平成 9 年度修士学位論文

人工ダイヤモンドを用いた粒子検出器の研究

大阪大学理学部長島研究室
理学研究科博士課程前期 2 年
香山正人

平成 10 年 3 月 6 日

概要

近年ダイヤモンドの合成技術の進歩が目覚しく、新たな粒子検出器の材料として人工ダイヤモンドが脚光を集めている。私はこの人工ダイヤモンドを用いた荷電粒子検出器の開発を試み、β線源に対する応答を評価した。β線源があるときとないときの比較から、人工ダイヤモンドがシグナルを出していることが確認された。

謝辞

最初に、今回の実験を行なう機会を私に与えて下さり、物理全般にわたる教養や知識を教えて下さった長島 順清 先生に深く感謝します。

羽澄 昌史 先生には、今回の実験において公私共に非常に多忙にもかかわらず、実験の御指導および実験に御助力頂き、本当にありがとうございました。

山中 卓 先生には、実験に対して様々なするどい御指摘をいただきました。ありがとうございました。

瀧田 正人 先生には、物理的、技術的な観点からアドバイスや教育的指導をいただき、大変お世話になりました。ありがとうございました。

原 隆宣 先生には、超御多忙の中、実験に際して様々なアドバイス、御助力、御尽力をいただきました。個人的にもたくさんお世話になりました。人に言えないようなことまでいろいろしていただきました。ありがとうございました。

秘書の続木 佐知子さんには、事務関係で大変お世話いただき、お忙しい中、時には立ち話、噂話、などと遊び相手にもなっていただき、研究生活を楽しくしていただきました。ありがとうございました。

KEK の田中 真伸さんには、私が実験で使用したプリアンプを快く提供して下さいました。ありがとうございました。

住友電気工業株式会社の今井 貴浩さんには、人工ダイヤモンドの合成の際に大変お世話になりました。それだけでなく、ダイヤモンドに関する疑問にも快くご回答して下さいました。ありがとうございました。

長島研究室の博士課程に在学中、もしくは卒業された、川崎さん、花垣さん、山口さん、八木さん、貞本さん、千代さん、加藤さん、住沢さん、日高さん、草野さん、竹貝さん、十河さん、あらゆる面にわたって我々のよき相談相手、話相手となっていただきました。往々にして、先輩方の仕事の手を止めてしまったり、飲みに連れていって下さったり、下世話な雑談で夜遅くまでつきあわせたりしてしまうこともありましたが、どんな時でも快く遊び、教えて頂きました。本当にありがとうございました。

目 次

概要 **i**

謝辞 **ii**

第 1 章　イントロダクション **1**
1.1　動機 1
1.2　ダイヤモンド粒子検出器の原理 2
1.3　本論文の構成 4

第 2 章　人工ダイヤモンド検出器の製作 **5**
2.1　合成ダイヤモンドパッド 5
2.2　ダイヤモンドの不純物濃度評価 6
2.2.1　ダイヤモンドの納品時検査結果 6
2.3　検出器アセンブリ 13

第 3 章　実験のセットアップ **15**
3.1　概要 15
3.2　読みだし系の較正とノイズ評価 16

第 4 章　実験結果 **18**
4.1　β 線源に対する応答 18
4.2　β 線計数効率 19
4.3　パンピングの効果 19

第 5 章　まとめと将来への展望 **28**

付 録 A　人工ダイヤモンドの合成法 **29**
A.1　超高圧合成法 30
A.2　気相合成法 30
A.3　参考データ 31

付 録 B 実験に使用した電子機器の詳細 **33**
B.1 プリアンプ 33
B.2 シェーピングアンプ 35
B.3 ADC 35

第1章　イントロダクション

1.1　動機

現在、高エネルギー物理学実験において、シリコンストリップ検出器が非常に高精度の飛跡検出器として用いられている。シリコンストリップ検出器は非常に有用ではあるが、放射線耐性に問題があり、高放射能環境でのシリコンの劣化、それに伴ってノイズの増加が見られる (洩れ電流の増加、電荷収集効率の低下など)。ゆえにシリコンでは高放射能環境では使用や応用に制限がある。一方、21 世紀初頭に計画されている種々の実験 (LHC,B-factory アップグレードなど) では、より高いビーム強度、より衝突点に近い場所で動作する飛跡検出器が必要となる。

そこで、高放射能環境でも使用できる検出器の候補として、人工ダイヤモンドを用いた飛跡検出器の開発が考えられる。ダイヤモンドは荷電粒子検出器の材料として、最も古くから考えられてきた物質の一つである。しかし当初は、高純度の天然ダイヤモンドの入手が困難であったため、開発、研究が行なわれてきたにも関わらず、実用的な検出器を作るにいたらなかった。しかし近年、飛躍的に人工ダイヤモンドの合成技術が向上し、高純度の人工ダイヤモンドが入手可能になったため、ダイヤモンドを用いた粒子検出器の開発、研究が盛んになってきている。

一般的にシリコンと比較して、ダイヤモンドは放射線耐性が非常に高く、実際にいくつかの実験で人工ダイヤモンドを用いた粒子検出器を作成し、その放射線耐性も調べられ [1],[2],[3]、その放射線耐性が高いことも証明されている。加えてダイヤモンドは、高温環境でも動作し、化学的にも浸蝕されにくく、対腐食性が優れていて苛酷な環境下でも検出器として使用できることが期待される。

その他にも、ダイヤモンドは洩れ電流によるノイズが小さい、熱ノイズが小さい、誘電率が低い、荷電粒子への反応時間が短い、原子番号が小さいため、シンクロトロン放射によるバックグラウンドが少なくなるためビームラインの近傍で用いる際に有利、な

どが長所としてあげられる。

こういった理由から、ダイヤモンドを用いた検出器は次世代の高エネルギー物理学実験だけでなく、その他の苛酷な実験環境で使用される検出器の新たな選択肢となる可能性がある。

そこで我々は、合成単結晶ダイヤモンド、CVD ダイヤモンドの合成方法の異なる 2 種類の人工ダイヤモンド[1]を用いて検出器を作成した。この二つの人工ダイヤモンドの大きな違いは、CVD ダイヤモンドは多結晶のダイヤモンドであることである。多結晶に比べて単結晶ダイヤモンド中では、電子、ホールの寿命が長いことが期待され、それを用いた検出器は CVD ダイヤモンドよりも性能がよいことが予想される。CVD ダイヤモンドを使った検出器は CERN RD42 グループがかなりの成功を収め、様々な放射線に対してその振舞いを調べている。単結晶ダイヤモンドでは、α 線に対しての振舞いを神奈川大学工学部 [6] や原研 [7] がある程度成功をおさめている。

我々は、比較線源 $^{90}\mathrm{Sr}$ を用いて β 線を照射し、作成した検出器の性能を評価した。

1.2 ダイヤモンド粒子検出器の原理

ダイヤモンド粒子検出器は、荷電粒子がダイヤモンドを通過した時に生成される電子ホール対をバイアス電圧で電極に収集し、その電荷をモニターすることによって荷電粒子を検出する。

厚み $500\mu\mathrm{m}$ のダイヤモンドに最小電離粒子[2] が入射したとき、ダイヤモンド中で入射粒子はピークエネルギー $245\mathrm{keV}$ を落しながら、通過する。このエネルギーの一部を吸収して、電子ホール対生成が行なわれる。ダイヤモンド中で電子ホール対を生成するのに必要なエネルギーは $13.6\mathrm{eV}$ なので、生成される電子ホール対の $1\mu\mathrm{m}$ あたりのおおよその数は、

$$\frac{245(\mathrm{k}e\mathrm{V})}{13.6(e\mathrm{V})} \times \frac{1}{500(\mu\mathrm{m})} \sim 36(e/\mu\mathrm{m}) \tag{1.1}$$

である。この生成された電荷を電極へ集めることができれば、ダイヤモンドを検出器材料として用いることができる。

[1] 詳細なことについては付録 A 参照

[2] *mip*:*Minimum Ionization Particle*。

図 1.1 のようなダイヤモンド検出器のモデルを考える。ダイヤモンドにバイアス電圧 $V(E = -dV/dx)$ を印加したとき、電場によって電子、ホールは電極の方へ引き寄せられる。生成された電子、ホールがダイヤモンド中を移動できる距離、d_e, d_h は次のように表される。

$$\left\{ \begin{array}{rcl} d_e & = & \mu_e \tau_e E \\ d_h & = & \mu_h \tau_h E \end{array} \right. \left(\begin{array}{rl} \mu_e, \mu_h & : \text{電子、ホールの移動度} \\ \tau_e, \tau_h & : \text{電子、ホールのダイヤモンド中での寿命} \end{array} \right)$$

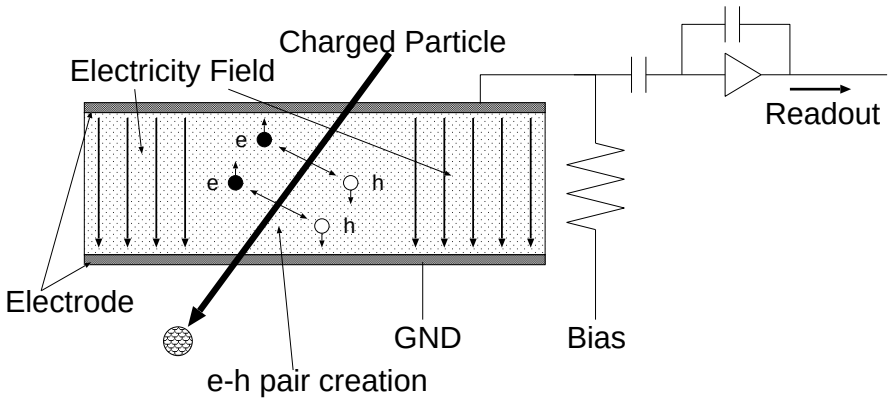

図 1.1: ダイヤモンド検出器のモデル図

ただし電子、ホールの速度 $\mu_e E, \mu_h E$ はある E がある大きさを超えると飽和速度 $\mu_e E = v_e, \mu_h E = v_h$ で一定値となる。

これらを用いて電荷収集長 d を次のように定義する。

$$\begin{aligned} d &\equiv d_e + d_h \\ &= \left(\mu_e \tau_e + \mu_h \tau_h \right) E \end{aligned}$$

ダイヤモンド中で生成された電子、ホールはバイアス電圧によって電極へ移動するとき、不純物によるエネルギー準位などにいくらか捕獲され、全ての電子が電極まで到達できることができない。最小電離粒子が厚み D のダイヤモンド通過することによって生成された電荷量の平均値を $\langle Q_{mip-generated} \rangle$、電極にまで到達できた電荷量の平均値を $\langle Q_{collected} \rangle$ とすると、近似的に次の関係があることが調べられている [4]。

$$\begin{aligned} d &\approx \frac{\langle Q_{collected} \rangle}{\langle Q_{mip-generated} \rangle / D} \\ &= \frac{\langle Q_{collected} \rangle}{36(e^-/\mu\mathrm{m})} \end{aligned}$$

ゆえにバイアス電圧による電場と電極に集められた電子の関係は、

$$\langle Q_{collected} \rangle \approx 36(e^-/\mu\mathrm{m}) \times (\mu_e \tau_e + \mu_h \tau_h) \times E$$

と表される。この式から、電極からシグナルとして得る電荷量は E にに比例することがわかる。ただし、$\langle Q_{collected} \rangle = 36(e^-/\mu\mathrm{m}) \times (v_e \tau_e + v_h \tau_h)$ を超えることはない。

電子、ホールの寿命 τ_e, τ_h はダイヤモンドの純度に依存し、不純物が多いと電子、ホールは不純物によるポテンシャルなどに捕獲されやすくなるため、寿命は短くなる。ゆえに、さらに電極から大きな電荷を取り出すにはより高純度のダイヤモンドが必要となる。このためにダイヤモンドを用いた検出器の開発には高純度のダイヤモンドを得ることが非常に大切である。

1.3 本論文の構成

本文の構成は以下の通りである。まず第 2 章で人工ダイヤモンド検出器の製作について述べる。特に放射線測定器としての性能に大きな影響を与える不純物濃度の評価について詳しく述べる。続いて β 線源を用いた実験のセットアップについて第 3 章で説明したのち、第 4 章に実験結果とその解釈を述べる。第 5 章にまとめと将来への展望として可能な応用法やさらなる研究開発の方向について述べる。

