



# 北海道大学における ダイヤモンド放射線検出器開発の現状

北海道大学 金子純一

## 共同研究者の皆様（敬称略）

北大	嶋岡、坪田、新名、小泉(均)
AIST	渡邊、茶谷原、梅澤、加藤、鹿田
NIFS	磯部、長壁
阪大	有川、中井、白神、畦地
理研	佐藤
JAEA	落合
物材機構	小泉(聡)、大谷、リャオ
日立製作所	桑原、佐々木、上野、田所
SPring-8	青柳
KEK	田中
阪府大	山本
	他

# ダイヤモンド放射線検出器の特長

- ・放射線耐性( $> 10^{15}$  neutron / cm<sup>2</sup>、Siの3桁以上)
- ・高温動作( $> 300^{\circ}\text{C}$ 以上)
- ・ $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}$ 反応による高速中性子計測
- ・可視光不感
- ・低X・ $\gamma$ 線感度
- ・検出器サイズが小さい(DT中性子スペクトロメータとして)
- ・高速応答性
- ・耐腐食性

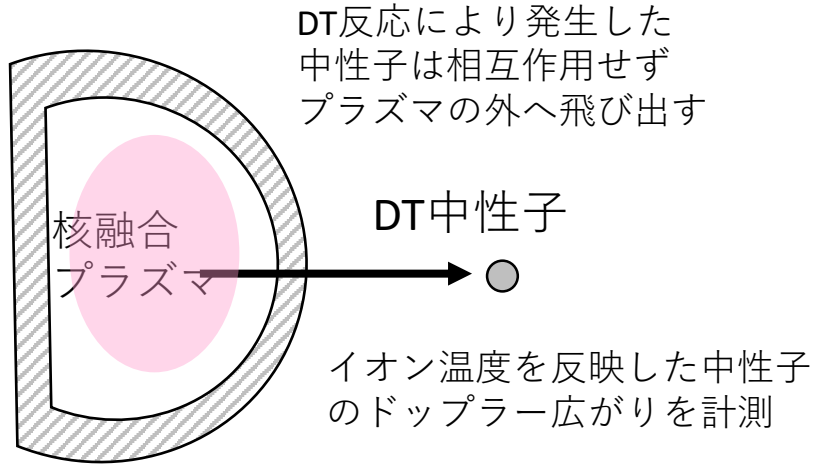
過酷環境で動作可能な放射線検出器として期待  
核融合プラズマ診断への応用

# 耐放射線・高温動作半導体としての ダイヤモンド、SiC、Siの比較

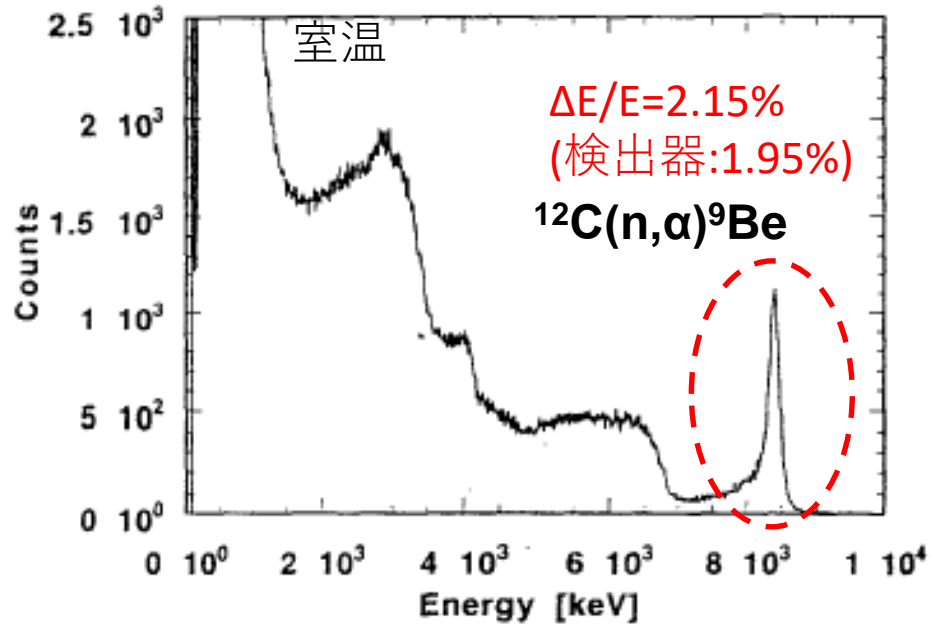
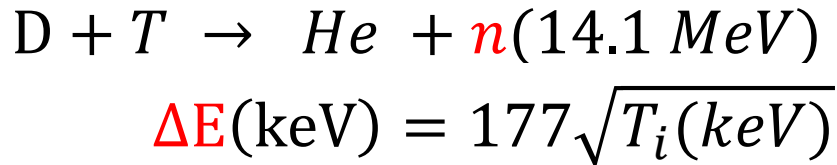
材料	ダイヤモンド	SiC	Si
平均原子番号	6	10	14
禁制帯幅(eV)	5.47	3.27	1.1
絶縁破壊電界 (MV/cm)	>10	3.0	0.3
ヌープ硬度 (kgf/mm <sup>2</sup> )	8000	3000	1150
動作温度(°C)	>500	300	200*
γ線耐性	◎	○	×
中性子耐性	◎	△	×

