

散乱陽子 - ガンマ線同時計測による炭素分析法の開発(2)

Ion beam analysis of carbon by means of coincidence detection of scattered proton and gamma ray (2)

安田啓介^{*1}、石神龍哉^{*1}、伊藤慶文^{*1}

Keisuke YASUDA, Ryoya ISHIGAMI and Yoshifumi ITO

Abstract

Depth profile of carbon in a sample that simulated a high-energy carbon implantation have been determined using a $^{12}\text{C}(p,p)$ reaction. The sample consisted of a silicon foil with a thickness of about 7 μm on a SiC substrate. The measured depth profile agreed with a result obtained with a surface-profile-measuring system, and the carbon concentration was consistent with the nominal value of SiC.

要約

高エネルギーイオン注入を模擬した試料を、陽子炭素非弾性散乱を用いたイオンビーム分析法で分析を行い、深さ方向に対する炭素密度分布を測定した。試料は炭化シリコン基盤上に厚さ7 μm のシリコンを成膜することによって作成した。分析結果は、深さ分布については触針式表面形状測定器での測定と、炭素密度については炭化シリコンの公称値とそれぞれ一致した。

I. 緒言

物質中の炭素の分析は材料科学、生物学、冶金学等のさまざまな分野で重要であるにもかかわらず、その分析手法は限られている。我々はこれまでにイオンビームを用いた新しい炭素分析法として、陽子炭素非弾性散乱からの散乱陽子とガンマ線を同時計測することによって炭素を分析する手法を開発してきた^{1,2)}。 $^{12}\text{C}(p,p)^{12}\text{C}^*(4.4\text{ MeV})$ 反応は散乱断面積が大きくガンマ線のエネルギーが高いため炭素の分析に適している。この反応からの散乱陽子とガンマ線を同時計測することによって材料中の炭素を選択的に分析することが可能となる。また、散乱断面積が広いエネルギー範囲に渡って調べられているため、定量的な分析が可能である。また、高エネルギー(8~10MeV)の陽子を入射粒子として用いることによって、表面から20 μm 程度までの深い領域までを非破壊で分析することが可能になる。我々は本手法を高エネルギー炭素イオン注入試料、あるいは鉄鋼材料の浸炭、脱炭の観察に適用することを考えている。本研究では、高エネルギー炭素イオン注入試料の分析可能性を検討するために、多種類イオン同時成膜装置を用いてこれを模擬した試料を作成して分析を行った。

II. 実験

1. イオン注入模擬試料の作成

イオン注入試料を模擬した試料として、炭化シリコン基盤にシリコンを成膜した試料を作成した。試料作成は若狭湾エネルギー研究センターの実験室6にある多種類イオン同時成膜装置のマグネトロンスパッタ装置を用いて行われた。炭化シリコン基盤の大きさは10mm×10mm、厚さは0.26mmだった。成膜時間は12時間とした。成膜されたシリコンの厚さは触針式表面形状測定器(DEKTAK3ST)を用いておよそ7 μm と測定された。作成された試料を図1に示す。

