酸化インジウムを蒸着した 固体シンチレーターの製作と その性能評価

宮城教育大学 学校教育教員養成課程 理科教育専攻 D 6156 小野 亮介

平成20年2月8日

概要

電子ニュートリノ振動解の特定を目的として,インジウムを用いた ppニュートリノ観測装置に期待されている。しかし,従来の検出器は分解能やサイズの問題があり,大型検出器を制作するにはコストの問題が未解決である。

そこで安価に制作可能でインジウムを多量に含む新規のニュートリノ検出器の開発を行った。本研究では,固体無機シンチレーターに酸化インジウムの薄膜を蒸着し,光電子増倍管で読み出す検出器の開発を行った。本論文では,その基礎的開発として,CsI,BGO,YSO,LYSO,YAPの固体無機シンチレーターの表面に酸化インジウム (In_2O_3) の薄膜を蒸着させ, γ 線源による放射線応答性を用いて性能評価を行った。その結果,蒸着前の性能を維持するという結論を得た。

目 次

第1章	はじめに	3
1.1	ニュートリノとは	3
	1.1.1 ニュートリノの発見	3
1.2	太陽二ュートリノ	4
	1.2.1 生成機構	4
	1.2.2 太陽ニュートリノの観測	7
1.3	ニュートリノ振動	8
	1.3.1 スーパーカミオカンデ実験	9
	1.3.2 SNO 実験	10
	1.3.3 KamLand 実験	11
1.4	pp ニュートリノの測定意義	13
1.5	pp ニュートリノ観測実験	14
第2章	酸化インジウムを蒸着した固体シンチレーターの作成	16
æ ₽ 2.1	目的	16
2.2	インジウムを用いた測定原理・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	17
2.3	検出器に要求される性能条件	18
2.4	光学薄膜材料	19
_, _	2.4.1 光学薄膜に対する基本要求	19
	2.4.2 ITO の性質	25
2.5	スパッタリング	25
	2.5.1 グロー 放電の発生	25
	2.5.2 グロー放電プラズマの性質	27
	2.5.3 スパッタリング率	30
	2.5.4 高周波スパッタリング	32
	2.5.5 スパッタリングの特長	33
2.6	作成方法	34
	2.6.1 装置のセットアップ	34
	2.6.2薄膜制作のための操作	36

第3章	性能評価	38
3.1	放射線の応答性能による評価	38
	$3.1.1$ 物質と γ 線の相互作用 \dots	38
	$3.1.2$ 物質と γ 線の相互作用確率 \dots	40
3.2	膜厚の測定による評価	41
	3.2.1 膜厚の分類	41
	3.2.2 質量膜厚測定法	43
	3.2.3 テストピースを用いたスパッタリングテスト	45
3.3	スパッタリング前の測定	46
	3.3.1 測定に使用したシンチレーターと光電子増倍管	46
	$3.3.2$ γ 線によるシンチレーターの応答	
3.4	スパッタリング後の測定	57
	3.4.1 スパッタリング後の変化	57
	3.4.2 膜厚計算	57
	$3.4.3$ スパッタリング後の γ 線源への応答 \dots	58
	3.4.4 スパッタリング前後の分解能比較	61
第4章	考察	62
第5章	結論	65
関連図書		66

第1章 はじめに

1.1 ニュートリノとは

1.1.1 ニュートリノの発見

不安定な原子核は放射線を放出して他の原子核に崩壊し,その種類はアルファ崩壊,ベータ崩壊,ガンマ崩壊の3種類である。量子力学によれば原子核はそれぞれ固有のエネルギー状態にあり,崩壊の際は元の原子核のエネルギーと,崩壊後の原子核のエネルギーの差に相当するエネルギーが放射線として放出される。放出される放射線はアルファ線,ベータ線,ガンマ線と呼ばれ,それらの正体はそれぞれヘリウム原子核,電子,光子である。

3種類の崩壊のうちアルファ崩壊,ガンマ崩壊は単一のエネルギーのアルファ線,ガンマ線を放出する。ベータ崩壊もアルファ崩壊のときと同じようにベータ線(電子)のエネルギーは決まった値をとると期待されていた。1924年 J.Chadwick はベータ崩壊によって放出される電子のエネルギーを測定し,予想に反して電子のエネルギー分布が連続分布することを発見した。その当時ベータ崩壊は原子核内の中性子が陽子に変わり,その際電子が放出される過程として

$$n \longrightarrow p + e^-$$
 (1.1)

のように考えられていた。粒子はその運動とは独立に固有の角運動量をもっている。量子力学によれば粒子の角運動量は $\hbar/2\pi$ の半整数倍でなければならず,中性子,陽子,電子はすべて角運動量 1/2 である。したがって,反応前後で角運動量が保存していないことになる。

これらの問題を解決するため 1930 年,W.Pauli はベータ崩壊の際に電子と新粒子が放出されると仮定した。この新粒子は電荷の保存則から中性で,角運動量が保存するようにスピン 1/2 の粒子でならればならない。この新粒子がニュートリノである。その後,1956 年,F.Reines, C.Cowan は

原子炉付近にカドミウム水溶液を設置し,原子炉から出る強力な反ニュートリノビームを標的にあて,観測を行った。逆ベータ崩壊

$$\bar{\nu}_e + p \longrightarrow n + e^+$$
 (1.2)

から生じる中性子がカドミウム原子核に吸収されガンマ線を放ち,また陽電子と電子が反応してもガンマ線を発生するため,これらのガンマ線を検出することによって間接的にニュートリノの存在を確かめた。W.pauliの予言から約4半世紀が経って発見されたことからもニュートリノは捕らえることが難しい粒子である。

Weinberg-Salom の標準理論によれば,ニュートリノの質量は0と仮定されており,弱い相互作用のみをする素粒子である。ニュートリノはレプトン族に属し,ニュートリノの種類は同じレプトン族で電荷が-1 の e , μ , τ に対応するように ν_e , ν_μ , ν_τ の3 世代が存在する。また,素粒子にはそれと電荷,また核子数が逆符号で絶対値の等しい反粒子が存在し, \bar{e} , $\bar{\nu}_e$ として示される。

1.2 太陽ニュートリノ

1.2.1 生成機構

核融合反応は,原子核と原子核とが衝突して融合し,より重い原子核ができる反応で,そのときに大きなエネルギーが放出される。太陽を含む恒星の中では水素からヘリウムが生成される核融合がおこっており,安定なエネルギー源となっている。恒星の一生の大部分は,安定に水素を燃やしてエネルギーを発生する水素燃焼の段階にある。この段階では 4 個の陽子が融合し 4He となり,このとき $26.7 \mathrm{MeV}$ のエネルギーと 2 個の電子ニュートリノ ν_e が生み出される。

$$4p \longrightarrow {}^{4}He + 2e^{+} + 2\nu_{e} + 26.7MeV$$
 (1.3)

この反応は単独で起こるのではなく、いくつかの反応過程がある。太陽の場合、およそ 98.5~% が pp 連鎖で、残りの 1.5~% が CNO サイクルという反応過程である。

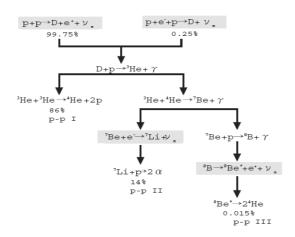


図 1.1: pp 連鎖反応

pp 連鎖反応から生成されるニュートリノは , pp ニュートリノ , pep ニュートリノ , 7Be ニュートリノ , 8B ニュートリノ , hep ニュートリノがある。各ニュートリノの地上での強度は標準太陽モデルで計算される。ニュートリノの総強度は $6.6\times 10^{10}/cm^2/s$ と計算されている。全体の 0.01% しかない 8B ニュートリノをスーパーカミオカンデや SNO 実験で観測している理由としては , エネルギーが大きく観測がより容易であるためである。

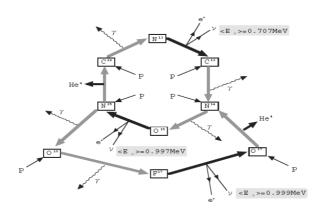


図 1.2: CNO サイクル

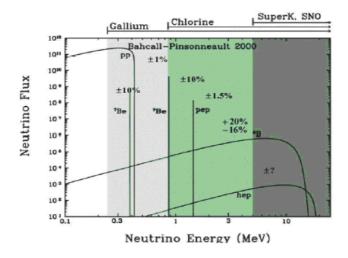


図 1.3: 標準太陽モデルで計算されたニュートリノフラックス

1.2.2 太陽ニュートリノの観測

太陽ニュートリノ観測は 1968 年に開始した R.Davis 達の塩素を用いた実験が最初である。この実験は地下約 $1500\mathrm{m}$ の場所に巨大なタンクを置き,そのタンクの中に四塩化エチレンを $615\mathrm{t}$ 詰めて設置した。地下深くに置いたのは宇宙線ミューオンによる陽子発生の影響を防ぐためである。タンクのなかの膨大な数の塩素原子 (^{37}Cl) の一部は太陽ニュートリノと

$$\nu_e + {}^{37}Cl \longrightarrow e^- + {}^{37}Ar \tag{1.4}$$

という反応によってアルゴン ^{37}Ar に変わる。この反応は電子ニュートリノが $0.814 \mathrm{MeV}$ 以上のエネルギーを持てば起きる。このアルゴン原子を数ヶ月に一度回収しその数を数える。

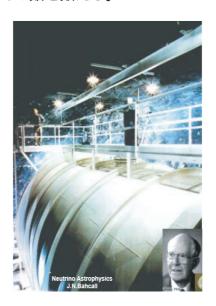


図 1.4: R.Davis の実験の様子

この塩素実験から観測されたニュートリノ強度は標準太陽モデルの理論値の 1/3 であった。この太陽ニュートリノ欠損を太陽ニュートリノ問題という。

1983 年から始まったカミオカンデ実験は電子ニュートリノが水分子中の電子の散乱する過程を調べることで,太陽ニュートリノフラックスを測定した。カミオカンデはリアルタイム検出器であり現象を1つ1つ起きた瞬間に捕らえることができる上,ニュートリノの飛来方向がわかるた

めニュートリノが太陽から来ていることもわかった。このカミオカンデ実験で検出されるニュートリノはほぼ 100%, ホウ素 (^8B) 起源のものである。カミオカンデの結果も理論値の 51% という値を示し,太陽ニュートリノ問題が確かめられた。

他にも,太陽ニュートリノの主成分である $pp,^7Be$ ニュートリノに感度がある実験がロシア (SAGE) とイタリア (GALLEX) で 1990 年から行われた。これらはガリウム (^{71}Ga) を使用し,

$$^{71}Ga + \nu_e \longrightarrow ^{71}Ge + e^- \tag{1.5}$$

という反応で電子ニュートリノを捕える。実験結果は同様に標準太陽モ デルの理論値よりも小さい値を示した。

1.3 ニュートリノ振動

スーパーカミオカンデは大気ニュートリノを観測することによりニュートリノ振動を観測した。大気ニュートリノとは宇宙を飛び回っている陽子やヘリウム原子核を成分とする宇宙線が大気分子に衝突した際に発生する電子ニュートリノ (ν_e) ,または (ν_μ) のことである。宇宙線は地球に降り注いでおり,どの方向からも同じように大気に入ってくる。それより大気分子によって発生したニュートリノもまたどの方向からも降り注ぐ。スーパーカミオカンデはニュートリノが入ってきた方向がわかり,ミューニュートリノが上空よりも地球の裏側で発生し入ってきたミューニュートリノよりも数が減っていることがわかった。これより大気ニュートリノの異常は ν_μ から ν_τ になるニュートリノ振動によって引き起こされることが明らかになった。ニュートリノ振動の確率は

$$P(\nu_{\mu} \longrightarrow \nu_{\tau}) = \sin^2 2\theta_{23} \cdot \sin^2 \frac{\Delta m_{23}^2 L}{4E}$$
 (1.6)

で与えられる。 θ_{23} , Δm^2_{23} はそれぞれ第 2 世代 , 第 3 世代間の混合角 , 質量 2 乗差を表す。L , E はニュートリノの飛行距離とエネルギーである。 大気ニュートリノはさまざまなエネルギーを持つので , (1.5) の式をエネルギーで平均すると

$$P(\nu_{\mu} \longrightarrow \nu_{\tau}) = \sin^2 2\theta_{23}/2 \tag{1.7}$$

となる。この式を見るとわかるように , ニュートリノの混合角が大きい 場合は ν_{μ} として生まれても ν_{τ} に変わってしまい検出されない可能性が ある。

