

令和元年6月28日現在

機関番号：13101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2018

課題番号：15K13482

研究課題名(和文)高感度有機半導体放射線検出器の開発

研究課題名(英文)Development of high sensitivity radiation detector using organic semiconductor

研究代表者

宮田 等(Miyata, Hitoshi)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：80192368

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：素粒子物理学実験の分野で非常に重要な放射線検出器の1つにシリコン半導体検出器があるが、これは高純度無機結晶を用いており高価で大型化が難しい。本研究では有機化学合成で安価・大量に作れる有機半導体に着目し、これをセンサとした放射線検出器の開発を行った。センサ感度を向上し、実用化の目安である線1個を20%以上の検出効率で検出することを目標とした。センサ作製のパラメータを調整しながら、各種センサを試作・測定した。その結果、線、線以外にも、線、宇宙線 μ 粒子の検出に成功した。また、本研究前は不可能であった数%以上の検出効率を達成し、作製の歩留まりも改善した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ポリアニンなど空気中での安定性に優れた導電性高分子を用いた有機半導体放射線センサについて、これを用いて線、線、線などの放射線1個をリアルタイムで捕らえることができる放射線検出器の開発は、国内はもとより国外でも、本研究以外には行われていない。この有機半導体放射線検出器が実用化すれば、素粒子物理学実験への応用のみならず、放射線医学、原子力、環境放射線モニタなどの幅広い分野へ応用でき、十分な意義がある。実用化の目標値として設定している線検出効率20%まで、あと一歩のところまで来ている。

研究成果の概要(英文)：Inorganic semiconductor radiation detectors using silicon crystals are one of the most important detectors for particle physics experiments. However, the detector using inorganic crystal needs the high purity monocrystalline to realize high performance. The sensor is expensive and therefore making a large detector is difficult. To solve this problem, we had an idea to use the electroconductive polymer as an inexpensive semiconductor material. A cheap, large-scale detector can be realized if succeeding in developing the new semiconductor detector that uses the electroconductive polymer.

The performance evaluation of the developed prototype detector is shown in this report. We detected the rays and the cosmic rays with this detector besides the , rays. The detection efficiency of several % or more was realized, and the yield of making the sensor of high efficiency was also improved.

研究分野：高エネルギー物理学実験

キーワード：有機半導体 放射線検出器 導電性高分子

1. 研究開始当初の背景

素粒子物理学実験の分野で使用されている非常に重要な放射線検出器の1つにシリコン半導体検出器がある。この検出器は、小林・益川両博士のノーベル賞で有名な物質・反物質非対称性の測定を行った BELLE 実験において、最も重要な検出器の1つである。しかし、このシリコン半導体検出器は超高純度無機結晶を用いていることから、高価であり大型化が難しいという欠点がある。申請者はこの問題を解決するために、有機化学合成によって安価で大量に作ることができる有機物半導体に着目し、これをセンサとして用いた放射線検出器の開発を行ってきた。

(1) 国内・国外の研究動向

ポリチオフェン、ポリアニリンなどの有機物半導体を放射線センサとして用いたリアルタイム放射線検出器の開発は、素粒子物理学実験の分野に限らず他分野でも、国内はもとより国外でも、ほとんど行われていない。

(2) 着想に至った経緯

シリコン半導体検出器に取って代わる有機半導体検出器を開発したいと考え、安価で大面積、大体積で使用できる有機半導体センサの開発を導電性高分子メーカーの研究者と共同研究してきた。その結果、市販のシリコン・PIN フォトダイオードの約 1/50 程度の感度を持つセンサの開発に成功した。

2. 研究の目的

センサの感度を向上させ、最小電離損失粒子(MIP)とほぼ同等なエネルギー損失をするベータ線について、この1個を十分な感度で検出できるようなセンサーを開発する。現在の知見をもとにセンサ材料(有機物半導体、ドーパントなど)と形状を工夫し、センサを試作する。この性能を評価し新たな知見を得るといった繰り返しによって、センサ感度を向上させ、ベータ線1個を20%以上の検出効率で検出できるようになることを目的とした。

