HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Lift-off法により作製した単結晶CVDダイヤモンド放射線検出器の電荷キャリア輸送特性向上と核融合プラズマ診断への応用
Author(s)	嶋岡, 毅紘
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第12307号
Issue Date	2016-03-24
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k12307
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/61675
Type	doctoral thesis
File Information	Takehiro_Shimaoka.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

博士論文

Lift-off 法により作製した単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器の電荷キャリア輸送特性向上と核融合プラズマ診断への応用

Improvement of charge transportation properties of single-crystal chemical vapor deposited diamond radiation detector obtained by lift-off method and its performance evaluation for fusion plasma diagnostics

北海道大学大学院工学院

量子理工学専攻

嶋岡　毅紘

目次

第 1 章　序論 1
1.1 研究背景 1
1.1.1 ダイヤモンド放射線検出器の特長 1
1.1.2 ダイヤモンド放射線検出器による DT 中性子エネルギースペクトロメータ 2
1.1.3 ダイヤモンド放射線検出器動作原理 3
1.1.4 単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器と作製方法 4
1.1.5 既存単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器の電荷キャリア輸送特性 5
1.1.6 電荷捕獲の検出器動作への影響 6
1.1.7 北大でリフトオフ法により作製した単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器の現状 6
1.2 研究目的 10
1.3 研究手法 10
1.4 本論文の構成 10
第 2 章　単結晶 CVD ダイヤモンド電子電荷キャリア輸送特性向上への取り組み 13
2.1 研究目的 13
2.2 実験 13
2.2.1 マイクロ波プラズマ CVD 法による単結晶ダイヤモンド成長 13
2.2.2 成長層リフトオフによる自立膜化と検出器作製・評価 14
2.3 実験結果と考察 18
2.3.1 窒素汚染低減試料 18
2.3.1.窒素汚染低減による電荷捕獲増加原因 21
2.3.2 低メタン濃度成長試料 24
2.3.3 成長温度上昇試料 26
2.3.4 低メタン濃度成長、成長温度上昇による電子電荷キャリア輸送特性向上 29
2.4 結論 30
第 3 章　ダイヤモンド放射線検出器の Fano 因子評価 32
3.1 研究背景 32
3.1.1 ポアソン統計に基づくエネルギー分解能の限界値と Fano 因子 32
3.1.2 ダイヤモンドと他半導体検出器の Fano 因子 34
3.2 研究目的 35
3.3 実験 35
3.4 実験結果と考察 35
3.5 結論 38

第 4 章 14MeV 中性子エネルギースペクトロメータ応用へ向けた応答関数評価 40
4.1 研究背景 40
4.1.1 プラズマイオン温度計測のためのダイヤモンド検出器の特長 40
4.1.2 中性子計測によるプラズマイオン温度測定原理 40
4.1.3 14MeV 中性子エネルギー計測に基づくプラズマイオン温度測定法と他計測手法との比較 40
4.1.5 既存ダイヤモンド検出器が解決すべき問題点 42
4.2 本研究の目的 43
4.3.実験 43
4.3.1 使用サンプル 43
4.3.2 14MeV 中性子に対する応答関数測定体系 44
4.4 実験結果と考察 44
4.4.1 北大製試料の 14MeV 中性子応答関数例 44
4.4.2 検出器固有エネルギー分解能の評価 47
4.4.3 Element Six 社製試料との比較 47
4.4.4 エネルギー分解能をさらに改善するための今後の展望 48
4.5 結論 49
第 5 章　荷電交換中性粒子計測モニタ応用へ向けたプロトン応答関数評価試験 52
5.1 研究背景：磁場閉じ込め核融合における中性粒子計測 52
5.2 研究目的 53
5.3　3MeV プロトン照射実験 54
5.3.1 測定体系 54
5.3.2 実験結果と考察 54
5.4 ~400keV プロトン照射試験 58
5.4.1 測定体系 58
5.4.2 実験結果と考察 58
5.5 結論 60
第 6 章　高速点火方式における高強度 X 線下で動作可能な中性子 burn ヒストリモニタへの単結晶 CVD ダイヤモンド検出器の適用試験可能性検討 62
6.1.研究背景 62
6.1.1 慣性核融合と各研究機関の爆縮方式 62
6.1.2 高速点火方式 63
6.1.3 点火達成のために必要なパラメータと計測手法 63
6.1.4 Burn タイム・burn ヒストリ計測と用いられる検出器 64
6.1.5 高速点火方式特有の問題と解決策 65
6.2.研究目的 66

6.3.実験 66
6.3.1 α線誘導電荷量分布測定と電流アンプを用いたドリフト速度測定 67
6.3.2 激光 XII 号における X 線・DD 中性子応答関数測定体系 67
6.4 実験結果 68
6.4.1 ドリフト速度測定 68
6.4.2 高強度 X 線に対する応答測定結果 69
6.4.3 DD 中性子に対する応答関数 70
6.4.4 高強度 X 線下における DD 中性子信号の S/N 試算 72
6.5 結論 73
第 7 章 総括 77
本研究に関連して発表した論文・講演 79
謝辞 82

Appendix A ダイヤモンド放射線検出器の評価方法
A.1 誘導電荷量と Shocley Ramo の式 A-1
A.2 誘導電荷による信号検出の原理とキャリア輸送特性評価の方法 A-1
A.2.1 電荷収集効率 A-1
A.2.2 α線誘導電荷量分布測定 A-1
A.2.3 電荷収集距離 A-3
A.2.4 $\mu\tau$ 積 A-3
Appendix B 不純物・合成方法によるダイヤモンドの分類と電荷キャリア輸送特性
B.1 不純物による分類 B-1
B.2 合成法による分類と電荷キャリア輸送特性 B-1
B.2.1. 天然ダイヤモンド B-2
B.2.2 高圧高温合成(HPHT)ダイヤモンド B-2
B.2.3. 化学気相合成(CVD)ダイヤモンド B-3
Appendix C マイクロ波プラズマ CVD 法によるダイヤモンド成長原理と影響を与える因子
C.1 化学気相成長法 C-1
C.2 成長に影響を与える因子 C-2
C.2.1 基板温度 C-2
C.2.2 メタン濃度 C-2
C.2.3 成長面 C-2
C.2.4 オフ角制御技によるステップフロー成長の促進 C-2
C.2.5 αパラメータ制御 C-3

図表目録

図 1. 1 ダイヤモンド放射線検出器動作原理 3
図 1. 2　Lift-off 法による単結晶 CVD ダイヤモンド自立膜作製プロセス 4
図 1. 3 ダイヤモンド放射線検出器 高温下でのα線応答関数 6
図 1. 4 北大製試料α線誘導電荷量分布測定例 7
図 1. 5 転位、窒素不純物のある領域での電荷収集効率の低下 8
図 1. 6 単結晶 CVD ダイヤモンド自立膜の表面形態 8
図 1. 7SIMS 測定結果 9

表 1. 1 ダイヤモンド放射線検出器の特長 1
表 1. 2 CVD ダイヤモンド検出器電荷キャリア輸送特性 5

図 2. 1　マイクロ波プラズマ CVD 装置　ASTeX AX5250 試料導入部 14
図 2. 2　窒素リーク低減後　Hu08_08 の微分干渉顕微鏡像 19
図 2. 3　窒素低減試料 CL 測定結果 19
図 2. 4　窒素低減試料 Hu21_01　IV 測定結果例 20
図 2. 5　窒素低減試料 Hu21_01　CV 測定結果 20
図 2. 6　窒素汚染低減試料 Hu21_01　α線誘導電荷量分布測定例 21
図 2. 7　窒素低減試料 Hu21_01 活性準位評価 22
図 2. 8 Hu21_01 キャリア濃度プロット 23
図 2. 9　実験から予測される電荷捕獲モデル 23
図 2. 10　基板温度 850℃で成長させた試料 Hu02_08 微分干渉像 25
図 2. 11　カソードルミネッセンススペクトル例 25
図 2. 12　成長温度 850℃試料 Hu02_08 のα線誘導電荷量分布測定例 26
図 2. 13　基板温度 900℃で成長させた試料の表面形態例 27
図 2. 14　α線誘導電荷量分布測定例 28
図 2. 15　　Hu16_03 電荷収集効率－電場強度依存性 28
図 2. 16　低メタン濃度成長、成長温度上昇による電荷キャリア輸送特性の改善 30

表 2. 1　カソードルミネッセンスにおける代表的な発光 17
表 2. 2　窒素低減試料成長条件 18
表 2. 3　低メタン濃度試料　成長条件 24
表 2. 4　低メタン濃度、成長温度 900 度で成長させた試料の合成条件 27
表 2. 5　低メタン濃度試料の電荷収集効率・エネルギー分解能 29

図 3. 1 エネルギー分解能の定義 32
図 3. 2 実験で得られた ε 値と文献値の比較 36
図 3. 3 α 線応答関数とパルサー信号による回路ノイズ評価 37
図 3. 4　実験で評価した Fano 因子と文献値との比較 38

表 3. 1　Fano 因子文献値との比較 34
表 3. 2 電荷収集効率から校正した ε 値 37
表 3. 3　Fano 因子評価結果 38

図 4. 1　α 線、$^{12}C(n, \alpha)^{9}Be$ 反応による電荷キャリア収集過程の違い 42
図 4. 2 FNS 80 度ビームラインにおける 14MeV 中性子計測体系 44
図 4. 3 HU16_03　応答関数例 45
図 4. 4 HU16_03 検出器で測定したビーム軸から 95、100、110 度における $^{12}C(n, \alpha)^{9}Be$ 反応 45
図 4. 5 E6#1 ビーム軸から 95° に設置した場合の 14 MeV 応答関数例 48

表 4. 1 応答関数評価に使用した単結晶 CVD ダイヤモンドの電荷キャリア輸送特性 43
表 4. 2　応答関数取得条件と各条件でのエネルギー分解能 46

図 5. 1 天然ダイヤモンド放射線検出器で観測した加熱に伴うイオン温度履歴[5] 53
図 5. 2 3MeV プロトン照射試験測定体系 54
図 5. 3 計数率―電荷収集効率依存性 56
図 5. 4 入射粒子数―電荷収集効率依存性 56
図 5. 5 各点でのパルス波高分布形状 57
図 5. 6 Si 表面障壁型検出器とダイヤモンド検出器の波高減衰比較 57
図 5. 7 Hu11_06　α 線誘導電荷量分布測定例 58
図 5. 8 数百 keV プロトンに対する検出器応答関数例 59
図 5. 9 入射プロトンのエネルギーに対するピーク ch のシフト 59

図 6. 1　間接照射方式と直接照射方式の比較 62
図 6. 2　高速点火方式の概要 63
図 6. 3 中性子 burn タイムと burn ヒストリの概要 64
図 6. 4 高強度 X 線によるシンチレータ出力信号例 66
図 6. 5 DD 中性子応答関数評価体系 68
図 6. 6 単結晶 CVD ダイヤモンド電流パルス波形例 69
図 6. 7 LFEX レーザーによる CD シェル照射時 X 線応答関数例 70

図 6. 8 CD、CH シェル爆縮に対するダイヤモンド検出器応答関数例 71
図 6. 9 DD 中性子による誘導電荷量の実測値と計算値の比較 71
図 6. 10　高強度 X 線に対する検出器波高値と予測される DD 信号の S/N 72

表 6. 1 高速中性子の計測手法とデコンボリューション後の時間分解能 65

図 A. 1 α線誘導電荷量分布測定体系 A-2

図 B. 1 HPHT ダイヤモンドによるα線スペクトル B-3
図 B. 2 単結晶、多結晶ダイヤモンドのエネルギースペクトル比較.....B-4

表 B. 1 ホウ素・窒素不純物量によるダイヤモンドの分類 B-1

図 C. 1 ステップ近傍の気相成長機構 C-1
図 C. 2 オフ角制御による異常成長の抑制.....C-3

第 1 章　序論

本章ではダイヤモンド放射線検出器の特長、応用が期待されている分野の例として核融合プラズマ診断用 DT 中性子エネルギースペクトロメータについて説明したのち、既存ダイヤモンド放射線検出器の課題について述べる。次に先行研究から、ダイヤモンド本来の持つ特性を引き出し過酷環境下で動作可能な検出器を実現するために最重要である電子の電荷キャリア輸送特性改善方針を提案する。最後に本論文の構成について述べる。

1.1 研究背景

1.1.1 ダイヤモンド放射線検出器の特長

ダイヤモンド放射線検出器は 5.5 eV のワイドギャップによる高温動作[1,2]、低漏れ電流、高い絶縁破壊電界強度、可視光不感等の特長を持つ[3]。また、共有結合による優れた中性子耐性($>10^{14}$ fast neutron/cm^2)[4]を有し、高移動度・高飽和ドリフト速度による高速応答性[5,6]も持つ。これらの特長からダイヤモンド放射線検出器は高温・高放射線場等の過酷環境で使用可能な放射線検出器として応用が期待されている。表 1.1 には放射線検出器に関わるダイヤモンド、シリコンの物性値をまとめた。

過酷環境での放射線計測例として核融合プラズマからの DT 中性子計測がある。ダイヤモンド放射線検出器は上記の特長に加え閾値を持った高速中性子との $^{12}C(n,\alpha)^{9}Be$ 反応を利用することでプラズマイオン温度評価用の DT 中性子エネルギースペクトロメータ[7, 8]としての応用が期待されている。

表 1. 1 ダイヤモンド放射線検出器の特長

特性	diamond	Si
バンドギャップ(eV)	5.5	1.12
移動度(cm/V・s)　電子	4500[5]	
正孔	3800[5]	
絶縁耐圧(V/cm)	10^7	$3x10^5$
抵抗(Ω)	$>10^{11}$	2.3x105
密度(g/cm^3)	3.52	2.33
原子番号	6	14
比誘電率	5.7	11.9
原子のはじき出しに必要なエネルギー (eV/atom)	43	13-20
ε 値(eV)	11.8-13.1[9, 10, 11]	3.6

1.1.2 ダイヤモンド放射線検出器による DT 中性子エネルギースペクトロメータ

核反応により発生した中性子はプラズマとほとんど相互作用せずにプラズマの外へ飛び出す。発生する中性子のエネルギーは核反応以前のイオンの並進速度を反映したものとなる。イオン温度 Ti が等温マクスウェル分布の場合その半値幅は近似的に

$$\Delta \mathrm{E\ (keV)} \cong 177\sqrt{T_i(keV)} \quad DT\ neutron$$

であらわされ[12]、生成した中性子のエネルギーを測定することによりプラズマのイオン温度計測が可能となる。単結晶ダイヤモンド放射線検出器では閾値を持った ^{12}C(n, α)^{9}Be 反応を利用する。

$$^{12}C + n(14.1MeV) \rightarrow \quad ^{9}Be + {}^{4}_{2}He$$

この反応は 5.7MeV の吸熱反応であり、8.4MeV に中性子のエネルギー拡がりを反映した α 粒子と ^{9}Be による核反応ピークが検出される。また、2MeV にわたって競合する核反応が無いため 50keV までのプラズマイオン温度計測が可能である[13]。また、ダイヤモンド放射線検出器は測定素子が数 mm 角と小さく、複雑な機構を要さないため空間制限のある核融合装置においても設置が容易であり、アレイ化により従来装置よりも小さな体積で空間分布計測を行うことも将来的に見込める。

Joint European Tours (JET) 等の核融合装置においては商用のシリコン表面障壁半導体検出器の使用が試みられてきた。ところが、10^{11}-10^{12} neutrons/cm^2 の中性子照射により波高値が低下することが報告されている[14]。International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER)ではさらに高い中性子フルエンス下での動作が求められる。磁場閉じ込め核融合装置では一旦運転が行われると検出器の交換を頻繁に行うことができないため、放射線耐性に優れた検出器が必要とされる。ダイヤモンドはシリコンと比較し、低原子番号に伴い核反応生成物の原子番号が低く、原子のはじき出しに必要なエネルギーが小さく、吸収線量も少ない。これらの特長からシリコンの 100 倍以上の中性子耐性を有する。Pillon らによるとダイヤモンド放射線検出器は 2 x 10^{14} neutrons/cm^2 の 14MeV 中性子照射に対してもエネルギースペクトル形状が変化しないことが確認されている[15]。この値は検出器設置位置における ITER 運転の 1 年分以上の中性子フルエンスに相当する。またダイヤモンド検出器は可視光不感であり、シリコンよりも低い原子番号により γ 線感度が低いという特長も併せ持つ。

上記のようにダイヤモンド放射線検出器は 14MeV 中性子エネルギースペクトロメータとして理想的な特長をもつ。ITER における使用を想定した場合、^{12}C(n, α)^{9}Be 反応ピーク分解能:2%台、動作温度 150 度、中性子フラックス: 10^{9} neutron/cm^2・s 以上、検出効率:1x10^{-3} count/(neutron/cm^2)が求められる。^{12}C(n, α)^{9}Be 反応ピーク分解能についてはこれまでにロシア製天然ダイヤモンドによって最高で 2.15%の分解能が達成されている。しかしながら、天

然ダイヤモンド放射線検出器のうち、エネルギースペクトロメータとしての要件を満たすものは数例しか報告されていない[16]。これを解決するため人工ダイヤモンドを用いた放射線検出器開発が進められてきた。

1.1.3 ダイヤモンド放射線検出器動作原理

ダイヤモンド放射線検出器は半導体検出器に分類される。使用されるもののほとんどが不純物の少ないイントリンシックダイヤモンドであり、動作原理は固体電離箱と同様である。図 1.1 に動作原理の概要を示す。放射線によりエネルギーが付与されると電子・正孔対が生成、電極間にかかる電界により電荷キャリアが流動する。これを打ち消す形で発生する誘導電流を信号として観測する。電流パルスの観測により ToF 計測を、エネルギー付与に比例した誘導電荷量分布測定によるエネルギー分析が可能である。検出器構造はダイヤモンドを電極で挟み込んだプラナ構造が一般的である。そのきわめて単純な構造から、移動度、キャリア寿命等の電荷キャリア輸送特性が検出器特性を決定する。

結晶中に電荷捕獲準位が存在すると電子・正孔が捕獲される。これにより出力信号の低下や結晶内での分極効果による内部電界の低下等が引き起こされる。DT 中性子エネルギースペクトロメータを想定した場合、検出効率と中性子フラックスから数～10kcps の高計数率下で動作が求められる。このためわずかな電荷捕獲が検出器の安定動作に対して致命的となる。また、電荷捕獲準位の存在により高温環境動作において漏れ電流の増加も引き起こされる。これらの問題を解決し過酷環境下で安定動作可能な検出器の実現には欠陥・不純物の極めて少ない理想的なダイヤモンドが必要とされる。

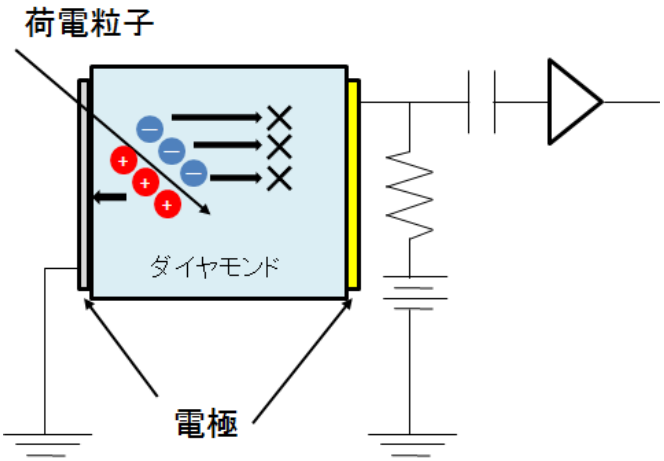

図 1. 1 ダイヤモンド放射線検出器動作原理

1.1.4 単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器と作製方法

前節で述べたように過酷環境で動作する検出器の実現には欠陥・不純物の極めて少ない理想的な単結晶ダイヤモンドが必要とされる。近年では結晶成長技術の向上に伴い、化学気相成長法(CVD: Chemical Vapor Deposition)、とりわけ不純物の少なさから無電極放電が可能なマイクロ波プラズマ CVD 法で得られたダイヤモンドの使用が主流となっている。ダイヤモンドの分類、合成方法、キャリア輸送特性については Appendix A、B にまとめた。

単結晶 CVD ダイヤモンドは単結晶ダイヤモンド基板上へのホモエピタキシャル成長により得られる。放射線検出器用途においてはノンドープダイヤモンド成長層を自立膜として使用することが多く、下地基板から成長層を自立膜とする方法には一般的にレーザー切断が用いられる。この方法は成長層をレーザーにより切断・機械研磨することで所望の厚みを得る[17]。特別な前処理を必要とせず、ダイヤモンドの種類によらず適用できる。しかしながら、100 マイクロメートルオーダの切りしろを要する。成長率が数 μ m/h 程度の気相成長においてこれは大きな損失である。

一方、北海道大学では産総研関西センター協力のもとリフトオフ法によって得られたノンドープダイヤモンドの単結晶 CVD 成長層を自立膜とし放射線検出器開発を行ってきた。この方法はダイヤモンド基板に対する炭素イオン注入によるグラファイト層形成、電解エッチングの組み合わせにより成長層の自立膜を得る[18, 19]。図 1.2 にプロセスを示す。この方法は切りしろが約 2μm と成長層のほとんどを利用できる非常に生産性の高い方法である。さらに切断・研磨では作製の困難な薄い自立膜が得られる。短所としては、炭素イオン注入を行うため、下地基板の照射損傷が成長層へ引き継がれる懸念がある。

また、導電性ダイヤモンド上にノンドープダイヤモンドを成長させ検出器として応用するレイヤータイプの検出器が Kaneko、Teraji らによって報告されている[20]。ローマ大学はこの方法を用いて DT 中性子エネルギースペクトロメータ開発を行っている[15]。

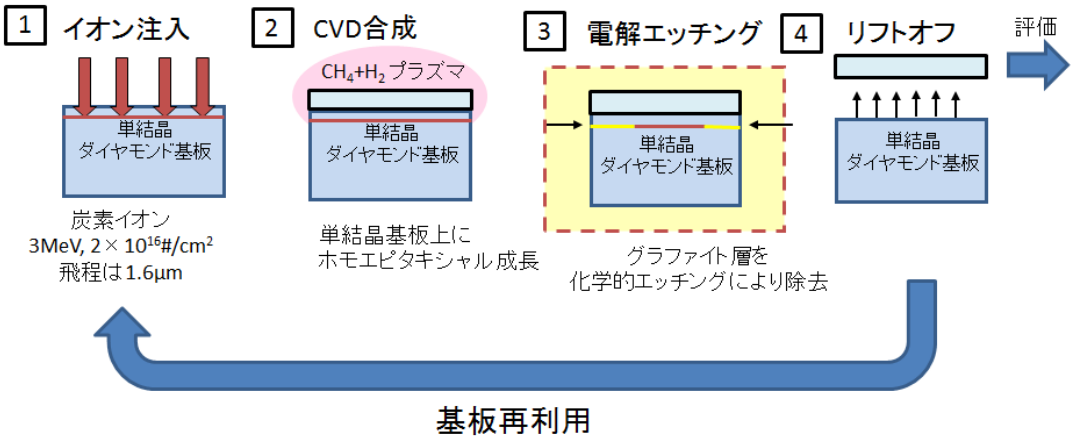

図 1. 2　Lift-off 法による単結晶 CVD ダイヤモンド自立膜作製プロセス

1.1.5 既存単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器の電荷キャリア輸送特性

表 1.2 には先行研究で報告されている CVD ダイヤモンド検出器による電荷収集効率、エネルギー分解能評価結果をまとめた。多結晶 CVD ダイヤモンドは粒界における電荷捕獲により 20-30%しか得られておらず、エネルギー計測に適さないことがわかる[21, 22]。単結晶 CVD ダイヤモンド自立膜の電荷キャリア輸送特性については、CERN 、CEA、Upsala 大学の研究グループから 英国 Element Six 社試料について多く報告がなされている[11, 23, 24]。近年、シンガポールの IIa tech 社からもキャリア輸送特性に優れた単結晶 CVD ダイヤモンドについて報告がなされている[25]。ローマ大学は Ib 基板上に成長させたレイヤータイプの CVD ダイヤモンド[26]について、北大・産総研グループはリフトオフ法により得られた単結晶 CVD ダイヤモンド自立膜の電荷キャリア輸送特性についてこれまでに報告してきた[27, 28]。

これらの論文では~100%の電荷収集効率を持つと記載するものも多いが、その多くは正孔を長距離走行させ、ダイヤモンドの ε 値を 13eV として計算している。一方、ダイヤモンドでは電子・正孔でキャリアの輸送特性が異なるにも関わらず、電子を長距離走行させた場合の電荷収集効率・エネルギー分解能については Sato, Kaneko, Tsubouchi を除きほとんどの論文が示していない[24, 27, 28]。さらに、エネルギー分解能についても多くは 1－2%台と半導体検出器としては低く、電荷キャリア輸送特性に改善の余地があることがわかる。

表 1. 2 CVD ダイヤモンド検出器電荷キャリア輸送特性

	結晶の作製元	著者 (出版年)	種類	厚さ (μm)	正孔		電子		備考	引用文献
					CCE (%)	ΔE/E (%)	CCE (%)	ΔE/E (%)		
1	CEA	A. Brambilla (2002)	pCVD	150	40					Ref.21
2	Shanghai Univ.	Zhang (2004)	pCVD	300	41	4.3				Ref.22
3	Sumitomo	J. H. Kaneko (2003)	scCVD	700	-	0.4	-	-		Ref.29
4	Element Six	Schmid (2004)	scCVD	500	95	0.4	100	-	Fig.2(b) より	Ref.17
5	Element Six	M. Pomorski (2006)	scCVD	300	~100	0.31	-	-		Ref.11
6	Cividec (Element Six)	F Schirru (2014)	scCVD	500	~100	1.9	-	-		Ref.23
7	Element Six	F Schirru (2014)	scCVD	90	~100	1.2	~			Ref.23
8	Element Six	Y. Sato (2014)	scCVD	203	97	0.48	97	0.49		Ref.24
9	IIa tech	M. Pomorski (2015)	scCVD	890	-	0.8				Ref.25
10	Rome Univ.	A. Balducci (2005)	scCVD Layer type	110	~100	1.1				Ref.26
11	AIST	Tsubouchi (2012)	scCVD Lift-off	95	97	0.7	89	4.4		Ref.27
12	Hokkaido Univ.	J. H. Kaneko (2012)	scCVD Lift-off	44	98	3.8	92	3.7		Ref.28

1.1.6 電荷捕獲の検出器動作への影響

先に述べた数パーセントの電荷捕獲は高放射線場、高温等の過酷環境では検出器動作の安定性に致命的となる。わずかな電荷捕獲準位が存在する場合、数 kcps～数十 kcps の高計数率下ではポラリゼーションが短時間で発生し検出器の安定動作が困難になる。さらに、高温環境下では温度上昇に伴う捕獲準位の活性化による漏れ電流の増加が問題となる。

ダイヤモンドは 5.5eV のバンドギャップから 500 度以上の動作が期待されているが、Tsubota らの報告によると放射線計測用途として最も広く用いられている Element Six 社製エレクトロニクスグレードダイヤモンドでは 100 度以上で困難となることが報告されている[2]。図 1.3 には北大試料、Element Six 社製試料による α 線誘導電荷量分布測定例の温度依存性を示す。100 度において電子・正孔ともにスペクトルが観測不能になっている。ITER を想定した場合、既存検出器ではエネルギースペクトル計測は困難であることがわかる。

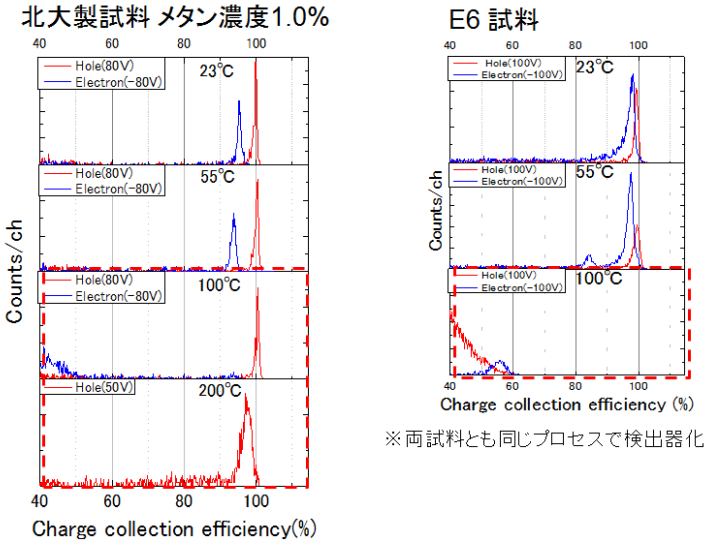

図 1. 3 ダイヤモンド放射線検出器 高温下での α 線応答関数[2]

Element Six 社製試料　100 度ではスペクトルが観測できなくなっている

1.1.7 北大でリフトオフ法により作製した単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器の現状

北海道大学では 2006 年より産総研関西センター協力のもとリフトオフ法を用いた単結晶 CVD ダイヤモンド自立膜の作製を行っている。先行研究より単結晶 CVD ダイヤモンドの結晶品質は下地基板、メタン濃度や基板温度等の成長条件に大きく依存することが知られている。これまでの問題点として Ib 基板を用いた際に成長層と下地基板の格子不整合による応力割れ、成長時の異常成長の発生、基板の再利用といった問題があったが、それぞれ IIa 基板の使用[28]。基板に対するオフ角処理[30]、そしてリフトオフ法[18]の採用によりこれらをほぼ解決してきた。これらの電荷キャリア輸送特性については今野がオフ角処理済み IIa 基板上使用による電子電荷収集効率の大幅な改善を[31]、佐竹らは合成時のメタン

濃度・マイクロ波出力密度が電荷キャリア輸送特性に与える影響についてそれぞれ報告し、10%から 1%までメタン濃度を変化させ、メタン濃度低下に伴い電荷収集効率が改善することを示した[32]。これは低メタン濃度成長によるダイヤモンドの結晶性向上結果とも一致している。しかしながら核融合プラズマ診断に応用するには電子の電荷収集効率をさらに改善する必要があった。

図 1.4 にはリフトオフ法で得られた試料のα線誘導電荷量分布測定結果例を示す。IIa 基板を使用し、メタン濃度 1.0%で作製した試料では正孔については膜厚～100μm の試料で～100%の電荷収集効率が得られている。しかし、電子に対しては 3-5%の電荷捕獲があった。電子に対する電荷捕獲準位を形成する要因としては窒素不純物、転位に代表される構造欠陥、点欠陥が考えられていた。これまでに窒素不純物、転位の存在が電荷キャリア輸送特性劣化要因となることが Lohstroh らによって定性的に示されている[33]。図 1.5 には ElementSix 社製単結晶 CVD ダイヤモンドのプロトン照射による電荷収集効率の 2 次元マッピングを示す。転位、窒素不純物を含む領域では電荷収集効率が低下しているのがわかる。

一方、北大製試料においてもこれまでに結晶中に転位、窒素不純物、空孔の存在があることが定性的に示されていた。図 1.6 には北大製試料の微分干渉顕微鏡像並びに、レーザー顕微鏡像を示す。ステップバンチングと呼ばれる窒素不純物に起因する表面形態が観測されている。図 1.7 には 2 次イオン質量分析法(SIMS)測定結果を示す。測定下限である 10^{16} #/cm^{3}以下であるもののステップバンチングが観測されたことから SIMS 測定下限以下の窒素不純物が残留していることが推定される。図 1.8 には同試料のカソードルミネッセンス測定例を示す。400-600nm において転位に関連した Band-A 発光が、500-700nm においては窒素に関連した複合欠陥による発光が観測されている。さらに、575nm において NV センターと呼ばれる結晶内の窒素―空孔由来の発光が見られておりこれらの低減が必要であった。

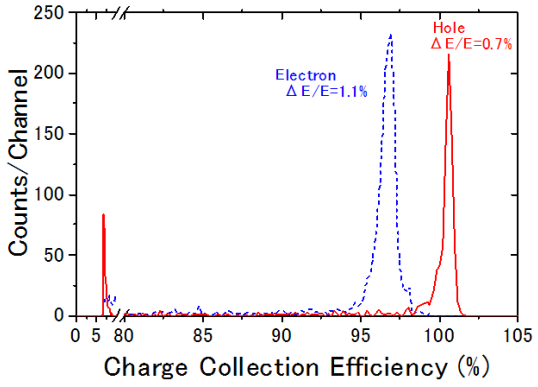

図 1. 4 北大製試料α線誘導電荷量分布測定例

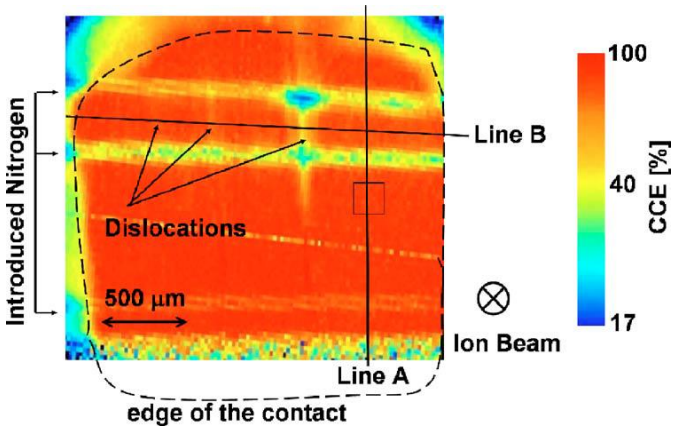

図 1. 5 転位、窒素不純物のある領域での電荷収集効率の低下[33]

