

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 5 月 29 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25800166

研究課題名(和文)単結晶薄膜ダイヤモンドを用いた重イオンTOF検出器の開発及び大面積化手法の確立

研究課題名(英文)Development of single crystal diamond detectors and improvement of active areas for fast timing application of heavy ion beams

研究代表者

佐藤 優樹 (Yuki, Sato)

独立行政法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・基礎科学特別研究員

研究者番号：20632409

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：高強度の重イオンビームラインにおける重イオンの飛行時間(TOF)測定用検出器として使用するため、単結晶CVDダイヤモンドから検出器を製作し、性能評価を行った。開発した検出器は、イオン入射に対して既存のシリコン検出器やプラスチックシンチレータを上回る高速な出力応答を示した。加えて、イオンビーム入射に対して優れた耐久性が示された。一方で、検出器の有感面積を拡張するために、小サイズの単結晶ダイヤモンドを4つ組み合わせることによるモザイク型検出器の開発を行った。これらの結果に加えて、高品質単結晶を使用することにより、多結晶では難しい、入射イオンのエネルギースペクトルの測定が可能であることも示した。

研究成果の概要(英文)：Charged particle detectors were fabricated using the synthetic single crystal diamond grown by CVD for the TOF measurement at the high-intensity heavy-ion beam line. The diamond detector showed the high-speed response more than a silicon charged particle detector and a plastic scintillator. Additionally, the superior radiation hardness was also shown. The detector was able to measure an energy spectrum of incident ions because the detector was made from the high quality single crystal. We also fabricated a mosaic-detector using four single crystal CVD diamond detectors for expansion of the active area.

研究分野：放射線物理、放射線検出器

キーワード：ダイヤモンド検出器 CVD単結晶ダイヤモンド TOF測定 荷電粒子エネルギースペクトル測定

## 1. 研究開始当初の背景

原子核物理実験において、高強度の重イオンビームラインに配置する新しい荷電粒子検出器が求められている。ダイヤモンドを母材とした荷電粒子検出器は、従来用いられてきたシリコン (Si) 検出器、ガス検出器、プラスチックシンチータと比較して、高速応答性能、イオン入射に対する耐久性、シンプルな検出器構造などの利点が指摘されている。このため、ダイヤモンドを母材とした荷電粒子検出器は、高強度のビームラインを飛行する重イオンの飛行時間測定用 (TOF) 検出器として有望視されている。

## 2. 研究の目的

原子核物理実験における高強度の重イオンビームラインで使用することを目的とし、単結晶 CVD ダイヤモンドから荷電粒子検出器を開発する。検出器に求める性能は、既存の荷電粒子検出器を凌駕する高速応答性能、及びイオン入射に対する耐久性である。また、本研究では高品質単結晶ダイヤモンドを検出器の母材として使用する。このため、これまでに報告されていた多結晶ダイヤモンドを用いた検出器では不可能であった、イオン入射による付与エネルギーの測定を可能とする検出器開発を付加的な目的として加えた。さらに、結晶を複数個並べるモザイク配置を検出器構造に採用することにより、検出器有感面積の面積化手法を確立することを目的とする。

## 3. 研究の方法

高強度の重イオンビームラインにおける重イオンの TOF 検出器、及び付与エネルギー測定用検出器として使用するため、単結晶 CVD ダイヤモンドから検出器を製作し、性能評価を行った。単結晶ダイヤモンドは、北海道大学量子ビーム応用計測学研究室放射線計測グループにおいて育成した結晶、及びエレメントシックス社が販売している結晶を使用した。ダイヤモンド結晶の表面に真空蒸着法により金属電極を形成し、結晶両面に電極を形成したダイヤモンド結晶をアルミニウム製のボックスにマウントすることにより検出器を製作した。これらの検出器を使用して、以下に示す4つの項目に関して研究を実施した。すなわち、(1) 高速応答性、(2) イオンビーム入射に対する耐久性、(3) エネルギースペクトルの測定、及び (4) 検出器の有感面積の拡張である。

