

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 8 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26670296

研究課題名(和文) 高感度フラットパネル検出器を実現する新しいX線直接変換膜の開発

研究課題名(英文) Development of new X-ray direct conversion films for high-sensitive flat-panel detectors

研究代表者

人見 啓太郎 (HITOMI, Keitaro)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：60382660

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：高感度X線フラットパネル検出器を実現するために、X線に対して高い検出効率を有する化合物半導体臭化タリウム(TlBr)を用いた検出器の開発を行った。水平帯域精製法を用いて高純度のTlBrを得た。育成したTlBr単結晶上に微小ピクセル電極を形成することに成功した。真空蒸着法を用いてITOガラス基板上にTlBr薄膜の成膜を行い、薄膜検出器の製作を行った。成膜したTlBr薄膜は室温において高い抵抗率を示した。

研究成果の概要(英文)：Development of X-ray detectors using a compound semiconductor, thallium bromide (TlBr), was performed for realizing high-sensitive flat-panel detectors. High-pure TlBr was obtained by the horizontal zone purification method. Small pixel electrodes were formed successfully on TlBr single crystals. Thin-film detectors were fabricated from TlBr thin films deposited on ITO glass substrates by the vacuum evaporation method. The fabricated thin films exhibited high resistivity at room temperature.

研究分野：放射線計測学

キーワード：臭化タリウム フラットパネル検出器 X線 放射線

1. 研究開始当初の背景

近年の医用画像分野におけるデジタル化・IT化の流れの中で、X線のデジタル画像が直接得られるフラットパネル検出器が注目を集めている。アモルファスセレン(a-Se)を用いたフラットパネル検出器が実用化されているが、感度が低いという致命的な問題を抱えている。これはa-Seの原子番号、密度が低いという材料自体の問題である。このためa-Seに代わる直接変換膜材料の開発が強く求められている。

X線直接変換膜材料には①高検出効率のための高い原子番号と密度、②高感度のため的高い $\mu\tau$ 積(移動度-寿命時間積)、③良好なS/N比のための高抵抗率が求められる。表1は代表的なX線直接変換膜材料の比較である(D.G. Darambara, Nucl. Instr. Meth., A569, 2006.)。

表1. 代表的なX線直接変換膜材料の比較

	a-Se	PbI ₂	CdZnTe
原子番号	34	82, 53	48, 30, 52
密度(g/cm ³)	4.3	6.2	6.2
$\mu\tau$ 積(cm ² /V)	10 ⁻⁶ ~10 ⁻⁵	10 ⁻⁸ ~10 ⁻⁶	10 ⁻⁵

a-Seは原子番号、密度が低いが大面積の成膜が低温で容易にできることから実用化された。一方、沃化鉛(PbI₂)薄膜は安定性が悪く、CdZnTe薄膜は成膜温度が高く、低抵抗であるため実用化されていない。

臭化タリウム(TlBr)は高原子番号(81、35)、高密度(7.56 g/cm³)を持つ化合物半導体である。過去に直接変換膜用のTlBr薄膜の報告があるが、良好な特性が得られていない(P.R. Bennett et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., 46, 1999.)。近年、我々はTlBrに着目し、素材を純化することにより電子の $\mu\tau$ 積が $\sim 10^3$ cm²/V、抵抗率が $\sim 10^{10}$ Ω·cmを示す高品質のTlBr結晶の育成に成功し(K. Hitomi et al., Nucl. Instr. Meth., A579, 2007.)、高性能を示すガンマ線検出器の開発に成功している。このため、我々が開発した高純度TlBr結晶技術を用いる事により超高感度フラットパネルX線検出器を実現できる可能性がある。

2. 研究の目的

本研究は化合物半導体TlBrに着目し、高感度フラットパネル検出器を実現するX線直接変換膜材料の開発を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

本研究は高純度TlBrを素材として、TlBr単結晶を用いた検出器の開発およびTlBr薄膜を用いた検出器の開発という2つの着想に基づいて行われた。

(1) 素材の純化

高純度のTlBrを用いることが本研究の基盤となるため、研究期間全体において帯域精製法によるTlBr素材の純化を行った。

市販で入手可能な中で最も高純度な純度

99.999%のTlBrを素材として用いた。半導体材料の電荷輸送特性や抵抗率は材料の純度に大きく影響を受ける。特にX線検出器には高い電荷輸送特性と高い抵抗率が求められるため、本研究ではTlBr素材を臭化水素ガス雰囲気中で石英管に封入し、2つの熔融帯を持つ電気炉を用いて帯域精製法による素材の純化を行った。

(2) 単結晶TlBr上への微小ピクセル形成

水平帯域精製後に熔融帯を1つとして、電気炉の移動速度を減速させて帯熔融を1回行う事により単結晶TlBr結晶を得た。育成したTlBr結晶をダイヤモンドワイヤーソーを用いて切り出し、表面処理を行いTlBrウエハを得た。メタルマスクを用いて真空蒸着法によりTlBr結晶表面に微小ピクセル電極の形成を行った。

