

平成 21 年 6 月 5 日現在

研究種目：若手研究(B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19760050
 研究課題名(和文) 結晶表面制御による高安定高分解能テルル化カドミウム半導体放射線検出素子の開発
 研究課題名(英文) Development of the high stability and high resolution CdTe radiation detector by the control of the CdTe crystal surface
 研究代表者
 山里 将朗 (YAMAZATO MASAOKI)
 国立大学法人 琉球大学・工学部・准教授
 研究者番号：10322299

研究成果の概要：本研究では、CdTe 半導体の結晶表面制御技術と電極形成技術の研究開発を行った。従来、In がショットキー電極として用いられてきたが、Al がショットキー電極として用いて素子を作製した。その結果、 ^{241}Am からの放射線計測において、半値幅が 1.5 keV 程度と高分解能素子の作製に成功し、In と同等以上の特性が得られることを示した。また、He プラズマによる表面処理及び硫黄処理を行うことにより、ポラリゼーション現象が大きく改善され、従来 3 時間程度の連続計測しか行えなかったものが、20 時間の連続計測が可能になることを示した。また、Al を電極として用いることにより、In 電極の時には難しかった電極分割が可能となり、素子のピクセル化が容易になることを明らかにした。さらに、Ti もショットキー電極として有効であることを示した。本研究で得られたこれらの表面処理及び電極作製技術の成果は、CdTe 放射線検出素子の作製プロセスにおいて、基盤的な技術になるものと考えている。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,700,000	0	1,700,000
2008 年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,100,000	420,000	3,520,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物理学一般

キーワード：放射線, X線, 粒子線; 電子デバイス・機器; 電子・電気材料

1. 研究開始当初の背景

現在医療用ガンマカメラとして用いられているシンチレーション検出器では、シンチレーター部に入射したガンマ線により生じた光子が、光電子増倍管で電気信号として増幅されて検出される。それに対して、半導体放射線検出器ではガンマ線が吸収されて直接電気信号へと変換され計測されるため、シンチレーション型のように光への変換が必要ではない。従ってシンチレーター型に比べて

検出器を大幅に小型化できる。また、空間分解能はシンチレーション型が約 3 mm 程度であるのに対し、画素を構成する半導体素子のサイズがそのまま空間分解能になるため、1 mm 程度を実現できる。さらに、シンチレーターでは約 10% であったエネルギー分解能も半導体では約 5% に改善する。しかし、従来の半導体放射線検出素子(Si, Ge)は、密度が小さいため、X線や γ 線に対する有効な検出効率を持つようにするのは難しく、かつ冷却を必

要とするため使用環境が限られている。そのため、医療やX線天文学等の分野において、室温程度で動作する高検出効率、高エネルギー分解能の放射線検出素子が強く望まれている。一方、化合物半導体の一種である CdTe はシリコンやゲルマニウムに比べて放射線の吸収効率が大きく、室温動作を可能とする十分なバンドギャップ (E_g : 1.5eV) を有する。そのため、骨密度計や、原子炉の放射線モニター、X線天文観測衛星などへ一部実現されている。しかし、一般の医療や工業用への高エネルギー分解能放射線検出素子としては実用化されていないのが現状である。この原因としては、CdTe の正孔の移動度が小さく、かつ寿命が短いため、放射線によって発生した正孔が電極に収集される前にトラップされることにある。この場合、信号の大きさは、放射線が反応を起こした検出素子中の位置(深さ)によって変化するため、決まったエネルギーの放射線に対するスペクトルは単一のピークにならず、低エネルギー側に幅広い裾を引いてしまい、素子のエネルギー分解能が低下する。したがって、高いエネルギー分解能を実現するためには、正孔を含めたキャリアの収集効率を上げる必要があり、そのためには、高いバイアス電圧を素子に印加することが必要となる。しかし、この高バイアス電圧印加に伴うリーク電流の増加によって雑音が増加するため、結果としてエネルギー分解能は低下してしまう。これまでに、ストリップおよびピクセルなどの電極構造の工夫や、In ショットキー電極の形成による高バイアス電圧印加時のリーク電流の低減など、エネルギー分解能の改善をはかる方法が提案されている。しかし、In ショットキー電極を形成した CdTe 放射線検出素子では高分解能の放射線検出特性が得られるが、動作時間が長くなると観測されるエネルギースペクトルのピーク強度の低下や半値幅の増大など、放射線検出性能が経時的に劣化するポラリゼーションと呼ばれる現象が発生し実用化に向けての新たな課題となっている。