^{*1} 研究開発部 エネルギー材料グループ

本研究は、(財)若狭湾エネルギー研究センターが電力3社(関西電力、日本原子力発電、北陸電力)の受託研究として実施した。



図 - 1 作成した試料の写真

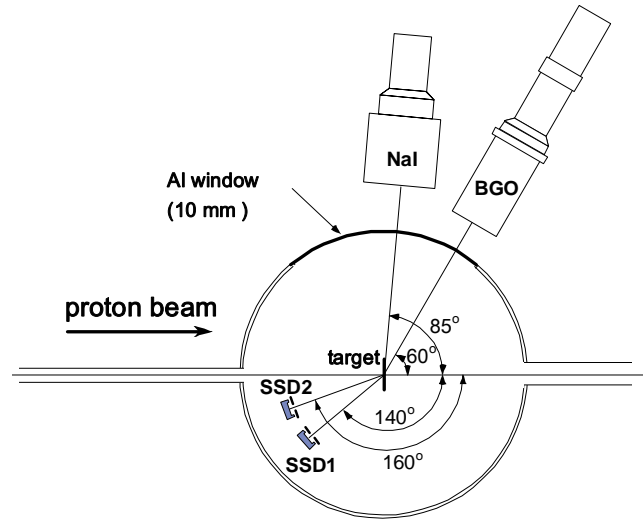


図 - 2 分析実験のセットアップ

2. 試料のイオンビーム分析

実験は若狭湾エネルギー研究センターW-MAST (The Wakasa Wan Multi-purpose Accelerator with Synchrotron and Tandem)のイオン分析コースで行われた。図 - 2 にセットアップの概略図を示す。入射ビームにはタンデム加速器で加速された 8 MeV 水素ビームを用いた。荷電粒子検出器には有感領域 300 mm^2 、空乏層厚さ 1 mm のシリコン半導体検出器 (ORTEC TA-017-300-1000-S) 及び有感領域 300 mm^2 、空乏層厚さ 0.5mm のシリコン半導体検出器 (ORTEC TA-014-300-500-S) を 1 台ずつ用いた。以後、前者を SSD1、後者を SSD2 と記す。シリコン半導体検出器は検出器ホルダーに取り付けられ、このホルダーを大型散乱層内に設置されているターンテーブルに取り付けた。検出器ホルダーの前面には $11.5 \text{ mm} \times 11.5 \text{ mm}$ の穴が開いたコリメータを取り付け、これによって立体角を制限した。測定試料とコリメータの距離は 151.5 mm であり、これから立体角は 5.76 msr と計算される。シリコン半導体検出器の角度は、SSD1 が 140° 、SSD2 が 160° となるようにターンテーブルを調整した。ガンマ線検出器には $76 \text{ mm} \times 76 \text{ mm} \times 152 \text{ mm}$ の BGO シンチレーション検出器 (SAINT-GOBAN 社製) 及び $\phi 102 \text{ mm} \times 102 \text{ mm}$ の NaI シンチレーション検出器 (ORTEC 社製) を 1 台ずつ用いた。角度は BGO 検出器が 60° 、NaI 検出器が 85° とした。陽子ビームを試料に照射した際に発生するガンマ線は、散乱槽のアルミニウム板 (厚さ 10 mm) を通して散乱槽の外で検出された。測定試料と BGO 検出器の距離は 280 mm 、NaI 検出器の距離は 301 mm であり、これらから立体角は BGO 検出器が $7.4 \times 10^{-2} \text{ sr}$ 、NaI 検出器が $9.0 \times 10^{-2} \text{ sr}$ と計算された。試料測定の際のビーム電流はターゲット電流を計測することによって測定した。ビーム電流はおよそ 1 nA であった。検出器からの信号処理には NIM 及び CAMAC モジュールを用いた。同時計数回路を組むことによって、荷電粒子とガンマ線の同時計数事象についてそれぞれの粒子のエネルギー及び検出器への到着時間を測定した。

III. データ解析及び結果

図 - 3 にシリコン半導体検出器で測定された荷電粒子のエネルギースペクトルを示す。ここでは、ガンマ線のエネルギーが 4.4 MeV 付近のイベントを選択している。200ch ~ 600ch に $^{12}\text{C}(p,p'\gamma)$ 反応からのイベントが見られる。

