

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月31日現在

機関番号：11201

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540292

研究課題名（和文）新世代化合物半導体による放射線検出器の開発研究

研究課題名（英文）Development of particle detector using a new generation compound semiconductor

研究代表者

成田 晋也（NARITA SHINYA）

岩手大学・工学部・准教授

研究者番号：80322965

研究成果の概要（和文）：

本研究では、代表的な新世代化合物半導体である窒化ガリウム(GaN)および酸化亜鉛(ZnO)を材料とした放射線検出器の開発を行った。実験では、これらの材料によって、検出器の基本素子となるダイオードを作製し、各種電気特性や粒子線入射に対する検出性能を評価した。その結果、 α 線やX線に対する高感度センサの開発に成功した。また、素子への陽子線照射による影響を評価したところ、照射量 10^{15} p/cm² 程度までは、大きな劣化は観られず、これらの材料の放射線損傷に対する高い耐性が示された。

研究成果の概要（英文）：

We developed a radiation detector using new generation compound semiconductor such as gallium nitride (GaN) and zinc oxide (ZnO). We fabricated the diodes with these materials and investigated the electrical properties and the performance in detection of incident particles. As a result, we succeeded in developing sensors with a high sensitivity for α -ray and X-ray. In addition, we irradiated the diodes with high energy proton beam, and investigated the effects on their electrical properties. We found that the electrical properties of the diodes did not change significantly under fluences up to 10^{15} p/cm². The result obtained in this study suggests the radiation hardness of these materials.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|-----------|---------|-----------|
| 2009年度 | 1,100,000 | 330,000 | 1,430,000 |
| 2010年度 | 1,300,000 | 390,000 | 1,690,000 |
| 2011年度 | 900,000 | 270,000 | 1,170,000 |
| 年度 | 0 | 0 | 0 |
| 年度 | 0 | 0 | 0 |
| 総計 | 3,300,000 | 990,000 | 4,290,000 |

研究分野：素粒子実験

科研費の分科・細目：物理学・素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理

キーワード：半導体検出器、放射線計測、放射線損傷、窒化ガリウム、酸化亜鉛

1. 研究開始当初の背景

現在の素粒子物理学実験分野では、各種物理パラメータの精密測定化にともない、使用

するビームが高強度化し、高放射線環境下での実験が必須となっている。そのため、そこで使用される検出器にも、放射線損傷に強い

材料が求められている。素粒子実験では、主に高精度の飛跡検出器としてシリコン(Si)半導体検出器が用いられているが、Si材料は放射線耐性の点で問題を抱えている。このような背景から、放射線耐性に優れた半導体検出器の開発は、本分野において現在最も重要な研究テーマの一つである。

一般に、半導体素子の放射線損傷は、材料の種類が本質的な決定要因となっており、放射線耐性に優れた半導体検出器の開発には、これまで使われてこなかった半導体材料を用いた検出器作製と評価が必須である。半導体素子における放射線損傷の基礎過程は、高密度電子-正孔対の生成に起因する動作状態の変化(電離効果)と、格子欠陥生成にともなう局在準位の影響(変位損傷効果)の二つに大別される。これらは、素子としての種類、構造、使用形態によって、その影響(信号雑音比や検出効率の低下など)の大小が異なる。このうち、粒子検出器において特に顕著となる変位損傷効果は、材料となる半導体のエネルギー帯構造と生成される格子欠陥の性質によって、その影響の大きさが決まる。

現在、既存の半導体材料に代わる新世代化合物半導体として、窒化ガリウム(GaN)に代表されるⅢ族窒化物半導体と酸化亜鉛(ZnO)半導体が注目されており、今後、あらゆる分野で、主要な半導体材料として両者が共存し応用展開されることが確実視されている。これら化合物半導体は、“原子間距離が短いため機械的に堅牢”、“化学的に安定・無毒”、“高速で動作する”、“禁制帯幅が広く(GaN:3.4eV、ZnO:3.3eV)高温でも安定動作する”といった多くの優れた特徴を持つ材料である。放射線耐性については、GaNの場合、そのエネルギー帯構造において、禁制帯が真空準位から見て深いところにあるため、放射線照射の際に生ずる格子欠陥に起因する局在準位が、禁制帯中ではなく、ほとんど伝導帯の中にある。そのため、電気伝導に対する影響が非常に小さいと考えられる。一方、ZnOは、常温アニリング効果が高い材料で、生成された格子欠陥の寿命が短いため、こちらも放射線損傷による素子性能への影響が小さいと考えられる。つまり、GaN、ZnOいずれも、放射線損傷に極めて強い材料といえる。