下向きの大気ニュートリノは上空の $20 \mathrm{km}$ 程度 , 上向きは地球の裏側 $10,000 \mathrm{Km}$ 彼方で作られる。観測値 上向き/下向きが期待値のほとんど 1/2 ということは , 混合角 $\sin^2 2\theta_{23}$ が最大 1 をとることを意味する。第 2 のパラメーター Δm_{23}^2 は , 天頂角分布でニュートリノ振動が効き始める から決定することができた。結果は

$$\sin^2 2\theta_{23} = 0.92 - 1.0 \tag{1.8}$$

$$\Delta m_{23}^2 = (1.6 - 3.9) \times 10^{-3} eV^2 \tag{1.9}$$

太陽ニュートリノ振動の確実な証拠は 2001 年 6 月に SK の 1258 日分のデータと SNO からの最初の荷電カレント反応とを比較することにより示された。 SK が電子散乱で測定した太陽ニュートリノ強度は SNO が荷電カレント反応によって測定した強度に比べて約 34 %大きかった。この違いは荷電カレント反応は ν_e のみしか捕らえられないが,電子散乱は ν_μ , ν_τ の寄与もあるため, ν_e が ν_μ , ν_τ に変わってしまったことが原因である。また SNO による中性カレント反応は全ニュートリノ強度 $\nu_e + \nu_\mu + \nu_\tau$ を測っており,太陽ニュートリノが $+\nu_\mu$ や ν_τ に変わってしまったことを示している。これらより太陽ニュートリノ問題はニュートリノ振動が原因であるという決着がついた。しかし,まだすべての太陽ニュートリノの結果が説明できる 1 組の振動パラメータを決定していない。

1.3.1 スーパーカミオカンデ実験

スーパーカミオカンデ (SK) は地下 $1000 \mathrm{m}$ に位置し,全容積 5000 トンの水タンク内には,11146 本の直径 $50 \mathrm{cm}$ 光電子増倍管が取り付けられている。この光電子増倍管で,水中でのニュートリノ反応が作り出す荷電粒子のチェレンコフ光を捕らえる。

SK ではニュートリノと電子との散乱を用いて 8B 太陽ニュートリノを捕らえる。

$$\nu + e^- \longrightarrow e^- + \nu \tag{1.10}$$

ニュートリノと電子との散乱では , ν_e だけでなく , ν_μ , ν_τ も捕らえることができる。ニュートリノにより散乱された電子は , その速度が水中の

光の速度よりも大きい場合 , チェレンコフ光を放出する。チェレンコフ光が放出される方向と荷電粒子の進行方向がなす角度 θ は , 水の屈折率 $\mathbf{n}(=1.33)$, 粒子の速度 β_C として

$$\theta = \cos^{-1}(1/(n\beta)) \tag{1.11}$$

となり,チェレンコフ光はこの角度で円錐状に放出される。 $\beta \sim 1$ の場合は 42 度である。このチェレンコフ光のパターンからニュートリノが散乱された場所,散乱電子の方向を観測することができ,またチェレンコフ光の強さから電子のエネルギーも測定することができる。

SK は 1996 年 4 月から 2001 年 7 月まで 1496 日分のデータを取得し,その間約 22400 の太陽ニュートリノ現象を観測した。これらからニュートリノ強度 ϕ_{SK} を求めると

$$\phi_{SK}$$
(電子散乱) = $(2.35 \pm 0.02(stat.) \pm 0.08(sys.)) \times 10^6/cm^2/s.$ (1.12) となる。

1.3.2 SNO 実験

SNO 実験装置はカナダのサドバリー Creighton 鉱の地下約 2000 メートルにある。装置の中央部分には 1000t の重水 (D_2O) があり以下の反応を用いて太陽ニュートリノを捕らえる。

1. 荷電カレント (CC) 反応

$$\nu_e + D \longrightarrow e^- + p + p \tag{1.13}$$

2. 中性カレント (NC) 反応

$$\nu + D \longrightarrow \nu + n + p \tag{1.14}$$

3. 電子散乱

$$\nu + e^- \longrightarrow \nu + e^- \tag{1.15}$$

これらの反応より生じた電子を SK 同様 , チェレンコフ光を観測することにより捕らえられる。 SNO 実験は , 1999 年 11 月から 2001 年 5 月まで重水のみを用いたデータを 306.4 日分取得した。

この観測された太陽ニュートリノ現象をエネルギー分布,太陽との方向分布,粒子の発生点分布を用いて,それぞれの反応に分離した。その結果,観測された現象の数は,それぞれ,CC反応が約1970個,NC反応が約580個,電子散乱が約260個と得られた。

これらの値を太陽ニュートリノの現象に直すとそれぞれ、

$$\phi_{SNO}(CC)=(1.76+0.06/-0.05(stat.)\pm0.09(sys.))\times10^6/cm^2/s.$$
 (1.16) $\phi_{SNO}(NC)=(5.09+0.44/-0.43(stat.)+0.46/-0.43(sys.))\times10^6/cm^2/s.$ (1.17) $\phi_{SNO}($ 電子散乱 $)=(2.39+0.24/-0.23(stat.)\pm0.12(sys.))\times10^6/cm^2/s.$ (1.18) となる。

1.3.3 KamLand 実験

KamLand 検出器は岐阜県神岡町の鉱山地下 1000 メートルの岩盤空洞にあり、検出器の中心である液体シンチレーターは総重量 1000 トン,直径 19 メートルのステンレス球形タンク中にある。

KamLand 実験は反応を起こしたニュートリノの飛来方向はわからない。これは光がどの方向にも平等に出ていくシンチレーション光の特性によるものである。しかし, KamLand 実験ではニュートリノ反応のエネルギー, 反応時間, 反応粒子などの情報を反応ごとに精密に測定する。ニュートリノ発生源までの距離,ニュートリノの種類,エネルギー,強度,それらの時間変化など発生源ごとの特徴的な情報と合わせることによりニュートリノの詳細な研究が可能となる。

 ${
m KamLAND}$ 実験の主な目的は原子力発電所で生成される反電子ニュートリノ振動現象の検出による,ニュートリノ質量の測定である。原子炉では ${
m ^{235}}U$, ${
m ^{238}}U$ や ${
m ^{239}}Pu$, ${
m ^{241}}Pu$ 等の核分裂により質量数 $90 \sim 150$ の不安定な原子核が生成される。これらは中性子過剰核であり,中性子ベータ崩壊を伴って安定核に転換する。その際,反電子ニュートリノが放出される。シンチレータを構成する陽子がこのニュートリノのターゲットとなり、逆ベータ崩壊反応

$$\bar{\nu_e} + p \longrightarrow e^+ + n$$
 (1.19)

を,球形タンクの内面に取り付けられた 1879 本の光電子増倍管で観測する。

年 3 月から 2004 年 11 月まで 515.1 日検出器を稼動し,原子炉反電子ニュートリノ事象の予測数は,事象選別効率と系統誤差を考慮すると,2.6MeV において $365.2\pm23.7(syst)$ になる。これに対して検出器は258 イベントだった。これは期待値の約 66 % しかなく、99.995 %の信頼度で原子炉反電子ニュートリノ消失が検出された。これはニュートリノ振動があればこれに起因する。

1.4 ppニュートリノの測定意義

スーパーカミオカンデと SNO 実験は ν_e の太陽ニュートリノ振動を証明し、30 年間続いた太陽ニュートリノ問題は解決した。またすべての太陽ニュートリノ実験観測結果、図のようなニュートリノ振動パラメータがえられた。

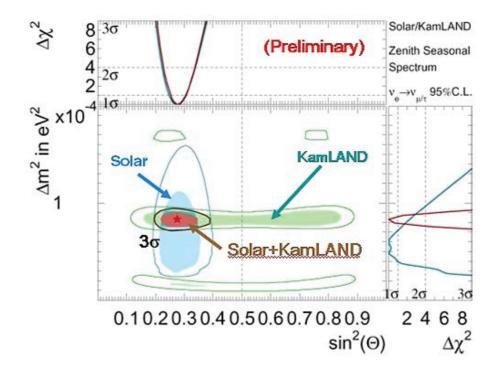


図 1.5: ニュートリノパラメータ領域

全ての太陽ニュートリノ実験の結果をもとにニュートリノ振動に対す

る global fit を施すと, LMA 領域にニュートリノ振動解が存在していることがわかり, Kam-LAND の原子炉ニュートリノの観測結果もそれを強く支持している。

よって,次世代の太陽ニュートリノ実験の目的は主として,ニュートリノ振動の混合角 θ_{12} の精密な測定と,恒星進化論の検証等の太陽物理の総合的研究の2 点が考えられる。

1.5 pp ニュートリノ観測実験

 $5 {
m MeV}$ 以下で電子ニュートリノの存在確率が増す傾向があり,その形状が混合角 θ_{12} に強く依存しているため, ${
m pp}$ および 7Be ニュートリノフラックスとエネルギー分布を測定できる実験が求められているが,今までに ${
m pp}$, 7Be ニュートリノを捕らえた実験はガリウムを用いた放射化学法による実験のみだった。

これらのニュートリノはエネルギーが低いためバックグラウンド除去が容易ではなく、今までの技術ではリアルタイム検出器を作ることができなかった。 現在,世界ではpp, 7Be ニュートリノ観測を目指した実験の研究開発がいくつも行われている。実験には大きく分けて荷電カレント反応を用いる方法と電子散乱を用いる方法がある。荷電カレント反応は ν_e のみの測定であり、電子散乱では ν_e , ν_μ , ν_τ からの寄付がある。したがって,両方の測定方法は相補的であり、両方を測ることによって初めて ν_e , ν_μ + ν_τ のそれぞれの強度がわかる。

電子散乱を用いた実験では pp, 7Be の両方のニュートリノを捕らえる 実験として CLEAN, HERON, XMASS の実験提案がある。

CLEAN は液体ネオンあるいは液体ヘリウムを波長変換板を張った容器に入れ,シンチレーション光を光電子増倍管でみるというアイデア

HERON は超流動状態の液体ヘリウムを使い,散乱電子からシンチレーション,及び熱的信号を捕らえる実験である。

XMASS は日本で進められている 10t クラスの液体キセノンを用いた 実験である。液体キセノンが非常に発光量が大きいシンチレータである こと,外的ガンマ線に対しての自己遮蔽能力が極めて優れていることを 利用して,低エネルギー太陽ニュートリノの精密観測を目指す。

荷電カレント反応を用いた実験としてはMOON, LENSが挙げられる。

MOON はモリブデン (Mo) を用いた実験であり、細かくセグメント化 (物理的分割及び伝速度による分割) された装置でニュートリノ反応の信号と遅延ベータ線との同時計測を行う実験である。

LENS はインジウム (In) を溶かし込んだ液体シンチレータを用いて,太陽ニュートリノ散乱の特徴的な反応(遅延ガンマ線,ベータ線が出る)を捕らえることを考えている。遅延信号を使うことにより環境バックグラウンドを減らすことができる。

第2章 酸化インジウムを蒸着し た固体シンチレーターの 作成

2.1 目的

従来のニュートリノ実験は,ニュートリノと反応した電子が物質内を光速で移動するとき進行方向に対し一定の方向に電磁放射する微かなチェレンコフ光を観測したり,あるいは液体シンチレーターと反応させてシンチレーション光を観測する方法を採用している。どちらもニュートリノ・電子の弾性散乱を観測するために,低エネルギー領域では放射性バックグラウンドとの区別が不可能である。

従って,ニュートリノ観測のためにはバックグラウンドを究極的に抑える必要がある。カミオカンデやスーパーカミオカンデの成功は,散乱電子の方向と太陽方向が一致する特徴を用いたからである。カムランド実験では,シンチレーター実験のためにニュートリノの方向はわからないものの,陽子の反電子ニュートリノ捕獲反応により放出される中性子が,再び陽子と結合する際に放出される 2.2MeV 線を遅延信号として同時計測したためである。

 $pp \cdot ^7Be$ 太陽ニュートリノの観測を目的として様々な実験が提案され,ヨーロッパを中心にインジウムを使った実験として,液体シンチレーターにインジウムを溶解させる手法の開発が進んでいる。しかし,インジウムの溶解度と発光波長帯の透過率が逆相関しているため,本格的装置の開発には至っていない。一方,InP 化合物半導体を利用した放射線検出器の開発が 2000 年頃から世界中で活発化しているものの,宮城教育大学福田研究室で開発に成功した世界最大の体積を持つ冷却型検出器であっても $10mm^3$ である。ニュートリノ検出器としては依然としてサイズが小さい上に,数トンの検出器制作のためにはコストの問題が未解決である。

そこで,本研究ではこれまで使用したInP化合物半導体ではなく安価

に制作可能で,インジウムを多量に含む新規のニュートリノ検出器の基礎的開発を行うことを目的とする。具体的には,固体無機シンチレーターに酸化インジウムの薄膜を蒸着し,光電子増倍管で読み出す検出器である。その検出器開発のために最適な固体無機シンチレーターを選定することである。