2. 研究の目的

本研究では、上記課題を受け、従来の In 電極に代わる材料として Al と Ti を用いて作製する。さらに、硫黄処理及び水素プラズマ処理による CdTe 半導体の結晶表面制御技術とショットキー電極形成技術を開発することにより、ポラリゼーション現象を抑制し、高安定高分解能 CdTe 半導体放射線検出器を開発する事を目的としている。

3. 研究の方法

(1) Al, Ti を用いた CdTe/metal ショットキー素子構造の開発

従来の In を電極として用いた場合、In と Te

が合金化して界面構造が複雑になり、InTe_x-CdTe ヘテロ接合形成による pn 接合が存在していることを示す結果を得た。この事は、In/CdTe 界面において理想的なショットキー接合ができていないことを意味する。そこで In に代わる電極材料の研究を行う。本研究で用いる CdTe 結晶は p 型であり、In (仕事関数 $\phi_m = 4.12$ eV) と近い仕事関数を持つ Al ($\phi_m = 4.28$ eV), Ti ($\phi_m = 4.33$ eV) を用いたショットキー素子構造を開発し、その界面構造、電気的特性及び放射線検出特性を明らかにする。作製した素子と従来の In 電極を持つ素子との比較を行い、ポラリゼーション特性とショットキー接合状態との関係を調べる。

(2) CdTe 表面の欠陥及び表面準位の低減を目的とした硫化アンモニウムによる表面制御技術の開発。

同じ化合物半導体である GaAs において表面準位低減技術として用いられている硫化アンモニウムによる表面処理技術を CdTe 結晶においても適用する。従来、硫黄処理を施した CdTe 結晶の放射線検出特性の改善について報告はなされていなかった。そこで現在、CdTe(111)結晶の Cd 面へ硫黄処理を行い、放射線検出特性の評価を行っている。その結果、硫黄処理を行わなかった試料では放射線測定開始直後からポラリゼーションが顕著に現れ、30 分後には測定不可能となった。それに対し、硫黄処理を施した試料では、ポラリゼーションが抑制され、180 分後においても放射線測定が可能であるという結果を得た。10 時間以上の動作時間を目標として、硫化アンモニウムによる表面処理技術の最適化を行う。また、表面及び結晶内部の組成、結合状態を XPS により解析しショットキー接合との関係を調べ、放射線検出特性、ポラリゼーションを改善する。

(3) 水素プラズマ処理による深いアクセプタ準位密度の低減技術の開発。

CdTe 研磨行程において使用する Br-メタノール溶液により、CdTe 表面が Te リッチになる事がわかっている。この Te リッチ層を取り除くために、ドライプロセスである He プラズマ処理技術を既に開発している。このプラズマ処理において、He に代わり H₂ ガスを用いて処理を行う。これは水素が、ダングリングボンドの補償等によく用いられていることより、CdTe 結晶中の深いアクセプタ準位を補償する事を目的としている。また、同時に表面酸化層の除去や表面準位の低減を試みる。

4. 研究成果

(1) Al/CdTe/Pt 及び Ti/CdTe/Pt ショットキーダイオード素子の電流-電圧特性を図 1 に示す。

Al 及び Ti を用いた両方の場合で、良好な整流性が得られていることがわかる。これは従来用いられてきた In/CdTe/Pt 素子と同等の特性である。

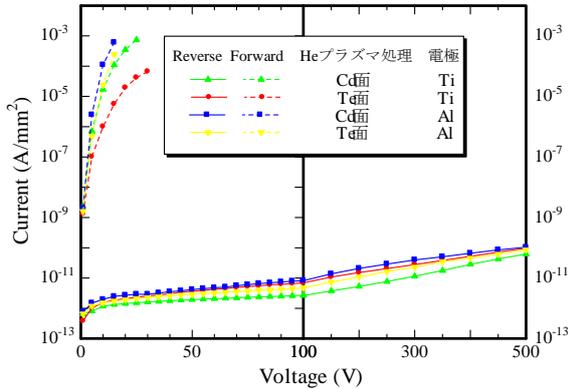


図 1. Al/CdTe/Pt, Ti/CdTe/Pt ショットキーダイオード素子の電流-電圧特性。

また、図 2 に Al/CdTe/Pt 及び Ti/CdTe/Pt ショットキーダイオード素子における放射線検出特性を示す。放射線源としては ^{241}Am を用いている。Al/CdTe/Pt 及び Ti/CdTe/Pt の両者とも、室温で 300 V 印加時の半値幅が 2 keV を大きく下回っており、極めて良好な放射線検出特性が得られた。これは従来の In/CdTe/Pt 素子の放射線検出特性と同等以上のものであり、Al 及び Ti が In に代わりうる有望なショットキー電極材料であることを示している。