### (1) 高速応答性

製作したダイヤモンド検出器に 2 GHz Broadband Amplifier (Cividec 社: C2 Broadband Amplifier) を接続して出力信号を観測し、ダイヤモンド検出器の持つ高速応答性能を確認した。加えて、ダイヤモンド検出器を2つ並べて 8.6 MeV/u の  ${}^7\text{Li}$  イオンを通過させ、TOF スペクトルを取得して検出器

の持つ固有の時間分解能を評価した。

(2) イオンビーム入射に対する耐久性  
検出器の持つ耐久性に関しても調査を行った。上記  ${}^7\text{Li}$  イオンに対して、 $300\ \mu\text{m}\times 300\ \mu\text{m}$  の X-Y スリットでビームを切り、局所的に 50 kcps のビームを照射し、出力波高が変動するかを観測した。また、ペレット加速器を用いて MeV エネルギーの軽イオン照射を実施し、これまでに報告された Si 検出器の耐久性との比較を行った。

(3) エネルギースペクトルの測定  
単結晶を使用することにより、多結晶では難しい、軽イオン及び重イオン入射によるエネルギー付与量の測定が可能であることを示す。 ${}^{241}\text{Am}$ - $\alpha$  粒子や加速器から得られる重イオンをダイヤモンド検出器に入射し、入射イオンのエネルギースペクトルを測定して、付与エネルギー測定用検出器としての性能評価を行った。

(4) 検出器の有感面積の拡張  
単結晶ダイヤモンドの結晶サイズ (4 mm $\times$ 4 mm 程度) が小さいという欠点を克服するため、結晶を複数個並べることによる検出器面積化手法の確立に向けた取り組みに着手した。

## 4. 研究成果

### (1) 高速応答性

はじめに、単結晶ダイヤモンドから製作した検出器の高速応答性能を 2 GHz Broadband Amplifier を用いて測定した。その結果、 ${}^{241}\text{Am}$ - $\alpha$  粒子、及び、理研 AVF サイクロトロンで生成した 8.6 MeV/u の  ${}^7\text{Li}$  イオンの入射に対して、パルス幅で 1 ns 未満 (FWHM) の高速応答を観測した。これは、既存の検出器である Si 検出器やプラスチックシンチレータを凌駕する応答速度である。一方で、接続したアンプのアナログ帯域幅や入力インピーダンス、加えて観測に用いたデジタルオシロスコープのアナログ帯域幅を考慮し、観測した出力信号幅を考察した結果、本来のダイヤモンド検出器からの出力信号がなまり、信号幅が広がってしまうことを電子回路シミュレータ (SPICE) を用いて再現した。信号のなまりの原因となる最も大きな要因はアンプの入力インピーダンスであり、現在流通している値である 50  $\Omega$  より低い値を選択すべきであると指摘した。

また、ダイヤモンド検出器が有する時間分解能の評価も行った。時間分解能の評価は、理研 AVF サイクロトロンで加速した 8.6 MeV/u の  ${}^7\text{Li}$  のイオンビームをダイヤモンド検出器2つに通過させ、検出器間におけるイオンの飛行時間を測定することにより行った。図1に、実験セットアップの模式図を示す。各々の検出器からの信号を cividec 社製の 2 GHz broadband amplifier で増幅し、増