有機物半導体を用いた高感度の放射線センサや光センサが実用化すれば、安価で大面積や大体積で使用できる半導体検出器として、素粒子物理学実験への応用のみならず、放射線医学、原子力、環境放射線モニター、太陽電池などの分野への応用も期待でき、十分な意義がある。

3. 研究の方法

空気中で比較的安定な有機半導体であるポリアニリンなどを化学重合の手法によって、高純度で合成する。これをフィルム状、板状に成型する。有機半導体材料の種類、ドーパントの種類と量、センサの形状等を変えながら各種のセンサを試作する。これにアルファ線、ベータ線などを入射し、発生した電荷キャリアの信号を電荷積分型 ADC (アナログ・デジタル変換器)を用いて測定する。また粒子加速器を用いたビームテストの代わりに研究代表者の研究室で行うことができる宇宙線テストを実施する。これら、取得したデータの解析によって、検出器の性質や性能についての知見が得られる。この知見を基に新たな改良型センサーを試作し、テストする。この繰り返しによって有機半導体放射線検出器の高感度化を行い、最小電離損失粒子(MIP)と同様のエネルギー損失があるベータ線1個に対する検出効率が20%以上になることを目指して研究開発を行った。

4. 研究成果

平成 27 年度：

(1) 導電性高分子の製造企業において、有望な有機半導体であるポリアニリンなどを化学重合の手法によって、高純度で合成したものをを用いた。ポリアニリンなどを溶媒 NMP に混ぜ、乾燥後板状に成型し、表面に金蒸着を施して電極を形成し、信号読み出し用リード線を取り付けてセンサを完成した。次に、このセンサの電圧・電流特性を測定し、導電率を求めた。センサが絶縁体に近い導電率であることを確認した。

(2) 有機半導体材料の種類、導電率を左右するドーパントの種類と量、板厚などのセンサ形状等の有機半導体センサを試作するときのパラメータとなる量の値を変えながら、各種のセンサを試作した。このセンサに高速プリアンプ(1GHz)をつなぎ、バイアス電圧をかけて、放射線源ストロンチウム 90 からのベータ線を入射し、発生した電荷キャリアの信号を電荷積分型 ADC を用いたオンライン・データ取得システムによって測定した。上記の各種パラメータの値を調

整し、より高感度なセンサを試作した。これによって、ベータ線を約 5%の検出効率で捕らえることができるセンサを完成した。

平成 28 年度：

(3) 前年度に引き続き、更に詳しく有機半導体センサの性質を理解し、センサの各種パラメータの調整をするために、粒子加速器を用いたビームテストを行う予定であった。しかし、センサの性能が向上(ベータ線検出効率 5%程度)したこと、センサのパラメータの設定によっては、性能の時間変動が大きいことがわかったことから、センサの試作から性能評価結果がわかるまでの時間がかかるビームテストよりも、ベータ線源と高エネルギー宇宙線ミュ粒子によるテストを併用する方が能率的であると判断した。ベータ線源と ADC を用いてデータを取得し、試作センサのベータ線入射に対する出力電荷量や検出効率の入射位置依存性などを明らかにした。

(4) 線源テストで得られた高感度センサの出力電荷分布のデータには、ピークが現れるようになり、これを関数フィットすることで、エネルギー分解能や S/N 比などの量を初めて求めることができた。これらの解析を行うことで、有機半導体中の電荷の振る舞い(キャリア量のバイアス電圧依存性など)や有機半導体センサの放射線検出器としての性能に影響を与えるいくつかの条件(因子)について明らかにした。

平成 29 年度：

平成 28 年度と同様の研究開発を行った。

(5) 有機半導体センサーの性質を理解し、センサの各種パラメータの調整をするために、センサ試作から性能評価結果がわかるまでの時間がかかる加速器を用いたビームテストよりも、ベータ線源と高エネルギー宇宙線によるテストを併用する方針にした。ベータ線源と ADC を用いてデータを取得し、試作センサのベータ線入射に対する出力電荷量や検出効率の安定性などを明らかにした。また、宇宙線テスト用の大型センサを試作し、検出効率の位置依存性などを評価した。