\* SOI (Silicon On Insulator)技術

# 核融合プラズマ診断応用中性子エネルギースペクトロメータ



核融合装置断面図



トップレベルのロシア製天然ダイヤモンド放射線検出器DT中性子応答関数測定例[1] 上記性能を持つ天然ダイヤモンドは2例のみ。

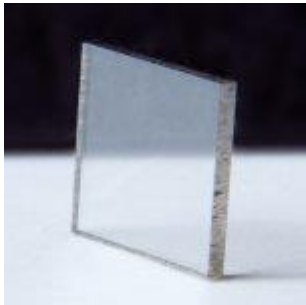
## ITERにおける要求性能

- $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}$  に対するエネルギー分解能 2%台
- 150°Cで動作
- 高中性子フラックス下 ( $> 10^9$  neutron / cm<sup>2</sup> · s)、10kcps以上連続動作可能
- 検出効率 :  $1 \times 10^{-3}$  count / (neutron / cm<sup>2</sup>)  $\Rightarrow$  素子サイズ : 約5mm x 5mm x 0.15mm

[1] A. V. Krasilnikov, J. H. Kaneko, et al., Rev. Sci. Instrum., 68 (4) (1996)1720.

# 単結晶CVDダイヤモンド検出器による DT中性子応答関数測定例

Element Six社製エレクトロニクスグレード  
単結晶CVDダイヤモンド[2]

