

平成 21 年 5 月 21 日現在

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2006～2008

課題番号：18360455

研究課題名（和文） 高検出効率・高速動作の化合物半導体 InSb 光子検出器開発と
その医療診断応用研究課題名（英文） Development of InSb compound semiconductor photon detector
with high detection efficiency and high counting rate
and its application to medical diagnosis

研究代表者

神野 郁夫（KANNO IKUO）

京都大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：50234167

研究成果の概要：化合物半導体 InSb 結晶を垂直ブリッジマン法及びゾーンメルト法で育成した。また、結晶の電気特性測定を行った。垂直ブリッジマン法で製作した結晶は、比抵抗値が高い値を示したが、X 線回折測定によりこれは結晶性が悪いためである事が分かった。一方、ゾーンメルト法で育成した結晶は、比抵抗値、Hall 移動度ともに、市販品程度の性質を示した。しかし、結晶性に関しては、市販品よりも劣っていた。これまでの成果を生かす事で、今後、より高い性能を持つ InSb 結晶の育成が見込まれる。その InSb 結晶を用いた光子検出器を医療診断に応用する。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006 年度	7,000,000	2,100,000	9,100,000
2007 年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
2008 年度	4,700,000	1,410,000	6,110,000
年度			
年度			
総計	15,200,000	4,560,000	19,760,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子力計測・放射線物理

1. 研究開始当初の背景

放射線検出器、特にX線やガンマ線を対象とする光子検出器としては、高い検出効率、高速動作、そして高いエネルギー分解能が望まれている。荷電粒子と異なり、光子が放射線検出器の母材と相互作用を起こすのは確率的な事象である。すなわち、光子が放射線検出器に入射しても、必ずしもその光子が測定されるのではなく、ある確率で相互作用を起こした場合に限られる。このため、光子がもたらす情報、例えば光子のエネルギースペクト

ルなど、をある統計精度で測定するためには、同じ統計精度で荷電粒子の情報を得る場合の数100倍、数1000倍の数の光子が光子検出器に入射する必要がある。

X線を用いて人体の透過画像を取得する場合にも同様であり、光子検出器の検出効率が高いほど、用いるX線の量が少なくて済み、人体への被曝量が減少する。また、少量のX線で測定可能ということは、より短い時間で測定ができることも意味する。これらの理由から、高い検出効率の放射線検出器が望まれる。光子と物質との相互作用は、物質を構成

する元素の原子番号の 4~5 乗と物質の密度に比例する。このため、検出器の母材としては、高原子番号、高密度の物質を用いることが望ましい。

短時間に光子のエネルギースペクトルを測定するためには、検出器の有感領域内部を電荷が素早く移動することが必要である。半導体検出器の場合には、有感領域は空乏層であり、光子によって空乏層に付与されたエネルギーが電子と正孔とに変換される。この電子と正孔とが電場に従って速やかに移動し、電荷収集され、次の光子入射に備えることが必要となる。このためには、電子と正孔の移動度が大きい物質を利用することが望ましい。検出器の出力を受け付け、増幅する前置増幅器、主増幅器の動作速度は、対象とする検出器に機能を特化し LSI 化することにより、現在の汎用増幅器よりも高速にすることができる。しかし、検出器の内部における電荷の移動は、電場の強さと移動度に支配されるため、検出器の母材の物性に依存する。

高検出効率の光子検出器母材としては、高い原子番号の元素からなる化合物半導体が有望である。これには、CdTe, CdZnTe, InSb などがある。いずれも平均原子番号は 50 であり、密度は 5.7gcm^{-3} 程度である。しかし、CdTe および CdZnTe においては、電子と正孔の移動度が小さい、特に正孔の移動度が小さいという欠点がある。このため、高速動作が不可能であるほか、正孔が捕獲されやすく、エネルギー分解能の劣化を招く。そこで、我々は、InSb に注目し、InSb 検出器の開発を行ってきた。化合物半導体 InSb は、原子番号が 49 と 51、密度が 5.78gcm^{-3} とともに大きい半導体であり、シリコンの 400~1000 倍、ゲルマニウムの 7~10 倍の光子検出効率が期待できる。また、温度 77K における移動度は電子が $78000\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 、正孔が $750\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ であり、それぞれシリコンの 40 倍と 5 倍である。さらには、バンドギャップエネルギーが 0.165eV であり、これは開発された半導体の中で最小の値である。このバンドギャップエネルギーから、シリコン検出器やゲルマニウム検出器の 2 倍程度のエネルギー分解能が期待できる。InSb の欠点は、バンドギャップエネルギーが小さいことから、放射線検出器として動作させるためには、冷却が必要なことである。

これまでに我々は市販の InSb ウエハを用いて、表面障壁型検出器、pn 接合型検出器を製作した。これらを用いて、Am-241 のアルファ粒子の測定や、Am-241 および Ba-133 のガンマ線測定を試みた。まだエネルギー分解能を議論できる段階ではないが、温度 0.5K から 115K までにおいて InSb 検出器の動作を確認できた。また、Ba-133 の 81keV のガンマ線のエスケープピークの観測ができた。これらの測定は、InSb 検出器にほとんどバイアス電圧を印加しない

条件で行った。これは、InSb ウエハの結晶性があまり良くないため、バイアス電圧を印加すると大きな電子雑音が発生するからである。この問題を解決すべく、InSb 結晶育成を我々自身が開始し、99.99% の InSb ショットを再結晶させて単結晶を育成することに成功した。

2. 研究の目的

医療分野において、CT 検査などを定期的に行うことで、癌の早期発見が可能である。しかし CT 検査は胸部レントゲン撮影の数 10~1000 倍の被曝量があるため、現状では定期診断に CT 検査を取り入れることは困難である。この状況を打開するには、検出効率が高い X 線検出器を用いることが必要である。InSb 検出器は上記目的に適合しており、開発が望まれる。

上記を達成するため、X 線及びガンマ線検出器の母材として有望な化合物半導体 InSb の高品質結晶育成を行い、InSb の電気特性を研究する。これを用いて高検出効率・高速動作の光子検出器を開発するとともに、CT 用検出器としての医療診断応用を図る。

3. 研究の方法

化合物半導体 InSb 結晶をゾーンメルト法および垂直ブリッジマン法で育成する。ウエハ化した結晶の電気的特性を Hall 測定装置で測定する。好ましいウエハを放射線検出器として加工し、電流-電圧特性を測定する。最終的には放射線検出を行い、検出器としての特性を評価する。

これまでは、石英アンブルに入れた In および Sb 試料から垂直ブリッジマン法を用いて単結晶育成を行ってきた。垂直ブリッジマン法は、数 10cm の電気炉の実効長さによって試料が高温になるため、格子欠陥が少ない結晶ができるという利点がある。一方、試料のほとんどの部分が溶融している状態となるため、結晶全体に不純物が含まれたままとなる。つまり、結晶の純化にはあまり適さない方法である。そこで、さらなる高純度結晶の育成のために、ゾーンメルト法を取り入れ、その後、垂直ブリッジマン法を行うこととする。

ゾーンメルト法とは、石英アンブルに入れた試料を水平に保持し、幅 1~2cm 程度のヒーターを石英アンブルの一端から他端へ移動させる方法である。ヒーター部分のみ試料が溶融し、ヒーターの移動とともに InSb が結晶化するので、不純物は常に溶融部分に残留する。このため、石英アンブルの一端から他端へと同じ方向に何度もヒーターを移動させることで、InSb 結晶内部の不純物濃度が減少していく。しかし、ゾーンメルト法では、

結晶の一部のみが溶融し、結晶化していくため、広い範囲にわたって一様な結晶を育成することができない。そこで、ゾーンメルト法によって不純物を結晶の一端に移動させた後、パーナーを用いて石英アンブルと InSb 結晶を溶融して、不純物が多い部分を切り離し、垂直ブリッジマン法のための新たな試料とする。この方法により、初期の石英アンブルの真空を破ることなく、ゾーンメルト法から垂直ブリッジマン法へ移ることができ、不純物濃度が低く、且つ、格子欠陥が少ない InSb 結晶が育成できる。原材料の純度が高いほどより高品質の InSb 結晶ができやすいため、99.9999%の In と Sb とを用いる。垂直ブリッジマン法の電気炉の他に、ゾーンメルト法のヒーター、およびヒーター駆動装置を用いる。InSb 結晶を切断しウエハとするためにワイヤソーを用いる。成長させた結晶の特性について、不純物測定は ICP-AES、ICP-MS、結晶性は XRD、SEM などの分析装置を用いて測定する。さらには、極微量の InSb を京都大学原子炉実験所の原子炉において中性子照射し、放射化分析による不純物測定も行う。この結果を結晶成長にフィードバックする。また、溶融塩法による結晶育成も試みる。不純物濃度が低く、格子欠陥が少ない、比抵抗値が大きい undoped 型 InSb 結晶の育成を目指す。

初年度は、高品質 InSb 結晶育成に力点を置くが、InSb 検出器の製作法の研究も行う。これまで市販の InSb ウエハを用いて、p 型ショットキー検出器、undoped 型ショットキー検出器、および pn 接合検出器を製作してきた。これらの中で、pn 接合検出器が最も高い抵抗値を持っていたが、検出器の表面から pn 接合部分の空乏層までには数 100nm 程度の距離があり、この不感部分において、特に低エネルギーの X 線が吸収されてしまい検出できない、という欠点がある。このため、製作も比較的容易なショットキー検出器の開発に重点を置くこととする。市販の直径 50mm のウエハを約 15mm 角に切断し、検出器基板とする。この基板の両面をエッチングする。これまでは、硝酸と乳酸の混合液や臭素メタノールを用いてきたが、フッ酸と過酸化水素水の混合液も利用する。この他にも、様々なエッチング液を使用してみる。エッチングの後、片面にフォトレジストを塗布し、電極領域を定義するため露光する。電極領域にショットキー電極用の金属を蒸着する。電極用金属として金を用いてきたが、さらに仕事関数が高い、金-パラジウム合金、パラジウム、また白金なども使用する。これまでに製作した InSb 検出器においてはリーク電流が大きく、バイアス電圧を印可できなかった。高品質の InSb 結晶を用いることでリーク電流の減少が見込まれるが、表面リーク電

流が大きい場合には、ガードリングを第 3 の電極として用いることも視野に入れる。もう一方の電極である抵抗性電極は、これまでは、InSb 基板の裏面全体を電極としてきたが、ショットキー電極に対応する同じ大きさの抵抗性電極を製作する方法を開発する。これは、

ショットキー側電極面積を小さくすることで電気容量を小さくし、信号・雑音比を大きくすることによってガンマ線の観測ができるようになったが、この結果、ショットキー電極が直径 1mm であるのに対し、抵抗性電極の面積が $15 \times 15 \text{mm}^2$ と非常に大きく、空乏層の形が平行平板状では無くなり、電気容量 - 電圧特性の結果から空乏層の厚さを評価することが困難であることが分かってきたためである。InSb 検出器の基本特性を解明するためには、空乏層が平板状であることが望ましい。

高品質の InSb 結晶ができ、ショットキー電極にバイアス電圧を印可できれば、電気容量過渡分光法により不純物濃度と不純物準位を求めることができる。どのような不純物が混入しているかが分かるため、この情報を InSb 結晶育成へフィードバックすることで、さらに高品質の InSb 結晶育成が可能となる。また、InSb に FET 構造を作ることにより、電子と正孔の移動度をそれぞれ求めることができる。この移動度の測定を温度の関数として行う。このためには、液体ヘリウム連続フロー式クライオスタットを利用する。

4. 研究成果

化合物半導体 InSb は、開発されている半導体中でバンドギャップエネルギーが最も小さい。このため、一般的に利用されている Si 検出器や Ge 検出器の 2 倍程度のエネルギー分解能が期待できる。また原子番号と密度が高いため、Si 検出器の 400~1000 倍、Ge 検出器の 7~10 倍の光子検出確率を持つ。さらに、電子と正孔の移動度が高いため、高速動作が期待できる。これまで市販の InSb ウエハを用いて放射線検出器を製作してきた。しかし、市販品は赤外線センサや磁場センサ用であり比抵抗値が小さい。このため電圧を印加することができず、空乏層が広がらない。この欠点を改善するために、内径 7mm の石英アンブル(純度 99.99%)を用い、InSb 結晶の育成を行った。まず、純度 99.9999%の In および Sb の原料中の不純物を除去するため、ゾーンメルト法を適用した。幅約 1cm のヒータを 5mm/h の速度で移動させた。以前は、ゾーンメルト法によって石英アンブルの末端に集中した偏析係数が 1 よりも小さい不純物のみを除去した。本研究では、まず偏析係数が 1 よりも小さい不純物を除去し、その後、石英アンブルの向きを変えて再びゾーンメ

ルト法を適用し、偏析係数が1よりも大きい不純物も除去した。その後、垂直ブリッジマン法により、単結晶育成を行った。石英アンブルを0.5mm/hで下降させた。育成したInSb結晶をワイヤソーでウエハとし、Hall測定により比抵抗値、不純物濃度などを測定した。