第2章　人工ダイヤモンド検出器の製作

2.1　合成ダイヤモンドパッド

我々は住友電子工業伊丹制作所にダイヤモンドパッドの合成を依頼した。詳細な依頼書およびメーカー側で行なった出荷前検査の結果は 2.2 節で説明する。

入手したのは次の 2 タイプのダイヤモンドである。

1. CVD ダイヤモンドパッド　(SI3)　4 個
2. 合成ダイヤモンド単結晶 (タイプ IIa) パッド　(SBD-II)　4 個

合成方法の詳細は付録 A に説明を載せた。

ここでいうパッドとは、板状の物質の両面に電極を張り付けた最も単純な検出器の形態をいう。我々の使用するダイヤモンドパッドの形状は図 2.1 の通りである。

電極は標準メタライズと呼ばれる方法で上下面に取り付けた。これは図のように Ti(600Å), Pt(800Å), Au(1μm) の順にダイヤモンドにコーティングする方法で、優れた密着度と高い電気電導性を持ったオーミック接合を実現する。

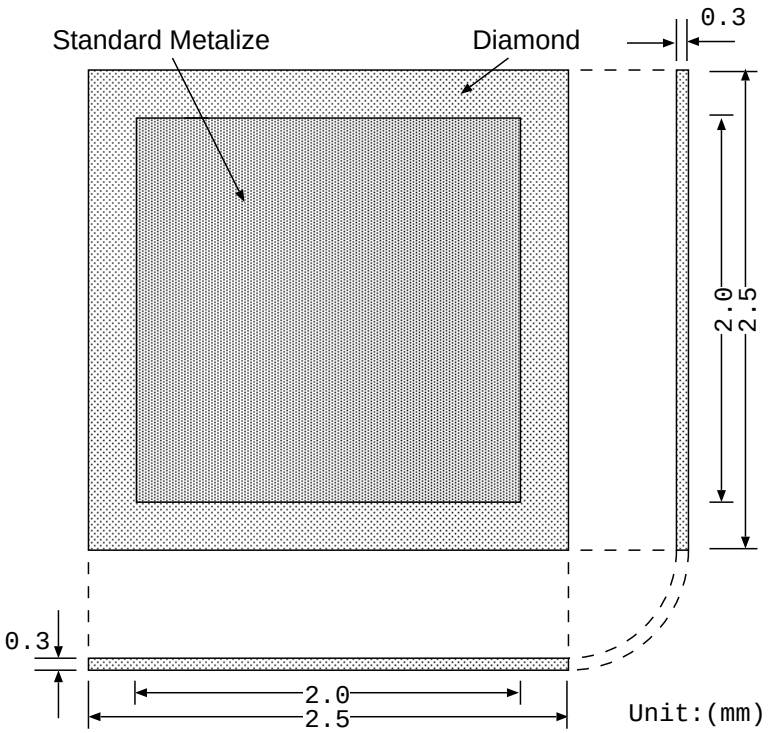

図 2.1: ダイヤモンドパッド (CVD ダイヤモンド, 合成ダイヤモンド 単結晶とも) の外観

2.2 ダイヤモンドの不純物濃度評価

2.2.1 ダイヤモンドの納品時検査結果

人工ダイヤモンドの不純物として、ダイヤモンドの同素体、窒素、酸素、水素、Fe,Al,Mg,Sc,Mn,V などが含まれているが、これらが人工ダイヤモンドにどの程度含まれるかどうかが品質に関わるため、これらを知る目安として、ラマン分光分析、赤外光吸収分析、紫外光可視光吸収分析を、CVD ダイヤモンドの結晶粒の大きさをおおよそ知るために SEM 写真を調べた。検査は納品時に住友電工にて行なわれた。

品名 ($X \times Y \times Z$)	単結晶パッド ($2.5 \times 2.5 \times 0.3$mm)				CVD パッド ($2.5 \times 2.5 \times 0.28$mm)			
Lot No.	SBDII-1	SBDII-2	SBDII-3	SBDII-4	SI3-1	SI3-2	SI3-3	SI3-4
X (± 0.1mm)	2.494	2.493	2.490	2.506	2.471	2.485	2.493	2.486
Y (± 0.2mm)	2.503	2.502	2.507	2.496	2.482	2.485	2.484	2.485
Z (± 0.03mm)	0.318	0.301	0.349	0.319	0.295	0.293	0.293	0.303
I–V 特性 (抵抗値)	$> 10^{12}\Omega$	$> 10^{11}\Omega$	$> 10^{14}\Omega$	$> 10^{11}\Omega$	$> 10^{14}\Omega$	$> 10^{14}\Omega$	$> 10^{14}\Omega$	$> 10^{14}\Omega$
ラマン分光分析	○	○	○	○	○(CVD の基材は共通)			
赤外光吸収分析	○	○	○	○	○(CVD の基材は共通)			
紫外光可視光吸収分析	○	○	○	○	○(CVD の基材は共通)			
SEM 写真	なし				○(CVD の基材は共通)			

ラマン分光分析

ラマン分光分析では、ダイヤモンド以外の炭素の同素体の混入の有無を調べることができる。

ダイヤモンド以外の炭素の同素体にはカルビン、黒鉛、それらの同素体が混在した無定型炭素がある。

ダイヤモンドが sp^3 結合した炭素であるのに対し、カルビン、黒鉛はそれぞれ $\mathrm{sp}^1, \mathrm{sp}^2$ 結合した炭素である。カルビンは炭素の高温相で安定な物質で、炭素が $2600\mathrm{K}$ 以上の温度に加熱されたときに生成するといわれていて、韻石中で発見されている。黒鉛はグラファイトとも呼ばれ、六角形の編目をした層が積み重なった構造をしていて、層と層の間はファンデルワールス力で結合している。そのため、層と層の間の結合力が弱く、へき開しやすい。また、導電性ももっている。ダイヤモンドは 1500 度を超えると黒鉛に相転移を開始するために、ダイヤモンドの合成温度は 1500 度を超えることができない。

- ラマン散乱とは？

  固体に光を照射した場合、光の一部は散乱を受ける。このとき照射光が線スペクトルであれば、散乱光も線スペクトルである。照射光と散乱光の波長が同じ散乱をレイリー散乱と呼ぶ。散乱光を調べると、照射光と散乱光の波長が異なる散乱光があり、レイリー散乱による振動数 ν_0 の光の他に、散乱物質によって特徴づけられる振動数 $\nu_1, \nu_2, \nu_3, \cdots$ を用いて $\nu_0 - \nu_1, \nu_0 - \nu_2, \nu_0 - \nu_3, \cdots$ で表されるストークス線と、$\nu_0 + \nu_1, \nu_0 + \nu_2, \nu_0 + \nu_3, \cdots$ で表される反ストークス線が散乱光として見られる。この散乱をラマン散乱という。

- なぜラマン散乱が起こるのか？

  $\nu_1, \nu_2, \nu_3, \cdots$ は赤外線吸収スペクトルに現れる散乱物質分子の振動スペクトルである。つまりラマン散乱は散乱物質分子の振動 (フォノン) による散乱である。固体

に光を照射した場合、光の電場のために原子や分子の電子分布がゆがみ、原子や分子の電極が生じ、この電子分極の割合が固体中に存在する格子振動や分子内振動 (フォノン) によって変調され、電子分極は照射光と同じ振動数をもつ成分の他に、異なる振動数を持つことができるようになる。

- ラマン散乱から何を知ることができるのか？

  ラマン散乱光を調べることによって、材料 (散乱物質) の構造、結晶などの情報を得ることができる。ダイヤモンドのラマンスペクトルは、$520{,}1333\ \mathrm{cm}^{-1}$ 付近に単一のピークが見られる。無定形炭素は $1360\mathrm{cm}^{-1}$ に、黒鉛は $1581\mathrm{cm}^{-1}$ 付近に単一のピークが見られる。また、非結晶になるとラマンスペクトルの幅が広くなることが知られている。

我々の実験で用いる人工ダイヤモンドのラマンスペクトルが図 2.2 にある。これから、我々の実験で用いる人工ダイヤモンドはダイヤモンド以外の炭素の同素体をほとんど含んでいないことがわかる。

赤外光吸収分析

赤外光吸収分析によって、合成時にダイヤモンドに混入した水素、ホウ素、窒素などの混入の有無を調べることができる。

- 赤外光吸収分析とは？

  気体、液体、固体の分子に光を照射すると、量子条件を満たす光の一部は分子によって吸収される。このとき、準位 1、準位 2 のふたつの量子状態のエネルギーを E_1, E_2 その差を δE とおけば、プランク定数を h, 光の振動数を ν とすると、

$$\delta E = h\nu$$
$$\delta E = E_1 - E_2 (< 0)$$

  で表される。ここで準位 1 の分子は δE のエネルギーを吸収して準位 2 に遷移し、準位 2 の分子は δE のエネルギーをして準位 1 に遷移する。

  分子のエネルギー準位は、電子エネルギー、振動エネルギー、回転エネルギーの三つからなっており、それぞれにエネルギー準位がある。エネルギーの差は電子準位

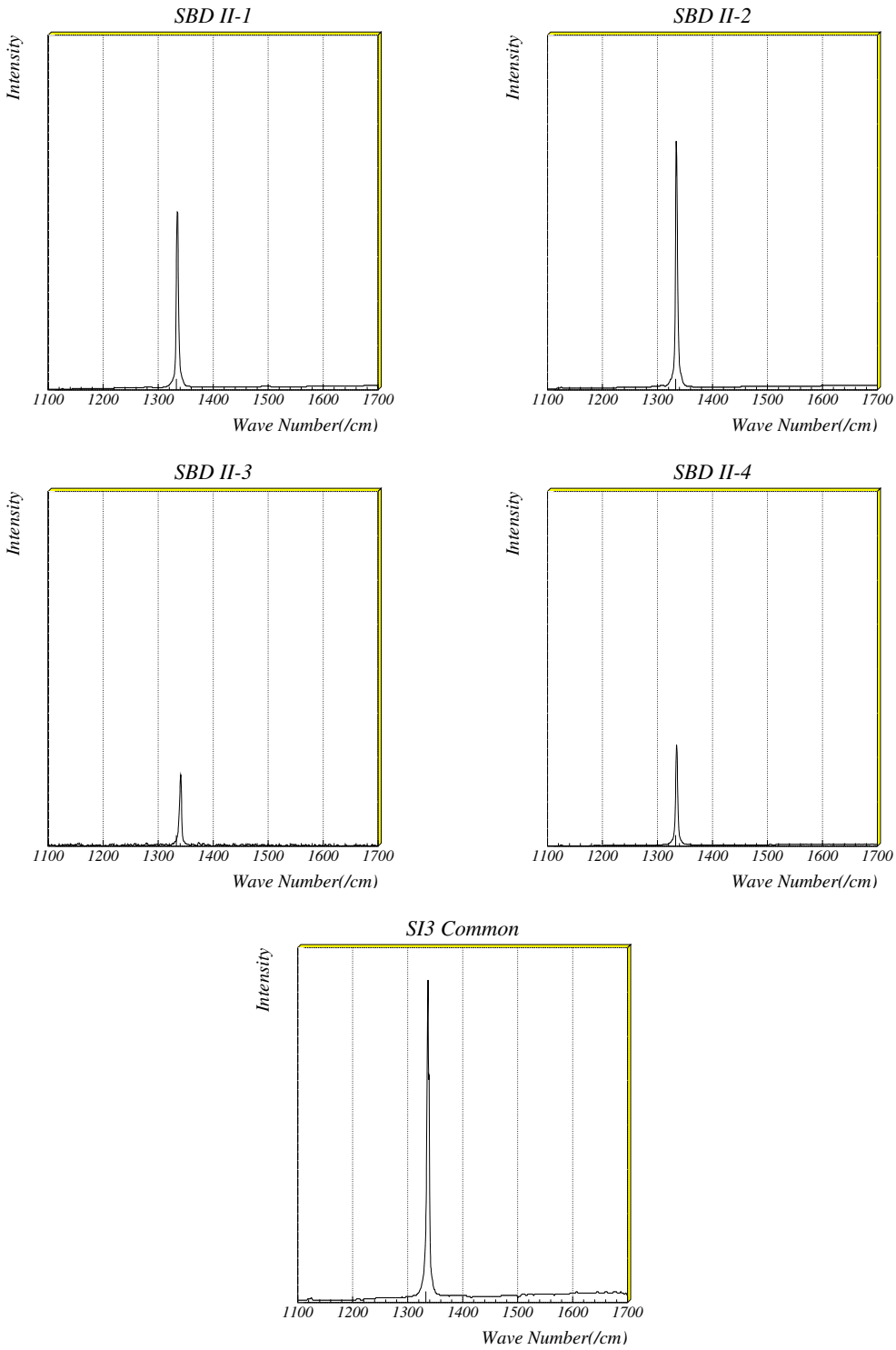

図 2.2: ラマンスペクトル

で最も大きく、それぞれの電子準位内に振動準位があり、さらにそれぞれの振動準位内に回転準位がある。これらの中で、振動準位による光の波長は通常 $1 \sim 100\mu\mathrm{m}$ で赤外部、遠赤外部に相当し、赤外線吸収分光分析は主にこの振動準位間の遷移による赤外線の吸収を測定する。