(3) 薄膜型検出器の製作

水平帯域精製法によって高純度化したTlBr素材を用いてTlBr薄膜の成膜を行った。図1は真空蒸着法によるTlBr薄膜成膜の概略図であり、図2は実際の真空蒸着装置内の写真である。

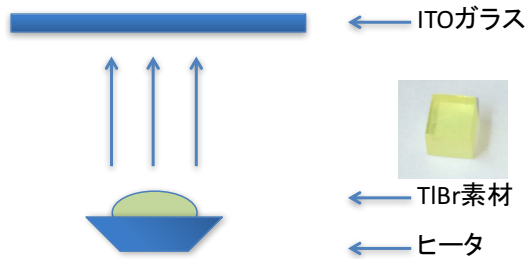


図1. 真空蒸着法によるTlBr薄膜成膜の概略図

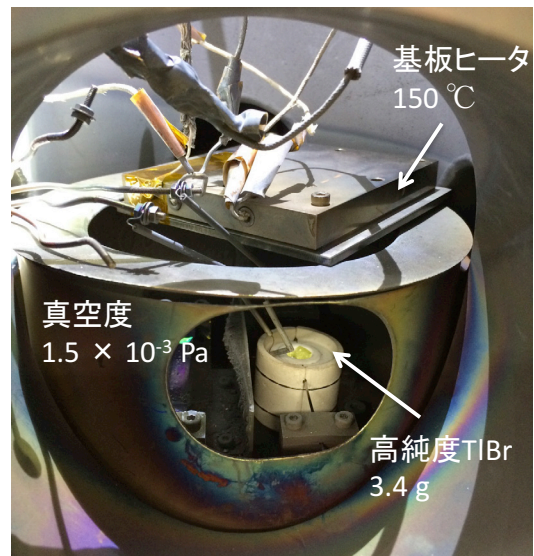


図2. TlBr薄膜成膜に用いた真空蒸着装置内

以下に TlBr 薄膜の成膜方法を述べる。帯域精製後の TlBr 素材の中で最も高純度である熔融開始部分をダイヤモンドワイヤーソーで切り出した。TlBr 素材の表面に付着している不純物を除去するためにエッチングを行った。その様にして得られた高純度 TlBr 素材をヒータに置いた。ITO ガラス基板を基板加熱ヒータ付きのホルダーに取り付けた。ITO ガラス基板の温度を 150°C、真空チャンバー内を 1.5×10^{-3} Pa の真空度とした。TlBr 素材を加熱することにより ITO ガラス基板の上に TlBr 薄膜を成膜した。

成膜した TlBr 薄膜を用いて TlBr 薄膜型検出器を製作した。図 3 は製作した TlBr 検出器の断面概略図であり、図 4 は検出器の実際の写真である。

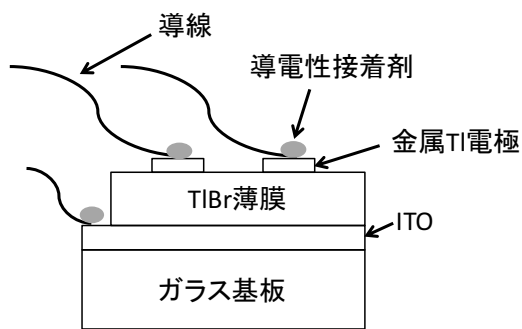


図 3. TlBr 薄膜型検出器の断面概略図

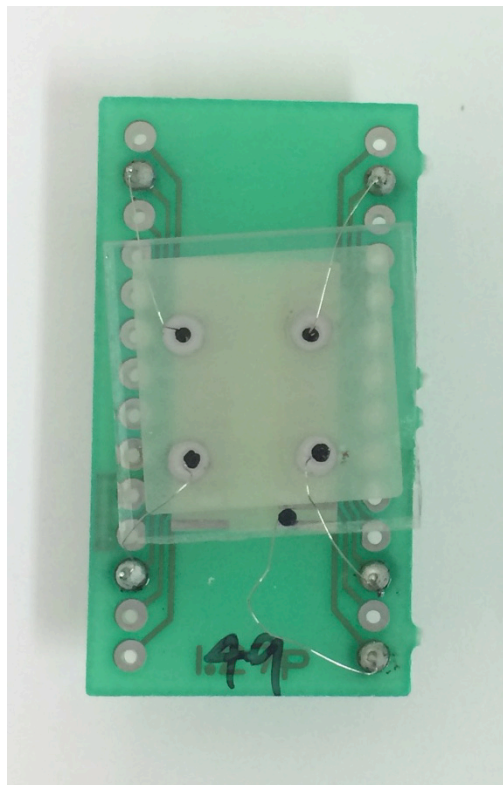


図 4. 製作した TlBr 薄膜型検出器

図 3 に示すように TlBr 薄膜の上に金属 Tl を真空蒸着することにより電極を形成した。ガラス基板上の ITO 電極と TlBr 薄膜上の金属 Tl 電極を導電性の接着剤を用いて導線と接続することにより検出器とした。