(6) 線源テストで得られた高感度センサの出力電荷分布のデータ解析を行うことで、有機半導体中の電荷の振る舞い(キャリア量のバイアス電圧依存性など)や有機半導体センサの放射線検出器としての性能に影響を与えるいくつかの条件(因子)について明らかにした。

(7) 宇宙線ミュ粒子を用いたテストのための大型センサの改良を行うとともに、ミュ粒子用トリガーカウンターの製作など実験セットアップの準備を開始した。それまでに取得した実験データを解析することによって得られた、新型の試作検出器の性質や性能についての知見をもとに、有機半導体センサを用いた放射線検出器の性能をさらに向上させ、目標の検出効率に近づけた。

平成 30 年度：

(8) 有機半導体センサを作製する際にパラメータとなる半導体材料の種類や作製方法などを変化させながら様々なセンサを作製した。その結果、従来から検出していたアルファ線、ベータ線に加えて、ガンマ線の信号を明確に検出することに成功した。本研究を開始する前は、ベータ線検出効率 1%以上の性能を持つセンサを効率よく作製することはできなかった。しかし、現在では、数%以上の検出効率を持つセンサを作製することが可能となり、また検出効率 1~2%程度のセンサについては歩留まり良く作製できるようになった。

(9) センサ性能の長期安定性(1年以上)についても確認された。現段階の性能では、高性能が要求される素粒子物理学実験での使用は難しいが、センサ性能は以前より向上しており実用化レベルに入りつつある。実用化に向けた研究の1つとして、より大型のセンサを試作した。従来に比べて面積比が約2倍以上のセンサを作製し、性能評価を行いベータ線に対する検出効率として、3%という値が得られた。このセンサを用いてベータ線照射位置依存性を検証し、センサ作製時の材料の混合状態が性能に大きく影響することが分かった。さらに、従来のセンササイズでは観測が困難と考えられてきた宇宙線ミュ粒子の測定を、この大型センサを用いて行い、初めてその観測に成功した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1件)

Beta particle detection efficiency of the radiation sensor made from a mixture of polyaniline and titanium oxide,
M. Tamura, H. Miyata, M. Katsumata, K. Matsuda, T. Ueno, D. Ito, T. Suzuki,
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 828 (2016) 176-180.査読有

〔学会発表〕(計 4件)

Development of a new type semiconductor radiation detector using conductive polymer
E. Miyata (発表者), H. Miyata, K. Kakizaki, E. Fukasawa, H. Abe, A. Umeyama, M. Sato,
T. Suzuki, M. Tamura
10th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE10)
奈良春日野国際フォーラム 薨~I・RA・KA~ 2019年6月25日(火)~27日(木)
(主催: 応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会)

導電性高分子を用いた新型半導体放射線検出器の開発

宮田恵理 (発表者), 宮田等, 柿崎和貴, 深澤永里香, 梅山晃典, 佐藤誠, 鈴木崇民,
田村正明
日本物理学会 第74回年次大会(九州大学)2019年3月14日(木)~17日(日)

導電性高分子を用いた新型半導体放射線検出器の開発

宮田恵理 (発表者), 宮田等, 柿崎和貴, 深澤永里香, 梅山晃典, 佐藤誠, 鈴木崇民,
田村正明
応用物理学会 第66回春季学術講演会(東京工業大学)2019年3月9日(土)~12日(火)

導電性高分子を用いた新型半導体放射線検出器の開発

宮田恵理 (発表者), 宮田等, 柿崎和貴, 深澤永里香, 阿部弥哉, 梅山晃典, 佐藤誠,
鈴木崇民, 田村正明
日本物理学会新潟支部 第47回例会(新潟大学)2018年12月15日(土)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

〔その他〕

導電性高分子を用いた新型半導体放射線検出器の開発

宮田恵理 (発表者), 宮田等, 柿崎和貴, 深澤永里香, 阿部弥哉, 梅山晃典, 佐藤誠,
鈴木崇民, 田村正明
医学物理シンポジウム2019(新潟大学)平成31年3月22日(金)

6. 研究組織

(1)研究分担者

なし

(2)研究協力者

なし