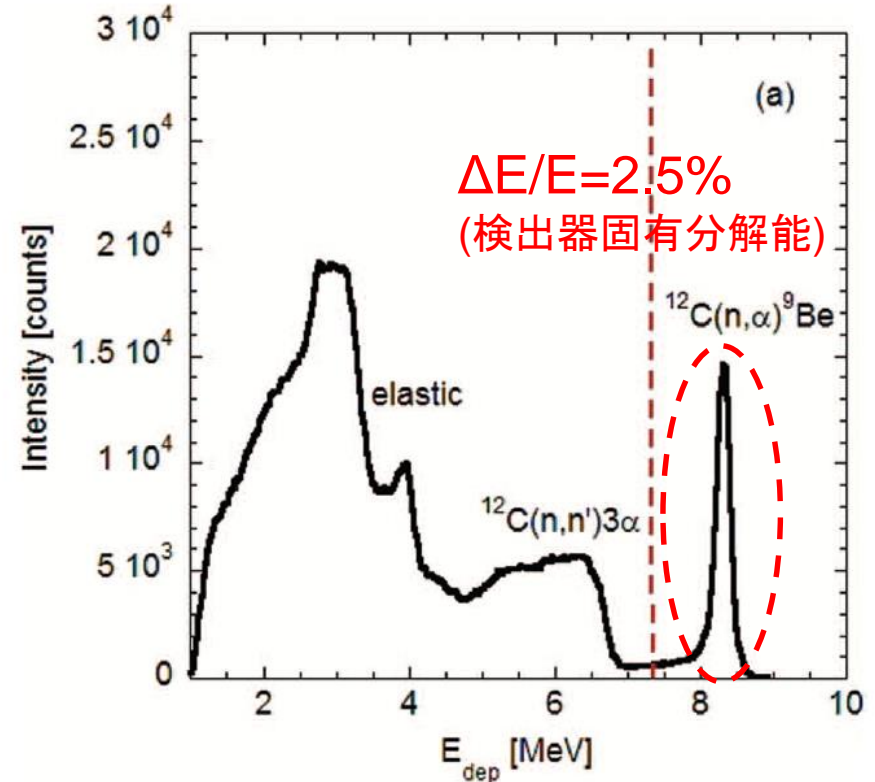


サイズ:  $4 \times 4 \times 0.5 \text{ mm}^3$

$N < 5 \text{ ppb}$

$B < 1 \text{ ppb}$

ダイヤモンド基板の上にCVDダイヤモンド  
を合成。レーザー切断、機械研磨



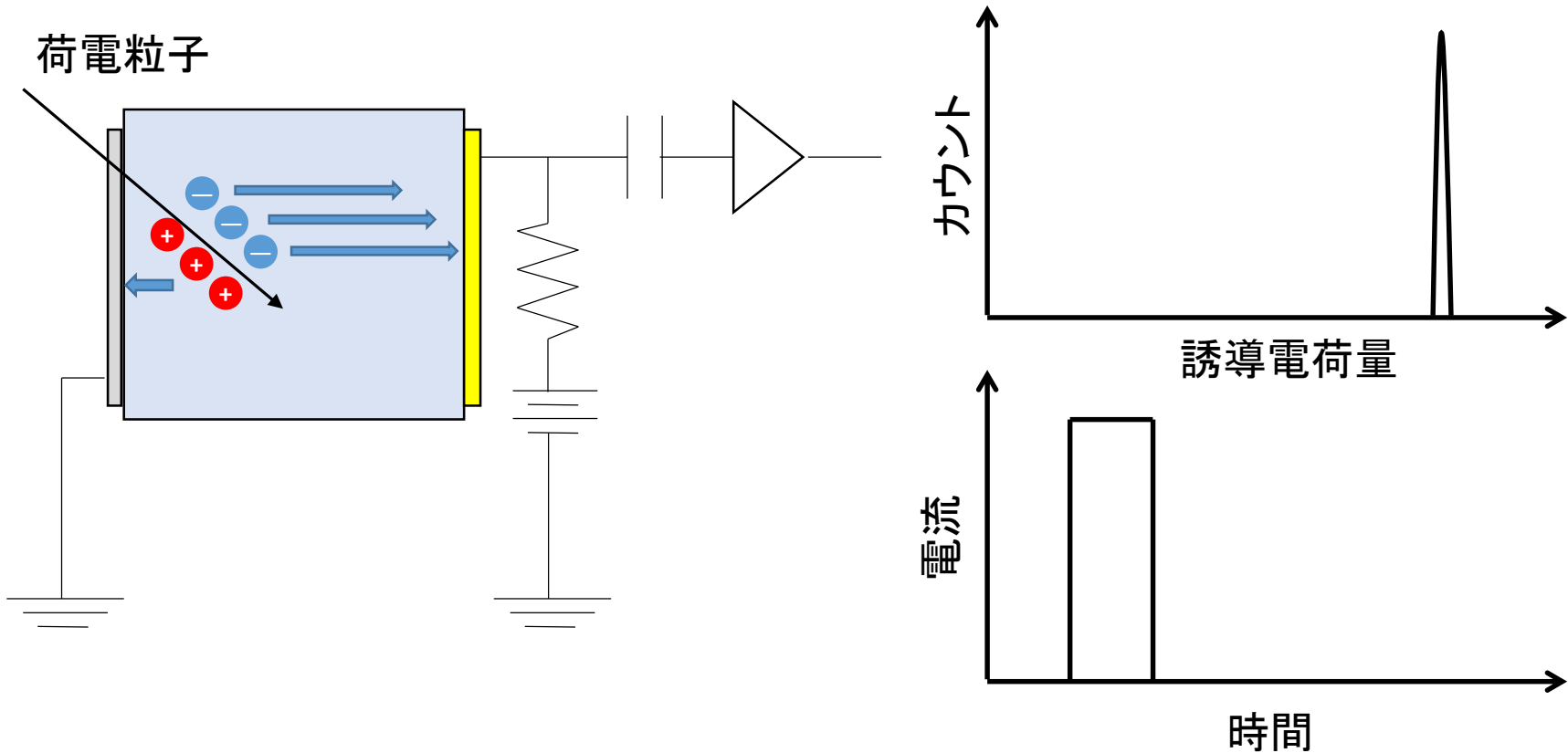
Element Six 社製単結晶CVDダイヤモンドによる  
DT中性子応答関数 [3]