2.2 インジウムを用いた測定原理

1976 年,R.Raghavan は下の反応でインジウムによる $pp \cdot ^7 Be$ ニュートリノを検出する原理を発表した。

$$^{115}In + \nu_e \longrightarrow ^{115}Sn^* + e^-$$
 (2.1)

$$^{115}Sn^* \longrightarrow ^{115}Sn + \gamma_1(116keV) + \gamma_2(497keV)$$
 (2.2)

これはインジウム (^{115}In) のニュートリノ捕獲による逆ベータ崩壊を利用したものであり、 ^{115}In は電子ニュートリノを捕獲し、電子を放出して ^{115}Sn の励起状態へ移行する。この ^{115}Sn の励起状態は半減期 3.26μ 秒の寿命で 116kev と 496kev の 2 つのガンマ線を放出して基底状態に遷移する。116kev のガンマ線の約 50 %は内部転換して 90kev の電子と特性 X 線を放出する。内部転換とは励起状態にある原子核が γ 線放出の代わりに,K,L 殻等の軌道電子を放出し,より低いエネルギー状態に遷移する現象である。

インジウムを用いたニュートリノ反応の特徴は、この反応を引き起こすのに必要なニュートリノ閾値が128kev と低いことである。このことより発生した電子がもつエネルギーを計測することにより入射ニュートリノエネルギーが求まる。

$$E_{\nu_e} \longrightarrow E_{e^-} + 128 keV$$
 (2.3)

ここで , E_{ν_e} は入射ニュートリノエネルギー , E_{e^-} は放出された電子のエネルギーである。これらの特徴を利用すると数 μ 秒の間に電子 2 個とガンマ線 1 本による 3 重同時計測によりバックグラウンドと区別できる。。しかし , ^{115}In は半減期 6.4×10^{14} 年で $498\mathrm{keV}$ のベータ崩壊を起こし , 複数の制動輻射線を信号と誤る可能性がある。

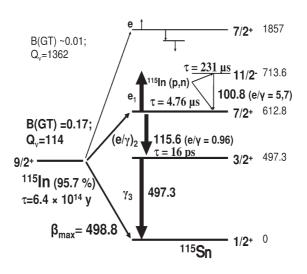


図 2.1: インジウムの崩壊過程

2.3 検出器に要求される性能条件

pp 太陽ニュートリノはインジウムを 5 トン使用した場合でも 1 日に 2 事象しか観測されない。この pp 太陽ニュートリノを観測する際は , U/Th 系列の自然放射能や ^{115}In の自己 崩壊による制動輻射線がつくる偽の 3 重同時計測が重大なバックグラウンドになるため , 検出器には性能条件 として , $100 {\rm keV}$ 近傍の電子を 10 % (FWHM) のエネルギー分解能で測定できることと , 検出器全体を空間的に 10^6 個に細分化することが要求される。

特に後者はニュートリノ捕獲後に放出する 線と他のバックグラウンドによる偽の信号を分離するために必要になる。本研究では無機シンチレーター結晶の表面に酸化インジウムの薄膜を蒸着させることにより、インジウムを含有するシンチレーション検出器を制作し、放射線源と 115 In の自己崩壊スペクトルにより検出器の性能評価を行う。

2.4 光学薄膜材料

2.4.1 光学薄膜に対する基本要求

薄膜の成膜において必要な材料は成膜の目的によって適切なものが選ばれなければならない。蒸着材料は数多くあるが、実際に光学薄膜に利用できる材料は非常に限られている。例えば使用波長領域が異なる場合には違う材料を使用しなければならない。一般的な用途において,最重要なことは膜の損失が $10^{-3}cm^{-1}$ より小さくなければならないことである。以下,光学薄膜材料の特性及び成膜に関して,注意事項を記す。

透明度が高く,吸収が小さい

誘電体材料や半導体材料の透明領域は材料の価電子準位から伝導電子準位までの準位差 Δ E と格子振動吸収のエネルギー位置により決まる。前者は透明領域における短波長極限 (λ_S) を決定し,波長 λ_S より短い光は電子遷移励起吸収される。この吸収を基礎吸収という。後者は透明領域における長波長極限 (λ_l) を決定し,波長 λ_l より長い光は格子振動を引き起こして吸収される。この吸収を格子振動吸収という。

通常,誘電体材料は ΔE が非常に大きいので, λ_S は紫外線領域になる。従って誘電体は可視光及び赤外線領域では透明である。(一部の材料は極端紫外線領域でも透明である。)しかし,半導体材料の ΔE は比較的小さいため, λ_S は近赤外~赤外線領域になる。一般に λ_S と屈折率 n との間には次のような近似関係が存在する。

$$\lambda_S = \mathbf{\overline{z}} \mathbf{\underline{x}} \mathbf{\underline{x}} n^4 \tag{2.4}$$

一般に誘電体材料は中赤外線領域で格子振動吸収が現れるため,誘電体材料の λ_l は中赤外線領域になる。格子振動吸収は材料の原子量や化学結合に関係し, m_1 , m_2 をそれぞれ化合物を構成する元素の原子量,Fを化学結合に関係する因子として,近似的に以下のように表すことができる。

$$m = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} \tag{2.5}$$

$$\lambda_l \propto \sqrt{\frac{m}{F}}$$
 (2.6)

薄膜は構造が既に固体とは異なり、隙間や不純物の混入、一部の化合物では成膜の際の吸収などがあるため、固体材料から得られた結論がそのまま薄膜に適用できるわけではない。

薄膜の透明度低下の原因は吸収と散乱の二種類に分けられる。薄膜の吸収と散乱は光学特性に影響するほか,高出力光照射に耐えられるかどうかをも左右する。また,干渉フィルタの透過率,レーザーミラーの反射率,導波路の伝達距離なども,使用する薄膜の吸収と散乱に大きな影響を受ける。

膜の損失原因は非常に多く,前述のエネルギー準位吸収,格子振動吸収のほか,自由キャリア吸収,不純物の存在,膜の格子欠陥,分解などがある。 λ_S は高屈折率材料の場合,バルク材料よりも長波長方向に透明領域がシフトすることがあるので,高屈折材料は低屈折材料よりも大きな吸収を示すことが予測される。また, λ_l は原子量が大きく,イオン性が減少する材料ほど,高屈折材料と同様に,透明領域が長波長領域にシフトする。

更に,半導体材料の ΔE は非常に小さいため,自由キャリア濃度は温度上昇に伴って増加し,透明度を低下させる。例えば,Ge は室温時、10 μ m での吸収は $0.02cm^{-1}$ である。しかし,70 では $0.12cm^{-1}$,100 では $0.4cm^{-1}$ まで上昇する。

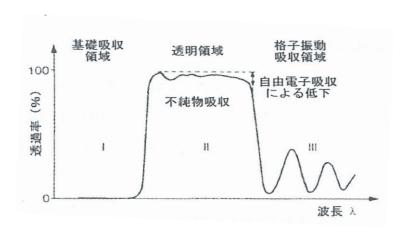


図 2.2: 光学材料の透過領域

元素	原子量	n	$\Delta E(eV)$	$\lambda_S(nm)$
С	12	2.38	5.4	0.22
Si	28.1	3.4	1.1	1.13
Ge	72.6	4.0	0.69	1.80
Se	79	2.4	1.86	0.67
Te	127.6	5.1	0.3	3.5

表 2.1: 各元素の屈折率の例

化合物	平均原子量	イオン性	n
NaF	21	3.0	1.31
MgF_2	21	2.7	1.38
ZnO	42	2.0	2.08
TiO_2	1.7	1.86	2.3
ZnS	50	1.0	2.35
PbTe	167	0.5	5.8

表 2.2: 化合物のイオン性の例

屈折率の安定性

薄膜の屈折率はいくつかの要因によって決まる。まずは,膜を構成する化学元素との関係である。屈折率は電場中の価電子の分極の程度を表すもので,誘電率との関係は

$$\epsilon = n^2 \tag{2.7}$$

で示される。最外殻電子が分極しやすい物質ならば n は必ず高くなる。単元素物質では原子量が大きいほど屈折率も高い。化合物では,共有結合物質はイオン性が小さく,分極しやすいために,イオン結合物質よりも高い屈折率を示す。

次に,膜を構成する晶相との関係である。異なる成膜条件下で作られる薄膜の晶相は違うため,屈折率は各条件で異なる。 ${
m TiO_2}$ は基板温度 ${
m Ts}$ が 20 から 350 まで上がると, $500{
m nm}$ の波長で屈折率が 1.9 から 2.3 まで上昇する。同様に ${
m ZrO_2}$ は基板温度 ${
m Ts}$ が 20 から 350 まで上がると, $500{
m nm}$ の波長で屈折率が 1.7 から 2.05 まで上昇する。

更に,成膜の結晶粒子の大きさと充填率も関係する。膜の屈折率は構成する結晶粒子の大きさと充填密度に依存し,膜の結晶粒子の大小や充填密度の大小は基板温度 Ts や成膜時の圧力 P に依存する。一般に温度が高く,圧力が小さいほど結晶粒子は大きく,充填密度も高い。その結果,屈折率も大きくなる。イオンアシスト蒸着やイオンビームスパッタ蒸着では薄膜はアモルファスになるので結晶粒が無い,あるいはあったとしても非常に小さいものとなる。そのため,この種の膜は充填密度が非常に高くなり,屈折率は更に高くなる。最後に,膜の化学成分との関係も屈

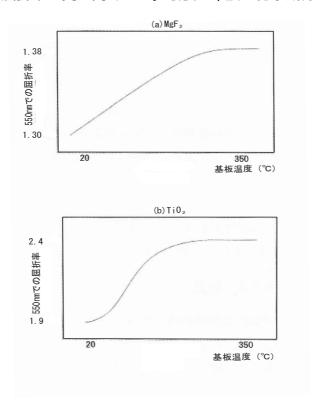


図 2.3: 薄膜の屈折率と蒸着時基板温度の関係

折率に影響を与える。成膜過程中,蒸発物質は一旦分解した後,再結合したりする場合があるため,化学成分変化が起きる。氷晶石を例にとると,蒸着成膜の前後で屈折率が 1.30 から 1.38 になる。この原因は氷晶石 Na_3AlF_6 が NaF(屈折率 $1.29 \sim 1.34$) 及び AlF_3 (屈折率 1.385) に分解するためである。

充填密度の高さ

成膜後の屈折率の安定性は充填密度に深く関係する。充填密度が小さすぎると、水分が膜内部に吸着されて屈折率が変化したり、場合によっては化学成分も変化したりと、環境に影響されやすくなる。充填密度 P は薄膜密度 ρ_f と同じ成分のバルク材料の密度 ρ_{fb} との比で定義され、微視的構造に深く関係する。

薄膜の屈折率安定性,機械的強度,化学的安定性,光学散乱などは充填密度に関係し,どのようにしてP値を大きくするかということが重要である。一般に基板温度 T_s を上げればP値は上昇する。また,成膜過程で,電子,イオン,紫外線などを利用して,衝撃や照射によってP値を上げることができる。更に,蒸発原子の運動エネルギーを上げることによってもP値を上げることができるため,グロー放電でプラズマを発生させることを利用した,イオンアシスト法やプラズマアシスト法などの各アシスト法を利用することも有効な方法の一つである。

散乱が小さい

薄膜に微視的構造がある場合や,膜の充填密度が非常に低い場合,膜中に存在する多くの隙間によって光は散乱を受ける。また,膜構造が多結晶の場合でも,複数の境界面が形成されるため,同様に散乱が引き起こされる。散乱に対し最良の解決方法はイオンビームスパッタの利用であると現在は言われている。

薄膜の均一性

薄幕を設計する際には,一般に,膜の屈折率は均一かつ等方的であると仮定している。しかし一部の膜には,成長に従って屈折率が増大するものや,その逆に,成長に従って屈折率が減少するものがあるため,設計が難しくなる。屈折率の均一性はイオンアシスト法やプラズマアシスト法によって改善することができる。

優れた機械的付着力、十分な硬度、及び応力が小さい

フィルタは使用時に拭かれることは逃れられないため,薄膜の条件として優れた機械的性質は必要である。一部の硫化物やフッ化物膜は比較

的軟らかいので、機械的摩擦に耐えることができない。このような場合、酸化膜による保護膜(オーバーコート)が必要となる。一般に金属膜は軟らかい膜に属するので、保護膜が必要である。

あらかじめ基板上に付着力が比較的強い膜を成膜しておき,必要な膜の付着力を増加させることもある。酸化膜や $\mathrm{MgF_2}$ はガラスとの付着力が非常に良く, ZnS は Ge 基板との付着力が非常に優れているのでベース膜として使える。

膜の応力は付着性に影響を及ぼし,その応力は二種類に分けられる。一つは膜自身の構造に起因する内部応力である。膜成長と共に充填密度が小さくなるような場合は引張り応力が現れ,逆に充填密度が膜成長と共に大きくなるような場合は圧縮応力が現れる。