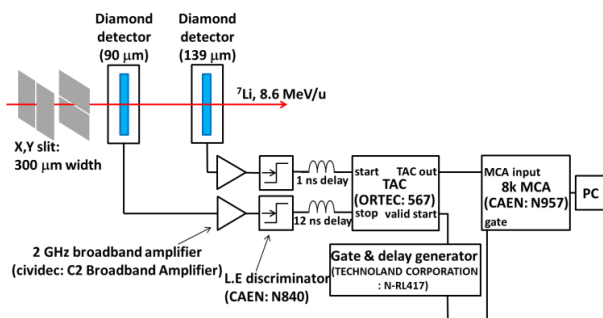


図 1. 飛行イオンの TOF 測定のためのセットアップの模式図。2 つの単結晶 CVD ダイヤモンド検出器を並べ、後方の検出器からの信号を TAC のスタート信号に、前方の検出器からの信号をストップ信号としている。また、測定系においてケーブル長さを調節し、11 ns の時間オフセットを設けている。

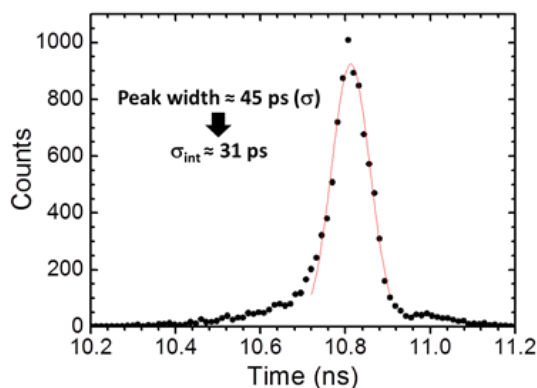


図 2. 2 つの単結晶 CVD ダイヤモンド検出器を間隔 20 mm で配置し、8.6 MeV/u の  ${}^7\text{Li}$  を通過させて取得した TOF スペクトル。実線はガウスフィットの結果を示す。

幅後の信号をリーディングエッジタイプの Discriminator でタイミング情報を取得した後、時間波高変換器 (TAC) を用いて 2 信号の時間差スペクトル、すなわち飛行イオンの TOF スペクトルを取得した。ここで、コインシデンス取得の効率を上げるために、後方の検出器からの信号を TAC のスタート信号、前方の検出器からの信号をストップ信号とした。また、測定系においてケーブル長さを調節し、11 ns の時間オフセットを設けている。この測定系そのものが持つ時間測定におけるゆらぎに関しては、Fast pulser から出力される幅 1 ns 未満のパルス信号を用いてあらかじめ測定しており、約 8 ps であることを確認している。

図 2 は 2 つの検出器を 20 mm 離して配置し、取得した TOF スペクトルである。観測されたピークの広がりをガウスフィットにより見積もった結果、45 ps ( $\sigma$ ) であった。2 つの検出器が同等の時間分解能を持つと仮定した結果、実験に使用した検出器の検出器固有の時間分解能は約 30 ps であると見積もられた。今後、さらなる時間分解能の向上を目指すに当たり、上述した既存の信号読み出し回路系

が有する問題点の解消等などが課題となる。

(2) イオンビーム入射に対する耐久性  
 検出器の持つ耐久性に関しても調査を行った。ダイヤモンド検出器に Charge Sensitive Preamplifier を接続し、イオンビーム入射に対する出力波高の変化を観測した。上記  ${}^7\text{Li}$  イオンに対して、 $300\ \mu\text{m} \times 300\ \mu\text{m}$  の X-Y スリットでビームを切り、局所的に 50 kcps のビームを照射したが、出力波高の顕著な低下は観測されなかった。加えて、理研ペレトロン加速器を用いた MeV エネルギーの軽イオン照射実験を行い、これまでに報告された Si 検出器の耐久性との比較を行った。実験におけるダイヤモンド検出器へのエネルギー付与量の積算値は約  $2.2 \times 10^{21}\ \text{eV}/\text{cm}^3$  であった。ダイヤモンド検出器は、ポラリゼーション効果により Si 検出器に比べて顕著な波高減少が観測された。しかし、ポラリゼーション効果は定期的に逆極性のバイアス電圧を検出器に印加することにより解消することができ、ポラリゼーション解消後は照射開始時点における出力波高近辺まで回復することが出来た。これにより、結晶そのものの受けるダメージは小さく、出力波高に大きな影響を与えないことが分かった。一方で、Si 検出器は同方法では波高を回復できず、アニール等の処理が必要となる。結晶が受けるダメージの観点から、ダイヤモンド検出器は Si 検出器に比べて優れているという結果が得られた。

