

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 9 月 11 日現在

機関番号：12301

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2014～2016

課題番号：26249149

研究課題名（和文）高エネルギーイオン大気取出し窓兼位置敏感型検出器としてのダイヤモンド薄膜の研究

研究課題名（英文）Study of diamond thin film as a beam exit window to the atmosphere for high energy ions and a position-sensitivity detector

研究代表者

神谷 富裕 (Kamiya, Tomihiro)

群馬大学・大学院理工学府・教授

研究者番号：70370385

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 32,000,000円

研究成果の概要（和文）：高エネルギーイオンの大気取出し窓兼イオン位置検出器として、単結晶ダイヤモンド薄膜による新奇透過型位置敏感型検出器の開発を行った。試験素子を作成しイオンビーム誘起電荷（IBIC）あるいはその時間応答（QTS）の計測により総合的な特性評価を行った。まずIBIC計測によりイオンの入射位置に依存する出力信号を観察した。加えて信号強度の照射量の増加に伴う劣化特性において実験と計算とを対比し、新たな劣化パラメータを提案した。また、単結晶ダイヤモンドの半導体としての電気的活性について、QTSにより検証した。加えてイオン照射が誘起するアバランシェ効果による生成電荷増幅という現象を新たに確認した。

研究成果の概要（英文）：As an exit window as well as a transmission position sensitive detector for high energy ions transmitted to atmosphere, a novel membrane device made of single crystal diamond has been developed. A test device was made and the ion-beam-induced charge (IBIC) or the time measured response (QTS) made a comprehensive evaluation. Watching the first IBIC measurement of ion incident position-dependent output signal. In addition and comparison between experimental and calculated deterioration characteristics associated with the increase in signal strength dose, proposed a new degradation parameter. The electrical activity of single crystal diamond semiconductor investigated by QTS. In addition confirmed new phenomenon due to the avalanche effect induced by ion beam generation charge amplifier.

研究分野：放射線科学

キーワード：ダイヤモンド検出器

### 1. 研究開始当初の背景

核子当り MeV 以上の高エネルギーイオンは、粒子線治療やイオンビーム育種、あるいは低線量被ばく影響研究の基礎となる生物細胞照射実験に用いられ、宇宙用半導体素子の耐放射線性評価と併せてその高い有用性が認められている。応募者は、これに資するためにイオンマイクロビーム技術を(独)日本原子力研究開発機構(原子力機構)の保有するイオン照射研究施設(TIARA)において開発し、高エネルギー重イオンを大気中に取出して一つずつ狙った位置に $\mu\text{m}$ の精度で照射するシングルイオンヒットを実現し、半導体集積回路や生体細胞等へのイオン一個による狙い撃ちを可能とした。しかし、100%の確実性はまだ担保できず、照射のタイミングやヒット位置を高精度に検知することが課題となっていた。当初イオンが大気取出し窓を透過した時に発生する2次電子[2]やシンチレータ膜に入射した際の発光を検出する方法を検討したが、検出効率や感度の点で、線エネルギー付与率(LET)の低い軽イオンの場合に不十分であるという問題に直面した。

そこでまず大気取出し窓を薄膜型の検出器にして IBIC 信号によりシングルイオンを検知する手法を着想した。さらに強度と耐放射線性の高いダイヤモンドに着目して、平成 22~25 年度に科学技術振興機構(JST)の国際研究交流事業の資金を得てクロアチア Ruder Bošković Institute (RBI)及びフランス Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA)の研究者等と連携した研究開発を行い、プラズマエッチング技術を活用した薄膜化技術で作製した $5\mu\text{m}$ の単結晶ダイヤモンド薄膜が大気取出し窓としても低LETのMeV陽子でも十分な感度を有する検出器として機能することを確認した(下図)。



