度増加と共に Eu^{3+} 由来の発光強度比が増加した。低濃度サンプルでは合成時の高温還元反応により Eu^{2+} が多く存在していたが、高濃度では未反応の Eu^{3+} が多く残っていると考えられる。また青色発光の長波長シフトが観測された、これは自己吸収の影響であると考えられる。図 2 に ^{137}Cs 線源の γ 線照射下における全サンプルのパルス波高スペクトルを示す。すべてのサンプルで光電吸収ピークが得られた。サンプルとリファレンス試料 (Ce: Gd_2SiO_5) の光電吸収ピークチャネルより発光量を算出した。0.1–3.0% サンプルでそれぞれ、300、420、680、480 photons/MeV であった。本公演では詳細なシンチレーション特性について報告する。

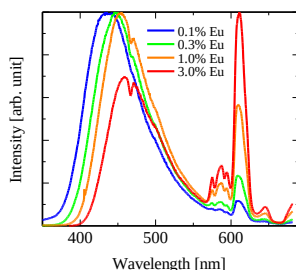


Figure 1 Scintillation spectra of all the samples.

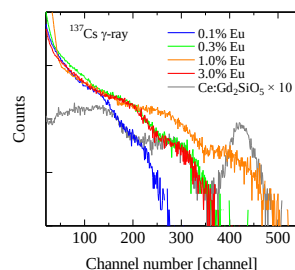


Figure 2 γ -ray (^{137}Cs) excited pulse height spectra of all the samples.

[1] A. Nishikawa et al., *Solid State Sci.*, 160, 107812 (2025). [2] M. Nogami et al., *Opt. commun.* 193, 237 (2001).

Sm 添加 BaO-B₂O₃ ガラスのフォトルミネッセンスおよび ラジオルミネッセンス特性

Photo- and Radioluminescence Properties of Sm-doped BaO-B₂O₃ Glasses

奈良先端大, °宮島 溪太, 西川 晃弘, 岡崎 魁, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, °Keita Miyajima, Akihiro Nishikawa, Kai Okazaki, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi,

Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: miyajima.keita.mj2@naist.ac.jp

ラジオルミネッセンス (RL) は、電離放射線の照射により、物質が多数の紫外-可視光子を放射する現象である。RL を示す物質と光検出器を組み合わせ放射線計測を行うことができ、特にそのような応用のために開発された材料をシンチレータと呼ぶ。シンチレータに求められる最も重要な特性のひとつに、用いる光検出器の分光感度特性に適した発光波長がある [1]。本研究では、最も広範な応用に供される光検出器のひとつである Si フォトダイオードと相性の良い橙-赤色発光を示す Sm³⁺イオンを添加したシンチレータを検討した。

Sm³⁺を添加する母材として、BaO-B₂O₃ ガラスを用いた。現状、市販のシンチレータは単結晶が多数を占めるが、ガラスは加工性や製造コスト等で単結晶に優る [2]。よって高性能かつ安価なガラスシンチレータの開発による単結晶シンチレータの置き換えが望まれる。BaO-B₂O₃ ガラスは、シンチレータ応用に十分な実効原子番号を有し、類似組成の希土類添加蛍光体が多数報告されていることから、希土類添加シンチレータの母材として有望である [3]。

Figure 1 に熔融急冷法により作成した 0–10% Sm 添加 BaO-B₂O₃ ガラス試料の外観を示す。これらのガラスは X 線照射下において RL を示した。Figure 2 に照射 X 線線量率の変化に対する RL 強度の応答特性を示す。すべての試

料は 750–45000 mGy/h の X 線照射下において良好な線形応答を示した。そのうち最も RL 強度の高かった 1% Sm 添加試料の X 線線量率検出下限は、3 σ 法により 81 mGy/h と推定された。講演ではより詳細なフォトルミネッセンスおよび RL 特性を報告する。

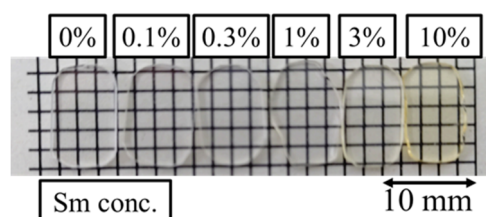


Figure 1 Photograph of the synthesized samples.

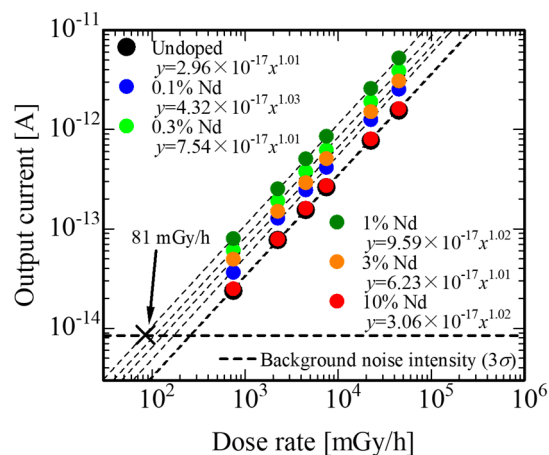


Figure 2 Radioluminescence intensity vs. X-ray irradiation intensity.

<参考文献>

- [1] T. Yanagida, Proc. Jpn. Acad., B **94** (2018) 75.
- [2] N. Kawano et al., Ceram. Int. **47** (2021) 11596.
- [3] K. Miyajima et al., Sens. Mater. **37** (2025) 481.

KS 研究会セッション | 一般セッション(口頭講演) : KS4 量子エネルギー変換研究会

[7p-N303-1~18] KS4 量子エネルギー変換研究会

[7p-N303-1]

Y₂O₃:Smセラミックスのシンチレーション特性とSm濃度依存性○齋藤 祐磨¹、尾竹 祥太¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7p-N303-2]

Tb添加Sr₂Gd₈(SiO₄)₆O₂オキシアパタイト単結晶の放射線誘起蛍光特性○坪内 廉¹、江澤 喜朗¹、福島 宏之²、中内 大介¹、渡辺 賢一³、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.福井高専、3.九州大)

[7p-N303-3]

透明セラミックスアパタイトの放射線誘起蛍光特性

○柳田 健之¹、宮島 溪太¹、岡崎 魁¹、Abu Yousuf^{2,3}、中西 貴之²、古瀬 裕章²、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹ (1.奈良先端大、2.NIMS、3.九大)

[7p-N303-4]

Pb添加β-Ga₂O₃単結晶の光学およびシンチレーション特性○國方 俊彰¹、木村 大海²、岡崎 魁¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.産総研)

[7p-N303-5]

Nd添加SrTa₂O₆単結晶の近赤外シンチレーション特性○富永 雄太^{1,2}、加藤 匠²、西川 晃弘²、宮崎 慧一郎²、中内 大介²、河口 範明²、柳田 健之² (1.福岡大工、2.奈良先端大)

[7p-N303-6]

Ti 添加Y₃Al₅O₁₂単結晶の放射線誘起蛍光特性○林 尚輝¹、國方 俊彰¹、市場 賢政¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7p-N303-7]

Yb添加Ca₃TaGa₃Si₂O₁₄シンチレータの性能評価○高橋 遼成¹、岡崎 魁¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7p-N303-8]

Dy添加SrLu₂O₄単結晶のフォトルミネッセンスおよびシンチレーション特性○遠藤 優介¹、市場 賢政¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、宮崎 慧一郎¹、渡辺 賢一²、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.九州大)

[7p-N303-9]

Pr添加SrWO₄結晶の放射線誘起蛍光特性○岡崎 魁¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7p-N303-10]

Mn添加Mg₃Al₂(Si, Ge)₃O₁₂の蛍光特性評価○福島 宏之¹、谷口 夏穂¹、平野 陽祐¹、松田 和希¹、木村 大海² (1.福井高専、2.産総研)

[7p-N303-11]

Ti添加LiGaO₂単結晶の作製条件の検討とシンチレーション特性評価

○竹渕 優馬¹、木村 大海²、手塚 慶太郎¹、八巻 和宏¹、柳田 健之³ (1.宇都宮大、2.産総研、3.奈良先端大)

[7p-N303-12]

Tb添加NaLa(WO₄)₂単結晶の放射線誘起蛍光特性に対するTb濃度の影響

○牧野 滉大、木村 大海²、市場 賢政³、白鳥 大毅¹、藤原 健²、加藤 英俊²、福地 裕¹、柳田 健之³ (1.東京理科大、2.産総研、3.奈良先端大)

[7p-N303-13]

YAG結晶を析出させたシリケート系ガラスのシンチレーション特性

○打田 伊吹¹、白鳥 大毅¹、木村 大海²、竹渕 優馬³、福地 裕¹ (1.東京理科大、2.産総研、3.宇都宮大)

[7p-N303-14]

カリウムアルミノリン酸塩ガラスのドシメータ特性におけるGd添加の影響

○(M1)大木 瑛心¹、白鳥 大毅¹、木村 大海²、岡田 豪³、福地 裕¹、柳田 健之⁴ (1.東京理科大、2.産総研、3.金沢工大、4.奈良先端大)

[7p-N303-15]

Eu:Ca₅(PO₄)₂SiO₄セラミックスのRPL特性評価

○早乙女 優斗¹、白鳥 大毅¹、木村 大海²、岡田 豪³、福地 裕¹ (1.東京理科大、2.産総研、3.金沢工大)

[7p-N303-16]

Eu添加Na₂BaCa(PO₄)₂セラミックスが呈するラジオフォトルミネッセンス現象

○(M1)松永 拓己¹、白鳥 大毅¹、岡田 豪²、木村 大海³、福地 裕¹、柳田 健之⁴ (1.東京理科大、2.金沢工大、3.産総研、4.奈良先端大)

[7p-N303-17]

NaFの欠陥型ラジオフォトルミネッセンス特性の調査

○加藤 匠¹、中内 大介¹、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[7p-N303-18]

Ag添加CsBr透明セラミックスのRPL特性評価

○星名 勇作¹、江澤 喜朗¹、加藤 匠¹、木村 大海²、中内 大介¹、河川 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.産総研)

Y₂O₃:Sm セラミックスのシンチレーション特性と Sm 濃度依存性 Scintillation Properties and Sm Concentration Dependence of Y₂O₃:Sm Ceramics

奈良先端大 ○齋藤 祐磨, 尾竹 祥太, 加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, °Yuma Saito, Shota Otake, Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi,

Takayuki Yanagida

E-mail: saito.yuma.sx6@naist.ac.jp

シンチレータは、電離放射線を即座に紫外から可視光程度の低エネルギー光子に変換する蛍光体であり、光電変換素子と組み合わせることで放射線検出器として広く利用されている。従来は、優れた透明性と結晶性を有することから、単結晶形態のシンチレータが主に用いられてきた。しかし、結晶育成に高温かつ長時間の工程を要するため、製造コストが高く、大型化や量産化に制約がある点が課題であった。近年では、透明セラミックスのシンチレータ応用が注目されている。透明セラミックスは単結晶に匹敵する優れた光学特性を持ち、比較的低コストで合成可能であるほか、機械的強度にも優れるといった利点を有する。

本研究では、熱的・化学的安定性に優れ、蛍光体材料として広く用いられている Y₂O₃ に注目し、発光中心として Sm を添加した透明セラミックス (Y₂O₃:Sm) を作製した。Sm³⁺ は、一般的な Si フォトダイオードの感度波長帯に一致する領域で発光を示すことから、近年シンチレータ用途での応用が期待されている[1]。

Fig. 1 に作製した Y₂O₃:Sm の拡散透過スペクトルを示す。いずれの試料も後述する発光波長において 70% 程度の高い透過率を示し、300–500 nm 付近には Sm³⁺ に由来する複数の吸収ピークが観測された[2]。Fig. 2 には作製した試料のシンチレーションスペクトルを示す。550–650 nm 付近において、Sm³⁺ に由来する複数のシャープな発光ピークが観測された[3]。発表当日はこれらの結果に加え、パルス波高値スペクトルや線量率応答などの実験結果についても報告する。

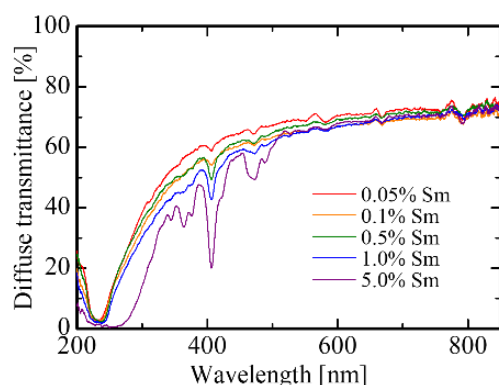


Fig. 1. Diffuse transmittance spectra of Y₂O₃:Sm transparent ceramics.

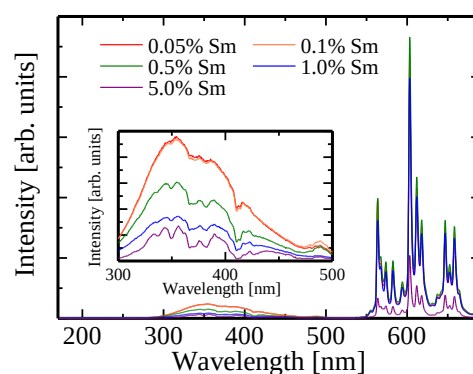


Fig. 2. X-ray-induced scintillation spectra of the Y₂O₃:Sm samples.

参考文献: [1] B. Supawat, *et al.*, Radiation Physics and Chemistry, 224, 112049 (2024). [2] N. Jarucha, *et al.*, Radiation Physics and Chemistry, 201, 110434 (2022). [3] H. Lin, *et al.*, Journal of Luminescence, 113, 121 (2005).

Tb 添加 $\text{Sr}_2\text{Gd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ オキシアパタイト単結晶の放射線誘起蛍光特性

Radiation-Induced Luminescence Properties of Tb-doped $\text{Sr}_2\text{Gd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$

Oxyapatite Single Crystals

奈良先端大¹, 福井高専², 九州大³, °坪内 廉¹, 江澤 喜朗¹, 福嶋 宏之², 中内 大介¹,

渡辺 賢一³, 加藤 匠¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, NIT-Fukui², Kyushu Univ.³, °Ren Tsubouchi¹, Haruaki Ezawa¹, Hiroyuki Fukushima²,

Daisuke Nakauchi¹, Kenichi Watanabe³, Takumi Kato¹, Noriaki Kawaguchi¹,

Takayuki Yanagida¹

E-mail: tsubouchi.ren.tw5@naist.ac.jp

シンチレータは電離放射線のエネルギーを吸収し即発的に発光する蛍光体であり、光検出器と組み合わせることで間接的な放射線計測が可能となる。主な応用先は医療やセキュリティ、環境モニタリングなど多岐にわたる。オキシアパタイトは優れた熱的・化学的安定性と、低対称性を有することから蛍光材料として注目されており、希土類元素を発光中心として添加したオキシアパタイトの蛍光特性が報告されている [1]。オキシアパタイトはシンチレータ材料の母材としても有力な候補であり [2, 3]、本研究では Tb を 1–50% 添加した $\text{Sr}_2\text{Gd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ オキシアパタイト単結晶をフローティングゾーン法により作製し、その放射線誘起蛍光特性の評価を行った。

Fig. 1 にサンプルの X 線励起シンチレーションスペクトルを示す。全てのサンプルが Tb^{3+} の 4f–4f 遷移に起因する発光ピークを示した [4]。 Gd^{3+} の 4f–4f 遷移 ($^6\text{P}_J$ – $^8\text{S}_{7/2}$) に起因する発光ピーク強度は Tb 濃度上昇により減少し、 Gd^{3+} から Tb^{3+} へのエネルギー移動が示唆された [4]。 Fig. 2 にサンプルのパルス波高スペクトルを示す。 Tb を 5% 添加したサンプルが 14600 photons/MeV の最も高い発光量を示し、これは BGO の発光量 8200 photons/MeV を凌駕する値であった。

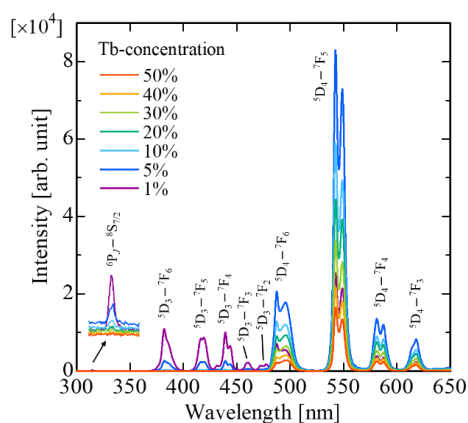


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of Tb-doped $\text{Sr}_2\text{Gd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ single crystals.

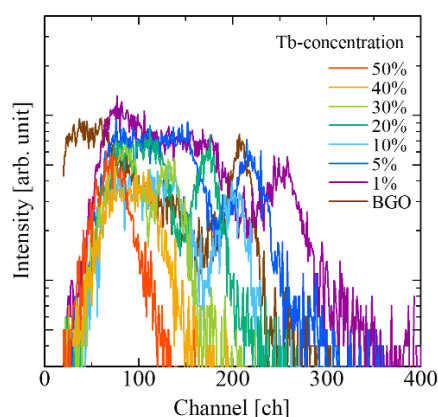


Fig. 2 Pulse height spectra of Tb-doped $\text{Sr}_2\text{Gd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ single crystals under γ -ray irradiation of ^{137}Cs .

参考文献

- [1] G. M. Rao et al., J. Alloys Compd., **660**, 437 (2016). [2] T. Igashira et al., Optik, **155**, 36 (2018). [3] K. Watanabe et al., Jpn. J. Appl. Phys., **60**, 106002 (2021). [4] Y. Li et al., J. Phys. Chem. C, **111**, 10682 (2007).

透明セラミックスアパタイトの放射線誘起蛍光特性

Radiation-Induced Luminescence Properties of Apatite Transparent Ceramics

奈良先端大¹, NIMS², 九州大³, [○]柳田 健之¹, 宮島 溪太¹, 岡崎 魁¹, Abu Yousuf^{2,3},

中西 貴之², 古瀬 裕章², 中内 大介¹, 加藤 匠¹, 河口 範明¹

NAIST¹, NIMS², Kyushu Univ.³, [○]Takayuki Yanagida¹, Keita Miyajima¹, Kai Okazaki¹, Abu

Yousuf^{2,3}, Takayuki Nakanishi², Hiroaki Furuse², Daisuke Nakauchi¹, Takumi Kato¹,

Noriaki Kawaguchi¹

E-mail: t-yanagida@ms.naist.jp

シンチレータは不可視な放射線単一量子を、量子エネルギー変換によって多数の低エネルギー光子に変換するエネルギー変換材であり、蛍光体の一種である。応用は多岐にわたり、医療、セキュリティ、資源探査、環境計測、インフラ診断など枚挙に暇がない。従来のシンチレータにおいては、他の光学材料と同様にバルク単結晶が中心的に利用されてきた。しかしながら近年では、これに加えて透明セラミックスシンチレータ開発も盛んになっている。このような背景の下、本研究ではレーザー用に開発された Nd もしくは Yb を添加した $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{F}_2$ (FAP)、 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{F}_2$ (S-FAP) 透明セラミックスのシンチレーション特性を評価した。

Fig. 1 に NIMS にて放電プラズマ焼結法で作製した [1,2] Nd:FAP、Nd:S-FAP の外観を示す。可視的に紫色透明体であり、評価に十分なサイズのサンプルが得られた。Fig. 2 に X 線照射時におけるこれらの試料のシンチレーションスペクトルを示す。Nd³⁺ の 4f-4f 遷移に起因する複数の輝線が観測され、そのうち最も高い強度を示したものは波長約 1060 nm の $4\text{F}_{3/2} \rightarrow 4\text{I}_{11/2}$ 遷移に起因するものであった。本講演ではこれらに加え、様々な基礎物性、シンチレーション特性、デバイス特性に関して報告する。

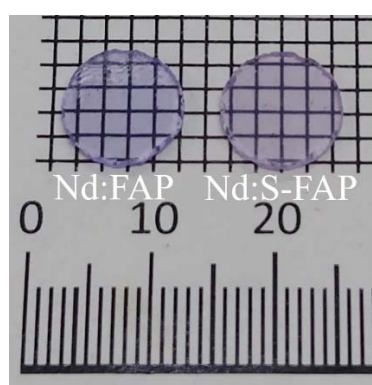


Fig. 1 Appearance of Nd:FAP and S-FAP transparent ceramics.

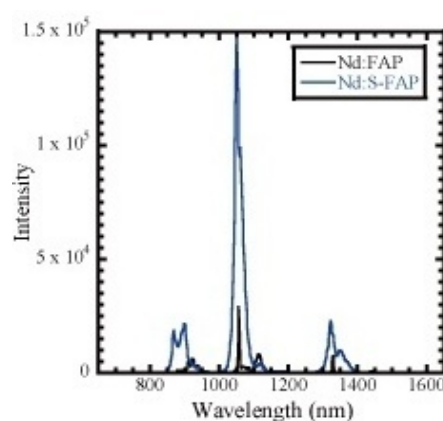


Fig. 2 X-ray induced scintillation spectra of Nd:FAP and S-FAP transparent ceramic.

【参考文献】

[1] H. Furuse et al., Opt. Mater. Exp. 11, 1756 (2021). [2] H. Furuse et al., Scripta Materialia, 241 115881 (2024).

Pb 添加 β -Ga₂O₃ 単結晶の光学およびシンチレーション特性

Optical and Scintillation Properties of Pb-doped β -Ga₂O₃ Single Crystals

奈良先端科学技術大学院大学¹, 産業技術総合研究所², [○]國方 俊彰¹,

木村 大海², 岡崎 魁¹, 加藤 匠¹, 中内 大介¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, AIST², [○]Toshiaki Kunikata¹, Hiromi Kimura², Kai Okazaki¹,

Takumi Kato¹, Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: kunikata.toshiaki.kt1@ms.naist.jp

シンチレータは電離放射線を可視光に変換する光学材料の一つであり、医療分野やセキュリティ分野等の様々な分野で応用されている。シンチレータの中でも荷電粒子計測用に用いられるものは高い発光量、短い蛍光寿命、荷電粒子計測に適した実効原子番号等を有することが求められる。既報[1]において β -Ga₂O₃ 単結晶のシンチレーション特性を評価した結果、高い発光量及び短い蛍光寿命が確認されたことから、 β -Ga₂O₃ は荷電粒子計測用シンチレータとして有用であると考えられる。一方で β -Ga₂O₃ シンチレータの発光量向上を目的に不純物を添加することが検討されている。既報によるとフローティングゾーン (FZ) 法により作製した異なる元素の ns² イオンを添加した β -Ga₂O₃ 単結晶のシンチレーション特性の評価を行い、Pb 添加によって β -Ga₂O₃ 単結晶のシンチレーション特性が向上したことが確認された[2]。しかしながら、Pb 添加 β -Ga₂O₃ 単結晶におけるシンチレーション特性のドーパント濃度依存性に関する研究は行われていない。本研究では FZ 法によって異なるドーパント濃度 (0.01, 0.05, 0.1, 0.5, 1.0 %) の Pb 添加 β -Ga₂O₃ 単結晶を作製し、それらの光学及びシンチレーション特性の評価を試みた。

Fig. 1 に作製した β -Ga₂O₃ 単結晶の外観を示す。作製したサンプルは室内光下で高い透光性及び 254 nm の UV 光照射下で青色の発光を示した。Fig. 2 に ²⁴¹Am 線源を用いて β -Ga₂O₃ 単結晶及び参照サンプルである Ce 添加 Gd₂SiO₅ (Ce:GSO) に対する α 線照射時のパルス波高スペクトルの結果を示す。参照サンプルとの比較により発光量を算出したところ、作製したサンプルの中で 0.05 % 及び 0.1 % Pb 添加 β -Ga₂O₃ 単結晶が最も高い発光量を示し、約 2,200 photons/5.5 MeV- α と見積もられた。その他の詳細な結果については発表当日に報告する。

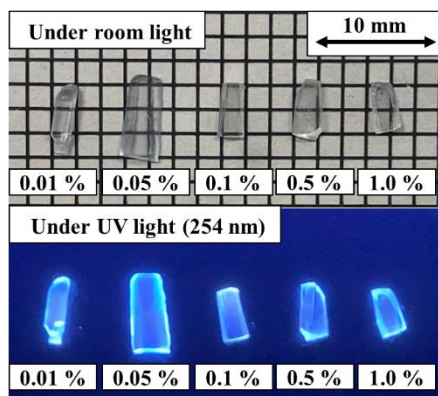


Figure 1 Appearances of Pb-doped β -Ga₂O₃ single crystals under room light and UV light (254 nm).

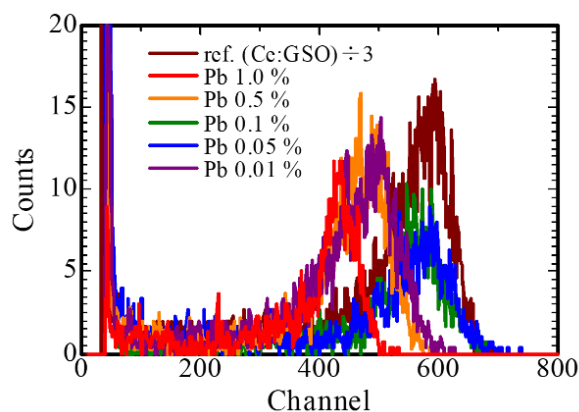


Figure 2 Pulse height spectra (α -ray irradiation from ²⁴¹Am) of the reference Ce:GSO and the obtained single crystals

[1] T. Yanagida, et al., Appl. Phys. Express. **9** (2016) 42601.

[2] Y. Usui, et al., Mater. Res. Bull. **90** (2017) 266.

Nd 添加 SrTa₂O₆ 単結晶の近赤外シンチレーション特性

Near-infrared scintillation properties of Nd-doped SrTa₂O₆ single crystals

福岡大工¹, 奈良先端大², ○富永雄太^{1,2}, 加藤匠², 西川晃弘², 宮崎慧一郎², 中内大介²,
河口範明², 柳田健之²

Fukuoka Univ.¹, NAIST.², ○Yuta Tominaga^{1,2}, Takumi Kato², Akihiro Nishikawa²,
Keiichiro Miyazaki², Daisuke Nakauchi², Noriaki Kawaguchi², Takayuki Yanagida²

E-mail: y.tominaga.fo@fukuoka-u.ac.jp

シンチレータは電離放射線を照射した際に光子を生じる物質であり、光電子増倍管や Si フォトダイオードなどの光検出器と組み合わせることで医療、環境測定、セキュリティ等に用いられている。近年では、近赤外領域に感度を持つ光検出器の開発に伴い、近赤外発光を有するシンチレータが注目されている。近赤外光は、血液や水分を多く含む生体軟組織に対して高い透過性を持つ。この特性により、生体イメージング技術への応用が進められている [1]。また、近赤外光はチェレンコフ光と容易に区別できるため、原子炉周辺などの高線量場モニタリングへの応用も期待されている [2]。本研究では高い実効原子番号 (66.2) を有する SrTa₂O₆ 単結晶に近赤外領域で発光する Nd を 0.1%、0.3%、1.0%、3.0% 添加した試料を Floating Zone 法を用いて作製し、フォトルミネッセンス及びシンチレーション特性の評価を行った。

Fig. 1 に 1.0% Nd 添加 SrTa₂O₆ 単結晶の PL 励起蛍光スペクトルを示す。900、1060、1350 nm 付近に近赤外発光が確認された。この発光は Nd³⁺ の 4f-4f 遷移に由来する発光と考えられる [3]。Fig. 2 に 1.0% Nd 添加 SrTa₂O₆ 単結晶のシンチレーションスペクトルを示す。PL 特性と同様の波長領域において発光が確認され [4]、Nd 添加による近赤外シンチレータとしての可能性が示唆された。

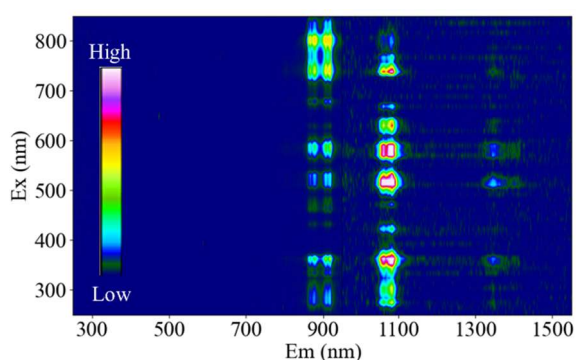


Fig. 1 PL excitation and emission map of the 1.0% Nd-doped SrTa₂O₆ single crystal.

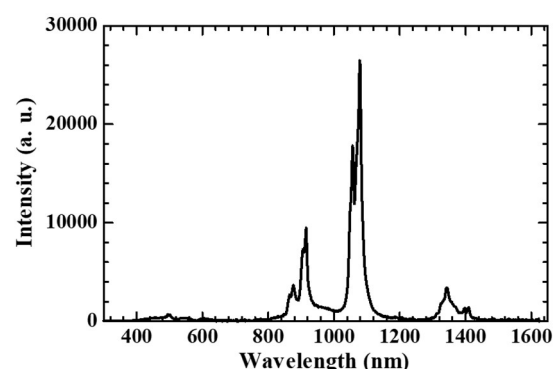


Fig. 2 Scintillation spectrum of 1.0% Nd-doped SrTa₂O₆ single crystal.

参考文献

- [1] L. Archambault et al., Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys. 78 (2010) 280.
- [2] E. Takada et al., J. Nucl. Sci. Technol., 36 (1999) 641.
- [3] K. Ichiba et al., J. Lumin., 277 (2025) 120938.
- [4] A. Nishikawa et al., Appl. Radiat. Isot., 214 (2024) 111559.

Ti 添加 Y₃Al₅O₁₂ 単結晶の放射線誘起蛍光特性

Radioluminescence properties of Ti-doped Y₃Al₅O₁₂ single crystals

奈良先端科学技術大学院大学, ○林 尚輝, 國方 俊彰, 市場 賢政, 加藤 匠,
中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, ○Naoki Hayashi, Toshiaki Kunikata, Kensei Ichiba, Takumi Kato,
Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: hayashi.naoki.hs6@naist.ac.jp

シンチレータとはX線やガンマ線などの電離放射線を多数の低エネルギー光子に変換する蛍光材料の一つであり、光電子増倍管やフォトダイオードなどの光検出器と組み合わせることによって放射線検出器として用いられている。シンチレータは単結晶やガラス、透明セラミックスなどの材料形態があるが、他の材料形態と比較して発光効率や透光性が高いことから主に単結晶が用いられている。応用先に応じて様々な単結晶シンチレータが検討されており、中でも酸化ガリウム材料である Y₃Al₅O₁₂ (YAG)単結晶は優れた光学特性及び化学的安定性を有することから、希土類元素を添加した YAG シンチレータについては精力的に研究されてきた。一方で遷移金属元素を添加した YAG のシンチレーション特性に関しては研究例が少ないのが現状である。特に遷移金属元素である Ti を添加した YAG 単結晶は可視域で発光を示すものの、Ti の濃度依存性に関する研究例はない。そこで本研究では異なる濃度の Ti イオンを添加した YAG 単結晶をフローティングゾーン(FZ)法により作製し、それらの放射線誘起蛍光特性について評価を行った。

Fig.1 に室内光下および UV 光 (254 nm) 照射下における Ti 添加 YAG 単結晶の外観を示す。全サンプルにおいて、室内光下で高い透光性を示し、UV 光照射下で青緑色の発光が確認された。Fig.2 に X 線励起時におけるシンチレーションスペクトルを示す。全サンプルにおいて、300–400 nm 付近及び 400–600 nm 付近に発光ピークが観測された。300–400 nm 付近の発光ピークは母材由来のアンチサイト欠陥もしくは自己束縛励起子に起因し[1]、400–600 nm 付近の発光ピークは Ti⁴⁺ および O²⁻間の電荷移動遷移に起因すると考えられる[2]。その他の光学及びシンチレーション特性の詳細は当日報告する。

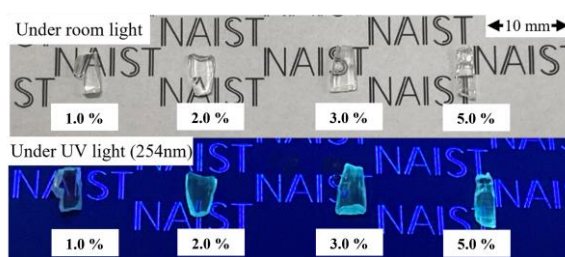


Fig 1. Appearances of the Ti:YAG single crystals under room light (top) and under UV light (254nm) (bottom).

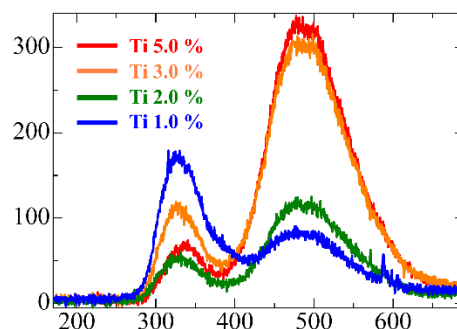


Fig 2. X-ray induced scintillation spectra of Ti:YAG single crystals.

参考文献

- [1] Y. Fujimoto, T. Yanagida, H. Yagi, T. Yanagidani, V. Chani, Opt. Mater. 36, 1926 (2014).
- [2] Y. Takebuchi, H. Fukushima, T. Kato, D. Nakauchi, N. Kawaguchi, T. Yanagida, Radiat. Phys. Chem. 177, 109163 (2020).

