

酸化インジウムを蒸着した
固体シンチレーターの改善

宮城教育大学教育学部学校教育教員養成課程
理科教育専攻
D7161 境原周太郎

2009年2月9日

概要

インジウムはニュートリノ捕獲に必要なニュートリノエネルギーの閾値が低いという特徴をもつ。そのため $pp/{}^7\text{Be}$ ニュートリノといった太陽ニュートリノを観測できると期待されているが、大型の検出器を製作するにはコストの問題が未解決である。そこで、安価に入手可能である酸化インジウムを用いて、固体無機シンチレーターに酸化インジウム薄膜を蒸着し、光電子増倍管で読み出す検出器を製作した。しかし、酸化インジウム膜の透過率が低く、光量の低下や分解能の悪化が問題となっている。

本研究では、シンチレーションの吸収の少ないシンチレーターの選定、酸化インジウム膜中のアルゴン量の低減および反応性スパッタリング法による透過率の向上による改善を行った。その結果、酸素を導入した反応性スパッタリングによる透過率の向上はほとんど得られなかった。また、分光器による各波長での酸化インジウムの透過率測定から長い波長領域で高い透過率を得やすいことがわかった。したがって CsI や YAG といった長い発光波長のシンチレーターを用いることが有効であるという結論を得た。

目次

第1章	低エネルギー太陽ニュートリノの観測	2
1.1	ニュートリノとは	2
1.1.1	太陽ニュートリノ	2
1.1.2	ニュートリノ振動	4
1.1.3	太陽ニュートリノの観測	5
1.2	pp/ ⁷ Be ニュートリノの観測とインジウムによる太陽ニュートリノ実験	6
1.2.1	pp/ ⁷ Be ニュートリノ測定	6
1.2.2	インジウムを用いた測定原理	8
1.3	インジウムを用いたニュートリノ観測実験	9
1.4	本研究の目的	10
第2章	検出器の改善のための方法	11
2.1	膜中アルゴン量の低減	11
2.2	反応性スパッタリング法によるITO成膜	11
2.2.1	反応性スパッタリング法	11
2.2.2	スパッタリング装置セットアップ	12
2.2.3	装置の操作	13
2.3	検出器に適するシンチレーターの選定	15
2.3.1	使用する結晶	15
第3章	透過率の測定	17
3.1	シンチレーターを用いた透過率の測定	17
3.1.1	測定ロジック	17
3.1.2	光電子増倍管	17
3.1.3	酸化インジウム蒸着ガラスの作製	18
3.1.4	各シンチレーターのスペクトルによる透過率測定	20
3.2	分光器による透過率測定	28
3.2.1	セットアップ	28
3.2.2	各波長における透過率の測定結果	29
第4章	考察	34
第5章	結論	35

第1章 低エネルギー太陽ニュートリノの観測

1.1 ニュートリノとは

ニュートリノは1930年代初めに W.Pauli によって理論的に予言され、1950年代の半ばに F.Reines と C.Cowan によって、その存在が実証された素粒子である。ニュートリノは、レプトン族の素粒子であり、種類は同じレプトン族の 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。

1.1.1 太陽ニュートリノ

太陽内部で起こっている主要な反応は pp 連鎖と呼ばれる一連の反応であり、そのほかに、CNO サイクルと呼ばれる反応がある。pp 連鎖反応のうち5過程からニュートリノが生成され、それぞれ pp ニュートリノ, pep ニュートリノ, ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ, ${}^8\text{B}$ ニュートリノ, hep ニュートリノと呼ばれている。

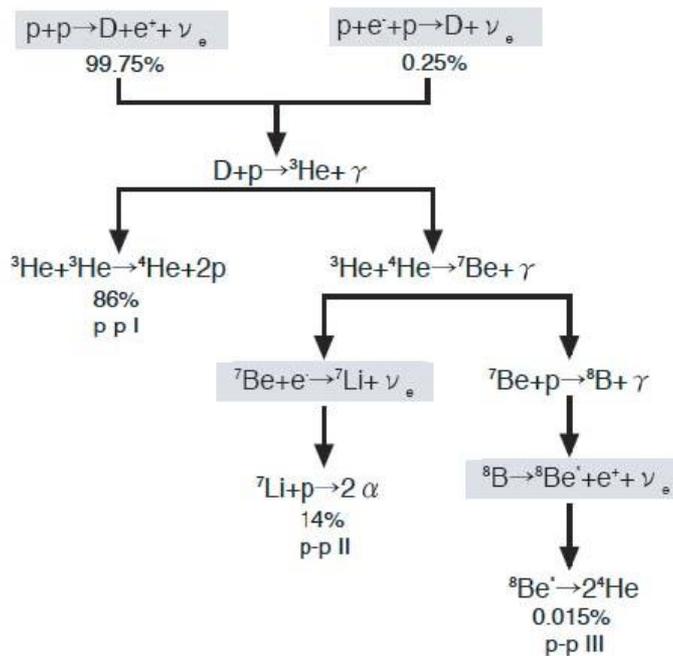


図 1.1: pp 連鎖反応

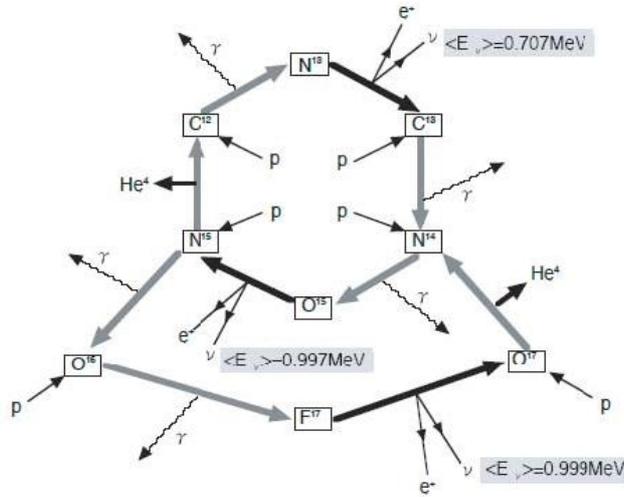


図 1.2: CNO サイクル

また、各ニュートリノの地球での強度は標準太陽モデル (SSM) から計算され、それぞれ

$$pp : 6.0 \times 10^{10} (\pm 1\%) / \text{cm}^2 / \text{s} \quad (1.1)$$

$${}^7\text{Be} : 4.8 \times 10^9 (\pm 1\%) / \text{cm}^2 / \text{s} \quad (1.2)$$

$$pep : 1.4 \times 10^8 (\pm 15\%) / \text{cm}^2 / \text{s} \quad (1.3)$$

$${}^8\text{B} : 5.05 \times 10^6 (\pm 20\% / -16\%) / \text{cm}^2 / \text{s} \quad (1.4)$$

$$hep : 9.34 \times 10^9 (\pm 1\%) / \text{cm}^2 / \text{s} \quad (1.5)$$

であり、ニュートリノの総強度は $6.6 \times 10^{10} / \text{cm}^2 / \text{s}$ となる。

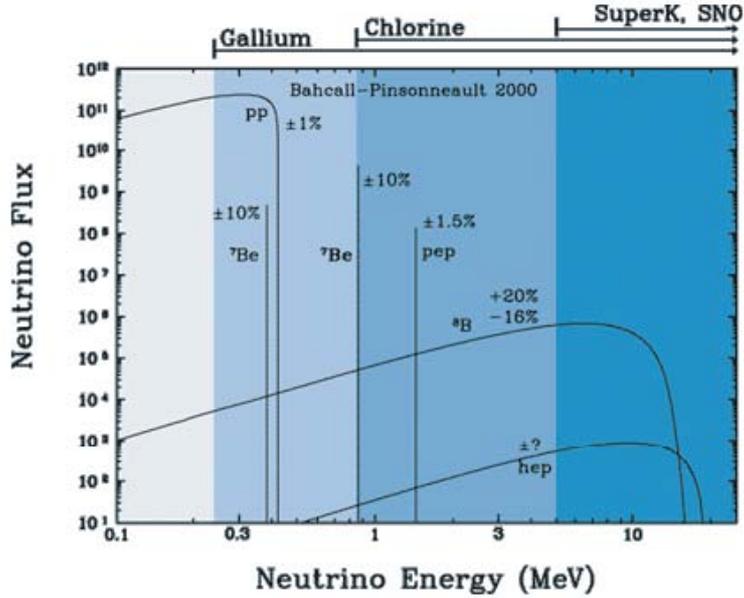


図 1.3: 標準モデルが予測するニュートリノエネルギーと強度

1.1.2 ニュートリノ振動

ニュートリノ振動は、スーパーカミオカンデの大気ニュートリノ観測により発見された。大気ニュートリノとは、宇宙線が大気中に飛来するとそこで相互作用し、その結果生成される電子ニュートリノ、またはミューニュートリノのことである。大気ニュートリノのフラックスは GeV 領域以上では上下対称性を示さずであり、この特性は 1 次宇宙線のフラックスや大気での核反応の詳細によらず数%の精度を持つ。しかし、ニュートリノ事象の天頂角分布を調べると、上向きミューニュートリノの欠損が確認され、その事象数は下向きの半分であった。この大気ニュートリノ異常は、 $\nu_e \rightarrow \nu_\tau$ のニュートリノ振動によって引き起こされていることが明らかになった。ニュートリノ振動の確率は、

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

で与えられる。 θ_{23} 、 Δm_{23}^2 はそれぞれ第 2、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様々なエネルギーを持つので (1.9) 式をエネルギーで平均すると、ニュートリノ振動の確率は、

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\tau) = \sin^2(2\theta_{23})/2 \quad (1.7)$$

となる。下向きの大気ニュートリノは上空 20km 程度でき、上向きは地球の裏側 1000km 彼方で作られる。上向き ÷ 下向きの観測地が期待値のほぼ 1/2 ということから、混合角 $\sin^2(2\theta_{23})$ が最大値 1 をとることを意味する。また、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角度から決定することができ、

$$\sin^2(2\theta_{23}) = 0.92 - 1.0 \quad (1.8)$$

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

である。

また、太陽ニュートリノ振動の確実な証拠はSKのデータとSNOの荷電カレント反応によるデータを比較することにより示された。SNOの荷電カレント反応は ν_e のみしか捕らえることができないが、SKの電子散乱は ν_μ, ν_τ の寄与がある。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り測定した強度より約34%大きかった。これは ν_e が ν_μ, ν_τ に変わってしまったことが原因であるといえる。また、SNOの中性カレント反応は全ニュートリノ強度を計測しており、太陽ニュートリノが ν_μ, ν_τ に変わってしまったことを示唆している。このように、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振動パラメーターを決定したわけではない。

1.1.3 太陽ニュートリノの観測

1. Davisの実験

太陽ニュートリノ観測はR.Davisらが1968年に開始した塩素を用いた実験に始まる。この実験は、615トンの4塩化エチレンを入れたタンクの中で、太陽ニュートリノと塩素の反応