もう一つは熱応力と言い、冷却後の薄膜と基板の膨張係数の差異から、 収縮の程度が異なるために生じる応力である。多層膜の場合に、解決方 法の一つとして、互いに似た熱膨張係数を持つ材料で、一つは引張り応 力を示す材料、もう一方に圧縮応力を示す材料を使用して交互に積層さ せ、全体の応力を最小にする。

通常,応力は膜が成長を始める時に非常に大きくなり,膜の厚さが厚くなってくると徐々に低下する。よって第一層目と基板のマッチングが非常に重要となるため,構造,成分,膨張係数などは可能な限り基板に近いものが良い。

化学的安定性

薄膜は様々な環境で腐蝕に耐えなければならず,その中で最重要なものは水分の浸透に対する耐久性である。水分浸透により膜の屈折率が変化し,光学特性が変化する。場合によっては付着力も低下し,剥離に至ることもある。

ある種の化学変化は薄膜材料や基板から生じる。例えば PbO を含むガラス基板上に La_2O_3 を成膜すると,化学反応が起きて吸収性の金属 Pb が残る。この場合には成膜前に SiO_2 をバリア膜として成膜する。この方法は ITO にも適用でき,バリア膜は Na が ITO 膜内に浸入するのを防ぎ,透明度や電気伝導性が劣化しにくくなる。また,膜材質の化学的整合性も考慮して,膜と膜の間の化学変化も避けなければならない。

耐照射光エネルギーが高い

人工衛星など宇宙空間に置かれる光学システム中の薄膜は膜面が露出しており,紫外線,高エネルギー電子,高速粒子などの被爆に耐えなければならない。そのため,照射時の薄膜の損傷閾値に対する要求は高く,膜材質の前処理,基盤の洗浄度,成膜環境,低入射角蒸着,成膜方法,高/低屈折率材料の整合に注意を払う必要がある。

2.4.2 ITO の性質

今回薄膜作成に用いた材料は酸化インジウム (In_2O_3) に酸化スズ (SnO_2) を重量比約 10 %混ぜた $ITO(Indium\ Tin\ Oxide)$ と呼ばれるものである。 ITO は可視光透過率が高く,導電性も高い。酸化インジウムは透明導電膜として液晶ディスプレイの電極など,先端電子機器に広く用いられている。

ITO 膜は可視光領域において透明であるものの,赤外光領域では自由電子濃度が非常に高いために不透過となり,電気伝導を示す。屈折率と電気伝導率は酸化インジウムの含有量と製造工程に関係する。薄膜は電子銃蒸着によるイオンアシスト成膜やスパッタ成膜で作成可能であり,電極以外にも電磁波漏洩防止用の膜にも使用できる。

2.5 スパッタリング

2.5.1 グロー放電の発生

スパッタリングとはイオンがターゲットに照射されると,ターゲット表面の原子や分子と弾性,あるいは非弾性衝突し,その結果,ターゲット表面の原子,分子は蒸発したり,あるいは照射イオンが物質内に入り込んだりすることをいう。前者をスパッタ蒸発,後者をイオン打ち込みという。スパッタ蒸着したターゲット物質を基板上に沈着させて薄膜を形成することをスパッタ蒸着と称する。

スパッタリング現象が発見されたのはグロー放電の実験においてであり,グロー放電がスパッタリング法の基本である。グロー放電は,気体の圧力が $10^3 \sim 10^0 \mathrm{Pa}$ 程度の真空内の二つの電極間に高電圧をかけたとき両電極に生じる放電現象で,低周波の交流高電圧をかけたときの様子と,直流電圧をかけて詳しく観察した結果を下に示す。

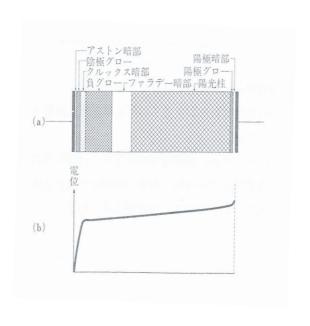


図 2.4: 直流グロー放電の状態と電位分布

陰極から冷陰極放出で放射された電子のエネルギーは、1eV 程度であり気体分子との相互作用は無い。したがって陰極の極近傍に暗黒部分ができる。これがアストン暗部である。Ne や Ar などの気体ではこれがはっきりわかるものの、その他の気体では一般にきわめて狭いため、わかりにくい。電子が加速されると気体分子を励起できるようになり、励起された気体分子からは気体固有の光が発せられる。この部分が陰極グローである。更に電子が加速されると、気体分子のイオン化が起こり、多数のイオンと低速電子とが生成される。この部分をクルックス暗部といい、発光はほとんど無い。ここで、生成された低速電子が加速され、気体分子を励起し、発光させているのが負グローであり、陰極から負グローまでの気体分子の状態を模式的に表した図を下に示す。

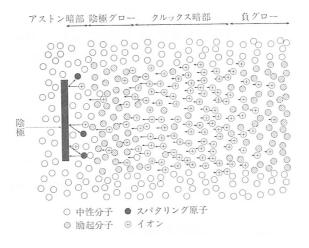


図 2.5: 陰極付近でのグロー放電における分子状態模式図

2.5.2 グロー放電プラズマの性質

グロー放電中の気体粒子のイオンの含有率は $10^{-3}\sim 10^{-5}$ であると言われている。イオン含有率の低い状態を弱電離プラズマという。しかし,電子と気体分子との非弾性衝突により,中性であっても励起状態にあるものや,分子の分解によってラジカルとなっているものが含まれる。

電子の質量はイオンの質量よりずっと小さいため,プラズマ中での電子の移動度はイオンの移動度より大きい。故に,プラズマに外から電場が加わると電子だけが加速され,イオンはあまり加速されない。

質量mを,電荷eの粒子が,電場Eの中に置かれたとき,粒子の運動方程式は,

$$m\left(\frac{dv}{dt}\right) = eE\tag{2.8}$$

で与えられる。ここで v は粒子の速度 , t は時間である。一次元で考えることにし , E は一定 , t = 0 で v = 0 とするならば , 粒子の運動エネルギーは

$$\frac{mv}{2} = m\frac{\left(\frac{eEt}{m}\right)^2}{2} = \frac{(eEt)^2}{2m} \tag{2.9}$$

で与えられる。したがって、決まった時間内に粒子が電場から得ること

のできるエネルギーは,質量に反比例する。電子と陽子の質量が3桁異なることを考えると,電子がイオンより高エネルギーを得やすいことがわかる。

また,ある粒子系の絶対温度を T,k を Boltzmann 定数, $\overline{v^2}$ を粒子の二乗平均速度として,その構成粒子の運動エネルギーは等価的に

$$\frac{3kT}{2} = \frac{m\overline{v^2}}{2} \tag{2.10}$$

で与えられる。この式を粒子の絶対温度を定義する式とすれば,(2.6) 式の結果を用いて,グロー放電では,電子温度はイオン温度より高いといえる。電子,イオン,中性粒子の密度が大きければ,相互衝突によってエネルギーの交換が生じ,みな同程度の温度になってしまうが,減圧下の放電では,異なる粒子間の熱平衡が成立していない。特に気体の圧力が 10^{-2} Pa 以下のとき,電子温度とイオン温度の違いが顕著になる。このような粒子間の温度の違いがあるプラズマを非平衡プラズマという。

通常の条件で作られたグロー放電プラズマの電子温度はせいぜい 10⁴K の桁であり,イオン温度は 500K 程度,中性粒子の温度はそれ以下である。日常生活では蛍光灯の水銀蒸気のプラズマが馴染み深いが,この程度のプラズマは熱いという状態でなく,低温プラズマと呼ばれることがある。薄膜形成に関係するプラズマは,概して,弱電離・非平衡・低温プラズマである。

プラズマを理解するにはデバイ長さが重要となる。プラズマ中に絶縁されていて電流が流れない電極を置き、これにプラズマに対して正の電位を与えたとするとこの電極の周囲には電子が集まる。電極による電場はこの電子によってシールドされる。電極からの距離 x による電位変化はポアソンの方程式を解くことにより求まる。これは非線形の問題であるが、イオン密度を場所によらず一定とみなして、適当な近似を用いることで線形化することで、場所による電位変化の概略を記述できる。

一次元の場合,電位 ϕ は

$$\phi = \phi_0 \exp\left(\frac{-x}{\lambda_D}\right) \tag{2.11}$$

で表され、

$$\lambda_D = \left(\frac{\epsilon_0 kT}{ne^2}\right)^{\frac{1}{2}} \tag{2.12}$$

となる。ここで ϵ_0 は真空の誘電率 , k は Boltzmann 定数 , T を電子温度 , n を電子密度 , e はイオンの電荷である。 λ_D はシールド効果の指標となる量でデバイ長さ (Debye length) と呼ばれる。

例えば, 10^{-1} Pa で 10^{-4} のイオン化率を仮定した場合,デバイ長さは 0.1mm 程度であり,電極の電位の効果は,大きくてもデバイ長さの数十倍程度の範囲にしか到達せず,それ以上離れたプラズマ内部では,電場 はほとんど存在しない。

グロー放電プラズマの電位については,プラズマ中のイオンと電子の密度はほぼ等しく,プラズマは全体として電気的に中性であると言える。だが,この中性は厳密には必ずしも成り立たない。プラズマの容器が金属製で,アースされている場合を考えると,電子は高いエネルギーを持つために,イオンに比べて比較的容易に容器に逃げることができる。これにより,イオン密度が電子密度よりもやや大きくなり,結果として,プラズマ中心部では,電位がわずかにプラスになる。

したがって、プラズマの電位を 0 にとると、容器の電位はマイナスになり、今度はイオンが容器の壁周辺に集まり電場を遮蔽する。前述のイオン密度が一定という仮定は、壁付近では成立しない。壁付近の電位状態を模式的に表したものを下に示す。イオンにより生じる電位勾配の存在領域をイオンシース (ion sheath) と呼ぶ。

スパッタリング現象と関連して重要な点は二つある。主にクルックス暗部周辺で作られる正イオンが陰極に衝突するということ。両極間電圧を一定とし、電極間距離を変化させた場合、主としてプラズマから成る陽光柱部分の長さが変わり、陰極から負グローまでの距離はあまり変わらないということである。この理由は、両電極の電圧降下が陰極から負グローまでの間のイオンシースで起こることによる。グロー放電ででき

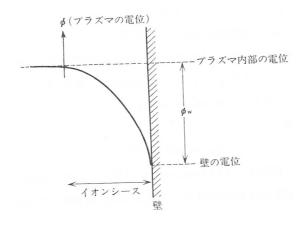


図 2.6: プラズマ容器壁付近の電位分布とイオンシース

た正イオンを陰極に衝突させ,陰極の物質を外へ叩き出すのが通常のスパッタリング法であるため,両極間の距離は少なくとも陰極と負グローとの間の距離より長くとる必要がある。

2.5.3 スパッタリング率

スパッタリング現象の記述の際,最も重要なパラメータはスパッタリング率である。スパッタリング率とは正イオン1個が陰極に衝突したとき, 平均して何個の原子または分子を陰極から叩き出すかを表す量である。

スパッタリング率 s に最も明確かつ顕著に影響するものは,正イオンの加速電圧 V である。s と V との間の関係で定性的にほぼ確かといえることは, V にはある閾値 V_0 があり, V の増加とともに s が増加する。しかし V が非常に大きくなると s は逆に減る傾向があるなどの現象である。

スパッタリングの閾値に関して,閾値があるらしいことは古くから言われてきたが,測定感度に限界があり,確かなことはわからなかった。しかし,最近ではスパッタリング率 s を $10^{-4}atoms/ion$ の精度で微量のスパッタリング原子を検出できるようになった結果,金属元素に希ガスイオンを衝突させる場合に関して,希ガスイオンの加速電圧が $12\sim35\mathrm{V}$ 以下では, $10^{-4}atoms/ion$ の精度の範囲でスパッタリング現象は生じていないことがわかった。そのため現在は,この程度の電圧がスッパタリングを起こさせるための閾値と考えられている。

イオンのエネルギーが増すとsが増加するのは当然予想されることであるが,電圧が非常に高くなるとsが逆に減るのは,加速された正イオンが陰極物質の内部へ非常に深く打ち込まれる確率が増え,正イオンのエネルギーが広い範囲の原子に散逸してしまうためといわれている。sとVとの関係を模式的に表したものを下に示す。Arの正イオンをCu, Ag などのスパッタリングを起こしやすい物質に衝突させると,V が $10\sim30 kV$ まで s は増加し,30 kV を越えると減少傾向になることから,スパッタリングでの加速電圧の上限は,約 10 kV が目安になる。

