

令和 7 年 4 月 29 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2024

課題番号：22K18717

研究課題名（和文）ペロブスカイト半導体を用いた粒子検出技術の創生

研究課題名（英文）Creation of particle detection technology using perovskite semiconductors

研究代表者

山中 隆志（Yamanaka, Takashi）

九州大学・基幹教育院・助教

研究者番号：90632357

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は太陽光発電などの分野で現在、注目度が増しているペロブスカイト半導体が放射線検出器としても応用可能なことに着目し、素粒子・原子核実験などの分野における半導体検出器の応用の幅を広げることを目的として開始した。実験室でも簡易に生成可能なメチルアンモニウム臭化鉛を用いた検出素子を製作し、その半導体としての性能を評価し、ガンマ線、ベータ線、アルファ線の検出に臨んだ。現行のメチルアンモニウム臭化鉛結晶ではこれらの放射線1粒子を有意に検出するのは困難という結果になったが、高強度のX線に対する感度は確認され、現行の品質の結晶においても応用可能な領域もあることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では太陽光発電などの分野で低コストかつ高い光電変換効率で注目されているペロブスカイト半導体を、その特徴を生かして放射線検出器として応用することを目指して実施した。ペロブスカイト半導体の1種であるメチルアンモニウム臭化鉛の単結晶を溶液から成長させて生成し、それを用いた放射線検出器を製作、性能評価を行った。ガンマ線、ベータ線、アルファ線といった代表的な放射線を1粒子単位で検出するのは困難という結果になった一方、高強度のX線に対する感度が示された。この結果は本手法により製作した放射線検出器の限界を示すとともに、このように簡易、安価な方法でも半導体放射線検出器が製作可能なことを示すものである。

研究成果の概要（英文）：This study focuses on the application of perovskite semiconductors, which are currently gaining attention in fields such as solar power generation, as radiation detectors. The research was initiated with the aim of expanding the application of semiconductor detectors in areas such as particle and nuclear experiments. A detection element using methylammonium lead bromide, which can be easily synthesized in a laboratory, was fabricated, and its performance as a semiconductor was evaluated for detecting gamma rays, beta rays, and alpha rays. The results indicated that the current methylammonium lead bromide crystal has difficulty in significantly detecting these individual radiation particles. However, sensitivity to high-intensity X-rays was confirmed, suggesting that certain applications may still be possible even with the existing crystal quality.

研究分野：素粒子実験

キーワード：ペロブスカイト半導体 メチルアンモニウム臭化鉛 放射線 ベータ線 X線 ガンマ線 アルファ線

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

素粒子、原子核、宇宙実験分野ではシリコンやゲルマニウムなどに代表される半導体を利用した放射線検出器が広く用いられている。これらの半導体を用いた検出器は高純度の結晶生成技術や、高精細の回路作成手法の確立により、高い検出効率やエネルギー、検出位置の分解能といった性能面では極めて優秀な特性を示す。その一方で、使用に際して冷却が必要であったり、単体での大型化の難しさ、高額な製作コストなど実験に適用する上での制限がある。

現在、太陽光発電などの分野で注目を集めているペロブスカイト半導体は、溶液から成長させた単結晶や塗布して生成した薄膜においても高い光電変換効率を得られることから低コストおよび大面積化が期待されている。太陽光発電と放射線検出の原理は同じことから、このペロブスカイト半導体も放射線検出器に応用可能である。また、ペロブスカイト半導体の別の特徴としてメチルアンモニウム臭化鉛 ($\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$) に代表されるように、構成元素に鉛などの重元素を含むことがある。これによりガンマ線などの高いエネルギー粒子に対しても高い吸収断面積を持ち、放射線検出に適した性質を持つ。

2. 研究の目的

本研究では素粒子、原子核、宇宙実験分野において必要不可欠な放射線検出器技術の利用拡大を目指し、近年、太陽光発電の分野などで注目されている新しい半導体素材であるペロブスカイト半導体を用いた放射線検出器の技術開発を行う。まずはペロブスカイト材料を用いた半導体素子としての性能を確認し、放射線検出器として使用した際の性能を評価し、最終的には検出器として使用可能な素子の製作を目指す。

3. 研究の方法

(1) ペロブスカイト半導体の代表的な物質であるメチルアンモニウム臭化鉛を溶剤に溶かして、逆温度結晶化法という手法により実験室において結晶生成を行う。6 mm×6 mm×2.5 mm 程度まで成長させた結晶から種結晶まわりの格子欠陥や、表面での不純物の付着を取り除くとともに結晶内での電荷輸送を向上するため、1.2 mm 程度の厚みまで研磨を行う。この結晶表面に金属を蒸着して電極とする。これに電荷・電圧変換・増幅回路に接続して検出素子を製作する。

(2) 製作した素子の半導体検出器としての性能評価として暗電流のバイアス電圧依存性、パルス光を用いた電荷移動度測定を行う。

(3) 検出素子にガンマ線、ベータ線、アルファ線の各種の密封線源からの放射線を照射し、その応答を確認する。また X 線照射装置からの X 線照射時の出力電流を測定し、X 線に対する感度を測定する。

4. 研究成果

(1) メチルアンモニウム臭化鉛の単結晶生成は N,N-ジメチルホルムアミドに臭化メチルアンモニウムと臭化鉛(II)の粉末を飽和するまで溶かし、室温から 0.5°C/時の速度で温度を上昇させることで安定して結晶を成長させることに成功した (図 1 左)。典型的には 6 mm×6 mm の面積に対して 2.5 mm 程度の厚みになる。析出した結晶にそのまま金属(クロムを使用)蒸着した素子と、研磨により種結晶部分を削り落とし、1.23 mm 程度の厚みとした結晶に金属蒸着した素子を作成し、それぞれを電荷・電圧変換・増幅回路に接続した (図 1 右)。

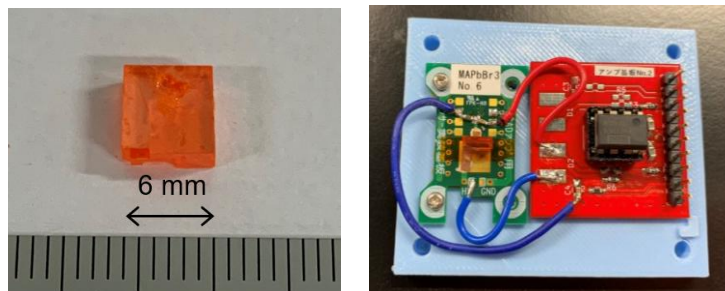


図 1. 析出したメチルアンモニウム臭化鉛の単結晶(左)と電荷・電圧変換・増幅回路に接続して製作した検出器 (右)。

(2) 析出させた結晶にそのまま金属電極を蒸着した素子と、1.23 mm 厚まで研磨した後に金属電極を蒸着して作成した素子とで暗電流のバイアス電圧依存性を比較した結果を図 2 に示す。研磨なしの結晶では $10^7 \Omega \cdot \text{cm}$ オーダーの体積抵抗率しかなかったものが、研磨後は約 16 倍の体積抵抗率となり、暗電流の原因となる格子欠陥や不純物等を低減できたことが分かる。

更にこれらの結晶に LED のパルス光を照射し、光電流のバイアス電圧依存性から電荷の移動度・寿命積 ($\mu \tau$ 積) を見積もった。この測定においても研磨後の結晶ではホールがキャリアの場合に $2.6 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{V}$ という値が得られた。ただ、この値でもメチルアンモニウム臭化鉛結晶での $\mu \tau$ 積として報告されている最大の値と比べると 1 桁程度小さく、改善の余地があることを示している。

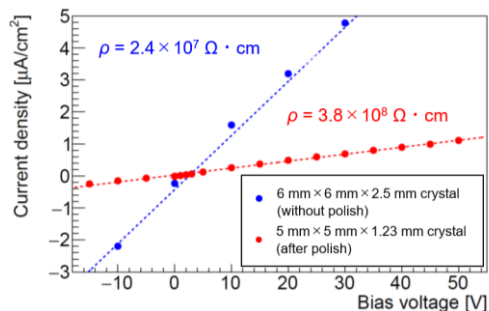


図 2. 作成したメチルアンモニウム臭化鉛単結晶の暗電流のバイアス電圧依存性。

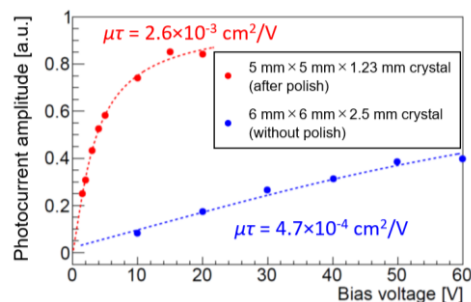


図 3. 作成した検出素子の光電流のバイアス電圧依存性。

(3) 半導体としての性能を確認した素子に表 1 の密封線源を用いて各種放射線の照射を行い、出力信号を観測した。しかし、この測定においては有意な信号の検出はできなかった。原因はこれらの放射線 1 粒子から期待される結晶中でのエネルギー損失により発生する電荷信号以上のノイズが暗電流により発生していたことによる。バイアス電圧を上昇することで電荷輸送は向上できる一方で暗電流も同時に増加してしまうため、結晶の質を改善しなければ 1 粒子の検出は無理と判断した。

そのため、高強度の X 線照射器を用いて X 線に対する感度測定を行った。80 keV、100 W (1.25 mA) の X 線源を用いて測定した感度のバイアス電圧依存性を図 4 に示す。20 V までのバイアス電圧においてホールキャリアの場合にはおよそ $1400 \mu\text{C}/(\text{Gy} \cdot \text{cm}^2)$ の値が得られ、メチルアンモニウム臭化鉛を用いた検出素子として報告されている値としては十分高い値が得られた。この結果により、今回製作したメチルアンモニウム臭化鉛を用いた放射線検出器は X 線に対しては十分な感度があることが示された。今後、更なる結晶の質の改善により 1 粒子信号の検出を目指すとともに、現在の性能を持って利用可能は測定への利用の可能性も検討していきたい。

表 1. 測定に使用した密封線源

| 核種 | 放射線種 |
|-------------------|-------|
| ^{137}Cs | ガンマ線 |
| ^{90}Sr | ベータ線 |
| ^{241}Am | アルファ線 |

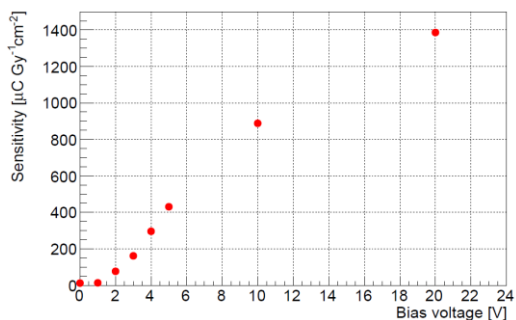


図 4. 80 keV X 線照射時のペロブスカイト半導体素子の感度のバイアス電圧依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

| |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名 山中隆志 |
| 2. 発表標題 ペロブスカイト半導体を用いた放射線検出器開発の動向 |
| 3. 学会等名 第85回応用物理学会秋季学術講演会（招待講演） |
| 4. 発表年 2024年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 山中 隆志 |
| 2. 発表標題 CH ₃ NH ₃ PbBr ₃ ペロブスカイト単結晶を用いた放射線検出器の開発 |
| 3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2023年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|------------------------------|-------------------------------|----|
| 研究協力者 | 合志 憲一 (Goshi Kenichi) | 九州大学・工学研究院・准教授 (17102) | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| | |
|---------|---------|
| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|