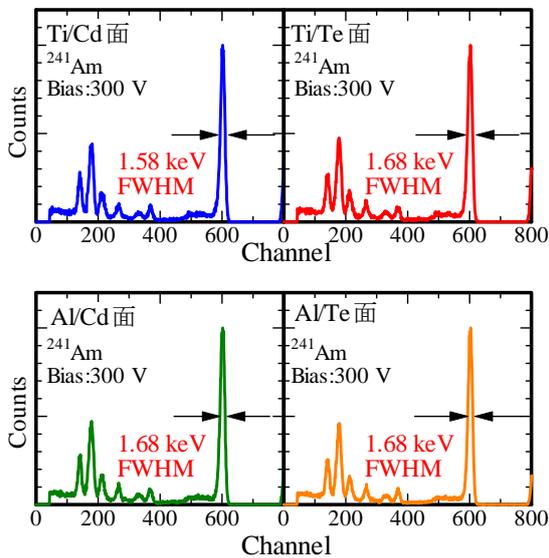


図 2. Al/CdTe/Pt, Ti/CdTe/Pt ショットキーダイオード素子の放射線検出特性。

(2) In/CdTe/Pt ショットキーダイオードにおいて、室温で放射線検出を行った場合、通常数時間でリーク電流が急激に増大し、検出特性が劣化するポラリゼーション現象が観測

される。そこで背景に述べたような理由で、CdTe 表面をいおう処理することにより、ポラリゼーション現象の改善を試みた。

CdTe(111)Te 面に 0.6%の硫黄濃度で処理を行った後に、Al ショットキー電極を形成して Al/CdTe/Pt ショットキーダイオードを作製した。この素子の放射線検出特性の時間依存性を図 3 に示す。

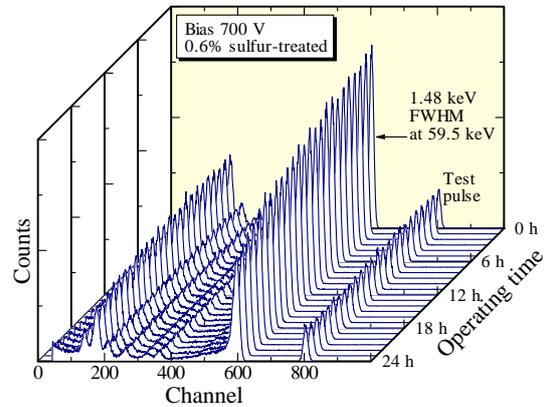


図 3. 硫黄表面処理して作製した Al/CdTe/Pt ショットキーダイオードにおける放射線検出特性の時間依存性。

図より、硫黄処理した素子においては、20 時間経過後も、放射線検出特性に顕著な劣化は見られず、室温に置いて長時間計測が可能であることがわかる。これは通常未処理の素子が 2 時間程度で計測不可能になるのと比較して、大幅に放射線検出特性が改善されたことを示している。硫黄処理は CdTe 放射線検出素子に極めて有効な表面処理であるほか、真空プロセスを必要としないことから、実際の製品製造プロセスにおいても有用であると考えられる。

(3) 水素プラズマ処理を行って作製した Al/CdTe/Pt ショットキーダイオード素子の放射線検出特性を図 4 に示す。今までに、良好な放射線検出特性を得るためには、電極形成前の CdTe 表面組成が、ほぼ化学量論比にならないといけないことがわかってきた。しかし、水素プラズマ処理を行った試料においては、表面組成が Te/Cd=0.68 と Cd リッチな状態になっていても、図 4 に示すように良好な特性が得られた。この原因としては、CdTe 結晶のホールトラップ準位が、 H_2 プラズマ処理により補償されたため、放射線検出特性が改善された可能性が考えられる。他には Cd リッチ層の存在によるショットキー障壁高さの増加も考えられる。Mason 等は、Cd/CdTe 接合ショットキーダイオードにおいて、ショットキー障壁高さが、0.92 eV になることを報告している。本研究

においても、表面に Cd リッチ層がある場合、Al/Cd-rich/CdTe 接合が形成されることでショットキー障壁高さが増加した結果、放射線検出特性が改善した事も考えられる。今のところ、水素プラズマ処理による放射線検出特性の改善が、どの原因によるものかまだ明かではない。