またスパッタリング率 s は,陰極物質や,正イオンの種類にもよる。陰極物質が Cu ,Ag ,Au のとき s は大きく,C ,Si ,Ti ,V ,Zr ,Nb ,Ta ,W などでは s は小さい。通常の正イオン入射に対して,s は Ag で最大となり,C で最小となる。陰極物質を Ag とし,様々な物質の正イオンのビームを作り,陰極に当て,s を測定した結果を,イオンを作る物質の原子番号の関数として表したものを下に示す。このときの正イオンの加速電圧

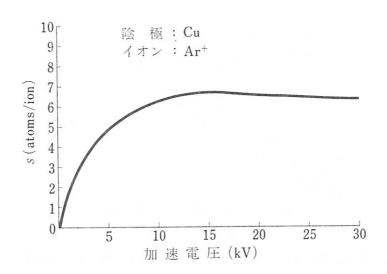


図 2.7: アルゴンイオンの加速電圧に対する Cu のスパッタリング率の変化

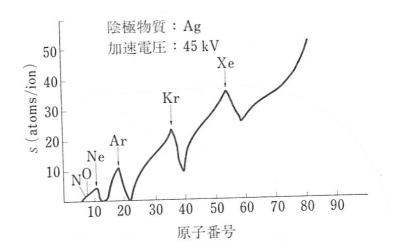


図 2.8: 陰極物質 Ag に対する加速電圧 45kV での各種物質イオンのスパッタリング率の変化

は $45 \mathrm{kV}$ である。希ガス類がピーク値を示す中 , 通常のスパッタリングで Ar が多く使われるのは , 入手しやすく他の物質と反応しにくいこと , s が高いことによる。

2.5.4 高周波スパッタリング

放電ガスを低圧にし、安定な放電を起こさせ、絶縁体にもスパッタリングできるように考えられたのが、高周波スパッタリング装置である。

低圧ガス中に置かれた二つの電極間に, $50 \mathrm{kHz}$ 以上の高周波電場を加えると,ガス中に何らかの理由で存在するわずかな電子が,高周波電場のエネルギーを吸収しながらだんだん加速され,ガス分子と衝突するとガス分子を電離して電子を放出する。放出された電子も同様に加速され,ほかのガスを電離してイオン化する。この繰り返しの中で放電が起こり,生じたイオンによってスパッタリングが起こる。これを高周波放電と言い, $10^{-1}Pa$ の圧力でも持続する安定した放電である。

絶縁体にスパッタリングを起こさせるのに,どの程度の周波数の交流電圧が必要かは,決まった電流をスパッタリングターゲットに当てたときの,スパッタリングターゲットの電位上昇の割合を見積もれば良い。ターゲットとアースとの間の電気容量を $\mathbb C$,その間の電圧を $\mathbb V$,その間に蓄えられる電気量を $\mathbb Q$ とすると,

$$V = \frac{Q}{C} \tag{2.13}$$

で与えられ, Δ t 秒間に電圧が Δ V,電荷が Δ Q変化したとすれば,

$$\frac{\Delta V}{\Delta t} = \frac{\Delta Q}{C\Delta t} = \frac{\bar{I}}{C} \tag{2.14}$$

となる。ここで \bar{I} は Δt 秒間に電極を流れる平均の電流である。

一般の実験条件を $\Delta V\sim 10^3 {\rm V}$, \bar{I} を $10^{-2}\sim 10^{-3}{\rm A}$, ${\rm C}$ を $10^{-11}\sim 10^{-12}{\rm F}$ とすれば , $\Delta {\rm t}$ の値は $10^{-5}\sim 10^{-7}{\rm s}$ が得られる。そのため周波数が $100kHz\sim 10MHz$ であれば 10^3V 程度でイオンをターゲットにぶつけることが可能になる。したがって , スパッタリングターゲットの帯電からも高周波電場が要求される。

高周波スパッタ装置の運転は非常に簡単であり,スパッタ装置の較正を 行うことによって,スパッタリングによって析出する膜厚のコントロール が容易になる。その方法としては,析出量測定用のテストピースと,較

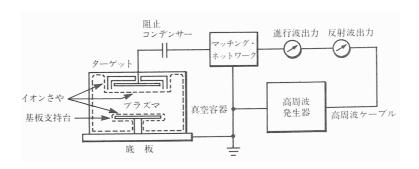


図 2.9: 高周波スパッタ装置の一例

正を行うターゲットを共に真空チャンバー内にセットし,テストピース上に十分に重量増加が測定できるほどの量の薄膜が析出するまでスパッタリングを続ける。

この時,コーティング時間を τ とし,出力レベルは他の全ての標準作動パラメーターと共に記録しておく。テストピースを真空チャンバーから取り出し,重量測定をする。重量増加をm,ターゲットの密度をd,テストピースの表面積をA,析出膜厚をtとすると

$$m = dAt (2.15)$$

という関係式が成り立つ。これより析出膜厚 t とコーティング時間 τ からコーティング速度 T は

$$T = \frac{t}{\tau} \tag{2.16}$$

の式で与えられる。つまり,較正を行うことによって,コーティング時間から膜厚を計算することも可能であり,その逆に,必要とする膜厚が析出するために必要なコーティング時間を計算によって求めることも可能である。

2.5.5 スパッタリングの特長

コーティング方法としてスパッタリングの特長的な点は,まず析出速度という点に注目すれば,スパッタリングは用いる物質によって析出速度が,蒸着に比べて高いものや低いものがあるが,析出速度は安定していることである。これは多層膜析出を行う場合に役に立つ。析出速度があ

まり変化しないため、析出膜厚のコントロールも非常に簡単である。較正値が一度得られれば、膜厚コントロールは時間設定の問題だけとなる。また、経済性という点で、スパッタ・ターゲットは繰り返し何百回と使用することが出来る。蒸着の場合、蒸着源は10回程度しか使用できないため、これは蒸着の場合と著しく異なる点である。加えて、パーツ類や基板を逆スパッタで清浄化が可能なことも、他では得られない利点である。

2.6 作成方法

2.6.1 装置のセットアップ

薄膜製作のために使用した装置のセットアップを下に示す。

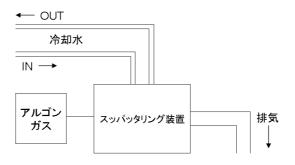


図 2.10: 蒸着装置のセットアップ

アルゴンガスとスパッタリング装置の接続には ϕ 6mm のシンフレックスチューブ, 冷却水用には 20m のホース 2 本を使用し, 排気用ホースは外径が等しいものを 2 本接続し, 外気開放している。



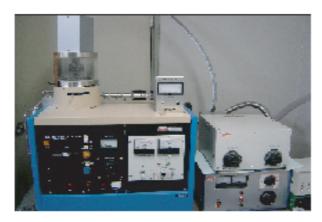




図 2.11: 上:Ar ガスは二次側の圧力 0.1 MPa で使用 , 中央:スパッタリング 装置本体の上に蒸着用のベルジャーが設置される , 下:冷却水と排気系は 天井伝いにホースを配置した

2.6.2 薄膜制作のための操作

薄膜制作のために使用するスパッタリング装置について操作方法を記す。今回使用したのは(株)サンユー電子製 SVC-700 のスイッチ類を電磁 弁タイプに改造したものである。

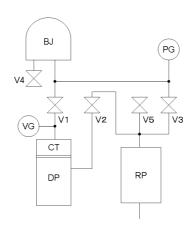


図 2.12: スパッタ装置排気系統図

まず、排気ホースが研究室外に排気されていることを確認する。続いて本体にホースで導入する冷却水を毎分 2 リットルの割合で流し、装置の起動に入る。MAINS、RP スイッチ、DP スイッチを ON にする。DP BACKING スイッチ (V2) を ON にし、油拡散ポンプの油回転ポンプによる排気を行う。DP が作動するまで $20 \sim 30$ 分、この状態で待機する。

DP が作動したら,HIGH VACUUM バルブ (V1) が CLOSE になっていることを確認し,BJ LEAK バルブ (V4) を OPEN にする。ベルジャーを外し,試料をセットする。ベルジャーを元の位置にセットし,しっかり閉める。V4,V2 の順に CLOSE にする。次に V3 を OPEN にし,油回転ポンプによるベルジャーの排気を行う。緑色のピラニゲージの READY ランプが点灯状態になっていて,銀色のピラニゲージが $1.5\times10\sim2\times10$ Paを示せば,本引きを開始する。V3 を CLOSE にし,V2 を OPEN にする。V1をゆっくり OPEN にし,ベルジャーの油拡散ポンプによる排気を開始する。銀色のピラニゲージは左に振り切れ,高真空状態になる。ベルジャー内のシャッターが閉じた状態であることを確認し,GAS CONTROLLERとベルジャー後方のガス弁を OPEN(ON) にする。FLOW RATE は $3\sim5$ にする。次に V1を CLOSE に近付け,銀色のピラニゲージで $2\sim3$ Paに

なるようにする。スパッタリング装置本体の右側にある POWER スイッチ,RFスイッチを順にONにする。300W フルスケールの場合,100W では熱を持ち長時間作動できないため,OUTPUT ADJ のつまみを操作して50Wにする。次に,放電のきっかけを作るため GAS CONTROLLERの VALVE OPEN のスイッチを一瞬だけ ONにして,放電が確認されたらすぐ切る。GAS CONTROLLERの GAS FLOW もしくは V1の開閉で銀色のピラニゲージが 7Pa 前後を示すように調整する。7Pa 前後で安定したら,シャッターを開け,スパッタリングを開始する。

スパッタリングが終了したら,シャッターを閉め,本体右側の RF を OFF にする。GAS CONTROLLER の GAS FLOW を 0 にし、POWER OFF にする。本体右側の POWER も OFF にする。試料を取り出した後, V1 スイッチが CLOSE になっているか確認する。DP スイッチを OFF にし、その後 $20\sim30$ 分待機する。V2,RP スイッチを OFF にし,ベルジャー後方の Ar ガス弁を CLOSE にする。メインスイッチを OFF にする。本体と別電源の銀色のピラニゲージと GAS CONTROLLER の電源が切ってあるか確認した後,冷却水を止める。

	V1	V2	VЗ	٧4	V5	RPスイッチ	DPスイッチ
停止	×	×	×	×	0	×	×
開始	X	0	X	X	X	0	0
試料セット	×	0	×	0	×	0	0
粗引き	X	X	0	X	X	0	0
本引き			X	X	X	0	0
DP冷却	×		×	×	×		×

○OPEN 又はスイッチON ×CLOSE 又はスイッチOFF

図 2.13: スパッタ装置バルブ操作一覧

第3章 性能評価

3.1 放射線の応答性能による評価

3.1.1 物質と γ 線の相互作用

 γ 線とX線は,発生源が異なるだけで,共に電磁放射線の一種である。これらの電磁放射線は各々のエネルギーがEの光子群であり,一つのまとまった形で説明できる。プランク定数をh,光速をc, ν と λ を放射線の波動特性に関連させて扱える振動数と波長として,Eの大きさは

$$E = h\nu = \frac{hc}{\lambda} \tag{3.1}$$

である。特定な種類の核反応に伴って生じる γ 線では,単一はエネルギーの光子か,あるいはいくつかの異なったエネルギー列の光子群になる。

 γ 線が物質と相互作用をする主な機構には,光電効果,コンプトン散乱,電子対生成の三種類がある。

1. 光電効果

光電効果では,光子は全体のエネルギー $h\nu$ というまとまった形で原子と相互作用を行う。具体的には入射光子と原子の電子雲との相互作用であり,その結果,電子が射出される。その電子の運動エネルギー E_{kin} は, E_b を軌道電子の結合エネルギーとして

$$E_{kin} = h\nu - E_b \tag{3.2}$$

で表される。

この相互作用は K 殻電子との作用が最大であり, さらにある特定な 殻についていえば, 光子エネルギーがその殻の電離ポテンシャルの 値をちょうど越えたときに最も相互作用が大きく, それ以上エネルギーが増すと急速に減少する。

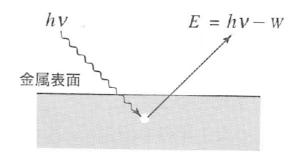


図 3.1: 光電効果のモデル図

2. コンプトン散乱

コンプトン散乱では,入射光子は任意な軌道電子一つと相互作用を行う。光子のエネルギーは反跳電子と二次光子に分割される。二次光子は散乱光子と呼ばれ,入射一次光子とは異なった方向に走ってゆく。

コンプトン散乱では, γ 線のエネルギーが十分高い場合に,原子核の持つ電子を自由電子と見なし,その電子と光子の衝突を扱っている。入射光子と自由電子との衝突に対して,エネルギーと運動量の保存則を適用すると散乱光子のエネルギー $h\nu'$ は,入射方向と散乱方向のなす角度を θ として

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + (1 - \cos\theta)h\nu/mc^2}$$
 (3.3)

で表される。また,反跳電子のエネルギー E_{kin} は

$$E_{kin} = h\nu - h\nu' \tag{3.4}$$

$$= h\nu \left\{ \frac{(1 - \cos\theta)h\nu/mc^2}{1 + (1 - \cos\theta)h\nu/mc^2} \right\}$$
 (3.5)

となる。

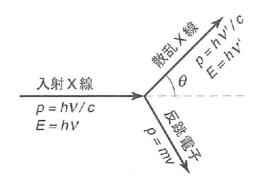


図 3.2: コンプトン散乱の散乱角

3. 電子対生成

電子対生成の過程では, γ 線が消滅し,陽電子と陰電子が生じる。この現象は原子核のクーロン場でしか起こらない。さらにこの現象が起きるためには, γ 線エネルギーが電子対の静止質量エネルギー $2mc^2=1.02 {
m MeV}$ より大きい必要がある。静止質量エネルギーと γ 線エネルギーの差が電子対の運動エネルギーとなる。

$$E_{kin} = h\nu - 2mc^2 = h\nu - 1.02MeV \tag{3.6}$$

陽電子は原子核から反発力を受ける一方,陰電子は吸引力を受ける ため,陽電子の方が幾分か大きな運動エネルギーを受け取る。

このようにして生成された電子対は停止する寸前に結合して消滅し,2本の $0.51 \mathrm{MeV}\gamma$ 線をお互 \mathbf{N} 180°方向に放出する。

3.1.2 物質と γ 線の相互作用確率

放射線と物質との相互作用の確率は断面積として表され, $1cm^2$ あたり 1 個の放射線束が到来したとき,原子1 個が反応する確率に相当する。単位として通常バーン $(barn:10^{-24}cm^2)$ を用いる。

物質の密度を $\rho(g/cm^3)$, アボガドロ数を N_A , 原子量を A とした場合 , 単位体積あたりに含まれる原子数は $\rho N_A/A$ である。これに単位放射線束が照射された場合 , 光電効果の起こる確率は , σ_{photo} を光電効果に対する断面積 (cm^2) として

$$(\rho N_A/A)\sigma_{photo} \tag{3.7}$$

であり、同様に物質 1g に単位放射線束を照射した場合、光電効果の起こる確率は

$$(N_A/A)\sigma_{photo} \tag{3.8}$$

と表示できる。コンプトン散乱,電子対生成についても同様の表示が成り立つため,物質 $1cm^3$ において3 つの相互作用のいずれかが起こる確率は,

$$\mu = (\rho N_A/A)(\sigma_{photo} + \sigma_{compton} + \sigma_{pair})$$
 (3.9)

であり,物質1gにおいては

$$\mu_m = (N_A/A)(\sigma_{photo} + \sigma_{compton} + \sigma_{pair}) = \frac{\mu}{\rho}$$
 (3.10)

となる。 μ は線減弱係数 (cm^{-1}) , μ_m は質量減弱係数 (cm^2/g) である。 強度 I_0 をもつ光子ビームが厚さ d の層を透過するとき , この層を通り抜けてくる強度 I は線源弱係数を用いて

$$I = I_0 e^{-\mu d} \tag{3.11}$$

で表される。このことから , 厚さ d の物質と光子ビームが相互作用せずに透過する確率は

$$I/I_0 = e^{-\mu d} (3.12)$$

となる。質量減弱係数を用いて同様に表すならば , d_m を質量単位で表した厚さ ρd として

$$I/I_0 = e^{-\mu_m d_m} (3.13)$$

である。 γ 線の吸収の場合には,飛程の概念は荷電粒子と異なり,粒子がこれ以上走行しないある距離 R をはっきり決めるわけにはいかない。しかし,物質と相互作用せずに透過する確率を用いて,距離 R 以上は走行しない確率を決定することは可能である。その確率は $1-e^{-\mu R}$ になる。

3.2 膜厚の測定による評価

3.2.1 膜厚の分類

膜厚を考える際に,検討しなければならない要素としては,薄膜の不連続性や表面の凹凸,薄膜内部の格子欠陥やvoid,薄膜内部の不純物,表面の吸着分子などが挙げられる。これらの要素を十分に考え,最も妥当

な形に膜厚を決めるということは難しいため、一義的に膜厚を決めるのではなく色々な立場から見て、それぞれに都合の良い、いくつかの定義を膜厚として考える。

厚さとは二つの平行平面間の距離である。これを膜厚に当てはめるとすれば,二つの平行平面にあたるものは,基板面と薄膜表面の間の距離が膜厚である。しかし,この平行平面をいかに決定するかによって,膜厚は三つに分類される。

二つの平行平面のうち,基板面における平面は表面分子の集合の平均面とする。それに対して,もう一方の平面を,薄膜表面の平均面とした場合の膜厚を形状膜厚 dr と定義する。これは表面分子だけに関係し,薄膜の内部がどうなっているかは関係しない。

また,基板上に作られた薄膜全原子をバルクと全く同じ密度になるように再配列し,基板面上に一様に置いたとしたときに考えられる薄膜物質の表面の平均面をもう一方の平面とした場合,これを質量膜厚 $d_{\rm M}$ と定義する。これは薄膜内部の格子欠陥,void,格子間原子,粒界,歪みなどを考慮し,薄膜を構成する原子の数だけで決まる量である。

最後に,薄膜の電気抵抗など物理的性質が測られたとき,それと同じ数値を示す,幅と長さとが薄膜と同じであるバルクの板の表面の平均面をもう一方の平面とした場合,これを物性膜厚 dp と定義する。これは薄膜の内部構造や外部構造とは直接関係無く,あくまでも薄膜の性質によって決まる。

 d_T は直感に近い形のまく厚であり、 d_M は薄膜の量を表す概念として適切、 d_P は実用的に有用で測定もしやすい。通常は

$$d_T \ge d_M \ge d_P \tag{3.14}$$

になる場合が多い。電子顕微鏡写真や物性の研究などから予想される薄膜の断面の構造の概念図を下に示す。

どのように膜厚を決める場合でも,膜厚は薄膜内部や表面の不純物,吸着分子などの影響を受ける。しかし,不純物の全く無い薄膜を作ったり,成膜途中や成膜後の吸着を除くことは不可能であり,それらの混入を制御することも難しい。よって理論的にそれらを補正することもできない。それよりも,薄膜とは不可避的に不純物や吸着分子をかなり含んでいると考えた方が実際的である。

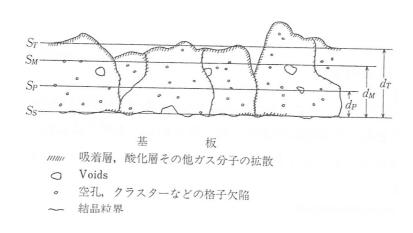


図 3.3: 蒸着膜断面予想図と各種膜厚

3.2.2 質量膜厚測定法

固体シンチレーターにスパッタリングする ITO 膜には,成膜後にインジウムが必要量含まれているかどうかを検討することが重要となるため,膜厚として質量膜厚 d_M を測定する。質量膜厚の測定には,重力などを利用して質量を測る方法と原子の数に対応する量を測る方法との二種類に分類できる。

質量測定として,まず考えられるのは天秤を用いることである。通常の化学天秤では,精度が高いもので $10^{-4}g$ 程度であり,貴金属の薄膜の厚さに換算すると $100\mathrm{nm}$ 程度の精度になる。マイクロ天秤を用いると $10^{-6}g$ が測定できるため,膜厚の精度は最大で $1\mathrm{nm}$ 程度の精度になるが,マイクロ天秤で測定できる最大質量が小さいために,薄膜を基板からはがす必要がある。

天秤による測定は一般に自動化されにくいという欠点を持つ。そのため,自動化に都合が良い方法として水晶振動子法がある。これは水晶振動子に薄膜をつけて水晶の見掛けの質量を変化させ,水晶の固有振動の周期を変化させ,それを発振回路に組み込んで膜の質量の変化を周波数の変化として取り出す方法である。この方法は真空装置内への組み込みも容易である。

原子数を数える方法は,膜の質量とは違った形で原子数と直接対応する量を測定する。比色法は,薄膜の物質を全部溶解して発色剤で発色さ

せ,その液の吸光度から原子数を推定する方法である。蛍光X線法は,薄膜にX線を照射して出てくるX線の強さから原子数を計算する。イオンプローブ法は,ヘリウムイオンの背面散乱を用いるラザフォードバックスキャッタリング法 (RBS法) やイオンマイクロアナリシス法 (IMA法) などの総称で,表面にイオンを当て,反射あるいは放射されてくるイオンの分析を行う表面成分分析法の一種である。表面成分分析法の一種ではあるが,表面からの深さ方向の変化がわかるので,薄膜と基板との種類によっては膜厚測定に用いられる。放射化分析法は薄膜に中性子を当て,薄膜を放射化し,薄膜から出てくる β 線や γ 線を測る方法である。 β 線後方散乱法は,薄膜に β 線を当て,後方に散乱してくる β 線の強度から厚さを決める方法で,薄膜と基板の原子量差が大きければ,10nm 程度の分解能があるといわれている。

測定手段	測定法		
質量測定	化学てんびん法 マイクロてんびん法 ねじりてんびん法 水晶振動子法		
原子数測定	比 色 法 螢光X線法 イオンプローブ法 放射化分析法 β 線後方散乱法		

図 3.4: 質量膜厚測定法

今回スパッタリングに使用するシンチレーターの形状は,直径 24 mmで厚さ 0.5 mm の円柱形のものと,一辺 10.0 mm の立方体の二種類があり,それぞれ $10~\mu$ m の薄膜を成膜すると仮定すると,前述の (2.7) 式より,スパッタリング後の質量増加は円柱形のもので約 33.0 mg,立方体で約 33.7 mg となる。これは化学天秤で質量増加を確認できる範囲であり,したがって,質量膜厚測定法の化学天秤法を用いることにする。

3.2.3 テストピースを用いたスパッタリングテスト

シンチレーターへ ITO の蒸着を行う前に , 縦 $2.77 \mathrm{cm}$, 横 $4.77 \mathrm{cm}$, 厚 さ $1 \mathrm{mm}$ のプレパラートを三枚用意し , それぞれ 30 分 , 60 分 , 90 分と異なる時間のスパッタリングを行い , 質量変化を調べた。

その結果を次に示す。30 分のスパッタリング時間ではほとんど変化は観察されなかった。60 分のスパッタリング時間では全体が薄く黄色を帯び,干渉縞が見られる。90 分のスパッタリング時間では,全体が黄色を帯び,干渉縞は2 つ見ることができる。質量の増加は30 分で $0.8 \mathrm{mg}$, 60 分で $2.4 \mathrm{mg}$, 90 分で $4.2 \mathrm{mg}$ であった。

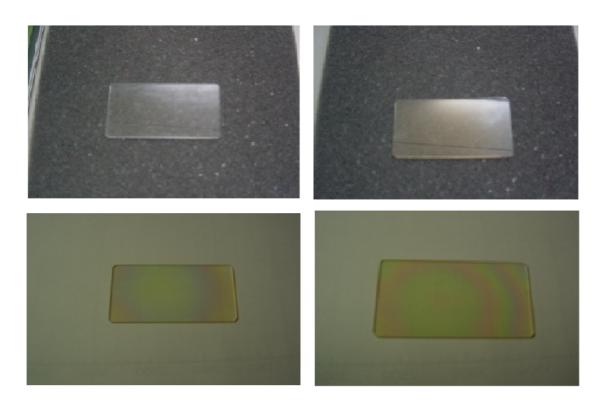


図 3.5: 上段左:スパッタリング前,上段右:スパッタリング 30分,下段左:スパッタリング 60分,下段右:スパッタリング 90分

ITO の膜厚 $10\mu m$ は質量にして 35.6mg の質量増加が必要であり、今回のテストの割合で質量が増加すると仮定すれば、約 770 分の蒸着が必要である。しかし、蒸着装置は長時間の連続使用が装置の故障に繋がるた

め、今回は4時間蒸着を行い、当初の目標である半分程度の膜厚を目標 として蒸着を行った。

3.3 スパッタリング前の測定

3.3.1 測定に使用したシンチレーターと光電子増倍管

今回使用したシンチレーターは Proteus,Inc. 製の CsI , BGO , YSO , LYSO , YAP の 5 種類である。形状は YAP 以外は , 1 辺 1.0cm の立方体であり , YAP は厚さ 0.5mm , $\phi 24$ mm の円状である。

1. CsI

ピーク波長 540nm で , 発光時間は 1100nSec。密度は $4.51g/cm^3$, 発光量は NaI 比で $50 \sim 100$ %。今回使用した光電子増倍管において量子効率は 0.16 である。

2. $BGO(Bi_4(GeO_4)_3)$

ピーク波長 480nm で,発光時間は 300nSec。密度は $7.13g/cm^3$,発光量は NaI 比で $15\sim20$ %。今回使用した光電子増倍管において量子効率は 0.25 である。

3. $YSO(Y_2SiO_5(Ce))$

ピーク波長 420nm で,発光時間は 35nSec。密度は $4.45g/cm^3$,発光量は NaI 比で 80 %。今回使用した光電子増倍管において量子効率は 0.27 である。

4. LYSO($LuYSiO_5(Ce)$)

ピーク波長 428nm で,発光時間は 40nSec。密度は $4.51g/cm^3$,発光量は NaI 比で 75 %。今回使用した光電子増倍管において量子効率は 0.27 である。

5. $YAP(YAlO_3)$

ピーク波長 370nm で,発光時間は 27nSec。密度は $5.37g/cm^3$,発光量は NaI 比で 40 %。今回使用した光電子増倍管において量子効率は 0.26 である。

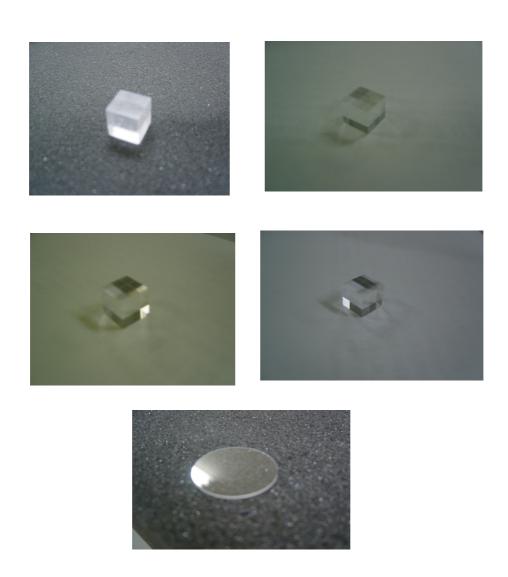


図 3.6: 上段左:CsI, 上段右:BGO, 中段左:YSO, 中段右:LYSO, 下段:YAP

これらのシンチレーターにオプティカルグリースを塗って光電子増倍管に接着し, γ 線源を用いて測定を行った。光電子増倍管には(株) 浜松ホトニクス製の $\mathrm{H}3167$ を使用した。

24.6±0.5 # 19.3±0.7 # 19.3±0.7 # 18MN PHOTOCATHODE PMT : R1450 WITH HA COATING MAGNETIC SHIELD MAGNETIC SHIELD PMT : R1450 WITH HA COATING MAGNETIC SHIELD MAGNETIC SHIELD PMT : R1450 WITH HA COATING PMT : R1450 WITH HA COATI

図 3.7: H3167 の構造

m H3167 の波長範囲は $m 300 \sim 650 nm$, ゲインは $m 2.0 \times 10^6$ であり , 印可電圧は-1800V である。

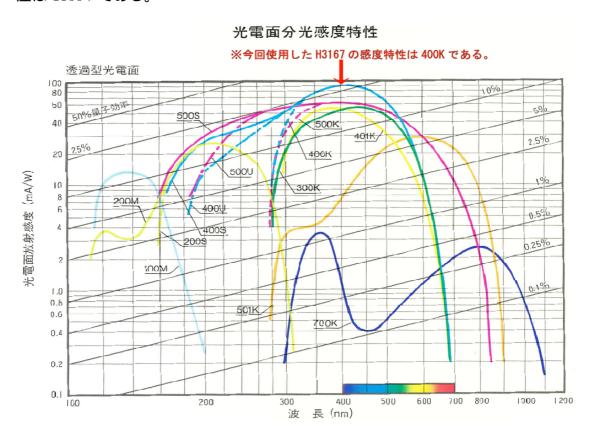


図 3.8: 光電子増倍管の光電面分光感度特性

3.3.2 γ 線によるシンチレーターの応答

測定は以下に示す論理回路を組んで行った。ADCは電荷積分型である。

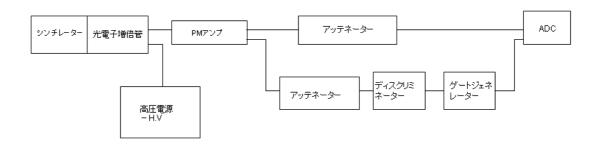


図 3.9: 計測のために組んだ論理回路

ただし,CsI だけは発光時間が長いためピークセンシティブな ADC を用いて以下のような回路を組んだ。

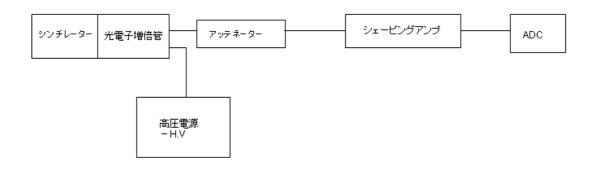


図 3.10: CsI で用いた論理回路

このような論理回路を用いて, γ 線源として $^{137}Cs(662keV)$, $^{133}Ba(81keV,356keV)$, $^{57}Co(122keV,136keV)$, $^{241}Am(60keV)$ を使用し,次の結果を得た。横軸は ADC のチャンネル数,縦軸の単位は events である。

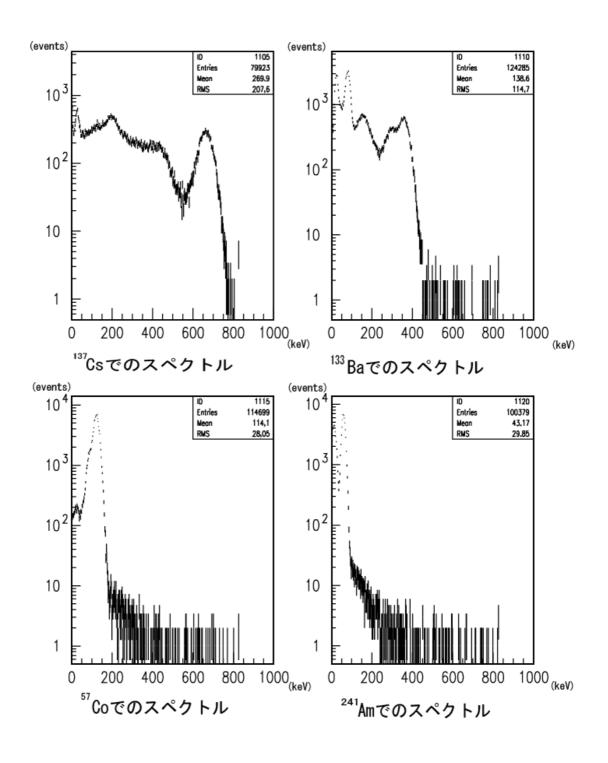


図 3.11: CsI での測定結果

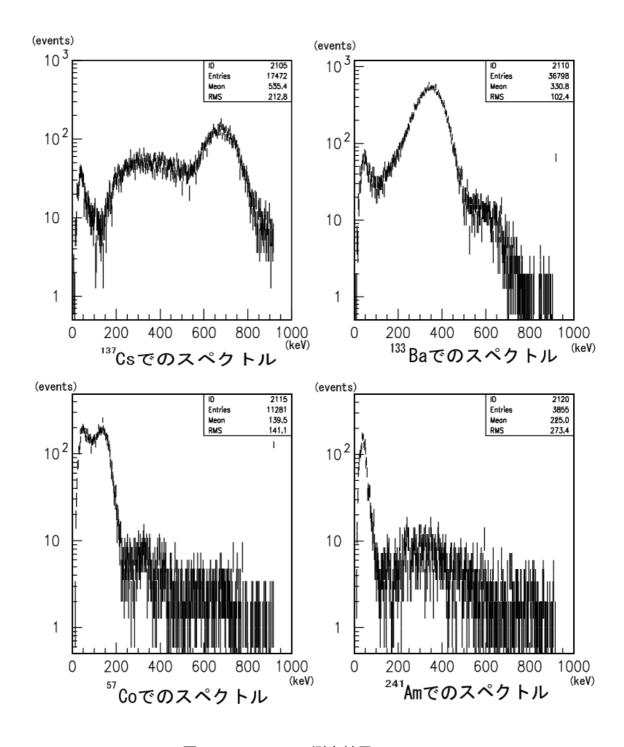


図 3.12: BGO での測定結果

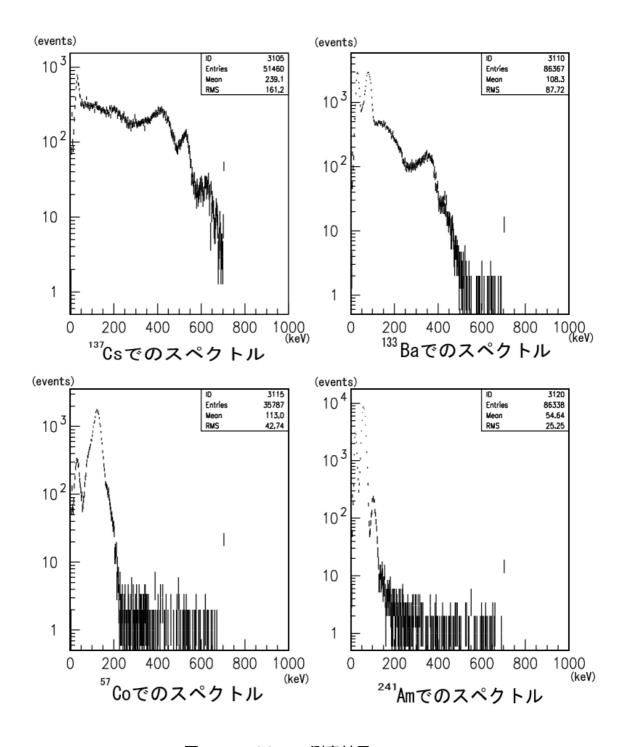


図 3.13: YSO での測定結果

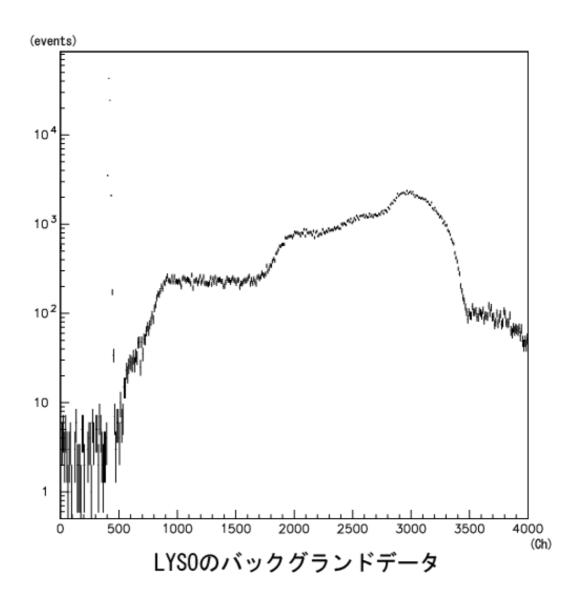


図 3.14: LYSO でのバックグラウンド測定結果

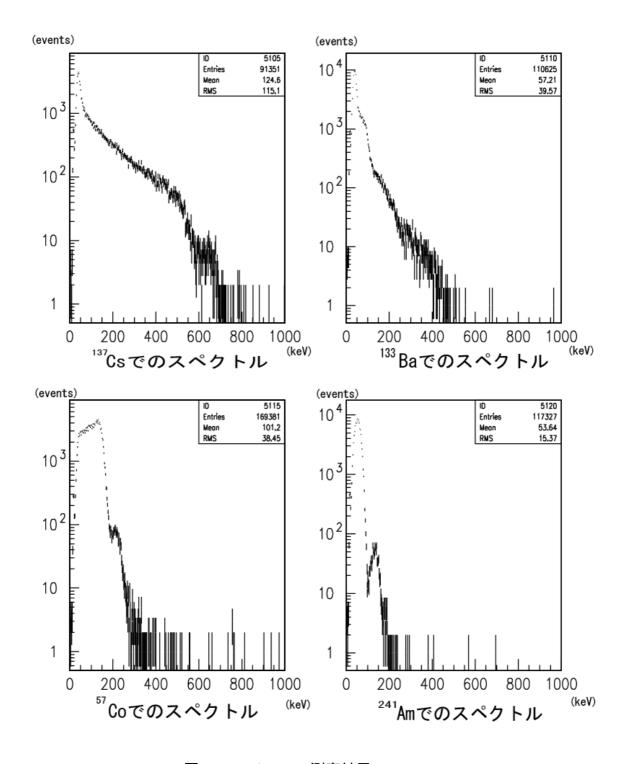


図 3.15: YAP での測定結果

この測定結果より,YAPでは $^{137}Cs(662keV)$, $^{133}Ba(81keV,356keV)$ でピークを確認できず,また LYSO は検出器として用いるにはバックグラウンドが多く、この段階で候補から外し、蒸着は行わなかった。そのため、CsI、BGO、YSO の 3 種類に蒸着を行った。