Yb 添加 $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ シンチレータの性能評価

Performance Evaluation of Yb-doped $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ Scintillators

奈良先端大[○]高橋遼成, 岡崎魁, 中内大介, 加藤匠, 河口範明, 柳田健之

NAIST[○]Ryosei Takahashi, Kai Okazaki, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi,

Takayuki Yanagida

E-mail: takahashi.ryosei.tn7@naist.ac.jp

シンチレータは電離放射線のエネルギーを吸収したとき、即座に低エネルギーの光を放出する蛍光体である。近年では、近赤外領域に感度を有する光電変換素子である InGaAs や HgCdTe フォトダイオードの性能向上に伴い、近赤外発光シンチレータの開発が関心を集めている。近赤外光は高線量場で発生するチェレンコフ光との区別が容易であることに加え、Si 系光ファイバー中を比較的効率よく伝送する。これらの利点から、光ファイバーと近赤外発光シンチレータを組み合わせた高線量場の遠隔線量計測が提案されている [1]。

Yb を含んだ化合物は、1000-1100 nm の近赤外発光を示すことが報告されており [2, 3]、上に記した応用に適している。本研究では、 $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ (CTGS) を母材として選定した。CTGS は重元素である Ta を含み、51 の実効原子番号を有しているため、X 線や γ 線に対する比較的高い吸収能が期待される。本発表では高線量場の遠隔線量計測の開発を目指して、近赤外光を呈する Yb を発光中心として添加した CTGS (Yb:CTGS) 結晶の育成と、その詳細な蛍光および X 線量率応答特性について報告する。

Figure 1 に 0.5、1、2、5 at% Yb:CTGS の X 線回折 (XRD) パターンを示す。全てのサンプルとリファレンス (Crystallography Open Database (COD): 8100499) の回折パターンは一致した。そのため、合成したサンプルは全てランガサイト構造 (三方晶系、 $P321$) に帰属される。Figure 2 は Yb:CTGS サンプルを用いて測定した X 線誘起蛍光スペクトルである。全てのサンプルにおいて、300-600 nm にブロードな発光ピークが確認された。既報の Ta 含有酸化物が同様の発光を示したため [4]、これらの発光ピークは母材である CTGS に由来すると考えられる。近赤外領域においては、全てのサンプルで 900-1100 nm にシャープな発光ピークを確認した。Yb 含有化合物はこの波長帯で発光を示すことが知られているため [2, 3]、これらの発光は Yb^{3+} の 4f-4f 遷移に由来すると考えられる。本発表では、合成した Yb:CTGS サンプルの詳細な蛍光および線量率応答特性を報告する。

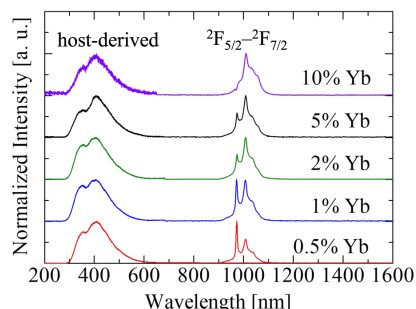
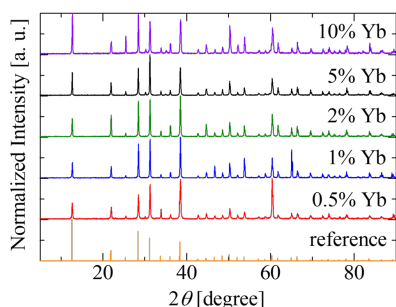


Fig. 1. XRD patterns of Yb:CTGS samples and reference (COD: 8100499). Fig. 2. X-ray-induced emission spectra of Yb:CTGS samples.

参考文献

- [1] E. Takada et al., J. Nucl. Sci. Technol. 36, 641 (1999). [2] Y. Feng et al., J. Am. Ceram. Soc. 107, 4134 (2024). [3] M. Ferhi et al., Radiat. Meas. 46, 1033 (2011). [4] O. Voloshyna et al., Mater. Sci. Eng., B 178, 1491 (2013).

Dy 添加 SrLu₂O₄ 単結晶の フォトルミネッセンスおよびシンチレーション特性

Photoluminescence and Scintillation Properties of Dy-doped SrLu₂O₄ Single Crystals

奈良先端大¹, 九州大² [○]遠藤 優介¹, 市場 賢政¹, 中内 大介¹, 加藤 匠¹, 宮崎 慧一郎¹,
渡辺 賢一², 河口 範明¹, 柳田 健之²

NAIST¹, Kyushu Univ.², [○]Yusuke Endo¹, Kensei Ichiba¹, Daisuke Nakauchi¹, Takumi Kato¹,
Keiichiro Miyazaki¹, Kenichi Watanabe², Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: endo.yusuke.ey5@ms.naist.jp

シンチレータは X 線などの電離放射線を吸収し、低エネルギー光子へ即発的に変換する蛍光体材料であり、Si フォトダイオード (PD) などの光検出器と組み合わせることで、放射線計測に用いられる。X 線検出器に搭載されるシンチレータには、高密度や大きい実効原子番号 (Z_{eff})、高い化学的安定性、高い透光性などが求められる。しかしながら実用材料である CdWO₄ や Tl:CsI、Pr:Gd₂O₂S はそれぞれ有害元素 (Cd) の含有や潮解性、透光性に課題を有す。当該課題を解決する新たなシンチレータの開発に向けて本研究では、高密度 (8.4 g/cm³) かつ大きな Z_{eff} (65)、高い化学的安定性を有する SrLu₂O₄ 単結晶に着目した。これまでに Ce [1]、Pr [2]、Tb [3] 添加 SrLu₂O₄ 単結晶のシンチレーション特性が報告されており、Tb 添加により CdWO₄ を上回る発光量が示された。そのため Tb の電子配置に類似した Dy を添加することで、高発光量と Tb³⁺ よりも Si-PD に適した発光波長を実現しつつ、上記課題を解決できるシンチレータの開発が期待できる。

Figure 1 に Sr(Lu_{1-x}Dy_x)₂O₄ サンプルの X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。 $x \geq 0.0001$ サンプルにおいて Dy³⁺ の 4f-4f 遷移に由来する発光ピークが示された。Figure 2 に γ 線照射下におけるパルス波高スペクトルを示す。観測された光電吸収ピークから発光量を算出したところ $x = 0.0005$ サンプルにおいて、19,200 photons/MeV と最も高い発光量が示された。

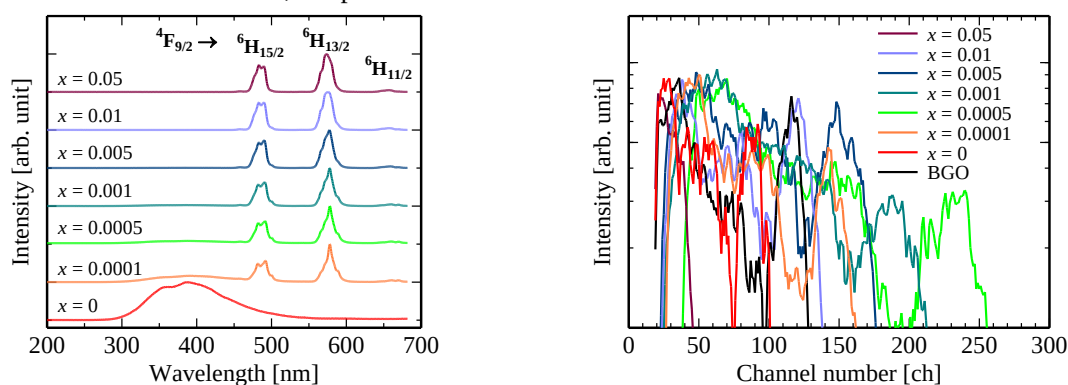


Figure 1 X-ray-induced scintillation spectra of Figure 2 Pulse height spectra of Sr(Lu_{1-x}Dy_x)₂O₄ samples under γ -ray (662 keV).
Sr(Lu_{1-x}Dy_x)₂O₄ samples.

参考文献 [1] H. Fukushima et al., Solid State Sci., 110, 106471, (2020). [2] H. Fukushima et al., Opt. Mater., 128, 112385, (2022). [3] H. Kimura et al., Sens. Mater., 36 507, (2024).

Pr 添加 SrWO₄ 結晶の放射線誘起蛍光特性

Radiation-induced luminescence properties of Pr-doped SrWO₄ crystals

奈良先端大 °岡崎 魁, 中内 大介, 加藤 匠, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST °Kai Okazaki, Daisuke Nakauchi, Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: okazaki.kai.of0@ms.naist.jp

シンチレータとは X 線や γ 線等の電離放射線のエネルギーを吸収し、即発的に低エネルギーの光を発する蛍光体であり、医療や宇宙、セキュリティ、資源探査分野など多岐に渡る分野で利用されている。これまで主に紫外可視発光シンチレータが精力的に開発されてきたが、近年近赤外域に感度を持つ光検出器の発展に伴い、近赤外発光シンチレータの開発が注目を集め始めている。近赤外光は生体軟組織に対する透過性が高く、放射線治療時の照射線量モニタリングや生体イメージング等への応用に優位性を有する [1,2]。加えて、一般的な Si 系光ファイバ中での光の伝送損失が小さいため、光ファイバを用いた遠隔線量計測への応用にも利点を有する。本研究では、近赤外発光シンチレータとして、X・ γ 線との高い相互作用断面積を有し、また放射線耐性の高い SrWO₄ に着目した。赤-近赤外域に発光準位を持つことが知られている Pr³⁺を発光中心として添加した結晶の合成を行い、フォトルミネッセンス及びシンチレーション特性評価を行った。

Figure 1 に合成した 0.1% Pr 添加 SrWO₄ サンプルとリファレンスの X 線回折パターンを示す。合成したサンプルの回折パターンはリファレンスと一致し、目的物の単相であることが確認された。Figure 2 に X 線誘起シンチレーションスペクトルを示す。850、1000、1200、1300、1500 nm 付近に発光が観測された。これらは Pr³⁺の 4f-4f 遷移に典型的な発光である [3]。本講演では、当材料の光学および放射線応答特性の詳細な評価結果と Pr 濃度依存性を報告する。

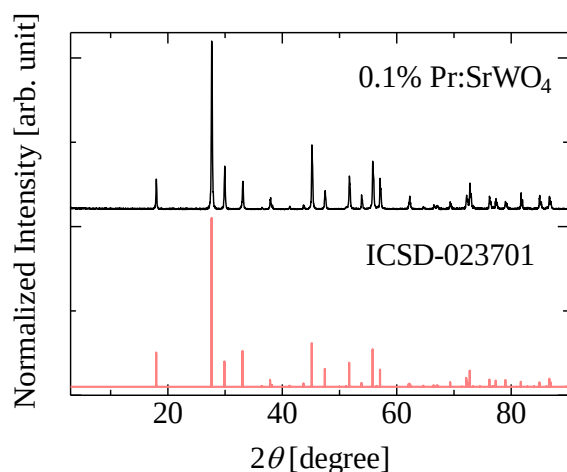


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of Pr-doped SrWO₄.

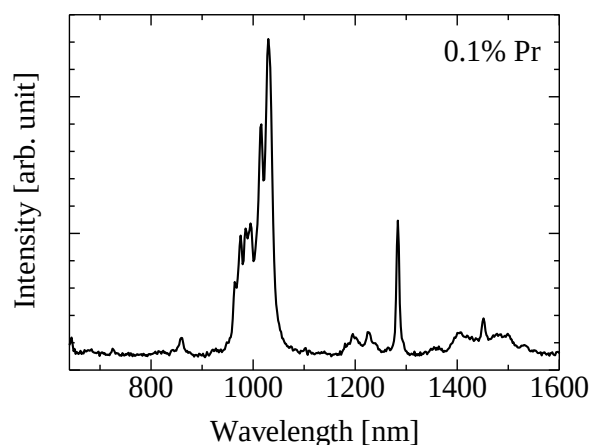


Fig. 2. X-ray-induced scintillation spectra of Pr-doped SrWO₄.

[1] L. Archambault et al., Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys. 78 (2010) 280.

[2] Xue et al., ACS Appl. Mater. Interfaces. 9 (2017) 22132.

[3] G. Jia et al., Appl. Phys. B 90 (2008) 497.

Mn 添加 $\text{Mg}_3\text{Al}_2(\text{Si}, \text{Ge})_3\text{O}_{12}$ の蛍光特性評価

Evaluation of photoluminescence properties of Mn-doped $\text{Mg}_3\text{Al}_2(\text{Si}, \text{Ge})_3\text{O}_{12}$.

福井高専¹, 産総研² ○福嶋 宏之¹, 谷口 夏穂¹, 平野 陽祐¹, 松田 和希¹, 木村 大海²

NIT-Fukui¹, AIST² ○Fukushima Hiroyuki¹, Kaho Taniguchi¹, Yosuke Hirano¹, Kazuki Matsuta¹, and Hiromi Kimura²

E-mail: fukushima@fukui-nct.ac.jp

電離放射線のエネルギーが物質に吸収されると、そのエネルギーは電子や正孔のトラップという形によって一時的に保存される。その後、外部からの熱エネルギーによって電子や正孔が解放され、発光中心で再結合し、発せられる蛍光のことを熱刺激蛍光 (TSL) と呼ぶ。この TSL 強度が電離放射線照射量に比例すれば被ばく線量計として利用することができるため、TSL を呈する新規蛍光材料の探索が行われている。軽元素で構成されている $\text{Mg}_3\text{Al}_2(\text{Si}, \text{Ge})_3\text{O}_{12}$ の蛍光報告例は殆ど無いものの、Mg を Ca に置換した $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ では Mn 添加によって蛍光を呈することが報告されている。本研究では 1%Mn 添加 $\text{Mg}_3\text{Al}_2(\text{Si}, \text{Ge})_3\text{O}_{12}$ を合成し、その蛍光および TSL 特性の評価を行った。

図 1 に 1%Mn 添加 $\text{Mg}_3\text{Al}_2(\text{Si}, \text{Ge})_3\text{O}_{12}$ の PL スペクトルを示す。 $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$ では 650 nm 付近を中心に、蛍光が観測された。その蛍光スペクトル形状は、650 nm にシャープなピークと、その周辺にブロードなものであり、これらは Mn^{2+} と Mn^{4+} による蛍光を示唆している¹⁾。 $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ においても 650 nm 付近を中心に蛍光が観測され、 $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$ とは異なり、シャープなピークは殆ど観測されなかった。図 1 における蛍光スペクトルは $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$ 、 $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ 共に 280 nm 付近で励起している。 $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$ では励起ピークが 280、360、440 nm 付近にあり、 $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ では励起ピークが 280 nm 付近のみであった。図 2 に 1%Mn 添加 $\text{Mg}_3\text{Al}_2(\text{Si}, \text{Ge})_3\text{O}_{12}$ へ 1000 mGy 照射後の TSL グローカーブを示す。 $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$ では 50、100、200、300 °C 付近に、 $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ では 125 °C 付近に TSL グローピークが出現した。本発表では詳細な蛍光および TSL 特性に関する報告を行う予定である。

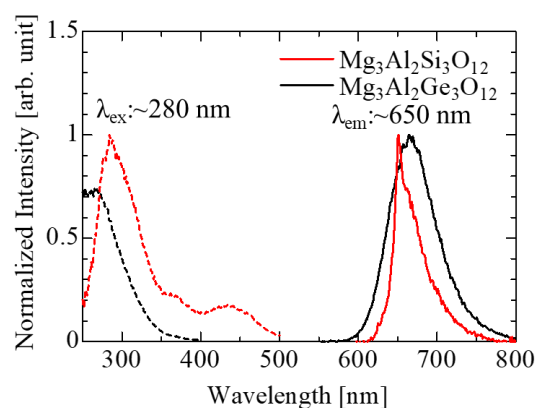


Fig. 1 Photoluminescence spectra of 1% Mn-doped $\text{Mg}_3\text{Al}_2(\text{Si}, \text{Ge})_3\text{O}_{12}$.

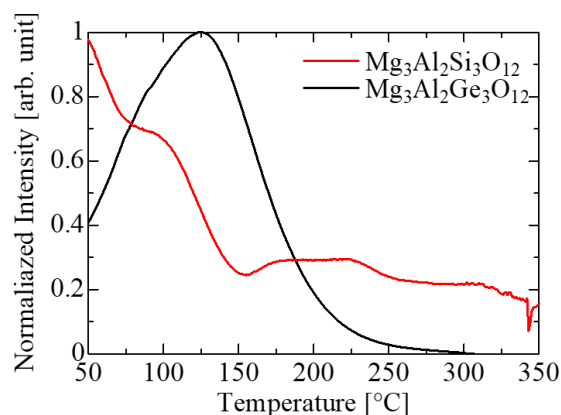


Fig. 2 TSL glow curves of 1% Mn-doped $\text{Mg}_3\text{Al}_2(\text{Si}, \text{Ge})_3\text{O}_{12}$ after 1000 mGy irradiation.

1) L. Dong, L. Zhang, Y. Jia, B. Shao, W. Lü, S. Zhao, and H. You, ACS Sustain. Chem. Eng. 8, 3357 (2020).

Ti 添加 LiGaO₂ 単結晶の作製条件の検討とシンチレーション特性評価

Investigation of growth conditions and scintillation properties of

Ti-doped LiGaO₂ single crystals

宇都宮大¹, 産総研², 奈良先端大³ ◦竹渕 優馬¹, 木村 大海², 手塚 慶太郎¹,

八巻 和宏¹, 柳田 健之³

Utsunomiya Univ.¹, AIST², NAIST³, ◦Yuma Takebuchi¹, Hiromi Kimura², Keitaro Tezuka¹,

Kazuhiro Yamaki¹, Takayuki Yanagida³

E-mail: takebuchi@a.utsunomiya-u.ac.jp

中性子は原子核と相互作用を起こす性質を持っており、中性子検出の技術は水素やリチウムなどの軽元素の検出に利用されている。これまで中性子検出には ³He を検出媒体とした中性子検出器が広く用いられていたが、主にセキュリティ分野での中性子検出器の需要増大によって ³He の供給不足が懸念されている。そのためこれに代わる検出器として、中性子シンチレータの開発が期待されている。我々はこれまでにフローティングゾーン法により作製した Ti 添加 LiGaO₂ 単結晶が約 7000 ph/n と比較的大きい発光量を持つことを報告している [1]。本研究では Ti 添加 LiGaO₂ 試料の単結晶育成条件を検討したところ発光量の向上が確認できたため、これについて報告する。

図 1 に 1%Ti 添加試料の X 線照射時のシンチレーションスペクトルを示す。作製した試料から 460 nm 付近に発光を呈した。先行研究との比較より、この発光起源は Ti⁴⁺-O²⁻の電荷移動遷移に由来するものだと考えられる [2]。図 2 に 1%Ti 添加試料の中性子照射時のパルス波高値スペクトルを示す。作製した試料から 410 ch 付近に熱中性子ピークを観測した。市販の Eu 添加 LiCaAlF₆ を用いて発光量を算出したところ、約 15000 ph/n と発光量の向上を確認した。

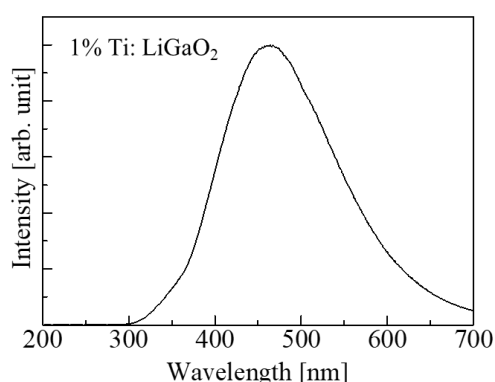


Fig. 1. X-ray-induced scintillation spectra of Ti-doped LiGaO₂.

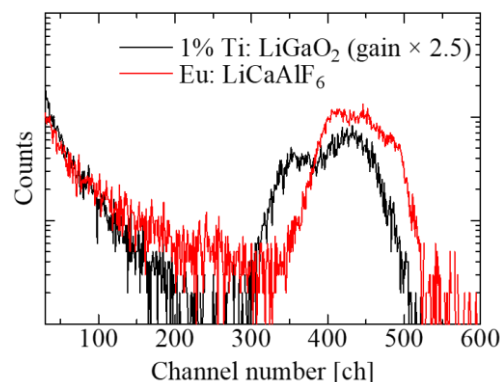


Fig. 2. ²⁵²Cf irradiated pulse height spectra of Ti-doped LiGaO₂ and Eu-doped LiCaAlF₆.

参考文献

[1] Y. Takebuchi et al., Radiat. Phys. Chem., 223, 111917 (2024).

[2] P.S. Page et al., **130**, 882 (2010).

Tb 添加 NaLa(WO₄)₂ 単結晶の放射線誘起蛍光特性に対する Tb 濃度の影響

Tb-concentration Dependence on Radiation-induced Scintillation Properties of Tb-doped NaLa(WO₄)₂ Single Crystals

東京理科大¹, 産総研², 奈良先端大³, ○牧野 滉大¹, 木村 大海², 市場 賢政³,
白鳥 大毅¹, 藤原 健², 加藤 英俊², 福地 裕¹, 柳田 健之³

TUS¹, AIST², NAIST³, Kodai Makino¹, Hiromi Kimura², Kensei Ichiba³, Daiki Shiratori¹,
Takeshi Fujiwara², Hidetoshi Kato², Yutaka Fukuchi¹, Takayuki Yanagida³

E-mail: 4324556@ed.tus.ac.jp

シンチレータは、放射線のエネルギーを吸収し、即発的に紫外線や可視光に変換する特性を持つ蛍光材料である。主に放射線検出器に使用され、医療やセキュリティ分野における非破壊検査に幅広く応用されている。近年、非破壊検査対象物の大型化に伴い、高エネルギーX線に対して高い検出効率を持つ重元素を含むシンチレータの開発が求められている[1]。NaLa(WO₄)₂は単結晶育成が可能であり、高い実効原子番号 ($Z_{\text{eff}}=66.01$) と密度 (6.5 g/cm³) を有するため、これらの用途に適したシンチレータ材料となり得る。本研究では、Tb 添加濃度の異なる NaLa(WO₄)₂ 単結晶を Floating Zone 法により作製し、その光学およびシンチレーション特性について評価・解析を行った。

Figure 1 にシンチレーションスペクトルを示す。550 nm 付近に Tb³⁺の $4f-4f$ 遷移に起因する複数の鋭い発光が見られた[2]。Figure 2 はシンチレーション減衰曲線を示しており、指数関数近似による減衰時定数が約 0.4–0.6 ms 程度であったことから、当該発光は Tb³⁺によるものであると考えられる。本講演では、Tb 添加濃度の変化に伴う NaLa(WO₄)₂ 単結晶の光学・シンチレーション特性の詳細な解析結果を報告する。

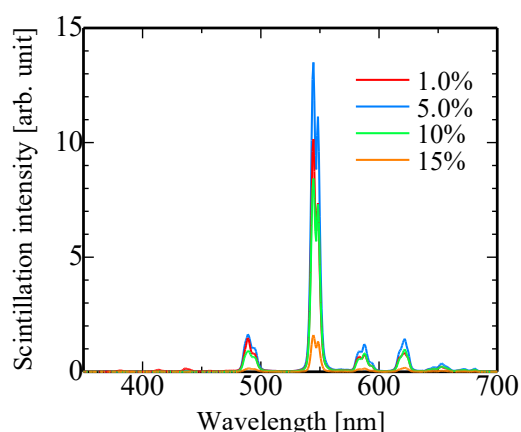


Figure 2 X-ray induced scintillation spectra of Tb-doped NaLa(WO₄)₂ single crystals.

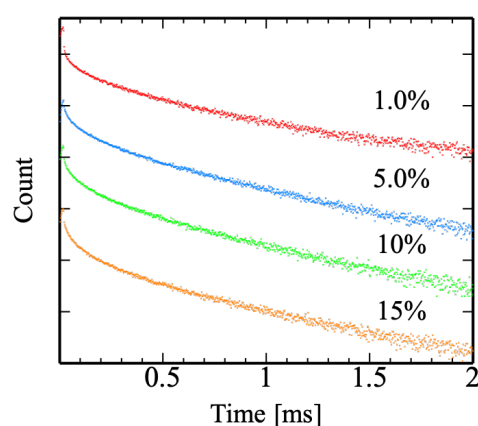


Figure 1 Scintillation decay curves of Tb-doped NaLa(WO₄)₂ single crystals.

参考文献

[1] Y. Douguchi, et al., Radiat. Prot. Dosimetry, **84**, 143 (1999).

[2] K. Ichiba, et al., J. Lumin., **266** 120327 (2024).

YAG 結晶を析出させたシリケート系ガラスのシンチレーション特性 Scintillation properties on silicate glasses with precipitated YAG nanocrystals

東京理科大¹, 産総研², 宇都宮大³

°(M)打田伊吹¹, 白鳥 大毅¹, 木村 大海², 竹淵 優馬³, 福地 裕¹

TUS¹, AIST², Utsunomiya Univ.³

°Ibuki Uchida¹, Daiki Shiratori¹, Hiromi Kimura², Yuma Takebuchi³, Yutaka Fukuchi¹

E-mail: 4325513@ed.tus.ac.jp

シンチレータは、放射線のエネルギーを吸収し、即座に紫外線や可視光に変換する蛍光材料で、医療やセキュリティ分野で広く用いられている。近年、結晶シンチレータよりも低コスト化が見込めるガラスシンチレータに注目が集まっており、特に高発光量を目的とした多角的な材料探索が精力的に進められている。本研究ではガラスにおけるシンチレーション効率改善の観点から、結晶化ガラスに着目し、異なる温度で熔融させることで析出結晶量を調整した $40\text{SiO}_2\text{-}16\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}8\text{Y}_2\text{O}_3\text{-}24\text{BaO-}12\text{MgO-}0.3\text{CeF}_3$ ガラスおよび結晶化ガラスを作製し、その光学・シンチレーション特性における結晶化の影響について評価・解析を行った。

Figure 1 に 1500 °C で熔融させたサンプルの透過スペクトルを示す。この熔融温度では試料は完全にガラス体であり、可視-近赤外域において約 80% 程度の高い透過率を有している。また紫外域に着目すると、400 nm 付近に内在 Ce イオンに起因すると思われる明瞭な吸収帯を確認でき、この吸収により試料が黄色を呈している。PL スペクトル同様に Ce^{3+} の $4f\text{-}5d$ 遷移に起因していると考えられる。Figure 2 は同ガラス試料の PL 励起・蛍光スペクトルを示す。励起波長 340 nm 付近の紫外光励起下において、観測波長 430 nm 付近にブロードな発光が観測された。これは Ce^{3+} の $5d\text{-}4f$ 遷移に由来する典型的な発光である。本講演では、熔融温度の変化に伴う光学およびシンチレーション特性の変化について詳細に報告する。

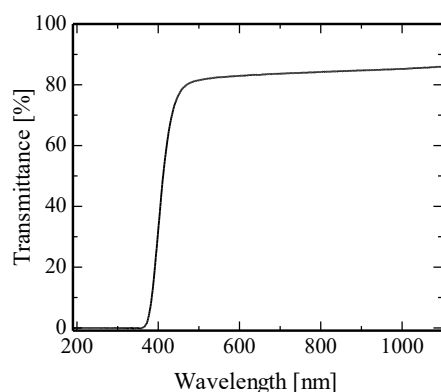


Figure 1 transmission spectrum of $40\text{SiO}_2\text{-}16\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}8\text{Y}_2\text{O}_3\text{-}24\text{BaO-}12\text{MgO-}0.3\text{CeF}_3$ glass sample molten at 1500 °C

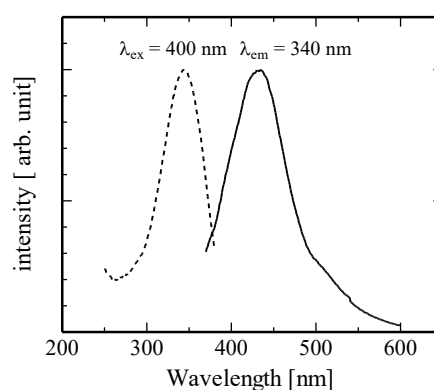


Figure 2 PL excitation/emission spectra of $40\text{SiO}_2\text{-}16\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}8\text{Y}_2\text{O}_3\text{-}24\text{BaO-}12\text{MgO-}0.3\text{CeF}_3$ glass sample molten at 1500 °C

参考文献

[1] Lin, J., Zhang, R., Wang, M., J. Non-Cryst. Solids, 585, 121530 (2022).

カリウムアルミノリン酸塩ガラスのドシメータ特性における Gd 添加の影響

Effect of Gd addition on dosimeter properties of potassium aluminophosphate glasses

東京理科大¹, 産総研², 金沢工大³, 奈良先端大⁴○大木 瑛心¹, 白鳥 大毅¹, 木村 大海², 岡田 豪³, 福地 裕¹, 柳田 健之⁴TUS¹, AIST², KIT³, NAIST⁴, °Eishin Oki¹, Daiki Shiratori¹, Hiromi Kimura², Go Okada³,Yutaka Fukuchi¹, Takayuki Yanagida⁴

E-mail: 4325517@ed.tus.ac.jp

2011年に発生した東日本大震災以来、放射線に関する注目は非常に高まり、個人被爆線量計の需要は急激に成長した。世界的に見た場合、このようなドシメータとして用いられる材料は単結晶やセラミックが主流であるが、加工性や組成設計の自由度の高さからガラス材料に対する期待は高く、実際にリン酸塩ガラス材料がドシメータ材料として実用化されている [1]。我々は以前の講演会にて、優れたドシメータ特性を有することが報告されている Ce 添加 $\text{K}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ ガラスにおいて、K-P 比がそのドシメータ特性に及ぼす影響について検討を行い、K リッチな $40\text{K}_2\text{O}-10\text{Al}_2\text{O}_3-50\text{P}_2\text{O}_5$ ガラスにおいて比較的優れたドシメータ特性が得られることを報告した。本研究では当該ガラスにおけるドシメータ特性のさらなる改善を目指し、Gd を添加することで発光効率の改善を試みた。今回はガラス組成中の Al と Gd の比率 (Al-Gd 比) を変えた際の光学特性およびドシメータ特性への影響について調査したので、その結果について報告する。

Al-Gd 比を系統的に変化させた $1\text{CeO}_2-40\text{K}_2\text{O}-(10-x)\text{Al}_2\text{O}_3-x\text{Gd}_2\text{O}_3-50\text{P}_2\text{O}_5$ ($x = 1, 2, 3, 5$) ガラス試料を熔融冷却法にて作製し、その光学特性及びドシメータ特性を評価した。Figure 1 は各試料の直線透過スペクトルを示しており、Gd 含有量の増加に伴って、 Ce^{3+} の $4f-5d$ 遷移に伴う吸収帯の裾が短波長側にシフトする傾向が見られた。これは、Gd の添加によって Ce^{3+} の局所的な環境が変化したためであると考えられる。Figure 2 は X 線照射後の TL グロー曲線を示している。いずれの試料も 100°C および 230°C 付近にピークを有しており、TL 強度は $x = 5$ の時に最も高い値を示した。これは Gd の導入が本系におけるドシメータ特性の改善効果を持つことを示唆している。

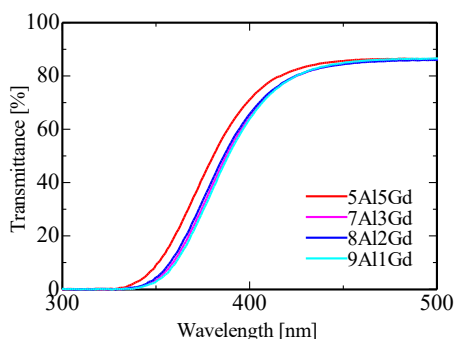


Figure 1 Inline transmission spectra of $1\text{CeO}_2-40\text{K}_2\text{O}-(10-x)\text{Al}_2\text{O}_3-x\text{Gd}_2\text{O}_3-50\text{P}_2\text{O}_5$ glasses.

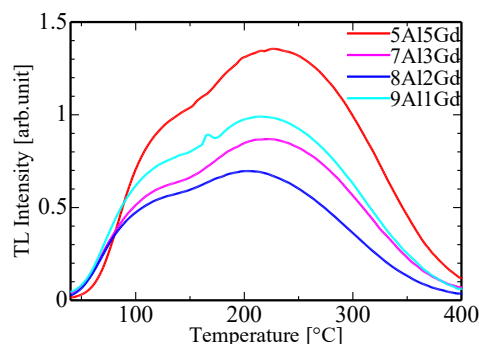


Figure 2 TL glow curves of $1\text{CeO}_2-40\text{K}_2\text{O}-(10-x)\text{Al}_2\text{O}_3-x\text{Gd}_2\text{O}_3-50\text{P}_2\text{O}_5$ glasses after 100 Gy of X-ray irradiation.

参考文献

[1] Y. Miyamoto, et al., Radiat. Meas., 46, 1480-1483 (2011).

Eu:Ca₅(PO₄)₂SiO₄ セラミックスの RPL 特性評価

Evaluation of RPL properties on Eu-doped Ca₅(PO₄)₂SiO₄ ceramics

東京理科大¹, 産総研², 金沢工大³

○早乙女 倭斗¹, 白鳥 大毅¹, 木村 大海², 岡田 豪³, 福地 裕¹

TUS¹, AIST², KIT³,

°Yamato Saotome¹, Daiki Shiratori¹, Hiromi Kimura², Go Okada³, Yutaka Fukuchi¹

E-mail: 4324524@ed.tus.ac.jp

ラジオフォトルミネッセンス (RPL) は放射線誘起発光現象の一つであり、放射線の照射によって生成する発光中心の数が照射された放射線量に比例するため、その発光強度を測定することで被曝線量の見積もることができる。また、近年では放射線量計測用途だけにとどまらず、光記憶素子や高解像度放射線イメージングなどの幅広い分野での応用が期待されている[1]。RPL 材料には高感度・広線量域応答に加え、熱安定性や繰り返し読出し後の信号保持などが求められるが、新規ホストの探索は依然として重要な課題である。本研究では、新たな RPL 材料の候補として、Eu を添加した Ca₅(PO₄)₂SiO₄ セラミックスに着目し、その光学特性と X 線照射下における各種 RPL 特性について評価を行った。

Figure 1 および Figure 2 は、試料に 100 Gy の X 線を照射する前後における 340 nm の光励起下の PL スペクトルを比較している。Figure 1 は 400–650 nm の範囲における発光強度の変化を示しており、X 線の照射によって Eu²⁺ の 5d–4f 遷移に起因する 500–600 nm の発光が新たに発現していることから、Eu³⁺ から Eu²⁺ への還元による RPL 現象を確認した。一方で、Figure 2 では、Eu³⁺ の ⁵D₀→⁷F_J によるシャープな発光が X 線照射後に顕著に減少しており、RPL 中心 (Eu²⁺) 形成に伴う Eu³⁺ の失活が生じているものと考えられる。本講演では、Eu を添加した Ca₅(PO₄)₂SiO₄ セラミックスにおける X 線照射下での RPL 応答に関する結果について詳細に報告する。

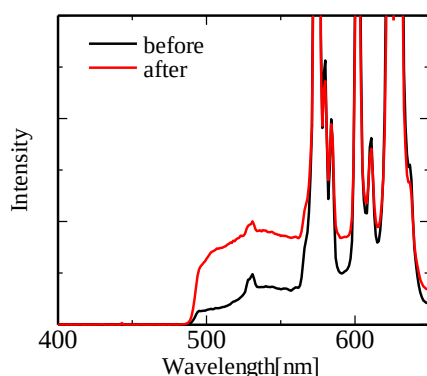


Figure 1 PL spectra of Eu-doped Ca₅(PO₄)₂SiO₄ (340 nm excitation) before/after X-ray exposure. (focused on changes of Eu²⁺ emission)

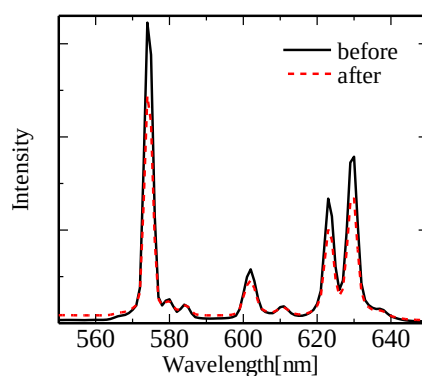


Figure 2 PL spectra of Eu-doped Ca₅(PO₄)₂SiO₄ (340 nm excitation) before/after X-ray exposure. (focused on changes of Eu³⁺ emission)

参考文献

[1] G. Okada, J. Ceram. Soc. Jpn, 129, 419-424(2021).