ゾーンメルト法により材料を純化し、垂直ブリッジマン法で単結晶化したウエハは、比抵抗値が市販品の100倍程度あったが、Hall移動度が小さい。これは結晶性が良くないためである。垂直ブリッジマン法は結晶育生に長時間を要すこともあり、ゾーンメルト法のみで、材料純化と単結晶化を行うこととした。このさい、ゾーンメルトの効果が大きくなるよう、石英アンブルの直径を2倍の15mmとした。育成したInSb結晶の長さ方向の中央部分のウエハにおいては、比抵抗値、Hall移動度がともに市販品と同等の値を示した。今後、ゾーンメルトの回数を増加するなどして、市販品よりも電気特性が良好な結晶を育成できる見通しが立った。

放射線検出器として電極を作製し、電流-電圧特性を測定し、良好な結果を得た。放射線を測定する試みは、今後行う。

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 5 件)

I. Kanno, S. Hishiki, Y. Kogetsu, T. Nakamura, M. Katagiri, "Averaged Currents Induced by Alpha Particles in an InSb Compound Semiconductor Detector", J. Nucl. Sci. Technol., Suppl. 5, 360-363 (2008). 査読有

I. Kanno, S. Hishiki, Y. Kogetsu, T. Nakamura, M. Katagiri, "Fast Response of InSb Schottky Detector", Rev. Sci. Instrum., 78, 056103-1-3 (2007). 査読有

S. Hishiki, Y. Kogetsu, I. Kanno, H. Yamana, "Bulk Growth of InSb Crystals for Radiation Detectors", Jpn. J. Appl. Phys., 46, 5030-5032 (2007). 査読有

S. Hishiki, Y. Kogetsu, I. Kanno, T. Nakamura, M. Katagiri, "First Detection of Gamma Ray Peaks by an Undoped InSb Schottky Detector", Nucl. Instrum. Method in Phys. Res., A559, 558-560 (2006). 査読有

I. Kanno, S. Hishiki, O. Sugiura, R. Xiang, T. Nakamura, M. Katagiri, "InSb

Cryogenic Radiation Detectors", Nucl. Instrum. Method in Phys. Res., A568, 416-420 (2006). 査読有

〔学会発表〕(計 9 件)

森田保成, 上川直紀, 小槻美幸, 神野郁夫, "ゾーンメルト法を用いた放射線検出器の母材としてのInSb結晶の育成と電気特性評価", 応用物理学会, つくば市筑波大学, 2009年4月1日。

森田保成, 上川直紀, 小槻美幸, 神野郁夫, "ゾーンメルト法によるInSb結晶の育成と評価", 研究会「放射線検出器とその応用」, つくば市高エネルギー加速器研究機構, 2009年1月27日-29日。

上川直紀, 森田保成, 神野郁夫, "InSb結晶の育成と評価", 第22回研究会「放射線検出器とその応用」, つくば市高エネルギー加速器研究機構, 2008年2月1-3日。

I. Kanno, "Feasibility of InSb Compound Semiconductor as the Substrate of High Energy Resolution, High Counting Rate Detectors", ICXOM 2007 Satellite Meeting of Micro Area Analysis by X-ray in Laboratory, Osaka, Japan, Sep. 26, 2007.

上川直紀, 森田保成, 神野郁夫, "放射線検出器の母材とする化合物半導体InSb単結晶育成と評価", 平成19年度放射線夏の学校, 福井県美浜町, 2007年8月1日-3日。

I. Kanno, S. Hishiki, Y. Kogetsu, T. Nakamura, M. Katagiri, "Averaged Currents Induced by Alpha Particles in an InSb Compound Semiconductor Detector", The Fourth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology, Seoul, Korea, Jul. 18-20, 2007.

古結義崇, 菱木繁臣, 神野郁夫, 中村龍也, 片桐政樹, "Undoped型InSbウエハを用いたショットキー検出器の速い応答性", 第21回研究会「放射線検出器とその応用」, つくば市高エネルギー加速器研究機構, 2007年1月31日-2月2日。

I. Kanno, S. Hishiki, Y. Kogetsu, T. Nakamura, and M. Katagiri, "Fast Response of Undoped Type InSb Surface Barrier Detector", 10th International Symposium on Radiation Physics, Coimbra, Portugal, Sep. 18-22, 2006.

菱木繁臣, 古結義崇, 神野郁夫, 山名元,

「InSb 放射線検出器を目指した母材の結晶育成とその電気特性」, 日本原子力学会 2006 年秋の大会, 2006 年 9 月 27 日 - 29 日 .

6 . 研究組織

(1)研究代表者

神野 郁夫 (KANNO IKUO)
京都大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 50234167

(2)研究分担者

山名 元 (YAMANA HAJIMU)
京都大学・原子炉実験所・教授
研究者番号: 30283683

(3)連携研究者

該当無し