図 ダイヤモンド薄膜検出器(上)とその  
1.3MeV 陽子マイクロビーム走査による  
IBIC 信号のマッピング(下)。

ダイヤモンドは次世代の検出器の材料として、特に高エネルギー物理実験の分野で注目され、多素子の位置敏感型検出器の開発が進んでいるが、本研究が目指す $1\mu\text{m}$ レベルの位置分解能には至っていない。また、応募者等は、イオンマイクロビームで照射を同じ領域に集中すると結晶中に生成される未知の欠陥準位が原因と思われる電荷捕獲によるポーラリゼーションと呼ばれる一時的な信号劣化現象を見出したが、このような検出器の性能を左右するダイヤモンド結晶中に存在する欠陥についての知見も不十分である。昨今の高品質なダイヤモンド製造技術の進歩を踏まえ、ダイヤモンド製造あるいは検出器の専門家と協力してさらに多角的なアプローチによりダイヤモンドの未知なる特性を解明しつつ透過型の位置敏感型イオン検出器を開発し、高エネルギーイオンビーム利用研究を促進すべく本研究課題を提案するに至った。

### 2. 研究の目的

本研究では、核子当り MeV 以上の高エネルギーイオンビームがダイヤモンド薄膜を透過するときその飛跡に沿って膜内に生成する電荷を計測することにより、イオン一つ一つの位置を $\mu\text{m}$ の精度で確実に検知できる位置敏感型薄膜検出器として機能することを実証するため、以下の項目を明らかにする。

ダイヤモンド薄膜検出器のイオン照射応答製したダイヤモンド薄膜検出器に核子当り $1\sim 10\text{MeV}$ のエネルギーで $\text{H}\sim\text{Ar}$ のイオンが透過した際の IBIC/TIBIC 計測を行う。得られた信号の印加電圧や極性等の検出器のパラメータ依存性や照射による劣化挙動を調べ、欠陥等の材料特性との相関を調べる。

c) イオン照射位置依存性 ダイヤモンド薄膜の片面を図2のような微細パターンとした薄膜検出器の任意な領域にマイクロビーム技術によりイオンを走査し、各電極からの IBIC 信号についてイオン入射位置依存性を調べる。

d) イオン入射位置敏感型検出器の実証 上記の結果に基づいて位置敏感型薄膜ダイヤモンド検出器の最適なパラメータを導出し、それに基づいて複数の線状電極からの信号を処理して位置情報を取得する位置敏感型検出器を試作しその機能を評価する。併せてダイヤモンド中のエネルギー準位などの材料特性を、粒子線誘起過渡電荷計測などの手法により評価する。

b)

### 3. 研究の方法

位置敏感型ダイヤモンド薄膜イオン検出器の開発において、その基礎的な特性を把握し設計の指針とするため、単結晶ダイヤモンド素材を数 $\mu\text{m}$ の薄膜に加工し、検出器を試作した。また Deep Level Transient Spectroscopy (DLTS) や線源や重イオンマイクロビームを用いた Charge Transient

Spectroscopy (QTS) などの解析手法によりダイヤモンド中の欠陥準位を調べるなど材料特性を評価した。本研究では幅広い LET 領域のイオンビームによる測定実験を数多く積み重ねるため、TIARA だけではなく RBI (クロアチア) の協力研究者と連携して保有する加速器施設も利用した実験を実施した。その過程において製作した検出器の照射に対する出力信号の一時的な劣化現象ポラリゼーション効果を観測した。

ダイヤモンド薄膜検出器による位置検出が可能性を検証するため前述のダイヤモンド薄膜表面にマルチ電極を形成した位置敏感型検出器による IBIC 信号の解析を行った。

#### 4. 研究成果

イオンビーム照射による CVD 単結晶ダイヤモンド検出器の出力信号強度の劣化傾向を評価するため MeV エネルギー陽子マイクロビームによるイオンビーム誘起電荷 (IBIC) 分析計測を行った。電荷収集効率 (CCE) の照射線量の増加に伴う変化を解析した結果、イオニビームによってダイヤモンド中に形成された照射欠陥がイオンビームによって生成される電子正孔対の捕獲による消滅に寄与する現象の理論的検証ができた。