### (3) エネルギースペクトルの測定

<sup>241</sup>Am- $\alpha$  粒子の入射実験では、検出器固有のエネルギー分解能で約 0.4% (FWHM) を達成し、図 3 に示すように 5.389、5.443、5.486、及び 5.545 MeV の  $\alpha$  粒子が観測できた。一方で、理研ペレトロン加速器を用いた重イオン照射実験では、全て 3 MeV の入射エネルギーで検出器に入射したにも関わらず、入射イオンの原子番号の増加に伴い、検出器からの出力波高が低下する波高欠損効果が観測された。この原因に関して、低エネルギー入射のために入射窓でのエネルギー損失や、電子・正孔対を作らない核的阻止能に起因するエネルギー損失が増加したためであると考えている。入射エネルギーの増加に伴い、検出器入射窓や核的阻止能に起因するエネルギー損失の影響は小さくなると考えられ、波高欠損効果による出力波高の低下も小さくなると予想される。

### (4) 検出器の有感面積の拡張

現在、入手でき、かつ本研究で使用しているダイヤモンド結晶のサイズは  $4 \times 4\ \text{mm}^2$  程度と小さく、実際にビームラインへ配置することは難しい。そこで、 $4 \times 4\ \text{mm}^2$  結晶を 4 つ並べた検出器を開発した。各々の検出器に 2 GHz Broadband Amplifier を接続して出力信号を観測した結果、その応答速度は使用した結晶

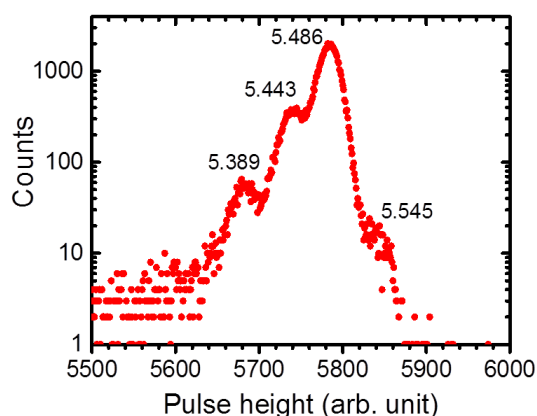


図 3. 単結晶 CVD ダイヤモンド検出器を用いて取得した  $^{241}\text{Am}$ - $\alpha$  粒子のエネルギースペクトル。図中の数字は  $\alpha$  粒子の持つエネルギーを示す。検出器は、厚さ約 200  $\mu\text{m}$  の単結晶 CVD ダイヤモンドの片面にアルミニウム電極、もう片方に金電極を設けたものを使用した。アルミニウム電極は接地し、金電極には +100 V のバイアス電圧を印加してある。 $\alpha$  粒子は金電極より入射した。

の厚さに依存するものの、全ての検出器で 1 ns 以下の高速な信号立ち上がり時間 (10-90%) を観測することができ、TOF 測定への可能性を示すことが出来た。