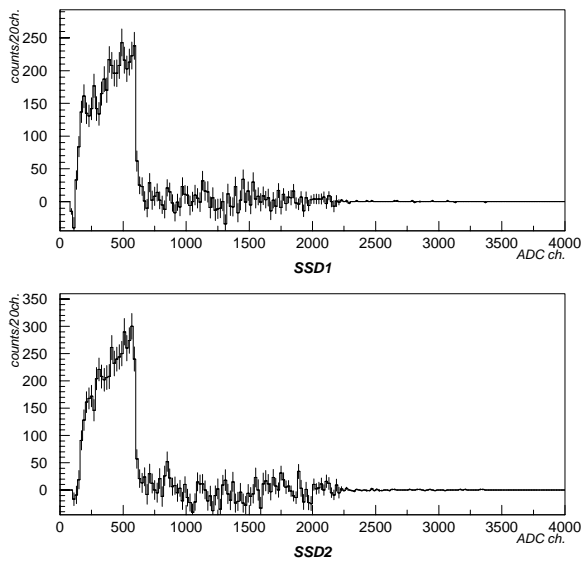


図 - 3 SSD で測定された荷電粒子のエネルギースペクトル。上が SSD1、下が SSD2 でそれぞれ測定されたもの。

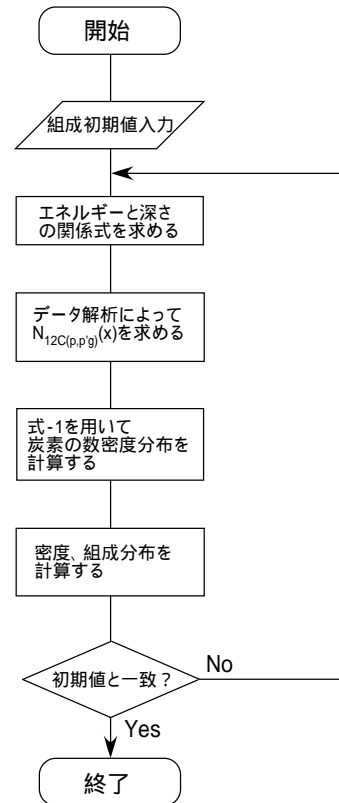


図 - 4 炭素深さ分布を求める計算のフローチャート

深さ x での炭素の数密度 は以下の式で求められる。

$$n_{12C}(x) = \frac{1}{\frac{d\sigma}{d\Omega}} \frac{N_{12C(p,p')}(x)}{N_{\text{beam}} \Delta\Omega_p \Delta x \varepsilon_{\text{COIN}} \varepsilon_{\text{DAQ}}} \quad (\text{式-1})$$

$$n_C(x) = \frac{n_{12C}(x)}{0.989} \quad (\text{式-2})$$

ここで、 $d\sigma/d\Omega$ は $^{12}\text{C}(p,p')(4.4\text{MeV})$ 反応の微分散乱断面積、 N_{beam} は入射ビーム数、 $\Delta\Omega_p$ はシリコン半導体検出器の立体角、 Δx は深さ分布を求める際のヒストグラムの幅、 $\varepsilon_{\text{COIN}}$ は同時計数効率、 ε_{DAQ} はデータ収集効率である。荷電粒子検出器の立体角は $\Delta\Omega_p = 5.76 \times 10^{-3}$ sr であり、深さ分布を求める際のヒストグラムの幅は $\Delta x = 1 \times 10^{-4}$ cm ($1\mu\text{m}$) とした。同時計数効率 $\varepsilon_{\text{COIN}}$ は炭素薄膜ターゲットの測定から SSD1 については 0.00638 ± 0.00008 、SSD2 については 0.00561 ± 0.00007 と求められた。また、入射ビーム数とデータ収集効率はそれぞれ $N_{\text{beam}} = 8.57 \times 10^{13}$ 個、 $\varepsilon_{\text{DAQ}} = 0.99$ だった。微分散乱断面積は Swint *et al.*³⁾ の値を用いた。炭素密度の深さ分布を求めるには測定された陽子のエネルギーを深さに変換しなければならない。エネルギーと深さ関係式は試料の組成、密度の関数である。そこで、はじめに組成、密度について適当な初期値を設定して、繰り返し計算 (iteration) によって密度分布を求めた (図 4)。計算の際に以下のような仮定をおこなった。