Eu:Na₂BaCa(PO₄)₂ セラミックスのラジオフォトルミネッセンス特性評価

Evaluation of radio-photoluminescence properties on Eu:Na₂BaCa(PO₄)₂ ceramics

東京理科大¹, 金沢工大², 産総研³, 奈良先端大⁴

○松永 拓己¹, 白鳥 大毅¹, 岡田 豪², 木村 大海³, 福地 裕¹, 柳田 健之⁴

TUS¹, KIT², AIST³, NAIST⁴

○Takumi Matsunaga¹, Daiki Shiratori¹, Go Okada², Hiromi Kimura³,

Yutaka Fukuchi¹, Takayuki Yanagida⁴

E-mail: 4325564@ed.tus.ac.jp

ラジオフォトルミネッセンス (RPL) は放射線誘起発光現象の一つであり、近年では放射線量計測用途だけにとどまらず、光記憶素子や高解像度放射線イメージングなどの幅広い分野での応用が期待されている。さらに、RPL を用いた線量計は、熱蛍光や輝尽蛍光を利用した線量計と比較したとき、被曝情報を保持したまま読み出しを行える点で優位性がある[1]。このような優れた機能を有している一方で、RPL を発現する材料の報告例はさほど多くなく、より優れた特性を示す材料探索を行う余地がある。本研究では新たに Eu を添加した Na₂BrCa(PO₄)₂ セラミックスが RPL 現象を示すことを明らかにし、その詳細な RPL 特性について検討・評価を行ったので報告する。

Figure 1 は異なる濃度の Eu 添加試料における X 線照射前の PL スペクトルである。いずれの試料においても Eu³⁺ の 4*f*-4*f* 遷移に起因する発光が確認でき、Eu 添加濃度が高くなるにつれて発光強度が強くなる傾向を示した。Figure 2 は異なる濃度の Eu 添加試料における X 線照射後の PL スペクトルである。X 線を照射すると 350–450 nm にかけて新たにブロードな発光帯が出現した。この発光は Eu²⁺ の 5*d*-4*f* 遷移に起因する発光として妥当であり、これは放射線の照射によって Eu の価数変化が生じ、RPL 現象が発現したことを示唆する結果である。また、発光強度は Eu 添加濃度が 0.3% で最大となり、さらに Eu 濃度が高くなると濃度消光によって発光強度は減少する傾向を示した。

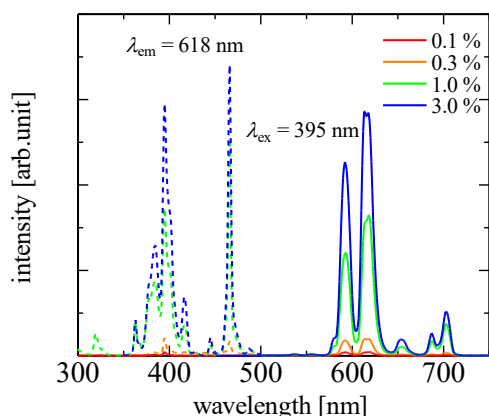


Figure 1 PL excitation/emission spectra of Eu-doped Na₂BaCa(PO₄)₂ ceramics before X-ray irradiation.

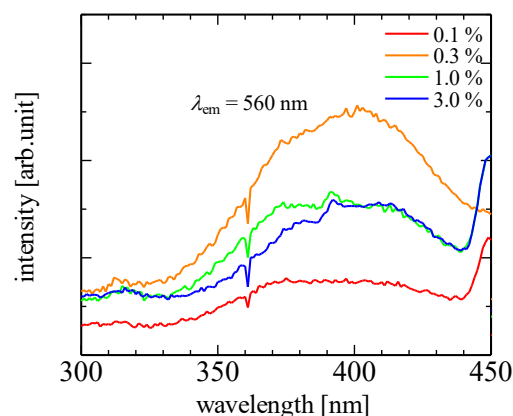


Figure 2 PL emission spectra of Eu-doped Na₂BaCa(PO₄)₂ ceramics after X-ray irradiation.

参考文献

- [1] G. Okada, J. Ceram. Soc. Jpn., **129**, 419–424 (2021).

NaF の欠陥型ラジオフォトルミネセンス特性の調査

Investigation of Defect-type Radiophotoluminescence Properties of NaF

奈良先端大, [○]加藤 匠, 中内 大介, 河口 範明, 柳田 健之

NAIST, [○]Takumi Kato, Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida,

E-mail: kato.takumi.ki5@ms.naist.jp

ラジオフォトルミネセンス (RPL) とは蓄積型蛍光の一種であり、放射線照射によって蛍光体内に新たにフォトルミネセンス (PL) 中心が生成される現象である。RPL 強度は吸収線量に比例することから、この現象は線量計測に利用されており、RPL を示す Ag 添加リン酸塩ガラスは個人被ばく線量計に検出素子として搭載されている [1]。RPL 現象は他の蓄積型蛍光である熱刺激蛍光や光刺激蛍光と異なり、比較的最近になって認識された現象ということもあり、現状、Ag 添加リン酸塩ガラス、Eu 添加・Sm 添加蛍光体、 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C,Mg}$ 、LiF などの限られた材料でしか報告されておらず、新規材料探索が今もなお行われている。

陰イオン欠陥の生成により RPL 特性を示す LiF と類似の組成である NaF は、X 線やイオンビーム、電子ビームの照射によって光学特性が変化することが知られている。例えば、 Ar^+ イオンビームによって F_2 中心による吸収が生じる [2]。また、 γ 線照射後の NaF で F_2 中心や F_3^+ 中心などの PL が報告されている [3]。しかしながら、これらの現象を統合的に観測している事例はなく、当該現象を RPL として線量計測へ応用する試みも行われていない。そこで本研究では、NaF に X 線を照射し、照射前後の PL 特性を比較し、その RPL 特性の調査した。また線量計測への応用が可能かどうか検討した。

図 1 に X 線照射後の NaF サンプルの PL 励起/蛍光マップを示す。発光帯が 630 nm (励起波長: 340, 500 nm) および 930 nm (励起波長: 310, 720 nm) 付近に検出された。それぞれの発光波長および励起波長から、前者は F_2 中心、後者は F_2^+ 中心に起因すると推察される [3]。図 2 に 500 nm で励起したときの発光を観測した場合の線量応答特性を示す。結果として 0.01 Gy から 500 Gy の範囲で線形応答を確認できた。本講演では各 RPL 中心の特性やビルドアップ現象などについても報告する。

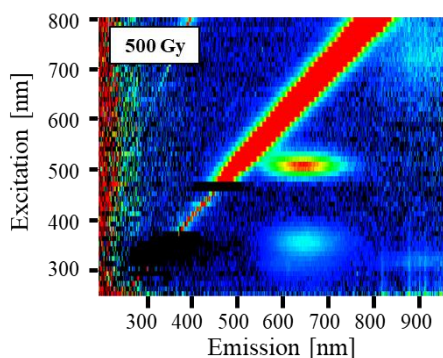


Fig. 1 PL excitation/emission map of NaF sample after X-ray irradiation.

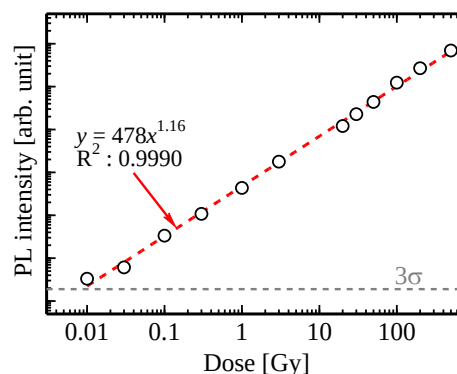


Fig. 2 Dose response property of NaF sample after X-ray irradiation.

参考文献

- [1] Y. Miyamoto et al., Radiat. Meas., 46 1480 (2011).
- [2] Q. Yan et al., NIMB., 115 415 (1996).
- [3] A.P. Voitovich et al., J. Lumin., 201 57 (2018).

Ag 添加 CsBr 透明セラミックスの RPL 特性評価

Evaluation of RPL properties of Ag-doped CsBr transparent ceramics

奈良先端大¹, 産総研², °星名 勇作¹, 江澤 喜朗¹, 加藤 匠¹, 木村 大海², 中内 大介¹,
河川 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, AIST², °Yusaku Hoshina¹, Haruaki Ezawa¹, Takumi Kato¹, Hiromi Kimura²,
Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: hoshina.yusaku.ib4@naist.ac.jp

ラジオフォトルミネッセンス (RPL) 材料は、放射線照射により新たな発光中心 (RPL 中心) を形成し、光励起による発光を呈する蛍光体であり、照射線量に比例して発光強度が増加するため、個人被ばく線量計やイメージングプレートに利用されている。また放射線照射により形成される RPL 中心は通常環境温度下で極めて安定であり、読み取り操作によっても影響を受けない一方、高温で加熱することで消滅する。従って、RPL 現象を利用した線量計は信号の繰り返し読み取りと積算線量の初期化が可能である点において利便性に優れている。これまで、さまざまな RPL 材料が報告されているが、そのほとんどはガラス材料であり、透明セラミックス材料に関する知見は僅少である。そこで本研究では Ag を添加した CsBr 透明セラミックスにおいて、Ag の RPL 現象を発見したため、その光学および RPL 特性について報告する。

Fig. 1 に作製した Ag 添加サンプルを示す。サンプルはすべて半透明であり、透光性が確認された。Fig. 2 に励起波長 340 nm での各サンプルの X 線 100 Gy 照射前後におけるフォトルミネッセンス (PL) スペクトルを示す。X 線照射前では 430 nm 付近に Ag^+-Ag^+ に起因する発光を確認した [1]。一方、100 Gy の X 線照射後では新たに 460 nm および 580 nm に Ag^0 、 Ag^{2+} 由来の発光を確認した [2, 3]。

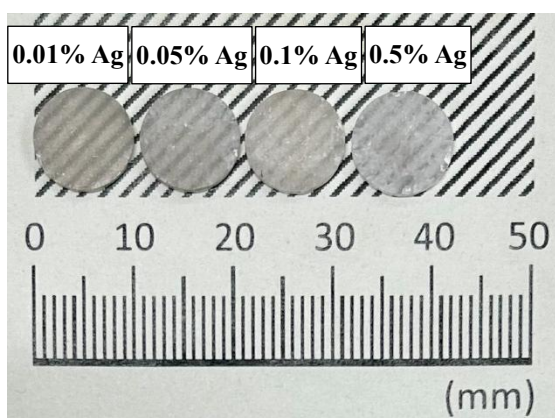


Fig. 1 Appearance of the produced Ag-doped CsBr transparent ceramics.

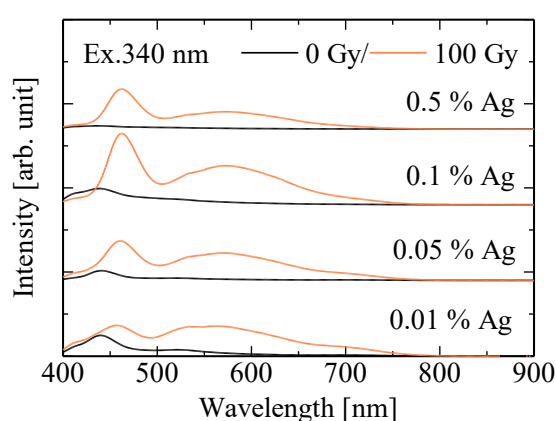


Fig. 2 PL emission spectra of Ag-doped CsBr transparent ceramics before and after 100 Gy X-ray irradiation under 340 nm excitation.

参考文献

- [1] J. A. Jimenez et al., J. Mater. Sci. **42**, 1856-1863(2007). [2] D. Shiratori et al., J. Ceram. Soc. Jpn., **127**, 458 (2019). [3] T. Hurobori et al., J. Lumin., **326**, 76-80 (2014).

KS 研究会セッション | 一般セッション(口頭講演): KS4 量子エネルギー変換研究会

[8a-N323-1~13] KS4 量子エネルギー変換研究会

[8a-N323-1]

無添加およびTb添加 $\text{Sr}_3\text{La}(\text{PO}_4)_3$ 単結晶の熱刺激蛍光特性○江澤 喜朗¹、市場 賢政¹、岡崎 魁¹、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[8a-N323-2]

Tb添加 $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ 単結晶の蛍光およびドシメータ特性調査○藤井 愛朗¹、宮崎 慧一郎¹、竹淵 優馬²、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.宇都宮大学)

[8a-N323-3]

(Zn, Mg) Al_2O_4 透明セラミックスのドシメータ特性○(M2)本條 悟史¹、市場 賢政¹、白鳥 大毅²、加藤 匠¹、中内 大介¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大、2.東京理科大)

[8a-N323-4]

KBr:Yb単結晶の光刺激蛍光特性およびイメージング試験

○瀬口 侑沙¹、宮崎 慧一郎¹、中内 大介¹、加藤 匠¹、河口 範明¹、柳田 健之¹ (1.奈良先端大)

[8a-N323-5]

 $\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7$:Tmにおける基礎的RPL特性評価○青木 美歩¹、南戸 秀仁¹、岡田 豪¹ (1.金沢工大)

[8a-N323-6]

Eu添加 $\text{Li}_2\text{CaSiO}_4$ のRPL特性および中性子計測○岡田 豪¹、越水 正典²、眞正 浄光³、田中 浩基⁴、渡辺 賢一⁵、南戸 秀仁¹ (1.金沢工大、2.静岡大、3.東京都立大学、4.京都大学、5.九州大学)

[8a-N323-7]

有機無機複合化合物の結晶とガラス状態における放射線応答特性の比較

○坪川 虎ノ介¹、河野 直樹¹、江澤 喜朗²、尾竹 祥太²、山林 恵士²、國方 俊彰²、加藤 匠²、中内 大介²、河口 範明²、柳田 健之² (1.秋田大院理工、2.奈良先端大)

[8a-N323-8]

シクロアルカン誘導体やベンゼン誘導体を導入した有機無機複合化合物の放射線応答性

○齊藤 主馬¹、坪川 虎ノ介¹、河野 直樹¹、尾竹 祥太²、國方 俊彰²、江澤 喜朗²、山林 恵士²、加藤 匠²、中内 大介²、柳田 健之² (1.秋田大院理工、2.奈良先端大)

[8a-N323-9]

 Nd^{3+} 添加 $\text{ZnO-ZnCl}_2\text{-TeO}_2$ ガラスの放射線応答性○鈴木 翼¹、河野 直樹¹、中内 大介²、加藤 匠²、江澤 喜朗²、山林 恵士²、尾竹 祥太²、篠崎 健二³、柳田 健之² (1.秋田大院理工、2.奈良先端大、3.産総研)

[8a-N323-10]

 Tm^{3+} 添加 $\text{BaO-GeO}_2\text{-Bi}_2\text{O}_3$ ガラスのシンチレーション特性評価

○古賀 裕美子¹、鈴木 翼¹、河野 直樹¹、中内 大介²、加藤 匠²、江澤 喜朗²、山林 恵士²、尾竹 祥太²、篠崎 健二³、柳田 健之² (1.秋田大院理工、2.奈良先端大、3.産総研)

[8a-N323-11]

Dy、Sr共添加Ca₂BO₃Clのドシメータ特性

○佐藤 陽生¹、河野 直樹¹、中内 大介²、加藤 匠²、江澤 喜朗²、山林 恵士²、遠藤 優介²、尾竹 祥太²、柳田 健之² (1.秋田大院理工、2.奈良先端大)

[8a-N323-12]

[第4回極限的励起状態の形成と量子エネルギー変換研究グループ論文賞（若手部門）受賞記念講演] Er³⁺添加重元素系ガラスを利用した近赤外発光シンチレータの開発

○河野 直樹¹、岡崎 魁²、竹渕 優馬³、福島 宏之⁴、加藤 匠²、中内 大介²、加賀谷 史¹、篠崎 健二⁵、柳田 健之² (1.秋田大、2.奈良先端大、3.宇都宮大、4.福井高専、5.産総研)

[8a-N323-13]

[第4回極限的励起状態の形成と量子エネルギー変換研究グループ論文賞（一般部門）受賞記念講演] RPLおよびOSLを利用した放射線量分布イメージングリーダの開発

○南戸 秀仁^{1,2}、岡田 豪¹、平澤 一樹¹、小口 靖弘²、篠崎 和佳子²、上野 智史²、柳田 由香²、d'Errico Francesco³、山本 幸佳² (1.金沢工大、2.千代田テクノル、3.エール大)

無添加および Tb 添加 $\text{Sr}_3\text{La}(\text{PO}_4)_3$ 単結晶の熱刺激蛍光特性

Thermally Stimulated Luminescence Properties of Non-doped and Tb-doped $\text{Sr}_3\text{La}(\text{PO}_4)_3$ Single Crystals

奈良先端科学技術大学院大学 °江澤 喜朗、市場 賢政、岡崎 魁、加藤 匠、
中内 大介、河口 範明、柳田 健之

NAIST, °Haruaki Ezawa, Kensei Iciba, Kai Okazaki, Takumi Kato,

Daisuke Nakauchi, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: ezawa.haruki.ec6@ms.naist.jp

放射線計測に用いられる蓄積型蛍光体には放射線のエネルギーを一時的に蓄積する機能がある。この特性は歯のレントゲン撮影に用いられるイメージングプレートや被ばく線量を測定するための個人被ばく線量計などに応用されている。 $\text{Sr}_3\text{La}(\text{PO}_4)_3$ (SLaPO) は優れた光学的・化学的特性を有するため、光学材料として注目されている。そのため、 Eu^{3+} 、 Ce^{3+} 、 Tb^{3+} などのさまざまな希土類元素を発光中心として添加した SLaPO の蛍光特性が数多く報告されている [1-2]。しかし、我々の知る限り、SLaPO の蓄積型蛍光に関する先行研究は存在しない。そこで本研究では、発光中心として Tb を添加した SLaPO 単結晶を作製し、その蓄積型蛍光特性を評価した。

Fig.1 に 1 Gy の X 線を照射した後のサンプルの熱刺激蛍光 (TSL) グローブカーブを示す。無添加サンプルでは 80 °C に Tb 添加サンプルでは 90 °C に単一のグローブピークが確認された。Fig.2 に 1 Gy の X 線を照射した後の TSL スペクトルの結果を示す。無添加サンプルの発光は確認できなかった。Tb 添加サンプルでは 380–620 nm の波長域において Tb^{3+} の 4f-4f 遷移に起因すると考えられる発光を観測した [3]。

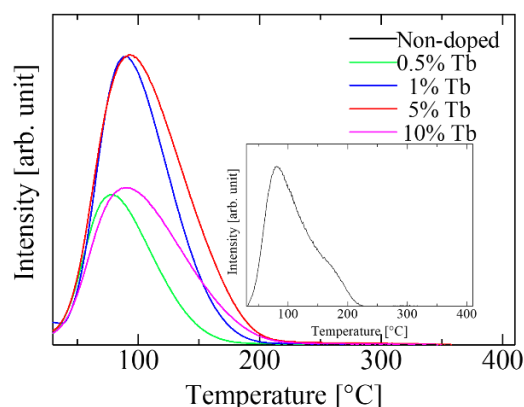


Fig. 1. TSL glow curves of Tb-doped $\text{Sr}_3\text{La}(\text{PO}_4)_3$ after X-ray irradiation of 1 Gy. The inset shows TSL spectrum of non-doped $\text{Sr}_3\text{La}(\text{PO}_4)_3$ after X-ray irradiation of 1 Gy.

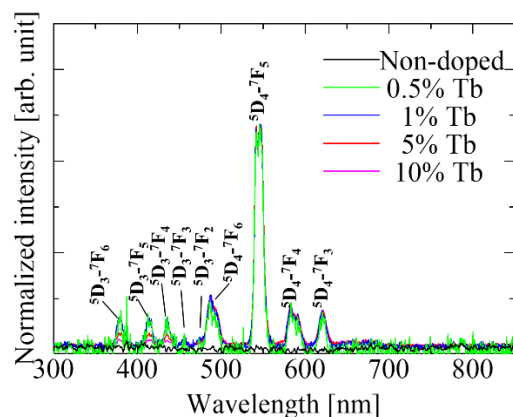


Fig. 2. TSL spectra of undoped and Tb-doped $\text{Sr}_3\text{La}(\text{PO}_4)_3$ after X-ray irradiation of 1 Gy.

参考文献

- [1] K. Te-Wen et al., J. Electrochem. Soc. 157, J216 (2010). [2] Z. Xinguo et al., J. Alloys Compd. 592, 283-287 (2014). [3] W. Rong et al., Mater. Lett. 68, 307-309 (2012).

Tb 添加 $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ 単結晶の蛍光およびドシメータ特性調査

Investigation of photoluminescence and dosimetric properties in Tb-doped $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ single crystals

奈良先端大¹, 宇都宮大学² ○藤井 愛朗¹, 宮崎 慧一郎¹, 竹淵 優馬², 加藤 匠¹, 中内 大介¹,
河川 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, Utsunomiya Univ.², °Airo Fujii¹, Keiichiro Miyazaki¹, Yuma Takebuchi², Takumi Kato¹,
Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: fujii.airo.ex4@naist.ac.jp

蓄積型蛍光体は、電離放射線のエネルギーをキャリアとして捕獲中心に一時的に蓄積し、熱や光の刺激を加えることでキャリアが発光中心へ移動し、発光を示す材料である。この発光強度が放射線の吸収量と比例関係にあるという特性を持つことから、線量計測に用いられるドシメータ材料として広く応用されている。ドシメータ材料への応用に必要な特性として、広い測定範囲、少ないフェーディング、人体軟組織に近い実効原子番号を有していること、高い化学的安定性を持つことなどが挙げられる。そこで高い化学的安定性と線量測定に適した実効原子番号を有する、メリライト構造の $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ に着目した。先行研究において、Ce 添加 $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ 単結晶のドシメータ特性の評価が行われ、一部の市販品のドシメータ材料と同程度の測定範囲を示すことが報告されており [1]、ドシメータ材料の母材として有望である。そこで本研究では、Tb を発光中心として添加した $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ 単結晶を作製し、蛍光およびドシメータ特性の評価を行った。

Tb 添加 $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ 単結晶の熱蛍光 (TL) スペクトルを Fig. 1 に示す。すべての Tb 添加サンプルにおいて、 Tb^{3+} の 4f-4f 遷移由来の発光が確認された [2]。無添加および Tb 添加 $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ 単結晶の TL グローブカーブを Fig. 2 に示す。無添加サンプルは 260 °C 付近にグローブピークを示したが、Tb 添加サンプルは 80, 120 °C 付近にグローブピークを示し、新たな捕獲中心が生成されたと考えられる。本発表では、蛍光およびドシメータ材料としての性能も評価したので報告する。

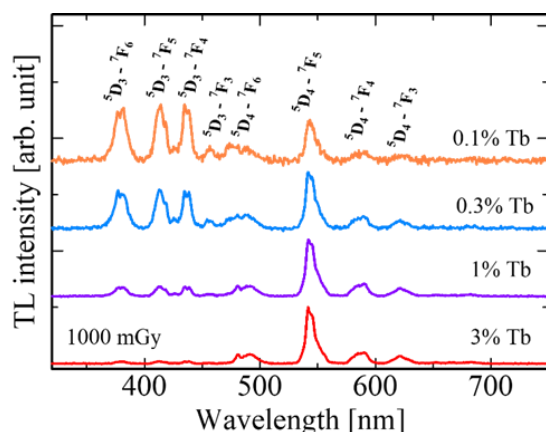


Fig. 1 TL spectra of Tb-doped $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ single crystals after X-ray irradiation of 1000 mGy.

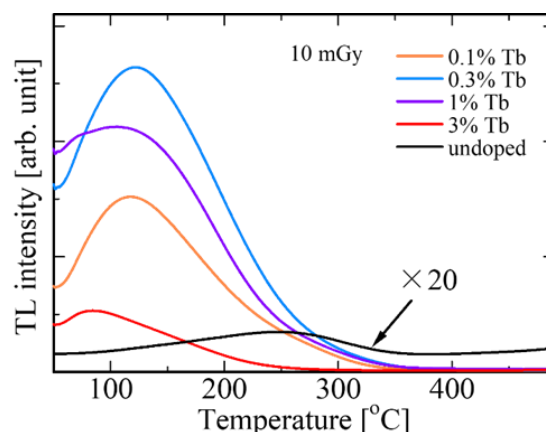


Fig. 2 TL glow curves of undoped and Tb-doped $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ single crystals after X-ray irradiation of 10 mGy.

<参考文献>

[1] T. Ogawa *et al.*, J. Lumin., **196** 270-274 (2018). [2] S. Chatterjee *et al.*, Mater. Chem. Phys., **80** 719-724 (2003).

(Zn, Mg)Al₂O₄ 透明セラミックスのドシメータ特性

Dosimetric Properties of (Zn, Mg)Al₂O₄ Transparent Ceramics

奈良先端大¹, 東京理科大², [°](M2)本條 悟史¹, 市場 賢政¹, 白鳥 大毅², 加藤 匠¹,
中内 大介¹, 河口 範明¹, 柳田 健之¹

NAIST¹, TUS², [°]Satoshi Honjo¹, Kensei Ichiba¹, Daiki Shiratori², Takumi Kato¹,
Daisuke Nakauchi¹, Noriaki Kawaguchi¹, Takayuki Yanagida¹

E-mail: honjo.satoshi.hp8@naist.ac.jp

ドシメータ材料は電離放射線のエネルギーを一時的に蓄積し、熱や光などの外部刺激を加えることで発光を呈する材料である。応用例として個人被ばく線量計やイメージプレートなどが挙げられ、医療や非破壊検査といった分野で必要不可欠な材料となっている。しかし要求特性をすべて兼ね備えた理想的な材料は未だ見つかっておらず、現在も研究が進められている。近年新たな材料形態として透明セラミックスが注目されている。透明セラミックスは不透明なセラミックスと比較して光散乱が低いいため、試料内部からの発光の読み出しが可能となる。それゆえより高い発光強度が実現できる可能性がある。

本研究では研究対象として ZnAl₂O₄ に着目した。ZnAl₂O₄ を含むスピネル型構造を持つ材料は、カチオン反転による内在欠陥や酸素空孔など様々な捕獲準位を形成することが知られている [1, 2]。それゆえ ZnAl₂O₄ は線量計測分野で注目されている材料である [3]。本研究では、ZnAl₂O₄ の発光強度の更なる向上を目指し Zn サイトの一部を Mg に置換した (Zn, Mg)Al₂O₄ 透明セラミックスを作製し、その熱刺激蛍光特性を評価した。

Fig. 1 に (Zn, Mg)Al₂O₄ 透明セラミックスに 1 Gy 照射後の熱刺激蛍光 (TSL) グローカーブを示す。全サンプルにおいて 150、300 °C 付近に TSL が観測された。これらの内、150 °C のピークは Zn サイトに由来し、300 °C のピークは Mg サイトに由来する発光である [4, 5]。Fig. 2 に (Zn, Mg)Al₂O₄ 透明セラミックスの TSL における線量応答特性を示す。その結果、(Zn_{0.5}, Mg_{0.5})Al₂O₄ が最も高い発光強度と 0.01–1000 mGy の広いダイナミックレンジを示した。

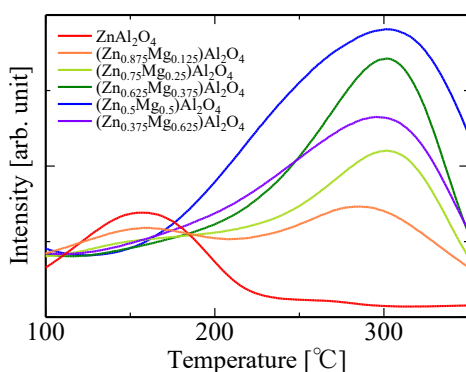


Fig. 1 TSL glow curves of the (Zn, Mg)Al₂O₄ transparent ceramics after X-ray irradiation with 1 Gy.

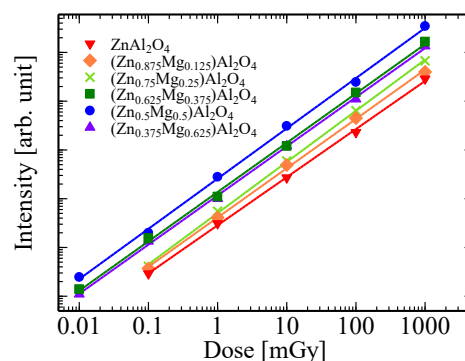


Fig. 2 TSL dose response functions of the (Zn, Mg)Al₂O₄ transparent ceramics. (Integrated range: 100–490 °C)

参考文献

[1] Y. Takebuchi et al., Radiat. Phys. Chem., 232, 112673 (2025). [2] S Honjo et al., Radiat. Phys. Chem., 229, 112513 (2025). [3] B. Kim et al., J. Ceram. Soc. Jpn., 122, 784-787 (2014). [4] M. Jain et al., Sci Rep., 10, 385 (2020). [5] T. Kato et al., J. Lumi., 251, 119136 (2022).

KBr:Yb 単結晶の光刺激蛍光特性およびイメージング試験

Optically-stimulated luminescence properties and imaging tests

of KBr:Yb single crystals

奈良先端大, [○]瀬口侑沙, 宮崎慧一郎, 中内大介, 加藤匠, 河口範明, 柳田健之

NAIST, [○]Arisa Seguchi, Keiichiro Miyazaki, Daisuke Nakauchi,

Takumi Kato, Noriaki Kawaguchi, Takayuki Yanagida

E-mail: seguchi.arisa.sg2@naist.ac.jp

蓄積型蛍光体とは、放射線のエネルギーを一時的に蓄積し、外部から刺激を与えることにより発光する蛍光体である。外部刺激が光の場合は光刺激蛍光 (OSL) と呼ばれ、放射線管理区域内での線量計測や医療画像診断に用いられるイメージングプレートなどに応用されてきた。Eu²⁺を添加したアルカリハライド系材料は高い OSL 強度を示すことが知られており、これまでに KBr:Eu や CsBr:Eu などがイメージングプレートとして応用されてきた [1, 2]。一方、同じ 2 価の希土類イオンである Yb²⁺を添加したアルカリハライドの OSL 特性に関する報告はない。そこで本研究では、KBr:Yb 単結晶に着目し、KBr:Yb 単結晶の OSL 特性の評価およびイメージング試験を行った。

Fig.1 に KBr:Yb 単結晶の PL 励起/蛍光スペクトルを示す。255 nm の励起波長において、430 nm に発光が観測された。既報の Yb²⁺添加蛍光体と似たスペクトル形状であることから [3]、この発光は Yb²⁺の 5d-4f 遷移に由来すると考えられる。0.03%, 0.1%, 0.3%, 1%, 3%Yb 添加サンプルの量子収率はそれぞれ 6.6%, 42.9%, 47.9%, 74.1%, 27.4%であり、1%Yb 添加サンプルが最も高い量子収率を示した。Fig.2 に X 線照射後の OSL スペクトルを示す。500 nm の刺激波長で PL と同様に 430 nm 付近に OSL が観測され、PL と同様に 1%Yb 添加サンプルが最も高い OSL 強度を示した。本発表では PL と OSL 特性以外に、イメージング試験も行ったので併せて報告する。

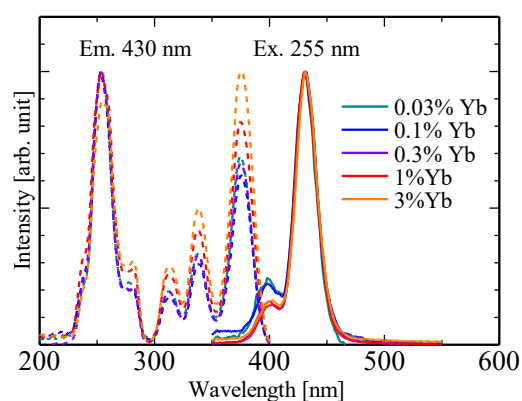


Fig.1 PL emission (dashed) and excitation spectra (solid) of KBr:Yb single crystals.

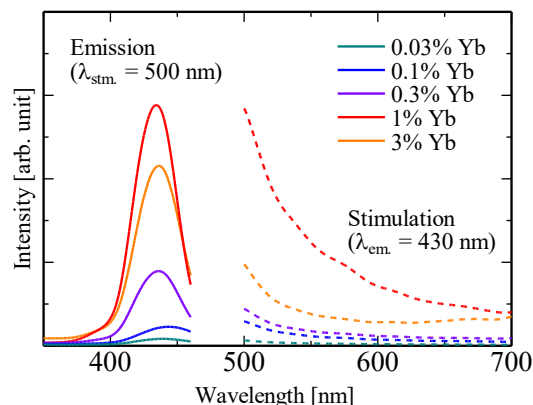


Fig.2 OSL spectra after X-ray irradiation of KBr:Yb single crystals.

参考文献

- [1] Y. Douguchi et al., Radiat. Prot. Dosim. 84 (1999) 143.
- [2] N. Kurata et al., Radiat. Prot. Dosim. 119 (2006) 398.
- [3] C. van Aarle et al., J. Lumin. 238 (2021) 118257.

$\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7:\text{Tm}$ における基礎的 RPL 特性評価

Fundamental Evaluation of RPL Properties in $\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7:\text{Tm}$

金沢工大¹, [○]青木美歩¹, 南戸秀仁¹, 岡田豪¹

Kanazawa Institute of Technology¹, [○]Miho Aoki¹, Hidehito Nanto¹, Go Okada¹

E-mail: c6501884@st.kanazawa-it.ac.jp

蛍光現象の一つであるラジオフォトルミネッセンス (Radiophotoluminescence; RPL) は、電離放射線との相互作用によって材料内部に新たな発光中心が生成される現象である。RPL では、照射線量に比例して発光中心が形成され、さらに発光中心数は PL 強度とも比例関係にある。このことから、PL 強度を測定することで照射線量を求めることが可能である。しかし、RPL は近年報告された比較的新しい現象であり、これまでに報告されている RPL 材料の種類は限られている。そのため、RPL 材料の設計指針が未確立であり、新規材料の探索および現象理解に基づく知見の蓄積が求められている。本研究では、より効率的な材料探索を目的として、一度の合成で複数の結晶相が形成される $\text{CaO}-\text{P}_2\text{O}_5$ 系セラミックスに着目した。特に、複数相が均一に含まれるような 2 種類のモル比を選定し、これらを母体材料として RPL 出現の有無をスクリーニングにより評価した。結果として、Tm を添加した際、 $\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7$ を含む母体材料において RPL が確認された。そこで、 $\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7:\text{Tm}$ を単相で合成し、改めて RPL の出現有無を評価した。その結果、RPL 現象が確認されたため、より詳細な特性評価を行った。

本研究では、固相反応法により試料を合成した。出発原料には CaCO_3 (99.99 %)、 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (99.99 %)および Tm_2O_3 (99.9 %)を用いた。得られた試料の RPL 特性評価には TSL/OSL/RPL 自動統合計測装置 (TORAIMS) を使用した[1]。Fig. 1 に Tm 添加 $\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7$ の 0 Gy, 5 Gy, 20 Gy および 100 Gy の X 線照射後に測定した PL スペクトルを示す。励起波長を 550 nm とした際、X 線照射後に 1120 nm をピークとする新たな発光帯が確認され、その強度は照射線量に伴って増加することが認められた。これらの発光起源は、先行研究[2]により Tm^{2+} の $^2\text{F}_{5/2} \rightarrow ^2\text{F}_{7/2}$ 遷移に帰属されると考えられる。発表では、Tm の濃度依存性、線量応答、安定性、および繰り返し再利用性など放射線線量計としての特性についても議論する。

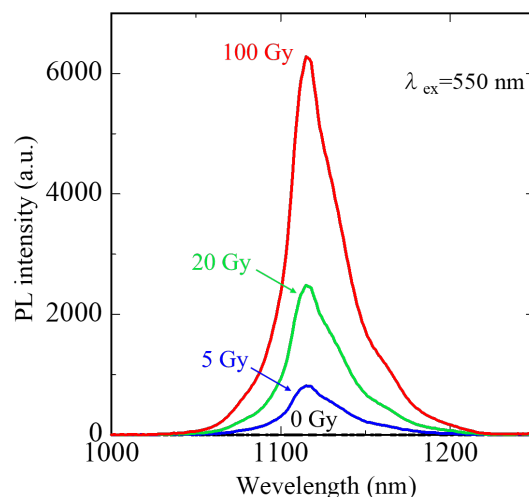


Fig. 1 Tm 添加 $\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7$ における X 線照射前後の PL スペクトル。

参考文献

- [1] Go Okada *et al.*, *Sensor and Mater.*, vol.33(6), pp. 2117-2128 (2021)
- [2] Nishita Chowdhury *et al.*, *J. Phys. Chem. C* vol.125(39), pp. 21543-21549 (2021)

Eu 添加 $\text{Li}_2\text{CaSiO}_4$ の RPL 特性および中性子計測

RPL properties of Eu-doped $\text{Li}_2\text{CaSiO}_4$ and neutron measurements

金沢工大¹, 静岡大², 東京都立大³, 京都大学⁴, 九州大⁵ ○岡田 豪¹, 越水 正典²,

眞正 浄光³, 田中 浩基⁴, 渡辺 賢一⁵, 南戸 秀仁¹

Kanazawa Inst. of Tech.¹, Shizuoka Univ.², Tokyo Metropol. Univ.³, Kyoto Univ.⁴, Kyushu Univ.⁵,

○Go Okada¹, Masanori Koshimizu², Kiyomitsu Shinsho³, Hiroki Tanaka⁴, Kenichi Watanabe⁵,

Hidehito Nanto¹

E-mail: go.okada@neptune.kanazawa-it.ac.jp

ラジオフォトルミネッセンス (RPL) は、2000 年に千代田テクノルによって実用化されて以降、個人被ばく線量モニタリングサービスや環境放射線測定などに広く利用されてきた。一方で、RPL 特性を有する材料の種類は限られており、現象の理解や新たな応用展開の観点から、積極的な材料探索が求められている。このような背景のもと、我々はこれまでに、Eu 添加 $\text{Li}_2\text{CaSiO}_4$ を新たな RPL 材料として報告してきた。本材料は、母体にリチウムを含有することから、中性子に対して高い反応断面積を有する ${}^6\text{Li}(\text{n},\alpha){}^3\text{H}$ 反応による中性子検出への応用が期待される。本研究では、 ${}^6\text{Li}$ 濃縮および非濃縮原料を用いて Eu 添加 $\text{Li}_2\text{CaSiO}_4$ を合成し、その中性子検出特性を評価した。試料は固相反応法により合成した。出発原料には、 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ (濃縮度 95%, 純度 99.9%, APL)、 nLi_2CO_3 (純度 99.99%, 高純度化学研究所)、 CaCO_3 (純度 99.99%, 同)、 SiO_2 (純度 99.9%, フルウチ化学)、および Eu_2O_3 (純度 99.9%, 高純度化学研究所) を用いた。Eu イオンの濃度が母体化合物に対して 0.1 mol% となるように化学量論比で混合し、大気中 700°C で 4 時間焼成することで試料を得た。得られた試料は、TSL/OSL/RPL 自動統計計測装置 (TORAIMS) を用いて基礎特性評価を実施した。中性子照射は、近畿大学原子力研究所および京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉にて行い、その後 TORAIMS により信号の読み出しを行った。Fig. 1 に、中性子照射後の濃縮および非濃縮試料のフォトルミネッセンス (PL) スペクトルを示す。濃縮試料では、およそ 480 nm に位置する発光帯の強度が非濃縮試料と比較して顕著に高いことが確認された。これは、 ${}^6\text{Li}(\text{n},\alpha){}^3\text{H}$ 反応により生成された荷電粒子の電離作用によって生じた電子の一部が Eu^{3+} に捕獲され、 Eu^{2+} が発光中心として形成されたことによるものと考えられる。本発表では、より詳細な特性評価結果およびリアルタイム中性子検出への応用可能性についても併せて議論する。

謝辞 本研究は中部電力原子力安全技術研究所の支援を受けて実施された。

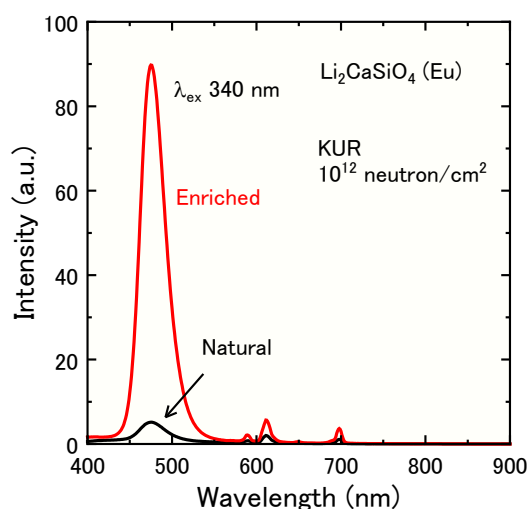


Fig. 1 PL spectra of ${}^6\text{Li}$ enriched and natural $\text{Li}_2\text{CaSiO}_4$ doped with Eu after neutron exposure.

有機無機複合化合物の結晶とガラス状態における放射線応答特性の比較

Comparison of radiation response properties

between crystalline and glassy states in organic-inorganic hybrid compounds

秋田大学¹, 奈良先端科学技術大学院大学²

○坪川 虎ノ介¹, 河野 直樹¹, 江澤 喜朗², 尾竹 祥太², 山林 恵士²,

國方 俊彰², 加藤 匠², 中内 大介², 河口 範明², 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²

○Toranosuke Tsubokawa¹, Naoki Kawano¹, Haruaki Ezawa², Shota Otake², Keishi Yamabayashi²,

Toshiaki Kunikata², Takumi Kato², Daisuke Nakauchi², Noriaki Kawaguchi², Takayuki Yanagida²

E-mail: m8024215@s.akita-u.ac.jp

【緒言】量子ナノ構造を有する有機無機複合化合物 (OIHC)は量子サイズ効果により室温下で励起子発光を示すことが知られている. 近年, アルキルトリフェニルホスホニウムを導入した OIHC のガラス形成が確認された [1]. 大型化の容易さ等のガラスの産業的利点を活かせるため, OIHC ガラスは新たなシンチレータ材料として期待される. 本研究では上記有機物を有する $((C_6H_5)_3PC_nH_{2n+1})_2SbBr_5$ ($n = 1$ (MTP), 5 (ATP), 6 (HTP))の結晶 (Crystal)とガラス (Glass)を作製し, 当該化合物のガラス化の放射線応答特性への影響を調べた.

【実験方法】 $(C_6H_5)_3PC_nH_{2n+1}Br$ ($n = 1, 5, 6$)と $SbBr_3$ をそれぞれ化学量論比通りに混合した. その後, 混合粉末を DMF に溶解後, 攪拌, 蒸発させて OIHC 化合物粉末を得た. 単結晶は, 貧溶媒拡散法 (良溶媒: DMF, 貧溶媒: ニトロメタン)により作製した. 一方, ガラスは, OIHC 化合物粉末をプラチナ坩堝に入れ, $220\text{ }^{\circ}\text{C}$ (MTP), $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ (APT), $225\text{ }^{\circ}\text{C}$ (HTP)でそれぞれ 30 分間加熱した後, 室温で急冷して作製した.

【結果】図 1 に X 線励起下シンチレーションスペクトルを示す. 単結晶では $620\text{--}650\text{ nm}$, ガラスでは 680 nm 付近にピークが観測された. これらの発光は STE 由来と示唆された [1].

図 2 に ^{241}Am α 線励起下パルス波高スペクトルを示す. HTP では両状態ともピークを確認できなかった. 算出したそれぞれの試料の発光量は 2800 (MTP-Crystal), 300 (ATP-Crystal), 1800 (MTP-Glass), 380 (ATP-Glass) photons/5.5MeV- α であった [2]. MTP ではガラス化によって発光量が低下した一方, ATP ではガラス化により発光量が向上した. 本講演では, 当該化合物の放射線応答性について詳細に議論する.

【参考文献】

[1] B. Li et al., Angew. Chem. Int. Ed. 61 (2022) 12741.

[2] T. Yanagida et al., IEEE Trans. Nucl. Sci. 52 (2005) 1836.

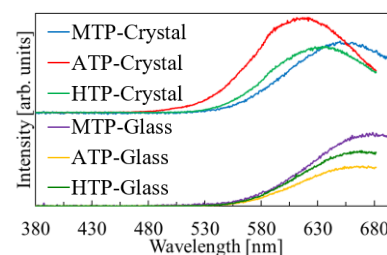


図 1 シンチレーションスペクトル.

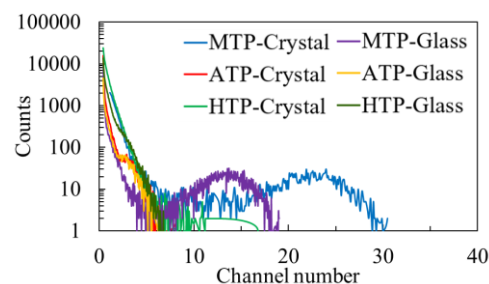


図 2 ^{241}Am 由来の α 線励起下パルス波高スペクトル.

シクロアルカン誘導体やベンゼン誘導体を導入した 有機無機複合化合物の放射線応答性

Radiation response properties of organic–inorganic hybrid materials
with cycloalkyl or benzyl derivatives

秋田大学¹, 奈良先端科学技術大学院大学²

○齊藤 主馬¹, 坪川 虎ノ介¹, 河野 直樹¹, 尾竹 祥太², 國方 俊彰²,
江澤 喜朗², 山林 恵士², 加藤 匠², 中内 大介², 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²

○Kazuma Saito¹, Toranosuke Tsubokawa¹, Naoki Kawano¹, Shota Otake², Toshiaki Kunikata²,
Haruaki Ezawa², Keishi Yamabayashi², Takumi Kato², Daisuke Nakauchi², Takayuki Yanagida²

E-mail: m8025207@s.akita-u.ac.jp

【緒言】量子井戸構造を有する有機無機ペロブスカイト型化合物 $(\text{RNH}_3)_2\text{PbX}_4$ (R: 炭化水素、X: ハロゲン)は無機層由来の励起子発光を示すことが知られており、この発光特性を利用した高速応答シンチレータ開発が期待されている。既存研究から、 $(\text{RNH}_3)_2\text{PbCl}_4$ は自己束縛励起子(STE)由来と示唆されるブロードな発光を示すことが知られており、有機層にジアミンを導入した $(\text{EDBE})\text{PbCl}_4$ (EDBE:2,2'-(エチレンジオキシ)ビス(エチルアミン))が 9000 photons/MeV 程度の大きな発光量を示すことがわかった [1-2]。本研究では新たに有機層にシクロアルカン誘導体やベンゼン誘導体を導入した $(\text{C}_6\text{H}_{11}\text{C}_n\text{H}_{2n}\text{NH}_3)_2\text{PbCl}_4$ ($n = 1$ (CHM), $n = 2$ (CHE)), $(\text{C}_6\text{H}_5\text{C}_n\text{H}_{2n}\text{NH}_3)_2\text{PbCl}_4$ ($n = 1$ (BEN), $n = 2$ (PHE)), $(\text{C}_6\text{H}_{10}\text{C}_2\text{H}_4\text{NH}_3\text{OCH}_3)_2\text{PbCl}_4$ (24MCHE), $(\text{C}_6\text{H}_4\text{C}_2\text{H}_4\text{NH}_3\text{OCH}_3)_2\text{PbCl}_4$ (24MPE) を作製し、そのシンチレーション特性を調べた。

【実験方法】それぞれの化合物粉末を 90 °C で DMF とニトロメタンの混合溶媒に溶解後、3.25 °C/h で徐冷することで単結晶を得た。

【結果】図 1 に X 線励起時のシンチレーションスペクトルを示す。ブロードな発光ピークが 550 nm 付近にそれぞれの試料から観測された。このピークは無機層の STE 由来と示唆された [3]。

図 2 にシンチレーション時間プロファイルを示す。CHM、CHE、BEN および PHE で、第 2 成分に STE 由来と示唆される成分が観測された [3]。本講演では、当該化合物のシンチレーション特性について詳細に議論する。

【参考文献】

- [1] M. D. Birowosuto et al., Sci. Rep. 6 (2016) 37254.
- [2] M. Kitaura et al., J. Phys. Soc. Jpn. 70 (2001) 2462.
- [3] T. Suto et al., Jpn. J. Appl. Phys. 62 (2023) 010610.

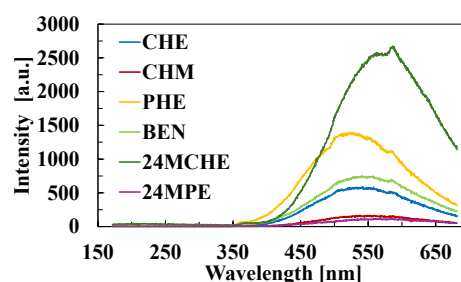


図 1 シンチレーションスペクトル。

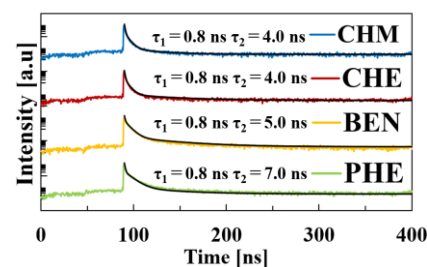


図 2 シンチレーション時間プロファイル。

Nd³⁺添加 ZnO–ZnCl₂–TeO₂ ガラスの放射線応答性 Scintillation properties of Nd³⁺-doped ZnO–ZnCl₂–TeO₂ glasses

秋田大学¹、奈良先端科学技術大学院大学²、産業技術総合研究所³

○鈴木 翼¹，河野 直樹¹，中内 大介²，加藤 匠²，
江澤 喜朗²，山林 恵士²，尾竹 祥太²，篠崎 健二³，柳田 健之²

Akita University¹，Nara Institute of Science and Technology²

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology³

○Tsubasa Suzuki¹，Naoki Kawano¹，Daisuke Nakauchi²，Takumi Kato²，

Haruaki Ezawa²，Keishi Yamabayashi²，Shota Otake²，Kenji Shinozaki³，Takayuki Yanagida²

E-mail: m8024210@s.akita-u.ac.jp

【緒言】近赤外領域で発光を示すシンチレータは、原子炉などの高線量場モニタリングやバイオイメージング等の新たな用途での利用が期待されている。これまでに、希土類元素イオン(Er³⁺、Nd³⁺)を添加した単結晶やガラスを用いた当該シンチレータの研究が行われており、なかでも Nd³⁺添加テルライトガラス(1Nd₂O₃–10La₂O₃–10TiO₂–79TeO₂)の最低検出線量が 5 mGy/h であり、近赤外領域で高い発光量を示した[1]。本研究では、発光量向上に向けて、酸化物よりも格子振動エネルギーが小さい塩化物を導入したハイドテルライトガラス[xNd₂O₃–(20-x)ZnO–20ZnCl₂–60TeO₂ (x = 0.1, 0.5, 1.0, 3.0)]を作製し[2]、その放射線応答性を評価した。

【実験方法】原料粉末(Nd₂O₃、ZnO、ZnCl₂、TeO₂)を混合後、混合物をプラチナ坩堝中に入れ、700 °C で 20 分間加熱した。その後、300 °C で急冷することでガラスを得た。

【実験結果】図 1 にシンチレーションスペクトルを示す。発光ピークが 904 nm、1057 nm、1332 nm に観測された。これらは Nd³⁺の 4f-4f 遷移に由来する。作製した試料の中で、1.0 % Nd₂O₃ 添加ガラスが最大強度を示した。

図 2 にシンチレーション時間プロファイルを示す。0.1–1.0 % Nd₂O₃ 添加ガラスで、第 2 成分に Nd³⁺の 4f-4f 遷移に由来する成分が明瞭に観測され、その減衰時定数は 165 μs (Nd₂O₃ 0.1%)、150 μs (Nd₂O₃ 0.5%)、110 μs (Nd₂O₃ 1.0%)であった[1]。本講演では当該ガラスのシンチレーション特性の詳細について議論する。

【参考文献】

[1] S. Muneta et al., Mater. Res. Bull. 191 (2025) 113544.

[2] 角野広平, New Glass, 21 (2006) 50.

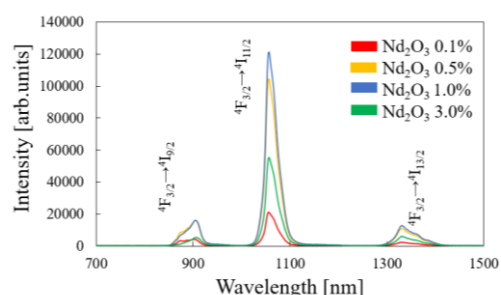


図 1 シンチレーションスペクトル。

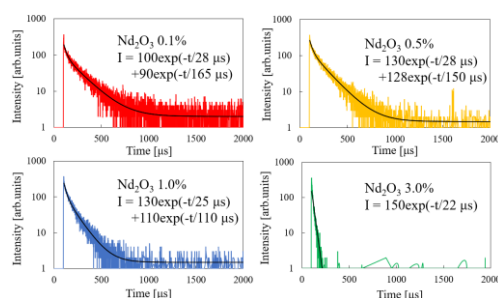


図 2 シンチレーション時間プロファイル。

Tm³⁺添加 BaO–GeO₂–Bi₂O₃ ガラスのシンチレーション特性評価

Scintillation properties of Tm³⁺-doped BaO–GeO₂–Bi₂O₃ glasses

秋田大学¹, 奈良先端科学技術大学院大学², 産業技術総合研究所³

○古賀 裕美子¹, 鈴木 翼¹, 河野 直樹¹, 中内 大介², 加藤 匠²,
江澤 喜朗², 山林 恵士², 尾竹 祥太², 篠崎 健二³, 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²,

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology³

○Yumiko Koga¹, Tsubasa Suzuki¹, Naoki Kawano¹, Daisuke Nakauchi²,

Takumi Kato², Haruaki Ezawa², Keishi Yamabayashi², Shota Otake²,

Kenji Shinozaki³, Takayuki Yanagida²

E-mail: m8025204@s.akita-u.ac.jp

【緒言】近年、InGaAs フォトダイオードなどの光電変換素子の技術革新により近赤外発光シンチレータの開発が活発に行われている。近赤外光の高い生体透過性、さらに近赤外光とチャレンコフ光との区別が比較的容易な観点から、バイオイメージングや高線量場放射線計測への応用が期待される。そのため Nd³⁺や Er³⁺、Tm³⁺等の希土類元素イオンを添加した様々な化合物の近赤外発光特性評価が行われてきた。これまで我々は、高い組成均一性や高い実効原子番号等の観点からビスマス塩ガラスに着目した研究を行っており、19.5BaO–20GeO₂–60Bi₂O₃–0.5Nd₂O₃ ガラスの近赤外発光の最低検出線量が 600 mGy/h であることがわかった[1]。本研究では、Tm³⁺を添加したガラス ((20-x)BaO–20GeO₂–60Bi₂O₃–xTm₂O₃) (x = 0.1, 0.5, 1.0) を作製し、その放射線応答性を調べた。

【実験方法】原料粉末(BaO、GeO₂、Bi₂O₃、Tm₂O₃)を上記組成通りに混合後、プラチナ坩堝中で 1050 °C、30 分加熱した。その後、熔融物を 300 °C で急冷してガラスを得た。

【実験結果】図 1 に X 線励起シンチレーションスペクトルを示す。0.5%、1.0 % Tm 添加試料で Tm³⁺の 4f→4f 遷移に由来する発光ピークが観測された。一方、0.1 %Tm 添加試料からは、明瞭なピークは観測されなかった。

図 2 に InGaAs フォトダイオードを用いて検出した近赤外光線量率応答曲線を示す。約 1000–45000 mGy/h の範囲で近赤外光が観測され、3σ 法で求めた検出下限は 210 mGy/h であった。これは Tm:Bi₄Ge₃O₁₂ の検出下限(30 mGy/h)より高かった[2]。

【参考文献】

[1] Y. Koga et al., 第 72 回応用物理学会春季学術講演会予稿集.

[2] K. Okazaki et al., Sensors 35 (2023) 459–466.

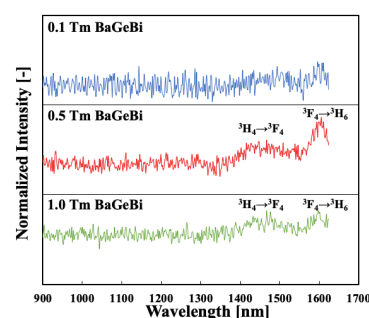


図 1 シンチレーションスペクトル。

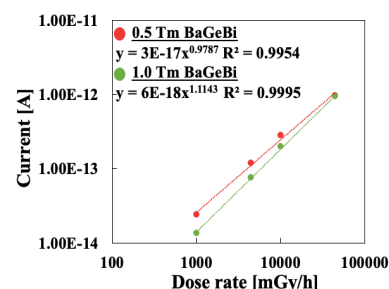


図 2 近赤外線量応答曲線。

Dy、Sr 共添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ のドシメータ特性

Dosimeter properties of Dy, Sr co-doped $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$

秋田大学¹, 奈良先端科学技術大学院大学²

○佐藤 陽生¹, 河野 直樹¹, 中内 大介², 加藤 匠²,
江澤 喜朗², 山林 恵士², 遠藤 優介², 尾竹 祥太², 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²,

○Haruki Sato¹, Naoki Kawano¹, Daisuke Nakauchi², Takumi Kato²,

Haruaki Ezawa², Keishi Yamabayashi², Yusuke Endo², Shota Otake², Takayuki Yanagida²

E-mail: m8025208@s.akita-u.ac.jp

【緒言】ドシメータ材料は放射線のエネルギーを吸収・蓄積後、熱や光などの刺激により発光を示す材料であり、環境放射線線量測定などの様々な用途で使用されている。近年、我々の研究では、低い実効原子番号を有するホウ酸塩化合物 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ に着目したドシメータ開発を行っている。これまでの研究で、Dy 添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ が高強度の熱蛍光を示すことを我々が明らかにしたが、輝尽蛍光特性評価は行っていない [1]。また先行研究において、Eu 添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ の Ca^{2+} を Sr^{2+} に一部置換することで、熱蛍光の発光量が向上することが分かった [2]。本研究では、Dy、Sr 共添加 $\text{Ca}_2\text{BO}_3\text{Cl}$ を作製し、輝尽蛍光特性を中心したドシメータ特性の Sr 置換効果を調べた。

【実験方法】原料粉末である CaCO_3 、 B_2O_3 、 CaCl_2 、 SrCO_3 、 Dy_2O_3 を化学量論比通りに混合後、950 °C で 3 時間、空气中で焼成することで $\text{Ca}_{1.98-x}\text{Sr}_x\text{Dy}_{0.02}\text{BO}_3\text{Cl}$ ($x = 0, 0.05, 0.1, 0.15$) を得た。

【実験結果】図 1 に 10 Gy の X 線を照射したサンプルの輝尽蛍光減衰曲線を示す。700 nm の刺激光照射時に指数関数的な強度の減少が観測されたため、作製したサンプルが輝尽蛍光を示すことが分かった。Sr の添加量が増加するにつれてサンプルの発光量は低下した。

図 2 に 10 Gy の X 線を照射したサンプルの輝尽蛍光スペクトルを示す。全てのサンプルにおいて 480、580 nm 付近に 2 つのピークが観測された。これらのピークは Dy^{3+} の 4f-4f 遷移に由来する。本講演では当該材料の熱蛍光特性を含めたドシメータ特性の詳細について議論する。

【参考文献】

- [1] N. Kawano et al., Opt. Mater. 112 (2021) 110784.
[2] M. Tian et al., J. Alloys. Compd. 787 (2019) 1004-1014.

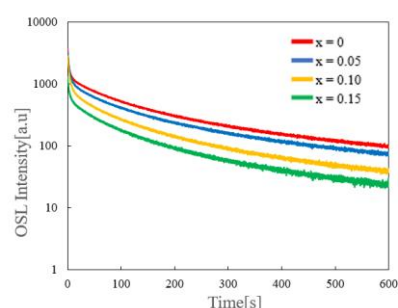


図 1 $\text{Ca}_{1.98-x}\text{Sr}_x\text{Dy}_{0.02}\text{BO}_3\text{Cl}$ の輝尽蛍光減衰曲線。

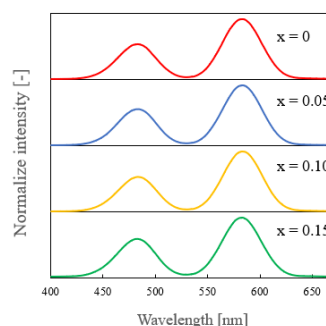


図 2 $\text{Ca}_{1.98-x}\text{Sr}_x\text{Dy}_{0.02}\text{BO}_3\text{Cl}$ の輝尽蛍光スペクトル。

Er³⁺添加重元素系ガラスを利用した近赤外発光シンチレータの開発

Development of Er³⁺-doped heavy element glasses for near-infrared scintillators

秋田大¹, 奈良先端大², 宇都宮大³, 福井高専⁴, 産総研⁵

○河野 直樹¹, 岡崎 魁², 竹淵 優馬³, 福嶋 宏之⁴,

加藤 匠², 中内 大介², 加賀谷 史¹, 篠崎 健二⁵, 柳田 健之²

Akita University¹, Nara Institute of Science and Technology²,

Utsunomiya University³, National Institute of Technology Fukui College⁴,

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology⁵

○Naoki Kawano¹, Kai Okazaki², Yuma Takebuchi³, Hiroyuki Fukushima⁴,

Takumi Kato², Daisuke Nakauchi², Fumito Kagaya¹, Kenji Shinozaki⁵, Takayuki Yanagida²

E-mail: n-kawano@gipc.akita-u.ac.jp

バイオイメージングや原子炉線量計測などの応用可能性から、近年、近赤外発光シンチレータに関する研究が活発に行われている。当該シンチレータの開発に向けて、Nd³⁺や Er³⁺等の希土類元素イオンを添加した単結晶の作製と特性評価が活発に行われており、例えば Er³⁺添加 Bi₄Ge₃O₁₂ 単結晶が、X 線照射時に Er³⁺の 4f-4f 遷移由来の高強度な近赤外発光を示し、InGaAs フォトダイオードを用いた近赤外光の最低検出線量率が 6 mGy/h であることがわかった[1]。

本研究では、近赤外発光シンチレータ開発に向けた新たな材料系として重元素系ガラスに着目した。ガラス材料は、組成均一性や大容量化の容易さなど様々な産業的利点を有する。さらにテルライト塩ガラスやガリウム塩ガラス等の重元素系ガラスは、シリカ塩ガラスやホウ酸塩ガラスと比較して、高い実効原子番号、低いフォノンエネルギーから放射線励起時に高い発光量を示す可能性がある。今回、1Er₂O₃-3BaO-20Nb₂O₅-76TeO₂ ガラスを中心に、様々な Er³⁺添加重元素系ガラスを作製し、その近赤外発光特性評価を行った。

表 1 に示すように、X 線励起時のシンチレーションスペクトルを測定した結果、Er³⁺の 4f-4f 遷移由来の近赤外発光が表 1 に示すガラス材料から観測された。さらに、InGaAs フォトダイオードを用いて、X 線励起時の最低検出線量率を測定した。その結果、1Er₂O₃-3BaO-20Nb₂O₅-76TeO₂ ガラスの最低検出線量率が 0.5 mGy/h であり[2]、極めて高い近赤外発光量を示すことがわかった。

表 1 X 線励起時の発光波長と最低検出線量率。

Sample	Emission wavelength	Lowest detectable dose rate
Er:Bi ₄ Ge ₃ O ₁₂ single crystal	1530 nm	6 mGy/h
Er:K ₂ O-La ₂ O ₃ -Ga ₂ O ₃ glass	1530 nm	5 mGy/h
Er:GeO ₂ -BaO-Bi ₂ O ₃ glass	1530 nm	5 mGy/h
Er:BaO-Nb ₂ O ₅ -TeO ₂ glass	1530 nm	0.5 mGy/h

【参考文献】

[1] K. Okazaki et al., J. Alloys. Compd. 903 (2022) 163834.

[2] N. Kawano et al., Jpn. J. Appl. Phys. 62(7) (2023) 072002.

RPL および OSL を利用した放射線量分布イメージングリーダーの開発

Radiation Dose Distribution Imaging Reader Utilizing RPL and OSL

金沢工大¹, 千代田テクノ², エール大³ ○南戸 秀仁^{1,2}, 岡田 豪², 平澤 一樹¹,
小口 靖弘², 篠崎和佳子², 上野 智史², 柳田 由香², F.d' Errico³, 山本 幸佳²
KIT.¹, Chiyoda Technol.², Yale Univ.³ ○Hidehito Nanto^{1,2}, Go Okada¹, Kazuki Hirasawa¹,
Yasuhiro Koguchi², Wakako Shinosaki², Satoshi Ueno², Yuka Yanagida²,
Francesco d'Errico³, Takayoshi Yamamoto²
E-mail: hnanto@neptune.kanazawa-it.ac.jp

本研究では、RPL (Radiophotoluminescence : ラジオフォトルミネッセンス) に基づく画像読取装置を構築した。リーダーシステムは主にペルチェ冷却 CMOS カメラと LED 励起光源, および制御装置から構成される。そして、システムは、任意の励起波長 (例 : 365、405、460、530、630 nm) でイメージの読み出しを行うことが可能であり、また、発光の検出波長は 365nm、405nm、460nm、530nm、630nm など、広いスペクトル検出範囲 (200-1000 nm) での測定が可能である。

開発したシステムを使用することで、さまざまな分光特性を持つ画像検出器の試作に使用することができることを明らかにするとともに、開発したシステムを用いて、我々は様々な X 線投影画像を得ることに成功をした[1, 2]。

また、市販の RPL 検出器[Ag ドープリン酸ガラス(Ag-PG)]プレートおよび自作のフレキシブル・イメージング・プレート(IP)を用いたイメージングにも成功した[3, 4]。さらに、このリーダーシステムは、RPL イメージングだけでなく、従来の光刺激ルミネッセンス (OSL) 蛍光体を用いたイメージングにも応用可能であることを明らかにした。さらに、医療診断用の市販 IP を用いて、いろいろな放射線イメージ像を取得することが可能であることを実証した[5, 6]。

謝辞・本研究は文部省科研費 (19K22158, 22H02009) の助成によりなされた。ここに感謝する。

参考文献

- [1] H. Nanto et al. Radiophotoluminescence Imagin Reader for Passive Dosimetry, *Sens. & Mater.*, **34**, (2022) 757-764. (第4回極限的励起状態の形成と量子エネルギー変換グループ論文賞論文)
- [2] G. Okada et al., Undoped CaSO₄ showing highly enhanced radio-photoluminescence, *Mater. Today Commun.*, **24** (2020)101013.
- [3] G. Okada et al, RPL properties of samarium-doped CaSO₄, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **61** (2022) SB1035.
- [4] G. Okada et al., recent advances in radiophotoluminescence materials for luminescence dosimetry, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **62** (2022) 010609.
- [5] H. Nanto et al., Optically stimulated luminescence dosimeters: principle, phosphors and applications, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **61** (2022) 010505.
- [6] H. Nanto and G. Okada, Optically stimulated Luminescent dosimeters, in *Phosphors for Radiation Detectors*, ed by T. Yanagida and M. Koshimizu (Wiley, New York, (2022), p.225.

KS 研究会セッション | 一般セッション(ポスター講演): KS4 量子エネルギー変換研究会

[8p-P12-1~20] KS4 量子エネルギー変換研究会

[8p-P12-1]

溶媒蒸発法を用いたCsPb₂Cl₅結晶シンチレータの作製および性能評価○岡 諒汰¹、藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹、田村 飛翔¹ (1.東北大工)

[8p-P12-2]

Ce³⁺/Pr³⁺共添加Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ガラスの蛍光及びシンチレーション特性○(M1)菅原 瑠¹、藤本 裕¹、森田 千恵¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[8p-P12-3]

多様な価数の異種カチオンを添加したTlCdCl₃結晶のPL及びシンチレーション特性○笠原 利希¹、藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[8p-P12-4]

Tl添加Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ガラスシンチレータにおける発光特性の温度依存性○森田 千恵¹、藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[8p-P12-5]

Ceイオン添加BaF₂結晶における蛍光及びシンチレーション性能評価○田村 飛翔¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[8p-P12-6]

Cs₂LiScCl₆結晶の育成と発光特性の調査○藤本 裕¹、古田 満理奈¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[8p-P12-7]

Ce添加Rb₂NaScCl₆単結晶におけるシンチレーション特性の温度依存性○古田 満理奈¹、藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[8p-P12-8]

Na₂O-Al₂O₃-P₂O₅-MnOガラスにおける熱蛍光特性及びトラップ解析○川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[8p-P12-9]

銀添加Rb-Alホウ酸塩ガラスにおけるラジオフォトルミネッセンス特性

○森下 諒一¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[8p-P12-10]

中性子検出感度向上に向けたMn²⁺添加CaO-Al₂O₃-B₂O₃ガラスの熱処理条件の検討○(M2)高津 匠吾¹、山口 寛人¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、越水 正典²、若林 源一郎³、浅井 圭介¹ (1.東北大学工、2.静岡大電子研、3.近大原研)

[8p-P12-11]

Ce:KGd(PO₃)₄ ガラスにおけるシンチレーション特性の組成依存性○白鳥 大毅¹、木村 大海²、藤本 裕³、川本 弘樹³、福地 裕¹、浅井 圭介³ (1.東京理科大、2.産総研、3.東北大)

[8p-P12-12]

Eu添加NaBaPO₄セラミックスが呈するラジオフォトルミネッセンス現象

○(B)秋山 慶悟¹、白鳥 大毅¹、岡田 豪²、木村 大海³、松永 拓己¹、福地 裕¹、柳田 健之⁴ (1.東京理科大、2.金沢工大、3.産総研、4.奈良先端大)

[8p-P12-13]

Bi添加Ca₂SiO₄におけるRPL特性の評価

○能川 春菜¹、南戸 秀仁¹、岡田 豪¹ (1.金沢工大)

[8p-P12-14]

Ce添加Sr₂Mg(BO₃)₂シンチレータの中性子検出特性評価

○山城 滯司¹、竹渕 優馬¹、木村 大海²、八巻 和宏¹、伴 洋輝¹、小又 公拓¹、東口 武史¹、手塚 慶太郎¹ (1.宇都宮大、2.産総研)

[8p-P12-15]

BaAl₂S₄のEu添加濃度によるドシメータ特性の変化

○藤倉 聖¹、竹渕 優馬¹、木村 大海²、伴 洋輝¹、小又 公拓¹、東口 武史¹、手塚 慶太郎¹ (1.宇都宮大工、2.産総研)

[8p-P12-16]

Dy添加CaYAlO₄セラミックスの構造と放射線誘起蛍光特性における合成雰囲気の影響

○後藤 隼弥¹、竹渕 優馬¹、木村 大海²、手塚 慶太郎¹ (1.宇都宮大、2.産総研)

[8p-P12-17]

異なるホストポリマーのプラスチックシンチレータの真空紫外光励起での発光特性

○越水 正典¹ (1.静大電子研)

[8p-P12-18]

異なる合成条件のケイ酸塩ナノ粒子のシンチレーション特性

○(B)中西 桃子¹、高橋 悠真¹、越水 正典¹ (1.静岡大学)

[8p-P12-19]

Mgを共添加したLi₆Y(BO₃)₃熱蛍光材料の開発

○(B)大平 慧¹、越水 正典¹ (1.静岡大)

[8p-P12-20]

安息香酸添加ポリマー材料の放射線化学反応を応用したラジオフォトルミネッセンス線量計の開発

○(M1)矢代 智章¹、越水 正典¹ (1.静岡大工)

溶媒蒸発法を用いた CsPb_2Cl_5 結晶シンチレータの作製および性能評価Growth and Characterization of CsPb_2Cl_5 Crystal Scintillator

via Solvent Evaporation Method

東北大工¹ ○(B)岡 諒汰¹, 藤本 裕¹, 川本 弘樹¹, 田村飛翔¹, 浅井 圭介¹Tohoku Univ.¹ °Ryota Oka¹, Yutaka Fujimoto¹, Hiroki Kawamoto¹, Tsubasa Tamura¹, Keisuke Asai¹

E-mail: oka.ryota.q6@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】シンチレータは、放射線により励起されて光を放出する蛍光体であり、セキュリティや医療分野などに広く応用されている。用途に応じて求められる性能は異なるものの、特に高エネルギー放射線の検出を目的とする場合には、検出感度やエネルギー弁別性能を確保するため、高い発光効率と優れたエネルギー分解能が要求される。ハロゲン化物シンチレータは、当該性能に優れる例が多く、多用される傾向にある。一方で、ハロゲン化物の原料および生成物結晶は潮解性を示すため、湿度管理された環境での取り扱いを必須とし、これに伴う設備に高コストを要する。加えて、従来の単結晶育成に広く用いられている融液法は、高温プロセスを含み、設備の維持管理・運転における費用上の高負担を余儀なくさせる。我々は、低温・低コストでのハロゲン化物結晶育成を企図し、材料を溶解させた溶媒を蒸発させることで結晶を析出させる簡易プロセスである「溶媒蒸発法」に着目した。対象物質としては、二次元ペロブスカイト構造を有し、低潮解性および自己束縛励起子 (STE) による高効率な発光の発現を期待する¹⁾ CsPb_2Cl_5 を選定した。この化合物は、インコングルエント組成をもつため、融液法を適用し難い。本研究では、溶媒蒸発法により CsPb_2Cl_5 結晶を作製し、シンチレータ特性を調べた。

【実験方法】 CsCl (99.999%), PbCl_2 (99.9%) を原料、塩酸 (HCl , 35.0-37.0%) を溶媒、次亜リン酸を還元剤として用いた。これらを混合し、スクリー管に移してホットスターラー上で加熱・攪拌することで原料を溶解させた。原料が完全に溶解させた後、攪拌を停止し、120°Cで加熱を継続することで溶媒を蒸発させ、結晶を析出させた。この試料の結晶相を同定するため、X線回折 (XRD) 測定を行い、あわせてシンチレーション特性を調査した。

【結果と考察】Figure 1 に、作製試料の XRD パターンを示す。観測された回折ピークの位置は、ICSD データベースに登録された CsPb_2Cl_5 のパターンと一致しており、目的の結晶相が形成されたこと、ならびに異相の混入はないことが分る。Figure 2 に示す作製試料の XRL スペクトルにおいて、400–500 nm に広がる発光バンドが観測された。この発光は、二次元ペロブスカイト構造における格子歪みに起因する STE 発光に由来するものと推定される。

1) Yao, Q., et al.: J. Mater. Chem. C 9, 7374 (2021).

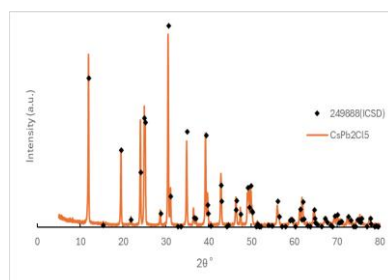


Fig. 1. XRD pattern of CsPb_2Cl_5 crystal synthesized via solvent evaporation.

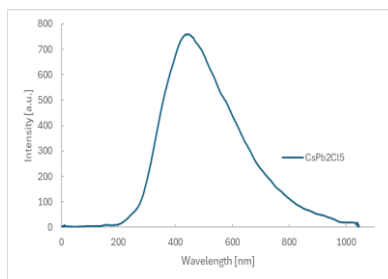


Fig. 2. XRL spectrum of CsPb_2Cl_5

Ce³⁺/Pr³⁺共添加 Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ ガラスの蛍光及びシンチレーション特性

Photoluminescence and Scintillation Properties of Ce³⁺/Pr³⁺ Co-doped Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ Glasses

東北大院工¹ ○(M)菅原 瑠¹, 藤本 裕¹, 森田 千恵¹, 川本 弘樹¹, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, Yo Sugahara¹, Yutaka Fujimoto¹, Chie Morita¹, Hiroki Kawamoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: sugahara.yo.r8@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレータは、放射線を受けて紫外-可視光を発する蛍光体であり、放射線検出器に搭載されて手荷物検査機や医用イメージングなどに利用されている。特に X 線・γ 線検出用途でのシンチレータには、大きな発光量や小さな減衰時定数、優れたエネルギー分解能の兼備が求められる。これらの要求を満たす材料として、無機結晶シンチレータが実用化されているものの、高融点ゆえに製造コストがかさむという難点がある。昨今、これを克服する代替材料として、大型化の実績をもち、高い加工性とそれに伴う低コスト性を具備した無機ガラスが注目されている。我々はこれまでに、発光中心として Ce³⁺を添加した Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ ガラスシンチレータにおいて、2500 photons/MeV という大発光量を達成している^[1]。一方、大阪大のグループは、Ce³⁺/Pr³⁺共添加 20Al(PO₃)₃-80LiF ガラスにおいて、Ce³⁺-Pr³⁺間のエネルギー移動に関する報告を行っている^[2]。これらの知見から、Ce³⁺と Pr³⁺を発光中心としてガラス中に共添加することで、Pr³⁺から Ce³⁺への高効率なエネルギー移動を発現させ、Ce³⁺の発光量向上及び発光減衰の高速化を共に実現し得るものと期待される。そこで本研究では、Ce³⁺/Pr³⁺共添加 Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ ガラスを作製し、その蛍光及びシンチレーション特性を調査した。

【実験方法】原料である Al(PO₃)₃ (99.9%), CsH₂PO₄ (99%), CeCl₃ (99.9%), PrCl₃ (99.9%) を、1: 1.5: x: (0.3-x) (x = 0, 0.05, 0.10, 0.15, 0.30) の割合で混合し、真空中の熔融急冷法によりガラスを作製した。これを試料として、室温条件下で X 線励起発光 (XRL) スペクトル、及び ¹³⁷Cs-γ 線照射パルス波高 (PH) スペクトルを測定した。PH スペクトル中の光電吸収ピークの波高値を、市販の BGO シンチレータ^[3] (8600 photons/MeV) で得られた値と比較することで、各試料の発光量を推算した。

【結果と考察】Figure 1 に XRL スペクトルを示す。Pr³⁺添加ガラス (x = 0) では、250 nm 付近に Pr³⁺の 5d-4f 遷移に由来するピークが観測された。一方、Ce³⁺/Pr³⁺共添加ガラス (x = 0.05, 0.10, 0.15) および、Ce³⁺単独添加ガラス (x = 0.30) では、350 nm 付近に Ce³⁺の 5d-4f 遷移に由来するピークが現出した。共添加ガラスにおいて Pr³⁺の発光が消失し、Ce³⁺の発光のみ観測されたことから、両イオン間におけるエネルギー移動が示唆される。Figure 2 には、¹³⁷Cs-γ 線照射 PH スペクトルを示す。x = 0 を除くすべての試料において、662 keV の γ 線に起因する光電吸収ピークが観測された。各試料の発光量は、x = 0.05, 0.10, 0.15 の順に、それぞれ 1450, 1580, 2160 photons/MeV であった。以上の結果から、当該ガラスは X 線および γ 線検出用途において優れたシンチレーション性能を有することが示された。

【参考文献】[1] Y. Nakabayashi, *et al.*, *Opt. Mater.*, **142**, 114136 (2023). [2] Y. Minami, *et al.*, *J. Non. Cryst. Solids*, **521**, 119495 (2019). [3] N. Yawai, *et al.*, *Opt. Mater.*, **36**, 2030-2033 (2014).

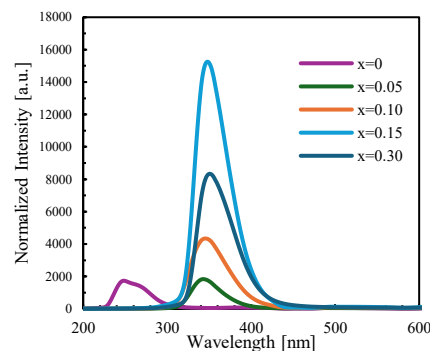


Fig. 1. XRL spectra of the fabricated glasses.

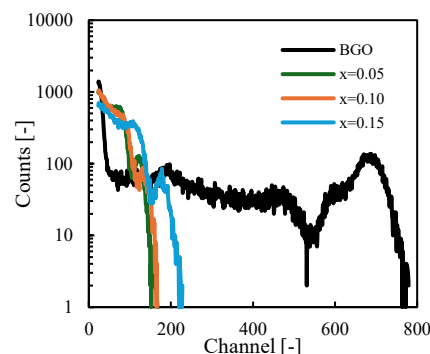


Fig. 2. Pulse-height spectra of the fabricated glasses under ¹³⁷Cs γ-ray irradiation.

多様な価数の異種カチオンを添加した TlCdCl_3 結晶の PL 及びシンチレーション特性

Photoluminescence and Scintillation Properties of TlCdCl_3 Crystals Doped with Cations of Various Valences

東北大工¹, °笠原 利希¹, 藤本 裕¹, 川本 弘樹¹, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, °Toshiki Kasahara¹, Yutaka Fujimoto¹, Hiroki Kawamoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: kasahara.toshiki.s4@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】シンチレータは、放射線との相互作用により紫外光や可視光を放出する蛍光体であり、放射線検出器に搭載されて医療用 X 線 CT や非破壊検査などに応用されている。実用に供するには、多様な要件の充足が求められる。特に X 線・ γ 線の検出に用いられるシンチレータには、高密度かつ高い実効原子番号を含む諸性能の具備が求められる。こうした要求に応えるべく、我々は、原子番号 81 を有する Tl に着目し、Tl 系塩化物シンチレータの開発を進めてきた。その成果として、 Tl_2ZrCl_6 結晶 (50,800 photons/MeV) 等、発光収率に優れる材料をいくつか見出すことができた。一方で、同系統に属する TlCdCl_3 結晶では、発光収率が 2,200 photons/MeV と著しく低い値に留まることが分った。その後、 TlCdCl_3 結晶に 3 価カチオンを添加することで、発光収率を 10,300 photons/MeV まで向上させることに成功した[1]。とは言え、この値は依然として他の同系シンチレータのものに劣り、さらなる向上の余地があるものと考えられる。そこで本研究では、 TlCdCl_3 結晶の発光収率及びその他シンチレーション性能の改善と、添加効果に関するメカニズムの解明を企図して、価数を異にする異種カチオンを添加し、PL 及びシンチレーション特性を調査した。

【実験】 TlCl (99.9 %), CdCl_2 (99.9 %), ZnCl_2 (99.95 %) を原料として用い、単純固化法により、 Zn^{2+} 添加 TlCdCl_3 結晶を育成した。これを試料として、粉末 XRD パターン、励起・蛍光スペクトル、蛍光減衰曲線、X 線励起ラジオルミネッセンス (XRL) スペクトル、 ^{137}Cs - γ 線照射波高スペクトル、シンチレーション減衰曲線を測定した。

【結果】Figure 1 に XRL スペクトルを示す。0.5 mol% の Zn 添加により、自己束縛励起子に起因する発光のピークが短波長側へシフトした。Figure 2 に ^{137}Cs - γ 線照射時の波高スペクトルを示す。Zn 添加 TlCdCl_3 結晶は、無添加結晶に比べて、エネルギー分解能において勝ることが明らかになった。一方で、発光収率は、Zn 添加結晶で 2,900 photons/MeV、無添加結晶で 5,100 photons/MeV と算出され、Zn の添加により減少する結果となった。

[1] M. Ishida *et al.*, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.* **35**, 1743 (2024).

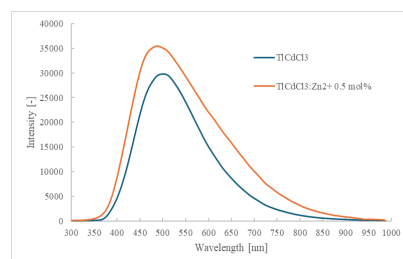


Fig. 1. XRL spectra of TlCdCl_3 and 0.5 mol% Zn-doped TlCdCl_3 crystals.

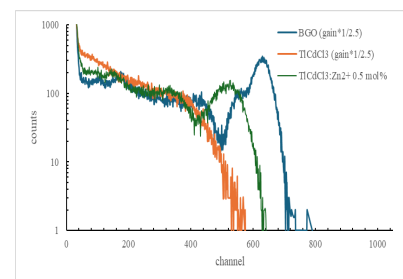


Fig. 2. Pulse-height spectra of TlCdCl_3 , 0.5 mol% Zn-doped TlCdCl_3 , and BGO under ^{137}Cs γ -ray irradiation.

Tl 添加 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--Cs}_2\text{O--P}_2\text{O}_5$ ガラスシンチレータにおける発光特性の温度依存性

Temperature Dependence of Luminescence Properties in Tl-Doped $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--Cs}_2\text{O--P}_2\text{O}_5$ Glasses Scintillators

東北大工¹ °森田 千恵¹, 藤本 裕¹, 川本 弘樹¹, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, °Chie Morita¹, Yutaka Fujimoto¹, Hiroki Kawamoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: morita.chie.r5@dc.tohoku.ac.jp

【背景】X線及び γ 線検出用シンチレータには、大発光量及び高実効原子番号 (Z_{eff}) といった性能の具備が要求される。これに応える形で実用化された材料の多くは無機結晶から成り、そしてそのほぼ全てが、融点の高さ故、製造コストの高さに難点を持つ。これを克服する方途として、加工性と低コスト性に優れる無機ガラスの応用が検討されている。ここでの課題は、発光量の向上と Z_{eff} の増大である。

我々はこれまでに、ガラスの高 Z_{eff} 化を企図し、原子番号 81 のタリウムを高濃度に含有させた Tl-doped $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--Cs}_2\text{O--P}_2\text{O}_5$ ガラス系シンチレータを開発した。この材料は、X線励起時に 320 nm 及び 390 nm 付近にピークを持つ広帯域発光帯を呈し、 γ 線励起では 1400photons/MeV の発光量を示しフォトンカウンティング計測に対応可能であることが明らかになった¹⁾。本研究では、常温において優れた発光性を有する当該ガラスの、常温から極低温における発光挙動を調査した。

【実験】原料である $\text{Al}(\text{PO}_3)_3$ (99.9%), CsH_2PO_4 (99%), 及び TlCl (99.9%) を、モル比 0.8 : 1.5 : 0.3 で混合し、真空中での熔融急冷法によりガラスを作製した。これを試料として、11–300 K における X 線励起発光 (XRL) スペクトルの温度依存性を測定した。

【結果】Figure1 に、XRL スペクトルの温度依存性を示す。各温度で観測された発光帯について、ガウシアンフィッティングによる解析を行った。先行研究により、320 nm 及び 390 nm 付近に観測された 2 つの発光帯は、対称性を異にする 2 種類の Tl^+ サイトにおける A バンド発光によるものとされている²⁾。一方、450–500 nm に観測されたショルダー状の発光帯は、ガラスホスト自体、あるいは欠陥準位に起因することが示唆される。Figure2 に、XRL スペクトルの積分強度の温度依存性を示す。同強度は、おおむね低温で高く、温度上昇とともに徐々に減衰した。発表では、各発光成分の温度依存性の違いに基づき、当該ガラスの発光機構を考察した結果を報告する。

1) C. Morita, *et al.*: Proc. the 84th JSAP Autumn Meeting, Kumamoto, Japan, 2023, 20p-P01-21.

2) K. Kubota and T. Kawai: *J. Phys. Chem. Solids*. **163**, 110592 (2022).

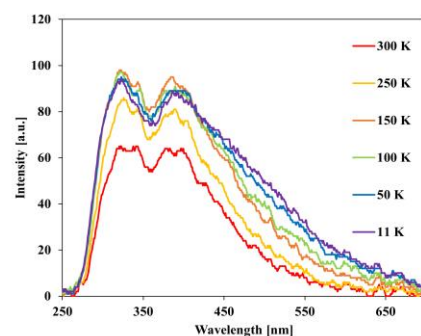


Fig. 1. XRL spectra of the Tl-doped $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--Cs}_2\text{O--P}_2\text{O}_5$ glass at various temperatures.

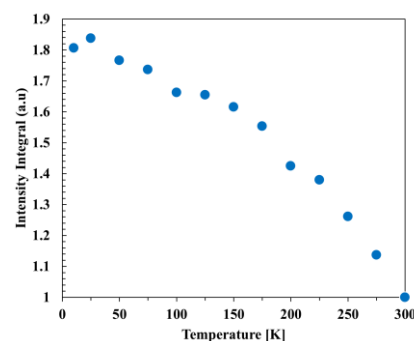


Fig. 2. Temperature dependence of the integrated XRL intensity of the glass sample.

Ce イオン添加 BaFI 結晶における蛍光及びシンチレーション性能評価

Radiation-Induced Luminescence Properties of Ce-Doped BaFI Crystals

東北大工 〇(M)田村 飛翔, 川本弘樹, 藤本裕, 浅井圭介

Tohoku Univ., °Tsubasa Tamura, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai

E-mail : keisuke.asai.c8@tohoku.ac.jp

【緒言】高感度な放射線検出器の一つに、シンチレーション検出器が挙げられる。これは、放射線を受けて蛍光を発するシンチレータと、その蛍光を電気信号へと変換する光センサーから構成される。シンチレータには無機物が広く用いられており、なかでもハロゲン化物は、酸化物に比べて高い発光性を示すという大きな利点を有する優れた材料である。一方で、高潮解性という欠点を抱えている。これを克服するための策が講じられる中で、複合アニオン系ハロゲン化物結晶における潮解性抑制の成功が報じられた^[1]。我々は、実用性の高い新規複合アニオン系ハロゲン化物シンチレータの開発を目指し、大気中でも安定であり、輝尽蛍光性を活かしたイメージングプレート用宿主材料としての応用実績^[2]もある BaFX (X=Cl, Br, I) に着目した。本研究では、BaFI 結晶に Ce イオンを発光中心として添加し、その蛍光及びシンチレーション性能を評価した。

【実験方法】FとIが等モル量、Ce添加量がそれぞれ1 mol%となるようにBaF₂(99.99%), BaI₂(99.95%), CeF₃(99.9%)の粉末を混合し、これをプレス機で成形し、粉碎後、カーボンコーティングした石英管中で真空乾燥の後に、ガスバーナーにより封止した。これを4 hかけて1100°Cまで熱し、同温度で4 h保持した後、12 hかけて950°C、24 hかけて850°C、48 hかけて室温まで冷却して結晶を得た。これを試料として、X線回折 (XRD)での結晶構造解析の後、X線励起発光 (XRL)スペクトルを測定した。

【結果と考察】Figure 1に、作製した結晶のXRDパターンを示す。得られた回折データはデータベースに登録されているものと一致しており、試料が不純物相を伴わないBaFIの結晶構造を有することが示された。Figure 2に、同結晶のXRLスペクトルを示す。323および349 nmにピークをもつ弱い蛍光と、438 nmにピークをもつ強い蛍光が観測された。前者二つは、既報のCe添加BaF₂結晶のシンチレーション光と類似した挙動を示すことから、Ceに由来する発光と考えられる^[3]。後者は、ピーク位置やスペクトル幅といった形状の特徴において、無添加BaFI結晶におけるシンチレーション光と類似していることから、母結晶由来の発光であると考察される^[4]。

【結言】Ceイオンを添加したBaFI結晶の作製に成功した。XRD 測定の結果、作製した試料はBaFIの結晶構造を有することが確認された。また、XRLスペクトルでは、Ceに由来する323および349 nmの発光が観測された。

【参考文献】 [1] E.D. Bourret-Courchesne: J. Cryst. Growth **352**, 78 (2012).

[2] 宗川 繁: 応用物理**69**, 420 (2000).

[3] A. J. Wojtowicz: J. Phys.: Condens. Matter **12**, 4097 (2000).

[4] K. Govinda Rajan: Pramana **65**, 323 (2005).

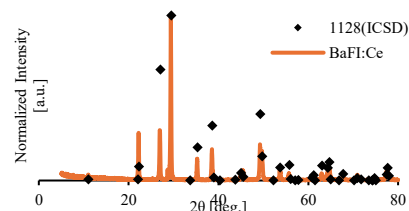


Fig. 1. XRD patterns of the Ce³⁺-doped BaFI crystal.

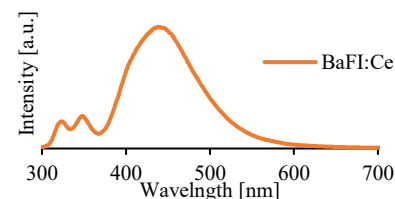


Fig. 2. X-ray excited emission spectrum of the Ce³⁺-doped BaFI crystal.

Cs₂LiScCl₆ 結晶の育成と発光特性の調査

Crystal growth and luminescence properties of Cs₂LiScCl₆

○藤本 裕, 古田 満理奈, 川本 弘樹, 浅井 圭介 (東北大院工)

○Yutaka Fujimoto, Marina Furuta, Hiroki Kawamoto, and Keisuke Asai (Tohoku Univ.)

E-mail: yutaka.fujimoto.c3@tohoku.ac.jp

【緒言】フッ化物を除くハロゲン化物結晶シンチレータは、酸化物と比較して低融点である利点に加え、バンドギャップエネルギーが小さいため、原理的に放射線から付与されたエネルギーあたりに生成される電子正孔対(あるいはキャリア)数が大きく、高い発光収率が期待できる。また、近年では、その研究対象も3元素系、4元素系と多元化しており、カチオン及びアニオンの選択や組み合わせも含め、設計の自由度も拡大している。例えば、エルパソライト型構造を有するシンチレータとして、Cs₂⁶LiYCl₆:Ce³⁺ (CLYC) が知られている。CLYCは高い発光収率と優れたn/γ 弁別性能を示すことから、中性子計測用として製品化されているが、高い潮解性を示すため、アルミケースによるパッケージングが必要となっている。そこで我々は、新たな中性子計測用のエルパソライト型シンチレータとして、Cs₂LiScCl₆ (CLSC) 結晶に着目した。スカンジウムをカチオンとして含んだいくつかのエルパソライト型化合物は、大気中での高安定性が報告^[1]されており、本結晶においても潮解性の低減・抑制を期待した。本研究では、ブリッジマン法により CLSC 結晶の育成を試みるとともに、結晶の大気中での安定性評価に加え、その発光特性について調査した。

【実験内容と結果】 CLSC 結晶の育成には、CsCl (5N), LiCl (3Nup)及び ScCl₃・6H₂O (3N)粉末を出発原料に用いた。各原料を超純水中に溶解・攪拌後、乾燥機で脱水し、さらに 400℃にて真空脱水を行った。最後に、得られた混合物を石英管に導入し、真空封止した。この石英アンプルを縦型ブリッジマン炉にて結晶育成を行った。図1に得られた結晶の粉末X線回折(XRD)パターンを示す。各ピークは、ICSD データともよく一致しており、得られた結晶は CLSC が主相であることが確認された。尚、水和物による異相などは確認されなかった。図2に CLSC 結晶の X 線励起シンチレーション(XRL)スペクトルを示す。スペクトルより、300–550 nm 波長域にかけてブロードな発光帯が観測された。同様の発光は、Cs₂NaScCl₆ 結晶においても観測されている^[1]ことから、同種の発光メカニズムにて生じていると推察される。

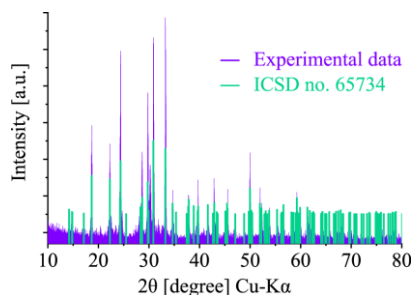


Fig. 1 XRD patterns of the CLSC crystal.

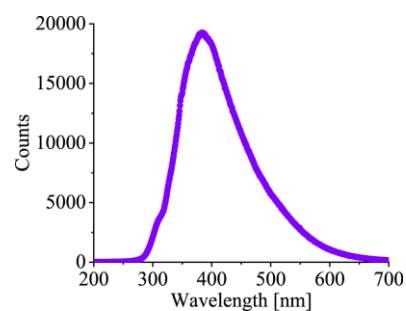


Fig. 2 XRL spectra of the CLSC crystal.

[1] 古田満理奈, 他 5 名, 16p-K502-6, 第 72 回応用物理学会春季学術講演会, 2025 年 3/16(日), 千葉.

Ce 添加 $\text{Rb}_2\text{NaScCl}_6$ 単結晶におけるシンチレーション特性の温度依存性

Temperature Dependence of Scintillation Properties in Ce-Doped $\text{Rb}_2\text{NaScCl}_6$ Single Crystals

東北大院工 ○(M) 古田満理奈, 藤本裕, 川本弘樹, 浅井圭介

Tohoku Univ., ○Marina Furuta, Yutaka Fujimoto, Hiroki Kawamoto, Keisuke asai

E-mail: furuta.marina.r2@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレータは、入射する放射線にตอบสนองして紫外-可視光を発する検出材料であり、実用化に際しては、高発光性や非潮解性といった数々の性能の具備が求められる。こうした要求に応える新たな材料の探索を進める中で、我々は、近年光学材料として注目されている鉛フリーのメタルハライドエルパソライト ($\text{A}_2\text{B}^+\text{B}'^{3+}\text{X}_6$) に着目するに至った。そして、これと類似した結晶構造を有し、高発光性 (発光量 : 35,300 photons/MeV) および非潮解性を示す Ce 添加 $\text{Rb}_2\text{NaScCl}_6$ (RNSC) 単結晶シンチレータの開発に成功した^[1]。とは言え、本材料における発光機構の詳細は未だ明らかになっていない。そこで本研究では、当該機構の解明とその知見の新材料設計への展開を企図して、無添加および Ce 添加 RNSC 単結晶のシンチレーション特性に対する温度の影響を調べた。

【実験方法】純度 99.9%以上の RbCl , NaCl , $\text{ScCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, CeCl_3 (Sc に対して Ce を 0.5 mol%添加) を原料とし、垂直ブリッジマン法を用いて結晶を作製した。これを試料として、11–300 K の範囲における X 線励起ラジオリミネッセンス (XRL) スペクトルを測定した。

【結果と考察】Figure1 に、無添加および Ce 添加試料の XRL スペクトルを示す。無添加試料では、380 nm にピークを持つ広帯域の発光が観測された。これは母材由来の自己束縛励起子発光 (STE)^[2]によるものと考えられる。一方、Ce 添加試料では3つのピークが観測された。310 nm のピークは、 Ce^{3+} の励起帯による再吸収の影響でスペクトル形状が歪んだ STE に対応し、370 および 410 nm のピークは、 Ce^{3+} の $5d-4f$ 遷移^[3]に起因するものと考えられる。Figure 2 に、無添加 RNSC と $\text{Cs}_2\text{NaScCl}_6$ (CNSC) における XRL スペクトルの温度依存性を示す。RNSC では、11–150 K において温度上昇とともに発光強度が増大し、150–300 K では逆に減少する傾向が見られた。一方、比較のために作製した CNSC では、175 K 以降に発光が強度する挙動が認められ、RNSC とは異なる振舞いが呈された。その要因については現在調査中である。

[1] 古田満理奈, 他: 第 72 回応用物理学会春季学術講演会 講演予稿集, 2025 年 3 月 14 日~17 日, 東京, 講演番号 14a-P01-11

[2] R. Zhang et al: *Adv. Optical Mater.* **9**, 2100689 (2021).

[3] C.M. Combes et al: *J. Lumin.* **82**, 299 (1999).

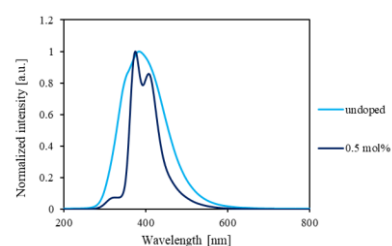


Fig. 1. XRL spectra of undoped and Ce-doped RNSC crystals.

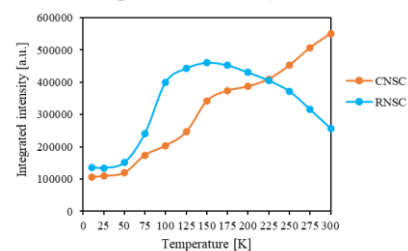


Fig.2 Temperature dependence of the integrated XRL intensity for undoped RNSC and CNSC crystals.

Na₂O-Al₂O₃-P₂O₅-MnO ガラスにおける熱蛍光特性及びトラップ解析

Thermoluminescence and trap analysis in Na₂O-Al₂O₃-P₂O₅-MnO glasses

東北大院工¹, °川本 弘樹¹, 藤本 裕¹, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, °Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: hiroki.kawamoto.c7@tohoku.ac.jp

【背景】熱蛍光は、放射線照射によって形成される電子・正孔を捕獲して準安定な状態にある材料を加熱することで生じる蛍光現象であり、放射線線量計測の動作原理として利用されている。主な熱蛍光材料は、電子・正孔を捕獲する母材と、発光中心イオンからなり、様々な材料が報じられている。既報材料においては、発光中心イオンとして高効率な 5d→4f 遷移発光を呈するレアアースが用いられていることが多く、当該材料の実用化に際しては地政学的リスクが高いといえる。そこで本研究では、母材には個人被ばく線量計素子としての実用実績のある Na-Al リン酸塩ガラスを、発光中心には地政学的リスクが低くかつ可視域での蛍光を呈する Mn²⁺を採用し、当該ガラスにおける熱蛍光特性調査及びトラップ解析を行った。

【実験内容】NaPO₃, Na₂CO₃, Al(PO₃)₃ 及び MnO を原料試薬として用い、融液急冷法により 27.73Na₂O-13.14Al₂O₃-59.04P₂O₅-0.1MnO ガラスを合成した。得られたガラスに 0.01-1000 Gy の X 線を照射した際の 30-400 °C の温度範囲における TL グローカーブを計測した。また、100 Gy の X 線照射後のガラスを 60-340°C の温度で加熱した後の TL グローカーブを測定し、トラップの種類の数を決めた。その後、得られたトラップの数を用いてグローカーブデコンボリューションを行い、各トラップの深さを推算した。

【結果と考察】各温度で加熱した後の TL グローカーブにおける加熱時の温度を T_{stop}, 最低ピーク温度を T_{max} として、縦軸に T_{max}, 横軸に T_{stop} をプロットした物を Fig.1 に示す。T_{max} が概ね一定となる T_{stop} の区間が 5 つあることが分かった。この結果は、30-400°C の範囲では 5 種類のトラップが TL に寄与していることを示している。この結果に基づき、トラップが 5 種類であると仮定して、2 次の速度式を用いてグローカーブデコンボリューションを行った結果を Fig. 2 に示す。Fig.2 に示す通り、5 つのグローピークでよくフィッティングでき、トラップ深さはそれぞれ 0.61, 0.72, 0.87, 0.96,及び 1.08 eV と推算された。

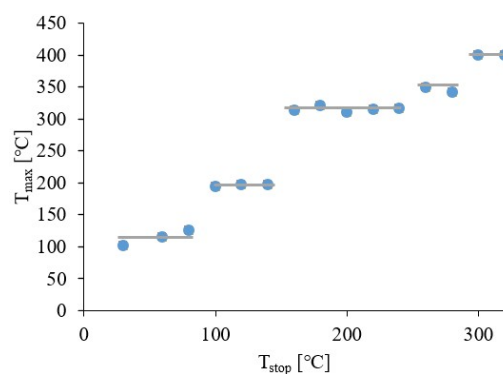


Fig. 1 T_{stop} vs. T_{max} plots

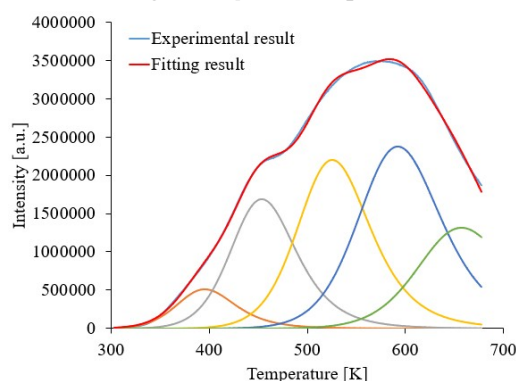


Fig. 2 Deconvoluted TL glow curve

銀添加 Rb-Al ホウ酸塩ガラスにおけるラジオフォトルミネッセンス特性

Radiophotoluminescence Properties of Silver-Doped Rb-Al Borate Glasses

東北大工 〇(M1) 森下 諒一, 川本 弘樹, 藤本 裕, 浅井 圭介

Tohoku Univ., Ryoichi Morishita, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai

E-mail: morishita.ryoichi.q8@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】ラジオフォトルミネッセンス (RPL) は、放射線照射によって新たに形成された蛍光中心 (RPL 中心) が紫外線や可視光などの光励起により発光する現象である。RPL 中心は当該発光によって消失せず、安定に存在し続ける。そのため、生成された RPL 中心量に対応する発光強度は、光励起により繰り返し測定可能である。また、RPL 中心の生成量は吸収線量に対して一定範囲で線形関係を示す。このような特性は、個人被曝線量計の動作原理として応用されている。現在、実用材料としては銀添加リン酸塩ガラスのみが長年にわたり利用されているが、RPL の発現機構には未解明の点が多く、新たな材料の開発や体系的な探索は十分に進んでいない。一方、先行研究において、銀添加 Na-Al ホウ酸塩ガラスが RPL を示すことが報告されており^[1]、これに類似するホウ酸塩ガラスも有望な RPL 材料候補と考えられる。本研究では、ガラス中のアルカリ金属の違いが RPL 特性に及ぼす影響を明らかにすることを企図して、Rb を導入した銀添加 Rb-Al ホウ酸塩ガラスにおける RPL 特性を調査した。

【実験方法】 H_3BO_3 (99.99%), Al_2O_3 (99.99%), Rb_2CO_3 (99.5%) 及び Ag_2O (99.0%) の粉末試薬を用いて $(100-x) (65\text{B}_2\text{O}_5-\text{Al}_2\text{O}_3-30\text{Rb}_2\text{O})-x\text{Ag}_2\text{O}$ ($x = 0, 0.1$) ガラスを熔融急冷法により得た。これを試料として、X 線 (0–1000 Gy) を照射し、蛍光 (PL) スペク

トル ($\lambda_{\text{ex}} = 310 \text{ nm}$)、吸収スペクトル、及び電子スピン共鳴スペクトルを測定することで、RPL 特性を調べた。

【結果・考察】Fig.1 に、X 線 (0–1000 Gy) を照射した銀添加 Rb-Al ホウ酸塩ガラスにおける、励起波長 310 nm での PL スペクトルを示す。線量増加に伴い、550 nm 付近にピークを有するブロードな発光帯の強度増大が認められたことから、当該ガラスの RPL 能具備が判明した。Fig.2 に、450–750 nm における PL 積分強度の線量依存性を示す。

0–500 Gy の範囲では、線量に対して蛍光強度が線形に増加した。一方、500 Gy を超える線量域では、同強度は増加せず飽和傾向を呈した。こうして、当該ガラスが 0–500 Gy の線量測定に適用可能な RPL 材料であることが明らかとなった。

【参考文献】[1] H. Kawamoto, *et al.*, *Sensors and Materials*, 36(2), 607–621, 2024.

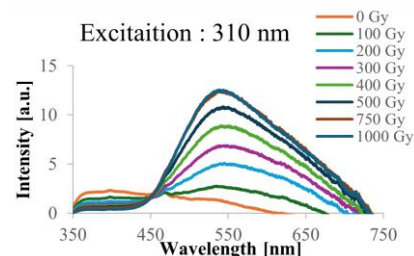


Fig.1 PL spectra of silver-doped Rb-Al borate glass under 310 nm excitation.

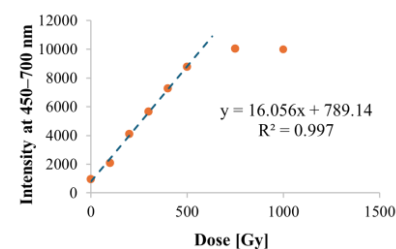


Fig.2 Dose dependence of PL intensity under 310 nm

中性子検出感度向上に向けた Mn^{2+} 添加 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスの熱処理条件の検討 Optimization of Annealing Conditions to Enhance Neutron Detection Sensitivity of Mn^{2+} -Doped $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ Glass

東北大院工¹, 静岡大電子研², 近大原研³ ○(M2)高津 匠吾¹, 山口 寛人¹, 川本 弘樹¹,
藤本 裕¹, 越水 正典², 若林 源一郎³, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, Shizuoka Univ.², Kindai Univ.³ ○Shogo Takatsu¹, Hiroto Yamaguchi¹,
Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Masanori Koshimizu², Genichiro Wakabayashi³, Keisuke Asai¹

E-mail: takatsu.shogo.s2@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】熱蛍光 (thermoluminescence, TL) は、放射線照射によって蓄積されたエネルギーが加熱により発光として放出される現象であり、線量測定に応用可能である。この現象を利用するには、TL 応答を示す適切な材料が必要である。ガラスは、成形性や組成の均質性に優れることから、TL ドシメータ材料として有力な候補とされている。近年では、 ^6Li や ^{10}B など中性子と反応する核種を含有するガラスを用いた、中性子線の簡便な検出手法が注目されている。我々はこれまでに、 Mn^{2+} を添加した $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスが、中性子線に対して高感度な TL 応答を示すことを見出している。一方、Swiontek らは、ガラスからガラスセラミックスへと結晶化させることで TL 強度を向上させると報告^[1]しており、熱処理によるガラス構造制御が TL 性能に大きな影響を与える可能性を示唆している。そこで本研究では、こうした先行知見を踏まえ、熱処理条件の違いが TL 特性に与える影響を系統的に検討した。

【実験方法】 Al_2O_3 (99.99%), CaCO_3 (99.99%), ^{10}B 濃縮 H_3BO_3 (^{10}B >96.0%) または ^{11}B 濃縮 H_3BO_3 (^{11}B >99.0%) 及び MnO を量論比で混合し、電気炉内 (1100 °C) で熔融後、展延急冷すること 34.5 CaO -15 Al_2O_3 -50 B_2O_3 -0.05 MnO ガラスを作製した。600~800 °C で 1 h 熱処理をしたガラスに対し、TL グローカーブを測定した。

【結果・考察】Figure 1 に X 線 (1 Gy) 照射後の TL グローカーブを示す。 Mn^{2+} 添加 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ ガラスに対して熱処理を施したところ、別途実施した XRD 測定では結晶化は確認されなかったが、TL 強度は顕著に増加した。特に、650 °C での熱処理試料では、未処理試料と比較して TL 強度が約 6.5 倍に増加し、最適な熱処理温度が 650 °C であることが明らかとなった。Figure 2 に、熱中性子フルエンスに対する TL 強度を両対数グラフで示す。熱処理試料としては、最大の TL 強度を呈した 650 °C 処理試料を使用した。いずれの試料においても、熱中性子フルエンスの増加に伴って TL 強度が増加し、良好な線量応答性が確認された。特に、熱処理試料では、未処理試料に比べて TL 強度が大きく、感度が向上した。

【参考文献】1) S. Swiontek and M. Sroda: *Materials* **14**, 5987 (2021).

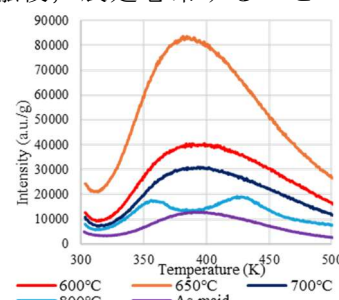


Fig. 1. TL glow curves of Mn^{2+} -doped $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ glass before and after annealing.

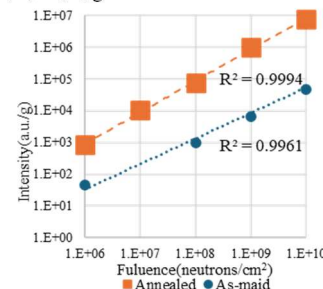


Fig. 2. TL Intensity of Mn^{2+} -doped glass under neutron irradiation before and after annealing.

Ce:KGd(PO₃)₄ ガラスにおけるシンチレーション特性の組成依存性

Composition dependence on scintillation properties of Ce:KGd(PO₃)₄ glasses

東京理科大¹, 産総研², 東北大³

°白鳥 大毅¹, 木村 大海², 藤本 裕³, 川本 弘樹³, 福地 裕¹, 浅井 圭介³

TUS¹, AIST², Tohoku Univ.³, °Daiki Shiratori¹, Hiromi Kimura², Yutaka Fujimoto³,

Hiroki Kawamoto³, Yutaka Fukuchi¹, Keisuke Asai³

E-mail: shiratori@rs.tus.ac.jp

現在実用化されているシンチレータのほとんどは単結晶であるが、単結晶は他の材料と比べて作製コストが高く、成形が難しいなどの理由から工業的に取り扱いづらいことが多い。これに対し、ガラス材料は優れた加工性を有しており、作製コストも比較的低い用途によってはガラス材料が有効である一方、ガラスシンチレータは発光量が結晶のそれに比べて著しく低いという難点がある。我々はこの課題を解決する材料の候補として、以前の講演会にて Ce:KGd(PO₃)₄ ガラスのシンチレーション特性を報告した。当該材料では Gd-Ce 間のエネルギー移動によってガラス材料の最重要課題の一つであるエネルギー輸送効率の低さが補完されていることが示唆されており、実際に 1100 ph/MeV 程度の高い発光量を示す有望な系であることが明らかとなっている。本研究では、当該材料のさらなる発光量の改善を狙い、KGd(PO₃)₄ ガラスにおける K と Gd の比率を変更することで、当該系における最適組成の探索を行った。

Figure 1 は X 線照射時のシンチレーションスペクトルを示しており、いずれの試料からも 350 nm 付近に Ce³⁺ の 5d-4f 遷移に起因すると思われるブロードな発光を観測した[1]。発光強度は K:Gd 比が 1:1 の試料で最も高く、K および Gd のどちらかが増加しても発光強度は減少する傾向を示した。Figure 2 は ¹³⁷Cs の γ 線 (662 keV) を用いて測定した試料のパルス波高スペクトルである。発光量はシンチレーションスペクトル同様に K:Gd 比が 1:1 の試料が最も高く、その値は約 2700 ph/MeV であった。本講演では、その他光学特性およびシンチレーション特性について紹介する。

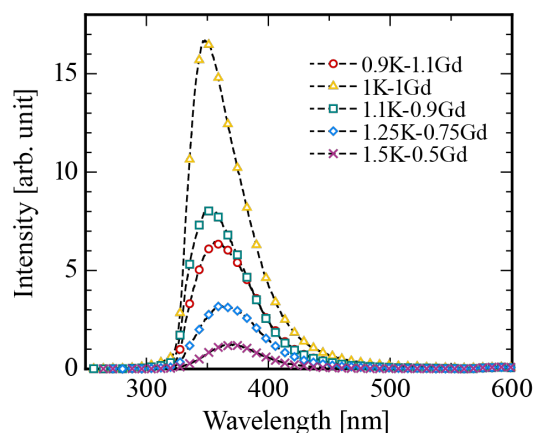


Figure 1 X-ray induced scintillation spectra of Ce-doped KGd(PO₃)₄ glasses.

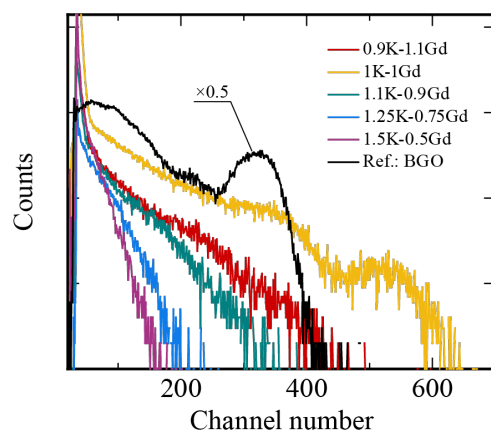


Figure 2 Pulse height spectra of Ce-doped KGd(PO₃)₄ glasses under γ-rays from ¹³⁷Cs.

参考文献

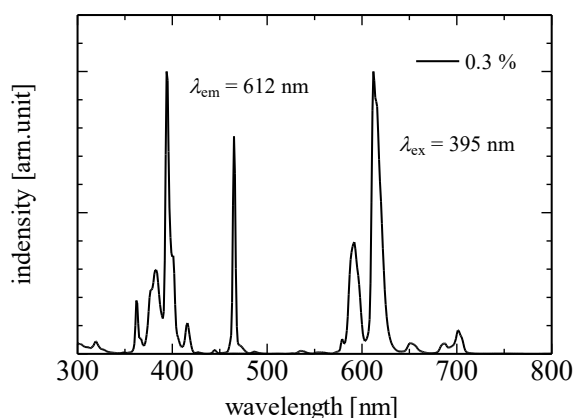
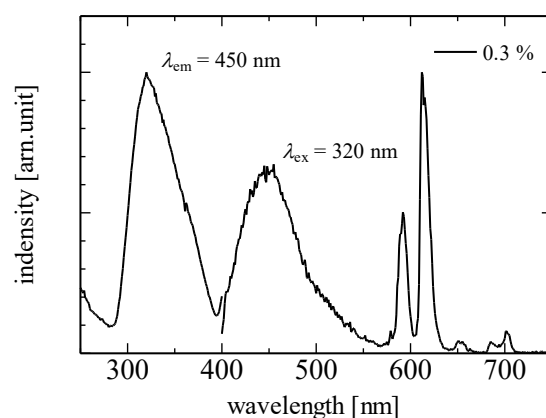
[1] D. Shiratori, et al., Sens. Mater., 37, 497-508 (2025).

Eu 添加 NaBaPO₄ セラミックスが呈するラジオフォトルミネッセンス現象Radio-photoluminescence phenomenon on Eu-doped NaBaPO₄ ceramics東京理科大¹, 金沢工大², 産総研³, 奈良先端大⁴○秋山 慶悟¹, 白鳥 大毅¹, 岡田 豪², 木村 大海³, 松永 拓己¹, 福地 裕¹, 柳田 健之⁴TUS¹, KIT², AIST³, NAIST⁴,°Keigo Akiyama¹, Daiki Shiratori¹, Go Okada², Hiromi Kimura³, Takumi Matsunaga¹,Yutaka Fukuchi¹, Takayuki Yanagida⁴

E-mail: 4322003@ed.tus.ac.jp

ラジオフォトルミネッセンス (RPL) は、放射線誘起発光現象の一種であり、近年では従来の放射線量測定の用途に加えて、光メモリ素子や高精細な放射線イメージングといった多様な分野での応用が期待されている。また、RPL 線量計は熱蛍光 (TL) や輝尽蛍光 (OSL) を利用した従来型の線量計と比較して、被曝情報を保持したまま繰り返し読み出すことができるという利点を持つ[1]。このような特性にもかかわらず、RPL を示す材料はまだ限られており、より優れた性能を持つ新規材料の開発が求められている。本研究では、新たな RPL 材料として Eu を添加した NaBaPO₄ セラミックスに着目し、その RPL 特性について詳細に検討・評価を行ったので、その結果について報告する。

Figure 1 に Eu 添加試料における X 線照射前の PL スペクトルを、Figure 2 に同試料の X 線照射後の PL スペクトルを示す。両図を比較することで、X 線照射前には 600 nm 付近にシャープな発光ピークが観測されていたのに対し、X 線照射後にはこれに加えて約 450 nm 付近に広がりをもつ新たな発光帯が出現していることを確認した。この変化は、Eu の原子価状態が Eu³⁺ から Eu²⁺ へと還元され、新たな発光中心として機能していると解釈でき、本材料が RPL 現象を示すことが示唆された。本公演では、当該材料における詳細な RPL 特性について報告する。

Figure 1 PL excitation/emission spectra of Eu:NaBaPO₄ ceramics before X-ray irradiation.Figure 2 PL excitation/emission spectra of Eu:NaBaPO₄ ceramics after X-ray irradiation.

参考文献

[1] G. Okada, J. Ceram. Soc. Jpn., **129**, 419–424 (2021).

Bi 添加 Ca_2SiO_4 における RPL 特性の評価

Evaluation of RPL properties in Bi-doped Ca_2SiO_4

金沢工大¹ ○(B) 能川 春菜¹, 南戸 秀仁¹, 岡田 豪¹

Kanazawa Institute of Technology¹, °Haruna Nogawa¹, Hidehito Nanto¹, Go Okada¹

E-mail: c1227844@st.kanazawa-it.ac.jp

放射線は医療、工業や農業など様々な分野で利用されており、主に医療分野では人体の影響への観点より、放射線作業従事者は個人被ばく線量計の着用が義務付けられている。線量を正確に測定するためのセンサーが必要であり、そのセンサーにはよく蛍光体が用いられている。これら蛍光体の中にはラジオフォトルミネッセンス(RPL)という放射線誘起蛍光現象が応用される。RPLとは放射線との相互作用によって物質中に新たな発光中心が生成される現象のことである。RPLでは放射線の照射量と生成される発光中心の数が比例する。この発光中心は PL を呈し、その発光強度は発光中心の数と比例する。これらから、発光強度を測定することで、放射線の照射量を見積もることができる。そのため、RPL 材料は放射線量の測定に利用されており、個人被ばく線量計に応用されている。一方で、既知の RPL 材料は少なく、RPL は未解明な点が多く存在している。このような現状は RPL 材料のさらなる応用展開を妨げている。よって、新規 RPL 材料の探索による知見の蓄積が求められている。そこで、本研究では $\text{Ca}_2\text{SiO}_4\text{:Bi}$ で RPL 特性が確認されたため、その特性について報告する。

本研究では固相反応法より、 $\text{Ca}_2\text{SiO}_4\text{:Bi}$ を合成した。出発原料である CaCO_3 (99.99%, 高純度化学)、 SiO_2 (99.9%, フルウチ化学) および Bi_2O_3 (99.9%, 高純度化学) を化学量論比に従って秤量し、蒸留水で 20 分間湿式混合を行い、大気中 1250℃で 4 時間焼成を行った。得られた生成物を粉末になるまでよく粉砕したものを試料とした。RPL の各種特性評価には TSL/OSL/RPL 自動統合測定システム(TORAIMS)[1]を使用した。

Fig. 1 に 0.1 mol% Bi 添加 Ca_2SiO_4 における X 線照射前および後の PL スペクトルを示す。340±40 nm の光で励起した際、X 線照射後において 750–850 nm の範囲でブロードなピークが確認された。また、発光強度が X 線照射量の増加に比例して増加していることより、発光中心が形成され、RPL 特性を有することが示唆された。発表では線量応答特性、熱処理温度依存性および安定性などについて議論を行う。

参考文献

[1] Go Okada *et al.*, *Sensors and Materials*, **33**(6), 2117–2128 (2021)

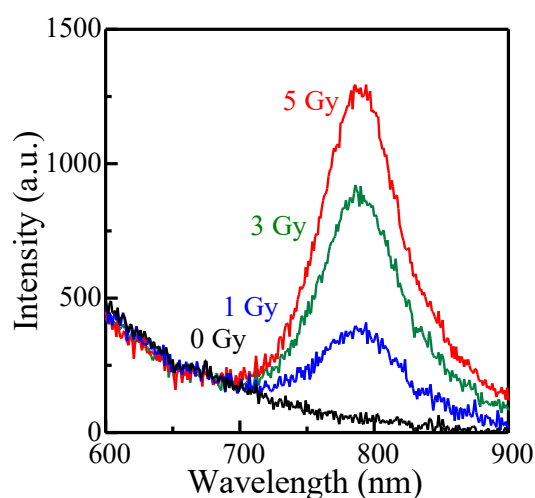


Fig. 1 X 線未照射および照射後 (1, 3, 5 Gy) の PL スペクトル。

Ce 添加 $\text{Sr}_2\text{Mg}(\text{BO}_3)_2$ シンチレータの中性子検出特性評価

Evaluation of neutron detection properties of Ce-doped $\text{Sr}_2\text{Mg}(\text{BO}_3)_2$ single crystals

宇都宮大¹, 産総研², [○]山城 澤司¹, 竹淵 優馬¹, 木村 大海², 八巻 和宏¹, 伴 洋輝¹,
小又 公拓¹, 東口 武史¹, 手塚 慶太郎¹

Utsunomiya Univ.¹, AIST.², [○]Reiji Yamashiro¹, Yuma Takebuchi¹, Hiromi Kimura²,

Kazuhiro Yamaki¹, Hiroki Ban¹, Kimihiro Omata¹, Takeshi Higashiguchi¹, Keitaro Tezuka¹

E-mail: t222221@s.utsunomiya-u.ac.jp

中性子は X 線とは異なり、軽元素の検出が可能であるという特徴がある。これまで中性子の検出には ^3He を用いたガス式検出器が広く利用されてきたが、中性子検出の需要増大に対して ^3He の供給不足が問題とされている [1]。そのため ^3He を使わない中性子検出器として、高効率な中性子シンチレータの開発が期待されている。中性子シンチレータに求められる特性として、高い発光量、小さい実効原子番号、中性子との反応のしやすさなどが求められる。 $\text{Sr}_2\text{Mg}(\text{BO}_3)_2$ は B を含む化合物で、 ^{10}B の中性子捕獲反応による中性子検出能が期待できる。本研究では高効率な中性子シンチレータの開発を目的として Ce 添加 $\text{Sr}_2\text{Mg}(\text{BO}_3)_2$ 単結晶の育成および特性評価を行った。

図 1 に試料の X 線照射時のシンチレーションスペクトルを示す。無添加および Ce1%添加試料はそれぞれ 330、700 nm 付近と 420 nm 付近に発光が見られた。先行研究より、これらの発光起源は母材の欠陥および Ce の $5d \rightarrow 4f$ 遷移によるものだと考えられる [2]。図 2 に中性子照射時のパルス波高値スペクトルを示す。無添加および Ce1%添加試料の発光量はそれぞれ 271、355 ph/n であり、Ce 添加による発光量の向上を確認した。

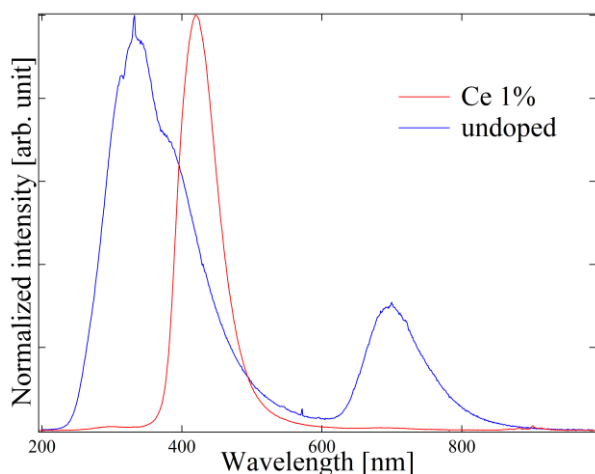


Fig. 1 X-ray-induced scintillation spectra of undoped and Ce-doped $\text{Sr}_2\text{Mg}(\text{BO}_3)_2$ crystals.

参考文献

[1] R.T. Kouzes et al., NIM. A., 654, 412 (2011).

[2] Hongbin Liang et al., J. Lumin., 131, 197 (2011).

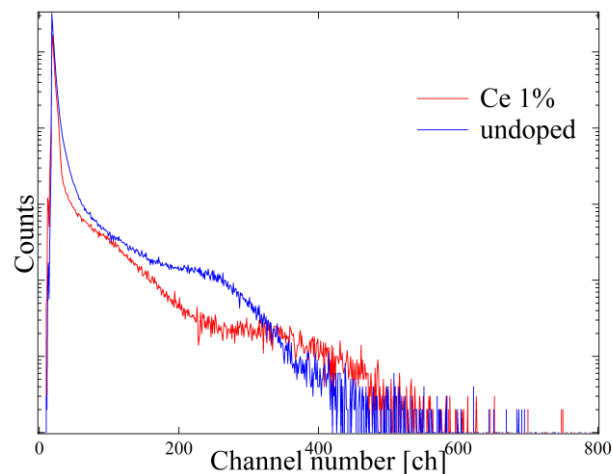


Fig. 2 ^{252}Cf irradiated pulse height spectra of undoped and Ce-doped $\text{Sr}_2\text{Mg}(\text{BO}_3)_2$ crystals.

BaAl₂S₄ の Eu 添加濃度によるドシメータ特性の変化

Changes in Dosimetric Properties of BaAl₂S₄ with Different Eu Concentrations

宇都宮大¹ 産総研² ○(B) 藤倉 聖¹, 竹淵 優馬¹, 木村 大海², 伴 洋輝¹, 小又 公拓¹,
東口 武史¹, 手塚 慶太郎¹

Utsunomiya Univ.¹, AIST² Sho Fujikura¹, Yuma Takebuchi¹, Hiromi Kimura², Hiroki Ban¹,
Kimihiro Omata¹, Takeshi Higashiguchi¹, Keitaro Tezuka¹

E-mail: t222247@s.utsunomiya-u.ac.jp

ドシメータ材料は医療バイオ分野や個人被ばく線量モニタリングをはじめとするさまざまな分野において広く応用されている。Eu を添加した BaAl₂S₄ は高輝度な青色発光を呈する蛍光体材料として知られており、無機 EL 分野等でその発光特性が多数報告されている [1, 2]。またその高い発光輝度と短い減衰時間はドシメータ材料としての応用にも適している。我々は過去に Eu 添加 BaAl₂S₄ のドシメータ特性を調査し、この材料が光刺激蛍光 (OSL) を呈することを明らかにしている [3]。しかしドシメータ特性における Eu 濃度依存性など系統的な評価は十分に行われていない。本研究では Eu 添加 BaAl₂S₄ を作製し、Eu 濃度がドシメータ特性に及ぼす影響を調査した。

図 1 に X 線を照射した後の Eu 添加 BaAl₂S₄ の OSL スペクトルを示す。作製した試料は 475 nm 付近に発光を呈した。このピークは Eu²⁺ の 5d-4f 遷移が起源であると考えられる [1]。また Eu 濃度が 0.3% の試料において最も高い発光強度が得られた。図 2 に 0.3% Eu 添加 BaAl₂S₄ の OSL 線量応答特性を示す。試料が 0.1 mGy から感度を有することを確認した。

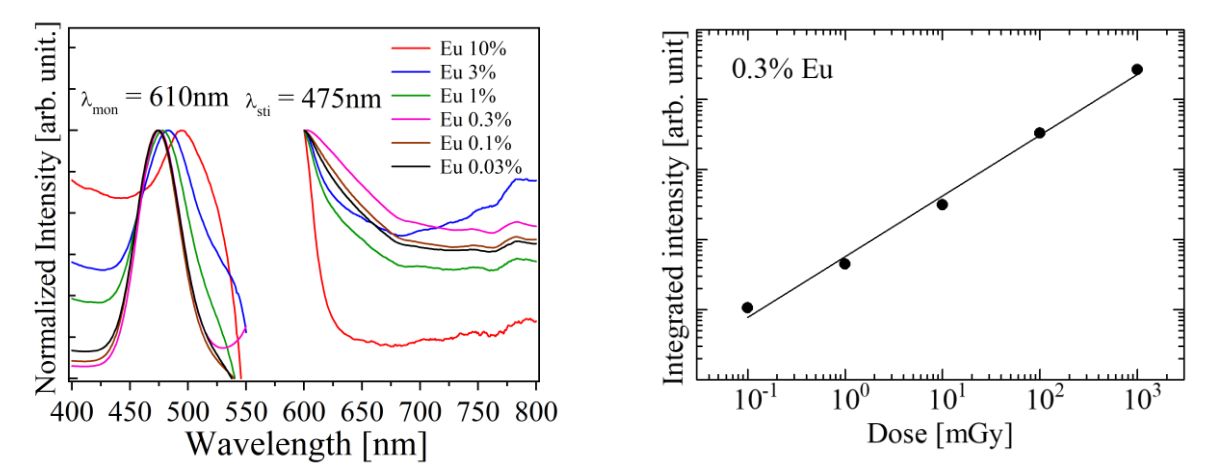


Fig. 1 OSL spectra of Eu-doped BaAl₂S₄ samples. The stimulation and monitoring wavelength were 475 and 610 nm, respectively.

Fig. 2 OSL dose response function of 0.3% Eu-doped BaAl₂S₄. The stimulation and monitoring wavelength were 475 and 610 nm, respectively.

参考文献

[1] C. Barthou et al., J. Electrochem. Soc., 153, G253 (2006).

[2] V. Petrykin et al., J. Am. Ceram. Soc., 92 (2009).

[3] Y. Takebuchi et al., Sens. Mater., 37, 525 (2025).

Dy 添加 CaYAlO₄ セラミックスの構造と放射線誘起蛍光特性における合成雰囲気の影響

Effect of synthetic atmosphere on structure and radiation-induced luminescence properties of Dy-doped CaYAlO₄ ceramics

宇都宮大学¹, 産総研², [○]後藤隼弥¹, 竹渕優馬¹, 木村大海², 手塚慶太郎¹

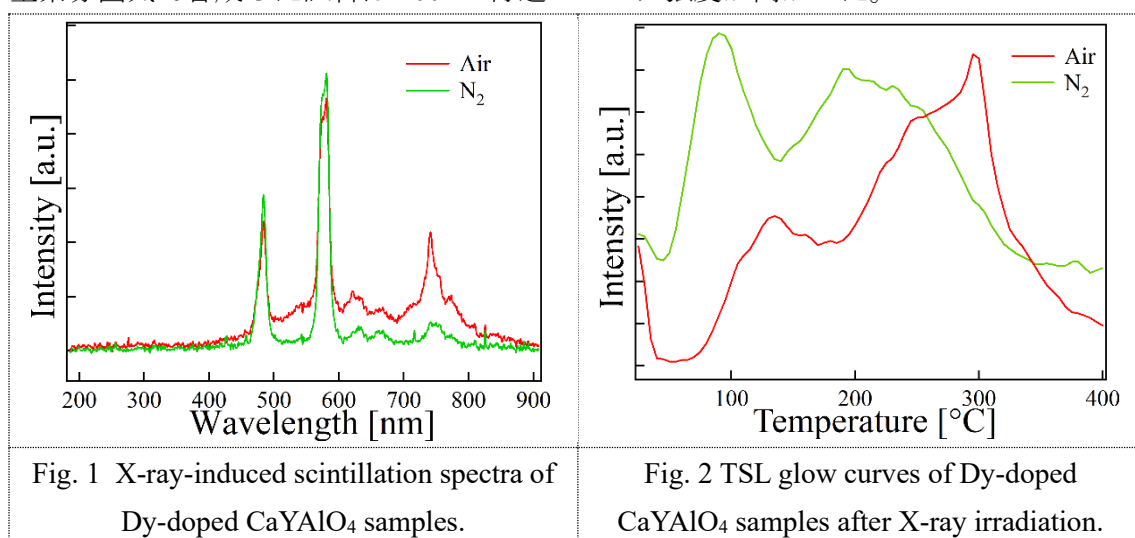
Utsunomiya Univ.¹, AIST², [○]Junya Goto¹, Yuma Takebuchi¹, Hiromi Kimura²,

Keitaro Tezuka¹

E-mail: t222107@s.utsunomiya-u.ac.jp

放射線は医療やセキュリティなど我々の生活の様々な場面で利用されており、その際ドシメータは放射線業務従事者の被ばく線量を定量的に把握するための重要な手段とされている。また CaYAlO₄ は原料が安価で環境負荷が低く、化学的および熱的安定性に優れているため、蛍光体のホスト材料として注目されている [1]。本研究では様々な合成雰囲気で Dy 添加 CaYAlO₄ セラミックスを作製し、放射線照射時の発光特性と構造について評価を行った。

Fig. 1 に大気および窒素雰囲気で作成した Dy 添加 CaYAlO₄ セラミックスの X 線励起シンチレーションスペクトルを示す。どちらの試料も 480、580、740 nm に発光ピークを呈した。480、580 nm のピークについては Dy³⁺ の 4f-4f 遷移に由来するものだと考えられる [2]。Fig. 2 に X 線を照射した後の Dy 添加 CaYAlO₄ セラミックスの熱刺激蛍光 (TSL) グローブを示す。どちらの試料からも 100 および 250 °C 付近にグローピークを観測した。一方で大気雰囲気で合成した試料は 250 °C 付近のピーク強度が高く、窒素雰囲気で合成した試料は 100 °C 付近のピーク強度が高かった。



参考文献

- [1] A. Ueda et al., J. Cryst. Growth, 404, 152 (2014).
- [2] L. Nagli et al., J. Non. Cryst. Solids, 217, 208 (1997).

異なるホストポリマーのプラスチックシンチレータの 真空紫外光励起での発光特性

Photoluminescence properties of plastic scintillators having different host polymers with
vacuum ultraviolet excitation

静大電子研¹, °越水 正典¹

Shizuoka Univ.¹ °Masanori Koshimizu¹

E-mail: koshimizu.masanori@shizuoka.ac.jp

【緒言】プラスチックシンチレータに放射線が入射すると、ホストポリマーの電離後の再結合により、一重項および三重項励起状態が形成する。このうち、一重項励起状態は即発成分としてシンチレーションに利用されるが、三重項励起状態はシンチレーションにはほとんど寄与しない。このことは、シンチレーション収率が低い主因である。近年、三重項励起状態の活用方法が提案されている一方で、三重項励起状態の寄与を定量する手法も必要である。我々のグループでは、真空紫外光の励起で、三重項励起状態の寄与が励起波長により異なることを見出してきた[1]。本研究では、ポリスチレン (PS) およびポリビニルカルバゾール (PVK) をホストとしたプラスチックシンチレータの真空紫外光励起での発光特性を比較した。

【実験方法】UVSOR の BL-7B において、50~200 nm の励起波長で蛍光スペクトルおよび減衰挙動を観測した。蛍光スペクトルと励起光強度の波長依存性から励起スペクトルを得た。

【結果と考察】図 1 に butyl-PBD 添加 PS および DPA 添加 PVK の励起スペクトルを示す。なお、DPA 添加 PVK の励起スペクトルは、他の蛍光体分子を添加した試料においても同様であった。PS と PVK の双方で、180 nm 付近から波長が短くなるにつれて蛍光強度が高くなり、さらに短くなるとともに蛍光強度が低下した。130~150 nm 付近のピークは、一つの励起光子で一重項励起状態が 2 つ生じた過程に対応し、より短波長側での強度の低下は、三重項励起状態の形成確率が高めるためであると推察される。

【参考文献】

[1] 越水 正典ら、第 68 回応用物理学会春季学術講演会、18p-P05-22.

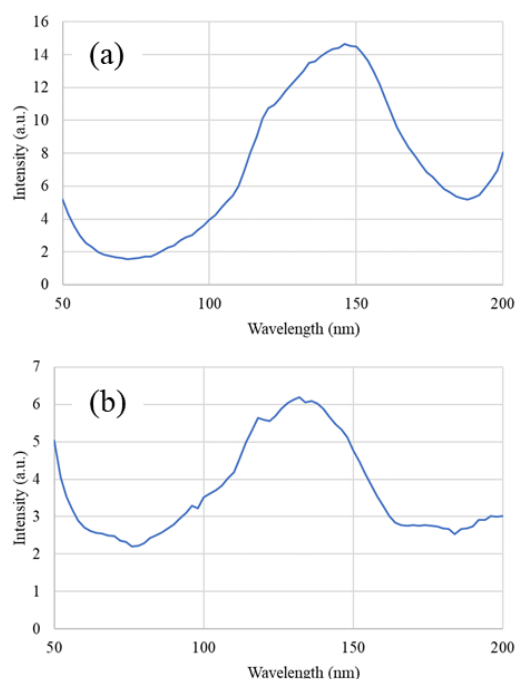


図 1 真空紫外領域での励起スペクトル
(a) butyl-PBD 添加 PS、(b) DPA 添加 PVK

異なる合成条件のケイ酸塩ナノ粒子のシンチレーション特性

Scintillation properties of silicate nanoparticles of different synthesis conditions

静岡大学¹ ○(B) 中西 桃子¹, (M2) 高橋 悠真¹, 越水 正典¹

Shizuoka Univ.¹ °Nakanishi Momoko¹, Takahashi Yuma¹, Koshimizu Masanori¹

E-mail: nakanishi.momoko@shizuoka.ac.jp

【緒言】シンチレータとは電離放射線との相互作用により紫外、可視、または赤外光子を放出する蛍光体であり、近年では Ce をドープした $\text{Gd}_3\text{Al}_3\text{Ga}_2\text{O}_{12}$ ナノ粒子を生体内に注入し、X 線照射により神経細胞の活動を操作し、行動変化を誘導する研究も行われている^[1]。生体内利用のためには低侵襲性であることが望まれており、そのためナノ粒子であることが必要である。本研究ではケイ酸塩に Ce をドープすることにより、青色発光ナノ粒子シンチレータの開発を行った。特に $\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ (GPS)は Gd_2SiO_5 (GSO)に比べより高い光出力を持つ^[2]ため、本研究では、GPS 相ナノ粒子の得られる合成条件の探索を実施した。

【実験方法】Gd 及び Ce の硝酸塩をクエン酸の物質량に対して 6 分の 1 になるように秤量し、水 6 mL およびエタノール 48 mL に溶解し、90 °C で 1 時間攪拌した。その後、オルトケイ酸テトラエチルを加え、室温で 30 分攪拌した後、キレート剤として 0.2 M クエン酸 24 mL を加え、90 °C で 2 時間攪拌した。この溶液を乾燥させ、ゲル状にした後、焼成することで試料を得た。このとき、Gd:Si=2:1 および 1:1 で合成し、1300 °C で焼成した試料を試料 1 および試料 2、Gd:Si=1:2 で合成し、1200 °C で焼成した試料を試料 3 とした。

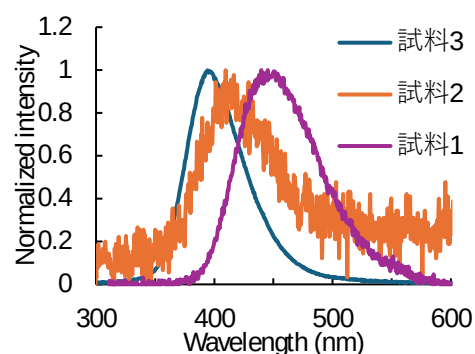


図 1 異なる合成条件の試料のシンチレーションスペクトル

【結果と考察】XRD の結果から、試料 1 は GSO の単相、試料 2 は $\text{Gd}_{4.67}(\text{SiO}_4)_3\text{O}$ の単相であることが分かった。それに対し、試料 3 は GSO と GPS の混相であることが分かった。図 1 に異なる合成条件の試料のシンチレーションスペクトルを示す。Gd に対する Si の割合が高い試料ほどスペクトルのピーク波長が短波長側に見られ、試料 3 の発光ピーク波長は 410 nm 付近であった。GSO の発光ピーク波長は 450 nm 付近である^[3]ことに対し、GPS の発光ピーク波長は 400 nm 付近である^[4]ことが報告されている。このことから、試料 3 は GPS と同様のシンチレーション波長を持つことが分かった。

【参考文献】 [1] Mercedes Hildebrandt, et al., Int. J. Mol. Sci. 25 (2024) 111365.

[2] Seema Shinde, et al., J. Alloys Compd. 630 (2015) 68.

[3] I. Valais, et al., Phys. Med. 24 (2008) 122.

[4] V. Baumer, et al., J. Alloys Compd. 509 (2011) 8478.

Mg を共添加した $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ 熱蛍光材料の開発

Development of $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ thermoluminescent materials codoped with Mg

静岡大学 ○(B)大平 慧, 越水 正典

Shizuoka Univ. ○(B)Kei Odaira, Masanori Koshimizu

E-mail: odaira.kei.22@shizuoka.ac.jp

【緒言】熱蛍光とは、放射線のエネルギーを蓄え、その後の加熱により光としてエネルギーを放出する現象である。熱蛍光材料は、放射線計測に利用することができ、ホウ素中性子捕捉療法などに用いる中性子分布を記録する材料としての応用可能性がある。その場合には、核反応断面積が大きい ^6Li や ^{10}B を主成分とする化合物が適している。本研究では、Li と B を主成分とする $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ をホストとして選んだ。発光中心としてランタノイドを添加した $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ の開発を行った[1]。この試料に Mg を共添加することで新しいトラップ準位の形成を企図した。

【実験方法】 Li_2CO_3 , H_3BO_3 , および Y_2O_3 に Eu_2O_3 を Y とランタノイドが 99:1 となるように混合し、電気炉を用いて 800°C で 5 時間焼成した。その後、 $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ および MgO を Li と Mg が 99:1 となるように再び混合し、再度 800°C で 5 時間焼成した。得られた試料に X 線を照射後、熱蛍光グローブカーブを測定した。

【結果と考察】Fig. 1 に無添加、Eu, Mg, あるいは Eu および Mg を 1% 添加した $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ の XRD パターンを示す。全ての試料が $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ 相から構成されることが示された。

Fig. 2 に無添加、Eu, Mg, あるいは Eu および Mg を 1% 添加した $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ の熱蛍光グローブカーブを示す。無添加および Eu 添加 $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ のグローブカーブは同じ形状であった。Mg 添加 $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ のグローブピークは無添加試料に比べて低温側に位置していた。また、Mg および Eu を添加した $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ では、無添加試料に比べて 400K 付近の強度が増大した。

[1] 大平慧ら, 2025 年第 72 回応用物理学会春季学術講演会, 14a-P01-17.

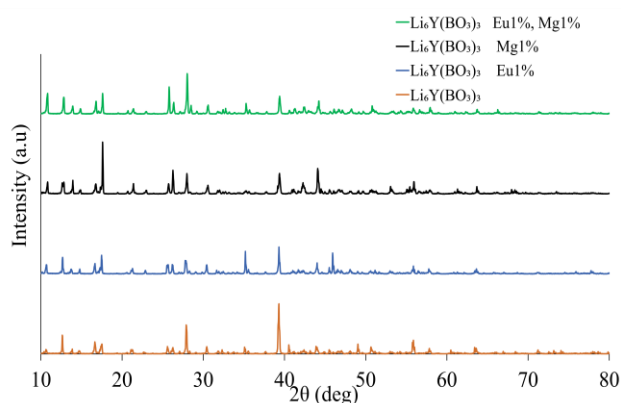


Fig 1. XRD patterns of undoped and doped $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ and $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ with Eu, Mg, or Eu and Mg at 1%.

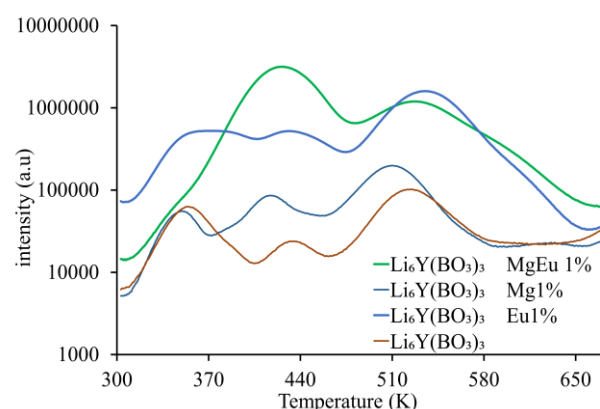


Fig 2. Thermoluminescence glow curves of undoped and doped $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ with Eu, Mg, or Eu and Mg at 1%.

安息香酸添加ポリマー材料の放射線化学反応を応用した ラジオフォトルミネッセンス線量計の開発

Development of radiophotoluminescence dosimeters using radiation chemical
reactions of polymer materials containing benzoic acid

静岡大 ○矢代 智章, 越水 正典

Shizuoka Univ. Tomoaki Yashiro, Masanori Koshimizu

【緒言】 放射線治療の発展に伴い、正確な被ばく線量分布把握の需要が高まっている。放射線治療における線量測定では、無機物質を主成分とした素子が用いられている。それらの放射線吸収特性が生体組織と大きく異なるため、測定された線量分布と治療時のものに差異が生じることが懸念される。こうした背景から、放射線吸収能が生体組織と等価な有機材料で構成した線量計が切望される。以前の我々の研究[1]では、安息香酸を 1 wt% 添加した PMMA 試料において、0–100 Gy の範囲で蛍光強度が線形的に増加することがわかった。本研究では、有機材料で構成したラジオフォトルミネッセンス線量計の開発を目指し、ポリマーに安息香酸を任意の濃度で添加した試料を作製し、X 線照射時の蛍光特性変化を測定した。

【実験方法】 安息香酸を任意の割合で PMMA、PVA、あるいは PVC に添加し、ビーカー内で乾燥させこれを試料とした。試料に線量を変えて X 線を照射し、蛍光スペクトルを測定した。

【結果と考察】 Fig. 1 に PVA に安息香酸を 1 wt% 添加した試料の蛍光スペクトル(励起波長: 304 nm)を示す。X 線照射により 413 nm ピークにおいて 0–60 Gy で線形的に蛍光強度が増加した。これは安息香酸と OH ラジカルの反応によるサリチル酸生成のためと推察される。

Fig. 2 に安息香酸を添加した PVA の添加濃度ごとの X 線照射による蛍光ピーク強度変化を示す。0.3–1 wt% では濃度増加により、規格化した蛍光強度が増加した。これは反応する安息香酸の数が増加したことが要因と推察される。一方、1–10 wt% では規格化した蛍光強度が減少した。これは添加した安息香酸へ十分な OH ラジカルが供給できず、安息香酸あるいは生成したサリチル酸の分解反応が優勢になったためと推察される。

[1] 矢代智章 他, 2025 年第 72 回応用物理学会春季学術講演会, 14a-P01-22 (2025)。

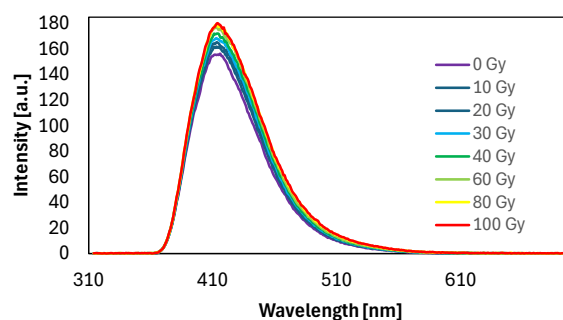


Fig. 1. Photoluminescence spectra of benzoic acid in PMMA before and after X-ray irradiation.

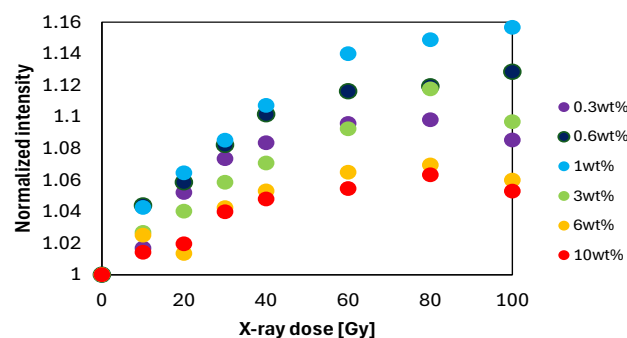


Fig. 2. Peak intensities of photoluminescence spectra of benzoic acid in PVA before and after X-ray irradiation.

KS 研究会セッション | 一般セッション(口頭講演) : KS4 量子エネルギー変換研究会

[9a-N321-1~13] KS4 量子エネルギー変換研究会

[9a-N321-1]

冷陰極X線源を用いた残光計測システムの開発

○木村 大海¹、藤原 健¹、鈴木 良一¹、加藤 英俊¹ (1.産総研)

[9a-N321-2]

Ce³⁺添加シンチレータ材料における量子エネルギー変換収支の評価○藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[9a-N321-3]

Ce³⁺添加B₂O₃-Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ガラスの蛍光及びシンチレーション特性○森田 千恵¹、藤本 裕¹、長谷川 洸¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[9a-N321-4]

Pr³⁺添加Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ガラスの蛍光及びシンチレーション特性○(M1)菅原 瑤¹、藤本 裕¹、森田 千恵¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[9a-N321-5]

Eu²⁺を添加したSrCl_{0.4}Br_{1.6}結晶の光学及びシンチレーション特性○林 倫生¹、藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[9a-N321-6]

Eu²⁺イオン添加BaFCl結晶におけるシンチレーション及びドシメータ特性○田村 飛翔¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大工)

[9a-N321-7]

Sb³⁺添加Cs₂NaScCl₆単結晶シンチレータの開発○古田 満理奈¹、藤本 裕¹、川本 弘樹¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[9a-N321-8]

中性子線照射によるMn²⁺添加Li₂O-CaO-P₂O₅結晶化ガラスの熱蛍光○(M2)高津 匠吾¹、山口 寛人¹、川本 弘樹¹、藤本 裕¹、越水 正典²、若林 源一郎³、浅井 圭介¹ (1.東北大学工、2.静岡大電子研、3.近大原研)

[9a-N321-9]

放射線遮蔽能の向上を企図したラジオフォトルミネッセンスガラスへの鉛導入

○川本 弘樹¹、藤本 裕¹、浅井 圭介¹ (1.東北大院工)

[9a-N321-10]

Pr, Tm共添加LiYSiO₄セラミックスの熱蛍光特性○平松 祐汰¹、越水 正典¹ (1.静岡大工)

[9a-N321-11]

紫外発光を呈するCe添加YAP微粒子シンチレータの開発

○高橋 悠真¹、越水 正典¹ (1.静岡大)

[9a-N321-12]

9-vinylcarbazoleおよびLiAlO₂ナノ粒子添加中性子検出用紫外線硬化プラスチックシンチレータの開発

○林 南瑠¹、塚原 悠久¹、越水 正典¹ (1.静岡大)

[9a-N321-13]

高発光量化を企図したTADF分子添加プラスチックシンチレータの開発

○金成 太陽¹、渥美 舞彩²、北本 雄一²、大井 秀一²、服部 徹太郎²、川本 弘樹²、藤本 裕²、浅井 圭介²、越水 正典¹ (1.静岡大工、2.東北大工)

冷陰極 X 線源を用いた残光計測システムの開発

Development of Afterglow Measurement Systems

using a Cold Cathode Pulsed X-ray Source

産総研¹, °木村 大海¹, 藤原 健¹, 鈴木 良一¹, 加藤 英俊¹

AIST¹, °Hiromi Kimura¹, Takeshi Fujiwara¹, Ryoichi Suzuki¹, Hidetoshi Kato¹

E-mail: h.kimura@aist.go.jp

シンチレーション検出器は放射線を可視光に変換するシンチレータと Si フォトダイオードなどの光検出器により構成されており、医療やセキュリティなどの広範な分野で利用されている。特に医療用 X 線 CT や非破壊検査用ラインセンサに用いられるシンチレータには、高 X 線吸収効率、高発光量、低残光を満たすことが求められている。ここで X 線吸収効率や発光量は検出器の感度に影響を与え、残光は取得する X 線画像に残像を生じさせる原因となる[1]。そのためシンチレータ開発において前述の評価は重要であるが、残光の計測に関しては評価方法が統一されておらず、各材料・装置メーカーが独自の評価システムによって計測を行っている。

一般的にパルス X 線はメカニカルシャッターやパルス電源にて発生させているが、これらの時間分解能は数 ms であり、数 ms オーダーの残光を正確に計測するには不十分である。2014 年に柳田らは光励起型パルス X 線源を用いることで、数 μ s オーダーの時間分解能を持つ計測システムを報告した[2]。一方で光励起型パルス X 線源は出力に制限があり、高線量場での計測には対応していない。そこで本研究では、冷陰極 X 線源に数百 ns オーダーの時間分解能を持つパルス電源を用いることで、高線量率かつ数 μ s オーダーの時間分解能を持つデスクトップ型残光計測システムを開発した。これにより産業用 X 線非破壊検査などの高線量下での使用が想定されるシンチレータに対しても、実環境に近い条件での残光の評価が可能である。

Fig. 1 に X 線 CT やセキュリティ装置のシンチレータとして用いられている CsI(Tl)、Gd₂OS₂:Pr (GOS)、Bi₄Ge₃O₁₂ (BGO)、CdWO₄ (CWO) の残光プロファイルを示す。ここで X 線のパルス幅は 20 ms とし、GOS にはセラミックス状 (Ceramics) とシート状 (Sheet) の 2 種類を使用した。これらの残光レベルは、既報と同程度の値を示していたことから、正しく動作していると考えられる[2]。本講演では、X 線量に対する残光特性への影響などについても報告する。

参考文献

- [1] D. Totsuka, *et al.*, Nucl. Instrum. Methods A, **659** 399 (2011).
- [2] T. Yanagida, *et al.*, Appl. Phys. Express, **7** 062401 (2014).

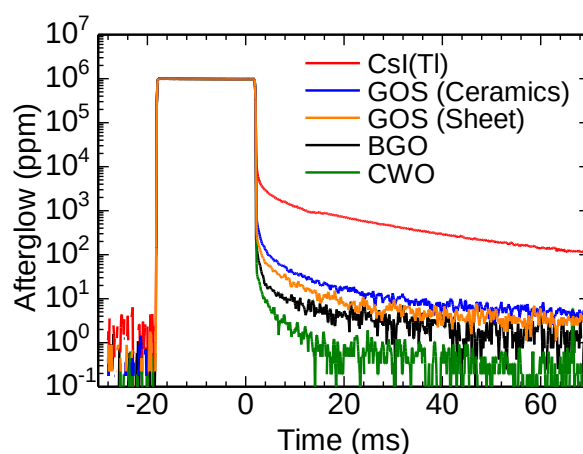


Fig. 1 Afterglow profiles of commercial scintillators after pulse X-ray irradiation.

Ce³⁺添加シンチレータ材料における量子エネルギー変換収支の評価

Evaluation of quantum energy conversion efficiency and balance in cerium-activated scintillator materials

○藤本 裕, 川本 弘樹, 浅井 圭介 (東北大院工)

○Yutaka Fujimoto, Hiroki Kawamoto, and Keisuke Asai (Tohoku Univ.)

E-mail: yutaka.fujimoto.c3@tohoku.ac.jp

【緒言】 シンチレータは、量子線から付与されたエネルギーを光センサで受光可能な数 eV 程度の光子に変換する材料である。しかし、実際には、シンチレータに付与された量子エネルギーのうち、シンチレーション発光に寄与するのは、実用化材料においても 25–40%に留まる。そのため、量子線照射による電離から生じたシンチレータの電子正孔対(またはキャリア)の多くは、格子振動などによって熱失活するか、材料中の格子欠陥に準安定的に捕獲された状態となる。前者については、これまで実測された報告例も希少であり、後者は熱蛍光という形で半定量的に評価することが可能である。本研究では、市販の Ce³⁺添加シンチレータ材料について、シンチレーション発光、熱蛍光及び熱失活をそれぞれ評価することによって、シンチレータに付与された量子エネルギーの変換収支バランスを調査する。尚、熱失活の評価には、光音響分光法を応用する。光音響分光法は、1880 年に Bell により光音響効果が発見されて以降、気体試料の分光測定を中心に発展し、その後、レーザーや高輝度キセノンランプ、高感度マイクロホンの開発により、固体試料の熱失活の評価手法として有効であることが示されている。本研究では、励起源にパルス X 線を用いることで、シンチレータから生じる熱をマイクロホンにより音響波として検出する。

【実験内容と結果】 評価用のサンプルには、放射線計測用のシンチレータとして市販される YAG:Ce, GAGG:Ce 及び GSO:Ce 単結晶などを使用した。前述のように、熱失活の評価には励起源にパルス X 線を用いた X 線音響計測技術を利用した。X 線源には、Rigaku 社製の X 線発生装置 SA-HFM3 を使用し、さらにメカニカルチョッパーにより変調することで、任意の発振周波数のパルス X 線を試料に照射した。検出器には Rion 社製の UC-59 エレクトレットマイクロホンを使用し、試料から発生する熱を試料周辺のガスの振動(音響)として計測した。検出される信号は、NF 社製の 5610B 2 位相ロックインアンプを通じて、照射したパルス X 線と等しい周波数成分のみを抽出することで、高効率且つ高い S/N 比を達成した。図 1 に、X 線照射の ON/OFF 時における熱失活に伴う音響信号を示す。いずれのサンプルからも X 線照射により、音響信号が増加していることが確認された。また、その増加量はシンチレータによって差が見られることから、X 線から付与されたエネルギーに対して、熱失活への変換されている割合も材料によって異なることが示唆された。

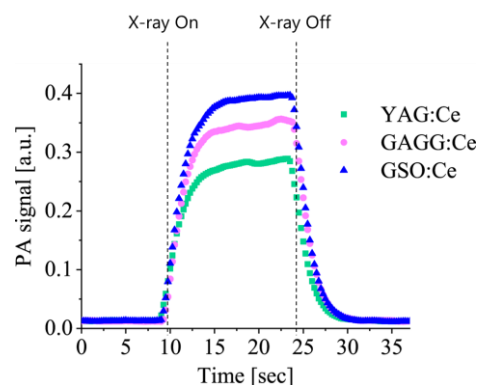


Fig. 1 Comparison of X-ray-induced acoustic signals.

Ce³⁺添加 B₂O₃–Al₂O₃–Cs₂O–P₂O₅ ガラスの蛍光及びシンチレーション特性 Photoluminescence and Scintillation Properties of Ce³⁺-doped B₂O₃–Al₂O₃–Cs₂O–P₂O₅ Glasses

東北大工¹ °森田 千恵¹, 藤本 裕¹, 長谷川 洸¹, 川本 弘樹¹, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, °Chie Morita¹, Yutaka Fujimoto¹, Ko Hasegawa¹, Hiroki Kawamoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: morita.chie.r5@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレータは、電離放射線を主として可視光に変換する蛍光体である。シンチレータには、大発光量、高速減衰といった性能の具備が要求される。これに応える形で実用化された材料の多くは無機結晶であり、そのほぼ全てが、融点の高さ故、製造コストの高さに難点を持つ。これを克服する方途として、加工性と廉価性に優れる無機ガラスの採用が盛んに検討されている。しかし、上述の性能を兼備する無機ガラスの創出は困難であり、特に発光量の大きさにおいて、一般的に無機結晶に比べて著しく劣る。我々は、中性子感度の高い¹⁰Bを導入した中性子検出用リン酸塩ガラスシンチレータ¹⁾の開発過程で、Ce 添加 B₂O₃–Al₂O₃–Cs₂O–P₂O₅ ガラスが、 α/β 比においては優れないものの、X 線及び γ 線に対して良好な発光性を示すことを見いだした。そこで本研究では、当該ガラス組成をベースに、Ce 濃度の最適化による発光量の向上を企図し、X 線・ γ 線計測への応用を検討した。

【実験】BPO₄·nH₂O (78.4%), Al(PO₃)₃ (99.0%), CsH₂PO₄ (99%), CeBr₃ (99.9%)を出発原料とし、0.5 : 1 : 1.5 : x (x = 0.2, 0.3, 0.4, 0.5) の割合で混合し、真空中での熔融急冷法によりガラスを作製した。ただし、BPO₄·nH₂O については、加熱脱水を行い、得られた粉末を BPO₄ 無水物として使用した。これらを試料として、X 線励起発光 (XRL) スペクトルを測定し、¹³⁷Cs- γ 線照射パルス波高 (PH) スペクトルによって発光量を推算した。後者においては、市販の BGO シンチレータ (8600 ph/MeV) を比較として用いた。

【結果】Figure 1 に、XRL スペクトルを示す。同スペクトル中には、全試料において 350 nm 付近にピークを持つ発光帯が認められ、放射線励起での Ce³⁺ の 5d–4f 遷移による発光の現出が確認された。Figure 2 に、x = 0.5 における PH スペクトルを示す。最大発光量は、x = 0.5 において、2700 photons/MeV であり、これは既報値 (2500 ph/MeV²⁾) を凌駕する大発光量である。こうして、当該ガラスの X 線及び γ 線検出用シンチレータとしての有用性が明らかになった。

- 1) 長谷川洸, 他:「第 72 回応用物理学会春季学術講演会講演予稿集」, 14a-P01-8 (野田, 2025)
- 2) Y. Nakabayashi *et al.*: *Opt. Mater.* **142**, 114136 (2023).

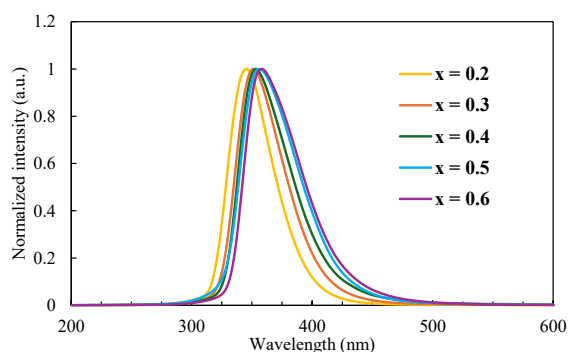


Fig. 1. XRL spectra of Ce-doped glass samples.

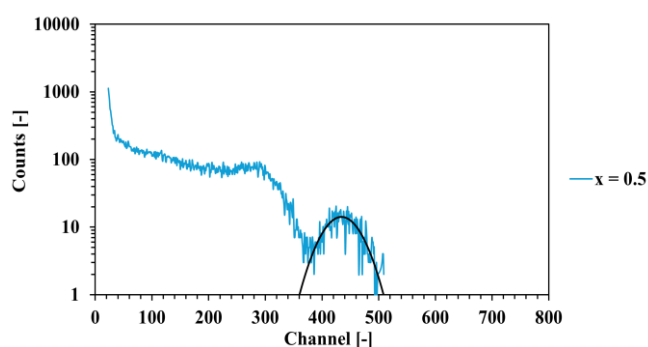


Fig. 2. Pulse-height spectra of Ce-doped glass samples with x = 0.5.

Pr³⁺添加 Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ ガラスの蛍光及びシンチレーション特性

Photoluminescence and Scintillation Properties of Pr³⁺-Doped Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ Glasses

東北大院工¹ ◯(M)菅原 瑠¹, 藤本 裕¹, 森田 千恵¹, 川本 弘樹¹, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, Yo Sugahara¹, Yutaka Fujimoto¹, Chie Morita¹, Hiroki Kawamoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: sugahara.yo.r8@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレータは、放射線を受けて紫外-可視光を発する蛍光体であり、放射線検出器に搭載されて手荷物検査機や医用イメージングなどに利用されている。特に X 線・γ 線検出用途においては、大きな発光量、小さな減衰時定数、優れたエネルギー分解能の兼備が求められる。これらの要求を満たす材料として、無機結晶シンチレータが実用化されているものの、その高融点に起因する製造コストがかさむという難点がある。近年、これを克服する代替材料として、大型化の実績を有し、高い加工性とそれに伴う低コスト性を具備した無機ガラスが注目されている。我々はこれまでに、発光中心として Ce³⁺を添加した Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ ガラスシンチレータにおいて、2500 photons/MeV という大発光量を達成している^[1]。同様に 5d-4f 許容遷移を示す Pr³⁺を発光中心として導入すれば、大発光量と高速減衰が両立するものと期待される。そこで本研究では、Pr³⁺添加 Al₂O₃-Cs₂O-P₂O₅ ガラスを作製し、その発光特性を調査した。

【実験方法】原料としての Al(PO₃)₃ (99.9%), CsH₂PO₄ (99%), PrCl₃ (99.9%) を, x: 1.5: 0.3 の割合で混合し、真空中において熔融急冷法によりガラスを作製した。これを試料として、室温条件下で X 線回折 (XRD) パターン、紫外線励起発光 (PL) スペクトル、PL 減衰曲線、X 線励起発光 (XRL) スペクトル、及び ¹³⁷Cs-γ 線照射パルス波高 (PH) スペクトルを測定した。PH スペクトル中に現れる光電吸収ピークの波高値を、市販の BGO シンチレータ^[2] (8,600 photons/MeV) で得られた値と比較することで、各試料の発光量を推算した。

【結果と考察】Figure 1 に XRL スペクトルを示す。当該ガラスにおいては、Pr³⁺の 5d-4f 遷移に起因するピークが 220-300 nm (5d¹→³H_J, ³F_J) と 350-450 nm (5d¹→¹G₄) に、Pr³⁺の 4f-4f 遷移に起因するピークが 450-600 nm (³H₄→³P₀) に観測された^[3,4]。Figure 2 に、¹³⁷Cs-γ 線照射 PH スペクトルを示す。当該ガラスでは、662 keV の γ 線による光電吸収ピークが 310 channel 付近に現れた。BGO との比較から、発光量は約 1,000 photons/MeV と見積もられた。以上より、当該ガラスは、既報の Pr³⁺賦活ガラスシンチレータ^[5]における 130 photons/MeV を大きく上回る発光量を示し、X 線・γ 線検出用シンチレータとして優れたシンチレーション特性を有することが示された。

【参考文献】[1] Y. Nakabayashi, *et al.*, *Opt. Mater.*, **142**, 114136 (2023). [2] N. Yawai, *et al.*, *Opt. Mater.*, **36**, 2030-2033 (2014). [3] P. Kantuptim, *et al.*, *Crystals*, **12**(4), 459 (2022). [4] Y. Fujimoto, *et al.*, *Sens. Mater.*, **34**, 629-636 (2022). [5] Y. Sun, *et al.*, *J. Sol-Gel Sci. Technol.*, **62**, 313-318 (2012).

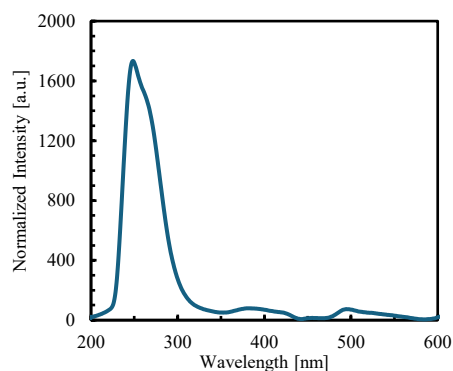


Fig. 1. XRL spectra of the fabricated glasses.

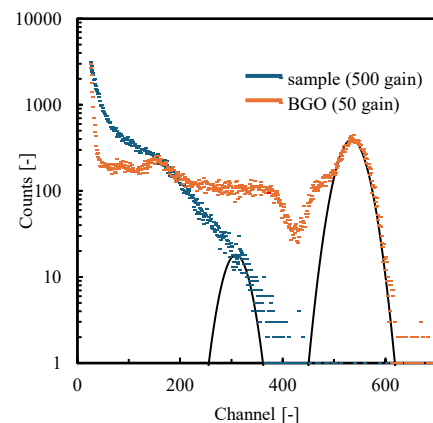


Fig. 2. Pulse-height spectra of the fabricated glasses under ¹³⁷Cs gamma-ray irradiation.

Eu²⁺を添加した SrCl_{0.4}Br_{1.6} 結晶の光学及びシンチレーション特性

Optical and Scintillation Properties of Eu²⁺-Doped SrCl_{0.4}Br_{1.6} Crystals

東北大工¹ ○林 倫生¹, 藤本 裕¹, 川本弘樹¹, 浅井圭介¹

Tohoku Univ.¹ ○Tomoki HAYASHI¹, Yutaka FUJIMOTO¹, Hiroki KAWAMOTO¹, Keisuke ASAI¹

E-mail: hayashi.tomoki.s4@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレータは、放射線励起によって蛍光を呈する材料であり、光検出器との組み合わせで、放射線検出に用いられる。この用途においては、大発光量、高エネルギー分解能、高速減衰といった性能の具備が要求される。これまでに、発光中心として Yb²⁺ を含有する無機複合アニオン型ハロゲン化物結晶 SrCl_{0.4}Br_{1.6} が、71,000 photons/MeV に及ぶ大発光量を示すとの報告がなされている¹⁾。これを受けて我々は、当該結晶における Yb²⁺ 以外の希土類イオンの添加による発光量増大を企図した。本研究では、Yb²⁺ と同様に 5d-4f 遷移発光を呈する Eu²⁺ を添加した SrCl_{0.4}Br_{1.6} の光学及びシンチレーション特性を調査した。

【実験】試料作製では、SrCl₂ (99.9%) と SrBr₂ (99%) との混合物に、EuCl₃·6H₂O (99%) を 0.5 mol% で添加し、垂直ブリッジマン法によって結晶を育成した。これを試料として、フォトルミネッセンス (PL) スペクトル、PL 減衰曲線、X 線ラジオリミネッセンス (XRL) スペクトル、シンチレーション減衰曲線、及び ¹³⁷Cs γ 線照射パルス波高スペクトルを測定した。

【結果と考察】Figure 1 に、母材である SrCl_{0.4}Br_{1.6} 及び Eu²⁺0.5% 添加体 (0.5% SrCl_{0.4}Br_{1.6}:Eu²⁺) の XRL スペクトルを示す。SrCl_{0.4}Br_{1.6} においては、300 nm~600 nm の範囲に幅広い発光帯が観測された。一方、0.5% SrCl_{0.4}Br_{1.6}:Eu²⁺ では、Eu²⁺ の 5d-4f 遷移に由来する 410 nm 付近の単一ピークが観測された。Figure 2 に、両試料のパルス波高スペクトルを示す。0.5% SrCl_{0.4}Br_{1.6}:Eu²⁺ での発光量は 72,000 photons/MeV、エネルギー分解能は 11% であった。以上より、発光中心として Eu²⁺ を含有する SrCl_{0.4}Br_{1.6} は、高性能なシンチレータ材料として有望であることが示された。

【参考文献】1) Kohei Mizoi *et al.*: Appl. Phys. Express **13**, 112008 (2020).

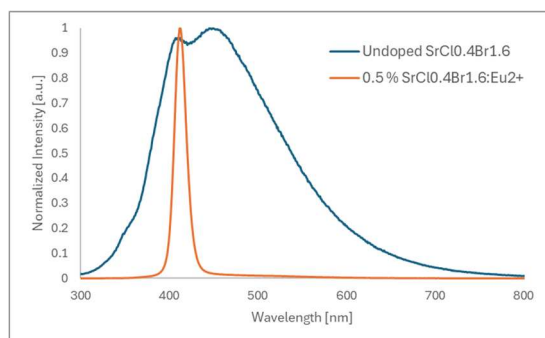


Fig. 1. XRL spectra of undoped and 0.5% Eu²⁺-doped SrCl_{0.4}Br_{1.6} crystals.

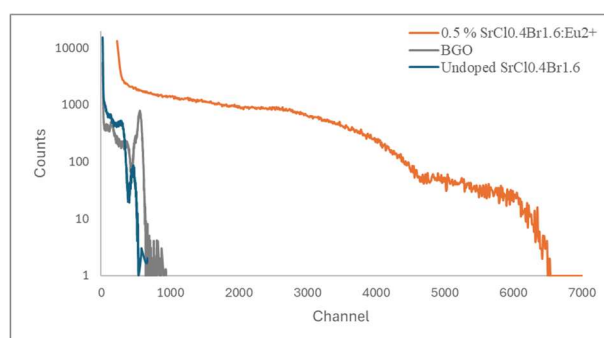


Fig. 2. Pulse-height spectra of undoped and 0.5% Eu²⁺-doped SrCl_{0.4}Br_{1.6} crystals.

Eu²⁺イオン添加 BaFCl 結晶における シンチレーション及びドシメータ特性

Scintillation and Dosimetric Behavior of BaFCl:Eu Crystals

東北大工 〇(M)田村 飛翔, 川本弘樹, 藤本裕, 浅井圭介

Tohoku Univ., 〇Tsubasa Tamura, Hiroki Kawamoto, Yutaka Fujimoto, Keisuke Asai

E-mail : keisuke.asai.c8@tohoku.ac.jp

【背景】放射線検出に用いられる蛍光材料には、シンチレータとドシメータがある。シンチレータは、放射線を受けて即座に紫外-可視域の蛍光を発する。一方、ドシメータは、入射放射線によって生成されたキャリアを自身のトラップ準位に補足し、その後、後に加熱や光刺激を受けて当該補足キャリアを解放することによって可視域の蛍光を発するものである。これら二つの特性は、放射線を吸収し蛍光を発するという共通点をもつことから、多くの放射線誘起蛍光材料において兼備される。ただし、放射線によって付与されたエネルギーが保存則に従うならば、両特性は互いに反相関するものと予想される^[1]。本研究では、輝尽蛍光体としてイメージングプレートへの応用実績^[2]を有する BaFX:Eu (X = Cl, Br, I) 系に着目し、Eu²⁺添加 BaFCl 結晶におけるシンチレーション及びドシメータ特性を調査した。

【実験方法】F と Cl が等モル量、Eu²⁺が所定の含有率（無添加, 0.25, 0.5, 1, 2 mol%）となるように、BaF₂, BaCl₂, EuCl₃・6H₂O の粉末を混合し、これをプレス機で成形し、粉碎後、カーボン坩堝へ入れ、石英管中で真空乾燥の後に、ガスバーナーにより封止した。これを2-4 h かけて1100℃まで熱し、同温度で2 h 保持した後、放冷または24 時間かけて冷却させた。得られた Eu²⁺含有率 0.5 mol% の BaFCl 結晶について、パルス波高 (PH) スペクトル及び TL グローカーブを測定した。

【結果と考察】Figure 1に、作製した結晶のPHスペクトルを示す。BGOおよびEu²⁺を0.25, 0.5, 1, 2 mol%添加した試料における発光量は、それぞれ8000, 6870, 12600, 14200, 32600 ph/MeVであり、対応するエネルギー分解能は14, 38, 19, 27, 25%であった。Eu²⁺の添加濃度の増加に伴い、発光量が増加する傾向が認められた。Figure 2に、X線(10 Gy)照射後のTL グローカーブを示す。Eu²⁺の添加濃度が高くなるにつれて、TLピーク強度は一貫して減少する傾向を示した。Figure 3には、発光量およびTLピーク強度のEu²⁺濃度依存性をまとめて示す。これらの結果から、Eu²⁺添加濃度変化に応じて、当該結晶における発光量とTLピーク強度が反相関の関係にあることが明らかとなった。

【参考文献】[1] T. Yanagida: Radiat. Meas. **71**, 162 (2014).

[2] 宗川 繁: 応用物理 **69**, 420 (2000).

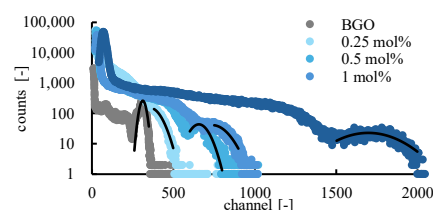


Fig. 1. Pulse height spectra of BaFCl:Eu crystals.

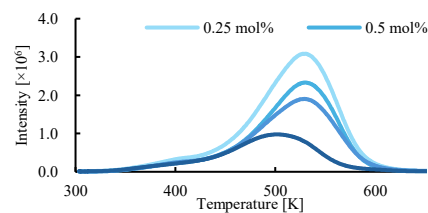


Fig. 2. TL glow curves after X-ray irradiation.

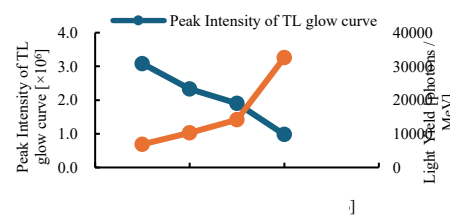


Fig. 3. Eu²⁺ concentration dependence of light yield and TL peak intensity.

Sb³⁺添加 Cs₂NaScCl₆ 単結晶シンチレータの開発

Development of Single-Crystalline Sb-doped Cs₂NaScCl₆ Scintillators

東北大院工 ○(M) 古田満理奈, 藤本裕, 川本弘樹, 浅井圭介

Tohoku Univ., °Marina Furuta, Yutaka Fujimoto, Hiroki Kawamoto, Keisuke asai

E-mail: furuta.marina.r2@dc.tohoku.ac.jp

【背景】シンチレータは、入射する放射線に応答して紫外-可視光を発する検出材料であり、手荷物検査機、PET-CT 装置、サーベイメータ等に広く用いられている。実用に足る優れたシンチレータの条件として、高発光性および非潮解性といった数々の性能の具備が求められるが、それらを全て満たす材料は未だ開発されていない。近年、鉛フリーのメタルハライドエルパソライト (A₂B⁺B³⁺X₆) が新たな光機能材料として注目されている。我々はこれまでに、上述エルパソライトと類似の結晶構造を有する Cs₂NaScCl₆ (CNSC) 単結晶シンチレータを開発し、発光量 33,600 photons/MeV の高発光性と非潮解性を実現した^[1]。本研究では、さらなる高発光化を企図して、Sb³⁺を発光中心として添加した単結晶を作製し、その蛍光およびシンチレーション特性を調査した。

【実験方法】純度 99.9%以上の CsCl, NaCl, ScCl₃·6H₂O, SbCl₃ (Sc に対して Ce を 0.5 mol%添加) を量論比で混合し、真空中 350 °Cで 24 h 脱水した後、石英アンフル管中に封入して垂直ブリッジマン法で結晶成長させた。得られた結晶を研磨して試料とし、X 線励起ラジオリミネッセンス (XRL) スペクトルおよびパルス波高スペクトルを測定した。

【結果と考察】Figure 1 に、無添加および Sb³⁺添加 CNSC 結晶の XRL スペクトルを示す。Sb³⁺添加結晶では 3 つの発光帯が観測された。発光の帰属は現在調査中であるが、304 および 372 nm に観測された発光は、無添加結晶の発光帯と大きく重なることから、母材由来であると考えられる。一方、Sb³⁺添加によって新たに観測された 439 nm の発光は、Sb³⁺の s-p 遷移^[2], または励起子の局在^[3]に起因するものと考えられる。Figure 2 に、Sb³⁺添加 CNSC 結晶およびリファレンスとして用いた BGO のパルス波高スペクトルを示す。Sb³⁺添加結晶の発光量は 42,800 photons/MeV であり、この値は BGO の約 4.9 倍、無添加結晶の約 1.3 倍に相当する。

[1] 古田満理奈, 他: 第 71 回応用物理学会春季学術講演会講演予稿集, 2024 年 3 月 22 日~25 日, 東京, 講演番号 24p-P01-23

[2] A. Nocklak et al: *Chem. Mater.* **32**, 5118 (2020).

[3] X. Jiang et al: *Inorg. Chem.* **63**, 10756 (2024).

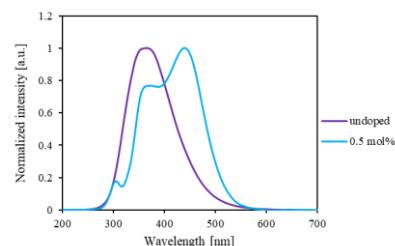


Fig.1 XRL spectra of undoped and Sb³⁺-doped Cs₂NaScCl₆ (CNSC) crystals.

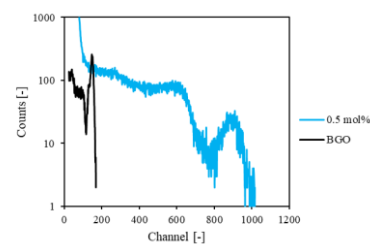


Fig.2 Pulse-height spectra under ¹³⁷Cs gamma-ray irradiation for Sb³⁺-doped Cs₂NaScCl₆ (CNSC) and BGO.

中性子線照射による Mn^{2+} 添加 $\text{Li}_2\text{O}-\text{CaO}-\text{P}_2\text{O}_5$ 結晶化ガラスの熱蛍光 Neutron-Induced Thermoluminescence in Mn^{2+} -Doped $\text{Li}_2\text{O}-\text{CaO}-\text{P}_2\text{O}_5$ Glass-Ceramics

東北大院工¹, 静岡大電子研², 近大原研³ [○](M2)高津 匠吾¹, 山口 寛人¹, 川本 弘樹¹,
藤本 裕¹, 越水 正典², 若林 源一郎³, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.¹, Shizuoka Univ.², Kindai Univ.³ [○]Shogo Takatsu¹, Hiroto Yamaguchi¹,
Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Masanori Koshimizu², Genichiro Wakabayashi³, Keisuke Asai¹
E-mail: takatsu.shogo.s2@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】電荷を持たず、電離放射線とは異なる相互作用様態を示す中性子は、その高い透過性と元素選択性から構造解析やホウ素中性子捕捉療法といった多様な分野で活用されている。中性子利用の広がりに伴い簡便で定量性に優れた中性子検出器の開発が求められているが、既存技術では対応が困難である。例えば、固体飛跡検出器では、化学的エッチング処理や光学顕微鏡による観測が必要であり、操作の煩雑さと定量性の両面で問題がある。解決策として、熱蛍光を利用した中性子検出が注目されており、簡便かつ定量性の高い検出法の実現が期待されている。これまで Mn^{2+} 添加 $\text{Li}_2\text{O}-\text{CaO}-\text{P}_2\text{O}_5$ ガラスの熱蛍光特性を調査してきた我々は、近年報告された結晶化処理による熱蛍光強度の向上事例^[1]に着目し、この知見を当該系に応用することを企図した。本研究では、発光量の増大および測定可能線量域の拡大を目指し、熱処理後の熱蛍光特性を調査した。

【実験方法】 ^6Li 濃縮 Li_2CO_3 (99.0%) または $^7\text{Li}_2\text{CO}_3$ (99.99%), CaCO_3 (99.99%), $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ (99.99%), および MnCO_3 (99.9%) を所定のモル比で混合し、アルミナボートに充填した。これを電気炉内で大気中にて 1100 °C まで加熱・熔融後、ステンレス板上で急冷することで、39.7 $\text{Li}_2\text{O}-20\text{CaO}-40\text{P}_2\text{O}_5-0.3\text{MnO}$ ガラスを作製した。得られたガラスに対して、600 °C, 1 h での熱処理を行い、ガラスセラミックスを作製した。これらを試料として X 線および熱中性子照射後の TL グローカーブを測定した。

【結果・考察】Fig.1 に、試料の XRD パターンを示す。熱処理前のガラスでは、アモルファス構造に由来するブロードなハンプが確認された。一方、熱処理後には複数のシャープなピークが現れ、これらは、 $\text{Mn}_3\text{P}_6\text{O}_{15}$ や $\text{Ca}_3(\text{P}_5\text{O}_{14})_2$ に対応する回折ピークとして同定された。この結果から、熱処理により当該ガラスから結晶相が析出したことが分る。Fig.2 に、熱処理前後の試料について、熱蛍光強度の熱中性子フルエンス依存性を両対数グラフで示す。両試料において、フルエンスの増加に伴い熱蛍光強度が増加し、良好な線量応答性が得られた。特に熱処理試料では、未処理試料と比較して高い熱蛍光強度が呈され、測定可能な下限線量が一桁改善された。こうして、熱処理による低線量域における検出性能の向上が示された。

【参考文献】 [1] Swiontek, S., *et al.*, Materials, 14, 5987 (2021).

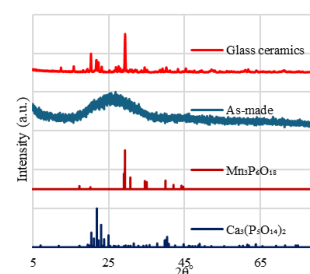


Fig.1. XRD patterns of Mn^{2+} -doped $\text{Li}_2\text{O}-\text{CaO}-\text{P}_2\text{O}_5$ glass before and after heat treatment.

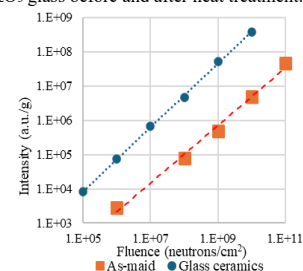


Fig.2. TL intensity of ^6Li -enriched glass and glass-ceramic as a function of neutron fluence.

放射線遮蔽能の向上を企図した ラジオフォトルミネッセンスガラスへの鉛導入

Installation of lead into radiophotoluminescence glass for improvement of radiation shielding property

東北大院工^{1, °}川本 弘樹¹, 藤本 裕¹, 浅井 圭介¹

Tohoku Univ.^{1, °}Hiroki Kawamoto¹, Yutaka Fujimoto¹, Keisuke Asai¹

E-mail: hiroki.kawamoto.c7@tohoku.ac.jp

【背景】近年、放射線は医療・セキュリティ・工業など様々な場面で用いられており、これらの放射線業務に従事する際には、放射線からの適切な防護と被ばく線量計測が必要不可欠である。とりわけ医療業務従事者については、2011年に水晶体等価線量限度をそれ以前の1/8程度に引き下げる勧告がなされたため、新たな水晶体防護及び線量計測策を講じることが切望されている。これを受けて、個人被ばく線量計として利用されているラジオフォトルミネッセンス (RPL) を示す銀添加リン酸塩ガラスをレンズ部に採用したメガネ型線量計の開発が試みられている^[1]。しかしながら、当該デバイスにおける正面からの放射線遮蔽率は50%程度であり、遮蔽能の改善が求められている。そこで本研究では、放射線遮蔽能と線量計測能を併せ持つ材料開発を目的として、鉛を導入した銀添加リン酸塩ガラスにおける線減弱係数及びRPL特性を調査した。

【実験内容】 NaPO_3 , Na_2CO_3 , $\text{Al}(\text{PO}_3)_3$, PbO , 及び Ag_2O の原料粉末を用いて、融液急冷法により $27.73\text{Na}_2\text{O}-(13.14-x)\text{Al}_2\text{O}_3-x\text{PbO}-59.04\text{P}_2\text{O}_5-0.001\text{Ag}_2\text{O}$ ガラス ($x = 1, 6.57, 13.14$) を作製した。得られたガラスについて、X線照射前及び照射後 100°C で5分間の熱処理後における蛍光スペクトル (励起波長: 310 nm) を測定し、RPL特性を調査した。また、NISTが提供するWebデータベース XCOM^[2]により得られた質量減弱係数と、ガラスの加成性に基づいて推算された密度を用いることで、各ガラスにおける線減弱係数を推算した。

【結果と考察】Fig. 1に各ガラスにおける線減弱係数を示す。医療用X線のエネルギーである0.1–0.2 MeVの範囲において、Pb含有量増加による線減弱係数向上が確認された。Fig. 2に各ガラスにおける蛍光スペクトルを示す。全ての試料において、X線 (1 kGy) 照射後の 100°C での熱処理によって650 nm付近に新たな蛍光帯が観測された。しかしながら、未照射時との蛍光強度差は鉛含有量が多くなるほど小さくなることが分かった。これらの結果から、鉛導入は測定感度に影響を与えることが明らかとなった。

【参考文献】[1] 稲葉洋平ら, 第4回日本保健物理学会・日本放射線安全管理学会合同大会

[2] XCOM, <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html>

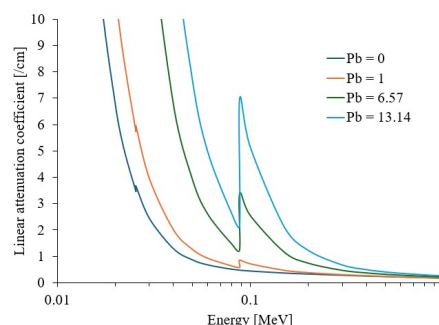


Fig. 1 Linear attenuation coefficients

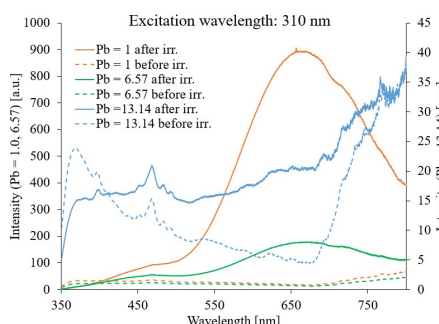


Fig. 2 PL spectra in fabricated glasses

Pr, Tm 共添加 LiYSiO₄ セラミックスの熱蛍光特性 Thermoluminescence Properties of Pr- and Tm-co-doped LiYSiO₄

静岡大工 °(M2) 平松 祐汰, 越水 正典

Shizuoka Univ., °Yuta Hiramatsu, Masanori Koshimizu

E-mail: hiramatsu.yuta.20@shizuoka.ac.jp

【緒言】熱蛍光とは、自由電子・正孔が捕獲中心に束縛され、加熱による祭礼季語に再結合して、発光する現象である。線量計を目的とした場合に熱蛍光材料に求められる条件として、高い熱蛍光強度、低フェーディング、および優れた熱・化学的安定性が求められる。しかしながら、これら全ての条件を満たす材料が無いことから、新たな熱蛍光材料が求められている。

希土類共添加 Li(Y/Lu)SiO₄ は市販の蓄積型蛍光体よりも優れたフェーディング特性および低い吸湿性を示すことで知られている^[1]。また、Li を母材に含有していることから中性子検出への応用が可能であると考えられる。そのため、本研究では LiYSiO₄ に正孔および電子の捕獲中心を企図してそれぞれ希土類元素である Pr および Tm を共添加し、熱蛍光特性を評価した。

【実験方法】Li₂CO₃、Y₂O₃、SiO₂、Pr₆O₁₁、および Tm₂O₃ を原料粉末とし、Li₂CO₃ を 15wt% 過剰にして、それ以外のカチオンについては両論火にて混合し、900℃にて仮焼した。バインダー (PVA) を添加し、錠剤成型した後、550℃にてバインダーを除去し、1100℃にて焼成した。得られた試料に X 線を照射後、熱蛍光グローブカーブを測定した。

【結果と考察】Fig. 1 に Pr 1 mol% および Tm 1 mol% 添加試料の蛍光・励起スペクトルを示す。励起スペクトルでは 220-270 nm を中心とした Pr の 4f→5d と考えられる 2 つのピークが観測された^[2]。また、蛍光スペクトルにおいては

315-390 nm および 575-700 nm においてピークが観測され、それぞれ Pr の 5d→4f 遷移および Pr の 4f→4f 遷移によるものだと考えられる。Fig. 2 に Pr 1 mol% および Tm 1 mol% 添加試料および市販品 TLD-100 の熱蛍光グローブカーブを示す。Pr および Tm 添加試料は 330、450、550、および 660 K にピークが観測され、350、380、および 490 K にショルダーが観察された。また、積分熱蛍光強度は市販品である TLD-100 に対し、35 倍高い値を示した。

参考文献 [1] shihang Zhou et al., *J. Lumin.* 2022, 241, 118479.

[2] Shao Yan et al., *J. Mater. Chem. C.* 2022, 10, 17343.

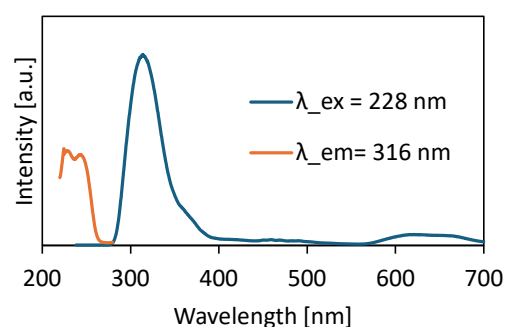


Fig. 1. PLE and PL spectra of LiYSiO₄: Pr 1 mol%, Tm 1 mol%.

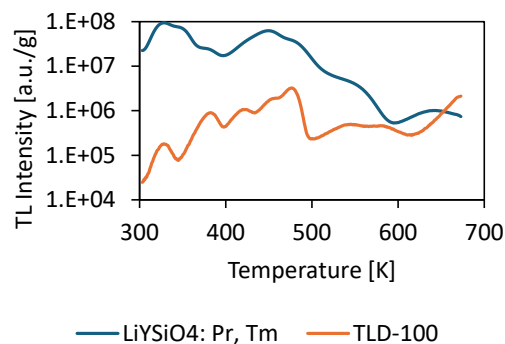


Fig. 2 Thermoluminescence glow curve of LiYSiO₄: Pr 1 mol% and Tm 1 mol% and TLD-100 at 1 Gy.

紫外発光を呈する Ce 添加 YAP 微粒子シンチレータの開発 Development of UV-Emitting Ce-Doped YAP Fine Particle Scintillators

静岡大¹, [○](M1) 高橋 悠真¹, 越水 正典¹

Shizuoka Univ.¹ [○]Yuma Takahashi¹, Masanori Koshimizu¹

E-mail: takahashi.yuma.20@shizuoka.ac.jp

【緒言】生体内部でシンチレーション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。ペロブスカイト型構造の無機結晶シンチレータは、化学的に安定で潮解性がないといった特徴や、高い密度および実効原子番号を有し、生体内においても優れた耐久性および高い X 線阻止能を示すため、生体投与に適している。本研究では、紫外域のシンチレーションの生体応用を目指し、微粒子シンチレータとして発光中心元素に Ce を用いた YAP (YAlO_3) を作製し、その特性を評価した。

【実験方法】Y および Al の硝酸塩を量論比に基づいて秤量し、0.6 mol/L の酒石酸水溶液 25 mL に溶解した。Y に対して 1 mol% の Ce 濃度となるように Ce の硝酸塩を溶解した。このとき、硝酸塩の総物質量を酒石酸の物質量の 1/2 とした。この溶液に蓋をして 24 時間攪拌した後、80°C で 2 時間加熱し、蓋を取って 80°C で乾燥させることで乾燥ゲルとした。これを乳鉢で砕き、電気炉を用い、1200°C で 6 時間、その後 1500°C で 6 時間の焼成し、試料を得た。得られた試料を XRD 測定した結果、これらの XRD パターンは YAlO_3 についての既報のもの (JCPDS file No. 01-070-1677) と一致しており、YAP の結晶相の存在を示した。ただし、 $\text{Y}_4\text{Al}_2\text{O}_9$ に対応する小さなピークも観測された。

【結果と考察】Fig. 1. に YAP:Ce 1% のサンプルの TEM 像を示す。角ばった形状の粒子が支配的であり、大きさは 400–500 nm 程度であった。

Fig. 2. に YAP:Ce 1% のサンプルの蛍光励起スペクトルを示す。蛍光スペクトルにおいて、366 nm にピークが観測され、このピークは、 $5d_1 \rightarrow 4f$ の電子遷移に帰属される^[1]。また、励起スペクトルにおいて、240、293 および 306 nm にピークが観測され、それぞれ $4f(^2F_{5/2}) \rightarrow 5d(^3T_2)$ 、 $4f(^2F_{5/2}) \rightarrow 5d(^2E)$ および $4f(^2F_{5/2}) \rightarrow 5d(2e)$ の電子遷移に帰属される^[1]。

[1] Zorenko, Y., et al. Radiat Meas 4-5 (2007) 528-532.

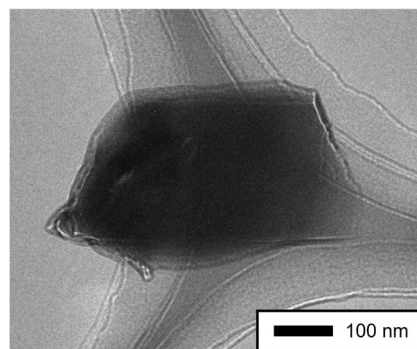


Fig. 1. TEM image of YAP:Ce 1% fine particle.

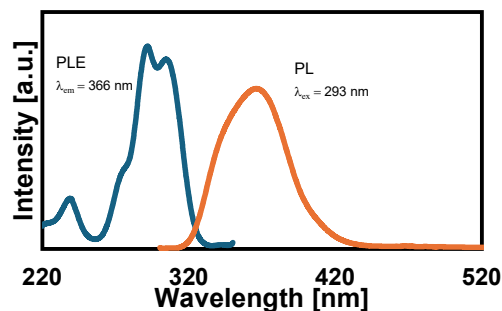


Fig. 2. PL and PLE spectra of YAP:Ce 1%.

9-vinylcarbazole および LiAlO_2 ナノ粒子添加中性子検出用 紫外線硬化プラスチックシンチレータの開発

Development of surface-modified LiAlO_2 nanoparticle-loaded UV-cured plastic
scintillators containing 9-vinylcarbazole for neutron detection

静岡大¹ ○(M2) 林 南瑠, 塚原 悠久, 越水 正典

Shizuoka Univ. ○Naru Hayashi, Haruhisa Tsukahara, Masanori Koshimizu

E-mail: hayashi.naru.20@shizuoka.ac.jp

【緒言】プラスチックシンチレータは有機シンチレータの一つであり、成形加工が容易であり、材料が安価という特徴がある。プラスチックシンチレータには熱中性子検出能はないため、中性子と核反応を起こして荷電粒子を放出する ^{10}B や ^6Li を含有する化合物をナノ粒子として添加し、中性子検出能を付与する手法が提案されてきた。これまでに、 LiAlO_2 ナノ粒子を、ポリスチレンを用いたシンチレータに添加し、中性子検出能の付与が行われている[1]。また、紫外線硬化樹脂を用いたシンチレータへの添加も行われ、ポリスチレンホストのものより発光量が増加することがわかった[2]。一方で、紫外線硬化プラスチックシンチレータに 9-vinylcarbazole を添加することで、その発光量が向上する [3]。本研究では、 LiAlO_2 ナノ粒子を添加した紫外線硬化プラスチックシンチレータに、9-vinylcarbazole を添加することにより、さらなる発光量の増加を目指した。

【実験方法】 LiAlO_2 ナノ粒子の合成および表面修飾を、先行研究[1,4]と同様な手法を用いて行った。シンチレータの合成では、先行研究[5]と同様な手法を用い、紫外線照射前に 9-vinylcarbazole および LiAlO_2 ナノ粒子を添加した。試料の蛍光励起スペクトルおよび波高スペクトルを測定した。

【結果と考察】Figure 1 は、9-vinylcarbazole 添加および無添加試料の蛍光および励起スペクトルである。励起スペクトルは 385 nm で規格化されている。440 nm 付近の蛍光ピークは POPOP に帰属される。9-vinylcarbazole の HOMO-LUMO ギャップに対応する 375 nm 付近の励起スペクトルの強度と比較して、250–350 nm の強度は 9-vinylcarbazole 添加試料のほうが小さい。このことから、9-vinylcarbazole が光を吸収して励起状態となり、その後、励起エネルギーが DPO に移動しその発光を POPOP が吸収し、蛍光を呈したことがわかる。Table 1 に、作製したシンチレータの発光量を示す。市販の中性子検出用プラスチックシンチレータである EJ-254 の発光量が 800 photons/neutron であることを用いて、作製した試料の発光量を、 ^{252}Cf を用いて測定した波高スペクトルの光電吸収ピークチャンネルの比較に基づき推算した。9-vinylcarbazole を添加したシンチレータの発光量は 4300 photons/neutron である。EJ-254 の発光量より高く、無添加試料 (3100 photons/neutron [2]) と比べて 1.4 倍を達成した。

【参考文献】

- [1] Haruhisa Tsukahara et al., Journal of Luminescence, **271**, 120592 (2024).
- [2] 塚原悠久ら、2025 年第 72 回応用物理学会春季学術講演会[14a-P01-2].
- [3] 林南瑠ら、2025 年第 96 回応用物理学会秋期学術講演会 18p-P01-42
- [4] 塚原悠久ら、2023 年第 84 回応用物理学会春季学術講演会[20p-P01-16].
- [5] Naru Hayashi et al., Journal of Luminescence, **277**, 120993 (2025).

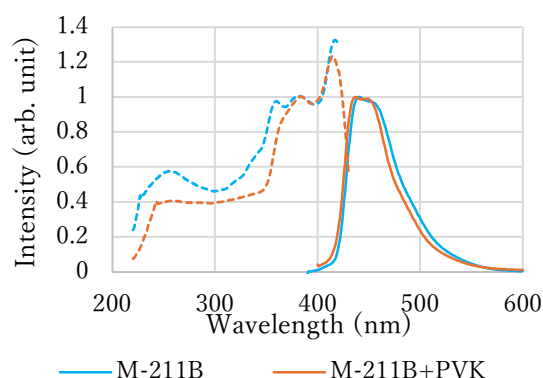


Figure 1. Emission and excitation spectra of LiAlO_2 -loaded samples.

高発光量化を企図した TADF 分子添加プラスチックシンチレータの開発

Development of plastic scintillators containing TADF molecule to achieve high scintillation light yields

静岡大¹, 東北大² [○](M1)金成太陽¹, 渥美舞彩², 北本雄一², 大井秀一², 服部徹太郎², 川本弘樹², 藤本裕², 浅井圭介², 越水正典¹

Shizuoka Univ.¹, Tohoku Univ.², [○]Taiyo Kanenari¹, Maya Atsumi², Yuichi Kitamoto², Shuichi Oi², Tetsutaro Hattori², Hiroki Kawamoto², Yutaka Fujimoto², Keisuke Asai², Masanori Koshimizu¹

E-mail: kanenari.taiyo.21@shizuoka.ac.jp

【緒言】プラスチックシンチレータは、加工性、機械的強靱性、および高速応答性に優れる。プラスチックシンチレータでは、入射する高エネルギー粒子の通過により、ホストで一重項励起および三重項励起が生成され、その後、蛍光分子へのエネルギー移動を経て発光する。しかし、三重項励起から基底状態への遷移は禁制遷移であり、その励起エネルギーが熱として消失してしまうことが多い。熱活性化遅延蛍光 (Thermal Activated Delayed Fluorescence: TADF) を示す分子では、逆項間交差 (reverse intersystem crossing: RISC) により、非発光性の三重項励起を発光性の一重項励起に変換できる。そこで本研究では、三重項励起を利用すべく、Fig. 1 に示す TADF 分子 BMes-1 を蛍光分子として使用し、シンチレーション収率の高いプラスチックシンチレータの開発を目的とした。

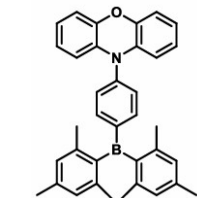


Fig. 1. Structural formula of BMes-1.

【実験方法】ポリスチレン (PS) をホストとし、スチレンモノマーユニットに対して BMes-1 を 1.6–8.0 mol% 添加した。これらをテトラヒドロフランに溶解し、室温で乾燥させ、試料を作製した。蛍光スペクトル, ²⁴¹Am から発生するγ線 (59.5 keV) に対するパルス波高スペクトル, および ²²Na から発生するγ線 (511 keV) に対するシンチレーション減衰プロファイルを得た。

【結果と考察】Fig. 2 に作製試料の蛍光スペクトルを示す。励起波長 (λ_{ex}) を 320 nm に設定した。BMes-1 添加量増加に伴う RISC の促進^[1]により、TADF の割合が増加し、蛍光スペクトルの短波長シフトに繋がった。Table 1 にシンチレーション収率 (LY) およびシンチレーション減衰時定数 (τ) を示す。BMes-1 添加量 1.6–4.0 mol% において、濃度の増大に伴うシンチレーション収率の向上および第 2 成分のシンチレーション減衰速度の低下が観測された。この結果は、BMes-1 の濃度増加に伴い、PS から BMes-1 へのエネルギー移動が効率化されたことに起因する^[2]。TADF の利用により、市販品 EJ-212 (LY: 10,000 photons/MeV) と比較して約 2 倍のシンチレーション収率を持つプラスチックシンチレータの開発に成功した。

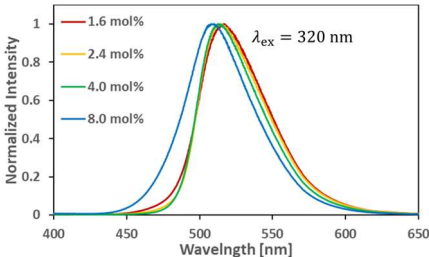


Fig. 2. PL emission spectra of samples containing BMes-1 as fluorescent molecule.

Table 1. LY and τ for samples with different BMes-1 concentrations.

BMes-1 concentration	1.6 mol%	2.4 mol%	4.0 mol%	8.0 mol%
LY [photons/MeV]	14,200	17,200	19,200	12,300
τ ₁ [ns]	15 (25.0%)	13 (51.2%)	19 (34.1%)	12 (14.4%)
τ ₂ [μs]	1.3 (75.0%)	1.4 (48.8%)	1.5 (65.9%)	1.1 (85.6%)

【参考文献】

[1] T. J. Hajagos et al., *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A*, 940 (2019) 185-198.
[2] T. Chen et al., *Adv. Optical Mater.*, 9 (2021) 2001975.