高抵抗な単結晶 CVD ダイヤモンドにおける深いエネルギー準位を分析する QTS 計測を 5.5MeV アルファ粒子および 9MeV 炭素によるマイクロビームを用いて行った。その結果、035eV および 0.43eV の活性化エネルギーを持つ深いレベルが検出され、ダイヤモンド中のホウ素不純物によるアクセプタの活性化エネルギーと一致していることを見出し、本手法が単結晶 CVD ダイヤモンドのような高抵抗率半導体の深いレベル分析に有効であることを示唆した。

さらに単結晶 CVD ダイヤモンド検出器での 18MeV O イオンなどの MeV エネルギー重イオンの検出における CCE 実験において、より高電圧を印加した場合に電子雪崩による出力信号の増強現象を初めて観測した。これは本研究が目指すダイヤモンド薄膜での透過イオンの高感度検出につながる発見である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 8 件)

- 1) N.Iwamoto, T.Makino, W.Kada, N.Skukan, M.Pomorski, V.Grilj, M.Jaksic, S.Onoda, T.Ohshima and T.Kamiya, 'Charge collection characteristics of a super-thin diamond membrane detector measured with high-energy heavy ions', *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **61** (2014) 3732-3738.
- 2) W.Kada, N.Iwamoto, T.Satoh, S.Onoda, V.Grilj, N.Skukan, M.Koka, T.Ohshima, M.Jaksic and T.Kamiya, 'Continuous observation of polarization effects in

SC-CVD diamond detector designed for heavy ion microbeam measurement', *Nucl. Instr. Meth. B*, **331**, (2014) 113-116.

- 3) W.Kada, Y.Kabayashi, N.Iwamoto, S.Onoda, M.Koka, T.Kamiya, N.Hoshino, H.Tsuchida, K.Kojima, O.Hanaizumi, and T.Ohshima, 'Development of diagnostic method for deep level in semiconductors using charge induced by heavy ion microbeam', *Nucl. Instr. Meth. B*, **348**, (2015) 240-245.
- 4) N.Skukan, V.Grilj, I.Sdic, M.Pomorski, W.Kada, T.Makino, Y.Kabayashi, Y.Andoh, S.Onoda, S.Sato, T.Ohshima, T.Kamiya and M.Jaksic, 'Charge multiplication effect in thin diamond film', *Appl. Phys. Lett.* **109**, (2016) 43502.
- 5) T.Kamiya, T.Satoh, M.Koka and W.Kada, 'Development of microbeam technology to expand applications at TIARA', *Nucl. Instr. Meth. B*, **348**, (2015) 4-7.
- 6) W.Kada, Y.Kabayashi, Y.Andoh, H.Umezawa, Y.Mokuno, S.Shikata, T.Makino, M.Koka, O.Hanaizumi, T.Kamiya, T.Ohshima, 'Investigation of electrically-active deep levels in single-crystalline diamond by particle-induced charge transient spectroscopy', *Nucl. Instr. Meth. B*, **372**, (2016) 151-155.
- 7) V.Grilj, N.Skukan, M.Jaksic, M.Pomorski, W.Kada, T.Kamiya and T.Ohshima, 'the evaluation of radiation damage parameter for CVD diamond', *Nucl. Instr. Meth. B*, **372**, (2016) 161-164.
- 8) S.Sato, T.Makino, T.Ohshima, W.Kada, O.Hanaizumi, V.Grilj, N.Skukan, M.Pomorski, G.Vizkelethy, 'Transient current induced in thin film diamond by swift heavy ions', *Diamond Related Material*, **75**, (2017) 161-168.

[学会発表](計 9 件)

- 1) T.Kamiya, T.Satoh, M.Koka, S.Onoda, T.Ohshima, T.Makino, W.Kada V.Grilj, N.Skukan and M.Jaksic, 'Development of single ion detection technique for microbeam applications', 8<sup>th</sup> international symposium on Bio-PIXE, 国際会議招待講演、2014年9月、スロベニア、ブレッド.
- 2) N.Skukan, W.Kada, N.Iwamoto, T.Kamiya, M.Jaksic, T.Ohshima, V.Grilj, M.Pomorski, 'Transmission diamond membrane detector and vacuum window for external microbeam', 14<sup>th</sup> international conference on nuclear microprobe technology and