- ダイヤモンドにおける赤外光吸収

  分子が赤外光を吸収するには双極子モーメントが変化する必要があり、双極子モーメントの変化量が大きいほど吸収も大きくなる。しかし、純粋なダイヤモンドは正四面体構造のため、一つのフォノンの励起では双極子モーメントが変化せず、赤外線吸収は観測されない。しかし、複数のフォノン (マルチフォノン) が同時に励起される場合は双極子モーメントにずれが生じるため、赤外光吸収を観測することができる。赤外光吸収スペクトルに見られる波長 $4 \sim 6\mu\mathrm{m}$(波数 $1670 \sim 2500/\mathrm{cm}$) の吸収は、全てのダイヤモンドで見られるマルチフォノンによる吸収である。

  - 窒素が含まれる場合

    ダイヤモンド中に窒素が不純物として混ざると波長 $8.85\mu\mathrm{m}$(波数 $1130/\mathrm{cm}$) をピークに新たな吸収が見られる。これは窒素が凝集して混入する場合と、孤立して混入する場合で異なる。

    またシングルフォノンの吸収帯に吸収が見られる場合も窒素原子の混入によるものである。

  - ホウ素が含まれる場合

    ホウ素が混入すると、波長 $3.8\mu\mathrm{m}$(波数 $2630/\mathrm{cm}$) 付近に強い吸収が見られる。これはホウアクセプタのダイヤモンド価電子帯からのエネルギーレベルが $0.37\mathrm{eV}$ であることに対応している。

  - 水素が含まれる場合

    気相合成でダイヤモンドを合成する場合、水素原子が sp^3 結合の炭素原子と結合してダイヤモンド中に存在し、$-\mathrm{C}-\mathrm{H}$ の伸縮モードによって、波長 $3.4 \sim 3.5\mu\mathrm{m}$ (波数 $2860 \sim 2940/\mathrm{cm}$) に吸収のピークが見られる。$\mathrm{sp}^2$ 炭素と水素の結合した $=\mathrm{C}-\mathrm{H}$ によって波長 $3.2 \sim 3.3\mu\mathrm{m}$(波数 $3030 \sim 3120/\mathrm{cm}$) に吸収が見られるが気相合成ダイヤモンドには見られない。

我々のダイヤモンドにおける、FTIR (フーリエ変換赤外線分光) による赤外光吸収スペクトルは図 2.3 である。

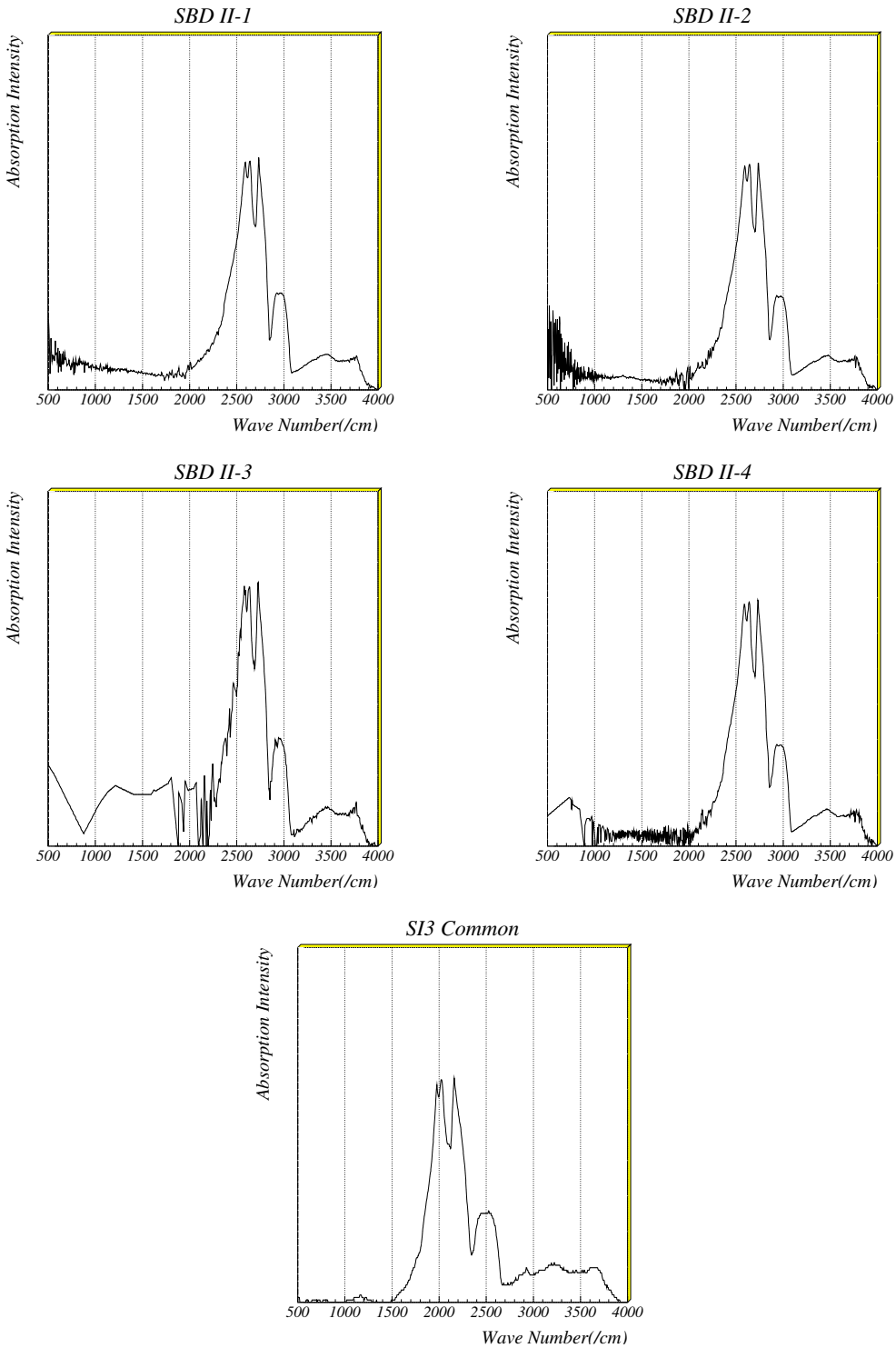

図 2.3: 赤外光吸収の結果

紫外光可視光吸収分析

紫外光可視光の吸収スペクトルを調べることによって、窒素の混入を調べることができる。この吸収スペクトルによって、我々のダイヤモンドは窒素含有量の少ない良質のダイヤモンドであることがわかった。

ダイヤモンドは可視光および紫外光の広い領域で透明で、その反射率が 0.15 であることから理論透過率はおよそ 72%になる。ゆえに可視光領域ではダイヤモンドはほぼ光を吸収せず、紫外光領域では波長 λ が短くなるにしたがって徐々に透過率が減少し、$\lambda = 225\mathrm{nm}$ で 0%になる。このときの波長 λ を吸収端と呼ぶ。この吸収端はダイヤモンドの荷電子帯と伝導帯の禁制帯幅 $E = 5.45\mathrm{eV}$ に対応していることは、次の計算によってわかる。

$$\begin{aligned}\lambda = hc/E &= \frac{6.6262 \times 10^{-34}(\mathrm{J\cdot s}) \times 2.9979 \times 10^{8}(\mathrm{m/s})}{5.45(\mathrm{eV}) \times 1.6022 \times 10^{-19}(\mathrm{J})} \\ &= 225\mathrm{nm}\end{aligned}$$

- 凝集した状態で窒素が含まれる Ia 型ダイヤモンドの場合、可視光領域ではほとんど吸収は見られず、可視光と紫外光の境界の $\sim 420\mathrm{nm}$ を中心として吸収が見られる。これは炭素原子の周囲に窒素原子が 3 つ置換した N3 センタと呼ばれる構造の欠陥によるものである。

- 均一分散した状態で窒素が含まれる IIb 型ダイヤモンドの場合、$600\mathrm{nm}$ 付近から吸収が見られ、$400\mathrm{nm}$ でほとんど透過しなくなる。これは窒素原子が置換型でダイヤモンドの結晶構造に混入しているためで、この窒素原子のドナー準位は伝導帯から $1.7\mathrm{eV}$ で $730\mathrm{nm}$ に相当し、$600\mathrm{nm}$ 付近から吸収が起きることがわかる。ゆえにダイヤモンドは混入した窒素の量が増えるにしたがって、その色を緑 $\rightarrow$ 黄 $\rightarrow$ 茶に変化させる。

- 良質な気相合成ダイヤモンドの場合、透過率が広範囲で 60%以上で、Ia 型ダイヤモンドとほぼ同じである。

走査型電子顕微鏡 (SEM)

走査型電子顕微鏡は通称 SEM [1]と呼ばれ、倍率が比較的低く、物質の表面の状態を調べるのに用いられる。ダイヤモンドを SEM で観察した場合、ダイヤモンド特有の三角

[1] *Scanning Electron Microscope* の略

形や四角形の自形面が観察される。我々の CVD ダイヤモンドの SEM 写真が図 2.4 にある。我々の CVD ダイヤモンドの結晶は 10 ～ 数 10μm の多数の細かい結晶からなる多結晶体であることがわかった。

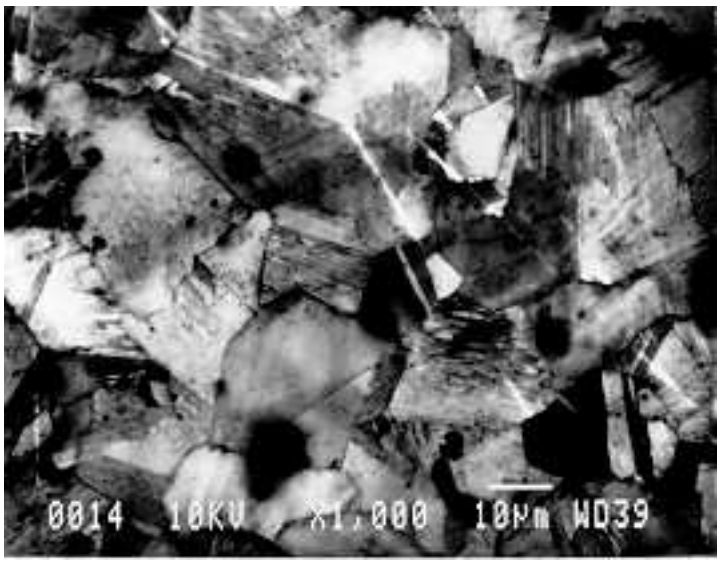

図 2.4: CVD ダイヤモンドの SEM 写真

2.3 検出器アセンブリ

前節で述べたダイヤモンドパッドにリード線をとりつけ、前置増幅器と接続できるようにした。具体的には、図 2.5 の用に読み出しのためのアルミニウムリボンを十字に取り付け、さらにこれを厚さ 500μm のプラスティックの板ではさみ、圧着した。

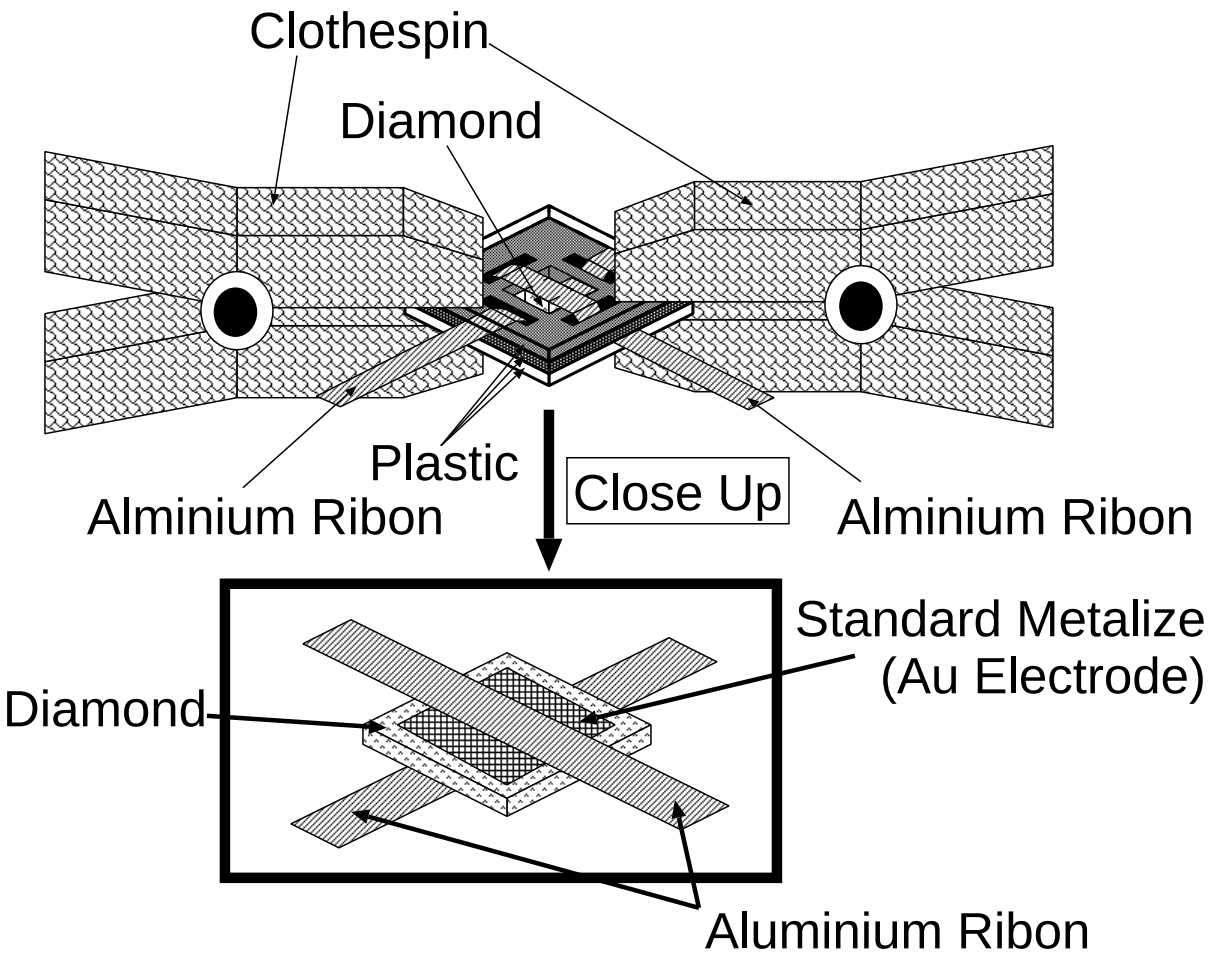

図 2.5: ダイヤモンドパッドのアセンブリ (電極のとりつけ法)

第3章　実験のセットアップ

3.1　概要

以下のようなセルフトリガーの実験系を構築した。

ダイヤモンドパッドから荷電粒子の通過によって生じた電荷を、B-factory CsI カロリーメーターグループの使用するプリアンプを用いて測定した。このプリアンプは電荷を入力として電荷量を電圧に変換して出力する。表 B.1 に主な性能を記述した。これ以上の詳細は付録 B.1 を参照。

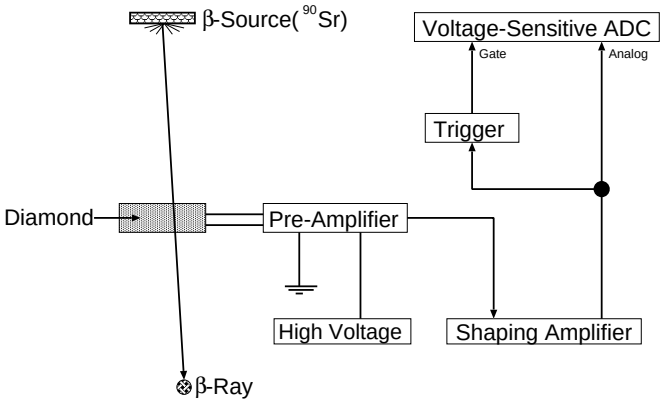

図 3.1: 実験システム図

入力電荷 / 出力電荷比	$0.77\mathrm{V/pC}$
最大出力電圧	$5\mathrm{V}$
ノイズレベル	$2.8 \times C + 240(e^-)$ C は検出器の静電容量 (pF)

表 3.1: B-factory CsI カロリーメータープリアンプの概要

3.2 読みだし系の較正とノイズ評価

読みだし系の較正は、テストパルス入力を用いて行なった。図 B.5 に示したように、テストパルス入力には 1pF のコンデンサーがあり、階段型の電圧パルス (ΔV[V]) を入力することにより、プリアンプの FET 入力に $Q = C_{TP}\Delta V$ クーロンの電荷を与えることができる。ここで $C_{TP} = 1$pF である。具体的には、例えば ΔV =1.6mV のとき、$Q = 1.6$fC=$10000e^-$ となる。

較正の結果、ADC 値と得られた電荷量の関係 (図 3.2) が求められた。これからこの読み出し系の利得は $13.05e^-$/ADC-count と求められた。使用した ADC のレンジは 0∼2048count であるから、この系では β 線のシグナルを十分な分解能 ($13.05e^-$) とダイナミックレンジ $511 \sim 27200e^-$ で記録できる。

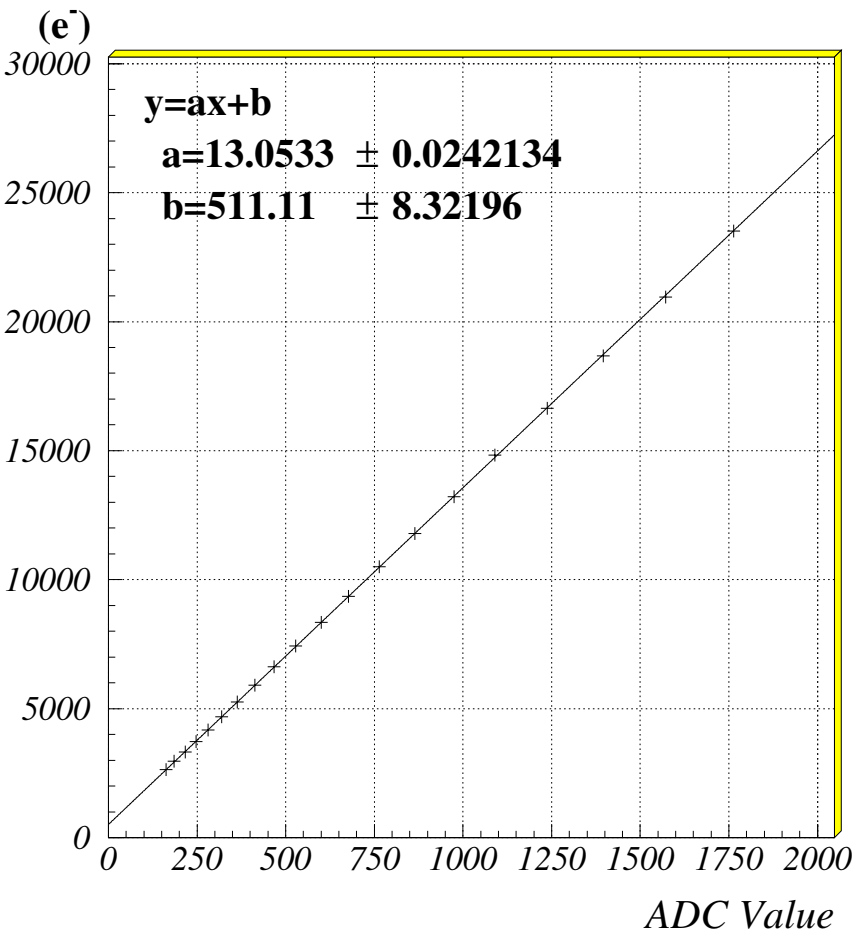

図 3.2: ADC 値と得られた電荷量の関係

第4章　実験結果

4.1　β線源に対する応答

合成単結晶 SBD-II 1 について、バイアス電圧 100V,200V,300V において、β 線源に対する応答をみた。結果は図 4.1, 4.2, 4.3 にある。

斜線部はノイズの評価のために β 線源を用いずに測定したデータ、非斜線部はシグナルの評価のため β 線源を用いて測定したデータである。

さて、斜線部と非斜線部を比較すると、両者は明らかに区別することができて、斜線部をノイズと考えることができる。いずれの図においても、斜線部に比べて非斜線部は x 軸の正の方向に伸びていて、β 線に対するシグナルであると考えられる。これは、β 線に対する応答の観測としては最も薄い $(0.3\mathrm{mm})$ 人工単結晶ダイヤモンドによる測定結果である。

さて、我々が用いた β 線源 $^{90}\mathrm{Sr}$ は最小電離粒子の β 線を放射する。式 1.1 によると我々の検出器では最小電離粒子が通過した場合、ピーク値で $36(e^-/\mu\mathrm{m})\times 300(\mu\mathrm{m}) = 11800(e^-)$ の電子ホール対を生じる。もし我々の検出器に十分な分解能があれば、β 線の通過に起因したピークがシグナルに見られるはずであるが、残念ながら我々の得たシグナルはピークは見られず、指数関数的に減少する。この原因については次の節でまとめて議論する。

その他の単結晶サンプルについては、どれもバイアス電圧を 100V までかける前に非常に大きなノイズが観測されるようになり、意味のある測定ができなかった。種々のアセンブリ方法を試みたが同じ結果であり、サンプルの特性にかなりばらつきが見られることがわかった。

また、CVD ダイヤモンドについてはサンプル SI3-1,SI3-2 を用いて測定を行なったが、ノイズに対し有意な大きなシグナルは得られなかった。

4.2 β線計数効率

図 4.4, 4.5, 4.6 は、シグナルの評価のため β 線源を用いて測定したときの、測定開始時からの計数率の変化を表したものである。いずれも測定開始とともに急速に計数率が減少し、50∼60Hz 程度に収束していることがわかる。β 線源を用いない場合の計数率は ∼45Hz で変化はない。β 線源の設定や時刻、その他の条件を変えて測定を繰り返したが、この現象は常に再現された。

なぜこのようなことが起こるのであろうか? 1.2 節による議論ではこのように計数率が時間とともに減少したり、前節のようにシグナルにピークが見られなかったりすることはない。これらを説明する現在有力とされている説は「ダイヤモンド内に生じる分極によって実効バイアス電圧が減少するためにこれらが起こる」という説 [8] である。

ダイヤモンド内で電子ホール対が生成されたとき、バイアス電圧が印加されていれば電子、ホールはそれぞれ電極へ移動する。しかしこのとき、不純物の混入によるポテンシャルに電子、ホールは捕獲されることがある。捕獲されたホールはある時間を経て再び放出されるが、この仮説によれば電子の場合は放出されることがない。そのため、電子のみがダイヤモンドの片側の電極周辺に蓄積され、実効バイアス電圧を弱めることになる。文献 [8] によれば、不純物としての窒素濃度が高いほどこの現象が顕著に現れる。我々のサンプルの場合、 2.2 節に述べたように、窒素濃度は従来のものよりかなり低い (1ppm 以下) が期待されているにもかかわらず、計数効率の減少が見られた。なお、同じ住友電工社製の IIa 型ダイヤモンドに対し、α 線を使用した試験でも、同様の報告がある [7]。

4.3 パンピングの効果

ではどのようにしてこの不都合な現象を防げばよいのであろうか?これは一つにパンピングと呼ばれる現象を利用してある程度防ぐことができる [8]。

パンピングはダイヤモンドを使用する前に放射線をある程度照射しておくと、不純物準位が電子、ホールによって埋められ、検出器の性能が向上することをいう。

バイアス電圧を印加せずにダイヤモンドに放射線を照射すると、ダイヤモンド内で一様に電子ホール対が生成し一様に捕獲されて、安定な状態になる。この状態で検出器として使用した場合、あらかじめ不純物準位に電子が満たされているため、不純物による捕獲も少なく、分極による実効バイアス電圧の減少も見られないため、性能が向上する可能性がある。

この効果を調べるため、$4.8\mathrm{Gy}$(空気換算)のγ線を照射後、遮光した状態で再びγ線に対する応答を調べた。照射は大阪大学RIセンターにおいて$^{137}\mathrm{Cs}(111\mathrm{GBq})$を用いて行なわれた。結果を図$4.7$に示す。図からわかるように、$\gamma$の照射前、照射後においてほとんど変化が見られないことがわかる(ノイズの影響を除去するため、$2700e^-$以上での比較を行なった)。また、計数率にかんしても目だった改善は見られなかった。

CVDダイヤモンドについても同様にγ線を照射したが、やはり有意なシグナルは得られなかった。

パンピングの効果がほとんど見られないこと、ラマン分光その他の検査により窒素濃度が低いことが期待されることから、電子捕獲以外の原因がある可能性がある。文献[8]によれば、捕獲準位の他に再結合中心が存在すると感度が著しく損なわれるという報告がある。この場合には、放射線照射を行なっても電荷収集長が大きくならない。しかしながら、再結合中心を用いて計数率の低下を説明することはできず、単一の原因で測定結果を説明する仮説は見い出せなかった。