以上より、これらの化合物半導体は次世代の放射線検出器材料として極めて有望なものである。

2. 研究の目的

本研究では、基礎研究として従来進めてきたGaN半導体を用いた放射線検出器の開発をさらに発展させる形で、最新の高品質GaN基板による素子を作製する。その上で、半導

体素子としての電気特性や、放射線に対する種々の特性を系統的に調べ、検出器としての性能評価を重ねながら高性能実用粒子検出器開発を目指す。一方、ZnO半導体については、検出器の基となるダイオード素子を作製し、同様の特性評価を行いながら、その特徴を明らかにし、実際の用途や使用環境に合わせた有用性を検証する。さらに、これらGaNおよびZnO素子に対して高エネルギー陽子線を入射して、その積算照射量と特性変化の関係を定量的に調べ、これらの材料が放射線耐性に優れていることを実証する。

以上より、GaN、ZnOといった新世代化合物半導体の各種特性を総合的に検証する。また、特に素粒子実験分野での実用化の観点から、それぞれの材料の特徴的な優位性を明らかにしながら実用化への指針を得る。

3. 研究の方法

(1) GaN ダイオード素子

本研究ではn-SiC基板上にバッファ層を介して厚さ1800nmのu-GaN層を堆積させたGaN基板を用いてショットキー型ダイオードを作製した。ここでショットキー電極はNi/Au、オーミック電極はTi/Auとした。図1に本研究で作製したショットキーダイオードを示す。また、放射線センサとしての感度向上を念頭に、厚さ5μmの厚膜GaN基板に対して、素子作製プロセス条件の最適化を行った。

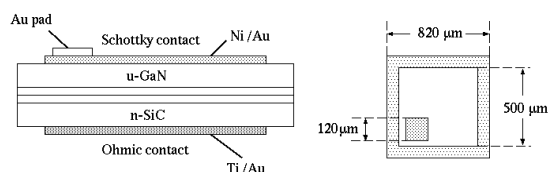


図1 GaN ショットキーダイオード

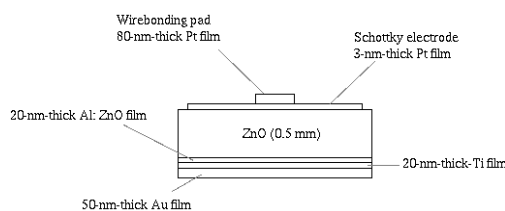


図2 ZnO ショットキーダイオード

(2) ZnO ダイオード

水熱法によって作製された厚さ500μmのバルクZnO基板を用いて、Pt電極によるショットキーダイオードを作製した。ここでは、抵抗値の異なる2種類の基板(標準抵抗基

板：~1000 Ωcm、高抵抗基板：>10¹⁰ Ωcm) を試した。図2に本研究で作製した ZnO ダイオードを示す。

(3) 電気特性評価

作製したダイオード素子に対して、以下の内容・方法による特性評価を行った。

①ダイオード素子の特性測定

作製した各ダイオード素子に対して、電流-電圧特性 (I-V 特性)、容量-電圧特性 (C-V 特性) 等の電気的特性を測定し、暗電流の大きさ、逆バイアス耐圧、基板の不純物濃度 (抵抗) を調べた。また、これら電気的特性を、環境温度を変えながら測定し、それぞれの特性の温度依存性を調べた。これによって、ワイドギャップ半導体の優位性と考えられている高温での安定動作性を検証した。さらに、光応答性、分光感度特性から、フォトダイオードとしての性能を調べ、作製したダイオードの品質評価を総合的に行った。

②放射線に対する検出性能評価

荷電粒子に対する検出性能を評価するために、²⁴¹Am 線源からの α 線をダイオードに入射し、信号の電荷分布 (ADC 分布)、エネルギー分解能、出力信号とダイオードへの印加電圧との相関等について評価した。また、ZnO 素子に対して、X 線管からの 50 keV 程度の X 線を照射し、その応答性を X 線管の強度、印加電圧等の条件を変えながら調べた。