- 1) 炭素は $7\mu\text{m}$ より深い領域に存在する。

- 2) シリコンの数密度は深さによらず単体の値 ($n_{Si}=4.98 \times 10^{22} \text{cm}^{-3}$) とする。
 3) 組成が SiC_y のときの密度は以下のようになる (A_C, A_{Si} はそれぞれ炭素とシリコンの原子量)

$$\rho(x) = \left(1 + y \frac{A_C}{A_{Si}}\right) \times \rho_{Si} \quad (\text{式-3})$$

2) の仮定から y は以下のように求められる。ここで n_C は炭素の数密度である。

$$y = \frac{n_C}{n_{Si}} \quad (\text{式-4})$$

式-3 を用いると、 $y=1$ のときは $\rho = 3.31 \text{g/cm}^3$ となり、 SiC の密度 3.17g/cm^3 と合っている。1) ~ 3) の仮定により炭素の数密度が求められると、試料の組成、密度が決定される。

以上の手順で求めた炭素密度の深さ方向分布を図-5に示す。ここで、誤差は統計誤差である。またこれらのスペクトルについて重み付き平均を取ったものを図-6に示す。図-6に示した炭素密度の深さ方向分布で、炭素が測定された7~22 μm の平均値を求めたところ $(5.08 \pm 0.08) \times 10^{22} \text{cm}^{-3}$ となった。

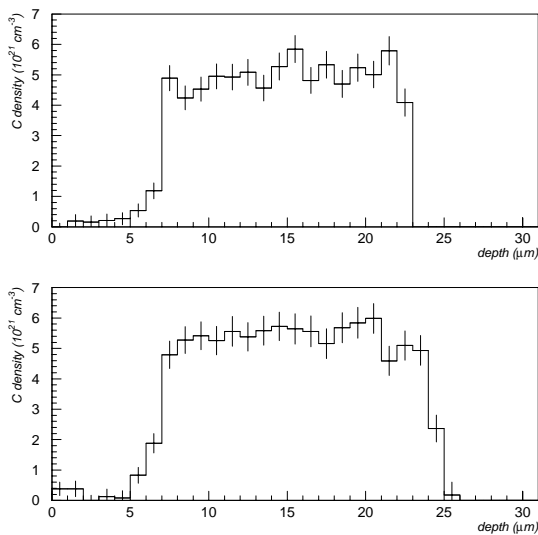


図-5 SSD1(上)及びSSD2(下)の測定で得られた炭素密度の深さ方向分布

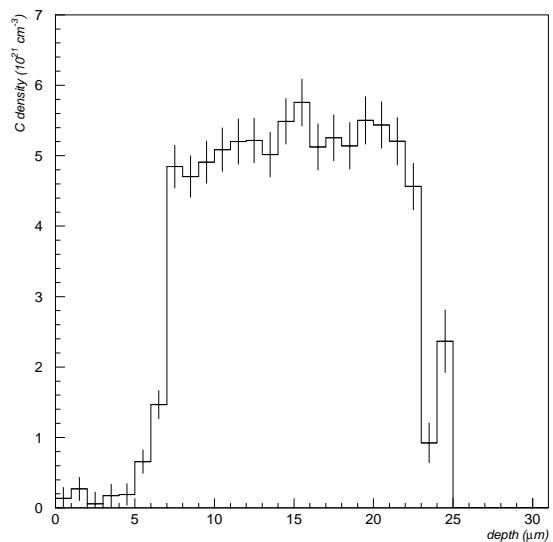


図-6 図-5の2つの分布の重み付平均を取ることによって得られた炭素密度の深さ方向分布

IV. 考察

図-5あるいは図-6から分かるように、炭素は表面から7 μm より深い領域に存在するという結果が得られた。これは触針式表面形状測定器(DEKTAK3ST)による測定結果と一致しており、本測定法で深さ分布が正しく測定できることを示すものである。