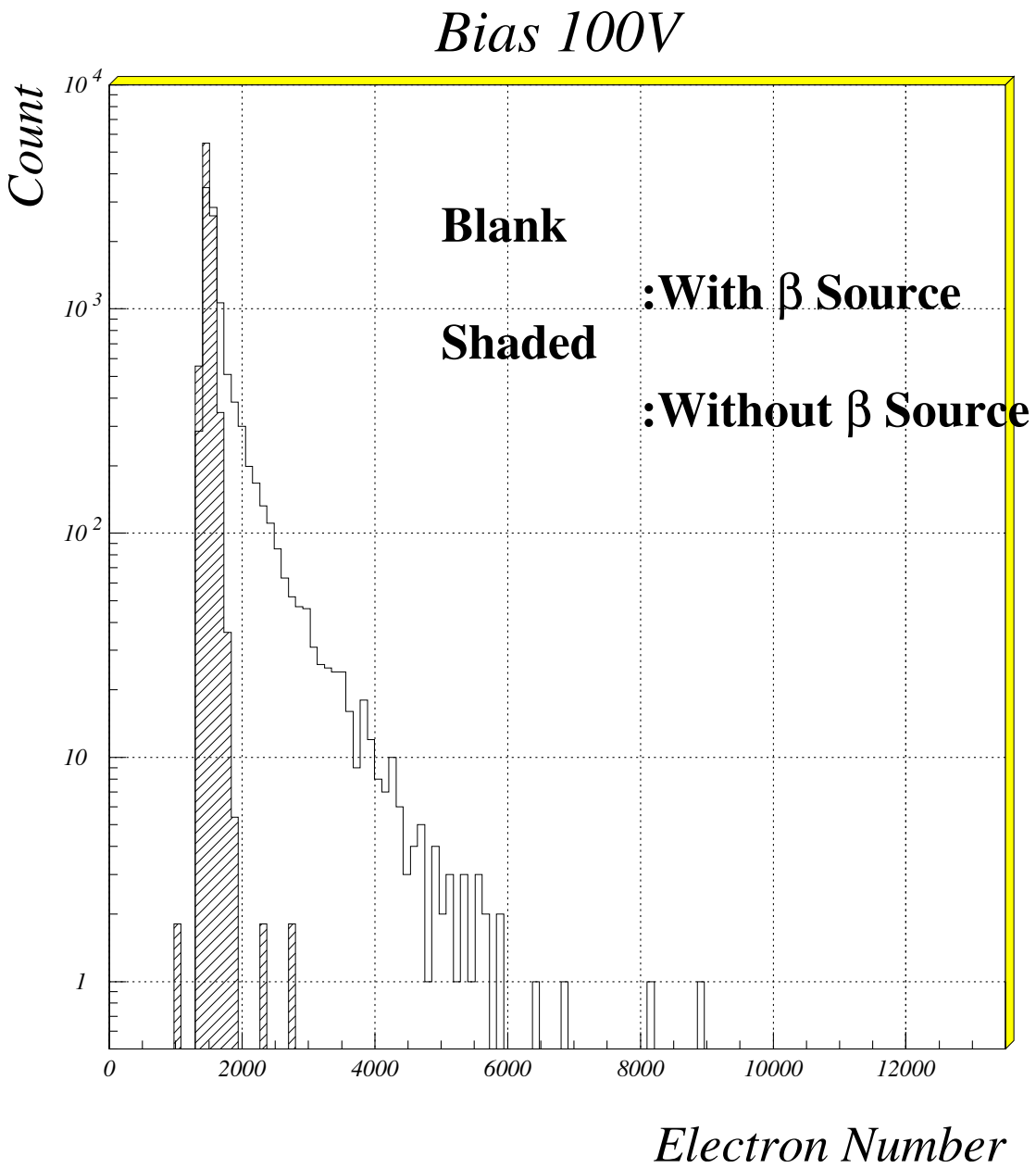

図 4.1: バイアス電圧 100V における β 線に対する応答 (SBD-II 1)

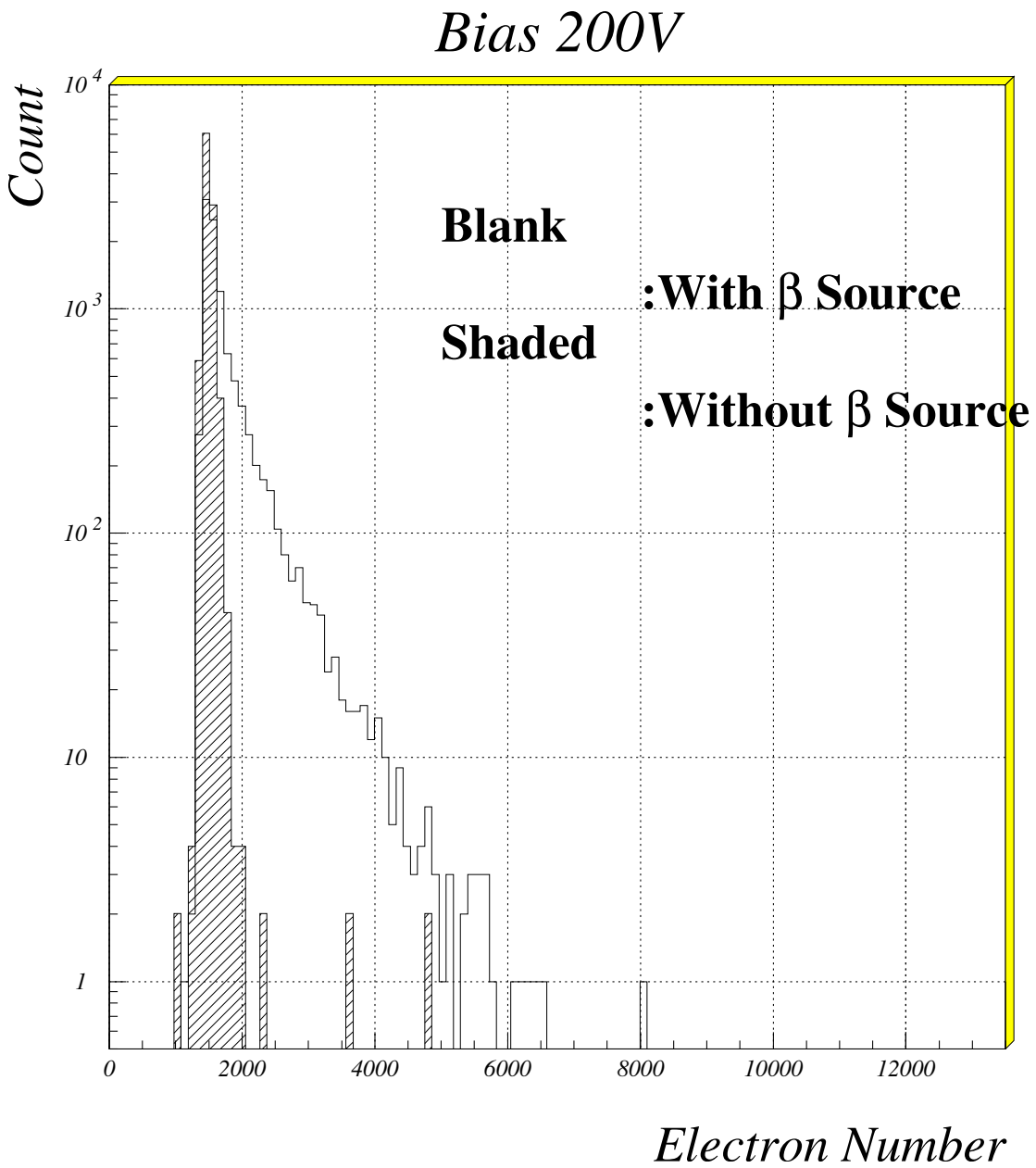

図 4.2: バイアス電圧 200V における β 線に対する応答 (SBD-II 1)

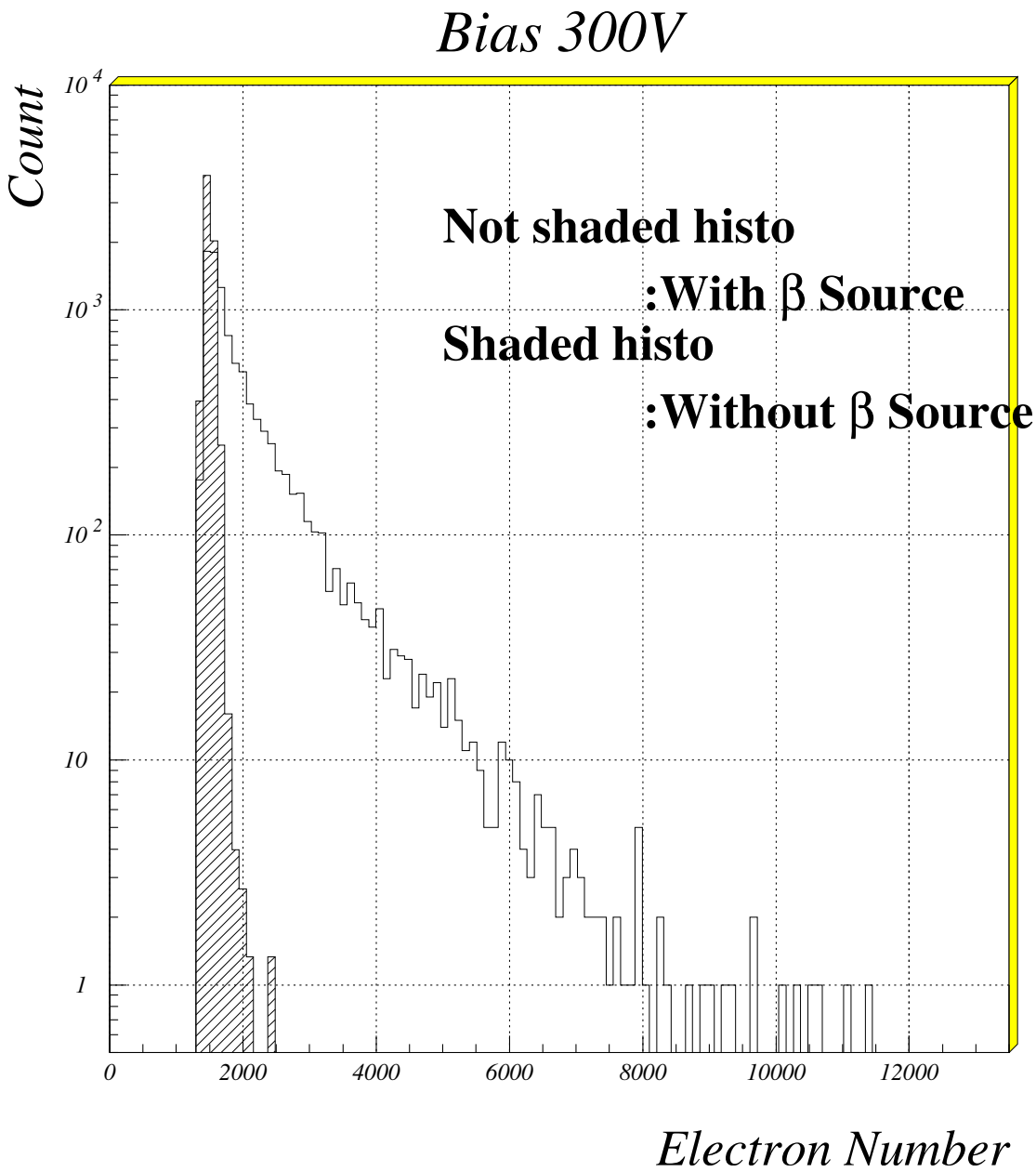

図 4.3: バイアス電圧 300V における β 線に対する応答 (SBD-II 1)