(4) 陽子ビーム照射による放射線耐性評価

ダイオード素子に 20-70 MeV の陽子線を照射量 10¹²~10¹⁶ p/cm² の範囲で入射し、照射前後の特性の変化から影響を評価した。放射線損傷による検出器の性能劣化としては、暗電流の増加や生成電荷 (信号電流) の減少、さらに、これらに起因するエネルギー分解能および検出効率の低下が想定される。このうち本研究では、I-V 特性および C-V 特性の分布から、暗電流値、耐圧特性、キャリア密度の変化を調べた。

4. 研究成果

(1) GaN ダイオードの特性評価結果

I-V 特性測定結果より、本研究で作製した GaN ダイオードは暗電流が~10 nA/cm² 程度で、逆方向耐圧が-20 V 以下であった。この素子に対して α 線を入射したところ、感度を有することが確認されたが、実用検出器への展開のためには、信号雑音比の向上が必要で、そのためには、基板の厚膜化が必須である。これを受け、本研究では、厚さ 5 μm の GaN エピウェハによる素子作製を試みた。そこでは、反応性イオンエッチングなどを試しながら、熱処理や洗浄工程の条件の絞り込みとともに、作製プロセスの確立を図った。作製条件の最適化には未だ検討の余地があるが、厚

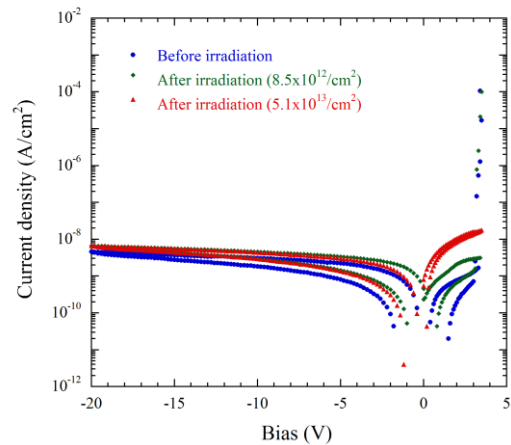


図3 陽子線照射前後の GaN ダイオードの I-V 特性

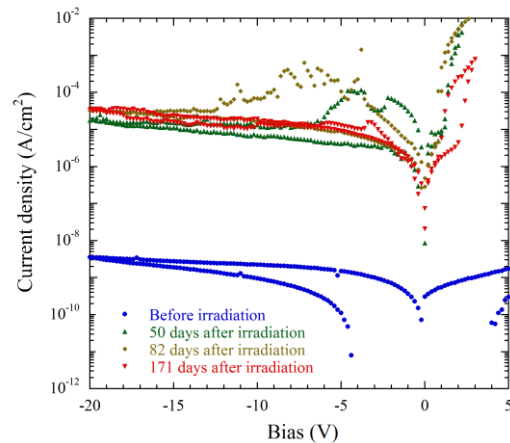


図4 陽子線照射 (3.1 x 10¹⁵ p/cm²) 前後の GaN ダイオードの I-V 特性とその経時変化

膜基板による検出器作製方法に対して、その方向性を明らかにし、技術基盤の確立を図ることができたといえる。

図3に 8.5 x 10¹² p/cm² および 5.1 x 10¹³ p/cm² の陽子を照射した GaN ダイオードの I-V 特性を示す。この図から、10¹⁴ p/cm² 以下の照射量では、照射前後で素子の電気特性に有意な変化は観られず GaN の高い放射線耐性が示された。図4に 10¹⁵ p/cm² 程度の陽子を入射した際の I-V 特性の変化とその後の経時変化を示す。これより、照射後に、暗電流が 10³-10⁴ 倍程度増加したことがわかる。また、順方向電流の増加も観測されている。この原因として界面準位密度の変化が考えられる。素子に界面準位が存在する場合、印加電圧が準位間に分圧され、ダイオード障壁領域への実効印加電圧が低下する。このことより、本実験では、照射前の素子に存在していた界面準位が陽子線照射によって消失し、そ

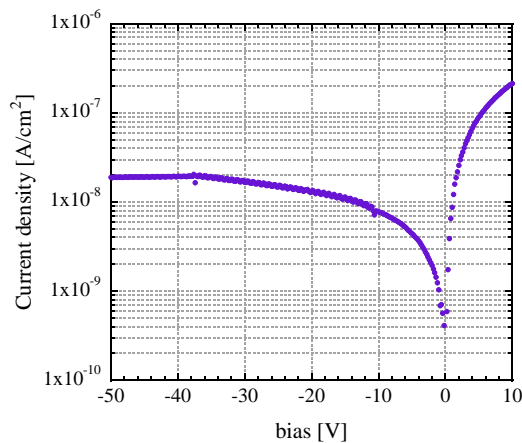
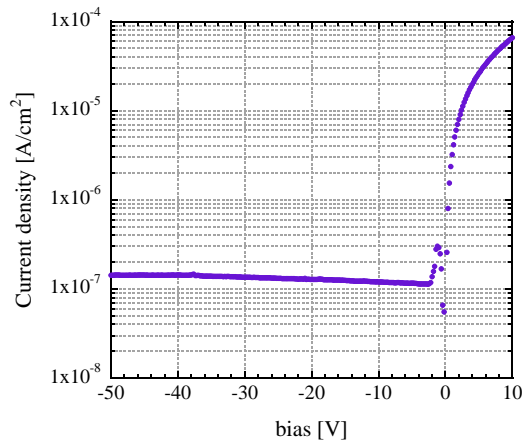


図5 ZnO ダイオードの I-V 特性
(上図：標準抵抗基板、下図：高抵抗基板)

の密度が減少したため、実効印加電圧が増加して順方向電流が増加したと考えられる。

特性の経時変化については、照射後 50 日および 82 日の時点では、暗電流の不安定な挙動が観測されているが、171 日後ではそのような挙動は観測されていない。これは、陽子線照射によって生成された局在準位が、時間経過とともに消失したためと考えられる。

(2) ZnO ダイオードの特性評価結果

図5に抵抗の異なる2種類の基板による ZnO ダイオードの I-V 特性を示す。これより、暗電流値は、標準抵抗基板で $\sim 100 \text{ nA/cm}^2$ 、高抵抗基板で $\sim 10 \text{ pA/cm}^2$ 程度と抑制され、逆方向バイアスに対する耐圧はいずれも -50 V 以下であった。

図6に高抵抗基板 ZnO ダイオードに X 線を照射した際の出力信号の電荷分布を示す。この測定では、ダイオードへの印加電圧は -50 V である。図より、X 線照射に対してダイオードから明確な信号が得られていること、また、X 線管の出力強度に応じて信号電荷が大きくなっていることから、作製した素子が、

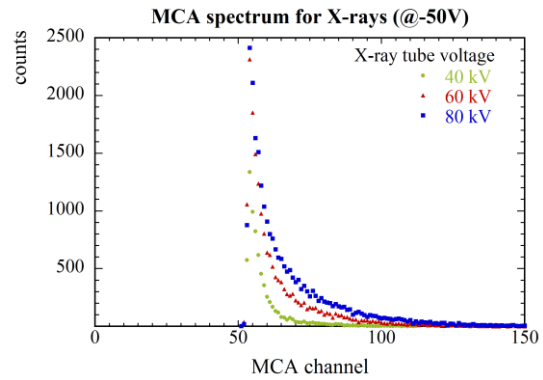


図6 X 線入射に対する ZnO ダイオードからの出力信号の電荷分布

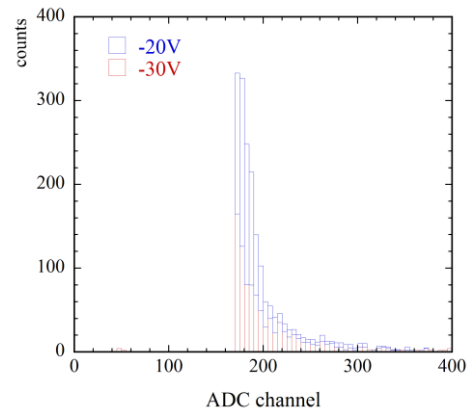


図7 α 線入射に対する ZnO ダイオードからの出力信号の電荷分布

スペクトロメータとしての性能を持つことが示された。

標準抵抗基板によるダイオード素子に α 線を照射した際の出力信号の電荷分布を図7に示す。素子への適正なバイアス印加によって、高感度で α 線を検出できることがわかる。また、印加逆バイアス増大にともなう空乏層幅の増加から、信号電荷が大きくなっていることがわかる。基板の耐圧性能の改良によって、さらなる信号雑音比の向上が見込まれる。

ZnO ダイオードに 20 MeV 陽子線照射を行い、特性変化を調べた結果では、積算照射量 $\sim 10^{14} \text{ p/cm}^2$ 程度までは、電気特性に有意な変化は観測されなかった。図8には、 $\sim 10^{15} \text{ p/cm}^2$ の陽子を照射した時の I-V 特性を示す。照射によって暗電流が約 10 倍増加しているが、その後、2 ヶ月程度の室温保管で、特性が照射前と同程度に回復することが確認された。これは陽子線照射によって生成された欠陥が消失したためと考えられる（低温アニリング効果）。以上の結果は、ZnO の放射線損傷に対する耐性の高さを示すものである。

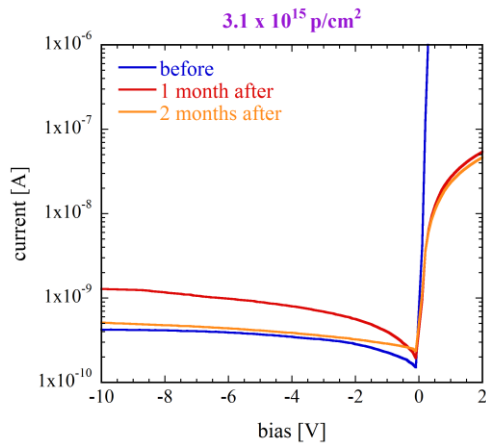


図8 陽子線照射 ($3.1 \times 10^{15} \text{ p/cm}^2$) 前後の ZnO ダイオードの I-V 特性とその経時変化

以上の研究成果より、GaN および ZnO とした新世代化合物半導体による放射線検出器開発の基盤が確立したと言える。また、素粒子実験物理学の観点から重要となる放射線損傷については、いずれの材料も、高い耐性を持つことが示された。実用性の向上には、基板の高抵抗化や厚膜化、欠陥・転位密度の低減と言った基板品質の改良が課題である。

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 4 件)

- ① Haruyuki Endo, Tetsuya Chiba, Kazuyuki Meguro, Kyo Takahashi, Mitsuru Fujisawa, Shigeki Sugimura, Shinya Narita, Yasube Kashiwaba, Eiichi Sato “Fabrication and characterization of a ZnO X-ray sensor using a high-resistivity ZnO single crystal grown by the hydrothermal method” Nucl. Instrum. Methods A, 665, 査読有, pp.15-18, 2011.
- ② S.Narita, D.Ichinose, Y.Nishibori, T.Hitoya, E.Yamaguchi, Y.Sakemi, T.Itoh, H.Yoshida “Proton Irradiation Effects for GaN Schottky Diode” CYRIC ANNUAL REPORT, 査読無, pp.25-29, 2010.
- ③ S.Narita, Y.Nishibori, H.Naito, H.Ito, H.Endo, T.Chiba, Y.Sakemi, M.Itoh, and H.Yoshida “Development of Radiation Sensor Based on Pt/ZnO Schottky Diode” 2011 IEEE NSS-MIC Conference Record, 査読無, pp.1729-1729, 2011.
- ④ S.Narita, Y.Chiba, D.Ichinose, T.Hitoya,

E.Yamaguchi, Y.Sakemi, T.Itoh, H.Yoshida “Evaluation of Radiation Hardness for Nitride Semiconductor” CYRIC ANNUAL Report, 査読無、pp.56-60, 2009.

[学会発表] (計 3 件)

- ① S.Narita, Y.Nishibori, H.Naito, H.Endo, T.Chiba, Y.Sakemi, M.Itoh, H.Yoshida “Development of Radiation Sensor Based on Pt/ZnO Schottky Diode” 2011 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, Valencia, Spain, 2011.10.26
- ② 西堀義美, 内藤裕貴, 一瀬大介, 成田晋也, 山田弘, 人羅俊実, 山口栄一, 山田省二 “窒化物半導体によるダイオード素子の特性評価” 平成 22 年度電気関係学会東北支部連合大会, 八戸工業大学, 2010.8.27
- ③ 一瀬大介, 成田晋也, 西堀義美, 山田弘, 人羅俊実, 山口栄一, 酒見泰寛, 伊藤正俊, 吉田英智 “陽子線照射による III 族窒化物半導体の放射線耐性評価” 平成 21 年度電気関係学会東北支部連合大会, 東北文化学園大学, 2009.8.21

6. 研究組織

(1) 研究代表者

成田 晋也 (NARITA SHINYA)
岩手大学・工学部・准教授
研究者番号：80322965

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

山田 省二 (YAMADA SYOJI)
北陸先端科学技術大学院大学・ナノマテリアルテクノロジーセンター・教授
研究者番号：00262593