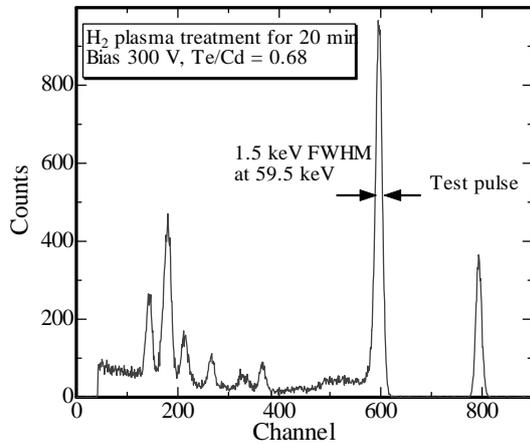


図 4. 水素プラズマ処理を行って作製した Al/CdTe/Pt ショットキーダイオード素子の放射線検出特性。

今後、表面組成が化学量論比からずれて Cd リッチの場合でも特性が改善されるメカニズムを詳しく調べる予定である。また、硫黄処理やプラズマ処理を組み合わせ、より高安定・高分解能 CdTe 放射線検出素子の開発につなげる事を考えている。

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 5 件)

① Masaaki Yamazato, Tetsuya Yamauchi, Ryoichi Ohno and Akira Higa: “Effect of Sulfur Treatment on the γ -ray Detection Quality of Al/CdTe/Pt Schottky Diode”, 2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, pp.246-249, 2008, 査読無し

② Shin Watanabe, Shin-nosuke Ishikawa, Shin'ichiro Takeda, Hirokazu Odaka, Takaaki Tanaka, Tadayuki Takahashi, Kazuhiro Nakazawa, Masaaki Yamazato, Akira Higa, and Sakari Kaneku, “New CdTe Pixel Gamma-Ray Detector with Pixelated Al Schottky Anodes”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol.46, pp. 6043-6045, 2007, 査読有り

③ Akira Higa, Ikumi Owan, Hiroyuki Toyama, Masaaki Yamazato, Ryoichi Ohno, and Minoru Toguchi, “Properties of Al Schottky Contacts on CdTe(111)Cd Surface Treated by He and H₂ Plasmas”, Jpn. J. Appl. Phys.,

Vol. 46, pp. 2869-2872, 2007, 査読有り

④ 比嘉晃, 山里将朗, 渡久地實, 富山広幸, 大野良一, “高分解能・高安定性 Al/CdTe/Pt 放射線検出素子の開発”, 放射線, Vol. 33, pp. 93-100, 2007, 査読有り

⑤ 山里将朗, 比嘉晃, 渡久地實, 大湾育美, 大野良一, “ショットキー電極形成における CdTe(111) 表面への水素プラズマ処理効果”, 放射線, Vol. 33, pp. 165-169, 2007, 査読有り

[学会発表] (計 7 件)

① 山内徹也, 高良朝一郎, 山里将朗, 大野良一, 比嘉晃, “CdTe(111)Cd 面および Te 面上への Al ショットキー電極形成における硫黄処理の効果 (II)”, 第 56 回応用物理学関係連合講演会, 2009 年 4 月 1 日, 筑波大学

② 高良朝一郎, 山里将朗, 大野良一, 比嘉晃, “テルル化カドミウム結晶上への Ti ショットキー電極の形成 (II)”, 第 56 回応用物理学関係連合講演会, 2009 年 4 月 1 日, 筑波大学

③ 山内徹也, 山里将朗, 大野良一, 比嘉晃, “CdTe(111)Cd 面および Te 面上への Al ショットキー電極形成における硫黄処理の効果”, 第 69 回応用物理学学会学術講演会, 2008 年 9 月 3 日, 中部大学

④ 高良朝一郎, 山里将朗, 大野良一, 比嘉晃, “テルル化カドミウム結晶上への Ti ショットキー電極の形成”, 第 69 回応用物理学学会学術講演会, 2008 年 9 月 3 日, 中部大学

⑤ 兼久盛, 白木弘幸, 比嘉晃, 山里将朗, 高橋忠幸, 渡辺伸, 石川真之介, 青野博之, “CdTe 検出器のアノード分割プロセス検討”, 第 69 回応用物理学学会学術講演会, 2008 年 9 月 3 日, 中部大学

⑥ 山入端悟, 山内徹也, 山里将朗, 大野良一, 比嘉晃, “CdTe(111)Te 面上への Al ショットキー電極形成における硫黄処理の効果 (II)”, 第 55 回応用物理学関係連合講演会, 2008 年 3 月 29 日, 日本大学

⑦ 山入端悟, 山内英, 山里将朗, 大野良一, 比嘉晃, “CdTe(111)Te 面上への Al ショットキー電極形成における硫黄処理の効果”, 第 68 回応用物理学学会学術講演会, 2007 年 9 月 6 日, 北海道工業大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山里 将朗 (YAMAZATO MASAAKI)

琉球大学・工学部・准教授

研究者番号: 10322299

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし