

## 戦略的国際共同研究プログラム(SICORP)

日本-V4 共同研究

終了報告書 概要

1. 研究課題名：「ペロブスカイト量子ドットに端を発する広帯域X線検出器の創生」
2. 研究期間：令和3年11月～令和6年10月
3. 主な参加研究者名：

日本側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	千葉貴之	准教授	山形大学大学院有機材料システム研究科	研究総括
主たる共同研究者	増原陽人	教授	山形大学大学院理工学研究科	材料解析
主たる共同研究者	城戸淳二	教授	山形大学大学院有機材料システム研究科	デバイス解析
研究参加者	阿部遥	修士2年	山形大学大学院有機材料システム研究科	架橋化技術
研究参加者	柳橋健人	修士1年	山形大学大学院有機材料システム研究科	積層化技術
研究期間中の全参加研究者数			5名	

チェコ側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	Martin Kalbáč	Professor	J. Heyrovsky Institute of Physical Chemistry (HIPC)	Head of Research
主たる共同研究者	Oleksandr Volochanskyi	PhD student	J. Heyrovsky Institute of Physical Chemistry (HIPC)	Fabrication of X-ray detector
研究期間中の全参加研究者数			2名	

スロバキア側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	Peter Šiffalovič	Professor	Institute of Physics, Slovak Academy of Sciences (SAS)	Head of Research
主たる共同研究者	Karol Vegso	Post-doc	Institute of Physics, Slovak Academy of Sciences (SAS)	Development of X-detector system
研究期間中の全参加研究者数			2名	

ハンガリー側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	Gergely F. Samu	Assistant Professor	Department of Physical Chemistry and Materials Science, University of Szeged (US)	Head of Research
研究期間中の全参加研究者数			1名	

## ポーランド側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	Daniel Prochowicz	Professor	Ph.D, Institute of Physical Chemistry, Polish Academy of Sciences (PAN)	Head of Research
研究期間中の全参加研究者数			1名	

## 4. 国際共同研究の概要

ペロブスカイト量子ドットは、紫外、可視、近赤外領域において優れた光吸収および発光特性を持つ革新的な半導体材料である。また、高原子番号である鉛を含むことから、優れた X 線吸収特性やシンチレーション性能が期待され医療や工業用途を含む幅広い分野での応用が模索されている。本研究では、これらの課題を解決するため、ペロブスカイト量子ドットの表面修飾技術（日本、ポーランド）、キャリアダイナミクス解析（ハンガリー）、高密度集積技術（日本、チェコ）、電荷捕集層の設計および開発（日本、チェコ、スロバキア）、X 線照射およびその応答の解析技術（チェコ、スロバキア）を国際的な連携のもとで開発した。これらを統合し、X 線照射による直接的な電流変換を可能とするペロブスカイト量子ドット X 線検出器の開発を目指した。

## 5. 国際共同研究の成果

## 5-1 国際共同研究の学術成果および実施内容

本国際共同研究では、ペロブスカイト量子ドットを用いた次世代 X 線検出器の創出を目的とした。ペロブスカイト量子ドットの合成法やポストトリートメントによる表面再結晶技術を確立し、量子ドット表面の欠陥低減と分散性の向上を実現した。さらに、量子ドット間の架橋化と厚膜化技術を開発した。また、単層グラフェンの優れた電気伝導性を活用することで、デバイス全体の電荷捕集効率を向上させ、応答性の高い X 線検出器の構築に成功した。フォトコンダクター構造の X 線検出器では、X 線照射による直接的な電流変換が確認された。このように、量子ドットの合成からデバイス特性の解析に至るまでの一連の技術を確立し、次世代 X 線検出器の実現に向けた基盤を構築した。

## 5-2 国際共同研究による相乗効果

本研究では、日本および V4 の各国が有する技術や知見を有機的に結びつけることで、個別で達成し得ない大きな成果をあげることができた。山形大学では、量子ドットの合成および表面修飾に関する基盤技術を確立し、高い分散安定性と優れた光電子物性を持つペロブスカイト量子ドットを開発した。チェコの J.ヘイロフスキー物理化学研究所は、山形大学が提供した量子ドットを用いて X 線検出器のデバイス開発を担当した。さらに、スロバキア科学アカデミーは X 線検出器の測定装置の開発および性能評価を行い、X 線応答特性の詳細なデータを取得した。これらの成果を統合することで、ペロブスカイト量子ドット X 線検出器の開発に成功した。

## 5-3 国際共同研究成果の波及効果と今後の展望

本研究で開発したペロブスカイト量子ドット X 線検出器は、薄膜でありながら軽量かつフレキシブルなデバイス構造を実現できる点において従来技術を大きく超える可能性を示した。特に、長期間安定な高品質ペロブスカイト量子ドットの合成技術やポストトリートメント、量子ドット間の架橋化による厚膜化技術、単層グラフェンとの積層化技術、デバイス構造設計の高度化に関する多くの知見が得られた。また、X 線から電流への変換特性の定量的評価手法を確立し、今後の性能向上の指針を得ることができた。これらの知見と技術は、次世代の高性能 X 線検出器の研究開発において重要な基盤になるものであり、医療や安全保障、工業検査など幅広い応用分野での展開が期待される。

Strategic International Collaborative Research Program (SICORP)  
 Japan – V4 Joint Research Program  
 Executive Summary of Final Report

1. Project title : 「Perovskites Quantum Dots based Broadband Detectors – from a quantum dot to a functional detector」
2. Research period : November 2021 ~ October 2024
3. Main participants :

Japan-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Takayuki Chiba	Associate Professor	Graduate School of Organic Materials Science, Yamagata University	Head of Research
Co-PI	Akito Masuhara	Professor	Graduate School of Science and Engineering, Yamagata University	Synthesis of perovskite QDs
Co-PI	Junji Kido	Professor	Graduate School of Organic Materials Science, Yamagata University	Advisor of research
Collaborator	Haruka Abe	Graduate student (M2)	Graduate School of Organic Materials Science, Yamagata University	Development of cross-linked QD system
Collaborator	Kento Yanagihashi	Graduate student (M1)	Graduate School of Organic Materials Science, Yamagata University	Development of multilayer QD films
Total number of participants throughout the research period: 5				

Czech-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Martin Kalbáč	Professor	J. Heyrovsky Institute of Physical Chemistry	Head of Research
Co-PI	Oleksandr Volochanskyi	PhD student	J. Heyrovsky Institute of Physical Chemistry	Fabrication of X-ray detector
Total number of participants throughout the research period: 2				

Slovakia-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Peter Šiffalovič	Professor	Institute of Physics, Slovak Academy of Sciences	Head of Research
Co-PI	Karol Vegso	Post-doc	Institute of Physics, Slovak Academy of Sciences	Development of X-detector system
Total number of participants throughout the research period: 2				

Hungary-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Gergely F. Samu	Assistant Professor	Department of Physical Chemistry and Materials Science, University of Szeged	Head of Research
Total number of participants throughout the research period: 1				

Poland-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Daniel Prochowicz	Professor	Institute of Physical Chemistry Polish Academy of Sciences	Head of Research
Total number of participants throughout the research period: 1				

4. Summary of the international joint research

This research aimed to develop perovskite quantum dot (PQD)-based X-ray detectors capable of direct current conversion upon X-ray irradiation. To achieve this, we advanced key technologies, including surface modification techniques (Japan, Poland), high-density assembly methods (Japan, Hungary, Czech Republic), charge collection layer development (Japan, Czech Republic, Slovakia), and X-ray irradiation and analysis technologies (Czech Republic, Slovakia).

5. Outcomes of the international joint research

5-1 Scientific outputs and implemented activities of the joint research

5-2 Synergistic effects of the joint research

5-3 Scientific, industrial or societal impacts/effects of the outputs

The research demonstrated the feasibility of PQD-based X-ray detectors in thin, lightweight, and flexible device structures, providing promising solutions for various applications. These include medical imaging, security screening, and industrial non-destructive testing. Additionally, the project generated valuable insights into PQD synthesis, thin-film fabrication, and device optimization, laying a robust foundation for future advancements in X-ray detection technologies.

## 国際共同研究における主要な研究成果リスト

## 1. 論文発表等

\*原著論文（相手側研究チームとの共著論文）発表件数：計 0 件

・査読有り：発表件数：計 0 件

・査読無し：発表件数：計 0 件

\*原著論文（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの論文）：発表件数：計 8 件

・査読有り：発表件数：計 8 件

1. D.Yokota, H. Abe, S. Saito, K. Yanagihashi, T. Chiba, T. Oto, Highly stable and bright CsPbI<sub>3</sub> nanocrystal red emitters based on color-conversion from InGaN-based blue light-emitting diodes, *Appl. Phys. Lett.* **2024**, 125, 133502, doi.org/10.1063/5.0227291
2. S. Mizoguchi, S. Sumikoshi, H. Abe, Y. Ito, R. Yamakado, T. Chiba, Aromatic 2,2-diphenylethylamine ligand exchange of FA<sub>0.9</sub>Cs<sub>0.1</sub>PbBr<sub>3</sub> perovskite nanocrystals for high efficiency pure green light-emitting diodes, *ACS Omega* **2024**, 9, 34692 – 34699, doi/full/10.1021/acsomega.4c03488
3. S. Ohisa, G. Motomura, S. Mizoguchi, Y. Fujisaki, T. Chiba, Ultra-Low Drive Voltage Perovskite Nanocrystal Light-Emitting Diodes Realized by an Auger Assisted Energy Up-Conversion, *Adv. Opt. Mater.* **2024**, 2401456, doi.org/10.1002/adom.202401456
4. K. Satake, K. Narazaki, H. Abe, K. Yanagihashi, M. Mizukami, Y. Suzuri, T. Chiba\*, J. Kido, Low-Temperature Annealing of Inkjet-Printed CsPbBr<sub>3</sub> Perovskite Nanocrystal Film for Light-Emitting Diodes, *ACS Appl. Nano Mater.* **2024**, 7, 11313 – 11319, doi.org/10.1021/acsanm.4c00867
5. H. Ebe, R. Suzuki, S. Sumikoshi, M. Uwano, R. Moriyama, D. Yokota, M. Otaki, K. Enomoto, T. Oto, T. Chiba, and J. Kido, Guanidium Iodide Treatment of Size-controlled CsPbI<sub>3</sub> Quantum Dots for Stable Crystal Phase and Highly Efficient Red LEDs, *Chem. Eng. J.* **2023**, 471, 144578, doi.org/10.1016/j.cej.2023.144578
6. K. Satake, Y. Sato, K. Narazaki, T. Chiba\*, S. Sumikoshi, R. Moriyama, R. Suzuki, Y.-H. Cheng, K. Tamura, and J. Kido\*, Fabrication of perovskite nanocrystal light-emitting diodes via inkjet printing with high-temperature annealing, *ACS Appl. Opt. Mater.* **2023**, 1, 282–288, doi.org/10.1021/acsaom.2c00053
7. T. Chiba, Recent advances in solution-processed organic and perovskite nanocrystal light-emitting devices, *Polym. J.*, 2022, 54, 969-976, doi.org/10.1038/s41428-022-00640-0
8. Y.-H. Cheng, R. Moriyama, H. Ebe, K. Mizuguchi, R. Yamakado, S. Nishitsuji, T. Chiba, J. Kido, Two-Step Crystallization for Low-Oxidation Tin-Based Perovskite Light-Emitting Diodes, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2022, 14, 22941–22949, doi.org/10.1021/acsaomi.1c22130

・査読無し：発表件数：計 0 件

該当なし

\*その他の著作物（相手側研究チームとの共著総説、書籍など）：発表件数：計 0 件

該当なし

\*その他の著作物（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの総説、書籍など）：発表件数：計 3 件

1. 千葉 貴之, ペロブスカイト量子ドット LED の開発, 〈続〉次世代蛍光体材料の開発, CMC 出版, 監修：磯部徹彦, 2024 年発行
2. H. Ebe\*, T. Chiba\*, Y.-J. Pu, J. Kido, "Solution-Processed Organic Light-Emitting Devices"

(2nd edition) Organic Electronics Materials and Devices, Springer, S. Ogawa, (eds) 2024, DOI: <https://doi.org/10.1007/978-4-431-56936-7>

- 千葉 貴之, 城戸 淳二, “やわらか次世代発光材料・デバイス” (分担 第 5 節 pp.92-98) やわらかもの作りハンドブック、NTS 出版、編集：古川英光、川上勝、2022 年発行

## 2. 学会発表

\* 口頭発表（相手側研究チームとの連名発表）

発表件数：計 0 件（うち招待講演：0 件）

\* 口頭発表（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの発表）

発表件数：計 27 件（うち招待講演：8 件）

\* ポスター発表（相手側研究チームとの連名発表）

発表件数：計 0 件

\* ポスター発表（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの発表）

発表件数：計 8 件

## 3. 主催したワークショップ・セミナー・シンポジウム等の開催

- Micro symposium & V4 project meeting, 主催者：Martin Kalbáč (CAS・Professor)、J. Heyrovsky Institute of Physical Chemistry, Prague, Czech Republic, July 31-Aug 3, 2024、参加人数 50 名程
- 第 2 回チェコ・日本合同ワークショップ, 主催者：千葉貴之 (山形大学・准教授), 山形大学, 米沢, 日本, 2024 年 1 月 16 日, 参加人数 20 名程
- 第 1 回チェコ・日本合同ワークショップ, 主催者：千葉貴之 (山形大学・准教授), 山形大学, 米沢, 日本, 2023 年 5 月 12 日, 参加人数 40 名程
- スロバキア・日本合同ワークショップ, 主催者：千葉貴之 (山形大学・助教), 山形大学, 米沢, 日本, 2022 年 8 月 24 日, 参加人数 20 名程

## 4. 研究交流の実績（主要な実績）

【合同ミーティング】

・両国のチームメンバーを交えて Zoom ミーティングを 2 ヶ月に 1 回のペースで開催した。

## 5. 特許出願

研究期間累積出願件数：0 件

## 6. 受賞・新聞報道等

- A-COE2024 Best Poster Presentation Award, Haruka Abe, 2024.11.22
- 2024 ISSTOE Best Presentation Award, Ryota Kobayashi, 2024.9.27
- 2024 ISSTOE Best Presentation Award, Kohei Narazaki, 2024.9.27
- M&BE11 Student Poster Award, Shoki Mizoguchi, 2024.6.21
- 有機 EL 討論会第 37 回例会学生講演奨励賞 柳橋健人 2023.11.17
- 令和 5 年 文部科学大臣表彰 若手科学者賞 千葉貴之
- テレビ放送 YBC News every 千葉貴之 2023. 5.11

## 7. その他

V4 の各研究機関と 1 年間の国際共同研究を延長し、X 線検出器の開発と性能向上に関する研究を進めており、X 線照射による電流値の向上に成功している。2025 年には論文掲載と学会発表を予定している。