転位(dislocation)、窒素(Nitrogen)を含む領域で電荷周有効率の著しい低下がみられる。

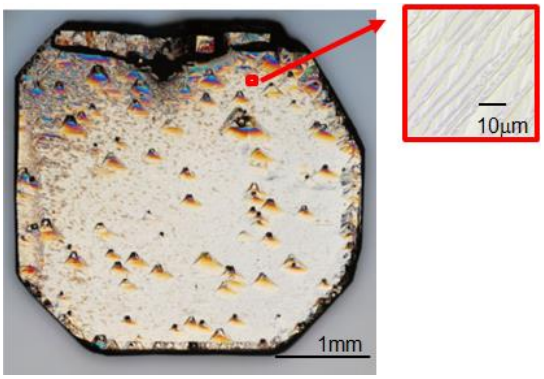

図 1. 6 単結晶 CVD ダイヤモンド自立膜の表面形態

a)微分干渉顕微鏡像、b)レーザー顕微鏡像

SIMS 測定下限以下の不純物量にも関わらず

窒素起因のステップバンチングが観測された。

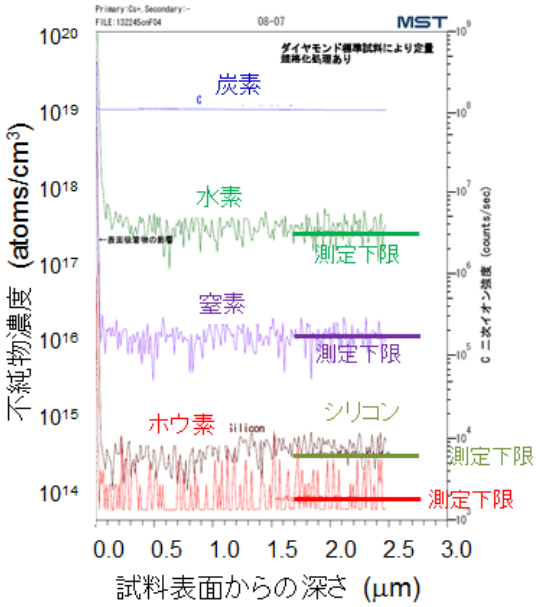

図 1. 7SIMS 測定結果

SIMS から得られた不純物含有量は

水素 ＜1ppm，窒素 ＜0.1ppm，ホウ素:約 1ppb であった。

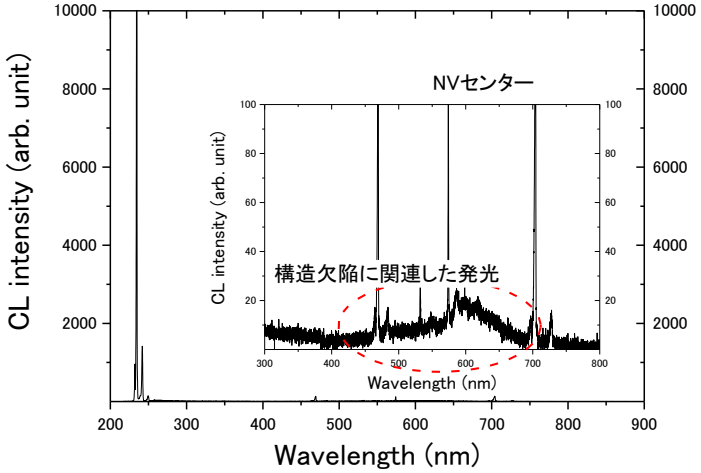

図 1.8 北大製単結晶 CVD ダイヤモンド自立膜 CL スペクトル

400－700nm において転位、窒素に関連した複合欠陥による発光がわずかに見られていた。

また、575nm において NV(窒素-空孔)ペアによる発光が観測されている。

1.2 研究目的

前節で述べたように過酷環境下で動作するダイヤモンド放射線検出器の実現には電子に対する電荷捕獲を徹底的に低減する必要がある。そこで、本研究では生産性の高いリフトオフ法における単結晶 CVD ダイヤモンドの成長条件探査によりこの改善を試みた。さらに、作製した試料を放射線検出器とし各種プラズマ診断を念頭にした応答関数評価を行うことでダイヤモンド放射線検出器の核融合プラズマ診断装置への適用可能性を検討した。

1.3 研究手法

電荷捕獲低減のため先行研究より報告されていた(1)窒素不純物、(2)構造欠陥・点欠陥の低減を目指した。(1)については装置試料導入口の O リングがリーク原因であったため、導入口をフルメタルシールに交換することで成長中の窒素汚染低減を図った。(2)構造欠陥・点欠陥については合成時のメタン濃度を低下させることで結晶性の向上できることが知られている。検出器用途の厚膜単結晶 CVD ダイヤモンドでは数%のメタン濃度が用いられることが多いが、本研究ではより高純度・高品質化を目指し、装置の制御下限であるメタン濃度 0.20-0.12%での合成を行い、各試料の電荷キャリア輸送特性評価を行った。さらに電荷収集効率を改善した試料を用いて各種核融合プラズマ診断応用を念頭に置いた中性子、荷電粒子の応答関数評価を行った。

1.4 本論文の構成

本論文は全 7 章で構成される。

第 2 章では電子電荷キャリア輸送特性改善のための単結晶 CVD ダイヤモンド合成の取り組みについて述べる。合成時の窒素汚染低減、0.2% 近傍の低メタン濃度合成、成長温度上昇による電子電荷キャリア輸送特性改善結果を報告する。

第 3 章では第 2 章で得られた試料に対して電子正孔対生成平均エネルギー、エネルギー分解能理論限界値と実測値の補正係数である Fano 因子の評価結果を報告する。

第 4 章では核融合プラズマイオン温度計測のための中性子エネルギースペクトロメータ応用を目指した 14MeV 中性子に対する応答関数評価試験の結果について述べる。プラズマイオン温度を反映した $^{12}C(n, \alpha)\ ^{9}Be$ 反応に対応したピークエネルギー分解能改善について述べる。

第 5 章では荷電交換中性粒子モニタとしての応用を念頭にした数百 keV~3MeV プロトン照射試験の結果について報告する。計数率に対する電荷収集効率の変化とその原因、数十 keV の低エネルギー荷電粒子を計測する際の問題点について報告する。

第 6 章では高速点火方式慣性核融合における中性子 burn ヒストリモニタとしての単結晶 CVD ダイヤモンド検出器の適用可能性を高強度 X 線、DD 中性子応答関数評価により実験的に検証した結果を報告する。

第 7 章では研究全体の結論と今後の展望について述べる。

第 1 章の引用文献

[1] Y. Tanimura, J. Kaneko, M. Katagiri, Y. Ikeda, T. Nishitani, H. Takeuchi, and T. Iida: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 443 (2000) 325.

[2] M. Tsubota, J. H. Kaneko, D. Miyazaki, T. Shimaoka, K. Ueno, T. Tadokoro, A. Chayahara, H. Watanabe, Y. Kato, S. Shikata, and H. Kuwabara, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 789 (2015) 50.

[3] D. R. Kania, M. I. Landstrass, M. A. Plano, L. S. Pan, and S. Han, Diamond and Related Materials 2 (1993) 1012.

[4] A. Alekseyev, V. Amosov, Yu. Kaschuck, A. Krasilnikov, D. Portnov, and S. Tugarinov, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 476 (2002) 516.

[5] J. Isberg, J. Hammersberg, E. Johansson, T. Wikström, D. J. Twitchen, A. J. Whitehead, S. E. Coe, and G. A. Scarsbrook, Science 297 (2002) 1670.

[6] C. Canali, E. Gatt, S. F. Kozlov, P. F. Manfredi, C. Manfredotti, F. Nava, and A. Quirini, Nuclear Instruments and Methods 160 (1979) 73.

[7] A. V. Krasilnikov, V. N. Amosov, and Yu. A. Kaschuck, IEEE Transactions on Nuclear Science NS-22 (1975) 160.

[8] A. V. Krasilnikov, S. S. Medley, N. N. Gorelenkov, R. V. Budny, O. V. Ignatyev, Yu A. Kaschuck, M. P. Petrovand, and A. L. Roquemore, Review of Scientific Instruments 70 (1999)1107.

[9] S. F. Kozlov, R. Stuck, M. Hage-Ali, and P. Siffert, IEEE Transaction on Nuclear Science NS-22 (1975) 160.

[10] M. Gabrysch, E. Marklund, J. Hajdu, D. J. Twichen, J. Rudati, A. M. Linderberg, C. Caleman, R. W. Falcone, T. Tschentscher, K. Moffat, P. H. Bucksbaum, J. Als-Nielsen, A. J. Nelson, D. P. Siddons, P. J. Emma, P. Krejcik, H. Schlarb, J. Arthur, S. Brennan, J. Hasting, J. Isberg, Journal of Applied Physics 103 (2008) 064909

[11]M. Pomorski, E. Berdermann, W. de Boer, A. Fugeri, C. Sander, J. Morse, Diamond and Related Materials 16 (2007) 1066

[12] H. Brysk, Plasma Physics 15 (1973) 611

[13] J. Kaneko, Y. Ikeda, T. Nishitani, and M. Katagiri, Review of Scientific Instruments 70 (1999) 1100.

[14] G. Dearnaley and A. B. Whitehead, Nuclear Instruments and Methods 12 (1961) 205.

[15] M. Pillon, M. Angelone, G. Aielli, S. Almaviva, M. Marinelli, E. Milani, G. Prestopino, A. Tucciarone, C. Verona, and G. Verona-Rinati, Journal of Applied Physics 104 (2008) 054513.

[16] A. V. Krasilnikov, J. Kaneko, M. Isobe, F. Maekawa, and T. Nishitani, Review of

Scientific Instruments 68 (1997)1720.
[17] J. Isberg, J. Hammersberg, H. Bernhoff, D.J. Twitchen, A.J. Whitehead, Diamond and Related Materials 13 (2004) 872.
[18] Y. Mokuno, A. Chayahara, H. Yamada, Diamond and Related Materials 17 (2008) 415.
[19]N. R. Parikh, J. D. Hunn, E. McGucken, M. L. Swanson, C. W. White, R. A. Rudder, D.P. Malta, J. B. Posthill, R. J. Markunas, Applied Physics Letters 61 (1992) 28.
[20] J. H. Kankeo, T. Teraji, Y. Hirai, M. Shiraishi, S. Kawamura, S. Yoshizaki, T. Ito, and T. Sawamura, Review of Scientific Instruments 75 (2004) 3581.
[21] A. Brambilla, D. Tromson, P. Bergonzo, C. Mer, and F. Foulon, IEEE Transactions on Nuclear Science 49 (2002) 277.
[22] Z. Minglong, X. Yiben, W. Linjun, S. Hujiang, and G. Beibei, Solid State Communication 130 (2004) 551.
[23] F. Schirru, D. Chokheli, M. Kis, Diamond and Related Materials 49 (2014) 96.
[24] Y. Sato, H. Murakami, T. Shimaoka, M. Tsubota, and J. H. Kaneko, EuroPhysics Letters 108 (2014) 42001.
[25]M. Pomorski, C. Delfaure, N. Vaissiere, H. Bensalah, J. Barjon, M.-A. Pinault-Thaury, D. Tromson, P. Bergonzo, Phys. Status Solidi A, 1–6 (2015)
[26] A. Balducci, M. Marinelli, E. Milani, M.E. Morgada, G. Pucella, M. Scoccia, A. Tucciarone, G. Verona-Rinati, M. Angelone, M. Pillon, R. Potenza, C. Tuve, Diamond & Related Materials 15 (2006) 292.
[27] N. Tsubouchi, Y. Mokuno, A. Kakimoto, Y. Konno, H. Yamada, A. Chayahara, J. H. Kaneko, F. Fujita, S. Shikata Diamond and Related Materials 24 (2012) 74.
[28] J. H. Kaneko, F. Fujita, Y. Konno, T. Gotoh, N. Nishi, H. Watanabe, A. Chayahara, H. Umezawa, N. Tsubouchi, S. Shikata, and M. Isobe, Diamond and Related Materials 26 (2012) 45.
[29] J. H. Kaneko, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 505 (2003) 187.
[30] N. Tokuda, H. Umezawa, K. Yamabe, H. Ohkushi, S. Yamasaki, Japan Journal of Applied Physics 46 (2007) 1469.
[31] 佐竹良太　「*核融合プラズマ計測への応用を目指した CVD 単結晶ダイヤモンドの合成条件探査と評価*」北海道大学修士論文、2013 年
[32] 今野雄太　「*オフ角制御した高圧高温合成 IIa 型基板上への CVD 単結晶ダイヤモンドの合成と評価*」北海道大学修士論文、2011 年
[33] A. Lohstroh, P. J. Sellin, S. G. Wang, A. W. Davies, J. Parkin, R. W. Martin, and P. R. Edwards, Applied Physics Letters 90 (2007) 102111.

第 2 章　単結晶 CVD ダイヤモンド電子電荷キャリア輸送特性向上への取り組み

第 1 章で述べたように過酷環境下で動作するダイヤモンド放射線検出器の実現には極めて欠陥・不純物の少ない理想的な単結晶ダイヤモンドが必要となる。本研究では生産性に優れたリフトオフ法により高い電荷キャリア輸送特性を持つ単結晶 CVD ダイヤモンド自立膜の作製を試みた。本章では窒素不純物、点欠陥・構造欠陥低減による電子電荷収集効率改善について報告する。

2.1 研究目的

研究背景については第 1 章で述べたとおりである。過酷環境下での安定動作には電子電荷捕獲を徹底的に低減することが最重要となる。そこで本章では単結晶 CVD ダイヤモンド気相成長時の窒素不純物・欠陥低減による電子電荷収集効率改善を試みた。

2.2 実験

2.2.1 マイクロ波プラズマ CVD 法による単結晶ダイヤモンド成長

マイクロ波プラズマ CVD 装置(AX5250; ASTeX, 2.45GHz、定格出力 5kW)により約 3 度のオフ角をつけた 5 mm×5 mm 角の炭素イオン注入済み高圧高温(HP/HT)合成 IIa 型単結晶ダイヤモンド基板上にダイヤモンドをホモエピタキシャル成長させた。図 2.1a)にはマイクロ波プラズマ CVD 装置試料導入口を示す。これまでに O リング回りからの大気リークが発生し、これが成長時の窒素汚染の原因となっていた。そこで、図 2.1b)に示すようなフルメタルシールの合成チャンバーへ交換し、窒素汚染低減を試みた。到達真空度は 10^{-6} Torr から 10^{-7}Torr へ一桁改善した。直径 1 インチのモリブデンホルダーにダイヤモンド基板を設置、基板温度を固定し、フィードバック制御により合成時の基板温度が一定となるようマイクロ波出力を調整した。基板温度の計測は赤外放射温度計(KTL ZERO; LEC)を用いてサファイヤビューポート越しに測定した。マイクロ波出力は 600-1100W 程度であった。

マイクロ波プラズマ CVD 法ではキャリアガスに水素、反応ガスにメタンが広く用いられる。成長層表面を覆う水素結合が気相中の水素原子と反応、水素原子が引き抜かれダングリングボンドを形成、CH_3 ラジカルが結合しダイヤモンドが成長する。この時 sp3, sp2 結合が混在するが原子状水素がグラファイトをダイヤモンドよりも数十倍高速にエッチングするため、結果としてダイヤモンドのみが選択的に成長できると考えられている。ダイヤモンドの気相成長においては結晶基板の品質、原料ガス濃度、マイクロ波出力密度等が成長に影響を与える重要な因子であることが知られている。これらの詳細ついては Appendix C にまとめた。

結晶性の改善については先行研究により原料ガスであるメタン濃度を低くし[1]、成長温度を高く設定することが有効であることが知られている[2]。これはステップフロー成長の促進や原子状水素によるエッチング効果を高め非ダイヤモンド相の除去や不純物取り込み

抑制によるものと考えられている。

これまでに当研究グループでは基板温度 850 度、メタン濃度 1.0%で気相成長を行ってきたが、電子に対する電荷収集効率に改善の余地があった。

本研究では

(1)窒素汚染の低減

(2)低メタン濃度成長

(3)成長温度上昇

の 3 つの条件でダイヤモンドの気相成長を行い、電子電荷収集効率改善を試みた。

(1)については合成チャンバー交換による窒素汚染有無の比較を行うため、従来通りメタン濃度 1.0%、基板温度 850 度とした。(2)については従来よりもさらに低いメタン濃度での成長を試みた。メタン濃度は合成装置のガス流量調節下限近傍の 0.12-0.25%へ変更した。(3)では(2)の条件に加え、基板温度を 900 度に変更し、ダイヤモンドの気相成長を行った。

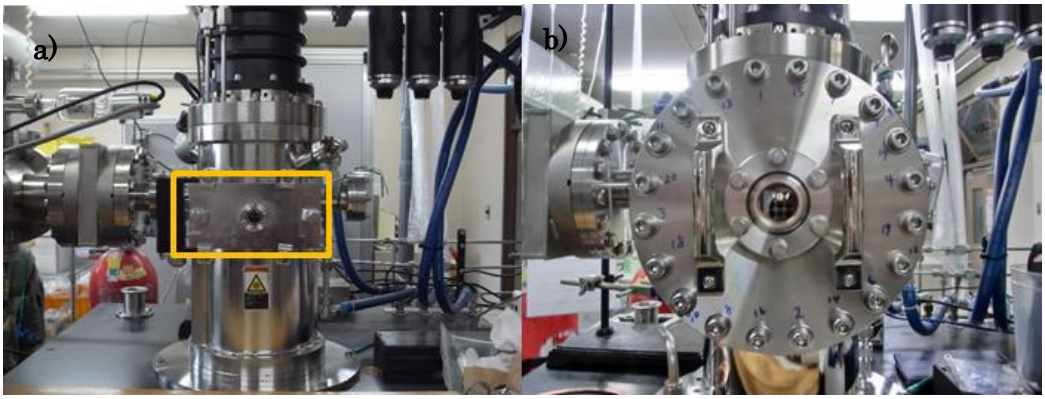

図 2. 1　マイクロ波プラズマ CVD 装置　ASTeX AX5250 試料導入部

a：改修前　b：改修後

黄色い実線で囲われた箇所から大気リークが発生していた

改修後、到達真空度は 10^{-6} Torr から 10^{-7}Torr へ一桁改善した

2.2.2 成長層リフトオフによる自立膜化と検出器作製・評価

気相成長により得られた成長層の表面形態観察のため、成長前後にノマルスキーフィルターを用いて微分干渉像を取得した。次にカソードルミネッセンス(CL)測定を行い、光学特性、結晶性評価を行った。

電子線が試料に照射されると電子は試料構成原子と衝突を繰り返しながらエネルギーを失う。カソードルミネッセンスでは価電子帯から伝導体へ励起された正孔・電子の再結合による発光を観測することで結晶中の不純物・欠陥を評価する。表 2.1 にはダイヤモンドで観測される代表的な発光[3, 4]をまとめた。測定は加速電圧 13kV、試料中央部 190 x 190 μ

m の平坦な領域を観測エリアとして評価を行った。試料温度は液体窒素で冷却し 80K とした。

CL 測定後、試料はグラファイト層の電気化学的エッチングによりリフトオフ、自立膜を得た。次に、得られた自立膜に対し電極を作製した。基板側に対し電子ビーム蒸着法により Ti 蒸着、ヒータで 400 度、30 分以上加熱し TiC を形成することでオーミックコンタクトを作製した。Ti 層の酸化防止と良好な導通を取るため真空中で抵抗加熱槽に移動し Au 蒸着を行った。裏面はダイヤモンドを Al 製検出器筐体に絶縁性ワニス(7000; GE)、エポキシにより絶縁、固定した後、抵抗加熱蒸着により Al ショットキー電極を作製し Al 製検出器筐体と導通、接地した。電極厚さはどちら 100nm とした。TiC/Au オーミック電極は銀ペースト、金線により SMA 同軸コネクタ(R12446400W; Radial)と結線し高圧印加並びに信号読出しとした。なお、得られた自立膜は事前に表面の酸素終端化[5]をおこない絶縁性を高めた。これは水素終端化ダイヤモンドが伝導性を持ち、表面漏れ電流増加の原因となるためである。気相成長は水素プラズマ中で行われるため、得られる試料も水素終端化されている。本研究では熱混酸、熱クロム酸処理による酸素終端化後、熱王水処理により付着したクロムの除去を行った。

また、事前に適切な印加電圧の範囲を求めるため検出器に対し電流―電圧(IV)測定を行った。放射線計測においては～数μA の微小電流を計測しなければならない。そのため漏れ電流の増加がエネルギーの測定下限、エネルギー分解能の劣化にもつながる。測定には 100fA までの電流が計測可能なソースメジャーユニット(237; Keithley)を用いた。測定は Al、Cu による 2 重構造を持った電磁遮蔽箱の中で行った。

最後に作製したダイヤモンド放射線検出器の電荷収集効率を評価するため ^{241}Am 5.486MeV α 線、電荷有感型前置増幅器(142A;Ortec)、スペクトロスコピーアンプ(427; Ortec)、マルチチャンネルアナライザ(WE7562; Yokogawa)を用いて誘導電荷量分布測定を行った。5.486MeV α 線はダイヤモンド中で約 13μm の飛程を持つ。飛程は自立膜の膜厚(~100μm)に対し小さいため、 入射面あるいは高圧の極性を変えることにより長距離ドリフトする電荷キャリアの輸送特性を主たる信号として評価できる。電荷収集効率の校正にはシリコン表面障壁型半導体検出器を用いた(CU012-050-100;Ortec)。シリコン、ダイヤモンドの ε 値それぞれ 3.62eV, 13.1eV[6]として評価を行った。測定は各検出器からの誘導電荷量、 ε 値の比からダイヤモンド検出器の電荷収集効率を見積もった。検出原理と電荷収集効率校正の詳細は Appendix C にまとめた。

今回は 1%以下の詳細な電荷収集効率評価を行うため**、波高分析に先立ち測定系のオフセット、ゲインの補正を行った。**マルチチャンネルアナライザにより示されるチャンネルナンバーは以下の式のようにあらわされる

$$\mathrm{MCA\ ch} = \mathrm{mV} + \mathrm{c} \qquad (2-1)$$

ここで m は測定系のゲイン、V は入力されたパルス波高、c は MCA オフセットとする。MCA には通常フルレンジの 1% 以内のオフセットが存在する。また、電荷有感型前置増幅器においては接続する検出器静電容量の違いにより出力信号のリニアリティがわずかに変化する。これに伴い測定系全体のゲインも変化してしまうため詳細な電荷収集効率校正においてはゲイン、オフセット校正が重要となる。そこで、校正用シリコン半導体検出器、ダイヤモンド検出器をそれぞれ接続した状態でパルサー信号を入力しリニアリティ評価をおこなった。　また、ダイヤモンド検出器の Al 入射窓(100nm)、Si 表面障壁型検出器の不感層(500ÅSi)によるエネルギーロスを TRIM コード[7]により計算、$E_{lossAlwindow}$ =6.6keV, $E_{lossSiwindow}$ = 15.2keV として補正した。
以上の補正項を含んだ電荷収集効率の計算式(1)を用いて電荷収集効率を求めた。

$$CCE_{diam} = \frac{(Peak\ ch_{diam} - c_{diam})}{(Peak\ ch_{Si} - c_{SI})} \times \frac{\varepsilon_{si}}{\varepsilon_{diamond}} \times \frac{m_{Si}}{m_{diam}} \times \frac{5486keV - E_{loss_{Alwindow}}}{5486keV - E_{lossSiwindow}} \times 100(\%) \quad (2-2)$$

さらに、一部の試料については電荷収集効率―電場強度依存性を評価し Hecht の式[8]に基づき試料の μτ 積を求めた。

$$\frac{Q_{collected}}{Q_{induced}} = \frac{\mu_l \tau_l (E - E_{bi})}{w}\left(1 - e^{-\frac{w-d}{\mu_l \tau_l (E - E_{bi})}}\right) + \frac{\mu_s \tau_s (E - E_{bi})}{w}\left(1 - e^{-\frac{d}{\mu_s \tau_s (E - E_{bi})}}\right) \quad (2-3)$$

ここで、添え字の l, s は電荷キャリアの長距離ドリフト側、短距離ドリフト側に対応している。w はダイヤモンドの膜厚、d はダイヤモンド中での 5.486MeV α 線の飛程である。なお、今回作製した検出器構造では Al ショットキー電極による内蔵電位が存在するため補正項として内蔵電位 V_{bi} を導入した。V_{bi} は高圧電源のバイアスを変化させ誘導電荷が観測されなくなる値を採用した。本測定においては V_{bi} = 0.8V とした。ダイヤモンド中の 5.486MeV α 線の飛程は d = 13 μ m とし、短距離走行する電荷キャリアについてはダイヤモンド内での電荷キャリア平均自由行程が $\lambda = \mu\tau(E - E_{bi})$ >> d であるため右辺第 2 項をテイラー展開して

$$\frac{Q_{collected}}{Q_{induced}} \sim \frac{\mu_l \tau_l (E - E_{bi})}{w}\left(1 - e^{-\frac{w-d}{\mu_l \tau_l (E - E_{bi})}}\right) + \frac{d}{w} \quad (2-4)$$

として電子・正孔を長距ドリフトさせた測定結果から各電荷キャリアの μ τ 積を求めた。フィットは最小二乗法で行った。Hecht モデルは①結晶内でのデトラッピングがないこと②界面での再結合がないことを前提としている[9]。~1000V/cm の低電場強度領域ではプリアンプ出力の形状から立ち上がりが数 μ s の遅い成分が観測された。この場合、シェーピン

グタイム不足による電荷収集効率の過小評価となる。このため遅い成分の観測されない電荷収集効率 60%以上の領域に対しフィットを実行した。

表 2.1　カソードルミネッセンスにおける代表的な発光[3, 4]

呼称	Wavelength(nm)/Energy(eV)	ピーク由来
Free Exciton	235nm/5.27eV	ダイヤモンドの間接遷移
5RL system	4.582eV/270.5 nm	格子間炭素原子、放射線損傷を受けたダイヤモンドにみられる
N3 system		空孔を取り囲む形で 3 つの窒素原子が配列
Band A (blue)	430nm	転位に関連した発光[6]
Band A (green)	530nm	ホウ素を含む場合に観測される
H3 center	537.8nm/2.305eV	N3 センターとともに窒素を含むダイヤモンドで観測される。N-V-N, あるいは N-V-V-N に関連した発光。
484 system	484nm	Ni に関連した発光
2.526 eV center		すべり面に関連した発光
NV center(NV^0)	574.9nm/2.156eV	窒素と空孔による発光
NV center(NV^-)	637.5nm/1.945 eV	
Si center	/1.681eV	Si に起因した発光。CVD ダイヤモンドで見られる。
GR1 center	741nm/	中性の空孔による発光。N を含むダイヤモンドでは発光がクエンチされる。600℃以上でアニールすると観測されなくなる。

2.3 実験結果と考察

2.3.1 窒素汚染低減試料

表 2.2 には気相成長時の窒素汚染低減試料の成長条件、成長率、膜厚を示す。図 2.2 には窒素低減後のサンプル Hu08_08 に対する微分干渉顕微鏡像例を示した。合成した試料いずれにおいてもステップバンチングの見られない表面形態が観測された。

図 2.3 には窒素不純物低減試料 Hu21_01 のカソードルミネッセンス測定例を示す。従来観測されていた転位による Band A 発光、窒素に関連した複合欠陥による発光そして NV 発光いずれも低減した。一方でダイヤモンド結晶の完全性の指標である自由励起子再結合(FE)発光は従来試料の 10 分の 1 以下となり、270nm 近傍にブロードな発光が観測されるようになった。この発光は、侵入間炭素原子や照射に関連した発光、ホウ素に起因する発光等であることが報告されている[10]。

図 2.4 には同試料 IV 測定結果例を示す。p 型整流特性が著しく見られるようになった。従来試料では室温において整流特性は観測されていない。また、図 2.5 には同試料の静電容量－電圧(CV)測定結果を示す。逆バイアス印加に伴う静電容量の変化が見られた。静電容量から計算される空乏層厚さは約 20μm であり、膜厚に対して 4 分の 1 程度しか空乏化していないことがわかる。

図 2.6 には試料のα線誘導電荷量分布測定結果例を示す。部分空乏化により空乏層厚さが約 20μm、ショットキー電極への逆バイアス印加方向が正であったため電子長距離走行時の電荷収集効率評価しか行えなかった。空乏層が 20μm にもかかわらず電子の電荷収集効率は 83% と従来試料と比較し 10%以上低下した。

表 2.2　窒素低減試料成長条件

試料	CH_4/H_2 (%)	容器内圧力 (Torr)	基板温度 (℃)	マイクロ波出力(W)	成長時間 (h)	成長層厚さ (μm)	成長率 (μm/h)
Hu21_01	1.0	110	850	895-1015	96	81	0.84
Hu08_08	1.0	110	850	970-1005	96	59	0.61
Hu10_05	1.0	110	850	970-1005	96	42	0.44

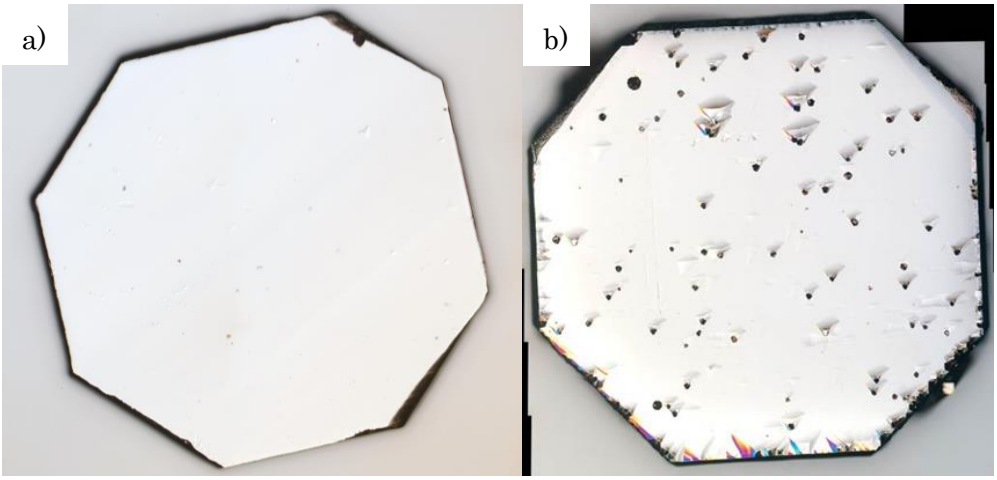

図 2. 2　窒素リーク低減後　Hu08_08 の微分干渉顕微鏡像

(a:成長前　b：成長後)