3.4 スパッタリング後の測定

3.4.1 スパッタリング後の変化

蒸着後は全てのシンチレーターで薄い黄色を帯びた薄膜が形成された。 しかし、CsI だけは軽く接触しただけでも、薄膜が剥離を起こしうまく蒸 着することができなかった。



図 3.16: 上段左:CsI 上段右:CsI 剥離の様子 下段左:BGO 下段右:YSO

3.4.2 膜厚計算

4時間の蒸着を行い、BGO と YSO の質量の増加を測定したところ、双方とも 6.0 mg の質量増加があった。これを前述の化学天秤法を用いて計

算すると、 $1.68\mu m$ の膜厚が蒸着されたことになる。質量増加も膜厚も目標値に達しなかった。

3.4.3 スパッタリング後の γ 線源への応答

スパッタリング後にBGOとYSOの結晶で改めて測定を行った。光電面への接着は,スパッタリング時にベルジャー内のステージに面し,スパッタリングされていない面を接着した。

YSOは蒸着後にピークを観測することはできなかった。

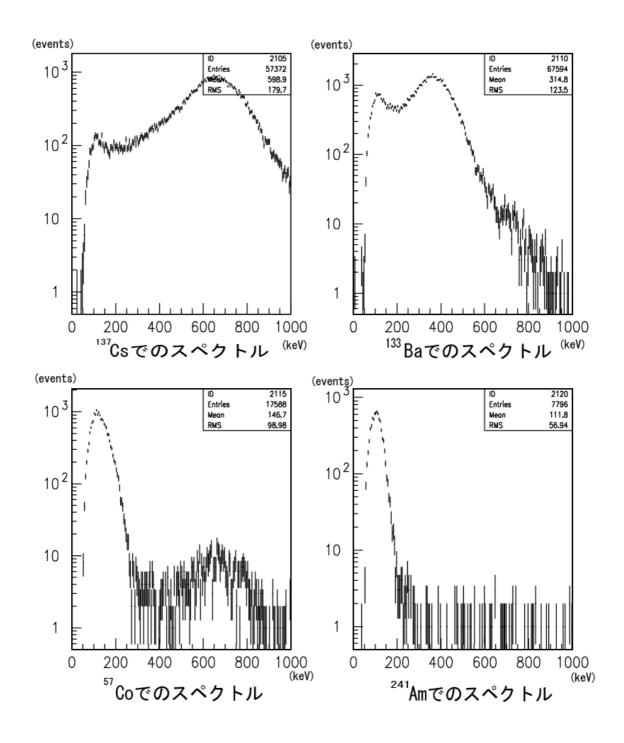


図 3.17: BGO で蒸着後の測定結果

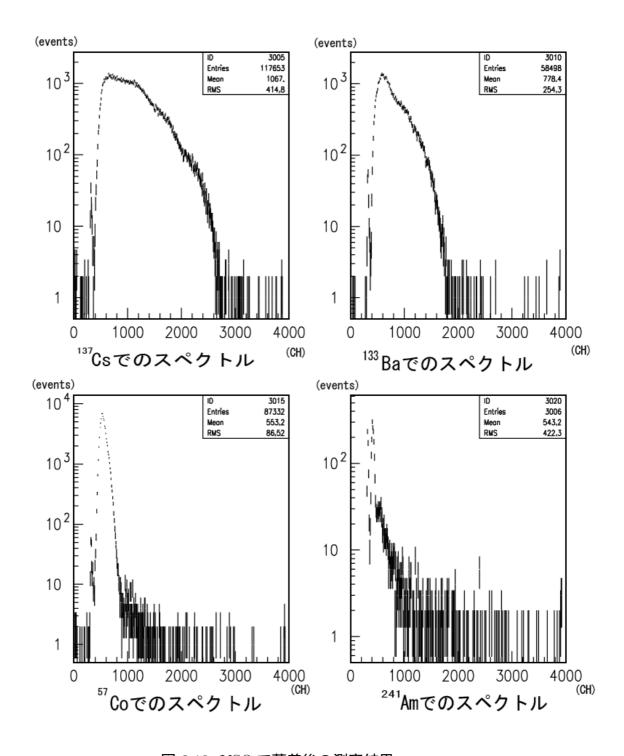


図 3.18: YSO で蒸着後の測定結果

エネルギー (keV)	122	356	662
蒸着前	33.2	31.3	21.3
蒸着後	57.9	50	36.5

表 3.1: BGO 蒸着前後のエネルギー分解能の変化

3.4.4 スパッタリング前後の分解能比較

BGOの蒸着前後でのエネルギー分解能の変化を上に示す。

第4章 考察

蒸着後のBGOでは光量の低下と分解能の悪化が見られた。これは、黄色い薄膜により、光電子増倍管で読み出す波長が長波長側に移動し、量子効率が低下したため、光量の低下に影響したと考えられる。

以下に、分解能の低下が光量の低下によってのみ引き起こされたものなのかを解析したグラフを示す。

このグラフから、分解能の悪化は光量の低下以外にも影響を及ぼす要 因があると考えられる。

透明薄膜に関して、(株)日東電工が特許として、特開2002-371355(P2002-371355A)で、Arガス中でのITOスパッタリングにおいて黄ばみが少なく、短波長側で透過率の高い、透明薄膜の製造方法を確立している。それと同時に、蒸着後の薄膜が黄色を帯びるのは、薄膜中のアルゴン原子含有量に関係しているとも報告している。そのため、他のXeやKr等の不活性ガスでは透明薄膜が製造されるかどうかを確認する必要がある。

ただし、BGOをシンチレーターとして使用する場合、以下のグラフに示すように、冷却によって発光量が増加するため、液体窒素などで冷却することで低下分を補える可能性も残されている。BGOは-100 で20 と比べ、発光量が2.5倍になる。

また、CsI でのみ、薄膜の剥離が生じたのは、熱膨張係数の違いによる可能性が考えられる。CsI の熱膨張係数が $50 \times 10^{-6}/$ であるのに対して、ITO は $7.2 \times 10^{-6}/$ 、BGO は $7.15 \times 10^{-6}/$ 、YAP は $2 \times 10^{-6}/$ である。熱膨張係数の差が大きかったために、加熱、冷却による膨張、収縮の際に応力が生じ、剥離が起きたのではないかと考えられる。

また、YAPでピークを観測できなかったのは、形状によるものだと考えられる。東京大学素粒子センターの片岡洋介氏が $5cm \times 5cm \times 3.3cm$ の結晶でスペクトルを観測済みである。(http://fphy.hep.okayama-u.ac.jp/lennon/kouenn/060612.pdf) 加えて、LYSO でバックグラウンドが多く観測されるのは、 $^{176}_{71}Lu$ の崩壊が影響し、その過程で複数の γ 線が放出されるためと考えられる。

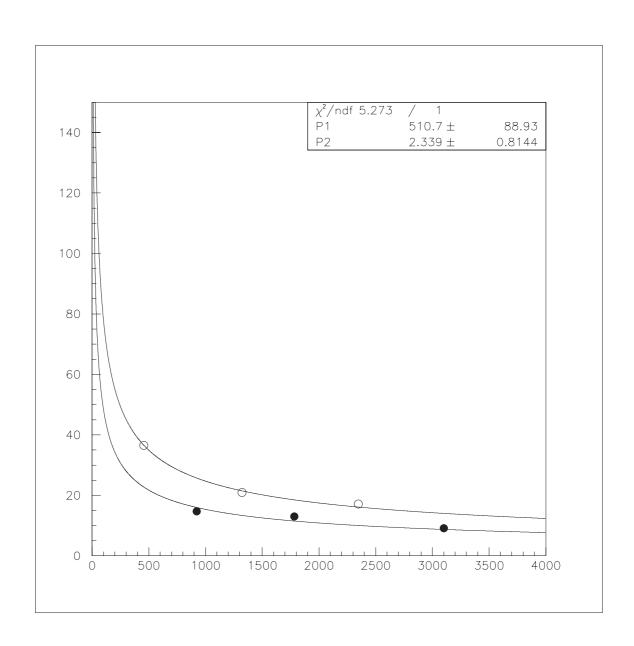


図 4.1: 分解能悪化が光量低下のみにより引き起こされるものなのかの解析

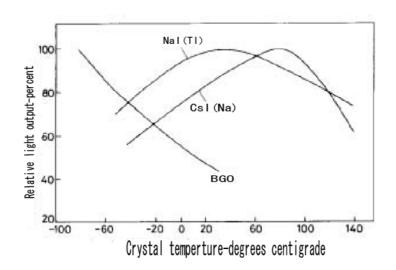


図 4.2: 冷却による B G O の発光量変化

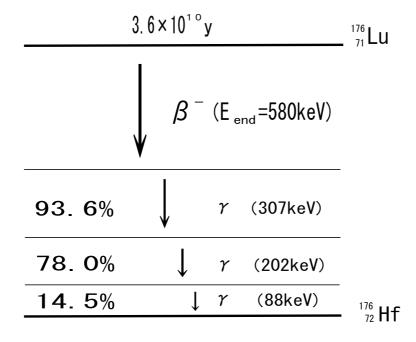


図 4.3: Lu の崩壊過程

第5章 結論

今回用意した 5 種類のシンチレーターの中では B G O が酸化インジウムの蒸着に一番適しているようだが、目標とする膜厚 1 0 μm は蒸着できなかった。

また、薄膜の黄ばみは、薄膜中のアルゴン原子含有量に関係する。蒸着による光量の低下はBGOを使用する場合、BGOを冷却することによって発光量を増加させ、補える可能性がある。

YAPは今回使用した形状ではピークの観測ができなかったが、立方体状のものを使用することでピークを観測することができるという報告もあるため、酸化インジウムを蒸着したシンチレーターとして適しているかどうかは今回の研究では判断できなかった。

関連図書

- [1] 小田稔 著 「宇宙線」裳華房 1972
- [2] 黒澤和晃 学位論文 2006
- [3] 佐藤哲也 学位論文 2004
- [4] 川崎雅祐 著 「謎のニュートリノ」丸善書店 1996
- [5] R.V.Stuart 著 毛利衛 数坂昭夫 共訳 「入門 真空・薄膜・スパッタリング」 技報堂出版株式会社 1991
- [6] 金原粲 著 「薄膜の基本技術 [第2版]」 東京大学出版 舎 2002
- [7] 李正中 著 (株)アルバック 訳 「光学薄膜と成膜技術」 アグネ技術センター 2005
- [8] 武田ゆき子 学位論文 1992
- [9] Nuc1.Instr.and meth. A 547(2005)368-388
- [10] hep-ex/0106054
- [11] William J.Price 著 関口晃 訳 「放射線計測」 コロナ社 1968

- [12] K. クラインクネヒト 著 高橋嘉右・吉城肇 共訳 「粒子線検出器-放射線計測の基礎と応用-」 培風館 1987
- [13] 大阪市立大学理学部物理学科実験教育ワーキンググループ 編「物理学実験 -第3版-」東京教学社 2000
- [14] 高田健次郎 著 「わかりやすい量子力学入門 原子の世界の謎を解く」 丸善株式会社
- [15] 河田燕 著 「放射線計測技術」 東京大学出版会
- [16] http://tabletop.icepp.s.u-tokyo.ac.jp/oPs-CP/25aSH-4-tomishima.pdf
- [17] http://www.awa.tohoku.ac.jp/KamLAND/physics/kamland.html
- [18] http://www.awa.tohoku.ac.jp/KamLAND/publications/0406035.pdf
- [19] (株) 浜松ホトニクス 光電子増倍管カタログ
- [20] http://www.resceu.s.u-tokyo.ac.jp/symposium/daigakukagaku/suzuki.pdf

謝辞

本論文作成にあたり、ご指導下さった福田善之先生には、実験の研究テーマの設定から論文の推敲まで全てにおいて大変お世話になりました。実験がなかなか進まず、論文の作成も遅くなってしまいましたが、先生の親身な指導のおかげで最後まで投げ出さずに完成させることができました。

実験や論文の作成にあたり、先生からは物理的なものの見方や考え方の重要性を学ぶと共に、自分の考えの浅さを認識することができ、大変勉強になりました。本当にありがとうございました。また、千葉芳明先生には蒸着装置の使用に関して多くの助言を頂きました。ありがとうございました。

同研究室の佐藤哲也さん、黒澤和晃さん、神永友輔くん、三宅悠子さんには実験方法から論文の作成まで多くのことを教えて頂きました。また、境原周太郎くんには実験の準備や蒸着を手伝ってもらい、多くの方の協力で完成させることができました。ありがとうございました。