で生じるアルゴン原子を数ヶ月に一度回収し、その数を数える。この手法は放射化学法と呼ばれ、あるエネルギー閾値以上のニュートリノの積分強度を測定する。(1.13)の反応の場合、電子ニュートリノが0.814MeV以上のエネルギーをもつ必要があり、そのため検出できるのは主として ${}^8\text{Be}$ ニュートリノである。R.Davisらは、観測されたニュートリノ強度が標準太陽モデルの予想値に比べて1/3から1/4しかないという太陽ニュートリノ問題を提起した。

2. 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1000mに位置する水チェレンコフ検出器である。全容積50,000トンの水タンク内には、11,146本の直径50cm光電子増倍管が取り付けられている。水中のニュートリノ反応によって生成された荷電粒子が発するチェレンコフ光のシグナルを光電子増倍管で増幅し、その光のパターン、光量、到達時間を測定することにより事象のエネルギー、反応点、進行方向、粒子の種類を再構築している。SKではニュートリノと電子の弾性散乱を用いて ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノを捕らえる。



ニュートリノと電子の散乱では、 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には、チェレンコフ光を放出する。チェレンコフ光は、水の屈折率を $n(=1.33)$ 、粒子の速度を β とすると粒子の進行方向に対して $\cos^{-1}(1/n\beta)$ の角度で円錐状に放出される。

SKは1996年4月から2001年7月までに1,496日分のデータを取得した。この間に

観測した太陽ニュートリノの数は約 22,400 にのぼり、ニュートリノ強度 ϕ に焼き直すと、

$$\phi_{SK} = (2.35 \pm 0.02(stat.) \pm 0.08(sys.)) \times 10^6/cm^2/s \quad (1.12)$$

となり、これは太陽標準モデルの約 40.6 %にあたる。

3. KamLAND 実験

KamLAND 検出器は、中央部に 1,000 トン液体シンチレーターが、透明のナイロン膜で作られた直径 13m のバルーンを満たしている。液体シンチレーターの入ったバルーンは、直径 18m の球形ステンレス製タンクの中に吊るされている。タンク内壁には 1,325 本の 17 インチ光電子増倍管と、耐油構造を施したカミオカンデの旧型の 20 インチ光電子増倍管 554 本がほぼ全面を覆っている。

KamLAND の主な研究目的は柏崎や敦賀にある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。2002 年 1 月から実験を開始し、神岡周辺の原子力発電所から飛来する原子炉反電子ニュートリノの測定を継続した。そして、3 月 3 日から 10 月 6 日までのデータを用いた解析によって、エネルギー 3.4MeV 以上の原子炉反電子ニュートリノ検出数と予測数の比: 0.611 ± 0.085 (統計誤差) ± 0.041 (系統誤差) が得られた。この解析結果は、99.95% の信頼度で原子炉反電子ニュートリノが走行中に消失したことを示すものである。

このニュートリノ消失現象が振動によるものだとすると、ニュートリノ消失量から得られる 95% 信頼度での振動パラメータの許容、禁止領域から、太陽ニュートリノ振動解として大混合角解のみが許容されることになる。ニュートリノ消失量とエネルギー分布を用いると、大混合角解はさらに制限される。また、データを良く再現するパラメータの最適値は、 $\Delta m^2=6.9 \times 10^{-5}eV^2$, $\sin^2 2\theta=1.01$ である。この値は、太陽ニュートリノ振動解の最適値 $\Delta m^2=5.5 \times 10^{-5}eV^2$, $\sin^2 2\theta=0.833$ と矛盾せず、原子炉ニュートリノ消失現象と太陽ニュートリノ欠損が、ともにニュートリノ振動に起因することを示唆する。

1.2 pp/⁷Be ニュートリノの観測とインジウムによる太陽ニュートリノ実験

1.2.1 pp/⁷Be ニュートリノ測定

SK は 2001 年に発表された SNO の荷電カレントによる観測結果と総合し、太陽ニュートリノ問題の解がニュートリノ振動であることを証明した。全ての太陽ニュートリノ実験より得られたニュートリノ振動パラメーターを以下に示す。

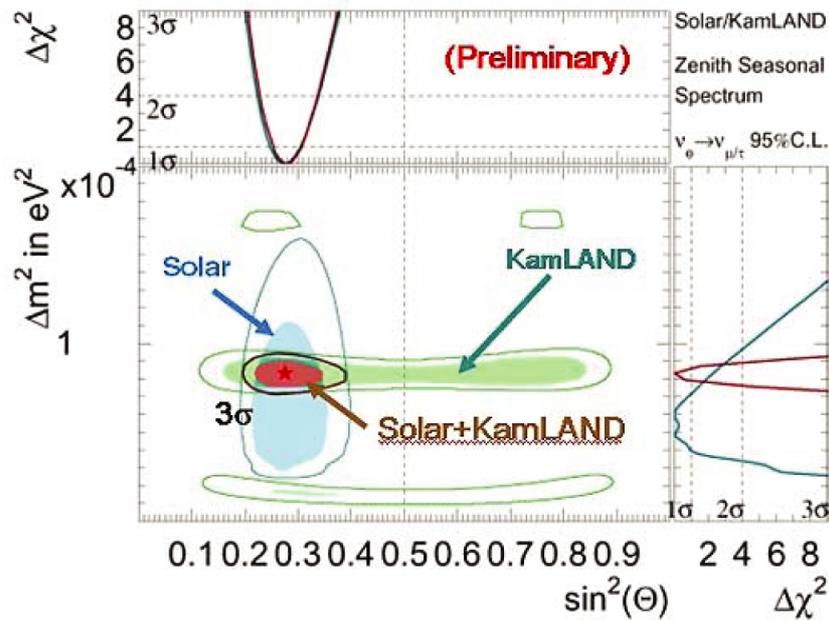


図 1.4: ニュートリノパラメーター領域

混合角 θ_{12} の実験的に得られる範囲は 27-37 度となっている。電子ニュートリノ振動における混合角 θ_{12} の精密測定には、pp サイクル初期過程で生成される pp 及び ${}^7\text{Be}$ ニュートリノフラックスやエネルギー分布を正確に測定することが求められる。しかしこれらのニュートリノはエネルギーが 1MeV 以下と低いため、技術的な問題だけでなく自然バックグラウンドが大量に存在することにより測定が困難である。現在尤もらしい LMA 解では 5MeV 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。よって pp, ${}^7\text{Be}$ ニュートリノのフラックス及びエネルギー分布を測定できる実験が求められている。

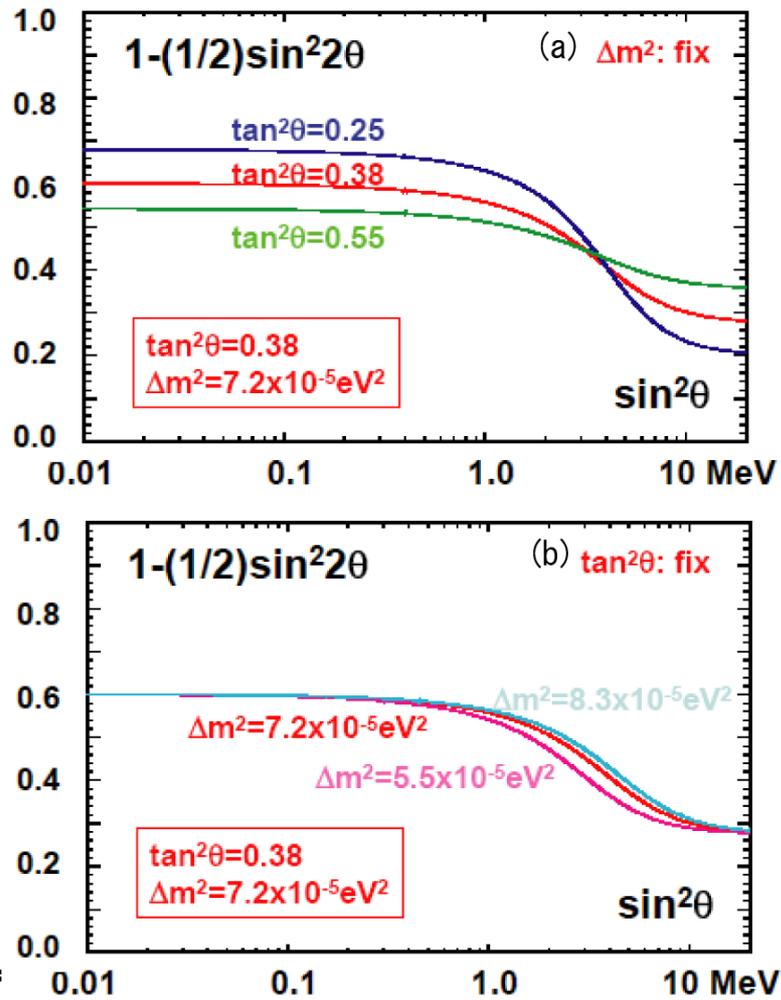


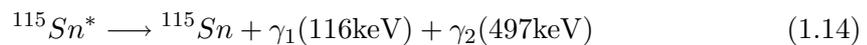
図 1.5: ニュートリノパラメーター領域

1.2.2 インジウムを用いた測定原理

1976年, R.Raghavan はインジウムによる $pp/{}^7\text{Be}$ ニュートリノを検出する原理を発表した。これはインジウム (${}^{115}\text{In}$) 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る。



捕獲後の Sn は励起状態にあり, 半減期 $3.26\mu\text{s}$ 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 のガンマ線は約 50 % の確率で内部転換を起こし, 90keV の電子と特性 X 線を放出する。

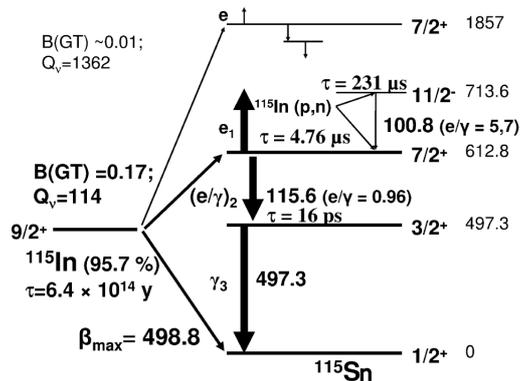


図 1.6: ^{115}In の崩壊様式

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エネルギー閾値が 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。

$$E_{\nu_e} \longrightarrow E_{e^-} + 128\text{keV} \quad (1.15)$$

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 μs 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} 年でベータ崩壊を起こし 498keV のガンマ線を放出するため、複数の制動放射線を信号と誤る可能性がある。

1.3 インジウムを用いたニュートリノ観測実験

1. LENS

インジウムを溶かし込んだ液体シンチレーターを用いて、太陽ニュートリノ散乱の特徴的な反応である遅延 γ 、 β 線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。

2. InP 半導体検出器

新たな放射線検出器の素材として注目されている InP 半導体検出器を用いる。検出の原理は、 γ 線入射による光電効果やコンプトン散乱によって電子が弾き飛ばされる。電子は検出器内でエネルギーを損失し、電子-正孔対を生成する。それらの電子・正孔が陽極と陰極に引かれていき、それを電気信号として取り出す。