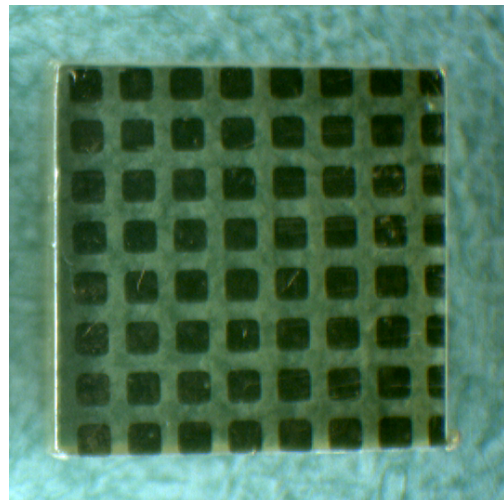
4. 研究成果

(1) 微小ピクセル電極形成

図 5 に微小ピクセル電極の形成を行った TlBr 単結晶の写真を示す。図に示すようにメタルマスクを用いた真空蒸着法によりピクセルサイズが $400 \mu\text{m}$ および $150 \mu\text{m}$ の微小ピクセル電極を TlBr 結晶上へ形成することに成功した。

TlBr は融点が 460°C と低く、大口径の結晶が成長しやすいという特徴がある。単結晶は薄膜に比べて電荷輸送特性が良好であるため、微小ピクセルを有する TlBr 単結晶はフラットパネル X 線検出器への応用に極めて有望であると考えられる。

ピクセルサイズ $400 \mu\text{m}$



ピクセルサイズ $150 \mu\text{m}$

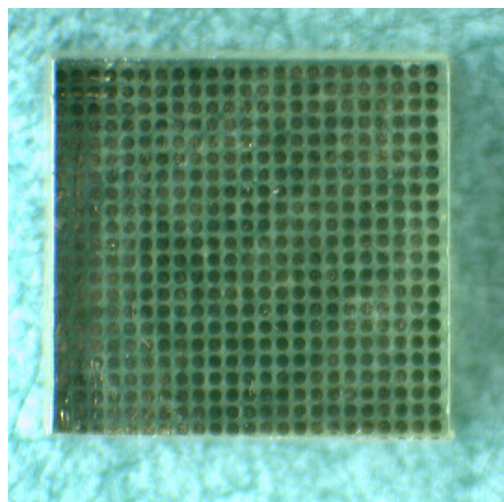


図 5. 微小ピクセルを形成した TlBr 単結晶

(2) TlBr 薄膜型検出器

本研究では ITO ガラス基板上に厚さ約 50 μm の TlBr 薄膜を成膜することに成功した。図 6 に TlBr 薄膜型検出器から得られた電流電圧特性を示す。図から分かるように本研究では室温において $7.6 \times 10^9 \Omega \cdot \text{cm}$ と高い抵抗率を示す TlBr 薄膜の成膜に成功した。

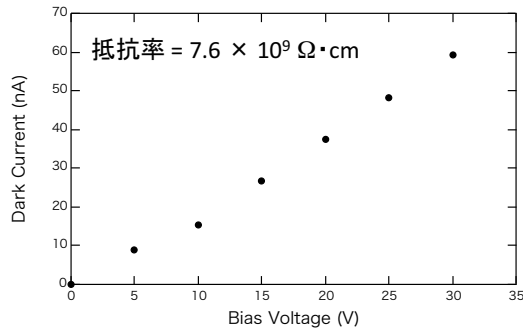


図 6. TlBr 薄膜型検出器の電流電圧特性

本研究は半導体を素材から製作し、X 線直接変換膜の開発に挑戦したものである。本研究により得られた TlBr を用いた X 線検出器の要素技術は今後の研究の展開によって、高感度・低価格の X 線フラットパネル検出器の実現に貢献するものと考えられる。

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)

[学会発表] (計 2 件)

- ① 人見 啓太郎、長野 宣道、伊藤 辰也、金 聖潤、石井 慶造、小野寺 敏幸、TlBr を用いた X 線検出器の開発 II、日本原子力学会「2015 年秋の大会」、2015 年 9 月 9～11 日、静岡大学 静岡キャンパス (静岡県・静岡市)
- ② 人見 啓太郎、小野寺 敏幸、金 聖潤、石井 慶造、TlBr を用いた X 線検出器の開発、日本原子力学会「2015 年春の年会」、2015 年 3 月 20～22 日、茨城大学 日立キャンパス (茨城県・日立市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

人見 啓太郎 (HITOMI, Keitaro)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：60382660

(2) 連携研究者

金 聖潤 (KIM, Seong-Yun)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：50574357

小野寺 敏幸 (ONODERA, Toshiyuki)