一方で、使用している結晶が全て単結晶であることから、全ての検出器がエネルギースペクトロメータとして動作することも確認することができた。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① Y. Sato, T. Shimaoka, M. Kobayashi, M. Takaki, H. Miya, M. Matsushita, S. Michimasa, K. Yako, S. Shimoura, M. Tsubota, J. H. Kaneko, H. Murakami, H. Sato, K. Yoshida, T. Kubo, "Development of single-crystal CVD diamond detector for time-of-flight measurements", RIKEN Accel. Prog. Rep. 48, in press. 査読有
- ② Y. Sato, N. Fukuda, H. Takeda, D. Kameda, H. Suzuki, Y. Shimizu, D. S. Ahn, D. Murai, N. Inabe, T. Shimaoka, M. Tsubota, J. H. Kaneko, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, H. Kumagai, H. Murakami, H. Sato, K. Yoshida, T. Kubo, "Status of beam line detectors for the BigRIPS fragment separator at RIKEN RI Beam Factory: issues on high rates and resolution", JPS Conf. Proc., in press. 査読有
- ③ Y. Sato, T. Shimaoka, J. H. Kaneko, H. Murakami, M. Isobe, M. Osakabe, M. Tsubota, K. Ochiai, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, "Radiation hardness of a single crystal CVD diamond detector for MeV energy protons", Nucl. Instr. and Meth. A, **784**, 147-150 (2014). 査読有

DOI: 10.1016/j.nima.2014.12.036

④ Y. Sato, H. Murakami, T. Shimaoka, M. Tsubota, J. H. Kaneko, "Single-crystal CVD diamond detector for high resolution particle spectrometry", Euro. Phys. Let., **108**, 42001 (2014). 査読有

DOI: 10.1209/0295-5075/108/42001

⑤ Y. Sato, T. Shimaoka, J. H. Kaneko, H. Murakami, D. Miyazaki, M. Tsubota, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, "Pulse shape distortion of output signals from single-crystal CVD diamond detector in few-GHz broadband amplifiers", Euro. Phys. Let., **106**, 22001 (2014). 査読有

DOI: 10.1209/0295-5075/106/22001

⑥ Y. Sato, T. Shimaoka, J. H. Kaneko, H. Murakami, D. Miyazaki, M. Tsubota, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, "Pulse height reduction effects of single-crystal CVD diamond detector for low-energy heavy ions", Euro. Phys. Let., **104**, 22003 (2013). 査読有

DOI: 10.1209/0295-5075/104/22003

[学会発表] (計 4 件)

① Y. Sato, H. Murakami, T. Shimaoka, M. Tsubota, J. H. Kaneko, "Single-crystal CVD Diamond Detector for Low-Energy Charged Particles with Energies Ranging from 100 keV to 2 MeV", The fourth international conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurement Methods and their Applications (ANIMMA2015), Lisbon Congress Center, Lisbon (Portugal), 20-24 Apr. 2015.

② Y. Sato, "Maintenance and improvement of beam-line detectors for the BigRIPS fragment separator", Workshop for development of beam line detectors with high rate capabilities at RIBF, RIKEN Wako (Japan), 19 Jan. 2015.

③ Y. Sato, T. Shimaoka, J. H. Kaneko, H. Murakami, M. Isobe, M. Osakabe, M. Tsubota, K. Ochiai, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, "Radiation hardness of single crystal CVD diamond detector for MeV energy protons", SORMA XV - 2014 Symposium on Radiation Measurements and Applications, University of Michigan, Ann Arbor, Michigan (USA), 9-12 Jun. 2014.

④ Y. Sato, N. Fukuda, H. Takeda, D. Kameda, H. Suzuki, Y. Shimizu, D. S. Ahn, D. Murai, N. Inabe, T. Shimaoka, M. Tsubota, J. H. Kaneko, A. Chayahara, H. Umezawa, S. Shikata, H. Kumagai, H. Murakami, K. Yoshida, T. Kubo, "Status of Beam Line Detectors for the BigRIPS Fragment Separator at RIKEN RI Beam Factory: Issues on

High Rates and Resolution”, The 2nd Conference on "Advances in Radioactive Isotope Science 2014" (ARIS 2014), Tokyo (Japan), 1-6 Jun. 2014.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐藤 優樹 (SATO YUKI)

独立行政法人理化学研究所・仁科加速器研究センター・基礎科学特別研究員

研究者番号：20632409

(2) 研究分担者

該当無し

(3) 連携研究者

該当無し