炭素が測定された領域では、炭素の密度分布はほぼ平坦であった。この部分は市販の SiC 結晶であるため、密度が一様であるというのは妥当な結果である。密度の平均値は $(5.08 \pm 0.08) \times 10^{22} \text{cm}^{-3}$ で、これは SiC の密度

の公称値 $4.75 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ と 10% の範囲で一致した。これは炭素密度が定量的に測定できていることを示している。それぞれの SSD ごとに炭素密度を求めると、SSD1 の測定では $(4.93 \pm 0.11) \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ 、SSD2 では $(5.40 \pm 0.12) \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ と SSD2 のほうが 9% 大きい値となった。この原因としては式 - 1 で用いた $^{12}\text{C}(p,p')$ 反応の微分散乱断面積の誤差が考えられる。 $^{12}\text{C}(p,p')$ 反応の 160° の微分散乱断面積の 140° のそれに対する比は、測定値では 1.14 であるのに対し Swint らの文献から読み取った値では 1.08 である。微分散乱断面積の比にはビーム電流量の誤差は影響を与えず、また検出器やコリメータの形状もまったく同じものを用いているため本研究の測定値の系統誤差は 1% 以下であると考えられる。また、統計誤差も最大で 0.2% 程度と小さい。即ち微分散乱断面積の比の値の誤差は小さいと考えられる。これに対して Swint らの文献には微分散乱断面積の数値の記載がなく、値をグラフから読み取ったため読み取りの誤差が生じている可能性がある。また、微分散乱断面積は入射エネルギーとともに変化するので、入射エネルギーの誤差が結果に影響を与えている可能性もある。 $^{12}\text{C}(p,p')$ 反応は入射エネルギーが 8.17 MeV に小さな共鳴を持つため、入射エネルギーが 8 ~ 8.2 MeV の範囲では微分散乱断面積が変化し、これに対して 7.6 ~ 8 MeV ではほとんど変化しない。このため入射エネルギーが 8 MeV より高いほうにずれている場合は微分散乱断面積が変化し、これが炭素の密度分布の誤差となる可能性がある。仮に 160° の微分散乱断面積が文献の値より $1.14/1.08=1.06$ 倍大きいものを用いて炭素密度を求めると $(4.98 \pm 0.12) \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ となり、誤差の範囲で 140° の測定結果と一致した。炭素密度を精度よく求めるには微分散乱断面積の高精度のデータとともに、入射エネルギーも精度良く知る必要がある。

V. まとめ

高エネルギーイオン注入試料を模擬した試料として、炭化シリコン基盤上にシリコンを成膜した試料を作成した。マグネトロンスパッタ装置を用いて炭化シリコン基盤上におよそ $7 \mu\text{m}$ の厚さのシリコンを成膜することに成功した。成膜されたシリコンの厚さは触針式表面形状測定器 (DEKTAK3ST) を用いて測定された。

作成された試料を陽子 - 炭素非弾性散乱を用いたイオンビーム分析法で分析し、炭素密度の深さ分布を求めた。測定では 2 台の荷電粒子検出器と 2 台のガンマ線検出器をそれぞれ用いた。散乱陽子とガンマ線の同時計数を行うことによって炭素からの非弾性散乱事象を選択的に測定した。測定から炭素は表面から $7 \mu\text{m}$ より深い部分に存在するという結果が得られ、これは触針式表面形状測定器による測定結果と一致した。炭素密度の測定結果は炭化シリコンの公称値と 10% の範囲で一致した。本研究によって陽子 - 炭素非弾性散乱を用いたイオンビーム分析法によって試料中の深い (数 ~ 20 数 μm) 部分に存在する炭素が定量的に測定可能なことが示された。

参考文献

- 1) K. Yasuda, S. Hatori et al., Nucl. Instr. and Meth. B 219-220, 425 (2004).
- 2) 安田啓介、平成 15 年度若狭湾エネルギー研究センター成果報告集, p16
- 3) J. B. Swint, A. C. L. Barnard et al., Nucl. Phys. 86, 119 (1966).