- applications, 国際会議、2014年7月、イタリア、パドバ。
- 3) T.Ohshima, N.Iwamoto, M.Koka, S.Onoda, T.Makino, T.Kamiya, W.Kada, Y.Kabayashi, N.Hoshino, H.Tsuchida and K.Kojima, 'Development of diagnostic method for deep levels in semiconductors using charge induced by heavy ion', 14<sup>th</sup> international conference on nuclear microprobe technology and applications, 国際会議、2014年7月、イタリア、パドバ。
- 4) W.Kada, S.Onoda, N.Iwamoto, N.Hoshino, H.Tsuchida, T.Makino, Y.Kabayashi, O.Hanaizumi, M.Koka, T.Kamiya, and T.Ohshima, 14<sup>th</sup> international conference on nuclear microprobe technology and applications, 国際会議、2014年7月、イタリア、パドバ。
- 5) Y.Andoh, Y.Kabayashi, W.Kada, S.Onoda, T.Makino, S.Sato, H.Umezawa, Y.Mokuno, S.Shikata, O.Hanaizumi, T.Kamiya and T.Ohshima, 'Investigation of deep levels in diamond based radiation detector by transient charge spectroscopy with focused heavy ion microbeam', 2015 international conference on solid state devices and materials (SSDM2015), 国際会議、2015年9月、札幌。
- 6) T.Kamiya, W.Kada, Y.Kabayashi, T.Makino, S.Onoda, T.Ohshima, N.Iwamoto, S.Shikata, Y.Mokuno, H.Umezawa, M.Pomorski, V.Grilj, N.Sjukan, and M.Jaksic, 'Study of diamond membrane detector aiming at highly-efficient and position-sensitive particle detector for ion microbeam applications', 22<sup>nd</sup> international conference on ion beam analysis (IBA2015), 国際会議、2015年6月、Opatija, Croatia.
- 7) W.Kada, M.Sakai, M.Pomorski, N.Sjukan, M.Jaksic, S.Onoda, T.Ohshima, T.Kamiya and O.Hanaizumi, 'Development of radiation detector based on CVD diamond membrane with embedded living cell cultivation environment', The 12<sup>th</sup> international workshop on ionization radiation monitoring (IWIRM) 国際会議、2016年12月、大洗
- 8) S.Sato, T.Makino, T.Ohshima, W.Kada, V.Grilj, N.Sjukan, M.Jaksic, M.Pomorski, G.Vizkelethy, 'Transient current induced in thin film diamonds by swift heavy ions', 27<sup>th</sup> international conference on diamond and carbon materials, 国際会議、2016年9月、Le Corum, Montprillier, France.

- 9) 佐藤真一郎、牧野高紘、大島 武、G.Vizkelethy、神谷富裕、'ダイヤモンドの高速重イオン誘起過渡電流測定とポラリゼーション効果'、第64回応用物理学会春季学術講演会、2017年3月、横浜。

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

神谷 富裕 (KAMIYA, Tomihiro)  
群馬大学・大学院理工学府・教授  
研究者番号：70370385

### (2) 研究分担者

大島 武 (Ohshima, Takeshi)  
国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 先端機能材料研究部・上席研究員  
研究者番号：50354949

### (3) 研究分担者

鹿田 真一 (SHIKATA, Shinichi)  
関西学院大学・理工学部・教授  
研究者番号：00415689

### (4) 研究分担者

加田 渉 (KADA, Wataru)  
群馬大学・大学院理工学府・助教  
研究者番号：60589117

### (5) 連携研究者

佐藤 隆博 (SATO, Takahiro)  
国立研究開発法人量子科学技術研究開発

機構・高崎量子応用研究所 放射線高度利用施設部・上席研究員  
研究者番号：10370404

(6)連携研究者

小野田 忍 (ONODA, Shinobu)  
国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 先端機能材料研究部・上席研究員  
研究者番号：10370404

(7)連携研究者

空野 由明 (MOKUNO, Yoshiaki)  
国立研究開発法人産業技術総合研究所・先進パワーエレクトロニクスセンター・チーム長  
研究者番号：60358166