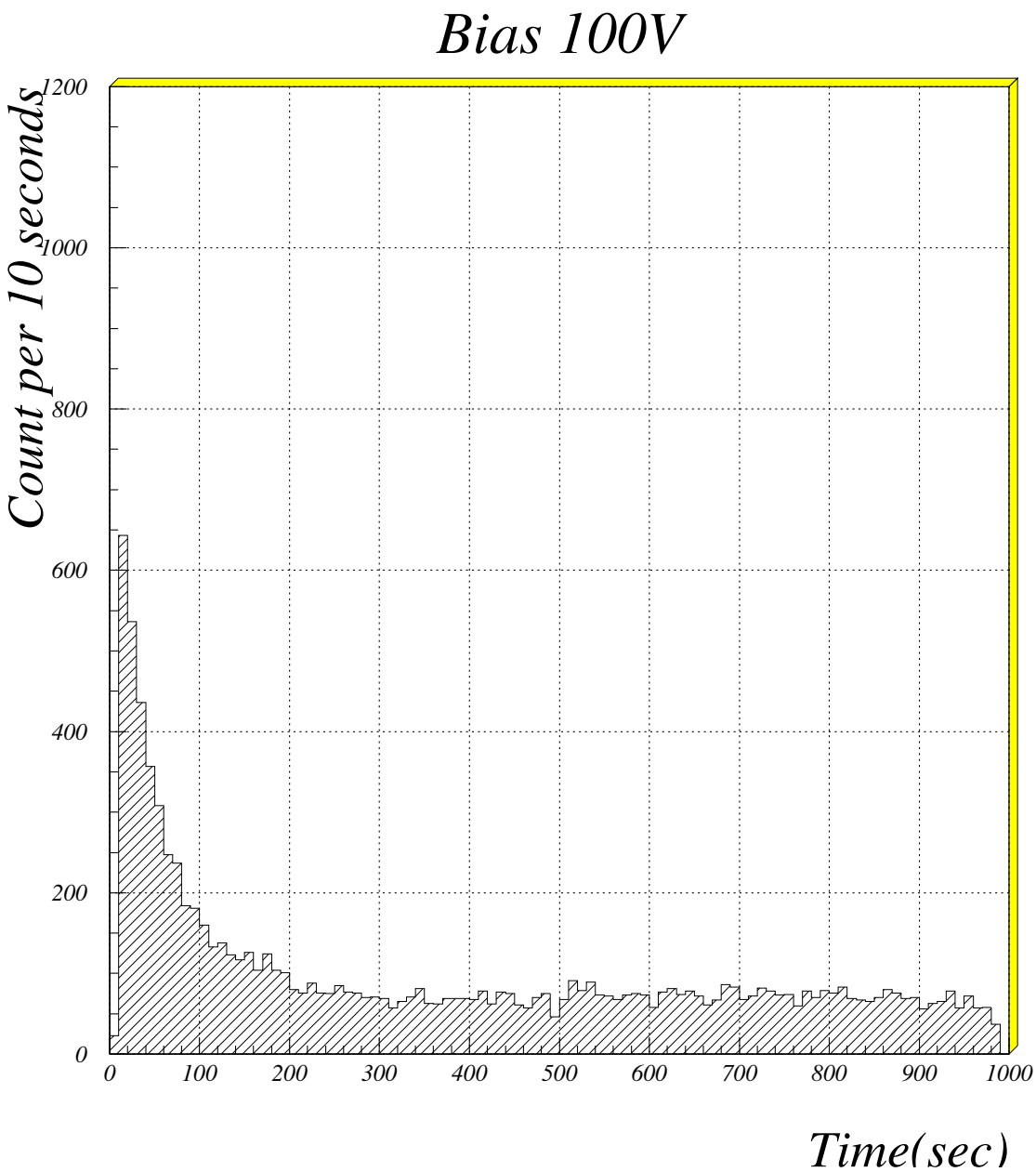

図 4.4: バイアス電圧 100V における計数率の時間変化

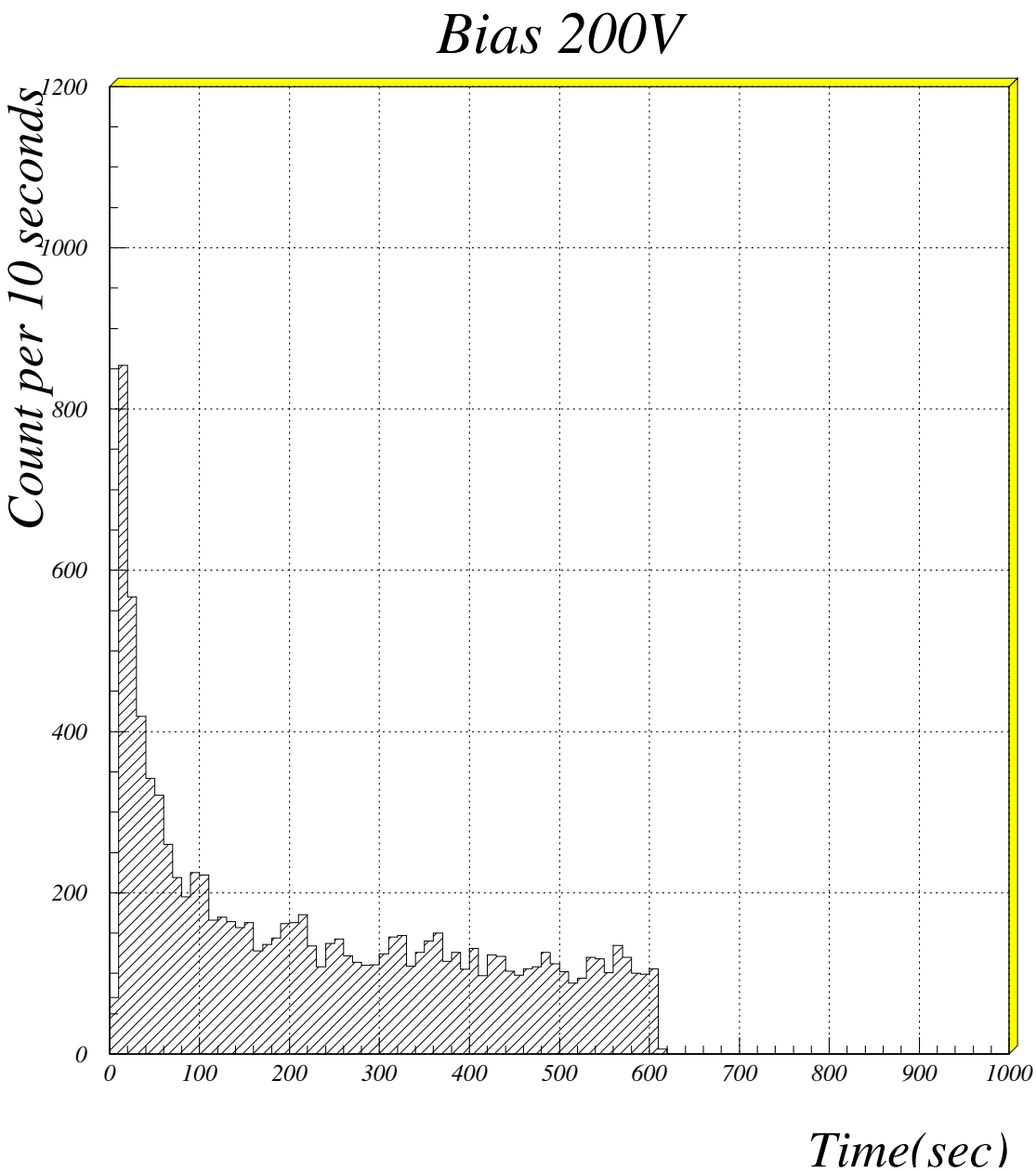

図 4.5: バイアス電圧 200V における計数率の時間変化

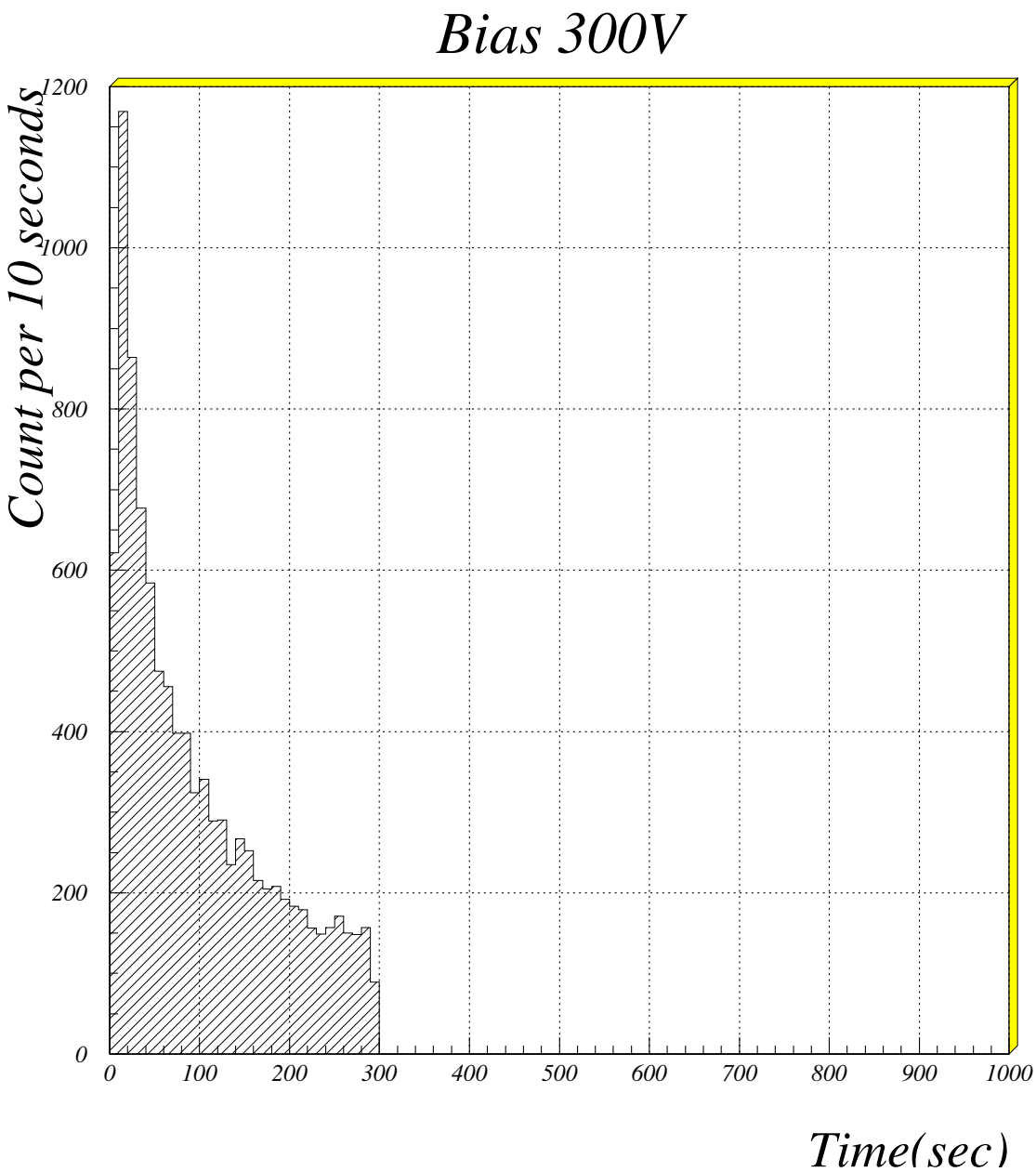

図 4.6: バイアス電圧 300V における計数率の時間変化

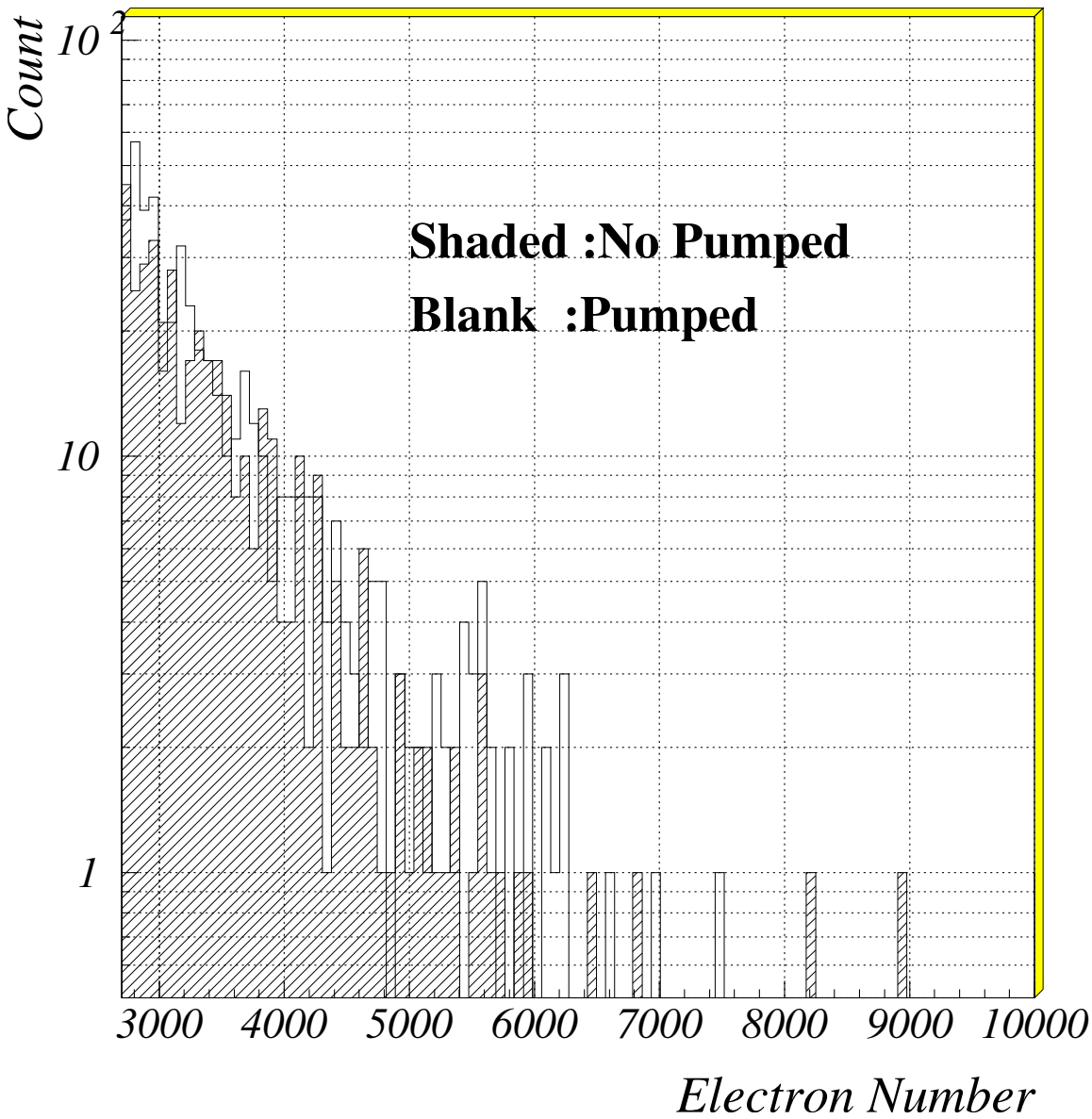

図 4.7: γ 線照射前 (影つき)、照射後 (影なし) におけるシグナルの比較

第5章　まとめと将来への展望

我々は合成単結晶ダイヤモンドを用いた検出器を作成し、β線に対する応答を調べた。その結果、人工単結晶ダイヤモンドからシグナルが出ていることを確認した。これは、β線に対する応答の観測としては最も薄い$(0.3\mathrm{mm})$人工単結晶ダイヤモンドによる測定結果である。また、シグナル分布が指数関数的になることや、計数率が時間によって減少する現象を観測した。これらはこれまでに報告されている実験結果[8]と矛盾せず、電荷収集長が不純物の捕獲準位などのために短いことを示唆する。つぎに、ダイヤモンドにγ線を$4.8\mathrm{Gy}$照射してパンピングさせ、検出器の性能向上をはかったが、特に変化は見られなかった。

CVDダイヤモンドを用いた検出器を作成し、同様にβ線に対する応答を調べた。その結果、CVDダイヤモンドからは有意なシグナルを得ることはできなかった。パンピングさせた後でも有意なシグナルは得られなかった。

最後に、今後の研究開発の方向について述べる。

荷電粒子検出器として利用するには、シグナルのピーク値が見られないことを解決し、計数率が時間によって減少する現象を抑制しなければならない。分極を減らす手段として、ダイヤモンドの合成段階でホウ素をドーピングする方法がある。これは実際に効果があるという報告がある[7]。

他には、γ線の変わりに、赤外光などを照射して不純物による捕獲準位をあらかじめ占有させる、ということも考えられる[8]。

研究開発の方向としては、上記のような項目が急務である。また、CVDダイヤモンドについては、異なる方法で作られたより粒の大きなサンプルを用いることも検討に値する。

付 録A　人工ダイヤモンドの合成法[11]

ダイヤモンドは炭素原子が正四面体の頂点に配置された共有結合[1]した物質である。

ダイヤモンドは地球上に存在する物質中、最も、硬さ、ヤング率が大きく、熱電導率が高い物質で工具やヒートシンクなどに用いられている。赤外から紫外領域までの広範囲において光を透過し、屈折率や反射率が大きい性質から、ダイヤモンドは宝石としても非常に美しく高価な物質である。また、化学的に安定で、耐摩耗性、耐溶着性にも優れている。不純物を添加することによってバンドギャップの大きな半導体にすることもできる。詳細な物理的特性は表 A.2,A.3 にまとめてある。

人工ダイヤモンドの合成は 1955 年に可能となった [11]。しかし当時は、天然、人工を問わず、粒子状のダイヤモンドしか得ることはできなかった。現在は、近年飛躍的に合成技術が向上していて、ある程度自由にその純度や大きさ、形状などが変えられるようになってきている。

人工ダイヤモンドの合成方法としては、大きく分けて次の 3 つがあげられる。

- 超高圧合成法

  グラファイト、カーボンを原料として、5 万気圧、1300°C 以上の環境でダイヤモンドを合成。研磨粒のみならず、大型の単結晶や焼結体を得ることに使われている。最大 10mm の結晶が得られている。

- 衝撃法

  爆薬による衝撃でグラファイトを瞬時にダイヤモンドを合成。ダイヤモンドの品質、形状は制御できない。微細な研磨粒を製造することのみに使われている。

- 気相合成法

  炭素を含む原料ガスを、プラズマなどの高温状態にして、1000°C 以下の基盤に析出させる。薄膜コーティングや、複雑な形状、板状の多結晶体を製造するのに使われている。超大型の結晶 (例えば 10cm 以上の大きさもの) を得ることができる。

[1] これを sp3 結合と言い、2s 軌道に 1 つ、2p 軌道に 3 つの電子が混合された 4 つの等価な結合手による結合である。

	I 型			II 型	
	Ia	Ib		IIa	IIb
天然原石産出割合	～ 98%	～ 0.1%		1 ～ 2%	～ 0%
合成ダイヤモンド名称	通常合成不可	合成石底粒	合成単結晶 Ib	合成単結晶 IIa	
窒素含有率 (ppm)	～ 2 X 10^3 凝集	10^2 ～ 10^3 均一分散	1 ～ 10^2 均一分散	～ 1 高純度	～ 1
その他の不純物 (ppm)		金属溶媒 10^3 ～ 10^5			ヒ素 ～ 100
色	無色 ～ 黄色	黄緑 ～ 褐色	黄色	無色	青色
体積抵抗率 (Ω·cm)	10^4 ～ 10^{16}		10^{16}	10^{16}	10 ～ 10^4
	絶縁体				P 型半導体
熱伝導率 (cal/cm·sec· 度)	2	2 ～ 4	5	5	

表 A.1: ダイヤモンドの窒素濃度による分類表

A.1 超高圧合成法

我々の用いた合成単結晶ダイヤモンド (住友電工社製品名:スミクリスタル) は超高圧合成法を用いて、5 万気圧、1300 度以上の超高圧、高温下で合成される。超高圧装置の内部は図 A.1 のようになっている。ヒーター内部に温度勾配を設け、この温度勾配を利用して原料の炭素を溶融金属に溶かし込み、種結晶上に人工ダイヤモンドを成長させて大型の人工ダイヤモンドを得る。高品質な結晶を得るための条件は、1) 原料や溶媒金属の純度、2) 長時間一定の合成条件を維持することのできる高度な制御技術があること、である。

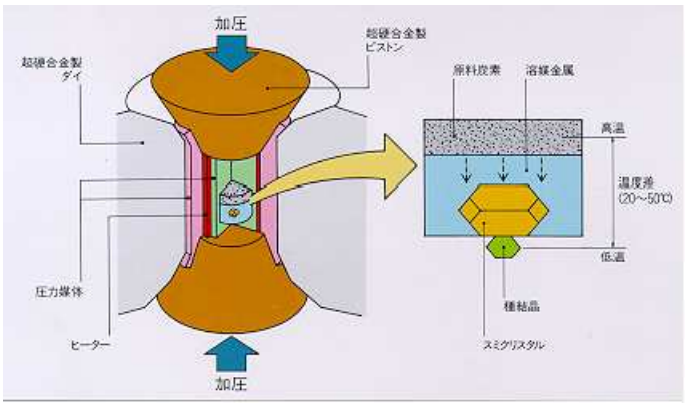

図 A.1: 合成ダイヤモンド単結晶生成用超高圧装置の内部

A.2 気相合成法

気相合成法によるダイヤモンド合成は 1981 年に日本の無機材質研究所で熱フィラメント CVD 法によって初めて行なわれた。気相合成法には PVD 法 (*Physical Vapor Deposition*:

物理気相合成法) と CVD 法 (*Chemical Vapor Deposition*:化学気相合成法) がある。具体的には次のような方法である。

- **PVD 法**

  原料を蒸発、昇華などの方法で気体にし、これから結晶を成長させる方法。

- **CVD 法**

  成長させたい物質 (ダイヤモンドならば炭素) を含む化合物気体を熱、プラズマなどによって分解し、結晶を成長させる方法。化合物気体として CH_4 メタン[2]を選ぶことが多いが、その他の炭素を含む有機化合物も利用する研究も盛んである。合成不純物として発生する黒鉛、無定型炭素を取り除くために水素原子の生成も必要で、そのために水素ガスを混入する。よって CVD ダイヤモンド合成には水素-メタン混合ガスが多く用いられる。

さらに、CVD 法には主として炭化水素ガスの励起方法によって次の 4 つに分類できる。

- **熱フィラメント CVD 法**

  高融点金属線を 2000°C 以上に加熱し、反応ガスを励起。

- **プラズマ CVD 法**

  放電によるプラズマにより反応ガスを励起。

- **アークジェット法**

  水素、炭化水素、アルゴンガスのジェット流をアーク放電により励起。

- **火炎法**

  炭化水素と酸素の燃焼炎の内炎部分でダイヤモンドを合成。

A.3 参考データ

参考までに、我々や他の研究グループの使ったダイヤモンドの特性値をあげておく。

[2] メタンの持つメチルラジカル (sp3 構造の活性基) がダイヤモンドの結合状態と同じ構造を持っており、これがダイヤモンドの成長に重要な役割を果たしていると考えられている。

物理定数 単位	合成ダイヤモンド単結晶 (タイプ Ib)	CVD ダイヤモンド
密度 $\mathrm{g/cm^3}$	3.52	3.52
熱電導率 $(\mathrm{W/m \cdot K})$	2,000	$\geq$1,000
熱膨張係数 $(\times 10^{-6}/\mathrm{K})$	2.3	2.3
比誘電率 ε_r ——	5.7(1MHz)	6.5(1MHz)
体積抵抗率 $\Omega \cdot \mathrm{m}$	1×10^{16}	5×10^{9}

表 A.2: 人工ダイヤモンド (住友電工製品) の主な物理的特性

物理定数 単位	CVD ダイヤモンド	シリコン
元素記号 ——	C	Si
陽子数 Z ——	6	14
密度 $\mathrm{g/cm^3}$	3.5	2.33
格子定数 a $10^{-10}\mathrm{cm}$	3.57	5.43
熱伝導係数 λ $\mathrm{W/cm/K}$	$10 \sim 20$	1.4
熱膨張係数 $10^{-6}/\mathrm{K}$	0.8	2.5
比誘電率 ε_r ——	5.7	11.9
電子易動度 $\mathrm{m^2/V/s}$	0.18	0.135
ホール易動度 $\mathrm{m^2/V/s}$	0.12	0.048
バンドギャップ eV	5.47	1.12
体積抵抗率 $\Omega \cdot \mathrm{m}$	$1 \times 10^{13} \sim 10^{15}$	2.3×10^{5}
最大印加電圧 $\mathrm{V}/\mu\mathrm{m}$	1000	30

表 A.3: CVD ダイヤモンドとシリコンの主な物理的特性の比較 [1]

付 録B　実験に使用した電子機器の詳細

B.1　プリアンプ

ダイヤモンドから送られる電荷のプリアンプとして、B-factory 実験で CsI(Tℓ) の読みだし用に開発された B カロリーメータプリアンプ [9] を使用した。この CsI プリアンプの外観は表 B.1 の通りである。

Model No.	CMS4600
Serial No.	615
消費電力	125mW
ノイズレベル	620 *electron* at 100pF
ノイズの傾き	2.8 *electron*/pF
減衰時間	65μsec
入力電荷/出力電圧比	0.77V/pC
最大出力電圧	5V
非線形性	$< 0.03\%$

表 B.1: CsI カロリーメータプリアンプのスペック [10]

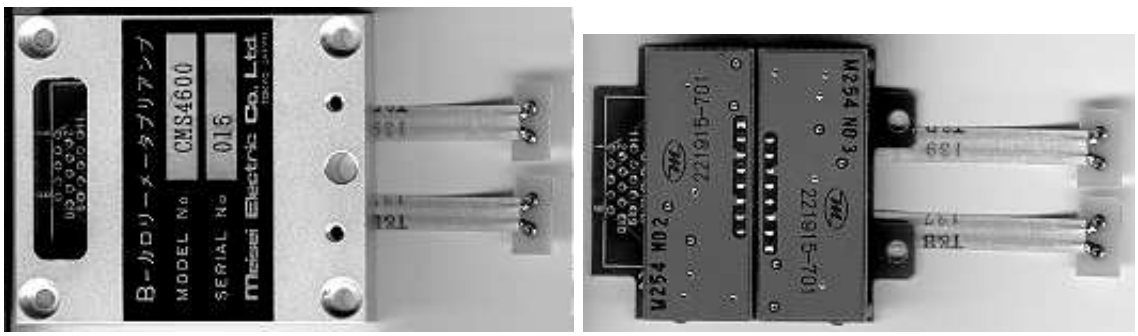

図 B.1: ケースにおさめられた CsI プリアンプの外観 (左) と CsI プリアンプ本体 (右)

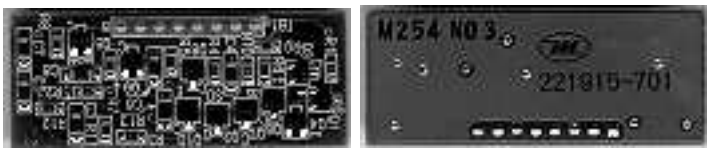

図 B.2: プリアンプの外観

このカロリーメータプリアンプはマザーボードユニット (図 B.4,B.5 参照) とプリアンプユニット (図 B.2,B.3 参照)2 つによって構成されている。

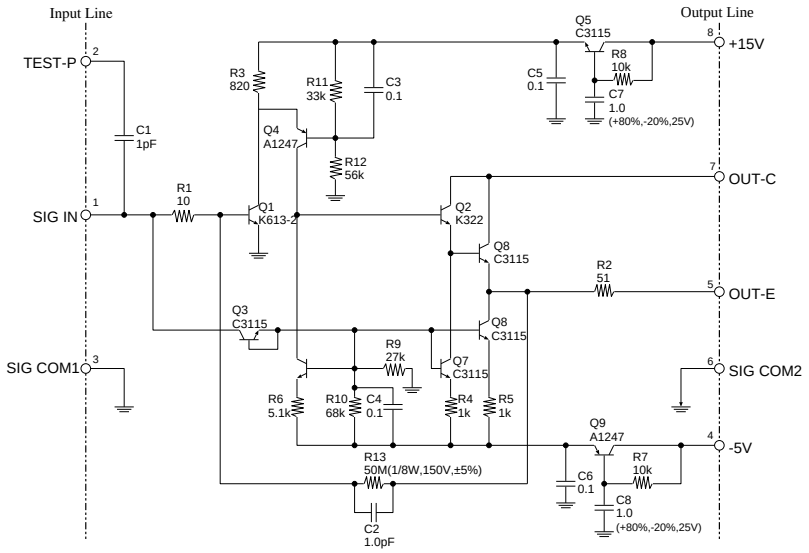

図 B.3: プリアンプユニットの回路図。指定のない抵抗、コンデンサの単位、許容差、定格はそれぞれ、$[\Omega], \pm 5\%, 0.1\mathrm{W}$、$[\mu\mathrm{F}], \pm 5\%, 50\mathrm{V}$ である。

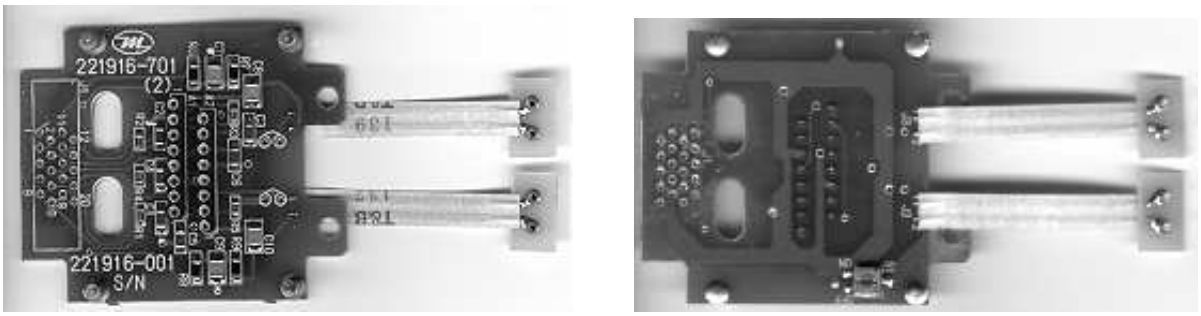

図 B.4: マザーボードユニットの外観

B.2 シェーピングアンプ

タイミングフィルターアンプには ORTEC 575(詳細は表 B.2) を使用した。

名称 パッケージ	EG&G ORTEC Model 575A Amplifier NIM
アナログ入力 最大アナログ入力 ゲイン アナログ出力 ノイズ	立ち上がり時間 10∼650nsec, 減衰時間 30μsec∼ ∞sec の正負のパルス $\pm$2V $\times 7 \sim \times 1250$ 0∼ +10V $\leq 7 < \mu$V
非線形性	$\leq \pm 0.05\%$

表 B.2: ORTEC 575A

B.3 ADC

入力電圧信号のピーク値が読み出せる ADC [1]として、LeCroy 2259B を使用した。これは測定範囲が $0 \sim -2$V, 分解能 -1mV であるが、もし分解能がさらによい ADC があればさらによい実験結果が期待できる。

[1]Analog to Digital Converter の略

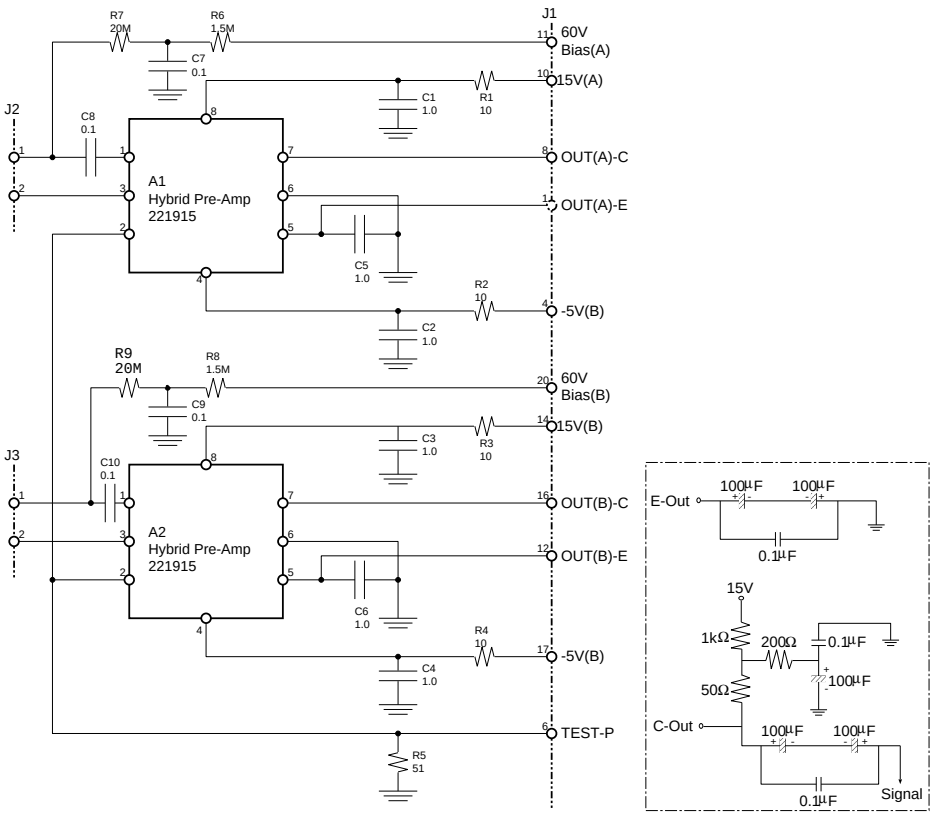

図 B.5: マザーボードユニットの回路図。指定のない抵抗、コンデンサの単位、許容差、定格はそれぞれ、$[\Omega], \pm 5\%, 0.1\mathrm{W}$、$[\mu\mathrm{F}], +80\ -\ 20\%, 25\mathrm{V}$ である。

名称	LeCroy Model 2259B Peak Sensing ADC
パッケージ	CAMAC
チャンネル数	12
ビット数	11(2048 counts)
オフセット値	35 ± 25 counts
	(ゲート幅に依存 < 2counts/μsec)
測定対象	アナログ入力の負電圧の最大値
フルスケール	-2V$\pm$5%
最大分解能	-1mV
コンバージョンタイム	106μsec
ゲート幅	100nsec$\sim$ 5μsec
	(ゲートが開いてから 0.5μsec 後に測定開始)
安定性	0.25%<,$\pm$4mV/1$week$。

表 B.3: LeCroy 2259B

関連図書

[1] RD42 Collaboration, presented by D.Meier. **Diamond as a Particle Detector**, *it Proc. It. Phys. Society*, EuroDiamond 96, Torino, 52(1996)105 Proceedings

[2] By 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, J. Hrubec, D. Husson, H. Kagan, D. Kania, R. Kass, K.T. Knopfle, M. Krammer, T.J. Llewellyn, P.F. Manfredi, L.S. Pan, H. Pernegger, M. Pernicka, V. Re, S. Roe, D. Roff, A. Rudge, M. Schaeffer, S. Schnetzer, V. Speziali, R. Stone, R.J. Tapper, R. Tesarek, W. Trischuk, R. Turchetta, G.B. Thomson, R. Wagner, P. Weilhammer, C. White, S. Zhao, H. Ziock, M.M. Zoeller (Heidelberg, Max Planck Inst. & Strasbourg, CRN & Rutgers U., Piscataway & Marseille,CPPM & Ohio State U. & Bristol U. & Los Alamos & CERN & Vienna, OAW & LLL, Livermore & Pavia U. & Sandia, Livermore). **Pion Irradiation Studies of CVD Diamond Detectors**, CERN-PPE-95-173, Oct 1995. 13pp. Submitted to Nucl. Instrum. Methods

[3] RD42 Collaboration, presented by H.Pernegger **Radiation Hardness Studies of CVD Diamond Detectors** *The Vienna Wire Chamber Conference, Vienna*, (1995).

[4] S.Zhao et al.,**Electrical Properties in CVD Diamond Films**,*Ph.D. Dissertation,Ohio State University*,(1994)

[5] RD42 Collaboration,**Development of CVD Diamond Radiation Detectors**,*Submitted to Proc. of the Electrochemical Society,5. Symposium on Diamond Materials,Paris*,(1997)

[6] Toshisuke Kashiwagi,Ryoji Aoshima,Kinya Hibino,Shoji Okuno,Mamoru Yokota,Kenji Yoshida,Kenji J. Yoshida, **Artifical Diamond ionization Detector Energy Resolution** *Faculty of Engineering,Kanagawa University,Rokkakubashi Kanagawa-ku Yokohama 211,Japan*

[7] 金子純一, 片桐政樹, 池田裕次郎, 西谷健夫, 人工ダイヤモンド 放射線検出器出力信号の解析とボロンド ープ CVD ダイヤモンド 層による分極減少の抑制, 原研

[8] P. J. Fallon,T. L. Nam,R. J. Keddy,R. C. Burns and J. H. Grobbelaar,**Synthetic Diamonds Used as Pulse-counting Gamma-ray Detectors**,*Appl. Radiat. Isot. Vol. 41,No.1,pp. 35—39,(1990), Int. J. Radiat. Appl. Instrum. Part A*

[9] Manobu Tanaka,Hirokazu Ikeda,Kunino Tamai, **Development and Evaluation of Charge-Sensitive Preamplifier for CsI Calorimeter in the KEK B-factory**. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol.41, No.4, August 1994

[10] 渡辺亜矢子,**KEKB ファクトリー BELLE 測定器の電磁カロリメータに用いる CsI(Tℓ) 結晶の特性について**, 奈良女子大学大学院 理学研究科 物理学専攻 高エネルギー物理学研究室 1996 年度修士学位論文,1997 年 2 月

[11] 藤森 直治 (住友電気工業株式会社ダイヤ製品事業部), ダイヤモンド の特性と応用 , 放射光 第 8 巻第 3 号 (1995 年)

[12] 図解 気相合成ダイヤモンド (初版)(Ohmsha) 吉川昌範・大竹尚登 共著