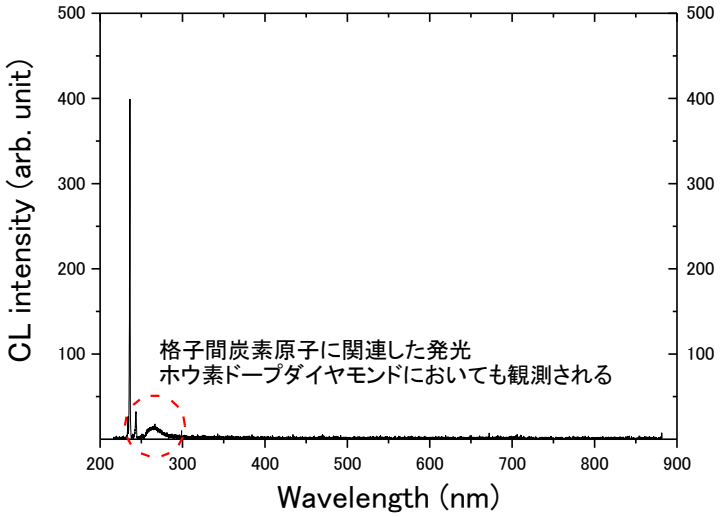

図 2. 3　窒素低減試料 CL 測定結果

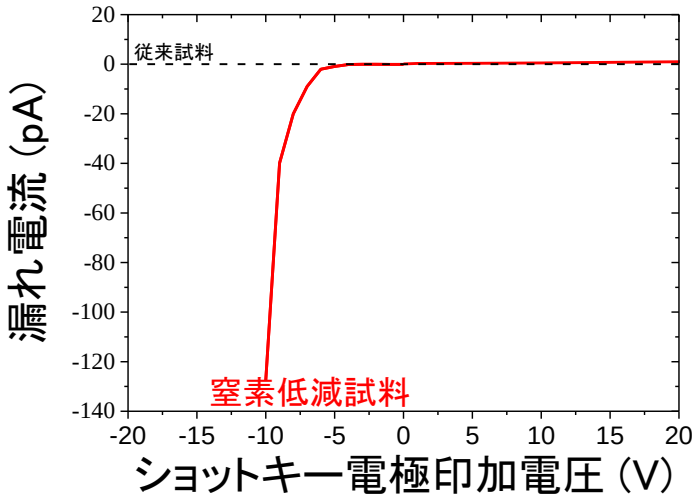

図 2. 4　窒素低減試料 Hu21_01　IV 測定結果例

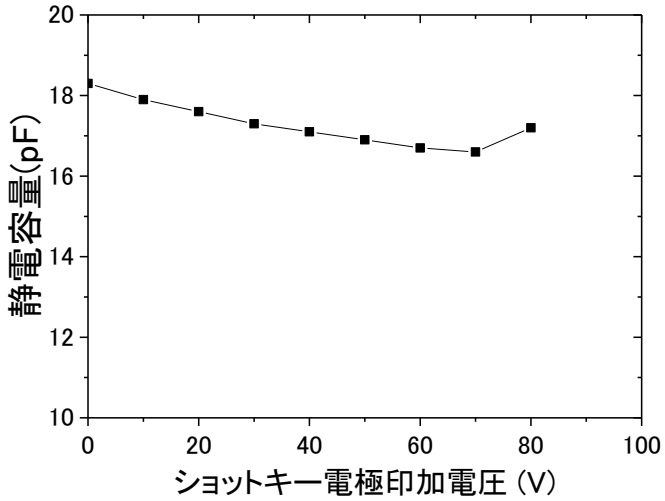

図 2. 5　窒素低減試料 Hu21_01　CV 測定結果

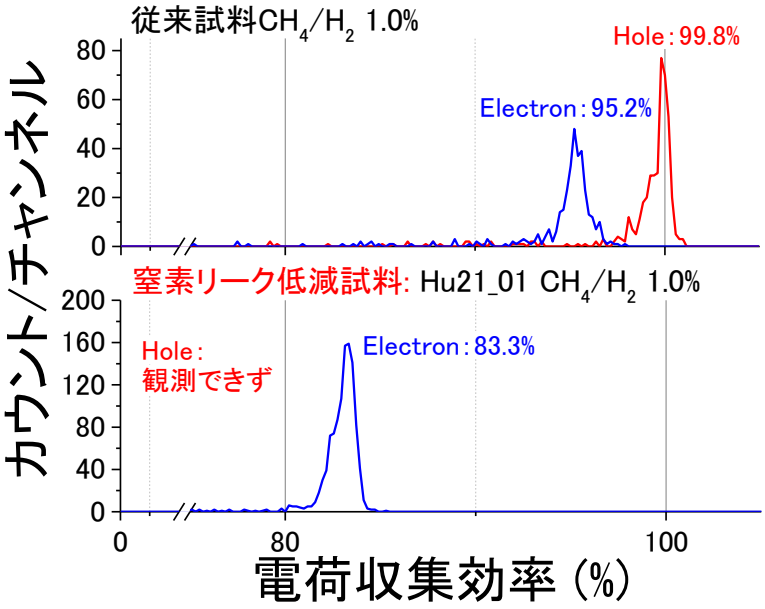

図 2. 6　窒素汚染低減試料 Hu21_01　α線誘導電荷量分布測定例

2.3.1.窒素汚染低減による電荷捕獲増加原因

前節で述べたように大気リークによる窒素汚染低減試料では定性的な窒素不純物低減が確認されたにも関わらず電荷収集効率は大幅に低下した。そこで活性準位を求めるために試料両面に TiC/Pt/Au オーミック電極を作製し、試料温度を室温から 400℃へ変化させながら漏れ電流を取得、アレニウスプロットから活性準位を評価した。バンドギャップ中のある準位 E からの熱励起による漏れ電流を I、比例定数を A とすると熱励起による電流は

$$\mathrm{I} = \mathrm{A}\exp\left(-\frac{E_c - E}{kT}\right) = \mathrm{A}\exp\left(-\frac{\mathrm{E_{activation}}}{kT}\right) \qquad (2-5)$$

とあらわされる。試料からの漏れ電流を温度変化させながら取得することで、傾きから活性準位 $\mathrm{E_{activation}}$ をもとめることができる。図 2.7 には試料 Hu21_01 の活性準位評価結果を示す。a) は逆バイアス印加時、b)は順バイアス印加時のプロットを示す。活性準位を評価したところ a)では $\mathrm{E_{activation}} = 0.94 \pm 0.05\mathrm{eV}$、$0.20 \pm 0.03\mathrm{eV}$ の 2 成分が得られた。一方、b)では 1 成分のみ観測され $\mathrm{E_{activation}} = 0.17 \pm 0.03\mathrm{eV}$ であった。極性によらず 0.2eV 近傍に準位が観測された。0.94eV の深い準位については逆バイアス印加時のみ観測されたことから電極障壁に起因する成分と考えられる。

さらに、より詳細に同試料の活性準位、キャリア濃度を評価するため van der Pauw 法によるホール効果測定を物質材料研究機構の協力のもと行った。図 2.8 に同試料のキャリア濃

度、温度の逆数プロットを示す。活性準位は 0.33eV であり、ホウ素由来と考えられる。プラナ型電極による活性準位評価では 0.2eV に準位が観測されたが、これは表面漏れ電流により準位が浅く見積もられていた可能性が高い。

ノンドープダイヤモンドの気相成長においてホウ素は合成チャンバーに用いられる構造体から微量に混入することが報告されている。このようなダイヤモンドの捕獲準位について、Kada らは Alpha Particle Induced Transient Spectroscopy (AQTS)により 0.3-0.4eV に活性な準位を持つことを報告しており、本実験と同様の傾向が得られている[11]。

図 2.9 には電荷収集効率評価、実験結果から予想されるダイヤモンド中の電荷捕獲のモデルを示す。ダイヤモンド中では窒素が伝導体側から 1.7eV, ホウ素が価電子帯側から 0.37eV に準位を持つことが報告されている。本実験においてはステップバンチングの消失、カソードルミネセンススペクトルにおける NV 発光の消失から窒素不純物低減が定性的に確認された。また、Band A 発光の消失から転位についても低減したものと考えられる。ところが、α 線誘導電荷量分布測定による電子電荷収集効率は低下、p 型半導体特性を示し、0.3eV 近傍に準位を得た。

以上の結果より従来試料では窒素が価電子帯側にある電荷捕獲準位を補償することでこれまで比較的高い電荷収集効率が得られていたと考えられる。この電荷捕獲準位の候補としては 0.3eV 近傍に観測されたことからホウ素の可能が高い。一方で、自由励起子再結合発光が減少についてはホウ素のみで説明がつかないため非発光遷移を持つ欠陥も影響を及ぼしていると考えられる。

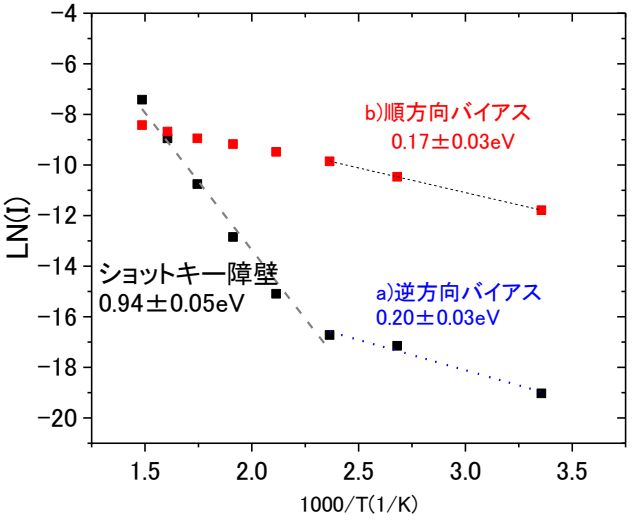

図 2. 7　窒素低減試料 Hu21_01 活性準位評価

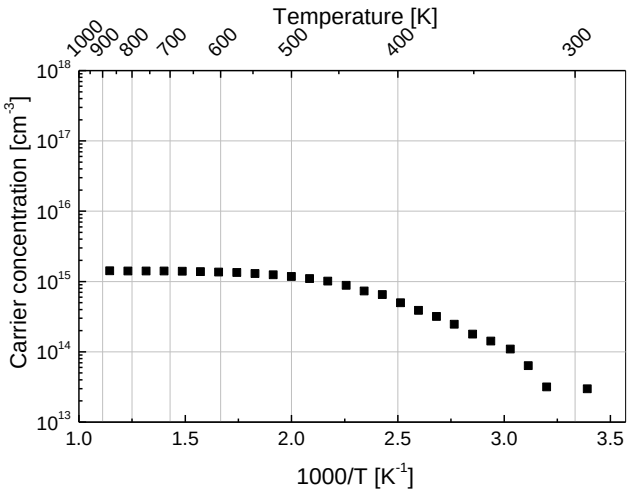

図 2. 8 Hu21_01 キャリア濃度プロット

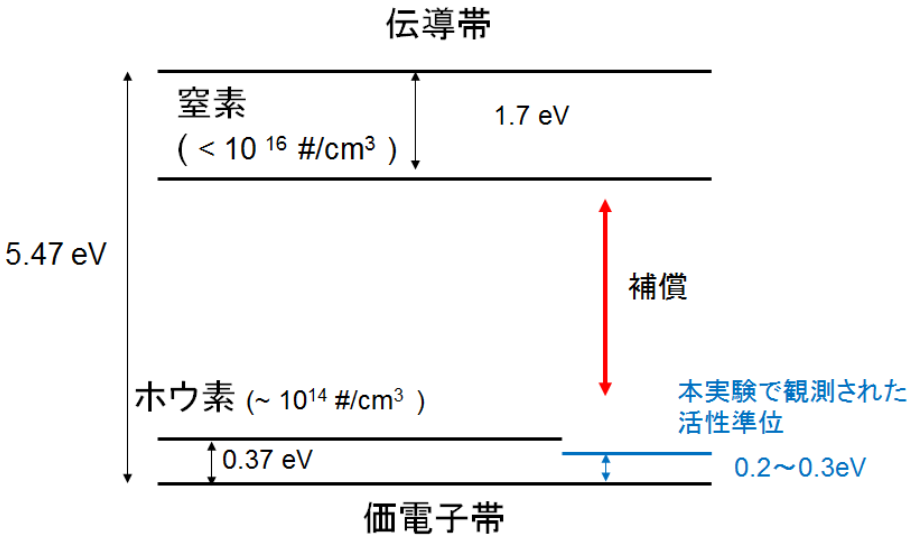

図 2. 9　実験から予測される電荷捕獲モデル

2.3.2 低メタン濃度成長試料

2.3.1 の結果を受け、不純物抑制、欠陥低減のため低メタン濃度成長を行った。表 2.3 には各サンプルのメタン濃度、基板温度、マイクロ波出力、合成時間、成長層厚さを示した。メタン濃度は CVD 装置マスフローコントローラの制御下限近傍である 0.20-0.12%とした。

図 2.10 にはメタン濃度 0.20%で成長させた試料 Hu02_08 の成長層微分干渉顕微鏡像を示す。成長温度 850℃の試料ではメタン濃度 1.0%試料同様に基板起因の欠陥、黒点状の領域を除き、全体にわたり平坦な領域が観測された。点状に観測される異常成長においては中央が凹み、中心に多結晶体が観測された。これは成長時に Mo ホルダーに付着していた多結晶が飛来しステップフロー成長を妨げたものと考えられる。

図 2.11 には低メタン濃度で合成した試料のカソードルミネッセンス測定結果を示す。試料毎にばらつきがあるものの、最大で従来試料の 10 倍以上の FE 発光強度を示した。また FE 発光以外の構造欠陥・点欠陥に関連した発光も見られず、きわめて高品質な結晶が得られた。IV、CV 特性において室温においては窒素低減試料のような p 型整流特性は観測されず、CV 特性から全空乏化も確認している。

図 2.12 には同試料α線誘導電荷量分布測定例を示す。正孔 99.8%, 電子 97.4%の電荷収集効率が得られた。電子電荷収集効率については窒素不純物を含むメタン濃度 1.0%試料最高値とほぼ同等の水準まで改善した一方、依然として数%の電荷捕獲が存在している。またエネルギー分解能も低いことから依然として電子電荷キャリア輸送特性に改善の余地があることがわかる。

表 2.3　低メタン濃度試料　成長条件

試料	CH_4/H_2 (%)	容器内圧力 (Torr)	基板温度 (℃)	マイクロ波出力(W)	成長時間 (h)	成長層厚さ(μm)	成長率 (μm/h)
Hu02_08	0.20	110	850	1090-1140	167	47	0.28
Hu11_06	0.12	110	850	600-850	192	48	0.25
NP34_01	0.12	110	850	600	192	26	0.15

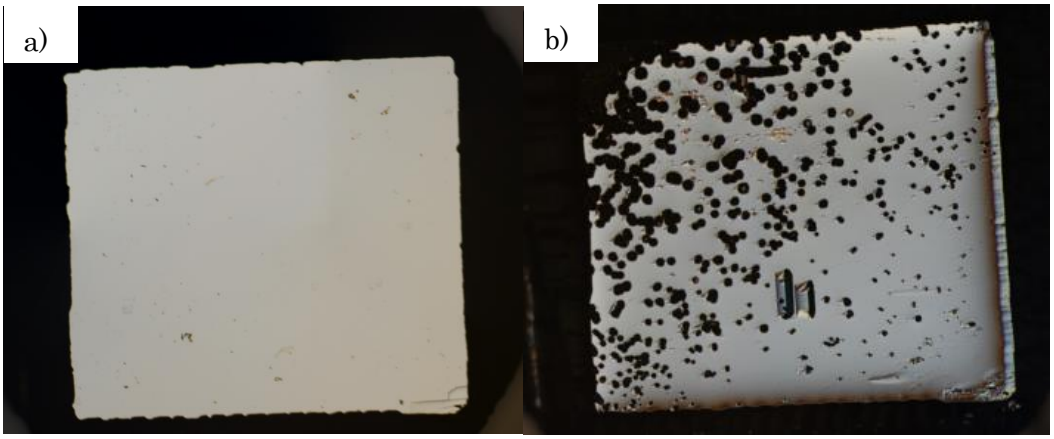

図 2. 10　基板温度 850℃で成長させた試料 Hu02_08 微分干渉像

(a；成長前　b；成長後)

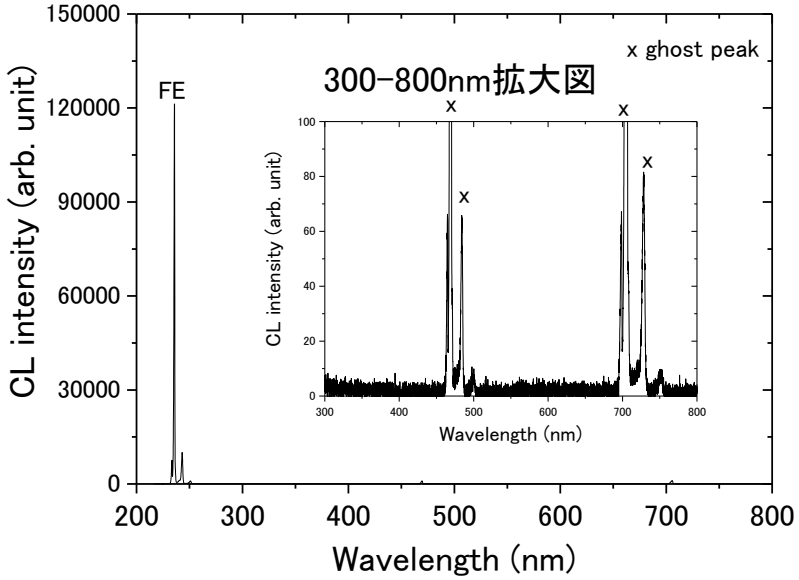

図 2. 11　カソードルミネッセンススペクトル例

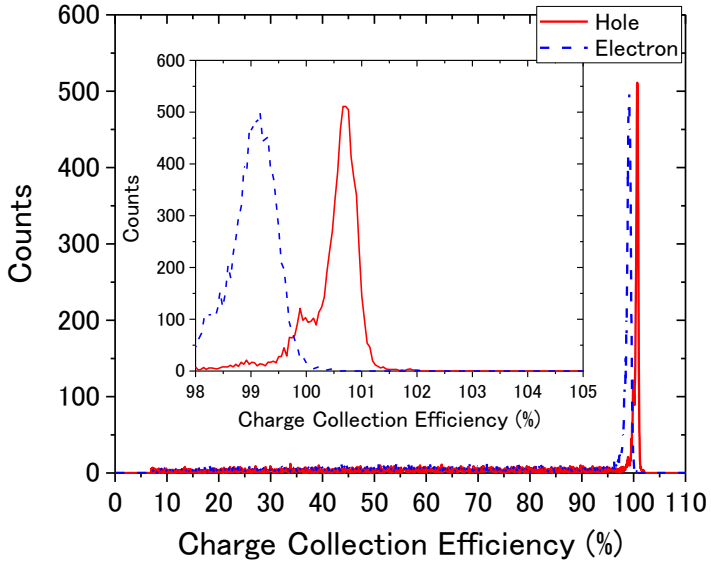

図 2. 12　成長温度 850℃試料 Hu02_08 のα線誘導電荷量分布測定例

2.3.3 成長温度上昇試料

最後に低メタン濃度かつ成長温度を900度にした試料の評価結果について述べる。図2.13には基板温度を 900℃にして成長させた試料の微分干渉像を示す。a)成長前、b)成長後の微分干渉像を示す。図 2.10 とは大きく異なり結晶全域にわたって 10μm オーダーの凹凸が観測された。黒点状にみられるのは 850 度で成長させた試料同様ホルダーからの多結晶飛来により成長が阻害された箇所である。図 2.13c)にはレーザー顕微鏡像を示す。本試料は(100)面上へ成長させているが 4 つの(111)面からなるエッチピットが形成されている。

次に図 2.14 には同試料のα線誘導電荷量分布測定結果を示す。電荷収集効率は電子 99.8%、正孔 100.1%が得られた。電荷収集効率が 100%を超えるのはε値を天然ダイヤモンドによる報告値 13.1 eV として計算した結果であり、今後、結晶性の向上によりε値はさらに小さくなる可能性がある。電子電荷捕獲については従来リフトオフで得られていた試料と比較し 10 分の 1 以下に改善した。エネルギー分解能についても電子・正孔ともに 0.38%を示した。これはダイヤモンド検出器としてトップクラスの値である。なお、この値は測定系の回路ノイズの影響を大きく受けている。検出器固有のエネルギー分解能を求めるため測定系ゲインを設定し、再評価した結果では 0.31%を得ている。詳細は第 3 章で報告する。

最後に電子・正孔の輸送特性差をより詳細に評価するため電荷収集効率－電場強度依存性を評価し、Hecht の式よりμτ積を求めた。図 2.15 にはプロットを示す。エネルギー分解能をエラーバーとして採用した。電子のプロットは正孔と比較し立ち上がりが鈍く、低

電場強度領域におけるエネルギー分解能も低いことがわかる。μτ 積は正孔: (3.1±0.5) × 10^{-4} cm/V、 電子: (0.91±0.1) × 10^{-4} cm/V であった。飽和領域電場強度領域におけるプロットは Hecht 式に沿わなかった。これは厚さの薄い試料では、内蔵電位による電界強度の誤差が大きくなるためと考えられる。より正確に電荷キャリア輸送特性を求めるには理想的なオーミックコンタクトを作製し、試料厚さの十分なサンプルで評価を行う必要がある。

表 2. 4　低メタン濃度、成長温度 900 度で成長させた試料の合成条件

試料	CH_4/H_2 (%)	容器内圧力 (Torr)	基板温度 (℃)	マイクロ波出力(W)	成長時間 (h)	成長層厚さ(μm)	成長率 (μm/h)
Hu16_03	0.20	110	900	1110	174	150	0.86
Hu08_09	0.25	110	900	745-780	192	70	0.36
NP26_01	0.12	110	900	900-1000	192	34	0.16

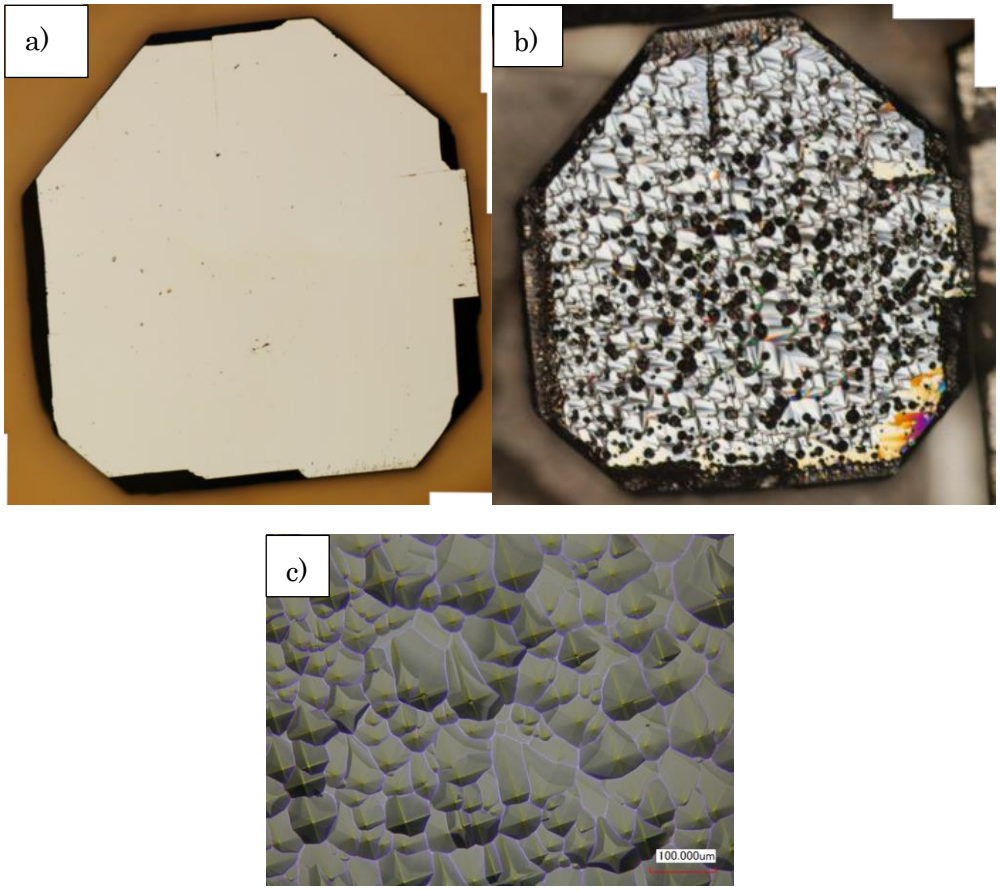

図 2. 13　基板温度 900℃で成長させた試料の表面形態例
(a:成長前　b:成長後　微分干渉像、　c:レーザー顕微鏡像)

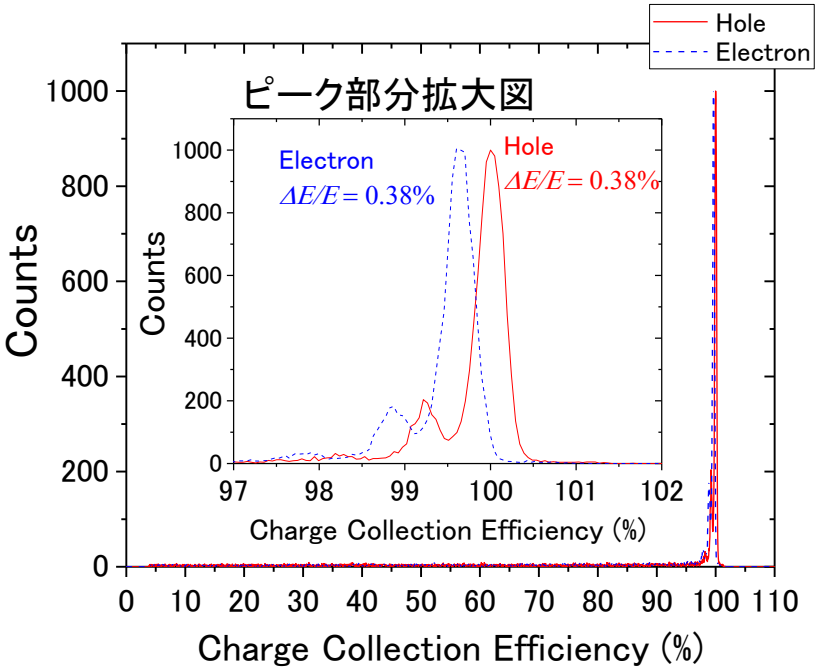

図 2. 14　α線誘導電荷量分布測定例

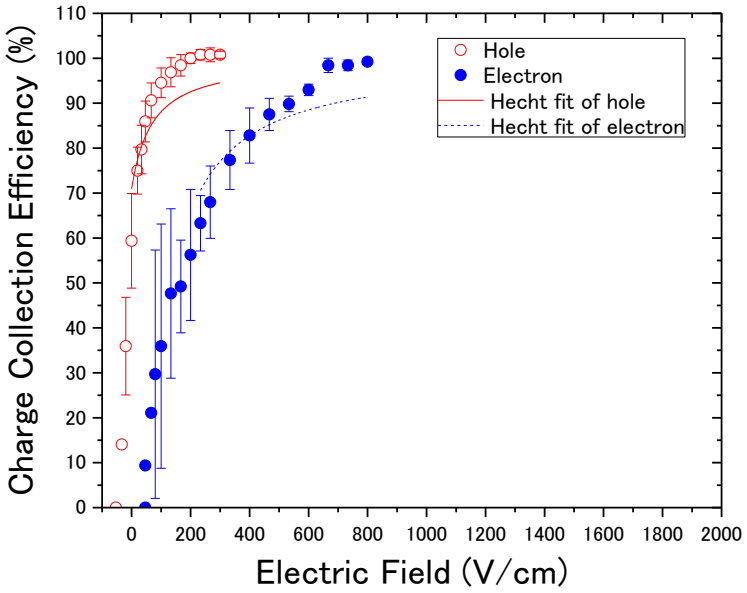

図 2. 15　　Hu16_03 電荷収集効率－電場強度依存性

2.3.4 低メタン濃度成長、成長温度上昇による電子電荷キャリア輸送特性向上

表 2.5 には試料温度 850、900℃で成長させた試料の電荷収集効率・エネルギー分解能をまとめた。図 2.16 では電子電荷キャリア輸送特性の変化を散布図上に示した。横軸に電荷収集効率、縦軸にエネルギー分解能を示す。窒素を低減したうえで 0.2%近傍のメタン濃度で成長させることで従来試料よりも電荷キャリア輸送特性が向上、さらに 900℃で成長させた試料では電荷収集効率・エネルギー分解能が評価した試料いずれも改善していることがわかる。

一方で、電子の $\mu\tau$ 積は正孔と比較しいまだに低く改善の余地がある。CL スペクトルにおいて欠陥・不純物に関連した発光が観測されないことから非発光遷移を持つあるいは非常に低密度の電子に対する捕獲準位が存在するものと考えられる。これら捕獲準位の候補としては空孔、SIMS 測定下限下の水素あるいはそれらの組み合わせが考えられる。

先行研究において Mizuochi らは H1'と呼ばれる水素―空孔に関連した欠陥が非発光遷移を持ち、それらが気相成長時のメタン濃度の低減により抑制、自由励起子再結合発光強度が増加することを報告している[12]。また、Koizumi らはリンドープダイヤモンドの気相成長において気相成長時の水素の取り込みが n 型ダイヤモンド中のドナーを不活性にすること。さらに成長温度の上昇により水素の取り込みが抑制されることを報告している[13]。この結果は水素に関連したアクセプタ準位の増加を示唆している。本章で得られた FE 発光強度増加、電荷収集効率の改善はこれらの結果と矛盾しない。

上記は気相成長時における不純物・欠陥の取り込みについて述べてきたが、リフトオフ法においては下地基板に対するイオン注入プロセスが存在する。このためイオン注入による侵入型の炭素原子、フレンケル欠陥等の照射損傷も存在する。定量的な調査はこれまでに報告されていないがイオン注入層が成長層に影響を及ぼす可能性も考えられる。これらについてはイオン注入後の下地基板、リフトオフ後の自立膜に対しアニール処理を施すことによって輸送特性の変化を系統的に調査していく必要がある。

表 2.5　低メタン濃度試料の電荷収集効率・エネルギー分解能

試料	CH_4/H_2	基板温度	成長層厚さ	Hole		Electron	
	(%)	(℃)	(μm)	CCE(%)	ΔE/E(%)	CCE(%)	ΔE/E(%)
Hu16_03	0.20	900	150	100.0	0.38	99.7	0.38
Hu08_09	0.25	900	70	100.1	0.38	99.8	0.38
NP26_01	0.12	900	34	99.9	0.38	99.8	0.43
Hu02_08	0.20	850	47	99.8	0.48	97.4	0.73
Hu11_06	0.12	850	48	99.7	0.38	98.9	0.48
NP34_01	0.12	850	26	99.8	0.38	99.1	0.72

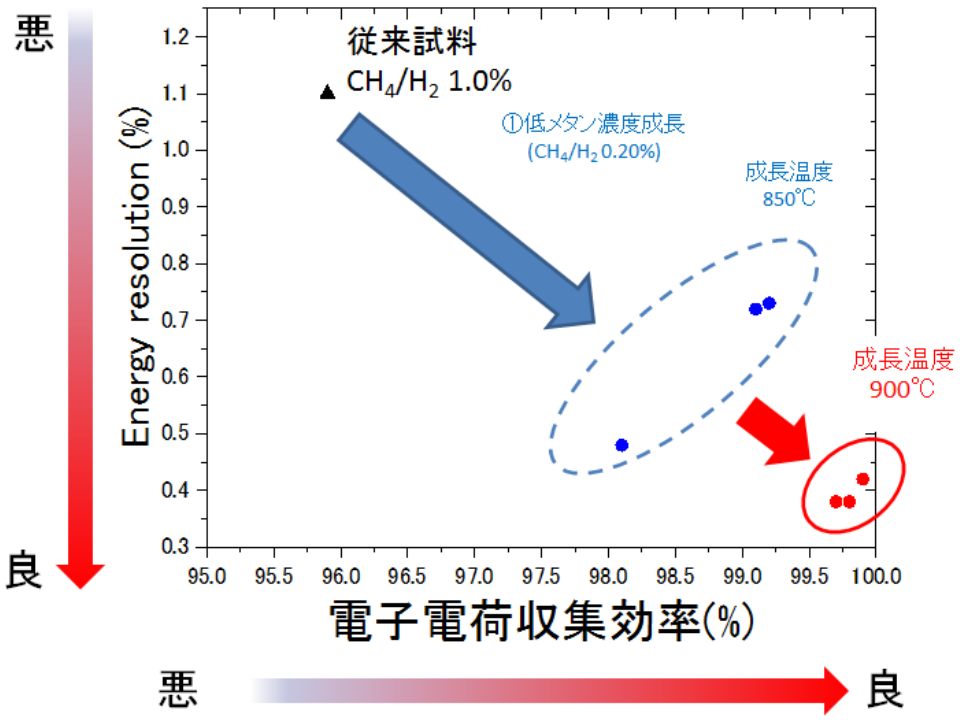

図 2. 16　低メタン濃度成長、成長温度上昇による電荷キャリア輸送特性の改善

2.3 結論

本章では窒素不純物、点・構造欠陥の低減による電子電荷キャリア輸送特性向上を目指した。メタン濃度 0.2%近傍、成長温度 900 度で成長させた試料は CL 測定において最大で従来試料の 10 倍の自由励起子再結合発光が得られ、構造欠陥、点欠陥に関連した発光の見られない極めて結晶性に優れたものとなった。電荷収集効率は厚さ 150 μ m の試料で電子:99.8%, 正孔 100.1%が得られ、従来報告されていたリフトオフ試料と比較し電荷損失を 10 分の 1 以下に改善した。また、エネルギー分解能も電子正孔ともに～0.3%とダイヤモンド放射線検出器としてトップクラスの値を示した。

本研究により生産性の高いリフトオフ法を用いてもダイヤモンド放射線検出器としてトップクラス検出器性能を持つ放射線検出器の実現が可能となった。

第 2 章の引用文献

[1] H. Okushi, H. Watanabe, S. Ri, S. Yamanaka, and D. Takeuchi, Journal of Crystal Growth 237-239 (2002) 1269.

[2]T. Teraji, Physica status solidi 203 (2006) 3324

[3] A. T. Collins, Diamond and Related Materials 1 (1992) 457.

[4] D. Takeuchi, H. Watanabe, S. Yamanaka, and H. Okushi, Physical Review B 63 (2001) 245328.

[5]藤森直治、鹿田真一著　*「ダイヤモンドエレクトロニクスの最前線」*　第 15 章 p181、シーエムシー出版、エレクトロニクスシリーズ

[6] S. F. Kozlov, R. Stuck, M. Hage-Ali, and P. Siffert: IEEE Transactions on Nuclear Science NS-22 (1975) 160.

[7] J.F. Ziegler, SRIM Software Package, Available Online at ⟨http://www.srim.org⟩.

[8] K. Hecht, Z. Physics 77 (1932) 235 .

[9] Alan Owens "*Compound semiconductor radiation detectors*" series in sensors, CRC press Chapt.3, p. 167

[10] J. Won, H. Yagi, A. Hatta, N. Jiang, T. Ito, T. Sasaki, A. Hiraki, Applied Surface Science 113/114 (1997) 249

[11] W. Kada, Y. Kambayashi, Y. Ando, S. Onoda, H. Umezawa, Y. Mokuno, S. Shikata, T. Makino, M. Koka, O. Hanaizumi, T. Kamiya, T. Ohishima, Nuclear Instruments and Methods in Physics Reseatch B, in press

[12] N. Mizuochi, H. Watanabe, H. Okushi, S. Yamasaki, J. Niitsuma, T. Sekiguchi, Applied Physics Letters 88 (2006) 091912

[13] S. Koizumi, M. Kamo, Y. Sato, H. Ozaki, T. Inuzuka, Applied Physics Letters, 71 (1997) 1065

第 3 章　ダイヤモンド放射線検出器の Fano 因子評価

第 2 章の実験結果を受けて、本章では優れたエネルギー分解能・電荷収集効率に優れた単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器の ε 値、Fano 因子評価結果を報告する。

3.1 研究背景

3.1.1 ポアソン統計に基づくエネルギー分解能の限界値と Fano 因子

半導体検出器は入射エネルギーに比例した誘導電荷を観測する。パルス波高分析においてエネルギーに比例したパルス波高は図 3.1 に示すような誘導電荷量の情報を反映したものとなる。入射した放射線のエネルギーを識別する能力をエネルギー分解能と呼びピーク中央値に対する半値幅で定義され、エネルギー分解能が良好なほど近接したエネルギーを識別する能力に優れる。パルス波高分析におけるエネルギー分解能 R は

$$R = \frac{\Delta E}{E} = \frac{FWHM}{H_0} \quad (3-1)$$

とあらわせる。ここで H_0 はパルス波高分布により得られた波高値である。半導体放射線検出器は ε 値が小さいため放射線により生成するエネルギーあたりのキャリア数が多く 1% 以下の良好なエネルギー分解能が得られる。

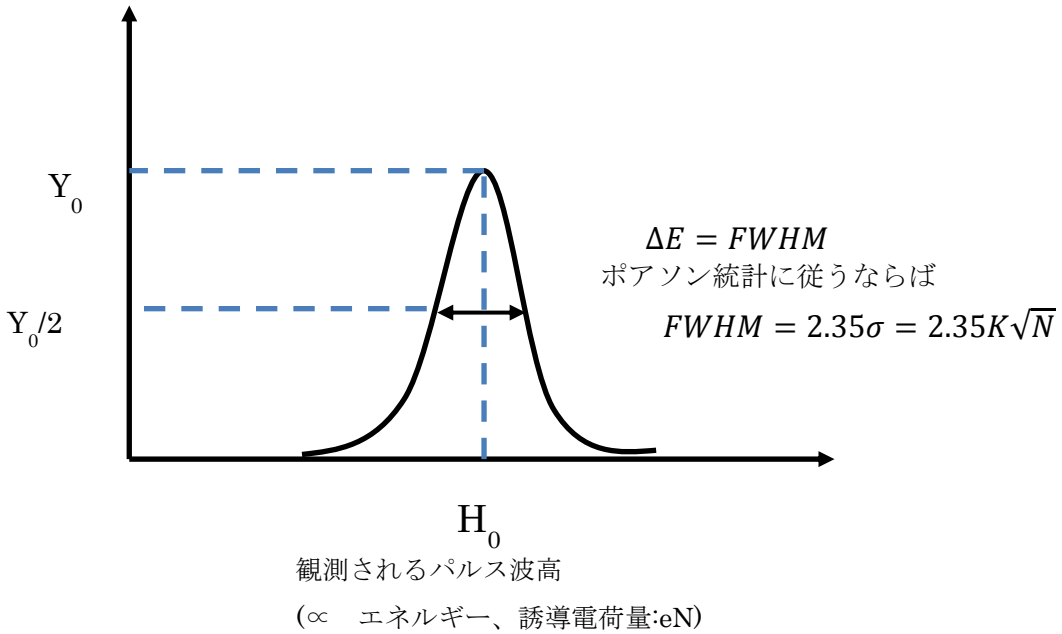

図 3. 1 エネルギー分解能の定義

検出器の応答において実験で得られるエネルギー分解能は回路系のノイズ、検出器信号の離散的な性質からくる統計ノイズを含んでいる。1 つの量子の放射線により検出器内に発生する電荷は離散的な値をとるため統計的なノイズが発生する。半導体検出器においては電離により検出器内に発生した電子・正孔対の数により統計ノイズが決まり、生成する電子正孔対の数は検出器内に付与されるエネルギーが同じであっても離散的な値をとる。この電荷キャリアの生成過程が独立している場合、放射線により生成されたキャリアの平均数を N とすると統計的な変動による標準偏差は$\sqrt{N}$であらわされる。N が十分大きい場合ポアソン分布はガウス分布とみなすことができ、半値幅(FWHM: Full Width at Half Maximum)は$2.35\sigma = 2.35\sqrt{N}$で求まり、ポアソン統計に基づくエネルギー分解能の理論限界値は以下のように記述される。

$$\mathrm{R}|_{poisson} = \frac{2.35K\sqrt{N}}{KN} = \frac{2.35}{\sqrt{N}} \quad (3-2)$$

ここで電荷キャリア生成数 N は放射線によるエネルギー付与、ε 値により決まるため

$$\mathrm{R}|_{poisson} = \frac{2.35}{\sqrt{N}} = 2.35\sqrt{\frac{\varepsilon}{E}} \quad (3-3)$$

となり、最終的にε 値と放射線によるエネルギー付与によってポアソン統計に基づくエネルギー分解能の理論限界値は記述される。

ところが、シリコン、ゲルマニウム等の欠陥・不純物の制御された高品質結晶ではエネルギー分解能が上記の統計的な理論限界値より 3~4 分の 1 ほど優れることが実験的に知られている。これは入射粒子が検出器内で構成される物質中で全エネルギーを損失するため損失するエネルギーが一定であり、個々の電荷キャリア生成過程が完全に独立していないことを示している。このキャリアのポアソン統計からの統計的なずれを定量化するために Fano 因子[1]が導入された。

Fano 因子は

$$\mathrm{F} \equiv \frac{\textit{観測されたN の分散}}{\textit{ポアソン統計で予想されるN の分散}} \quad (3-4)$$

で定義され、上記の式にこれを適用すると

$$\mathrm{R}|_{poisson} = \frac{2.35K\sqrt{N}\sqrt{F}}{KN} = 2.35\sqrt{\frac{F}{N}} = 2.35\sqrt{\frac{\varepsilon F}{E}} \quad (3-5)$$

となる。

3.1.2 ダイヤモンドと他半導体検出器の Fano 因子

表 3.1 には先行研究により報告されている Si, Ge 検出器の ε 値、Fano 因子をまとめた。Fano 因子は低エネルギー放射線計測において特に重要な指標でありその報告の多くが X 線によるものである。Si, Ge ではいずれも 0.1 近傍の Fano 因子が得られている。

一方、ダイヤモンド放射線検出器においてはこれまでに Fano 因子は 1 例も報告されていない。これはダイヤモンドの結晶性が十分なものがこれまでに少なかったためと考えられる。5.486MeV のα線、13.1eV の ε 値を仮定した場合ポアソン統計に基づくエネルギー分解能理論限界値は 0.36%となる。この値を唯一達成し、ダイヤモンド放射線検出器として最良の分解能を示しているのは Pomorski らによる 0.31%のエネルギー分解能のみである。この値から計算される Fano 因子は 0.7 に相当する。ところがこれは回路ノイズを含む値であり、検出器の固有分解能や Fano 因子については詳細な評価がなされていない。

表 3. 1　Fano 因子文献値との比較[2-11]

	ε 値(線種、エネルギー)		Fano 因子	
		理論値[7]	実験値 (線種、エネルギー)	理論値[7]
diamond	13.07, 13.30(α線)[2]、 12.81, 12.95(β線)[2] 13.6(α線)[3] 12.8±0.5(α線)[4] 12.17±0.57,11.8±0.59[5] (5.9keV X 線)	11.6	ΔE/E=0.31% (F=0.7 相当)[3]	0.08
Si	3.62-3.63[6]	3.62	0.12-0.16[8] (5.9-136keV　X 線) 0.16±0.04[9] (0.9-4,5MeV プロトン) 0.49[10] (5.5MeV　α線)	0.115
Ge	2.96[6]	2.78	0.10-0.15[11] (0.183-5.9 keV X 線)	0.13

3.2 研究目的

本章では第 2 章で作製した電子・正孔ともに電荷収集効率・エネルギー分解能に優れた試料の検出器固有分解能を求め、ダイヤモンド放射線検出器として初めて Fano 因子の評価を行った。

3.3 実験

実験には第 2 章で作製したメタン濃度 0.2%、成長温度 900 度の Hu16_03, Hu08_09 を用いた。Fano 因子評価には ε 値、検出器固有エネルギー分解能の 2 つが必要となる。前者については第 2 章での α 線誘導電荷量分布測定結果から ε 値を未知数として、電荷収集効率から値を決定した。校正に用いたシリコンの ε 値は先行研究より 3.62±0.02eV[2]とした。検出器固有エネルギー分解能評価については回路系ノイズの影響を小さするため測定系ゲインを 0.67x 100 から 0.80 x 200 へ変更し、5.486MeV α 線ピークが MCA チャンネルフルレンジの 8 割程度になるよう調整した。測定中の回路ノイズはプレジションパルサー(419; Ortec)を用いてピーク半値幅から評価した。

実験により得られるエネルギー分解能は回路系ノイズ、検出器自体のエネルギー分解能を含み、誤差伝搬の式より以下のようにあらわされる

$$\Delta E/E_{measure} = \sqrt{(\Delta \mathrm{E}/\mathrm{E}_{detector})^2 + (\Delta E/E_{circuit})^2} \qquad (3-6)$$

回路系ノイズを差し引き、実験値から求めたエネルギー分解能に対し電極での α 線のエネルギーロス $\mathrm{E}_{\mathrm{loss}}$ を加味して式

$$\Delta \mathrm{E}/\mathrm{E}_{detector} = 2.35\sqrt{\frac{\varepsilon_{diamond}F_{diamond}}{E_{alpha}-E_{loss}}} \quad (3-7)$$

から Fano 因子を求めた。

3.4 実験結果と考察

図 3.2 には Hu16_03, Hu08_09 の正孔、電子ロングドリフト時の電荷収集効率から計算した ε 値と文献値との比較を示す。表 3.2 は各測定条件での値をまとめた。どちらの試料もドリフトの極性によらず ε = 13.1±0.1eV となった。

図 3.3 には Hu16_03 正孔長距離ドリフト時の α 線誘導電荷量分布測定例を示す。実測でのエネルギー分解能 0.31%を得た。これは Pomorski らの報告[4]と並ぶ値であり、生産性の高いリフトオフ法を用いた場合においてもダイヤモンド検出器としてトップクラスの分解能が達成された。パルサー信号による回路系ノイズは 0.21% であり、検出器固有のエネルギー分解能は 0.2%台を示した。表 3.3 には正孔、電子ロングドリフト時の実測、検出器

固有エネルギー分解能をまとめた。回路ノイズの影響を受けているためエラーバーが非常に大きいものの 2 つの試料いずれも電子･正孔長距離ドリフトにおいて Fano 因子は 0.3-0.5 となりポアソン統計限界よりも優れた値が得られた。

図 3.4 には本測定で得られたα線に対する Fano 因子、Si、Ge 検出器における文献値の比較を示す。 Fano 因子は低エネルギーX 線に対する応答で特に重要となり低エネルギーX 線に対する評価が多く報告されている。Alig らが理論的に求めた値[7]と比較すると Si, Ge 検出器の Fano 因子はいずれもエラーバーの範囲内で理論値と一致する。一方ダイヤモンド検出器については先行事例がなく、本研究で初めてα線を用いて Fano 因子が 1 より小さくなることが実験的に示された。一方、Si、Ge と比較し理論値よりも大きい値が得られている。同一材料間で異なる線種に対する Fano 因子評価について Si ではプロトン照射をした結果が報告されておりこちらは 0.16 と X 線よりもやや高い値となっている。また、5.486MeV に対するエネルギー分解能では 0.49 相当の値が得られており[10]、同材料間では X 線よりも荷電粒子が、荷電粒子間ではエネルギーが高いほど F が大きくなる傾向がある。したがって、ダイヤモンド放射線検出器についても低エネルギーX 線を用いて評価を行うことでさらに優れた Fano 因子が得られる可能性がある。より詳細な Fano 因子の評価を行うにあたり、今後は検出器容量の低下や、冷却による回路系ノイズの低減等を行ったうえで異なる線種についても評価する必要がある。

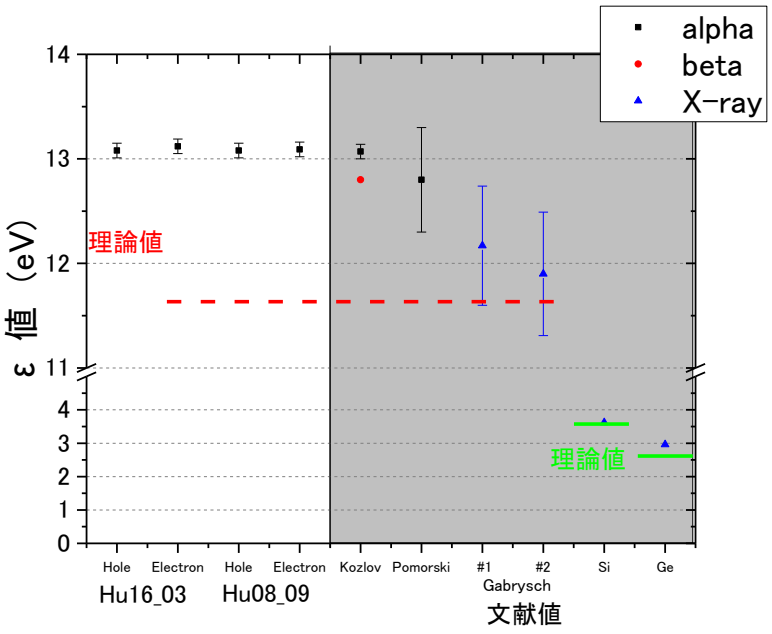

図 3. 2 実験で得られた ε 値と文献値の比較

表 3. 2 電荷収集効率から校正した ε 値

		電荷収集効率(%) (ε = 13.1eV)	$\varepsilon_{diamond}$
Hu16_03	Hole	100.(1)±0.6	13.0(8)±0.07
	Electron	99.8±0.6	13.1(2)±0.07
Hu08_09	Hole	100.(2)±0.6	13.0(8)±0.07
	Electron	100.(1)±0.6	13.0(9)±0.07

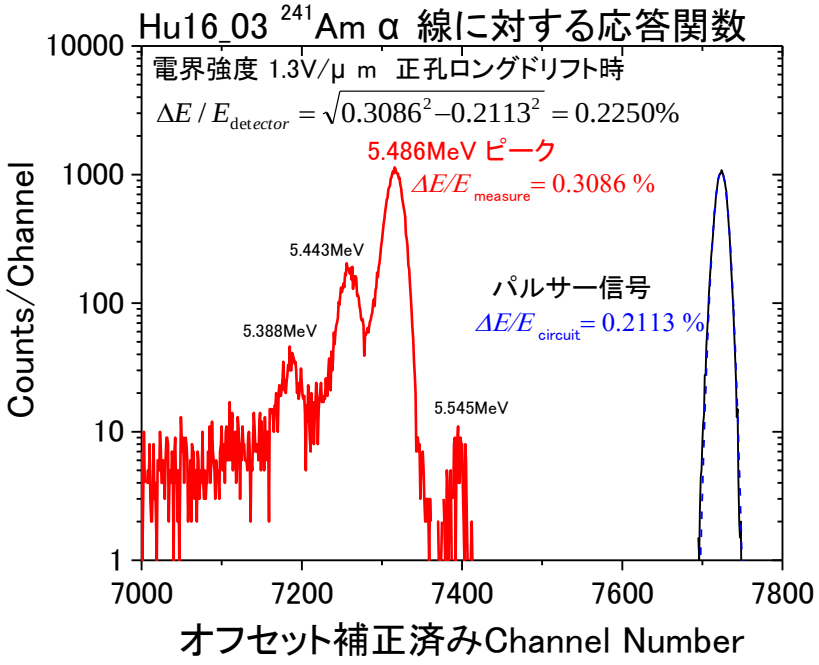

図 3. 3　α 線応答関数とパルサー信号による回路ノイズ評価

表 3. 3　Fano 因子評価結果

		$\Delta E/E_{measure}$	$\Delta E/E_{detector}$	ファノ因子 F
Hu16_03	Hole	0.3086 ±0.004	0.2250±0.0968	0.374±0.160
	Electron	0.3257±0.005	0.2479±0.1288	0.452±0.235
Hu08_09	Hole	0.3113±0.006	0.2417±0.0411	0.431±0.074
	Electron	0.3084±0.004	0.2471±0.0532	0.450±0.097

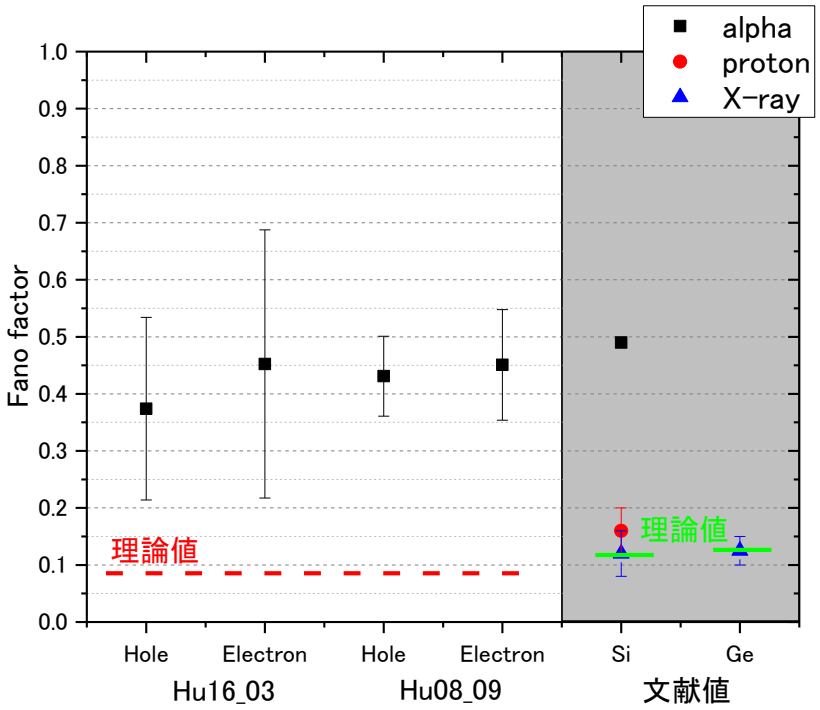

図 3. 4　実験で評価した Fano 因子と文献値との比較

3.5 結論

本章ではリフトオフ法で作製した電子・正孔ともに優れた電荷キャリア輸送特性をもつ単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器の ε 値・Fano 因子評価を行った。5.486MeVα 線を用いて評価を行った結果、電子正孔対平均エネルギーε= 13.1 ± 0.1 eV を得た。エネルギー分解能は ΔE/E = 0.31%が実測で得られた。この値は Pomorski の報告している最良値に匹敵する値であった。回路系ノイズを除いて評価した検出器固有エネルギー分解能は 0.2%台、Fano 因子は 0.3−0.5 となり。F<1 をダイヤモンド放射線検出器として初めて示した。

第 3 章の引用文献

[1] U. Fano, Physical Review 72 (1947) 26

[2] S. F. Kozlov, R. Stuck, M. Hage-Ali, and P. Siffert: IEEE Transaction on Nuclear Science NS-22 (1975) 160.

[3] G. J. Schmid, J. A. Koch, R. A. Lerche, and M. J. Moran, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 527 (2004) 554.

[4] M. Pomorski, E. Berdermann, A. Caragheorgheopol, M. Ciobanu, M. Kis, A. Martemiyanov, C. Nebel, P. Mortiz, Physica status solid (a) 203 (2006) 3152 Figure 8 c) より計算

[5] M. Gabrysch, E. Marklund, J. Hajdu, D. J. Twichen, J. Rudati, A. M. Linderberg, C. Caleman, R. W. Falcone, T. Tschentscher, K. Moffat, P. H. Bucksbaum, J. Als-Nielsen, A. J. Nelson, D. P. Siddons, P. J. Emma, P. Krejcik, H. Schlarb, J. Arthur, S. Brennan, J. Hasting, J. Isberg Journal of Applied Physics 103 (2008) 064909

[6] A. Owens "*Compound semiconductor radiation* "

[7] R. C Alig, S. Bloom, C. W. Struck, Physical review B 23 (1980) 5565

[8]F. Perotti, C. Fiorini Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A423 (1999) 356

[9] T. Yamaya, R. Asano, H. Endo, K. Ueda, Nuclear Instruments and Methods 159 (1979) 181

[10] E. Steinbauer, G. Bortels, P. Bauer, J. P. Biersack, P. Burger, I. Ahmad, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A339 (1994)102

[11] B.G. Lowe, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 399 (1997) 354

また、放射線計測に関する事項全般は

G.F Knoll 著、「放射線計測ハンドブック第 4 版」を参照した。

第 4 章 14MeV 中性子エネルギースペクトロメータ応用へ向けた応答関数評価

本章では磁場閉じ込め核融合におけるプラズマ診断手法の一つであるイオン温度計測に用いられる DT 中性子エネルギースペクトロメータへの応用を目指し、第 2 章で作製した電子・正孔ともに極めて優れた電荷キャリア輸送特性を持つ単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器に対して 14MeV 中性子に対する応答関数評価をおこなった結果を報告する。

4.1 研究背景

4.1.1 プラズマイオン温度計測のためのダイヤモンド検出器の特長

第 1 章で述べたようにダイヤモンド放射線検出器は 5.5eV のワイドバンドギャップによる高温動作[1,2]、低漏れ電流、可視光不感等[3]や優れた中性子耐性($> 10^{14}$ fast neutron/cm^2)[4]を有する。高移動度・高飽和ドリフト速度による高速応答性[5,6]も持ち、さらに ^{12}C(n,α)^{9}Be 反応を利用することで 14MeV 中性子計測に基づくプラズマイオン温度測定も可能であることからダイヤモンド放射線検出器は核融合プラズマ診断用検出器として応用が期待されている[7]。

4.1.2 中性子計測によるプラズマイオン温度測定原理

核反応により発生した中性子はプラズマとほとんど相互作用せずにプラズマの外へ飛び出す。このため中性子計測は核反応率と反応前のイオンの情報をもたらす。発生する中性子のエネルギーは核反応以前のイオンの並進速度を反映したものとなり、イオン温度 Ti の等温マクスウェル分布の場合その半値幅は近似的に

$$\Delta \mathrm{E}\ (\mathrm{keV}) \cong \begin{cases} 82\sqrt{T_i(keV)} & DD\ neutron \\ 177\sqrt{T_i(keV)} & DT\ neutron \end{cases} \qquad (4-1)$$

であらわされる[8]。
これにより生成した中性子のエネルギーを測定することによりプラズマのイオン温度計測が可能となる。

4.1.3 14MeV 中性子エネルギー計測に基づくプラズマイオン温度測定法と他計測手法との比較

中性子を用いたイオン温度計測方法には散乱中性子、反跳陽子のエネルギーを計測する方法、閾値を用いた核反応を利用する方法がある。単結晶ダイヤモンドを用いた中性子エネルギースペクトロメータは後者に分類される。

入射エネルギーE_nを 散乱中性子エネルギーE_n', 反跳陽子エネルギーE_p, 中性子散乱角 θ_n、陽子反跳角 θ_pについて運動方程式を記述すると

$$\mathrm{E_n} = E_n cos^2\theta_n$$
$$\mathrm{E_p} = E_p(1 - cos^2\theta_n) = E_n cos^2\theta_p$$

とあらわされる。このうち、散乱中性子、反跳陽子のエネルギー、中性子、陽子の反跳角のいずれかを測定できれば中性子のエネルギーを求めることができる。中性子の散乱角 θ_n を固定し、$E_{n'}$を測定する方法として中性子 ToF 法がある。反跳陽子の入射角を固定し、エネルギーを計測する方法には反跳陽子磁気スペクトロメトリー(MPR) [9]が、反跳陽子のエネルギーE_p と ToF 計測の組み合わせにより散乱中性子計測から中性子のエネルギーE_n を求める方法には TANCY[10]、反跳陽子スペクトルテレスコープ[11]などがある。しかし、MPR では数 m オーダーの磁場偏光エネルギー分析器やコイルを、TANCY では直径 1m 程度の円周上に配置したシンチレータアレイを必要とするため測定系が複雑かつ大きくなる。

一方、単結晶ダイヤモンド放射線検出器は閾値を持った以下の核反応を利用する。

$$^{12}C + n(14.1MeV) \rightarrow \quad ^{9}Be + {}^{4}_{2}He + 5.7\ MeV$$

この反応は 5.7MeV の吸熱反応であり、中性子のエネルギー拡がりを反映したα粒子と ^{9}Be による 8.4MeV のエネルギーを持ったピークが検出される。2MeV にわたって競合する核反応が無いため 50keV までのプラズマイオン温度計測が可能である[12]。測定素子が数 mm 角と小さく、複雑な機構を要さないため空間制限のある核融合装置においても設置が容易であり、アレイ化により従来装置よりも小さな体積で空間分布計測を行うことも将来的に見込める。

Joint European Tours (JET) 等の核融合装置においては商用のシリコン表面障壁半導体検出器が広く用いられてきた。しかし、10^{11}-10^{12} neutrons/cm^2 の中性子照射により波高値低下等の影響が現れることが知られている[13]。International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER)ではさらに高い中性子フルエンス下での動作が求められる。磁場閉じ込め核融合装置では一旦運転が行われると検出器の交換を頻繁に行うことができないため、放射線耐性に優れた検出器が必要とされる。ダイヤモンドはシリコンと比較し、低原子番号に伴い核反応生成物の原子番号が低く、原子のはじき出しに必要なエネルギーが小さく、吸収線量も少ない。これによりシリコンの 100 倍以上の中性子耐性を有する。Pillon らによるとダイヤモンド放射線検出器は 2 x 10^{14} neutrons/cm^2 の 14MeV 中性子照射に対してもエネルギースペクトル形状が変化しないことが確認されている[14]。この値は検出器設置位置における ITER 運転の 1 年分以上の中性子フルエンスに相当する。またダイヤモンド検出器は可視光不感であり、シリコンよりも低い原子番号によりγ線感度が低いという特長も併せ持つ。

4.1.5 既存ダイヤモンド検出器が解決すべき問題点

上記のようにダイヤモンド放射線検出器は 14MeV 中性子エネルギースペクトロメータとして理想的な特長をもつ。しかしながら、天然ダイヤモンド放射線検出器のうち、エネルギースペクトロメータとしての要件を満たすものは数例しか報告されていない[15]。これを解決するため高圧高温合成法やマイクロ波プラズマ CVD 法により作製された人工ダイヤモンドの応用が進められてきた[14, 16, 17]。近年、CVD ダイヤモンドの合成技術向上により $^{12}C(n, \alpha)^{9}Be$ 反応に対しエネルギー分解能 2-3%台の値も報告されるようになってきている[18]。しかしながら、これまでに CVD ダイヤモンド検出器において ^{241}Am 5.486MeVα 線に対するダイヤモンド放射線検出器で報告されている 0.4%未満のエネルギー分解能と比較すると $^{12}C(n,\alpha)^{9}Be$ 反応により生ずるピークのエネルギー分解能は中性子のエネルギー拡がりを考慮しても低く、改善の余地があった。この現象に関しては電子・正孔の電荷収集効率に差があることが 1 つの理由である[19, 20, 21]。

図 4.1 には検出器厚さに対して飛程の短いイオンが入射した場合、14MeV 中性子が入射した場合の電荷キャリアの収集過程[22]を示す。検出器厚さに対して飛程の短い場合、入射面や印加電圧の極性を変化させることで正孔、電子ドリフトにより起因する誘導電荷を観測することができる。しかし、中性子計測において、電荷キャリア生成位置は一様である。このためプラナ型の電極配置ではキャリア輸送特性の低い電子の影響を強く受けてしまいエネルギースペクトルが劣化してしまう。そこで電子正孔ともにすぐれた電荷収集効率エネルギー分解能を持つ検出器の使用によりこの改善が期待できる。

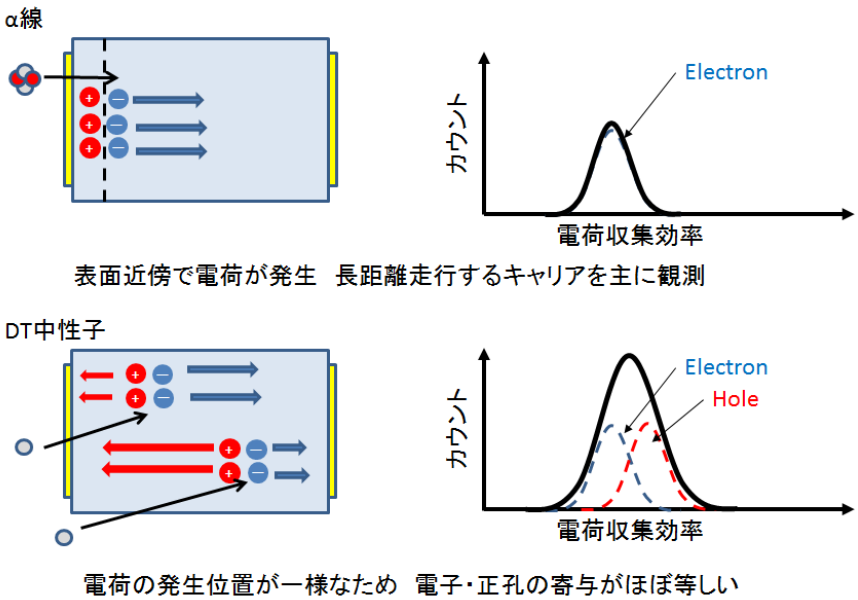

図 4. 1　α線、$^{12}C(n, \alpha)^{9}Be$ 反応による電荷キャリア収集過程の違い

4.2 本研究の目的

本研究では第 2 章で作製した、電子・正孔ともに極めて電荷キャリア輸送特性の優れた単結晶 CVD ダイヤモンド検出器により 14MeV 中性子応答関数評価を行い $^{12}C(n, \alpha)^{9}Be$ 反応のピーク分解能を評価した。

4.3.実験

4.3.1 使用サンプル

北大製試料には第 2 章で作製したサンプルを用いた。自立膜に対し Ti 電子ビーム蒸着後 400℃で 30 分加熱、Au を抵抗加熱蒸着しφ3mm 厚さ 100nm の TiC/Au オーミック電極を作製した。TiC/Au オーミック電極は銀ペーストと金線を用いて SMA レセプタクルと結線し信号読出、電圧印加用とした。裏面はエポキシを用いて Al 製検出器マウントにハウジング後、φ3mm 厚さ 100nm の Al ショットキー電極を抵抗加熱蒸着し Al 製検出器マウントと接地させた。Al 製検出器マウントは加速器運転時の高周波ノイズ侵入を防ぐため、信号読出し部分に対し静電シールドを施した構造とした。

また、比較のため Element Six 社製エレクトロニクスグレード単結晶 CVD ダイヤモンド試料(4.5 x 4.5 x 0.3 mm)に対し同構造で検出器作製した。表 4.1 には作製した検出器の ^{241}Am 5.486MeV α線 に対する電荷収集効率、エネルギー分解能、試料厚さをまとめた。電荷収集効率評価はダイヤモンド検出器、シリコン表面障壁型半導体検出器の誘導電荷量の比、それぞれの電子正孔対生成平均エネルギーを $\varepsilon_{si} = 3.62$eV、$\varepsilon_{diam} = 13.1$eV として計算している[23]。なお、Element Six 社製試料はエレクトロニクスグレードダイヤモンドを北大において過去 10 個検出器化したうち最も電荷収集効率、エネルギー分解能に優れたものを使用した。

表 4.1 応答関数評価に使用した単結晶 CVD ダイヤモンドの電荷キャリア輸送特性

Sample I.D	Charge collection efficiency* (%)		Energy resolution (%)		Thickness (μm)
	Hole	Electron	Hole	Electron	
Hu08_09	100.2	100.1	0.38	0.38	70
Hu16_03	100.1	99.8	0.38	0.38	150
E6 #1	99.7	99.6	0.48	0.48	300

*電子正孔対平均エネルギーを i.e. $\varepsilon_{si} = 3.62$ eV and $\varepsilon_{diam} = 13.1$ eV とした場合

4.3.2 14MeV 中性子に対する応答関数測定体系

14MeV 中性子応答関数評価は日本原子力研究開発機構核融合中性子源(FNS)でおこなった。測定体系を図 4.2 に示す。測定は 80 度ビームラインを用いた。重水素ビームを三重水素吸蔵 Ti ターゲットに照射し中性子を発生させた。加速電圧 350kV、ビーム電流 0.5～1mA 中性子発生数は～10^{11} neutron/sec であった。波高分析には電荷有感型前置増幅器(142A; Ortec), スペクトロスコピーアンプ(672; Ortec), マルチチャンネルアナライザ(WE7562; Yokogawa)を使用した。エネルギー校正は ^{241}Am 線源(5.486MeV α 線)により行った。ターゲット内での中性子減速・散乱・幾何学配置による中性子エネルギー拡がりを小さくするため検出器はターゲットを中心とするビームラインに対し 95-110 度に設置。ターゲット-検出器間距離は 30-56cm とし、計数率は最大 2×10^3 cps で計測をおこなった。

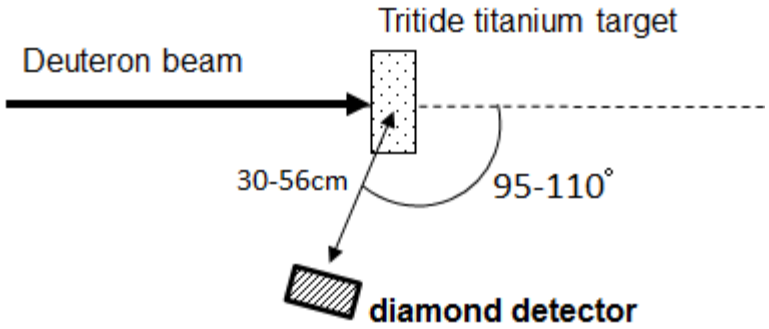

図 4. 2 FNS 80 度ビームラインにおける 14MeV 中性子計測体系

4.4 実験結果と考察

4.4.1 北大製試料の 14MeV 中性子応答関数例

図 4.3 にはビーム軸から 100 度に設置した北大製試料 Hu08_09 の 14MeV 中性子応答関数例を示す。^{12}C(n,α)^{9}Be 反応により生ずるピークのエネルギー分解能は半値幅で 1.5%となった。この値は過去に同一の中性子場で計測を行った Krasilnikov により報告されてきた天然ダイヤモンド検出器のエネルギー分解能の最高値 2.15%より優れた値であった[8]。単結晶 CVD ダイヤモンドにおいてもこれを超える値は報告されておらず、本測定で使用した検出器はダイヤモンド 14MeV 中性子エネルギースペクトロメータとして過去最高のエネルギー分解能を達成した。図 4.4 には Hu16_03 検出器で取得した 95、100、110 度における ^{12}C(n, α)^{9}Be ピークのエネルギーシフトを示した。わずか 5 度の違いにおいても 100keV オーダーのピークシフト、散乱による明瞭な形状変化を観測した。図 4.5 には Liskien により報告されている入射重水素ビームエネルギー350keV 時の DT 反応により発生する中性子の微分散乱断面積と散乱中性子のエネルギーを示す[25]。この値は文献値による核データとブライトウィグナーの公式から計算されており、DT 中性子は非弾性散乱による角度依存性を持つことがわ

かる。本測定で得られた実験値は 100keV 以内の精度で計算値と一致している。

表 4.2 には使用した検出器、ビーム軸からの角度、計数率、エネルギー分解能をまとめた。95 度においては Hu08_09 が 1.7%、Hu16_03 が 1.8%をそれぞれ得た。

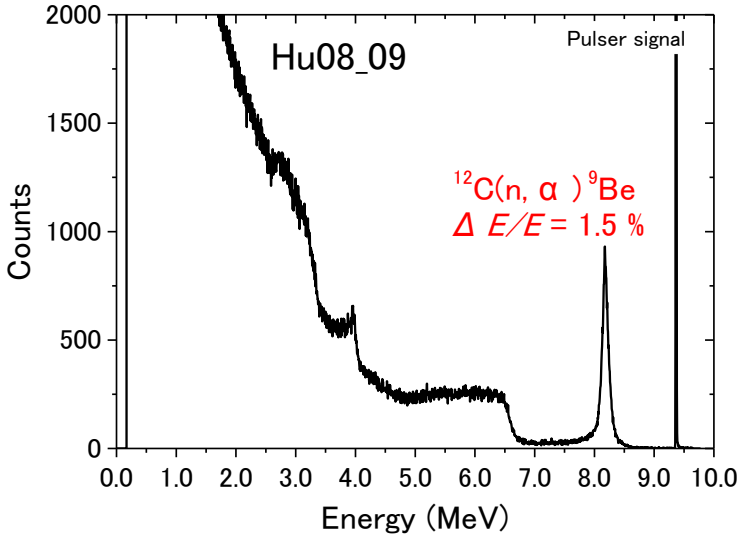

図 4. 3 Hu08_09　応答関数例

重水素ビームと検出器のなす角は 100° 計数率は 200 cps であった。検出器の電界強度は 1.3 V/μm. ^{12}C(n,α)^{9}Be 反応のピーク分解能は半値幅で 1.5%を得た。

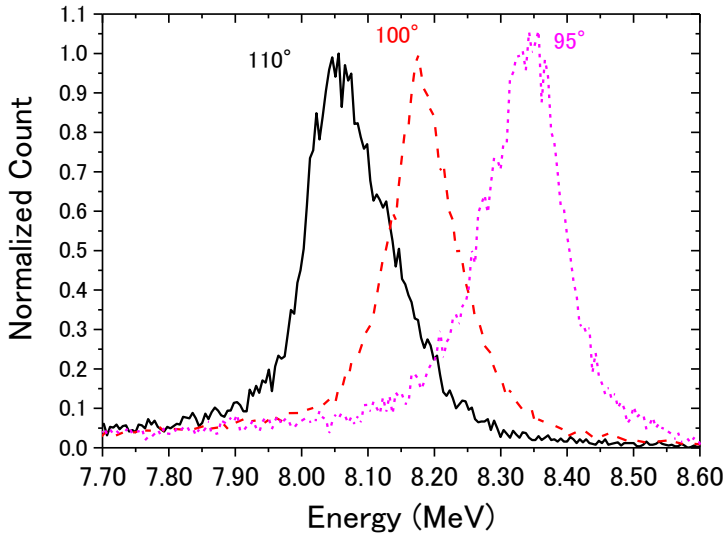

図 4. 4 Hu16_03 検出器で測定したビーム軸から 95、100、110 度における ^{12}C(n, α)^{9}Be 反応

実線、破線、点線はそれぞれ 110、100、95° で計測した場合の応答関数ピーク部分を示している。5-10 度差の違いによる約 100 keV のピークシフトが明瞭に観測された。

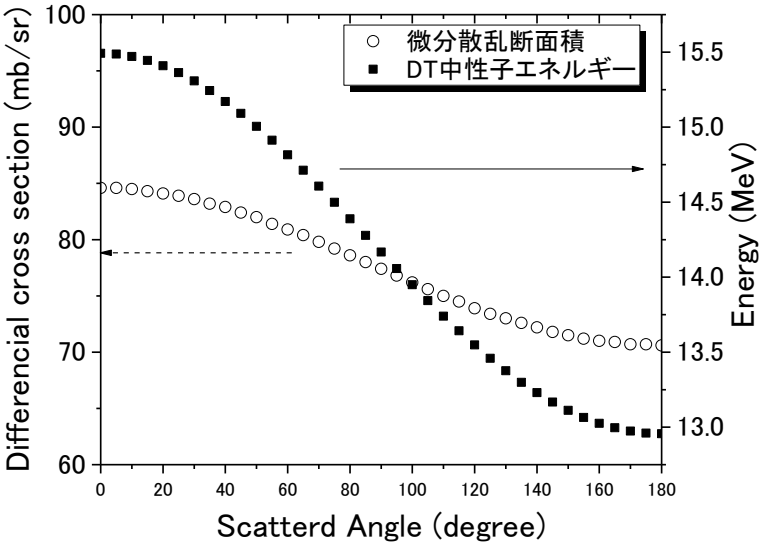

図 4. 5 入射重水素ビームエネルギー350keV 時の DT 中性子の微分散乱断面積と散乱中性子エネルギー[25]

応答関数取得条件と各条件でのエネルギー分解能

Sample I.D	ビーム軸との角度 (°)	σ_{ex} (%)	$\sigma_{diamond}$ (%)	計数率 (cps)	電界強度 (V/μm)
Hu08_09	110	1.8	-	300	1.3
	100	1.5	-	400	
	95	1.7	0.79	200	
Hu16_03	110	2.0	-	700	1.3
	100	1.5	-	400	
	95	1.8	0.99	200	
E6 #1	95	2.4	1.9	2000	1.3

4.4.2 検出器固有エネルギー分解能の評価

次に中性子エネルギー拡がりを考慮したダイヤモンド検出器固有のエネルギー分解能を求めた。^{12}C(n, α)^{9}Be 反応により生ずるピークのエネルギー分解能の実測値は

$$\sigma_{ex}^2 = \sigma_{diam}^2 + \sigma_{sc}^2 + \sigma_{sl}^2 + \sigma_{noise}^2 \quad (1)$$

であらわされる。ここで σ diam はダイヤモンド検出器固有のエネルギー分解能 σ sc、σ sl は中性子のターゲット内での散乱、減速によるエネルギー拡がりを示す。σ noise は回路系のノイズである。Krasilnikov らによると FNS において検出器をビーム軸から 95 度に設置した場合 TRIM コード[24]による計算結果では、σ_{sc} =1.48%, σ_{sl}=0.23%と報告されている[8 Krasilnikov 再度引用]。パルサー信号の拡がりから求めた回路ノイズは Hu08_09 が σ noise = 0.12%, Hu16_03 が 0.14%であった。これらの値を採用すると北大製試料の検出器固有エネルギー分解能はそれぞれ σ_{diam} = 0.79%, 0.99%となった。中性子のエネルギー拡がりを考慮した分解能では Krasilnikov らの天然ダイヤモンド検出器ではビーム軸から 95 度において 1.95%[15]、Cazzanig らによる単結晶 CVD ダイヤモンド検出器ではビーム軸から 90 度に設置した場合に対して 2.5%[18]と報告されている。本計測結果は検出器固有の分解能についてもこれまでに報告されている中で最良であった。

4.4.3 Element Six 社製試料との比較

図 4.5 には 95 度に設置した場合の Element Six 社製試料 E6 #1 の応答関数例を示す。設置位置の制限から 2kcps で計測を行った。^{12}C(n,α)^{9}Be 反応によるピークのエネルギー分解能は 2.4%であった。Hu16_03、Hu8_09 と同様の計算を用いると検出器固有エネルギー分解能は 1.9%となった。Hu16_03 と比較すると E6 #1 では 7MeV 近傍において ^{12}C(n,α)^{9}Be 反応低エネルギー側にブロードな成分が観測された。核データにおいてこの領域での核反応は報告されておらず、エネルギー校正のための ^{241}Am による α 線ピークにもテール成分は見られなかった。さらに、Cazzaniga ら、Schimd らにより報告されている Element Six 社製試料の 14Mev 中性子応答関数測定例にもこの成分は観測されていない[17, 18]。これらの結果から本測定では高計数率下で結晶内のわずかな電荷捕獲準位あるいは電界が不十分な領域が存在し、電荷損失を生じた可能性が高い。北大製試料においては 1kcps までこのような成分は観測されていない。

また、0-4MeV における弾性、非弾性散乱領域においても北大製試料と Element Six 社製試料には形状の違いが見られた。厚さ 300μm の E6 #1 では 3MeV において非弾性散乱によるピークが明瞭に観測された。一方、北大製試料では厚さ 70μm の Hu08_09、厚さ 150μm の Hu16_03 いずれも 1.5-2.5MeV にテールが観測され、ピーク形状が不明瞭になっている。

この要因としては、放射化したターゲットからの高エネルギーγ線の影響が考えられる[13]。北大製試料、Element Six 社製試料では結晶厚さが大きく異なる。そのため高エネルギーγ線のコンプトン散乱成分が 0-4MeV における応答関数の形状に差を生んだと考えられる。先行事例である Pillon や Kaneko らによる膜厚 20-25μm の積層型ダイヤモンド検出器による応答関数でも北大製試料と同様の形状が観測されている。[14, 16]

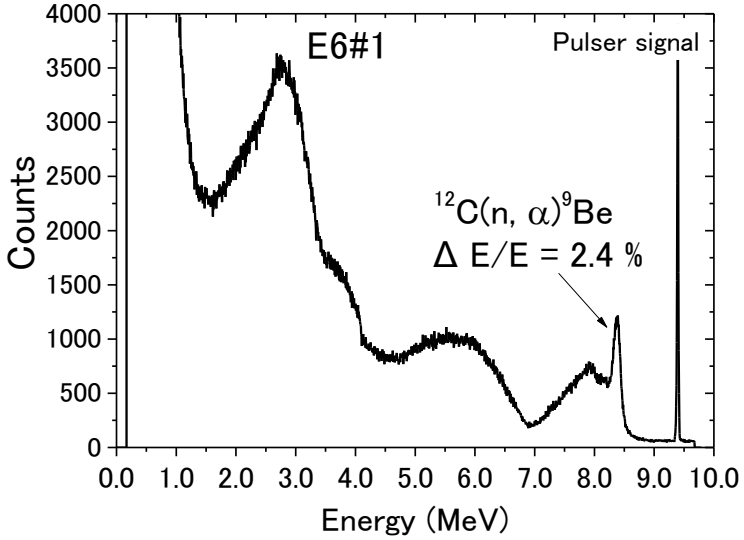

図 4. 6 E6#1 ビーム軸から 95° に設置した場合の 14 MeV 応答関数例

計数率は設置位置の兼ね合いから 2 kcps であった. ^{12}C(n,α)^{9}Be 反応に対するエネルギー分解能は 2.4%であった。7 MeV 近傍に観測されたブロードな成分はおそらく電荷捕獲によるものと考えられる.

4.4.4 エネルギー分解能をさらに改善するための今後の展望

本研究では従来数パーセントあった電子の電荷損失を 0.2%に改善した単結晶 CVD ダイヤモンドを検出器とすることで 14MeV 中性子エネルギースペクトロメータとして過去最高の検出器固有エネルギー分解能 0.79%を達成した。

優れたエネルギー分解能が得られた一方、計算値との不一致も現れた。Krasilnikov らよると 95 度において最もエネルギー拡がりが小さくなると報告されているが、本実験では 100 度において最小となった。^{12}C(n, α)^{9}Be 反応の 8.4MeV ピークに対し Δ E/E = 0.38%のエネルギー分解能、電子正孔の電荷収集効率差 0.2%を仮定した場合、検出器固有エネルギー分解能の計算値は 0.47%となる。ところが実測値とターゲット内の散乱減速のみを考慮し計算した値は 0.79%であった。この結果はターゲット周りのアセンブルによる散乱によるものと考えられる。誤差伝搬の式より計算値と実測値の差をとるとこれらによるエネルギー拡がりは 0.6%であった。より詳細に検出器固有分解能評価をするには検出器ハウジングやアセンブルを詳細に再現した中性子輸送計算が今後必要となる。これまでに小型かつ

1%よりも優れたエネルギー分解能を持つ中性子検出器は報告されておらず、本検出器は実験値と中性子輸送計算の詳細比較へ応用が期待できる。

4.5 結論

本章ではリフトオフ法による電荷キャリア輸送特性に優れた単結晶 CVD ダイヤモンド合成、検出器作製により 14MeV 中性子に対し、これまでに報告されている中で最高のエネルギー分解能 1.5%を実測値で達成した。ビーム軸から 95 度に設置した場合のターゲット内中性子散乱、減速、回路系ノイズを考慮した検出器固有の分解能は 0.79%であった。今後は電子電荷キャリア輸送特性のさらなる改善により $^{12}C(n,\alpha)^{9}Be$ 反応において 0.4%の検出器固有エネルギー分解能を得ることを目指す。同様に、より詳細にエネルギー分解能を求めるにはターゲット周りの構造を詳細に再現した中性子輸送計算を行う必要が求められる。

第 4 章の引用文献

[1] Y. Tanimura, J. Kaneko, M. Katagiri, Y. Ikeda, T. Nishitani, H. Takeuchi, and T. Iida, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 443 (2000) 325.

[2] M. Tsubota, J. H. Kaneko, D. Miyazaki, T. Shimaoka, K. Ueno, T. Tadokoro, A. Chayahara, H. Watanabe, Y. Kato, S. Shikata, and H. Kuwabara, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 789 (2015) 50.

[3] D. R. Kania, M. I. Landstrass, M. A. Plano, L. S. Pan, and S. Han, Diamond and Related Materials 2 (1993) 1012.

[4] A. Alekseyev, V. Amosov, Yu. Kaschuck, A. Krasilnikov, D. Portnov, and S. Tugarinov, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 476 (2002) 516.

[5] J. Isberg, J. Hammersberg, E. Johansson, T. Wikström, D. J. Twitchen, A. J. Whitehead, S. E. Coe, and G. A. Scarsbrook, Science 297 (2002) 1670.

[6] C. Canali, E. Gatt, S. F. Kozlov, P. F. Manfredi, C. Manfredotti, F. Nava I, and A. Quirini, Nuclear Instruments and Methods 160 (1979) 73.

[7] M. Isobe T. Nishitani, A. V. Krasilnikov, J. Kaneko, and M. Sasao, *Fusion Engineering and Design* 34-35 (1997) 573.

[8] H. Brysk, Plasma Physics 15 (1973) 611

[9] G. Ericsson, L. Ballabio, S. Conroy, J. Frenje, H. Henriksson, A. Hjalmarsson, J. Kallne, and M. Tardocchi, Review of Scientific Instruments 72 (2001) 759.

[10] G. Grosshög, D. Aronsson, K.-H. beimer, R. Rydz, N. G. Sjöstrand, L. O. Pekkari, and Ö. Skeppstedt, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 249(1986) 468.

[11]T. Iguchi, E. Takada, M. Nakazawa, J. Kaneko, T. Nishitani, T. Matoba, Y. Ikeda, Fusion Engineering and Design 34-35 (1997) 585

[12] J. Kaneko, Y. Ikeda, T. Nishitani, and M. Katagiri, Review of Scientific Instruments 70 (1999) 1100.

[13] G. Dearnaley and A. B. Whitehead, Nuclear Instruments and Methods 12(1961) 205.

[14] M. Pillon, M. Angelone, G. Aielli, S. Almaviva, M. Marinelli, E. Milani, G. Prestopino, A. Tucciarone, C. Verona, and G. Verona-Rinati, Journal of Applied Physics 104 (2008) 054513.

[15] A. V. Krasilnikov, J. Kaneko, M. Isobe, F. Maekawa, and T. Nishitani, *Review of Scientific Instruments* 68 (1997) 1720.

[16] J. H. Kankeo, T. Teraji, Y. Hirai, M. Shiraishi, S. Kawamura, S. Yoshizaki, T. Ito, and T. Sawamura, *Review of Scientific Instruments* 75 (2004) 3581.

[17] G. J. Schmid, J. A. Koch, R. A. Lerche, and M. J. Moran, Nuclear Instruments and

Methods in Physics Research A 527 (2004) 554.
[18]C. Cazzaniga, M. Nocente, M. Rebai, M. Tardocchi, P. Calvani, G. Croci, L. Giacomelli, M. Girolami, E. Griesmayer, G. Grosso, M. Pillon, D. M. Trucchi, and G. Gorini, Review of Scientific Instruments 85 (2014) 11E101.
[19] Y. Sato, T. Shimaoka, J. H. Kaneko, H. Murakami, M. Isobe, M. Osakabe, M. Tsubota, K. Ochiai, A. Chayahara, H. Umezawa, and S. Shikata Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 784 (2015) 147.
[20]N. Tsubouchi, Y. Mokuno, A. Kakimoto, F. Fujita, J. H. Kaneko, H. Yamada, A. Chayahara, and S. Shikata, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 286 (2012) 313.
[21] J. H. Kaneko, F. Fujita, Y. Konno, T. Gotoh, N. Nishi, H. Watanabe, A. Chayahara, H. Umezawa, N. Tsubouchi, S. Shikata, and M. Isobe, Diamond and Related Materials 26 (2012)45.
[22] M. Pillon, M. Angelone, A.V. Krasilnikov, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 101 (1995) 473.
[23] S. F. Kozlov, R. Stuck, M. Hage-Ali, and P. Siffert: IEEE Transaction on Nuclear Science NS-22 (1975) 160.
[24] J.F. Ziegler, SRIM Software Package, Available Online at ⟨http://www.srim.org⟩.
[25]H. Liskien, A. Paulsen, Nuclear Data Tables 11 (1973) 569

第 5 章　荷電交換中性粒子計測モニタ応用へ向けたプロトン応答関数評価試験

本章では核融合プラズマにおけるイオン温度計測手法の 1 つである荷電交換中性粒子モニタへの応用を目指し、3MeV プロトンによる高計数率照射試験、150-400keV の低エネルギープロトンに対する照射試験を行い、高計数率下でのイオン計測、低エネルギー計測における問題点を明らかにした。

5.1 研究背景：磁場閉じ込め核融合における中性粒子計測

National Spherical Torus Experiment(NSTX)や Large Herical Device(LHD) において燃焼プラズマの安定維持のためにはプラズマ中のイオンの挙動を解析することが重要である[1,2]。イオン温度計測手法の一つとして中性粒子計測がある。中性粒子は以下の式に示すようなプラズマ中の荷電交換により電荷を失いエネルギーを保ったままプラズマの外へ飛び出す。ここでH_p^+はプラズマイオン、H_p^0は生成された高速中性粒子を示す。

$$H_p^+ + H_c^0 \rightarrow H_p^0 + H_c^+$$

このイオン温度を反映した中性粒子をストリッピングセル等の荷電交換膜でイオンに変換し計測することでプラズマイオン温度計測が可能になる。計測する粒子のエネルギーはプラズマのイオン温度に大きく依存し NBI 加熱では 20-200keV, ICH 加熱では 20keV-3MeV の低エネルギーイオンの計測が求められる。さらに計数率：数 kcps~10kcps 下での安定動作が求められる。

従来、中性粒子計測にはストリッピングシステム、マイクロチャンネルプレートを組みわせた質量分析システムが用いられてきた。しかし、装置サイズが大きく、非常に高価なため空間制限のある領域において多チャンネル化に適さないという問題があった。これを解決し小型化するためにこれまでに Si 表面障壁型半導体検出器、天然ダイヤモンド検出器等の応用が試みられてきた。Si 表面障壁型半導体検出器[3, 4]は冷却することで高い分解能を得ることができるが、表面不感層により 25keV 以上の閾値を持ち、低ワイドギャップのため可視光に対し感度があること、また中性子照射により波高値が低下する問題があった。

一方、天然ダイヤモンド検出器[5, 6, 7]は、ワイドギャップにより室温－高温下で動作可能かつ可視光不感である。また、グラファイト電極形成により入射窓が薄く計測可能なイオンエネルギーの閾値が 10-15keV と Si 検出器よりも低くできることから中性粒子計測検出器として優れた特長を多く持つ。図 5.1 には天然ダイヤモンド検出器による ICRF、NBI 加熱に対するイオン温度履歴を示す。100ms オーダーで NBI 加熱によるイオン温度履歴観測に成功している。

これら天然ダイヤモンド検出器を使用した報告がいくつかあるものの多チャンネル化を

検討する場合には、電荷捕獲が少なく高計数率下で安定動作するダイヤモンドが複数必要になる。第 1 章で述べたように天然ダイヤモンドのうち検出器グレードとして使用できるものはごくわずかであり、個体差が大きいことが問題であった。とりわけ、高計数率下でポラリゼーションなしに安定動作するためには電荷キャリア輸送特性の担保されたダイヤモンドが必要となる。

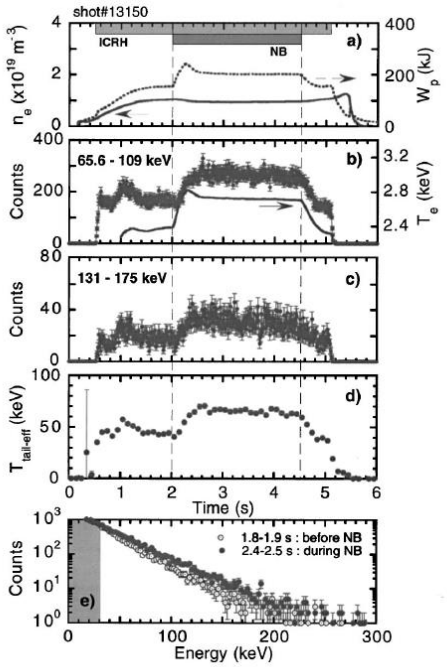

FIG. 5. Wave forms of ICRF-heated discharge with NBI in LHD, (a) n_e and W_p, (b) neutral particle flux and T_e, (c) neutral particle flux for higher energy range, (d) effective tail temperature with taking into account of charge exchange process; $H^+ + He^0 \rightarrow H^0 + He^+$, (e) energy distribution before/during NBI. B_t and R_{ax} were 2.75 T and 3.6 m, respectively. The energetic ion tail grows further during NBI.

図 5. 1 天然ダイヤモンド放射線検出器で観測した加熱に伴うイオン温度履歴[5]

5.2 研究目的

本章では荷電交換中粒子計測を念頭に置き、数百 keV~3MeV プロトンに対する照射試験を行い、単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器を応用する際の高計数率下、低エネルギー計測における問題点を明らかにした。

5.3 3MeV プロトン照射実験

5.3.1 測定体系

照射試験は理化学研究所仁科加速器研究センター、ペレトロン加速器にておこなった。図 5.2 には 3MeV プロトン照射試験の測定体系を示す。高圧電源(TC953;Tennelec)、電荷有感型前置増幅器(TC171 ; Tennelec)、シェイピングアンプ(2024; Canberra)、マルチチャンネルアナライザ(N957; CAEN)、スケーラー(RPN-031), レートメータ(441; ORTEC)を用いた。シェイピングアンプ出力は分岐し、エネルギースペクトル取得と計数率測定を同時に行った。検出器には北大単結晶 CVD ダイヤモンドを使用した。なお、2 章で紹介した電荷捕獲改善の取り組みを行う以前の試料であるため 10%程度電荷捕獲があることに注意されたい。3MeV プロトンは 50 × 50μm にコリメートし Al 電極側から入射させた。検出器バイアスは TiC/Au 電極から-100V 印加し正孔ロングドリフトさせる条件下で測定を行った。

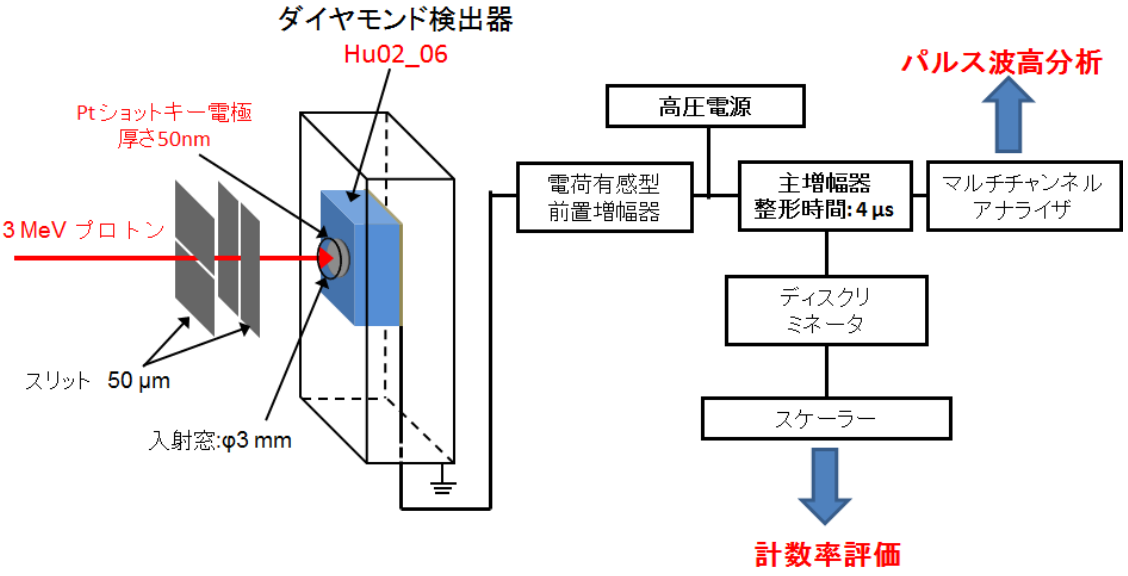

図 5. 2 3MeV プロトン照射試験測定体系

5.3.2 実験結果と考察

図 5.3 には 3MeV プロトン照射時間－電荷収集効率依存性を示した。横軸に照射継続時間、縦軸に測定開始時刻を 1 として規格化したピークチャンネルを示した。図 5.4 は横軸を単位体積当たりに換算した入射粒子数に変換したものである。開始直後 1.5~2.0kcps において 150 分で 8 割までチャンネル側にシフトした。矢印は逆バイアス印加による電荷の開放を示している。2.0-3.0kcps での照射に移る際に電荷の開放を行ったところ波高値の回復が観測された。以降最大~7.0kcp までビーム電流を変化させて計測を行ったが逆バイアスによる回復、波高値の低下が繰り返し見られた。さらに 6.0-7.0kcps 照射では逆電荷開放を長時間おこなったところ測定開始時の 9 割まで波高が回復した。これらの結果から塑性的な変

化ではなく結晶内の電荷捕獲によるポラリゼーションが波高値の低下を引き起こしているものと考えられる。

図 5.5 には図 5.4 における(A)-(E)各点のパルス波高分布形状を示す。逆バイアス印加前後の点(B)、(C) を比較すると電荷の開放により低チャンネル成分が消失していることがわかる。一方、高計数率下の(E)、(F)点ではそれぞれ(C)、(E)点と同等まで波高値が回復しているもののピーク半値幅が大きく拡がっており、高計数率下で高いエネルギー分解能を保持するには電荷捕獲が致命的となることがわかる。

Si 表面障壁半導体検出器とポラリゼーションの比較を行うため、先行研究より 1MeV プロトンに対する Si 表面障壁型半導体検出器の照射データ[8]を用いて以下の式から単位体積当たりのエネルギーデポジット量と波高減衰の影響を比較した。

$$\mathrm{E_d}(eV/cm^3) = \frac{N \times E_{in}}{S \times L} \quad (5-1)$$

ここで E_d は単位体積あたりのエネルギーデポジット、N は入射粒子数、E_{in} は入射イオンのエネルギー、S は入射面積、L は飛程を示す。飛程はシミュレーションコード SRIM2008[9]を用いて求めた。1MeV プロトンに対する Si の飛程は~16 μ m、3MeV プロトンに対するダイヤモンドの飛程は 48 μ m でありどちらも有感層内でエネルギーデポジットされる。図 5.6 にはエネルギーデポジットに対するピークチャンネルシフトの比較を示した。Si 表面障壁型検出器は 2.7x10^{21} eV/cm^3 まで測定開始時の 9 割の波高値を保っている。SRIM2008 によるモンテカルロシミュレーションでは 1MeV プロトンによる Si のはじき出し、3MeV プロトンによる炭素原子のはじき出しはそれぞれ 26, 12 vacancy/ion であった。この結果は塑性的な変化による影響がダイヤモンドのほうが小さいことを裏付けており、結晶中の電荷捕獲によるポラリゼーションが起こらなければダイヤモンド放射線検出器は Si 表面障壁型半導体検出器よるも優れる放射線耐性を有することが期待される。

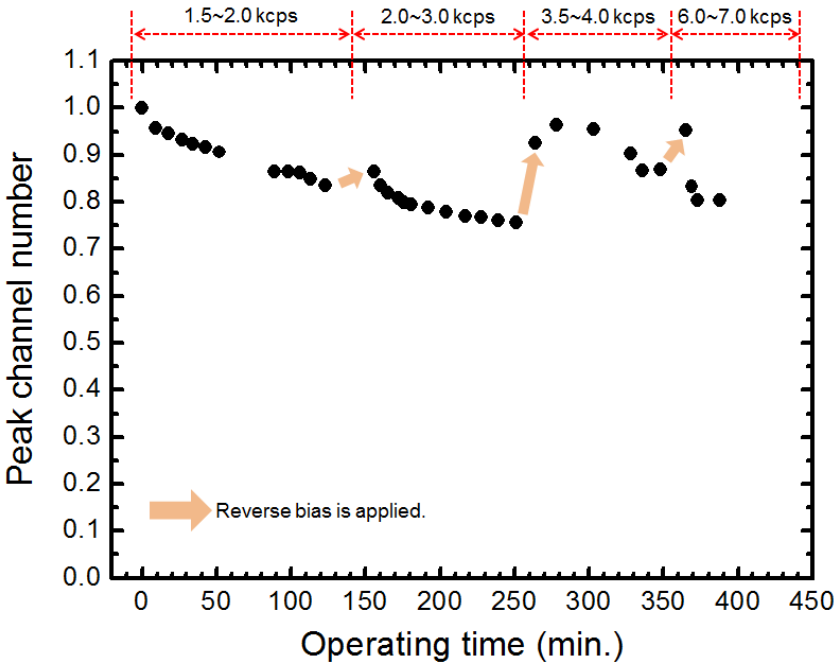

図 5. 3 計数率―電荷収集効率依存性

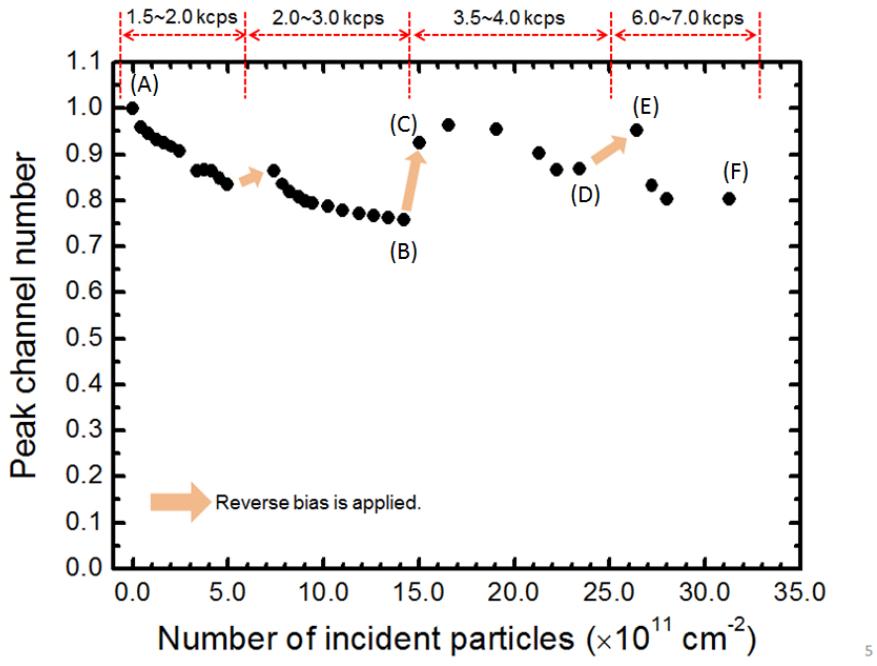

図 5. 4 入射粒子数―電荷収集効率依存性

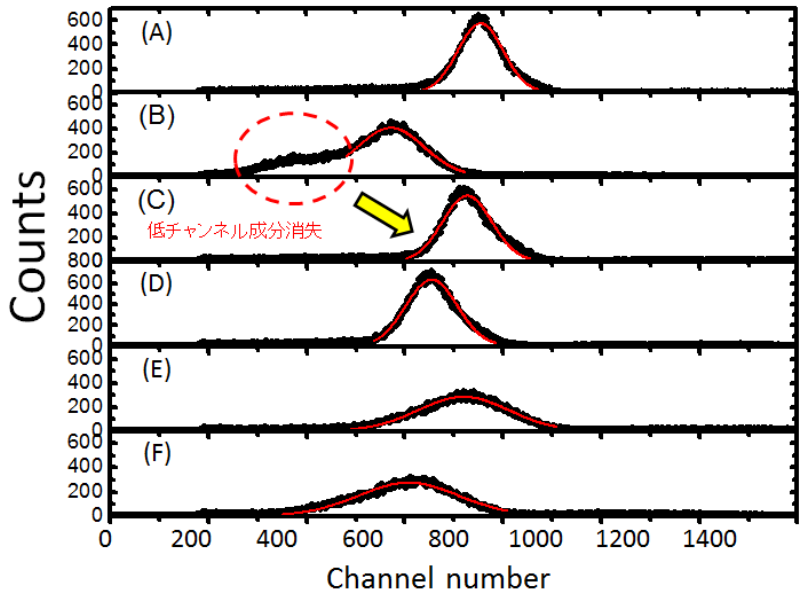

図 5. 5 各点でのパルス波高分布形状

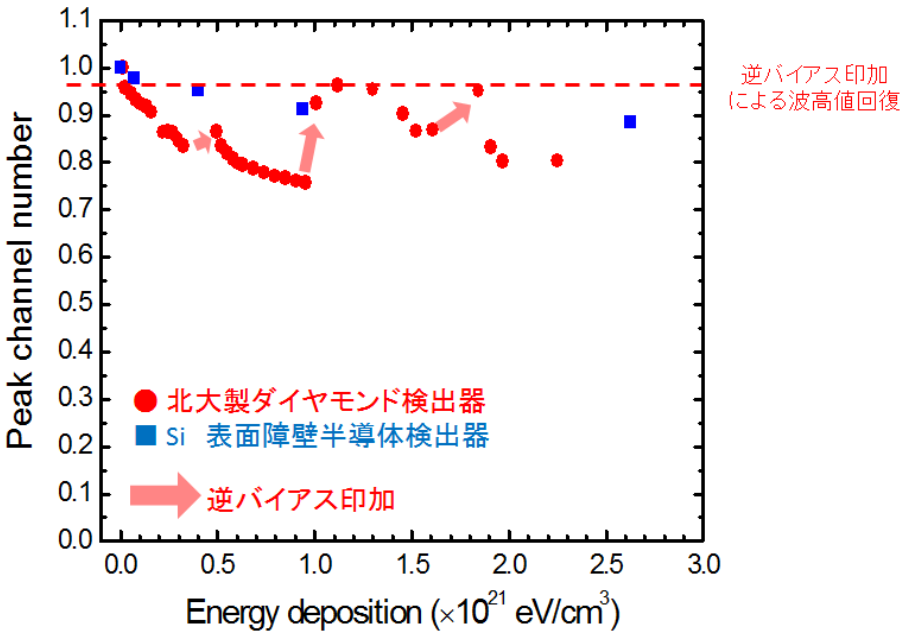

図 5. 6 Si 表面障壁型検出器とダイヤモンド検出器の波高減衰比較

5.4 ~400keV プロトン照射試験

5.4.1 測定体系

次に ICF 加熱におけるイオン計測を想定し低エネルギーイオン照射実験を行った。測定に使用した機器は 3MeV プロトン照射試験と同様であり、シェイピングアンプの出力を分岐、エネルギースペクトルと計数率を同時に取得した。プロトンのエネルギーは 200-400keV としφ3mm Al 入射窓から入射した。コリメータは配置せず入射窓全域にわたって照射をおこなった。Al の膜厚は 100nm であった。使用した検出器はメタン濃度 0.12%で合成した Hu11_06 であった。図 5.7 には同検出器のα線誘導電荷量分布測定例を示す。5.486MeVα線に対し正孔はほぼ 100%の電荷収集効率を持ち、電子電荷捕獲は 0.5%未満であった。TiC/Au 電極に－70V を印加し正孔長距離ドリフト条件下で計測を行った。

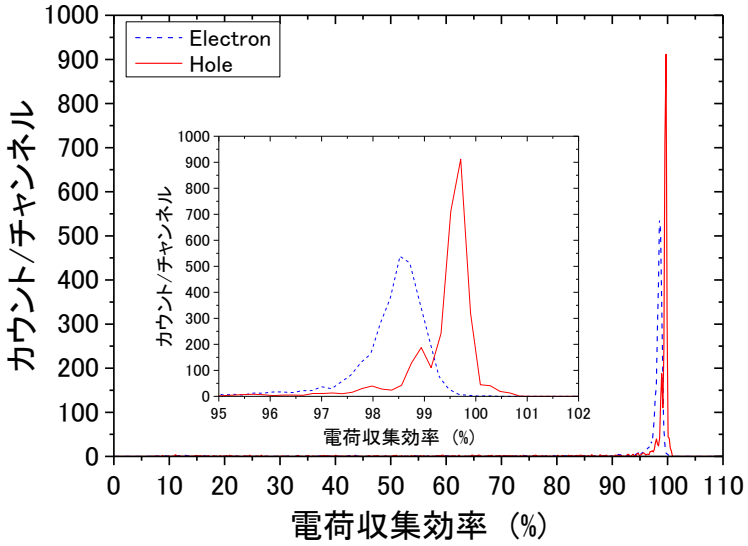

図 5. 7 Hu11_06 α線誘導電荷量分布測定例

5.4.2 実験結果と考察

図 5.8 に 400, 300, 250, 200keV プロトンに対するダイヤモンド検出器の応答関数例を示す。250keV までは明瞭なピークが観測されているが 200keV においてはテール成分が増加した。

図 5.9 には入射エネルギーに対するオフセット補正済みピークチャンネルの関係を示した。電極、界面でのエネルギーロスに対応する x 切片は約 100keV となった。一方、本実験で使用した厚さ 100nm の Al 電極における 400-200keV プロトンのエネルギー損失は 20keV 以下であるためスペクトル形状が大きく崩れる原因にはなりえない。したがって、電極-ダイヤモンド界面に不感層が存在するものと考えられる。ダイヤモンド―電極間の電荷損失については Galbiati らにより Cr、Ti 酸化物が界面の良好な接触を妨げることが報告

されている[10]。 北大における電極作製行程でも Ti 蒸着時の装置真空度の不足、あるいは酸素終端化にクロム酸用いていることからこれらが不感層形成要因として疑われる。良好なオーミックコンタクトを形成するためには水素終端化や DLC、グラファイト層形成を行い界面の抵抗を小さくしたうえで電極作製する必要がある。

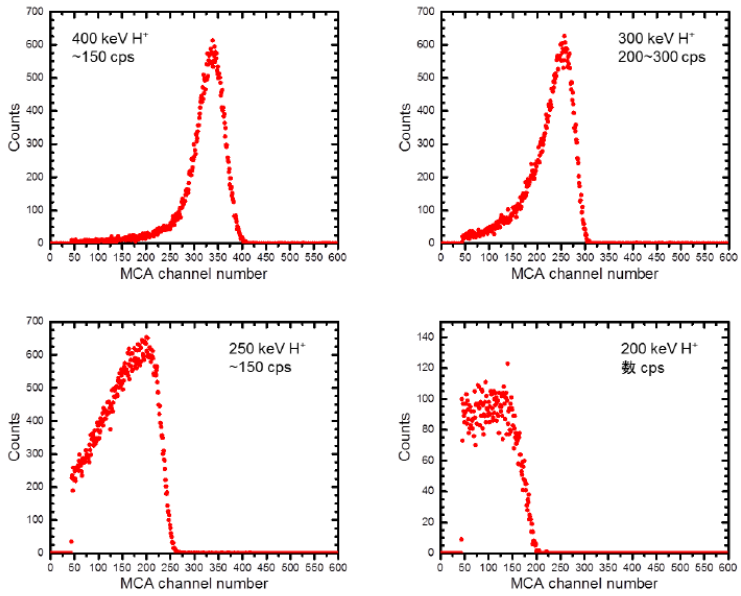

図 5. 8 数百 keV プロトンに対する検出器応答関数例

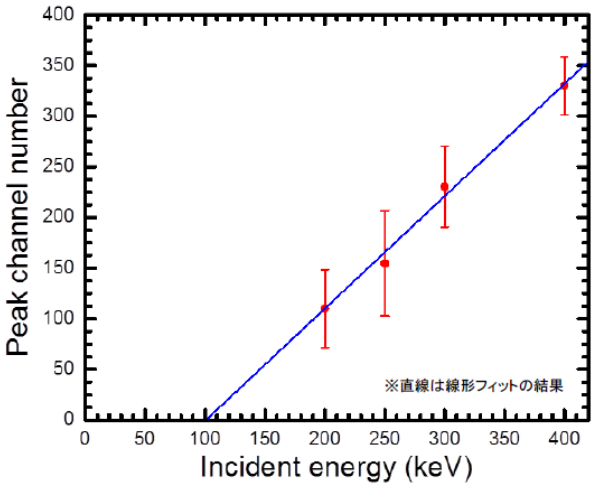

図 5. 9 入射プロトンのエネルギーに対するピーク ch のシフト

5.5 結論

本章では荷電交換中性粒子モニタへの応用を目指しリフトオフ法で作製した単結晶 CVD ダイヤモンド検出器に対し 3MeV イオンにおける高計数率照射試験、~100keV の低エネルギープロトン照射試験を行い、適用可能性を検討した。

3MeV プロトン照射試験では～10%の電荷捕獲を持つ従来試料では kcp で波高値が開始時の 8 割まで数分で低下することが確認された。逆バイアス印加による波高値の回復から塑性的な変化ではなく電荷捕獲が波高値低下の原因であることが明らかとなった。

~数百 keV プロトン照射試験では 100 nm の厚さを持つ Al 入射窓から 400-150keV プロトン照射を行ったところ 200keV 近傍からパルス波高が崩れた。Al 入射窓でのエネルギー損失は~20keV 程度であり、ダイヤモンド検出器の不感層の存在が示唆された。より低エネルギー、高計数率下での安定動作を可能にするためには、電荷捕獲キャリア輸送特性に優れた結晶を使用するだけでなくダイヤモンド―電極間の不感層抑制がより重要であることが明らかになった。不感層形成を避けるために水素終端ダイヤモンド上への電極作製、ダイヤモンド電極間へ DLC、グラファイト電極層を設けることで良好なオーミックコンタクトを作製した検出器を作製し、再実験を行う必要がある。

第 5 章の引用文献

[1] M. Sasao, T. Nishitani, A. Krasilnilov, S. Popovichev, V. Kiptily, J. Kallne, Fusion Science and Technology 53 (2008) 604.

[2] D.S. Darrow, S.J. Zweben, H.W. Herrmann, Fusion Engineering and Design 34/35 (1997) 53.

[3]T. Yamamoto, M. Osakabe, M. Isobe, Y. Yoshimura, R. Kumazawa, T. Mutoh, T. Watari, O. Kaneko, C. Takahashi, K. Matsuoka, S. Kado and CHS group, Review of Scientific Instruments 72 (2001) 615.

[4]M. Osakabe, T. Yamamoto, Y. Takeiri, T. Mutoh, E. Asano, K. Ikeda, K. Tsumori, O. Kaneko, K. Kawahata, N. Ohyabu, O. Motojima, and LHD Experimental Group, Review of Scientific Instruments 72 (2001) 789.

[5]M. Isobe, M. Sasao, S. Iiduka, A. V. Krasilnikov, S. Murakami, T. Mutoh, M. Osakabe, S. Sudo, K. Kwawahata, N. Ohyabu, O. Motojima, LHD experiment group Review of Scientific Instruments 72 (2001) 611.

[6] A. G. Alekseyev, D. S. Darrow, A. L. Roquemore, S. S. Medley, V. N. Amosov, A. V. Krasilnikov, D. V. Prosvirin, A. Yu. Tsutskikh, Review of Scientific Instruments 74 (2003) 1905.

[7]A. Alekseyev, G. Martin, Nuclear Instruments and Methods A 417 (1998) 400-404

[8] S. Nakamoto, T. Aoki, K. Kawabata, K. Norisawa, M. Sakisaka, Japanese Journal of Applied Physics 13 (1974) 524.

[9] J.F. Ziegler, SRIM-2008 Software Package, Available Online at ⟨http://www. srim.org⟩

[10]A. Galbiati, S. Lynn, K. Oliver, F. Schirru, T. Nowak, B. Marczewska, J. A. Duenas, R. Berjillos, I. Martel, L. Lavergne, IEEE Transaction on Nuclear Science 56 (2009) 1863.

第 6 章　高速点火方式における高強度 X 線下で動作可能な中性子 burn ヒストリモニタへの単結晶 CVD ダイヤモンド検出器の適用試験可能性検討

本章では高速点火方式慣性核融合における中性子バーンヒストリモニタへの単結晶 CVD ダイヤモンド検出器応用を目指し、高強度 X 線、DD 中性子に対する応答関数評価を行った結果を述べる。

6.1.研究背景

6.1.1 慣性核融合と各研究機関の爆縮方式

慣性核融合における爆縮方式には間接照射方式と直接照射方式の 2 種類が存在する。図 6.1 には爆縮方式の概要を示した。米国の National Ignition Facility(NIF)、フランスの Laser Mega Joule(LMJ)では前者を採用している[1, 2]。この方法は金などの高原子番号材料からなるホーラム内壁をレーザー照射し、黒体放射により発生する X 線によりターゲットを爆縮させるため、爆縮均一性に優れるが X 線への変換効率が低く、点火には数 MJ の膨大な投入エネルギーを要する。一方、大阪大学やロチェスター大学では燃料球に直接レーザーを照射する後者の方式を採用している。レイリーテーラー不安定性[3]により爆縮均一性は間接照射に劣るものの、X 線への変換ロスがない事から、数百 kJ と間接照射に比べ相対的に小さな投入エネルギーで爆縮可能である。

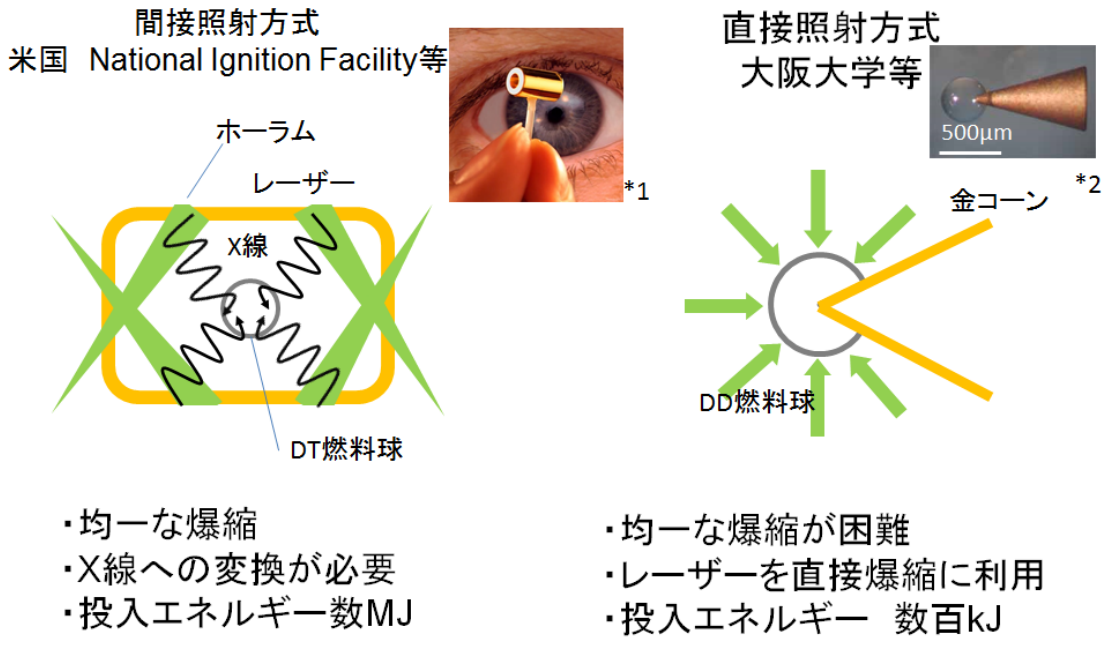

図 6. 1　間接照射方式と直接照射方式の比較

6.1.2 高速点火方式

近年、大阪大学では核融合利得向上のため直接照射方式をさらに発展させた高速点火方式の開発を進めている[4]。図 6.2 に概要を示す。この方式では燃料球に円錐状の金コーンを取り付けたターゲットを使用し、直接照射により形成された高温・高密度プラズマに対し、エネルギー1kJ, 時間幅 1ps の LFEX(Laser for Fast Ignition Experiment)レーザーを照射する。この結果、金コーンから発生する高速電子によりプラズマが加熱されるため、直接照射方式の 10 分の 1 程度のエネルギーで核融合点火が期待される。

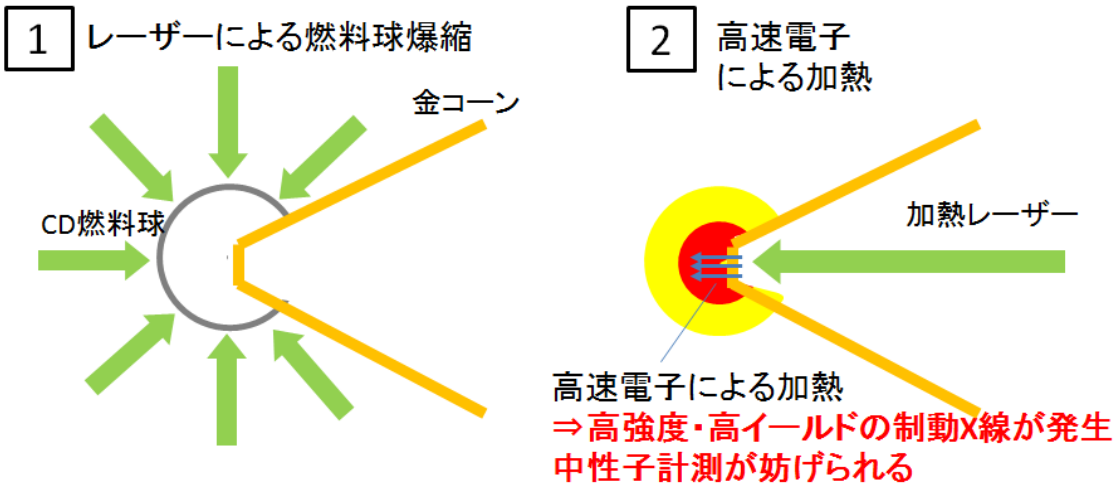

図 6. 2　高速点火方式の概要

6.1.3 点火達成のために必要なパラメータと計測手法

高速点火の最適化のためには爆縮不安定性、コアプラズマの挙動、高速電子による加熱のダイナミクス、中性子生成のダイナミクスを知ることが重要であり、これらの情報を得るために核反応粒子計測、X 線分光画像計測によるプラズマ診断が試みられている。核反応粒子計測においては多チャンネル中性子スペクトロメータ(MANDALA)[5]、多チャンネル高速液体シンチレータ[6]による中性子飛行時間測定法の結果から 1 次反応、2 次反応で生成した中性子数により燃料面密度の取得に成功している。また、X 線分光画像計測では高速 X 線ストリークカメラ[7, 8]によりコアプラズマの時間・空間的情報、高速電子の温度分布、LFEX レーザー照射タイミングの取得に成功している。しかし、高速点火方式においてはプラズマを追加熱するための高速電子に起因する高強度制動 X 線が中性子計測の障害となる。

図 6.3 にはレーザー爆縮による燃料球半径、中性子発生量の時間変化模式図を示す。中性子生成量のピーク時刻を中性子 bang タイム、そして bang タイム近傍の中性子生成履歴を burn ヒストリと呼ぶ。中性子生成量・生成履歴は加熱レーザーの照射タイミングにより

大きく変化することが予測されており、高速点火の最適化のためこれらを実験的に観測できる検出器が求められているが、中性子 burn ヒストリの測定はいまだに成功しておらず、時間分解能 100ps 未満でこれらの測定ができる検出器が求められている。

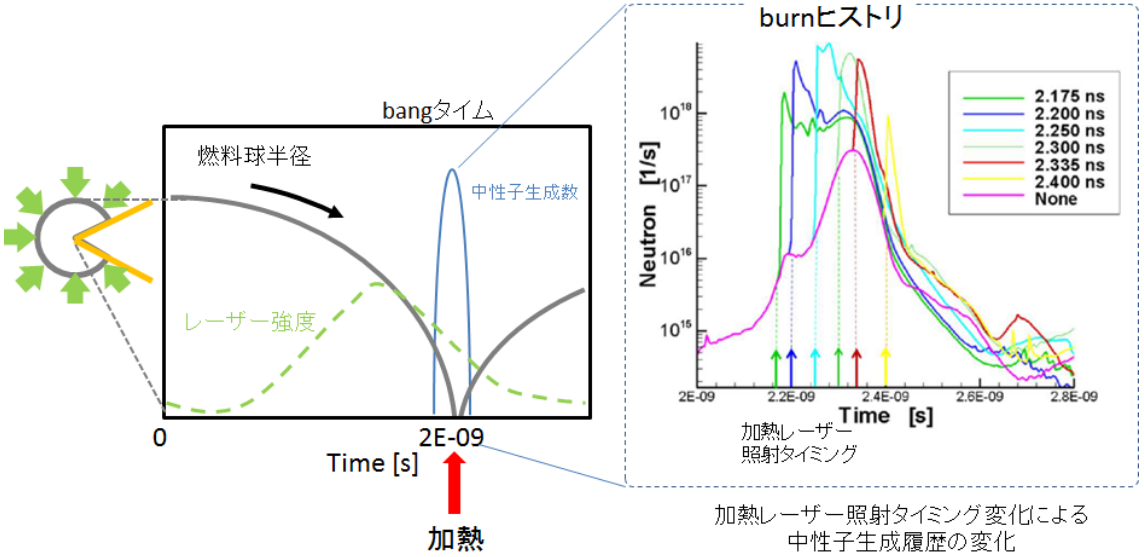

図 6. 3 中性子 burn タイムと burn ヒストリの概要[9]

6.1.4 Burn タイム・burn ヒストリ計測と用いられる検出器

これまで bang タイム、burn ヒストリ測定用検出器は NIF において多く開発されてきた。NIF における bang タイム・burn ヒストリ検出方式にはプラスチックシンチレータを用いる方法、ガスチェレンコフ検出器を用いる方法、多結晶 CVD ダイヤモンド検出器を用いる方法の 3 種類に大別される。表 6.1 に計測手法についてまとめた。

プラスチックシンチレータを用いる方式は中性子総生成数が 10^{15} 以下の DT 反応に対する計測で主に用いられており、bang タイム計測ではシンチレーション光を光電子増倍管との組み合わせ、burn タイム計測ではストリークカメラとの組み合わせが使われており、デコンボリューション後の時間分解能はそれぞれ 100ps, 30ps を達成している[10, 11]。ガスチェレンコフ検出器は中性子生成数の増加に伴い総中性子生成数 10^{15} 以上において DT 核融合で発生する ^{3}He の緩和に伴う 16.5MeV γ 線を検出する方法である。この方法は光子を検出するためイオン温度による時間拡がりの影響を受けない利点がある。シンチレータと同様に γ 線 bang タイム測定には光電子増倍管の組み合わせ、γ 線 burn ヒストリ測定においてはストリークカメラの組み合わせにより計測が行われる[12,13,14,15,16]。多結晶 CVD ダイヤモンド検出器は電流モードで動作し、総中性子生成数 10^{15} 以下において中性子 bang タイム計測に用いられてきた。また間接照射におけるホーラムからの X 線 bang タイム計測や D^{3}He 反応によるプロトン計測用検出器としても用いられている[17,18]

表 6. 1 高速中性子の計測手法とデコンボリューション後の時間分解能

方式	計測対象	Bang タイム	Burn ヒストリ	中性子発生数 (neutrons/shot)	時間分解能 (ps)
多結晶ダイヤモンド検出器	DT/DD 中性子	○	×	10^{10}~	100
BC422 + PMT		○	×	10^{6}~10^{15}	30
BC422 + ストリークカメラ		○	○	10^{9}~10^{15}	100
ガスチェレンコフ検出器 + PMT	16.5MeV γ 線	○	×	10^{16}~	40
ガスチェレンコフ検出器 + ストリークカメラ		○	○	10^{16}~	-

6.1.5 高速点火方式特有の問題と解決策

一方、大阪大学における高速点火方式ではいまだに中性子 bang タイム・burn ヒストリの取得には成功していない。これは投入エネルギーが NIF よりも小さく、核反応断面積の小さい DD 燃料球による爆縮を行っているため総中性子生成数が 10^{7} 程度と少ないこと、高速点火時に発生する電子起因の制動 X 線が大量に発生し、中性子信号が S/N 的に埋もれてしまうことが解決すべき課題である。直接照射方式に関してはこれまでに有川らによって中性子感度向上のためプラスチックシンチレータと光電子増倍管を組み合わせた中性子 bang タイム計測方法が開発され、総中性子生成数 10^{6} 以上に対し計測に成功している[9]。しかし、高速点火方式においては、前述したように高速電子による最大エネルギー数十 MeV の制動 X 線が 10^{12}～10^{15}photon/shot 発生する。プラスチックシンチレータを使用した場合、図 6.4 に示すような減衰時間数 μ sec のアフターグローが発生。ベースラインシフトにより中性子信号が埋もれてしまうためシンチレータと光検出器を組み合わせた bang タイム、burn ヒストリ測定は困難となる[19, 20]。また、DD 反応利用のためチェレンコフ検出器による γ 線計測も利用できない。

先に述べた問題を解決し、高速点火に伴う高強度 X 線下で使用できる中性子 bang タイム、中性子 burn ヒストリ検出器を実現するには以下の 2 つが求められる

(1)X 線信号が速やかにベースラインへ収束

(2)十分な S/N で中性子信号を計測できる

上記を達成する手段として我々は単結晶ダイヤモンド検出器に着目している。前述したように、NIF においては多結晶 CVD ダイヤモンド検出器による中性子 bang タイム測定が報告されているが、中性子 burn ヒストリの取得は報告されていない。これは多結晶を使用する場合、結晶粒界における電荷捕獲の影響により出力信号が低下し、中性子の絶対量評価ができないためと考えられる[22, 23]。これをほぼ完全な電荷収集効率を持つ単結晶 CVD ダイヤモンドにすることで改善が期待できる。

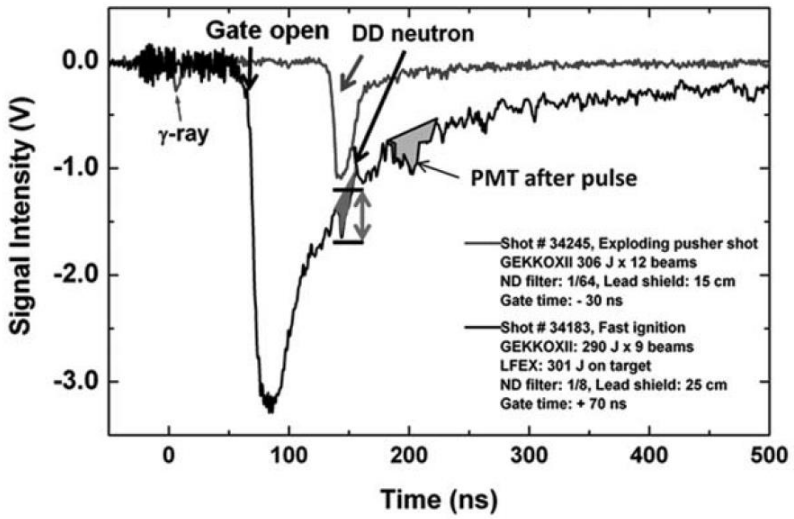

図 6. 4 高強度 X 線によるシンチレータ出力信号例[21]

6.2.研究目的

ほぼ完全な電荷収集効率と飛行時間測定法に十分な高速応答性を兼ね備えた単結晶 CVD ダイヤモンドを合成、検出器化したのち、中性子計測の障害となる高強度 X 線に対し時間応答を測定、飛行時間測定法における X 線と中性子到達時刻の差を比較することで単結晶ダイヤモンド検出器の高速点火用中性子 burn ヒストリモニタへの適用可能性を実験的に検証し実現に向けた課題を明らかにすることを目指した。

6.3.実験

第 2 章と同様の方法で単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器を作製した。比較のため市販品である Element Six 社製エレクトロニクスグレード単結晶 CVD ダイヤモンドを使用して同構造の検出器を作製、評価に使用した。初めに、作製した検出器に対し電流アンプを用いたパルス波形観測を行い電荷キャリアのドリフト速度計測評価を行った。次に、大阪大学激光 GXII 号において高速点火による高強度 X 線、DD 中性子応答関数評価を行った。

最後にこれら実験結果から中性子burnヒストリモニタとしての適用可能性と解決すべき課題について検討した。

6.3.1 α線誘導電荷量分布測定と電流アンプを用いたドリフト速度測定

作製した検出器に対し、飽和ドリフト速度測定のため電流アンプを用いたパルス波形観測を行った。測定は室温真空中で行い ^{241}Am 線源(5.486MeV α線)に対する時間応答をアナログ周波数帯域 2GHz の広帯域電流アンプ(broadband amplifier; cividec)、アナログ周波数帯域 5GHz のデジタルオシロスコープ(Wavemaster8600AS; Lecroy)を用いて取得、30 発分の電流パルス出力信号の半値幅、検出器の膜厚から飽和ドリフト速度を求めた。

6.3.2 激光 XII 号における X 線・DD 中性子応答関数測定体系

大阪大学レーザーエネルギー学研究所、激光 XII 号において高速点火に伴う高強度 X 線・重水素ターゲット爆縮に伴う DD 中性子に対する単結晶ダイヤモンド検出器の応答関数取得を試みた。図 6.5 に測定体系を示す。測定にはアナログ周波数帯域 16GHz の Bias-Tee(picosecond Lab)、Detector power Supply(428; Ortec)。アナログ周波数帯域 4GHz、20GS/s のオシロスコープ(N2940A;キーサイト)を使用した。 実際の中性子 burn ヒストリ測定時はアナログ周波数帯域 20GHz のオシロスコープの使用を予定している。慣性核融合装置ではレーザー照射に伴う強力な電磁ノイズが発生し、これが計測に大きな影響を及ぼす。そこで検出器から測定計器までを金属管、自作した Cu 製シールドボックスにより電磁遮蔽した。検出器導入ポートはアクリルフランジの使用によりターゲットチャンバーから絶縁、シールドボックス内の測定計器を UPS バッテリー駆動させることで測定系を電気的フローティングさせた。さらに光ファイバーとフォトダイオード(S5371; Hamamatsu)によりタイムフィデューシャル信号を取得しフローティングを維持したままタイミング計測を行える系を構築した。

DD、DT 中性子のドップラー効果による到達時間の拡がりは下記のようにあらわされる[10]

$$\Delta t\ (ps) = \begin{cases} 778 \times d \times \sqrt{T_i}\ \ (2.45MeV\ \ DD\ neutron) \\ 122 \times d \times \sqrt{T_i}\ (14.1MeV\ \ DT\ neutron) \end{cases} \qquad (6-1)$$

ここで T_i はイオン温度(keV), d はターゲット検出器間距離(m)を示す。現状、FIREX プロジェクトでの高速点火におけるイオン温度は 0.5-1keV 程度である[25]。DD 反応で生成した 2.45MeV 中性子の時間拡がりを 100ps 未満に抑えて計測するために検出器はターゲット中心から約 5.7cm 以内に設置しなければならない。光子、DD 中性子の速度は 30cm/ns, 2.1cm/ns であるため X 線の 2.5ns 後に DD 中性子が検出器へ到達する。本測定におけるターゲット検出器間距離は他の計測器との立体角の兼ね合いから X 線、DD 中性子応答関数

評価時でそれぞれ 11cm, 14cm であった。

X 線応答関数測定には CH シェルを用い、LFEX レーザーでシェルを照射した。DD 中性子応答関数測定には爆縮速度を高め、高い中性子発生数を得るため厚さの薄い 2−3μmt の重水素ガス入り CD シェルを用いた。ターゲット爆縮は激光 GXII によるレーザーのみで行った。期待される DD 中性子発生数 10^8 neutrons/shot 検出器感度から期待される波高値は数 mV であったため、中性子信号であることを確認するために X 線と DD 中性子の到達時刻の差、CH シェルによる爆縮ショットとの出力信号比較を行った。

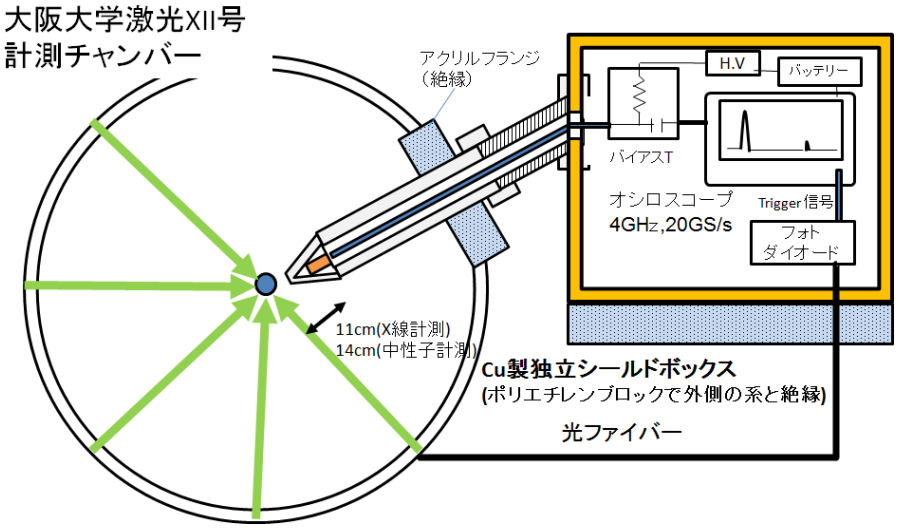

図 6. 5 DD 中性子応答関数評価体系

6.4 実験結果

6.4.1 ドリフト速度測定

図 6.6a)に北大製試料電流アンプ出力波形例を示す。オシロスコープで観測した電流パルス波形 30 発から求めた北大製試料 3 個のドリフト速度平均値は正孔:(1.2±0.4)×10^7cm/s, 電子:1.1±0.3 x 10^7cm/s であった。測定系の周波数帯域は電流アンプの 2GHz により制限されているため実際にはさらに高速な飽和ドリフト速度が期待できる。図 6.6b)には厚さ 500μm のエレメントシック社製試料の電流パルス波形を示す。こちらは正孔:(0.87±0.06) × 10^7cm/s, 電子: (0.69±0.2)×10^7cm/s を得た。これは Hammersberg[26], Jansen[27] らの報告している値と概ね一致している。

半導体検出器中の誘導電荷はショックレー・ラモの式によりプラナ型構造、一次元のモデルでは以下のように記述される。

$$\mathrm{dQ} = \frac{qN_0}{w}dx \quad (6-2)$$

ここで、x をキャリアの進行方向、Q は誘導電荷量、q は素電荷量、w は試料厚さ、No は初期に生成したキャリア数とすると、電流値は、

$$i(t) = \frac{\mathrm{dQ}}{dt} = \frac{qN_0}{w}\frac{dx}{dt} = \frac{qN_0}{w}v \quad (6-3)$$

となり誘導電荷量が等しい場合、試料厚さと飽和ドリフト速度、静電容量と同軸ケーブルのインピーダンスによりパルス波高とパルス幅が決まる。X 線に対する感度を低下させ、空間電荷制限電流モード[28]によるパルス波形低速成分の生成を防ぐことにより中性子信号に高い S/N 比を持たせることが出来る。そこで応答関数測定では上記を満たし飽和ドリフト速度に優れた厚さ 100 μ m の北大製試料を使用した。

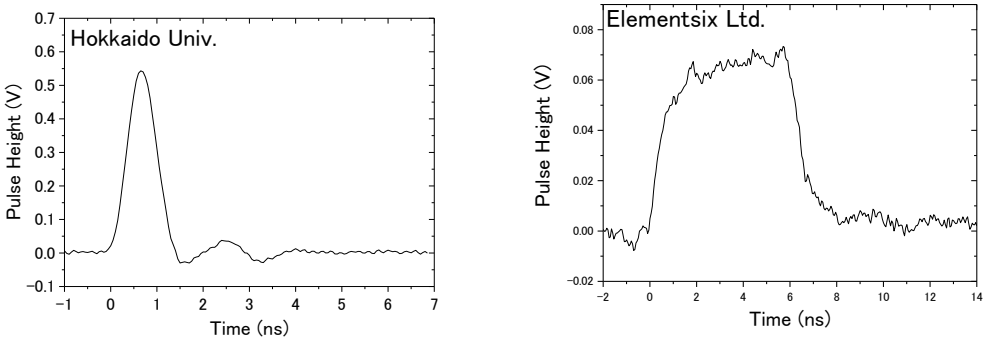

図 6. 6 単結晶 CVD ダイヤモンド電流パルス波形例
a) 北大製試料 b)エレメントシックス試料

6.4.2 高強度 X 線に対する応答測定結果

図 6.7 に LFEX レーザー照射により発生した高強度 X 線に対する北大製ダイヤモンド検出器の応答関数測定例を示す。制動 X 線に対し半値幅 0.8ns 未満、全幅約 2ns の高速なパルスを得た。Exponential 関数を用いて最小二乗法により求めた減衰時間は 470ps と極めて高速な応答を得た。一方で電気的フローティングを行ったにも関わらず 200mV 程度の電磁ノイズの影響を受けた。これはわずかな静電シールドの破れによるものと考えられる。

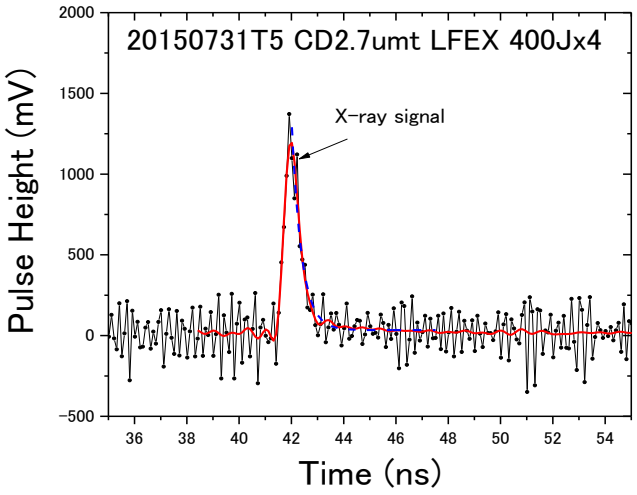

図 6. 7 LFEX レーザーによる CD シェル照射時 X 線応答関数例

6.4.3 DD 中性子に対する応答関数

図 6.8 には CD、CH シェル爆縮に対する応答関数を示す。従来数十 mV あった電磁ノイズが Cu 製シールドボックスによりピークトゥーピーク値で 2mV まで減少した。図中における時刻のゼロ点はフォトダイオードの立ち上がりに対応している。-43ns, -37ns において爆縮プラズマからの X 線、DD 中性子信号を観測した。X 線、DD 中性子信号の時間差は 6.2ns でありこれはターゲット中心－検出器間距離 14.5cm に相当する。

なお、中性子イールドはプラスチックシンチレータで校正した値である。図 6.8a), b), c)において X 線・DD 中性子時刻差は一様であり、シンチレータで計測した中性子イールドの増加に伴う波高値増加が観測された。さらに図 6.8d)において X 線信号のみが観測された。以上の結果から-37ns における波高は DD 中性子であることが確認された。

図 6.9 にはシンチレータで計測された中性子イールドに対する誘導電荷量の計算値、実測値を示した。ここで実測値は図 6.9a), b), c) の-37ns における波高に対しガウシアンフィットを行い面積から誘導電荷量を求めた値である。エラーバーはポアソン分布を仮定した場合のダイヤモンドと非弾性散乱する中性子数から決定した。ただし、今回の計測においては検出器と弾性散乱を起こした中性子数は数十個と少ないため非常に統計精度が低い。DD 中性子による反跳炭素原子のエネルギーデポジットのリニアリティ評価はより高い中性子イールド下で応答関数を取得する必要がある。

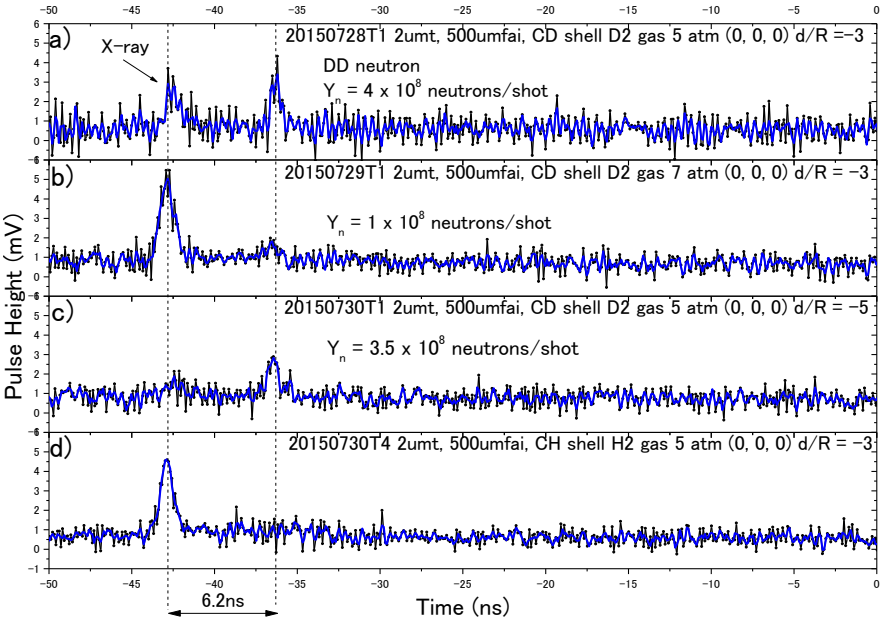

図 6. 8 CD、CH シェル爆縮に対するダイヤモンド検出器応答関数例

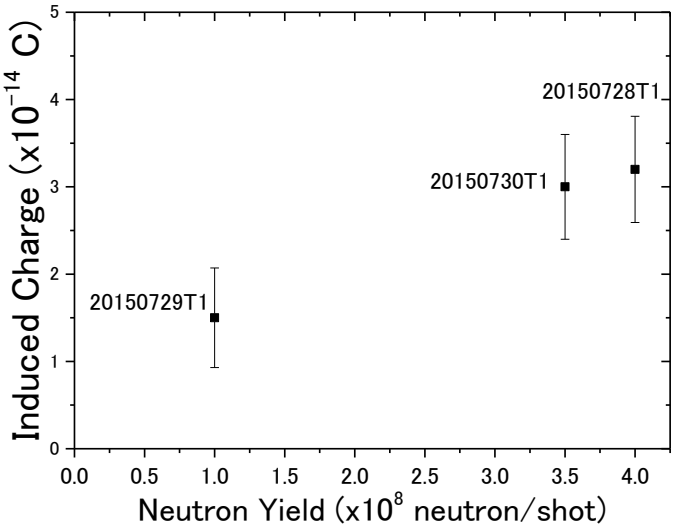

図 6. 9 DD 中性子による誘導電荷量の実測値と計算値の比較

6.4.4 高強度 X 線下における DD 中性子信号の S/N 試算

FIREX 計画が進展しイオン温度 5keV が達成されれば、総中性子生成数は 10^{11}neutron/shot が見込まれる。中性子の時間拡がりを 100ps 未満に抑えて計測するためには検出器ターゲット間距離を 5.7cm 以内にしなければならない。この時 DD 中性子による信号を X 線信号と完全に分離して計測するためには X 線信号が 2.5ns 未満にベースラインへ収束する必要がある。図 6.10 には本実験で得られた中性子応答関数の波高値、X 線応答関数の減衰時間から計算した 5.7cm 設置時の S/N 比を示す。本検出器は X 線に対し 470ps の減衰時定数、5.7cm 設置時に DD 中性子に対し波高値換算で 2×10^{-8} mV/neutrons の中性子感度を持つ。高速点火達成時の中性子イールドを $Y_n = 1\times10^{11}$neutrons/shot とし波高値が線形に増加する仮定では 2V の出力信号が期待できる。中性子 burn ヒストリ計測においては取得した波高値に対してアンフォールディングを行うため現状の 100-1000 倍程度の信号が必要となる。$Y_n=10^{11}$neutrons/shot の場合、減衰時間から X 線による波高値は 6V 以下に抑える必要がある。今後は RF 対策の徹底、印加電圧のパルス印可方式の導入による X 線影響の低減等を行い、FIREX の中性子発生量増加に伴う高速点火時の中性子 bang タイム、中性子 burn ヒストリ計測実現を目指す。

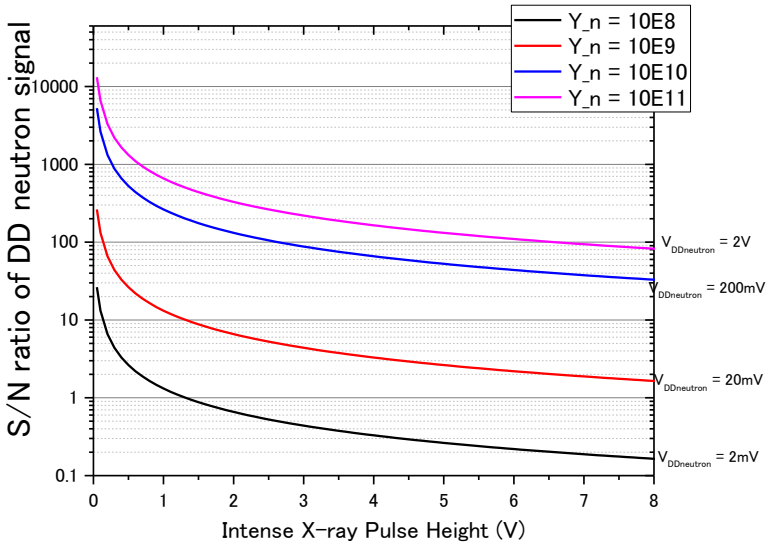

図 6. 10　高強度 X 線に対する検出器波高値と予測される DD 信号の S/N

6.5 結論

本研究では高速点火方式慣性核融合における中性子バーンヒストリモニタへの単結晶 CVD ダイヤモンド検出器応用を目指し、高強度 X 線、DD 中性子に対する応答関数評価を行った。LFEX レーザーに照射に伴い発生した高強度 X 線に対しては半値幅 0.8ns, 減衰時定数 470ps の高速なパルス応答を得た。DD 中性子に対する応答関数評価では Cu 製シールドボックスの使用、光フィデューシャル信号による測定系の電気的フローティングにより 10^8 neutrons/shot　において中性子信号を取得した。実験値に基づく、X 線、DD 中性子に対する波高値を中性子ドップラー拡がりが 100ps となるターゲットチャンバー中心から 5.7cm の位置で計算した結果、S/N100 以上で中性子信号を取得するためには中性子イールドが 10^{11} neutrons/shot かつ X 線波高値を 6V 程度未満とする必要があることが明らかになった。中性子イールド、X 線の誘導電荷量の制限があるものの、現状で光検出器の使用できない高強度 X 線下において中性子イールドが十分な場合、バーンタイムヒストリ検出器として有効な計測手法であることが確認された。

第 6 章の引用文献

[1] J. Lindl, Physics of Plasmas 2(1995) 3933.

[2] D. Besnard, The European Physical Journal D 44 (2007) 207.

[3] K. Shigemori, H. Azechi, M. Nakai, M. Honda, K. Meguro, N. Miyanaga, H. Takabe, K. Mima, Physical Review Letters 78 (1997) 250.

[4] M. Koga, Y. Arikawa, H. Azechi, Y. Fujimoto, S. Fujioka, H. Habara, Y. Hironaka, H. Homma, H. Hosoda, T. Jitsuno, T. Johzaki, J. Kawanaka, R. Kodama, K. Mima, N. Miyanaga, M. Murakami, H. Nagatomo, M. Nakai, Y. Nakata, H. Nakamura, H. Nishimura, T. Norimatsu, Y. Sakawa, N. Sarukura, K. Shigemori, H. Shiraga, T. Shimizu, H. Takabe, M. Tanabe, K. A. Tanaka, T. Tanimoto, T. Tsubakimoto, T. Watari, A. Sunahara, M. Isobe, A. Iwamoto, T. Mito, O. Motojima, T. Ozaki, H. Sakagami, T. Taguchi, Y. Nakao, H. Cai, M. Key, P. Norreys, J. Pasley. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 653 (2011) 84.

[5] N. Izumi, K. Yamaguchi, T. Yamagajo, T. Nakano, T. Kasai, T. Urano, H. Azechi, S. Nakai, T. Iida, Review of Scientific Instruments 70 (1999) 1221.

[6] T. Nagai, Y. Ioka, A. Hasegawa, K. Wada, S. Takaoku, M. Takata, K. Noritake,Y. Minami, K. Watanabe, K. Yamanoi, Y. Arikawa, H. Hosoda, H. Nakamura,T. Watari, M. Cadatal-Raduban, M. Koga, T. Shimizu, N. Sarukura, H. Shiraga, M. Nakai, T. Norimatsu, and H. Azechi, Japanese Journal of Applied Physics 50 (2011) 080208.

[7] M. Koga, T. Fujiwara, T. Sakaiya, M. Lee, K. Shigemori, H. Shiraga, H. Azechi, Review of Scientific Instruments 79 (2008) 10E909.

[8] M. Heya, M. Nakasuji, H. Shiraga, N. Miyanaga, H. Azechi, H. Takabe, T. Yamanaka, K. Mima, Review of Scientific Instruments 68 (1997) 820.

[9]有川安信「レーザー核融合点火実験用高速応答中性子計測器の開発」 大坂大学博士論文 平成 22 年 7 月

[10] R. A. Lerche, D. W. Phillion, G. L. Tietbohl, Review of Scientific Instruments 66 (1995) 933.

[11] V. Yu. Glebov, C. Stoeckl, T. C. Sangster, S. Roberts, R. A. Lerche, G. J. Schmid, IEEE Transactions on Plasma Science 33 (2005) 1.

[12] C. J. Horsfield, S. E. Caldwell, C. R. Christensen, S. C. Evans, J. M. Mack, T. Sedillo, C. S. Young, and V. Yu. Glebov, Review of Scientific Instruments 77 (2006) 10E724.

[13] A. M. McEvoy, H. W. Herrmann, C. J. Horsfield, C. S. Young, E. K. Miller, J. M. Mack, Y. Kim, W. Stoeffl, M. Rubery, S. Evans, T. Sedillo, Z. A. Ali, Review of Scientific Instruments 81 (2010) 10D322.

[14] J. M. Mack, S. E. Caldwell, S. C. Evans, T. J. Sedillo, D. C. Wilson, C. S. Young, C. J. Horsfield, R. L. Griffith, R. A. Lerche, Review of Scientific Instruments 77 (2006)

10E728.
[15] R. M. Malone H. M. Herrmann, W. Stoeffl, J. M. Mack, C. S. Young, Review of Scientific Instruments 79 (2008) 10E532.
[16]T. J. Murphy, C. W. Barnes, R. R. Berggren, P. Bradley, S. E. Caldwell, R. E. Chrien, J. R. Faulkner, P.L. Gobby, N. Hoffman, J. L. Jimerson, K. A. Klare, C. L. Lee, J. M. Mack, G. L. Morgan, J. A. Oertel, F. J. Swenson, P. J. Walsh, R. B. Walton, R. G. Watt, M. D. Wilke, D. C. Wilson, C. S. Young, S. W. Haan, R. A. Lerche, M. J. Moran, T. W. Phillips, T. C. Sangster, R. J. Leeper, C. L. Ruiz, G. W. Cooper, L. Disdier, A. Rouyer, A. Fedotoff, V. Yu. Glebov, D. D. Meyerhofer, J. M. Soures, C. Stöckl, J. A. Frenje, D. G. Hicks, C. K. Li, R. D. Petrasso, F. H. Seguin, K. Fletcher, S. Padalino, R. K. Fisher, Review of Scientific Instruments 72 (2001) 773.
[17] M. A. Barrios, Review of Scientific Instruments 83 (2012) 10E105.
[18] H. G. Rinderknecht, M. Gatu Johnson, A. B. Zylstra, N. Sinenian, M. J. Rosenberg, J. A. Frenje, C. J. Waugh, C. K. Li, F. H. Sèguin, R. D. Petrasso, J. R. Rygg, J. R. Kimbrough, A. MacPhee, G. W. Collins, D. Hicks, A. Mackinnon, P. Bell, R. Bionta, T. Clancy, R. Zacharias, T. Döppner, H. S. Park, S. LePape, O. Landen, N. Meezan, E. I. Moses, V. U. Glebov, C. Stoeckl, T. C. Sangster, R. Olson, J. Kline, and J. Kilkenny, Review of Scientific Instruments 83 (2012) 10D902.
[19] R. Lauck, M. Brandis, B. Bromberger, IEEE Transactions on Nuclear Science 56 (2009) 3.
[20] K.Watanabe, Y. Arikawa, K. Yamanoi, M. Cadatal-Raduban,T. Nagai, M. Kouno, K. Sakai, T. Nazakato, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Nakai, T. Norimatsu, H. Azechi, A. Yoshikawa, T. Murata, S. Fujino, H. Yoshida, N. Izumi, N. Satoh, H. Kan, Journal of Crystal Growth 362 (2013) 288.
[21] Y.Arikawa, Y. Nagai, T. Hosoda, Y. Abe, S. Kojima, S. Fujioka, N. Sarukura, M. Nakai, H. Shiraga, T. Ozaki, H. Azechi, Review of Scientific Instruments 83 (2012) 10D909
[22] J. H. Kaneko, T. Tanaka, T. Imai , Y. Tanimura, M. Katagiri , T. Nishitani , H. Takeuchi , T. Sawamur , T. Iida Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 505 (2003) 187.
[23] J. Hammersberg, J. Isberg, E. Johansson, T. Lundstrom, O. Hjortstam, H. Bernhoff, Diamond and Related Materials 10 (2001) 574.
[24] S. F. Kozlov IEEE Transactions on Nuclear Science 22 (1975) 160.
[25] H. Shiraga, S. Fujioka, M. Nakai, T. Watari, H. Nakamura, Y. Arikawa, H. Hosoda, T. Nagai, M. Koga, H. Kikuchi, Y. Ishii, T. Sogo, K. Shigemori, H. Nishimura, Z. Zhang, M. Tanabe, S. Ohira,Y. Fujii, T. Namimoto, Y. Sakawa, O. Maegawa, T. Ozaki, K. A.

Tanaka, H. Habara, T. Iwawaki, K. Shimada, H. Nagatomo, T. Johzaki, A. Sunahara, M. Murakami, H. Sakagami, T. Taguchi, T. Norimatsu, H. Homma, Y. Fujimoto, A. Iwamoto, N. Miyanaga, J. Kawanaka, T. Jitsuno, Y. Nakata, K. Tsubakimoto, K. Sueda, N. Morio, S. Matsuo, T. Kawasaki, K. Sawai, K. Tsuji, H. Murakami, T. Kanabe, K. Kondo, R. Kodama, N. Sarukura, T. Shimizu, K. Mima, H. Azechi, et al. High Energy Density Physics 8 (2012) 227.

[26] H. Pernegger, S. Ro, P. Weilhammer, H. Frais-Kölbl, E. Griesmayer, H. Kagan, S. Schnetzer, R. Stone, W. Trischuk, D. Twitchen, A. Whitehead, Journal of Applied Physics 97 (2005) 073704.

[27] H. Jansen, D. Dobos, T. Eisel, H. Pernegger, V. Eremin, N. Wermes, Journal of Applied Physics 113 (2013) 173706.

[28] J. Isberg, M. Gabrysch, S. Majdi, K. K. Kovi, D. Twitchen, Solid State Sciences 13 (2011) 1065.

第 7 章　総括

本研究では高温・高放射線場等の過酷環境で安定動作可能なダイヤモンド放射線検出器実現のためリフトオフ法を用いた単結晶 CVD ダイヤモンド成長条件探査による電子電荷キャリア輸送特性の改善、ならびに各種応答関数評価による核融合プラズマ診断装置への適用可能性検討を行った。

第 1 章ではダイヤモンド放射線検出器の特長を引き出し過酷環境下で使用するためには電子に対する電荷捕獲を可能な限り低減することが重要であることを既存検出器の現状より示し、実現の要である電子電荷収集効率改善の指針を述べた。

第 2 章では窒素不純物、構造欠陥・点欠陥低減のため装置大気リーク低減、0.2%近傍での低メタン濃度成長並びに成長温度の上昇を行い、電荷キャリア輸送特性を評価した。窒素低減かつ低メタン濃度試料では正孔 100.1%, 電子 99.8%の電荷収集効率が得られ、リフトオフ法で作製したダイヤモンドの電子電荷捕獲を従来の 10 分の 1 に改善した。

第 3 章では第 2 章で得られた試料に対しε値、Fano 因子の評価を行った。α線誘導電荷量分布測定によりε＝13.1±0.1eV を得た。エネルギー分解能は実測値で 0.31%とダイヤモンド検出器としてトップクラスの値を示した。さらに、回路系ノイズを差し引いた検出器固有分解能から求めたファノ因子がダイヤモンド放射線検出器として初めて 1 より小さくなることを実験的に示した。

第 4 章では DT 中性子エネルギースペクトロメータへの応用を目指し、第 2 章で得られた試料に対し 14MeV 中性子に対する応答関数評価を JAEA/FNS において行った。^{12}C(n, α)^{9}Be 反応に対応するエネルギー分解能は最高で 1.5%を示した。ビーム軸に対し 95 度に設置した場合の検出器固有エネルギー分解能は 0.79%となり、天然ダイヤモンドで報告されていたエネルギー分解能最良値を人工ダイヤモンドとして初めて上回った。

第 5 章では荷電交換中性粒子モニタへの応用を目指し、3MeV プロトンによる高計数率照射試験、150-400keV の低エネルギープロトンに対する照射試験を行った。約 10%の電荷損失のある従来試料では数 kcps の計数率下で波高値が開始時の 8 割まで数分で低下、著しい電荷捕獲が起こった。一方で逆バイアス印加による波高値回復から数 MeV イオンによる照射では塑性的な損傷ではなく電荷捕獲が波高値低下の主な原因であることが明らかになった。低エネルギープロトンに対する照射では Al 電極によるエネルギーロスよりも十分高い 200keV からスペクトルが崩れ､不感層の存在が低エネルギー計測における課題として明らかになった。

第 6 章では高速点火方式慣性核融合中性子 burn ヒストリモニタへの適用を目指し､高強度 X 線、DD 中性子に対する応答関数を評価、実験で得られた応答関数から適用可能範囲と課題を明らかにした。応答関数評価では高強度 X 線に対し半値幅 0.8ns, 減衰時定数 470ps の高速なパルス応答を得た。DD 中性子に対し 10^{8} neutrons/shot 以上の中性子イールドで応答関数取得に成功した。イオン温度 5keV 時に中性子到達時刻のドップラー拡がり

を 100ps に抑えて計測する場合、X 線の 2.5ns 後に中性子が到達する。実験的に求めた減衰時定数と中性子感度から中性子イールド 10^{11} neutrons/shot において X 線による波高値が 6V 未満であれば 100 以上の S/N で中性子信号を取得できる見込みを得た。X 線対策が必要なものの、光検出器の使用できない高強度 X 線下において、単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器の使用が有効であることが示された。

以上の研究結果より、不純物の低減・低メタン濃度成長により生産性の高いリフトオフ法を用いた場合においてもトップクラスの電荷キャリア輸送特性を持ったダイヤモンド放射線検出器が実現できた。さらに、各種応答関数評価から核融合プラズマ診断応用に必要なエネルギー分解能や高速応答性が確認された。高品質な単結晶ダイヤモンド成長に加え電極－界面間の不感層制御、高周波ノイズ対策を含めた計測系等の問題点解決を解決することで単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器は小型かつ優れたエネルギー・時間分解能を持つ検出器としてプラズマ診断への応用が期待できる。

本研究に関連して発表した論文・講演

(1)学術雑誌等に発表した論文

本研究に関連する論文

1. **T. Shimaoka**, J. H. Kaneko, K. Ochiai, M. Tsubota, H. Shimmyo, A. Chayahara, H. Umezawa, H. Watanabe, S. Shikata, M. Osakabe "*A diamond 14 MeV neutron spectrometer with high energy resolution"* Rev. Sci. Instrum. In press
2. **T. Shimaoka**, J. H. Kaneko, Y. Arikawa, M. Isobe, Y. Sato, M. Tsubota, T. Nagai, S. Kojima, Y. Abe, S. Sakata, S. Fujioka, M. Nakai, H. Shiraga, H. Azechi, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, "*Response measurement of single-crystal CVD diamond radiation detector for intense X-rays aiming at neutron bang-time and neutron burn-history measurement on an inertial confinement fusion with fast ignition*" Rev. Sci. Instrum. 86 (2015) 053503
3. Y. Sato, **T. Shimaoka**, J.H. Kaneko, H. Murakami, M. Isobe, M. Osakabe, M. Tsubota, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, "*Radiation hardness of single crystal CVD diamond detector for MeV energy protons* " Nucl. Instrum. Meth. A, 784 (2015) 147-150
4. Y. Sato, **T. Shimaoka**, J.H. Kaneko, H. Murakami, D. Miyazaki, M. Tsubota, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, "*Pulse height reduction effects of single crystal CVD diamond detector for low-energy heavy ions*" Euro. Phys. Let., 104 (2013) 22003 1-4
5. Y. Sato, **T. Shimaoka**, J.H. Kaneko, H. Murakami, D. Miyazaki, M. Tsubota, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, "*Pulse shape distortion of output signals from single-crystal CVD diamond detetor in few-GHz broadband amplifiers*" Euro. Phys. Let.,106 (2014) 22001 1-5
6. Y. Sato, H. Murakami, **T. Shimaoka**, M. Tsubota, J.H. Kaneko, "*Single-crystal CVD diamond detector for high resolution particle spectrometry*" Euro. Phys. Let., 108 (2014) 42001
7. **T. Shimaoka,** J. H. Kaneko, M. Tsubota, H. Shimmyo, H. Watanabe, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, "*High performance diamond radiation detectors produced by lift-off method* " submitted to Euro Phys. Lett.