3. 酸化インジウムを蒸着した固体シンチレーター検出器

固体シンチレーターに酸化インジウム薄膜を蒸着し、シンチレーション光を光電子増倍管で読み出す。酸化インジウム薄膜は、スパッタリング法により成膜する。

1.4 本研究の目的

酸化インジウムを蒸着した固体シンチレーター検出器の最大の問題は、酸化インジウム薄膜によるシンチレーション光の吸収である。本研究では、透過率の向上と吸収の少ないシンチレーターを選ぶことで改善について考える。

第2章 検出器の改善のための方法

2.1 膜中アルゴン量の低減

スパッタリング法では、スパッタリングガスとしてアルゴンを用いる。高エネルギーでターゲットに衝突したアルゴンはイオンは電子を受け取り、中性になると同時に反跳原子として高エネルギーで基板上に衝突する。

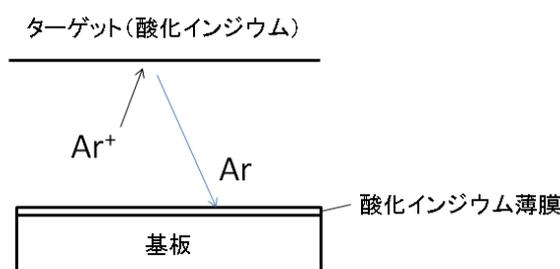


図 2.1: アルゴンの反跳

インジウムはアルゴンよりも原子量が大きいため、この現象が顕著に起こる。アルゴン原子が膜中に存在すると、格子欠陥となり 380 ~ 450nm の短波長領域で透過の低い薄膜となってしまう。酸化インジウム薄膜に入射するアルゴン反跳原子を低減する方法として、スパッタリング時の圧力を高くし、粒子間の衝突回数を増やしてエネルギーが小さくする方法が考えられる。

2.2 反応性スパッタリング法による ITO 成膜

2.2.1 反応性スパッタリング法

スパッタリングでは、イオンによる衝撃でターゲットとなる固体原子を弾き出し、これらの原子を基板上に付着させることで薄膜を形成する。しかし、酸化インジウムのような化合物薄膜を作製するために、酸化インジウムをそのままターゲットとして用いることには問題がある。それは、ターゲットを構成する原子のスパッタリング率が異なるため、化合物をそのままターゲットにしても同じ組成をもつ薄膜が形成されないということである。酸化インジウムのような酸化物の場合、スパッタリングによって原子、分子に分解され、基板に到達した酸素の原子や分子が基板に付着せずに再蒸発してしまうことがある。そのため酸化物は概して酸素欠損になる。

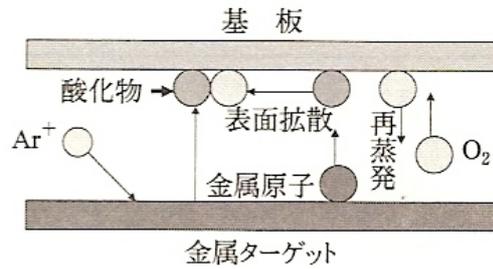


図 2.2: 反応性スパッタリングによる酸化物薄膜形成のモデル

この問題を解決するために、放電ガスの中に酸素を入れてスパッタリングを起こさせ、基板の上でターゲットのからの原子と放電ガスからの原子を結合させて化合物薄膜を作る。この方法を反応性スパッタリング (reactive sputtering) 法という。

2.2.2 スパッタリング装置セットアップ

スパッタリング装置は (株) サンヨー電子製 SVC-700 を用いた。

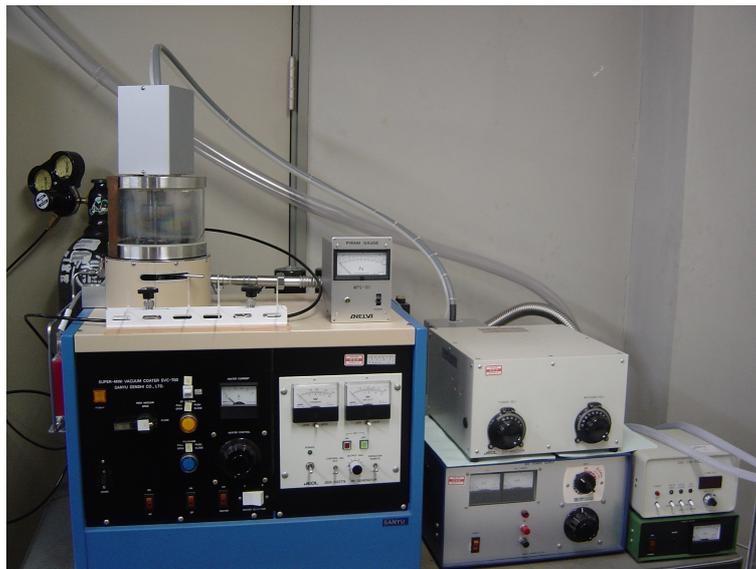


図 2.3: 装置概観

SVC-700 は高周波 (RF) スパッタリングが可能であり、電子を高周波電界により電極間を往復させることでアルゴンを効率よくイオン化する。以下に一般的な RF スパッタリング装置の構造を示す。

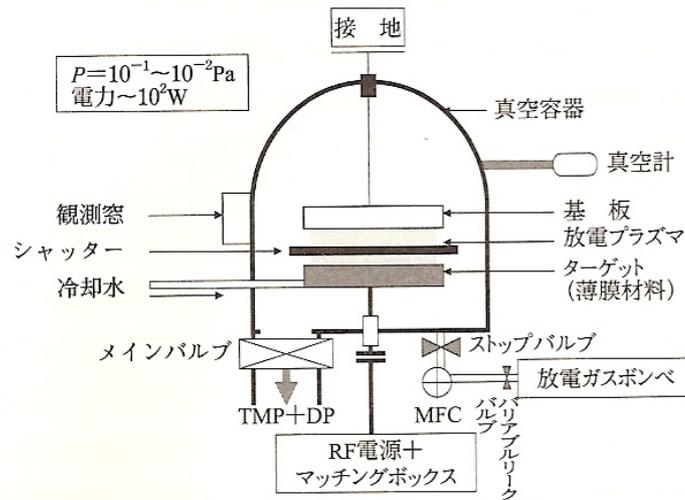


図 2.4: RF スパッタリング装置の例

低圧アルゴンガス中に置かれた二つの電極間に 50kHz 以上の高周波電場を加えると、ガス中に存在するわずかな電子が高周波電場によってエネルギーを与えられ加速し、アルゴン分子と衝突する。衝突されたアルゴン分子は電子を放出しイオン化する。放出された電子も同様に加速され、ほかのアルゴン分子を電離しイオンを生成する。この繰り返しの中で放電が起こり、生じたイオンがターゲット（酸化インジウム）に衝突し、スパッタリング現象が起こる。

本実験では、反応性スパッタリング法を行うため、酸素を混合可能な配管に変更した。

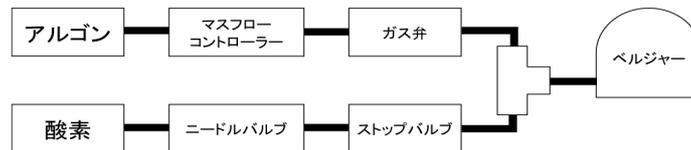


図 2.5: 酸素混合のための再配管

酸素ガスと装置の接続には $\phi 6\text{mm}$ のシフレックスチューブを使用している。アルゴンの分圧はマスフローコントローラーによって調節し、酸素の分圧はニードルバルブの開閉によって調節する。アルゴンと酸素は T 字のユニオンティー内で合流、混合されベルジャー内へと流れる。

始めにアルゴンのみを流し放電を起こし、アルゴンガス圧力の安定を確認した後、ニードルバルブを開け酸素を流す。このとき増加した圧力の値を酸素の分圧として用いる。

2.2.3 装置の操作

薄膜作製のために使用するスパッタリング装置 (SVC-700) の操作方法を記す。

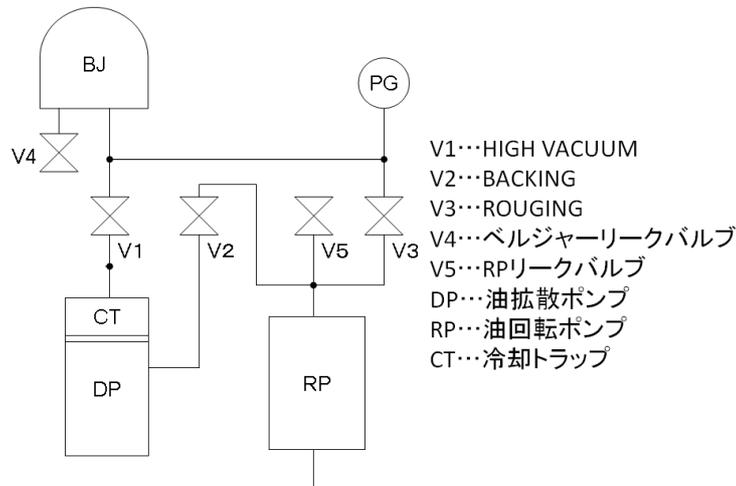


図 2.6: 装置排気系統図

まず、排気ホースが外に出ているのを確認し、冷却水を流す。RP、DP スイッチを ON、V2 を開け、DP が作動するまで 20～30 分待機する。アルゴン側は GAS CONTROLLER とベルジャー後方のガス弁を OPEN(ON) にし、酸素側はストップバルブを開ける。次に試料のセットを行う。V1 が CLOSE になっていることを確認し、V4 を開ける。ベルジャーを外し試料をセットする。再びベルジャーを元の位置にセットし、隙間がないことを確認する。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 $1.5 \times 10 \sim 2 \times 10 \text{ Pa}$ 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 3～5 にする。次に V1 を CLOSE に近付け、銀色のピラニゲージで $2 \sim 3 \text{ Pa}$ 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 7 Pa 前後を示すように調整する。 7 Pa 前後で安定したらニードルバルブを開け酸素を流す。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。ニードルバルブを閉め、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 20～30 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

源が切っているか確認した後、冷却水を止める。

2.3 検出器に適するシンチレーターの選定

2.3.1 使用する結晶

透過率と発光波長の相関を調べるため、以下の4種類のシンチレーターを用意した。形状は全て $1\text{cm} \times 1\text{cm} \times 1\text{cm}$ の立方体である。

1. YSO(Y_2SiO_5)
密度 $4.45\text{g}/\text{cm}^3$ 発光波長 420nm
蛍光減衰時間 40ns 発光量 (NaI 比) 30-45%
2. GYSO($\text{Gd}_2(0.8)\text{Y}(0.2)\text{SiO}_5$)
密度 $6.3\text{g}/\text{cm}^3$ 発光波長 437nm
蛍光減衰時間 61ns 発光量 (NaI 比) 30%
3. BGO($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$)
密度 $7.13\text{g}/\text{cm}^3$ 発光波長 480nm
蛍光減衰時間 300ns 発光量 (NaI 比) 12%
4. YAP(YAIO_3)
密度 $5.55\text{g}/\text{cm}^3$ 発光波長 347nm
蛍光減衰時間 28ns 発光量 (NaI 比) 40%
5. CsI(Tl) 密度 $4.53\text{g}/\text{cm}^3$ 発光波長 550nm
蛍光減衰時間 1050ns 発光量 (NaI 比) 45%

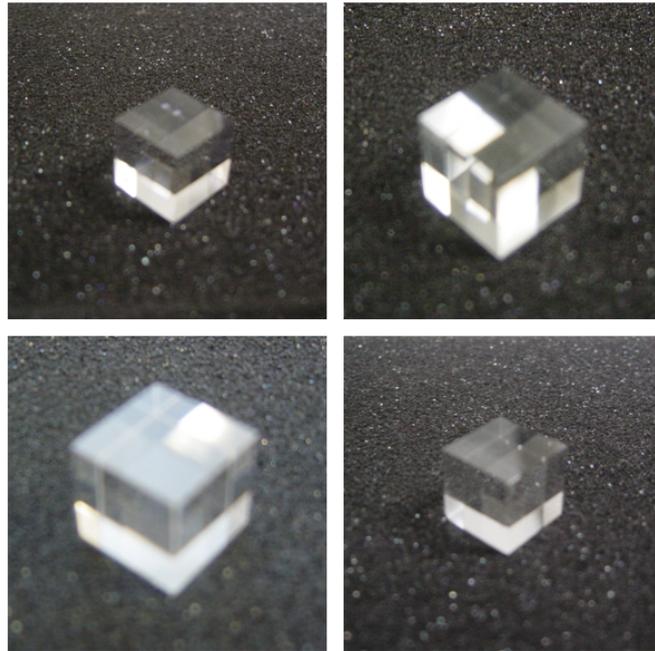


図 2.7: 左上:YSO 結晶, 右上:GYSO 結晶, 左下:BGO 結晶, 右下:YAP 結晶

これらの固体無機シンチレーターは、 γ 線検出器によく用いられるシンチレーターである。BGO,YSO,YAP はスパッタリングによる酸化インジウム薄膜の付着が確認されているため本研究で用いることとした。GYSO は、密度が大きく蛍光減衰時間も短いため選定した。CsI は、スパッタリング後の酸化インジウム薄膜の剥離が確認されているが、発光波長が 550nm と他のシンチレーターに比べ長いという特徴がある。そのため、酸化インジウム薄膜の波長による透過率の違いを調べるために使用する。

第3章 透過率の測定

3.1 シンチレーターを用いた透過率の測定

3.1.1 測定ロジック

以下に示すセットアップで測定を行った。ADCは荷電積分型である。

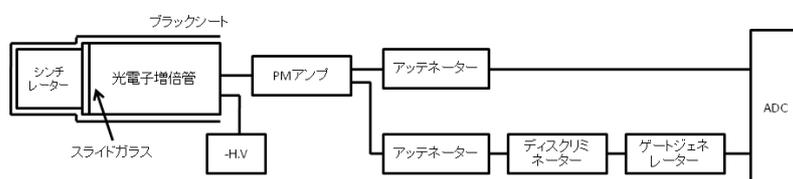


図 3.1: 論理回路

シンチレーターをアルミナイズドマイラで覆い、さらにその上から光電子増倍管とともにブラックシートで覆い遮光している。シンチレーターと光電子増倍管の間に蒸着ガラスを挟むことで、シンチレーション光の吸収が起きる。この光量の減少を測定することで、透過率を求める。なお、 γ 線源として ^{137}Cs (662keV)を用いる。

3.1.2 光電子増倍管

シンチレーション光は、光電子増倍管に到達すると光電面から光電子が放出され管内で増倍され、電気的パルスとして出力される。今回の測定では(株)浜松ホトニクス製のH3167を使用した。H3167の波長範囲は300-650nm、ゲインは 2.0×10^6 である。

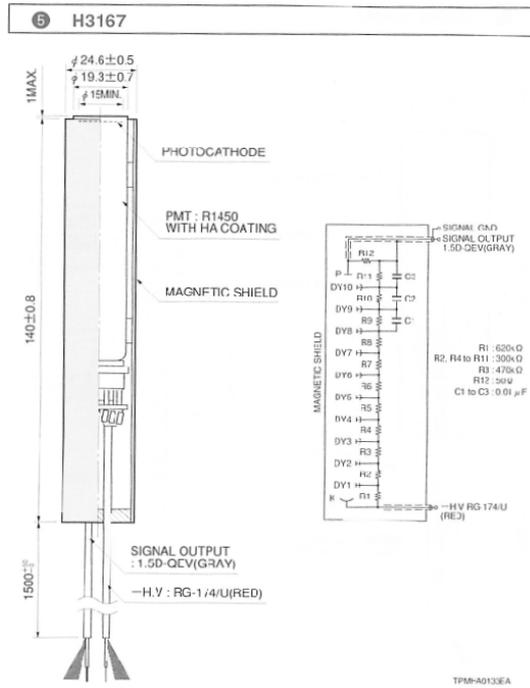


図 3.2: H3167 の仕様

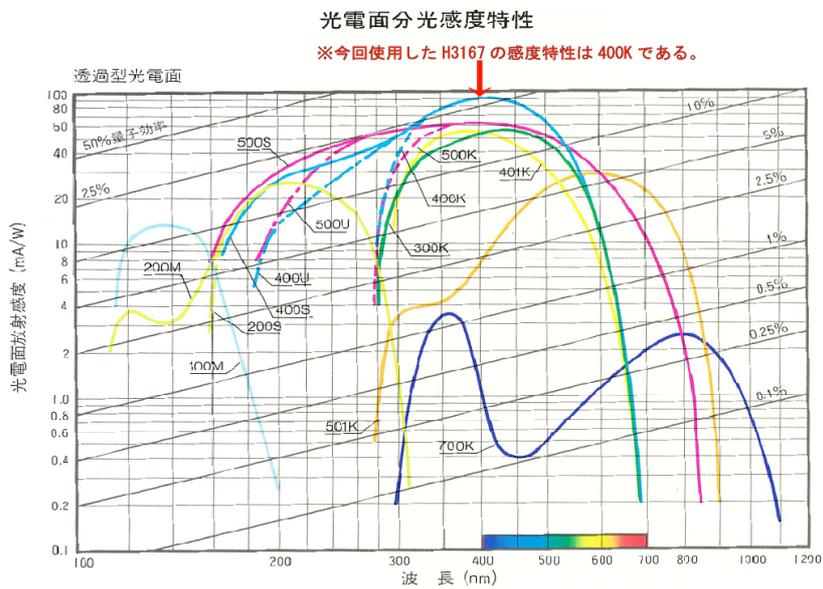


図 3.3: 光電子増倍管の光電面分光感度特性

3.1.3 酸化インジウム蒸着ガラスの作製

1.8mm × 1.8mm × 0.15mm のカバーガラスを 3 枚用意し、それぞれ成膜条件を変えてスパッタリングを行った。

1. アルゴン 7Pa 雰囲気下で 4.5 時間のスパッタリング
スパッタリングによる質量増加は 3.9mg であり，酸化インジウムの膜厚に換算すると 1.69 μm に相当する。

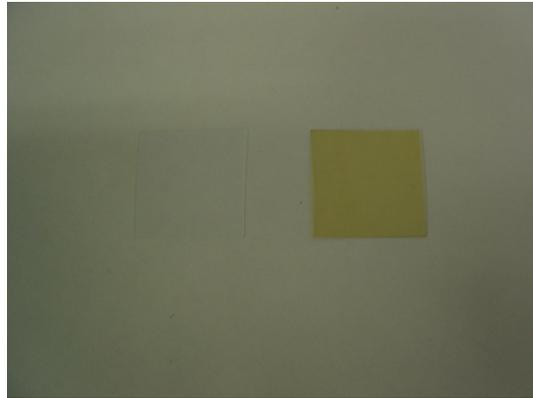


図 3.4: 左:未蒸着ガラス，右:1 により作製した蒸着ガラス

黄色を帯びた ITO 薄膜が形成された。

2. アルゴン 7Pa と酸素 1Pa 混合雰囲気下で 4.5 時間のスパッタリング
スパッタリングによる質量増加は 2.1mg であり，ITO の膜厚に換算すると 0.91 μm である。
3. 3 と膜厚の等しい酸化インジウム蒸着ガラス (アルゴン 7Pa 雰囲気下)
質量増加は 2.1mg であり，酸化インジウムの膜厚に換算すると 0.91 μm である。

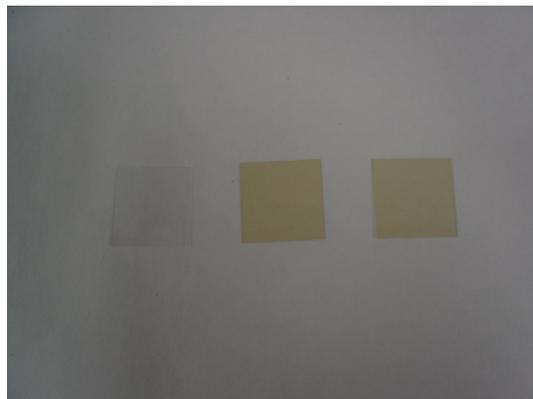


図 3.5: 左:未蒸着ガラス，中央:2 により作製した蒸着ガラス，右:3 により作製した蒸着ガラス

黄色を帯びた ITO 薄膜が形成された。見た目には，反応性スパッタ法で成膜した ITO 薄膜のほうがやや薄い黄色である。

4. アルゴン 7Pa 雰囲気下で 90 分のスパッタリング

スパッタリングによる質量増加は 4.2mg であり，酸化インジウムに膜圧に換算すると $0.44\mu\text{m}$ である。

5. アルゴン 1Pa 雰囲気下で 135 分のスパッタリング

スパッタリングによる質量増加は 4.0mg であり，酸化インジウムに膜圧に換算すると $0.43\mu\text{m}$ である。

4 と 5 のガラスは $2.78\text{cm} \times 4.80\text{cm} \times 0.1\text{cm}$ のスライドガラス上にスパッタリングを行った。



図 3.6: 左:4 により作製した蒸着ガラス，右:5 により作製した蒸着ガラス

見た目には，黄色の帯び具合はどちらも同じように見える。

1 と 3 を比較することで厚みによる透過率の違いを，2 と 3 を比較することで酸素導入による透過率への影響を調べることができる。また 4 と 5 を比較することでスパッタ時のアルゴン圧力の違いによる影響を調べることができる。

3.1.4 各シンチレーターのスペクトルによる透過率測定

$^{137}\text{Cs}(662\text{keV})$ からの各シンチレーターの測定結果を示す。左グラフは未蒸着ガラスを結晶と光電子増倍管の間に挟んだものであり，右グラフはの 1 の蒸着ガラスを挟んだものである。なお，ペDESTALの値は引いてある。

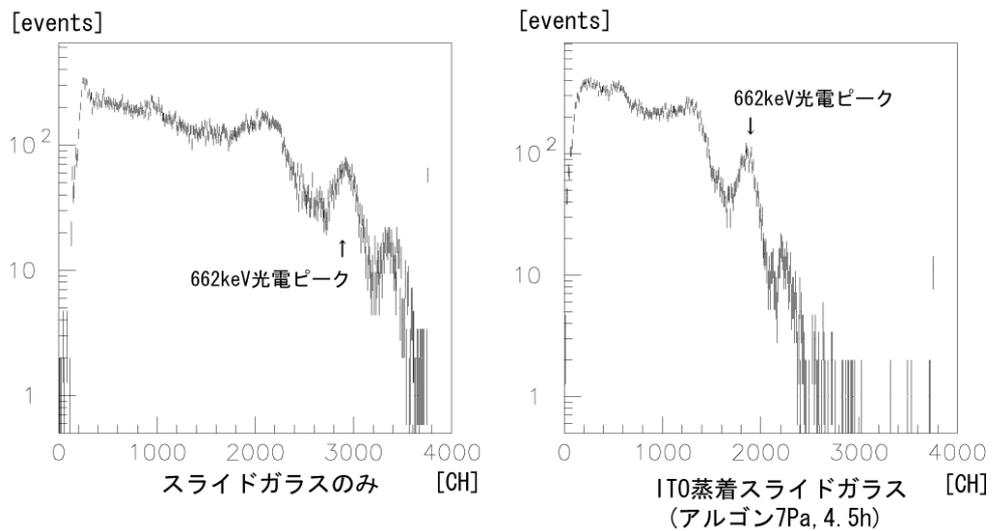


図 3.7: YSO 結晶における測定結果

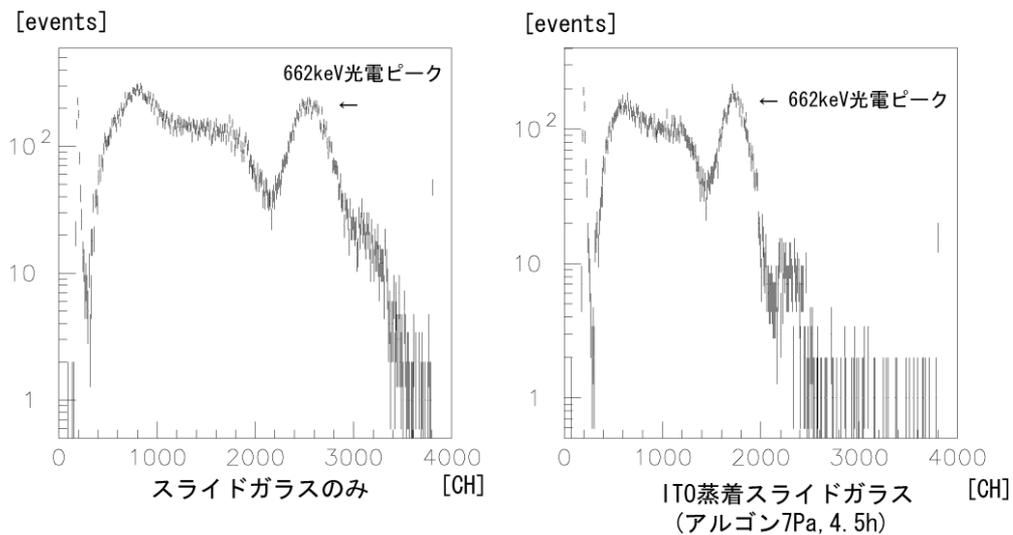


図 3.8: GYSO 結晶における測定結果

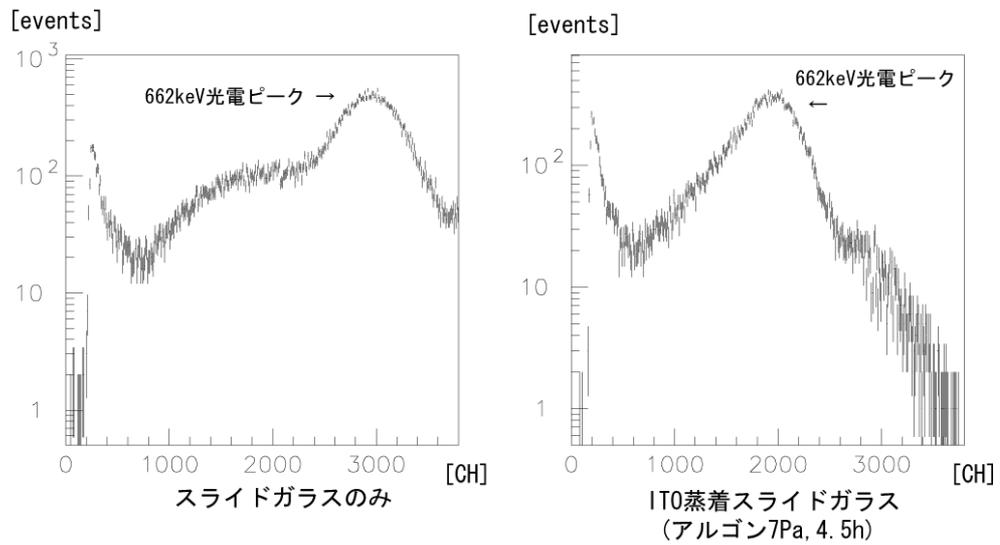


図 3.9: BGO 結晶における測定結果

(蒸着ガラスでのピークの値) ÷ (未蒸着ガラスでのピークの CH 値) × 100[%] を透過率として求めた。その結果をまとめたグラフを以下に示す。

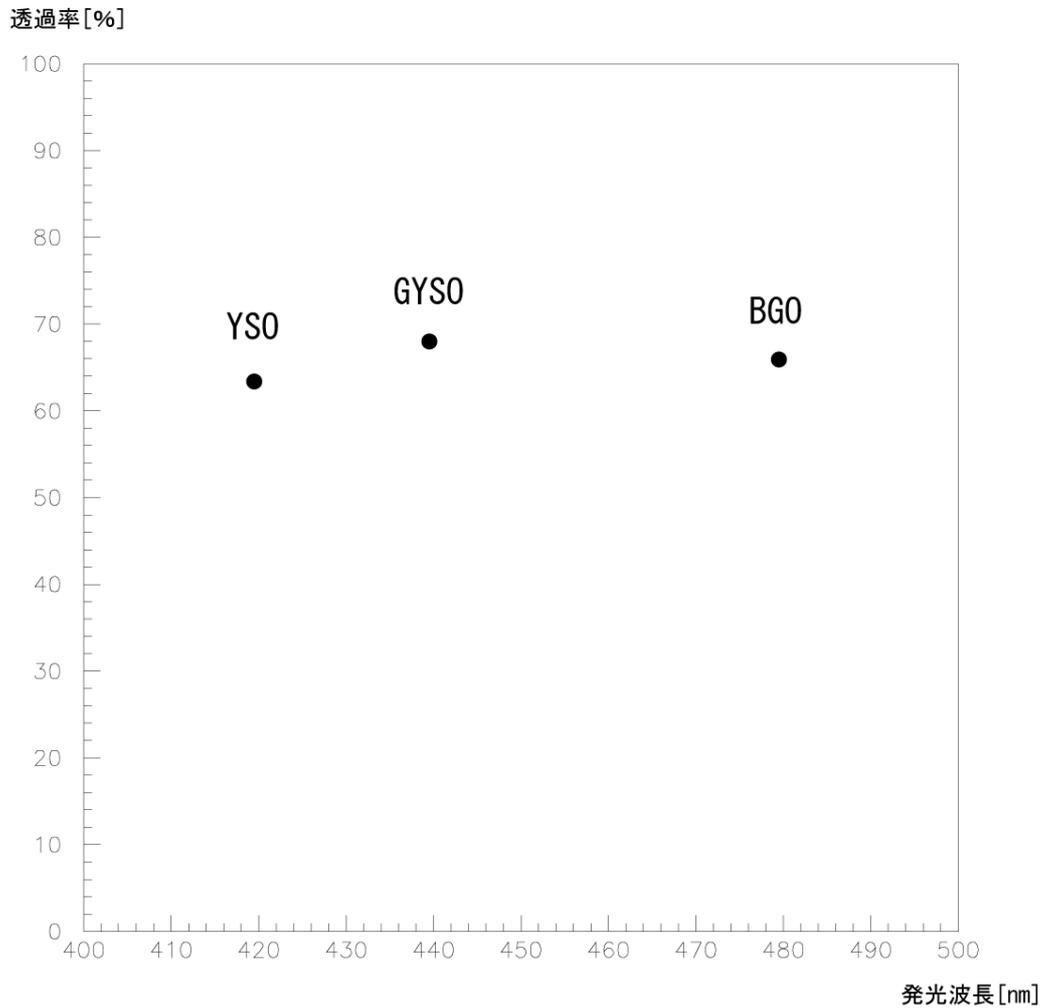


図 3.10: 各波長での未蒸着ガラスに対する蒸着ガラスの透過率

どの結晶でも概ね 60-70% の透過率であった。結晶による有意な差は見られない。

次に 2 と 3 のガラスにおける ^{137}Cs (662keV) からの各シンチレーターの測定結果を示す。左上グラフは未蒸着ガラスを結晶と光電子増倍管の間に挟んだもの、右上グラフはの 3 の蒸着ガラス (Ar のみ) を挟んだものであり、左下グラフは 2 の蒸着ガラス (Ar と O_2 混合) を挟んだものである。なお、ペDESTAL の値は引いてある。

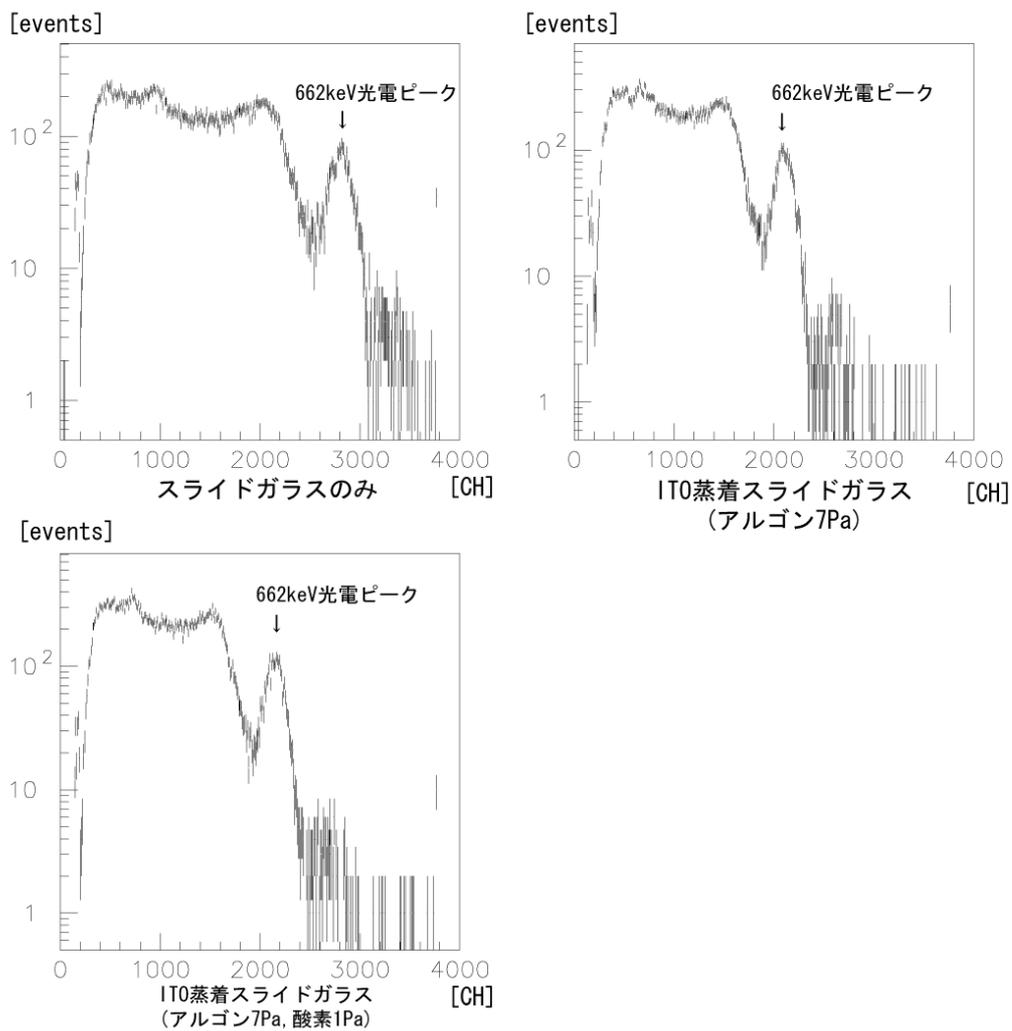


図 3.11: YSO 結晶での測定結果

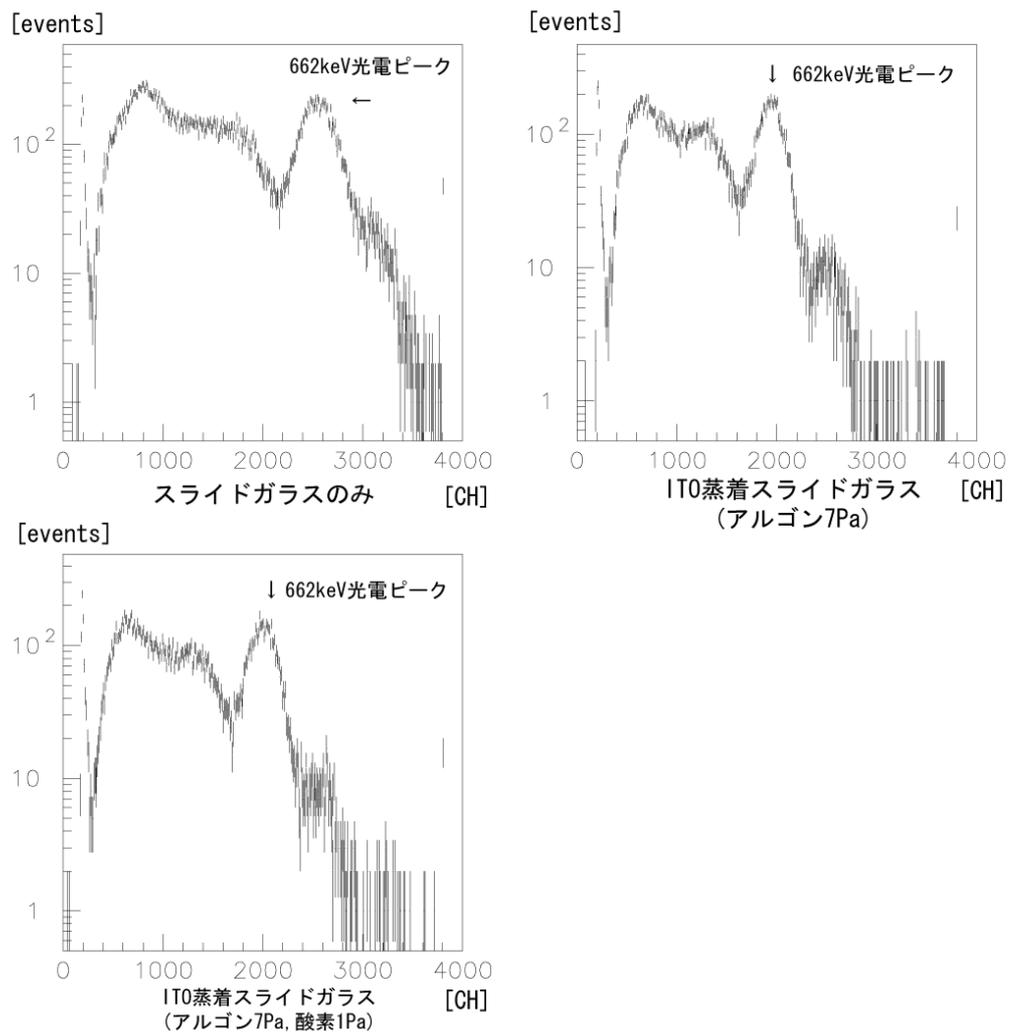


図 3.12: GYSO 結晶での測定結果

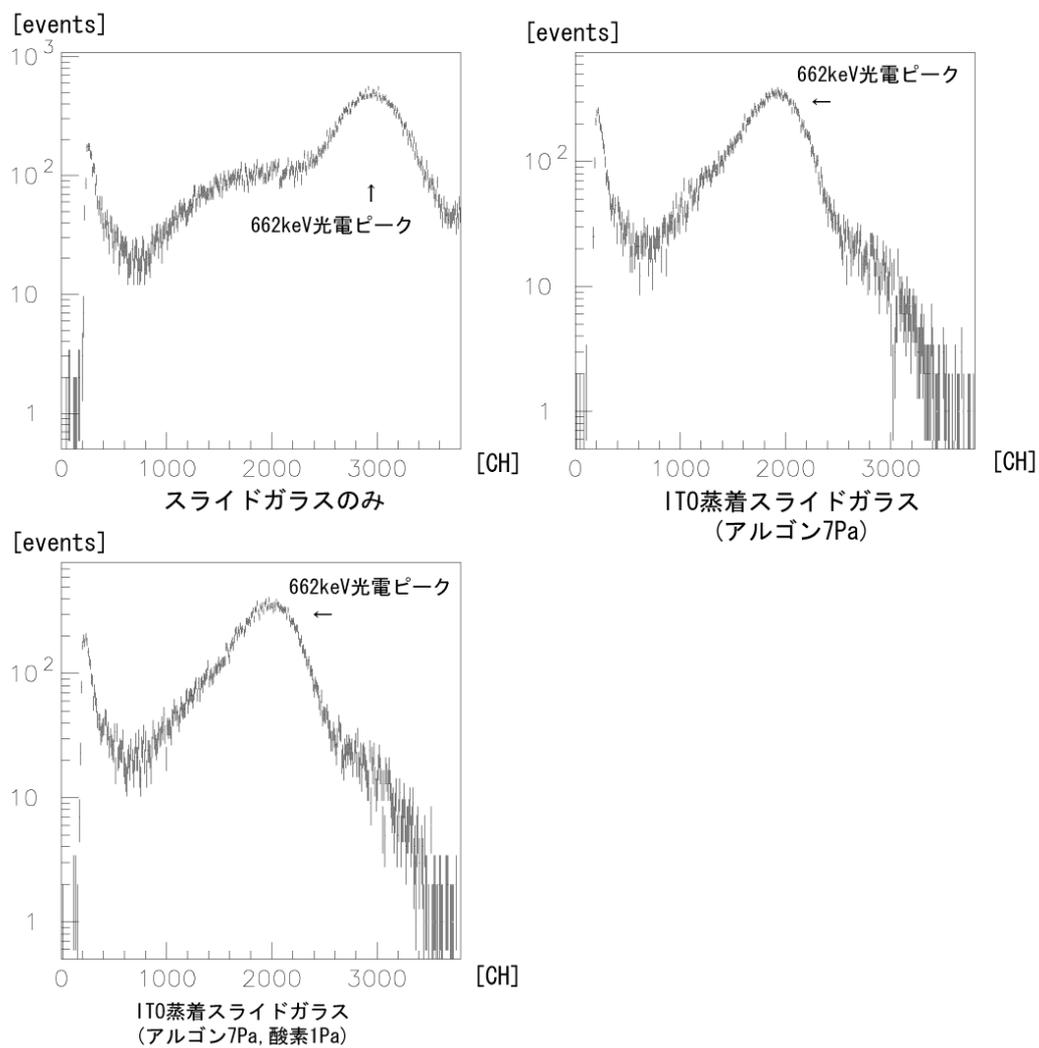


図 3.13: BGO 結晶での測定結果

(蒸着ガラスでのピークの値) ÷ (未蒸着ガラスでのピークの CH 値) × 100[%] を透過率として求めた。その結果をグラフに示す。

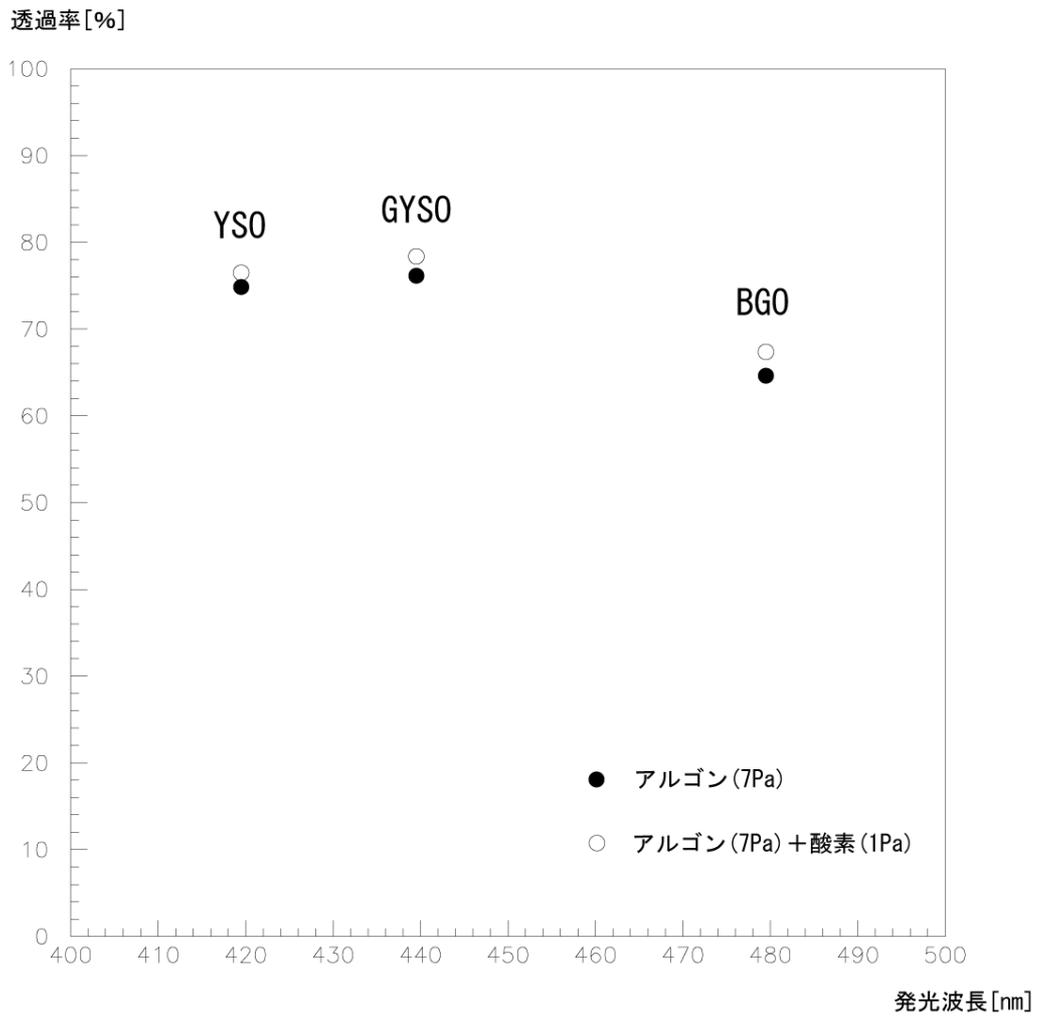


図 3.14: 各発光波長での透過率の変化

透過率の改善は、概ね 1-2% であり、大きな効果は見られなかった。BGO の透過率が、YSO や GYSO の透過率に比べやや低くなっている。

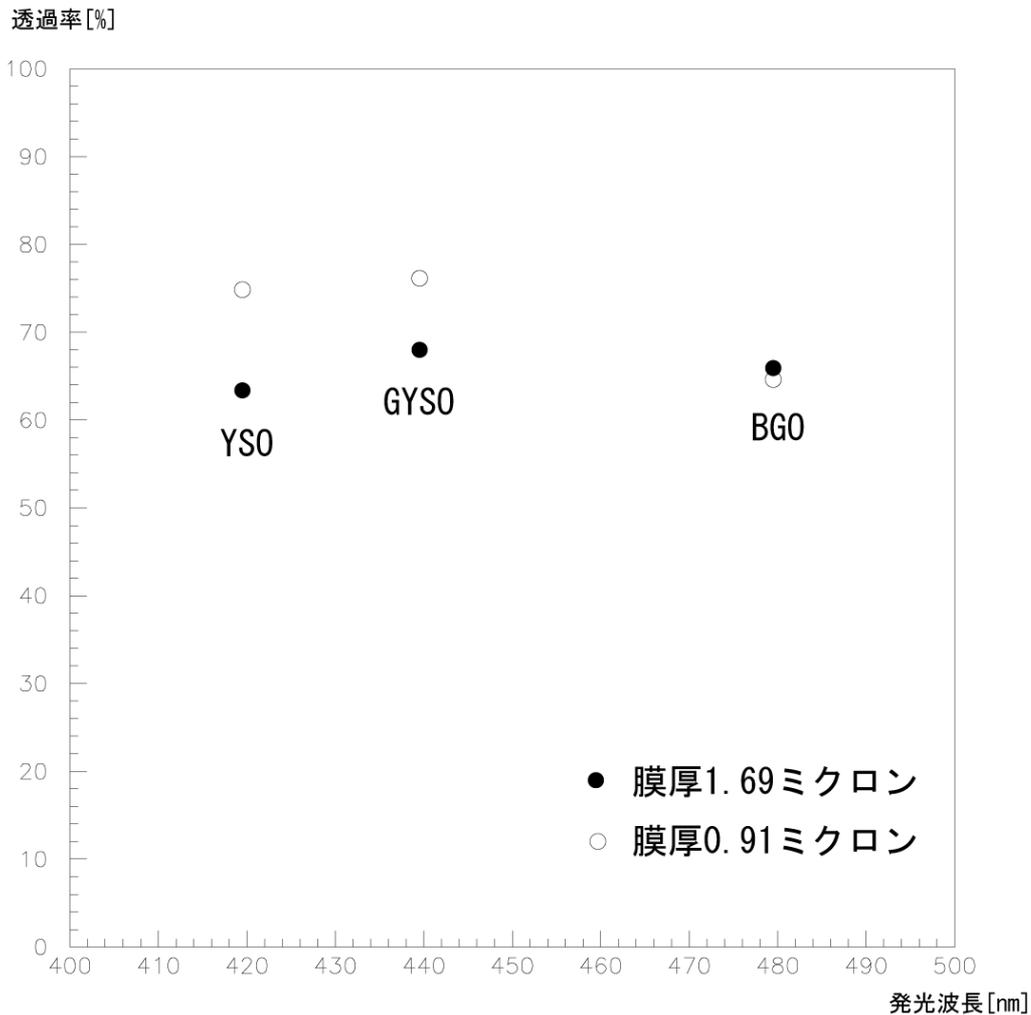


図 3.15: 膜厚と透過率の関係

YSO と GYSO は膜厚が薄いほうが透過率が高いのに対し、BGO の透過率が膜厚が薄くなったにもかかわらず低下した。

3.2 分光器による透過率測定

3.2.1 セットアップ

重水素放電管とハロゲンランプを組み合わせたものを光源として、300nm-900nm までのスペクトル範囲で、酸化インジウム薄膜の透過率を調べた。光源装置にはオーシャンオプティクス製 DT-MINI-2-GS を、分光器にはオーシャンオプティクス製 USB4000 を用いた。光源からの光は、光ファイバーで送っている。ガラスはキュベットホルダーに垂直にセットする。光源からの光は、キュベットホルダーにセットした試料を通り、分光器へと入射する。

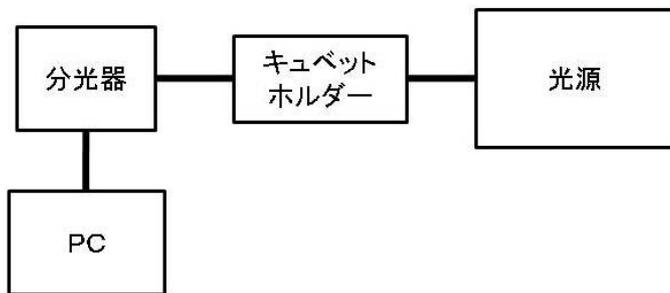


図 3.16: 分光器による透過率測定の設定アップ

3.2.2 各波長における透過率の測定結果

分光器によって測定した各波長領域での透過率を下に示す。

スライドガラスの透過率

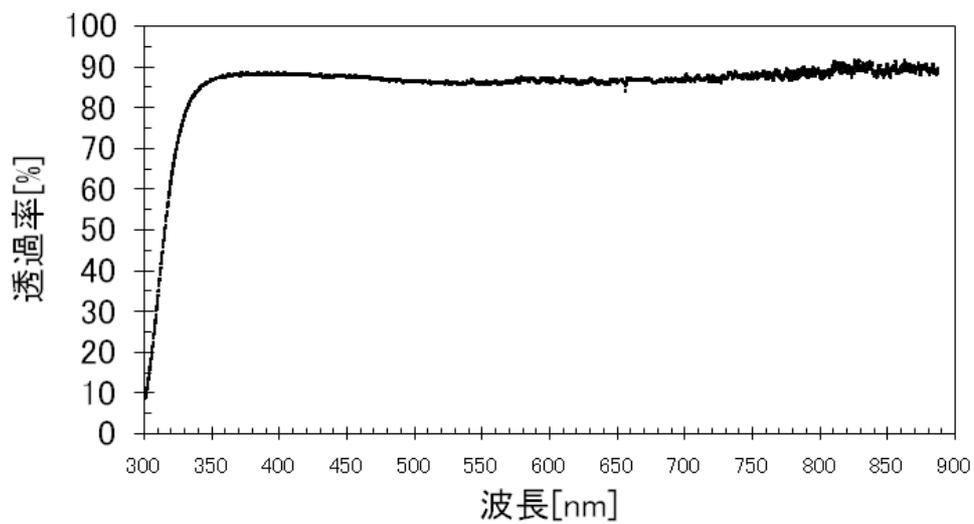


図 3.17: スライドガラスの各波長での透過率

350nm 以上の波長でほぼ一定の透過率である。波長が長くなるにつれ、透過率は上下しながら、平均透過率としては上昇していく。

蒸着ガラス(1)の透過率

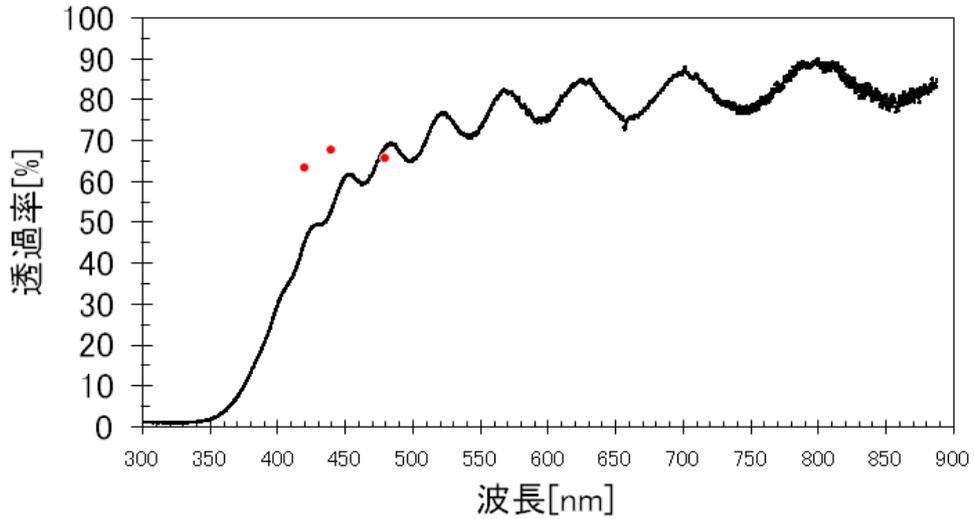


図 3.18: 蒸着ガラス (1) の各波長での透過率

赤のプロットは3.1.4で求めた値であり、 $(\text{蒸着ガラスのときの光量}) \div (\text{スライドガラスのときの光量}) \times 100[\%]$ によって求めた値である。したがって、スライドガラスによる吸収は含めていない。分光器のデータは、ガラスと薄膜の両方の吸収によって出される透過率である。

蒸着ガラス(3)の透過率

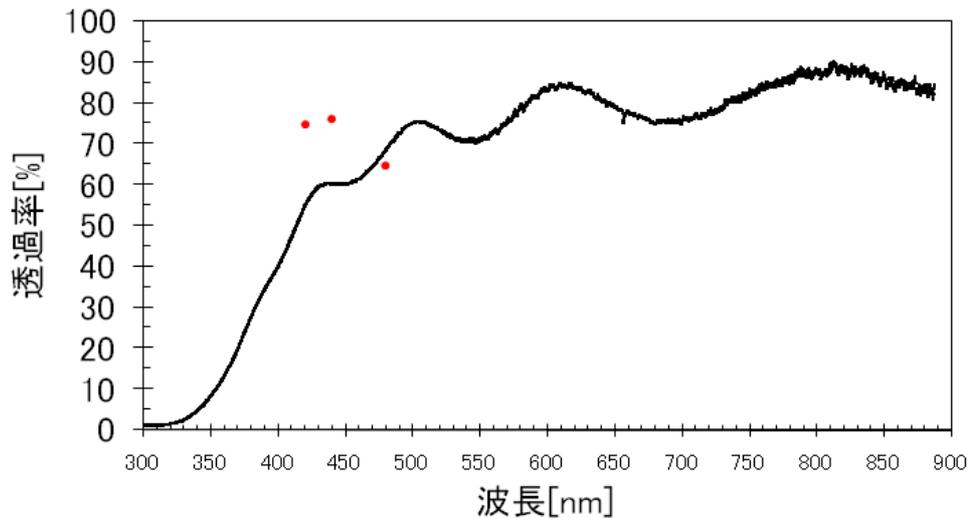


図 3.19: 蒸着ガラス (3) の各波長での透過率

赤のプロットは3.1.4で求めた値である。

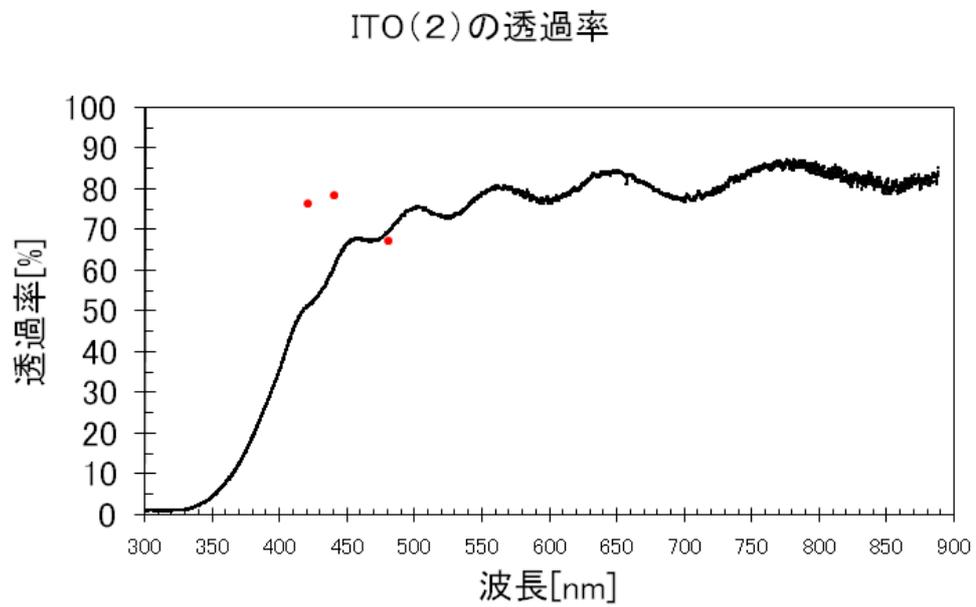


図 3.20: 蒸着ガラス(2)の透過率

赤のプロットは3.1.4で求めた値である。

酸素導入前後の変化

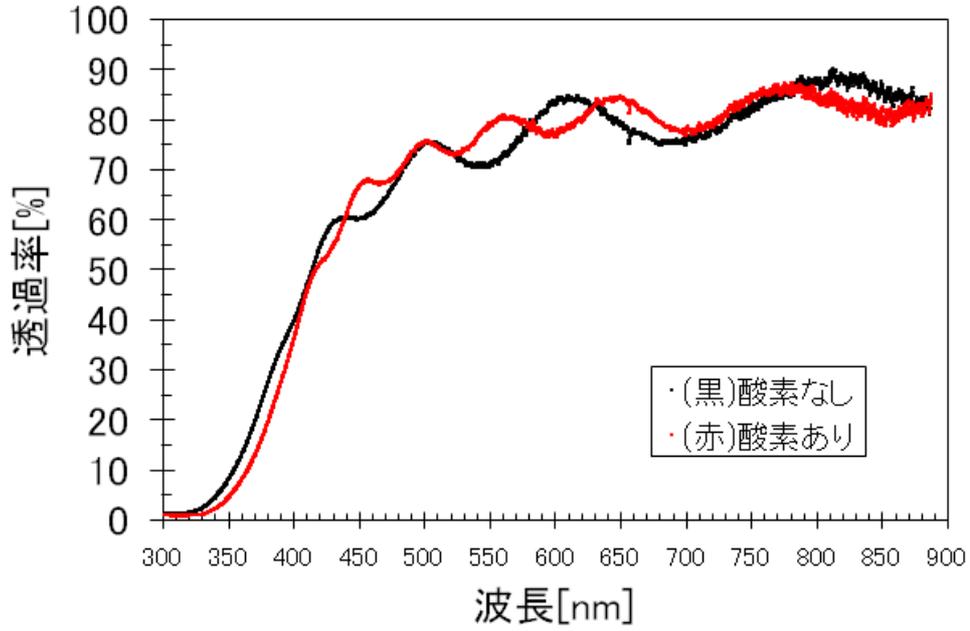


図 3.21: 酸素導入前後の透過率の違い

平均の透過率はほぼ変化がないと思われるが、酸素を導入した場合のほうがグラフの極大の数が多い。

厚みによる透過率の違い

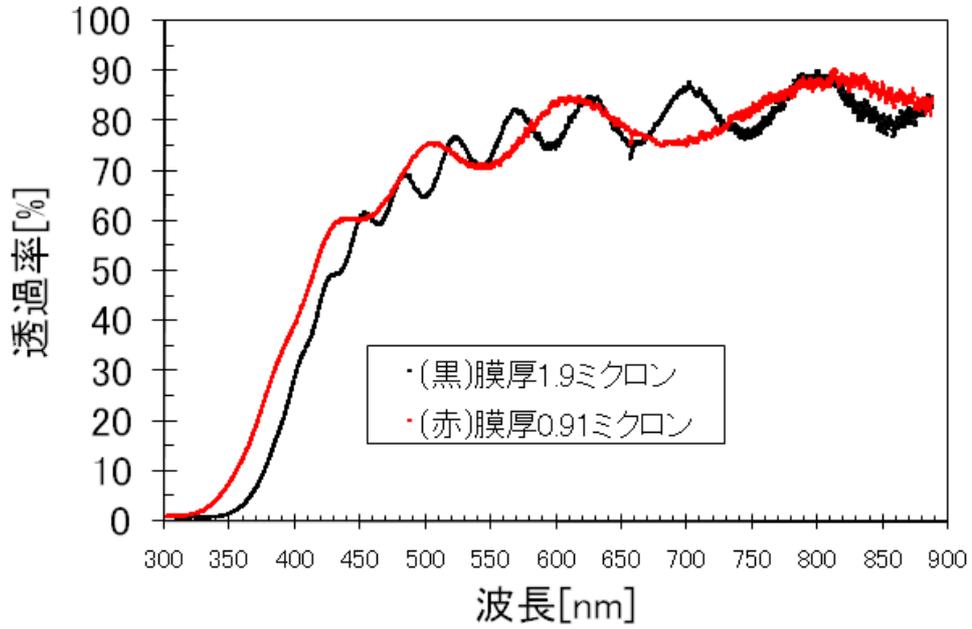


図 3.22: 厚みによる透過率の違い

膜厚が厚くなると、曲線の極大値の数が多くなる。厚みは約2倍異なるが平均の透過率には差が見られない。

第4章 考察

今回、透過率の改善のために酸素を導入した反応性スパッタリング法による酸化インジウム成膜を行った。その結果、酸素導入による透過率の向上は見られなかった。これは、膜厚が厚いために改善の程度が見れなかった可能性がある。

分光器による測定の結果からは、波長が長くなるにつれ透過率は上下しながら平均透過率は上昇していくことがわかった。この透過率の上下は干渉によるものと思われる。干渉について今後調べる必要があるが、波長の長い領域では比較的高い透過率を得やすいと言える。一方で、結晶を用いた透過率測定ではYSOやGYSOに比べ発光波長の長いBGO結晶において、透過率が低く出るといった結果となった。これはシンチレーションの発光波長が単一の波長ではなく、広がりをもって分布しているためにおこると考えられる。したがって、それぞれのシンチレーターでの発光波長分布を考慮する必要がある。

第5章 結論

酸素導入による反応性スパッタリング法では透過率の向上は得られなかったが、酸化インジウム膜は波長が長いほど平均透過率は上がっていくため、より長い発光波長のシンチレーターを用いることが有効であると考えられる。そのシンチレーターとして発光波長のピークが 550nm にある CsI や YAG($Y_3Al_5O_{12}$) があげられる。

参考文献

- [1] 日本学術振興会 透明酸化物光・電子材料第 166 委員会 編 『透明導電膜の技術 (改訂 2 版)』 オーム社
- [2] 金原 粲 著 『薄膜の基本技術 第 3 版』 東京大学出版会
- [3] 日本物理学会誌 Vol.58, No.5, 2003
戸塚洋二:「ニュートリノによる素粒子物理」 - 過去現在将来 -
中畑雅行, 鈴木洋一郎:「太陽ニュートリノ観測の現状と将来」
鈴木厚人:「KamLAND 最初の成果」 - 原子炉反電子ニュートリノ消失現象の検出 -
- [4] 川崎雅祐 著 『謎の粒子 ニュートリノ』 丸善書店
- [5] William J.Price 著 関口晃 訳 『放射線計測』 コロナ社
- [6] 公開特許公報 (A) 特許公開 2002-371355 『透明薄膜の製造方法』 日東電工株式会社
- [7] 佐藤哲也 学位論文 2004
- [8] 小野亮介 学位論文 2008
- [9] 神永友輔 学位論文 2008
- [10] 三宅悠子 学位論文 2008

謝辞

本論文を作成するにあたり，実験方法やデータ解析，本論文の推敲まで大変多くの助言やご指導いただきました福田善之先生に心から感謝申し上げます。順調に進みませんでした，ご指導続けていただくことにより論文を書くことが出来ました。本当にありがとうございました。

また，同研究室の小野亮介さんにも大変お世話になりました。皆様に心から感謝申し上げます。