その他論文

1. **T. Shimaoka**, J. H. Kaneko, K. Izaki, Y. Tsubota, M. Higuchi, S. Nishiyama, "*Development of scintillator plates with high energy resolution for alpha particles made of GPS scintillator grains*" Nucl. Instrum. Meth. A, 735(2014)110-114
2. M. Tsubota, J.H.Kaneko, D. Miyazaki, **T. Shimaoka**, K. Ueno, T. Tadokoro, A. Chayahara, H. Watanabe, Y. Kato, S. Shikata, H. Kuwabara, " *High-temperature characteristics of charge collection efficiency using single CVD diamond detectors*". Nucl. Instrum. Meth. A, 789 (2015) 50-56

(2)国際会議における発表

1. ○**T. Shimaoka**, J. H. Kaneko, M. Tsubota, H. Shimmyo, A. Chayahara, H. Watanabe, H. Umezawa, S. Shikata, " *Influence of Nitrogen impurities reduction and methane concentration on Charge collection efficiency and Cathode luminescence spectra of self-standing single-crystal CVD diamond growth on HP/HT type IIa diamond* " International Conference on New Diamond and Nano Carbons (NDNC) 2015 12-3 口頭発表 静岡県静岡市　2015 年 5 月 26 日
2. ○**T. Shimaoka**, J.H. Kaneko, Y. Arikawa, M. Isobe, Y. Sato, M. Tsubota, T. Nagai, S. Kojima, Y. Abe, S. Sakata, S.Fujioka, M. Nakai, H. Shiraga, H. Azechi, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata "*Response measurement of single crystal CVD diamond radiation detector for intense X-rays aiming at burn-history measurement on an inertial confinement fusion with fast ignition*" Symposium on Radiation Measurements and Applications (SORMA XV) 483 口頭発表　アメリカ合衆国　ミシガン市　2014 年 6 月 12 日
3. ○**T. Shimaoka**, R. Satake, J. H. Kaneko, H. Aoyagi, D. Miyazaki, T. Aoki, K. Fukami, S. Suzuki, C. Mitsuda, A. Chayahara, S. Shikata "*Response of a CVD single crystal diamond detector for 8GeV electron beam*" IEEE Nuclear　Science Symposium and Medical Image Conference 2013, NPO2-104 ポスター発表、韓国　ソウル　2013 年 10 月 30 日

(3)国内会議における発表

1. **○嶋岡毅紘**、 金子純一、坪田雅功、新名宏章、茶谷原昭義、渡邊幸志、梅澤仁、杢野義昭「単結晶 CVD ダイヤモンド放射線検出器における電荷キャリア輸送特性の改善と電子正孔対生成平均エネルギー・ファノ因子の評価」第 29 回ダイヤモンドシンポジウム P1-27 ポスター発表　2015 年 11 月 18 日
2. **○嶋岡毅紘**、金子純一、 新名宏章、坪田雅功、茶谷原昭義、 渡邊幸志、 梅澤仁、 鹿田真一、落合謙太郎、磯部光孝、長壁正樹　「DT 中性子スペクトロメータ応用を目指した単結晶 CVD ダイヤモンド検出器の 14MeV 中性子に対する応答関数評価」日本原子力学会 2015 春の年会　N34　口頭発表　2015 年 3 月 21 日
3. **○嶋岡毅紘**、 金子純一、 渡邊幸志、坪田雅功、新名宏章、茶谷原昭義、鹿田真一「単結晶 CVD ダイヤモンドにおけるカソードルミネッセンススペクトルと電荷キャリア輸送特性の相関」第 28 回ダイヤモンドシンポジウム P1-27 ポスター発表　2014 年 11 月 19 日
4. **○嶋岡毅紘**, 金子純一、有川安信 、磯部光孝 、坪田雅功、 長井隆浩 、小島完興 、安部勇輝 、坂田匠平 、藤岡慎介、 中井光男 、白神宏之 、畦地宏 、茶谷原昭義、 梅澤仁 、鹿田真一「単結晶 CVD ダイヤモンド検出器の高速点火方式慣性核融合における中性子燃焼履歴モニタ応用への試み」第 75 回応用物理学会 2014 年秋季大会 20p-B2-8　口頭発表　2014 年 9 月 20 日
5. **○嶋岡毅紘**、金子純一、青柳秀樹、佐竹良太、宮崎大二郎、青木毅、深見健二、鈴木伸介、満田史織、茶谷原昭義、渡邊幸志、梅澤仁、鹿田真一「ダイヤモンド検出器の電荷キャリア輸送特性に関するキャリア密度の影響」日本原子力学会 2014 春の年会 J37 口頭発表、2014 年 3 月 28 日
6. **○嶋岡毅紘**、金子純一、青柳秀樹、佐竹良太、宮崎大二郎、青木毅、深見健二、鈴木伸介、満田史織、茶谷原昭義、渡邊幸志、梅澤仁、鹿田真一「ビームハローモニタへの応用を目指した CVD 単結晶ダイヤモンドの合成と評価」第 27 回ダイヤモンドシンポジウム 2013 204 口頭発表、2013 年 11 月 21 日

(4)受賞等

第 29 回ダイヤモンドシンポジウム　優秀ポスター賞

謝辞

本研究は多くの方々より多大な御助力を賜りました。ここに感謝の意を表します。また、本研究は博士後期課程の 3 年間日本学術振興会特別研究員制度による助成を受けました。この場を借りて感謝申し上げます。

北海道大学大学院工学研究科量子理工学部門の金子純一准教授には本論文の主査として多大なるご指導鞭撻を頂きました。また、同部門、柴山環樹教授、越崎直人教授、山内有二准教授には本論文の副査として多大なるご指導を頂きました。

産業技術総合研究所関西センターの鹿田真一博士、杢野由明博士、茶谷原昭義博士、梅澤仁博士、また同テクニカルスタッフの皆様にはダイヤモンドのリフトオフプロセスをはじめ本研究の推進に多大な御助力を頂きました。

産業技術総合研究所つくばセンターの渡邊幸志博士にはカソードルミネッセンス測定をはじめ、ダイヤモンドの欠陥評価に関して多大な御助力を頂きました。

物質材料研究機構ワイドギャップ機能材料グループの小泉聡博士、大谷亮太博士にはダイヤモンドへのオーミックコンタクト作製、Hall 効果測定そして気相成長技術に関して多大な御助力を頂きました。

大阪大学レーザーエネルギー学研究センター白神宏之教授、藤岡慎介教授、有川安信講師をはじめとする FIREX Group の皆様には爆縮実験において多大なるご助力を頂きました。

理化学研究所仁科加速器研究センター 佐藤優樹博士、並びにペレトロン加速器オペレータの皆様にはダイヤモンド検出器へのプロトン照射試験で多大なるご助力を頂きました。

日本原子力研究開発機構那珂核融合研究所核融合研究開発部門の落合謙太郎博士、同センター加速器オペレータの皆様にはダイヤモンド放射線検出器の DT 中性子応答関数評価実験において多大なるご助力を頂きました。

北海道大学大学院工学院量子ビーム応用計測学研究室の坪田雅功博士研究員、修士課程 2 年新名宏明君、修士課程 1 年大西将也君、学士課程 4 年の水越司君、平野慎太郎君にはダイヤモンド合成、検出器作製・評価をはじめとする日々の研究活動において多大な御助力を頂きました。また、同研究室の高堂優子秘書には研究業務に関わる多くの事務手続において多大な御助力を頂きました。その他多くの研究室 OB の皆様には公私ともにお世話になりました。皆様のおかげで楽しく研究を継続していくことができました。

最後に博士後期課程まで進学させてくれた両親に感謝と尊敬の意を表します。

嶋岡　毅紘

Appendix A　ダイヤモンド放射線検出器の評価方法

A.1 誘導電荷量と Shocley Ramo の式

誘導電荷による信号は放射線が入射し、電荷キャリアが電極へ流動する瞬間から始まる。検出器内の電位はポアソン方程式により

$$\Delta\varphi = \frac{\rho}{\varepsilon} \quad (A-1)$$

と記述される。電位により生ずる電界は電位勾配により求まるので

$$E = -\nabla\varphi \quad (A-2)$$

となる。

検出器内の電荷キャリアドリフトによって電極に誘導される電荷を計算するための方法は Shockley-Ramo の定理、重み付き電界、重み付き電位で記述され電極に誘導される電荷は

$$i_0 = q\vec{v}\cdot\vec{E} \quad (A-3)$$

で記される。電極に誘導される電荷量はこれを積分して

$$Q = q\Delta\varphi_0 \quad (A-4)$$

とあらわされる。

プラナ構造の場合は電極の端を除き、電界が一様なため電子・正孔両方の電荷キャリアの特性を観測することとなる。

A.2 誘導電荷による信号検出の原理とキャリア輸送特性評価の方法

A.2.1 電荷収集効率

電荷収集効率は放射線により発生した誘導電荷量に対する収集電荷量で以下の式のように定義され、パルス波高分析による誘導電荷量分布測定により評価される。

$$Charge\ Collection\ Efficiency\ (CCE) = \frac{\mathrm{Q_{collected}}}{Q_{induced}} \times 100\ (\%) \quad (A-5)$$

A.2.2 α線誘導電荷量分布測定

5.486MeV α線誘導電荷量分布測定によるダイヤモンド検出器の電荷収集効率評価方法について述べる。5.486MeV α線はダイヤモンド中で約 13 μm の飛程を持つ。検出器は電極でダイヤモンドを挟みこんだプラナ構造を持ち、両端に高圧が印加されている。α線が検出器内に入射すると付与したエネルギーを ε 値で割った数のキャリアが生成される。生成された電荷キャリアは電界に沿って両端の電極へとドリフトする。このドリフト電流を打ち消す形で発生する誘導電荷を観測することで電荷キャリアの輸送特性を評価する。飛

程は本研究で用いた自立膜の膜厚(~100 μ m)に対し小さいため、 入射面あるいは高圧の極性を変えることにより長距離ドリフトする電荷キャリアの輸送特性を主たる信号として評価できる。

図 A.1 には測定体系と等価回路を示す。ダイヤモンド内で生成した誘導電荷は電荷有感型前置増幅器で誘導電荷量の情報を持ったパルス波高に変換され、その後、スペクトロスコピーアンプ内で増幅、整形されマルチチャンネルアナライザによりパルス波高のヒストグラムを形成する。

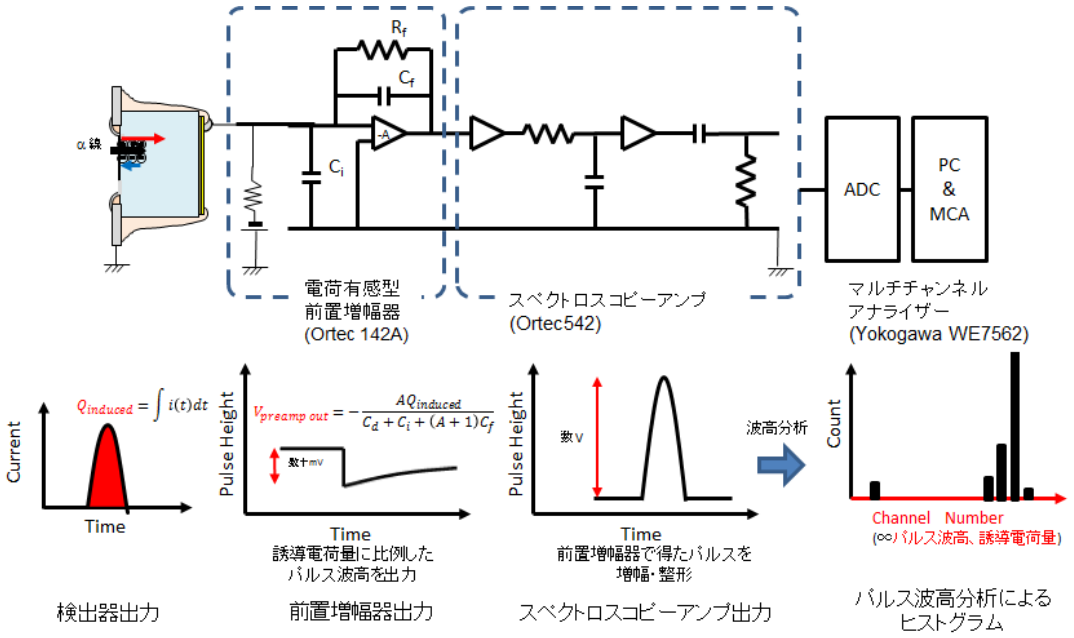

図 A. 1　α線誘導電荷量分布測定体系

電荷収集効率の校正にはシリコン表面障壁型半導体検出器を用いた(CU012-050-100、Ortec)。シリコン、ダイヤモンドの ε 値それぞれ 3.62eV, 13.1eV[8]として評価を行った。測定は各検出器からの誘導電荷量、 ε 値の比からダイヤモンド検出器の電荷収集効率を見積もった。

また、波高分析に先立ち測定系のオフセット、ゲインの補正を行った。マルチチャンネルアナライザにより示されるチャンネルナンバーは以下の式のようにあらわされる

$$\mathrm{MCA\ ch} = \mathrm{mV} + \mathrm{c} \quad (\mathrm{A}-6)$$

ここで m は測定系のゲイン、V は入力されたパルス波高、c は MCA オフセットとする。MCA には通常フルレンジに対し 1% 以内のオフセットが存在する。また、電荷有感型前置

増幅器においては接続する検出器静電容量の違いによって出力信号のリニアリティがわずかに変化する。これに伴い測定系全体のゲインも変化してしまうため１%以下の電荷収集効率校正においてはゲイン、オフセット校正が必要である。そこで、オフセット補正を行うため校正用シリコン半導体検出器、ダイヤモンド検出器をそれぞれ接続した状態でパルサー信号に対するリニアリティ評価をおこなった。

また、ダイヤモンド検出器 Al 入射窓(100nm)、Si 表面障壁型検出器の不感層(500ÅSi)によるエネルギーロスは TRIM コードにより計算、$E_{lossAlwindow}$ =6.6keV, $E_{lossSiwindow}$ = 15.2keV として補正した。

以上の補正項を含んだ電荷収集効率の計算式は以下のようになる。

$$CCE_{diam} = \frac{(Peak\ ch_{diam} - c_{diam})}{(Peak\ ch_{Si} - c_{SI})} \times \frac{\varepsilon_{si}}{\varepsilon_{diamond}} \times \frac{m_{Si}}{m_{diam}} \times \frac{5486keV - E_{loss_{Alwindow}}}{5486keV - E_{lossSiwindow}} \times 100(\%) \quad (A-7)$$

A.2.3 電荷収集距離[1]

電荷収集距離は CCE に検出器厚さ w をかけた値として定義される。検出器厚さが電荷キャリアの流動できる範囲よりも非常に大きい場合や、粒界の存在する多結晶半導体検出器の評価指標として用いられる。

$$\text{Charge Collection Distance(CCD)} = \frac{\mathrm{Q_{collected}}}{Q_{induced}} \times w \quad (A-8)$$

A.2.4 $\mu\ \tau$ 積[2]

上記の電荷収集効率、電荷収集距離は Hecht の式により一般化できる。

この式において電子、正孔の移動度 μ、キャリア寿命 τ、電荷収集効率は電場強度 E の関数として記述できる。ここで、w は検出器有感層厚さ、d はキャリアの発生個所位置である。添え字の s, l は入射面、極性できまる検出器内電荷キャリアのショートドリフト、ロングドリフトを示している。

$$\frac{\mathrm{Q_{collected}}}{\mathrm{Q_{induced}}} = \frac{\mu_l \tau_l \mathrm{E}}{w}\left(1 - \mathrm{e}^{-\frac{w-d}{\mu_l \tau_l \mathrm{E}}}\right) + \frac{\mu_s \tau_s \mathrm{E}}{\mathrm{w}}\left(1 - \mathrm{e}^{-\frac{d}{\mu_s \tau_s \mathrm{E}}}\right) \quad (A-9)$$

Appendix A の引用文献

[1] J. Isberg, J. Hammersberg, H. Bernhoff, D.J. Twitchen, A.J. Whitehead, Diamond and related materials 13 (2004) 872-875

[2] Phys. Rev K. Hecht: Z. Phys. **77**, 235 (1932).

放射線計測の原理については G. F. Knoll 著　放射線計測ハンドブック第 4 版全般を参照した。

Appendix B 不純物・合成方法によるダイヤモンドの分類と電荷キャリア輸送特性

ダイヤモンドは含有する不純物の量、欠陥密度によって大別することができる。また複数の合成方法を持つ。本節では単結晶 CVD ダイヤモンド以外のダイヤモンドの分類、検出器としての適用可能性について簡単にまとめた。

B.1 不純物による分類

ダイヤモンドは不純物として窒素、ホウ素を含みやすくそれら不純物の種類、含有量により Ia, IIa, Ib, IIb の 4 種類に分類される。表 B.1 にはそれらをまとめた。

A.IIa 型単結晶

窒素、ホウ素含有量がいずれも 1ppm 以下の無色透明な高品質ダイヤモンドである。高圧高温合成法や CVD 法により作製されることが多い。

B. IIb 型

ホウ素含有量が~100ppm と IIa 型結晶よりも多く、淡い青色を呈する。

C.Ia 型

天然において 98%と最も産出量の多い種類である。結晶内の窒素・空孔の配列により IaA 型、IaB 形に分類される。

D. Ib 型

窒素を 10~100ppm 含み、黄色を呈する。窒素は伝導体から 1.7eV のドナー準位を持つが室温では不活性なため、絶縁性が高い。大量生産により安価に入手できるため気相成長用の基板としても広く用いられている。

表 B. 1 ホウ素・窒素不純物量によるダイヤモンドの分類[1]

種類	IIa	IIb	Ia	Ib
窒素含有量	< 1ppm	<1ppm	~1000ppm	10~100ppm
ホウ素含有量	< 1ppm	~100ppm	-	
天然産出量	1~2%	1~2%	98%	0.1%
人工合成	高純度	高純度		

B.2 合成法による分類と電荷キャリア輸送特性

ダイヤモンドの合成法には大きく分けて高圧高温合成(HP/HT :High Pressure and High Temperature)法と気相合成法がある。放射線検出器としてはこれまでに天然ダイヤモンド、HPHT ダイヤモンド、そして気相合成ダイヤモンドの応用が試みられてきた。近年は結晶成長技術の進歩から不純物の少ない化学気相合成(CVD: Chemical Vapor Deposition)ダイ

ヤモンドが主流となっている。本節では各合成法で得られたダイヤモンド放射線検出器のキャリア輸送特性について述べる。

B.2.1. 天然ダイヤモンド

天然ダイヤモンドはそのほとんどが Ia 型であり、不純物の多いダイヤモンドでは検出器として動作できない。IIa 結晶の中でも光学特性に優れたものが選別され 1970 年代より複数の研究者によりその特性が報告された。核融合プラズマ診断用途については Krasilnikov や Kozlov らがロシア製天然ダイヤモンドを使用し、実用領域での動作を確認している[2, 3]。しかしながら、検出器グレードのダイヤモンドは数千に 1 つと少なく、再現性に乏しいことが問題である。

B.2.2 高圧高温合成(HPHT)ダイヤモンド[4]

ダイヤモンドは熱力学的に高圧下で安定なため工業用途では高圧高温合成法で作製されることが多い。このうち、高品質な単結晶ダイヤモンドを得るには温度差法が用いられる。この方法では金属製のシリンダーとアンビルからなる容器の中に種結晶、触媒金属、炭素源を設置、種結晶と炭素源の間に温度勾配が生じるようにヒーターで加熱、同条件化でピストンによる加圧を行う。これにより触媒金属と炭素が共融、低温部に炭素が拡散し低温度部で過飽和になることでダイヤモンドが成長する。通常は大気中の窒素を取り込み Ib 型結晶が合成されてしまう。Sumiya らは高純度化技術として Al, Ti, Zr 等窒素と親和性の高い物質を添加することで不純物の少ない高品質な IIa 型単結晶ダイヤモンドを得ている。この単結晶ダイヤモンドは広い波長に対し高い透過率を持つため光学窓材、X 線分光結晶として応用されている。

Kaneko らはこの高圧高温合成法で得られた IIa 型単結晶に対し 5.486MeV α 線に対する応答を報告している[5]。図 B.1 には応答関数を示す。3.5x3.5x0.3mm の結晶に対し正孔をロングドリフトさせた場合、0.81%のエネルギー分解能を得ている。しかしながら、電子に対しては数十パーセントの電荷損失があり、また短時間で電荷捕獲による分極が発生、検出器としての安定動作が困難であることもあわせて報告している。

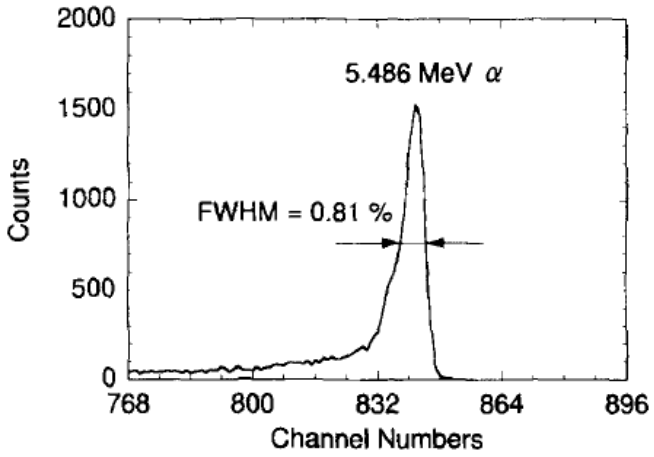

Fig. 1. 5.486 MeV α spectrum obtained by a synthetic IIa type diamond detector.

図 B. 1 HPHT ダイヤモンドによるα線スペクトル[5]

B.2.3. 化学気相合成(CVD)ダイヤモンド

化学気相合成法は原料ガスを基板近傍へ運び、化学反応により分解、基板上へ成長させる方法である。化学気相合成には原料ガスの分解には熱、プラズマによるものがある。プラズマを用いた気相成長は直流プラズマ、アークジェットプラズマ法[6]等があるが不純物制御の点から無電極放電が可能なマイクロ波プラズマ CVD 法により作製された結晶が主流となっている。

CVD ダイヤモンド放射線検出器は CERN 主導の RD42 プロジェクト[7]により LHD 計画のビームモニタ応用を念頭にした研究が進められてきた。Element Six 社の協力のもと結晶の品質向上、電荷キャリア輸送特性向上、検出器放射線耐性に関して多くの報告がなされている。CVD ダイヤモンド放射線検出器は多結晶 CVD ダイヤモンド、単結晶 CVD ダイヤモンドが用途に応じて用いられる。

B.2.3.1 多結晶 CVD ダイヤモンド

多結晶 CVD ダイヤモンドは Si ウエハ上にヘテロエピタキシャル成長させることで得られる。高速応答性を持ち ToF 計測等で加速器ビームモニタとして用いられる。化学気相合成法では基板結晶により得られる検出面積が決定されため単結晶ダイヤモンドは現状～10mm 角程度のサイズが限界である。一方、多結晶では Si ウエハ上に成長させることで検出面積を大きくすることができる。

しかしながら結晶粒界に起因した電荷捕獲が存在するため先述の電荷収集距離が粒サイズによって決まってしまうことが Bergonzo[8]らによって報告されている。また、Isberg[9]らは結晶粒のサイズの異なる多結晶 CVD ダイヤモンドに対する $\mu\tau$ 積を報告しており、粒サイズ増大により向上が見られること示した。この結果は結晶粒界がキャリアの輸送特性

を劣化させることを示している。図 B.2 には多結晶、単結晶 CVD ダイヤモンドの 5.486MeV α線に対する応答関数[10]を示す。多結晶 CVD ダイヤモンドはブロードな応答を示し、エネルギー計測には適さないことがわかる。また、多結晶 CVD ダイヤモンドは放射線照射により電荷収集効率が一時的に向上することが知られている。この現象はパンピング、プライミング効果と呼ばれており、生成した電荷により電荷捕獲準位が埋められることで電荷収集効率が一時的に改善するものと考えられている。

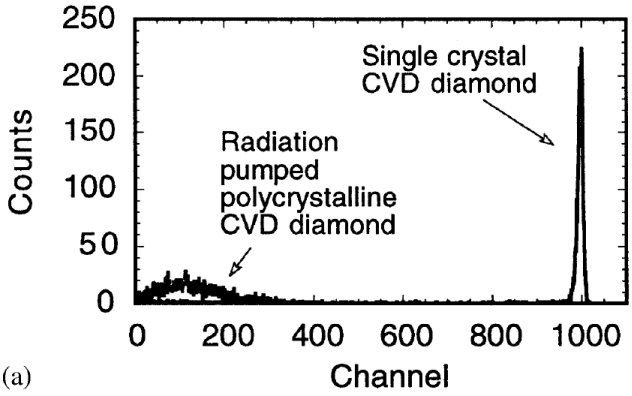

図 B. 2 単結晶、多結晶ダイヤモンドのエネルギースペクトル比較[10]

粒界による電荷捕獲のため多結晶ダイヤモンドはエネルギー計測には適さない

Appendix B の引用文献

[1] 佐藤周一、矢津修示、辻一夫、原昭夫、浦川信夫、吉田晃人、住友電気 129 (1986) 99

[2] A. V. Krasilnikov, V. N. Amosov, and Yu. A. Kaschuck, IEEE Transaction on Nuclear Science NS-22 (1975) 160.

[3] A. V. Krasilnikov, S. S. Medley, N. N. Gorelenkov, R. V. Budny, O. V. Ignatyev, Yu A. Kaschuck, M. P. Petrovand, and A. L. Roquemore, Review of Scientific Instruments **70** (1999)1107.

[4] H. Sumiya, S. Satoh, Diamond and Related Materials 5 (1996) 1359.

[5] J. Kaneko, M. Katagiri, Nuclear Instruments and Methods **in** Physics Research A 383 (1996) 547.

[6] K. Suzuki, A. Sawabe, H. Yasyda, T. Inuzuka, Applied Physics Letters 50 (1987) 728.

[7] C. Bauer, I. Baumann, C. Colledani, J. Conway, P. Delpierre, F. Djama, W. Dulinski, A. Fallou, K.K. Gan, R.S. Gilmore, E. Grigoriev, G. Hallewell, S. Han, T. Hessing, K. Honscheid, J. Hrubec, D. Husson, R. James, H. Kagan, D. Kania, R. Kass, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A 383 (1996) 64.

[8] A. Brambilla, D. Tromson, P. Bergonzo, C. Mer, F. Foulon, IEEE Transaction on Nuclear Science, 49 (2002) 277.

[9] J. Isberg, J. Hammersberg, H. Bernhoff, D.J. Twitchen, A.J. Whitehead, Diamond and Related Materials 13 (2004) 872.

[10] G. J. Schmid Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 527 (2004) 554.

Appendix C マイクロ波プラズマ CVD 法によるダイヤモンド成長に影響を与える因子

C.1 化学気相成長法

化学気相成長（Chemical Vapor Deposition: CVD)法は気体状の原料を炉に導入し、基板上に薄膜を成長させる方法である。図 C.1 に概略図を示す。まず初めに、原料ガスは気体の流れに乗って基板近傍の境界層に運ばれる。化学反応により気体分子は分解され、結晶中へ構成原子として取り込まれ、拡散する。拡散の過程で吸着した原子は分子と反応を起こしながら分解、ラジカルとなる。生成したラジカルは基板表面へ吸着しステップ端や島状成長部周辺で分解反応を起こし結晶格子に入ることで成長する。

ダイヤモンドの気相成長においてはキャリアガスに水素、反応ガスとしてメタンが広く用いられている。キャリアガスである高濃度の水素により発生した原子状水素は CVD プロセスにおいて成長表面がグラファイトへ変態するのを防ぐ。原料ガスの分解方法には熱フィラメント法、DC プラズマ法、アークジェットプラズマ法等種々の方法が存在するが、不純物の混入を防ぐために無電極放電の可能なマイクロ波放電が主流となっている。この場合、キャリアガス、反応ガスはマイクロ波プラズマによる高エネルギー電子により分解される。

マイクロ波プラズマ CVD 法では初めに成長層表面を覆う水素結合が気相中の水素原子と反応、水素原子が引き抜かれダングリングボンドを形成する。次に CH_3 ラジカルが結合しダイヤモンドが成長する。この時 sp3, sp2 結合が混在するが原子状水素はフラファイトをダイヤモンドよりも 20 倍から 30 倍高速にエッチングするため、結果としてダイヤモンドのみが選択的に成長できる。また、ダイヤモンドは水素終端されることで sp3 結合を維持し安定して存在できる。原子状水素は炭化水素 CH を必要な成長種であるラジカルにする役割も担っている。

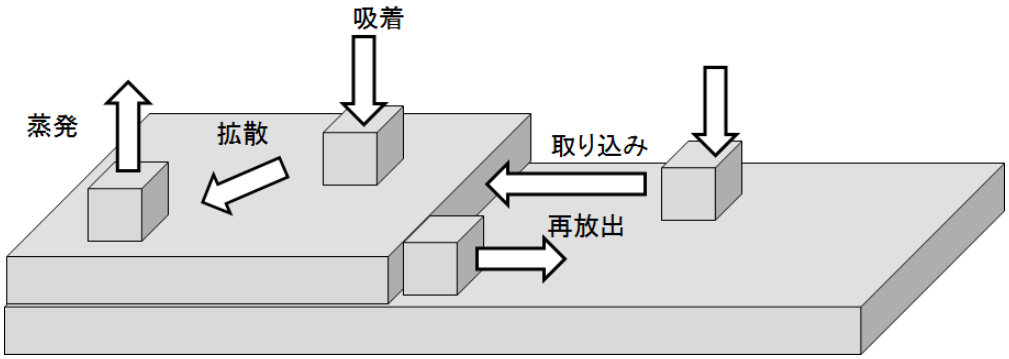

図 C. 1 ステップ近傍の気相成長機構

C.2 成長に影響を与える因子

ダイヤモンドの気相成長においては結晶基板の品質、原料ガス濃度、マイクロ波の出力密度等が成長に影響を与える重要な因子となる。ここでは成長に影響を与える代表的なパラメータについて説明する。

C.2.1 基板温度

基板温度は 600－1100℃程度が用いられる。1200℃以上では合成時にグラフェンが発生することが知られている。北海道大学においては基板温度 850℃を採用していた。成長時の基板温度は非接触型の赤外放射温度計やパイロメータにより石英ビューポート越しに測定することが多い。

C.2.2B. メタン濃度

ダイヤモンド気相成長においては原料ガスであるメタンとキャリアガスである水素の比をメタン濃度と呼び、CH_4/H_2 で定義される。一般的にメタン濃度が高いと非ダイヤモンド相が多く含まれ、結晶性が低下する。メタン濃度を低くすることで非ダイヤモンド相の少ない高品質なダイヤモンドが得られることが知られている。先行研究では 0.025%の極低メタン濃度成長により原子的に平坦かつ結晶性に極めて優れたダイヤモンドが報告されている[1]。しかしながら、成長率は数十 nm/h 程度と著しく低いためにデバイスや、放射線センサのような厚膜作製にこの条件を直接用いることはこれまでにされてこなかった。

また、酸素添加により非ダイヤモンド相のエッチング効果が高くなり結晶性が向上することも知られている。炭素原子、水素原子、酸素原子の構成比における結晶成長の分類は Bachman 図として知られており[2]適切な条件下でのみダイヤモンドが成長する。

C.2.3 成長面

ダイヤモンド成長ではほかの面方位と比較し双晶の発生しにくい{100}面が用いられることが多い。成長条件が適切でない場合、基板起因の転位、表面の研磨跡、エッチピットによる{111}方向に配向した異常成長粒子が発生する。これらの制御については次節で述べるオフ角制御技術、αパラメータ制御などが用いられる。

C.2.4 オフ角制御技によるステップフロー成長の促進

先に述べたように{100}面上にダイヤモンドを成長させる場合、異常粒子の抑制が課題となる。{100}面に対し、{110}方向に数度の傾きを付けて研磨されたオフ角基板を使用することでステップフロー成長が促進されることが知られている[3]。図 C.2 に概略図を示す。オフ角を付けた基板上ではステップフロー成長が促進される。これにより異常粒子の発生点があってもその成長よりも早く、成長の起点を通過することで異常成長の抑制が期待される。

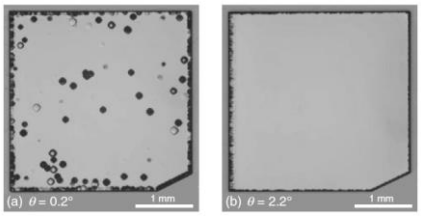

Fig. 1. OM images of heavily boron-doped diamond films grown at carbon concentration of 0.6% and B/C ratio of 1.6% in the gas phase for 70 h on diamond (001) substrates with misorientation angles of (a) 0.2 and (b) 2.2°.

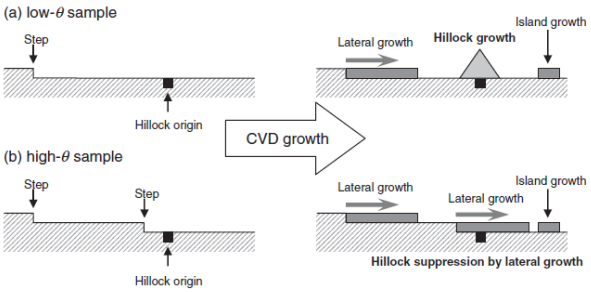

Fig. 2. Schematic diagram illustrating growth and suppression of hillocks in diamond growth on (a) low- and (b) high-θ samples.

図 C. 2 オフ角制御による異常成長の抑制[3]

左：オフ角の有無による異常成長の低減。　右：ステップフロー成長による異常成長起点の抑制。

C.2.5 α パラメータ制御

ダイヤモンドの自形面としてあらわれるのは{100}, {111}面である。これらに対し垂直な成分の成長速度を V_{100}, V_{111} とするとその成長速度の比は

$$\alpha = \frac{\sqrt{3}V_{100}}{V_{111}}$$

として定義され、これを α パラメータと呼ぶ。

メタン濃度、成長温度により α は変化する。α が変化する原因としてはプラズマ中の C_2H_2, CH_3 ラジカルの比が関係することが報告されている[4]。

Appendix C の引用文献

[1] H. Okushi, H. Watanabe, S. Ri, S. Yamanaka, and D. Takeuchi: Journal of Crystal Growth 237-239 (2002) 1269.

[2]P. K. Bachman, W. van Enckevort, Diamond and Related Materials 1 (1992) 1021

[3] N. Tokuda, H. Umezawa, K. Yamabe, H. Ohkushi, S. Yamasaki, Japan Journal of Applied Physics 46 (2007) 1469.

[4] Jian-Yun Zhang, Peng-Fei Wang , Shi-Jin Ding , David Wei Zhang , Ji-Tao Wang, Zhi-Jie Liu, Thin Solid Films 368 (2000) 266.

また、気相成長全般については藤森直治、鹿田真一著 *「ダイヤモンドエレクトロニクスの最前線」* 第 2 章、シーエムシー出版、エレクトロニクスシリーズ

電気学会・マイクロ波プラズマ調査委員会編、「マイクロ波プラズマの技術」第 5 章、オーム社

S. Koizumi, C. E. Nebel, M. Nesldek, “Physics and Applications of CVD Diamond” , Wiley-vch, Chapt. 3

を参照した。