未だ天然ダイヤモンドのベストデータにおよばず。

[2] <http://www.e6cvd.com/cvd/page.jsp?pageid=417>

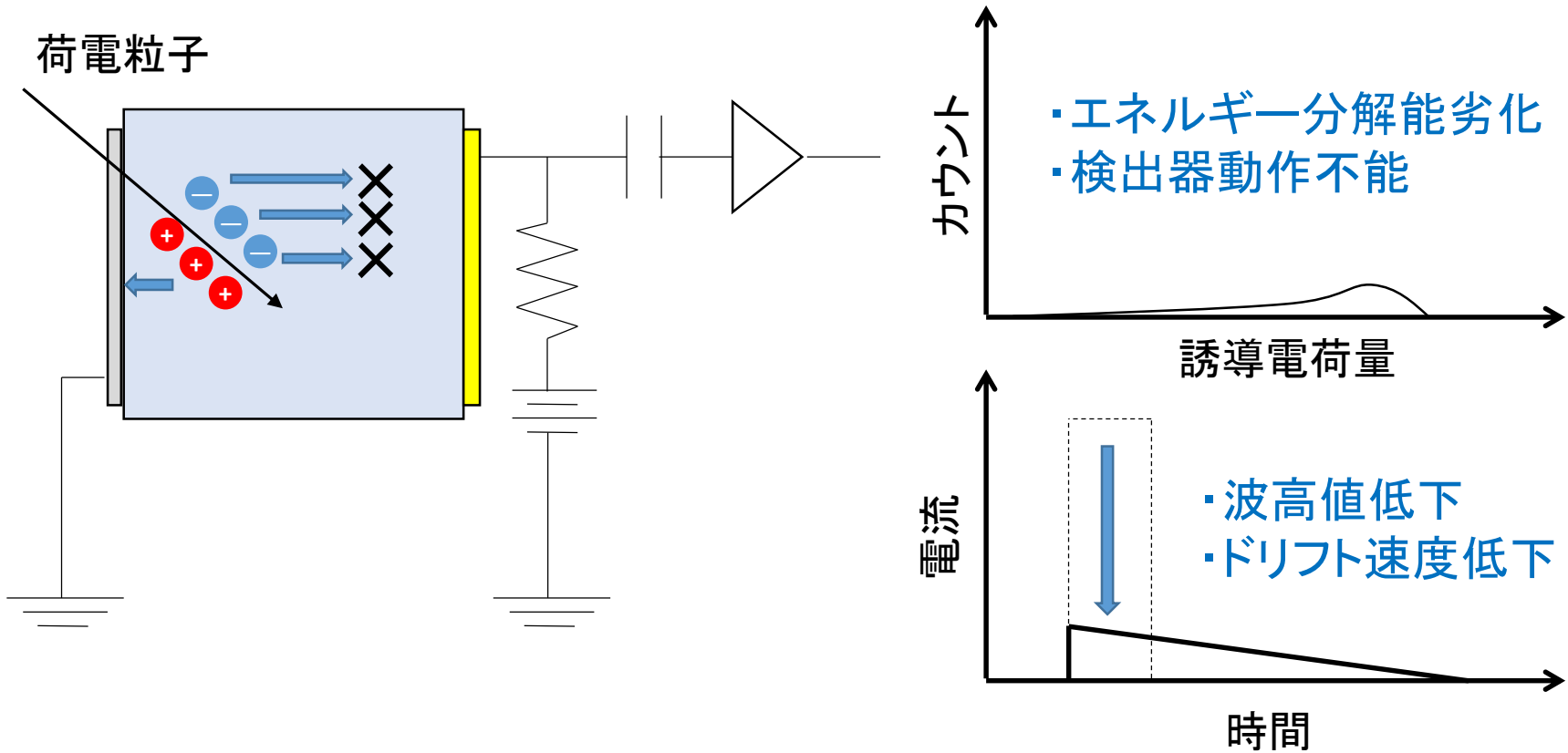
[3] C. Cazzaniga, M. Nocente, M. Rebai, M. Tardocchi, P. Calvani et al. Review of Scientific Instruments 85, 11E101 (2014)

# 電荷捕獲の無い結晶が求められる理由



電荷捕獲がわずかでもある場合、高計数率時には瞬く間に検出器が動作不能に。極めて不純物・欠陥の少ない単結晶が必要。ダイヤモンドは特にバンドギャップが広いので必須。

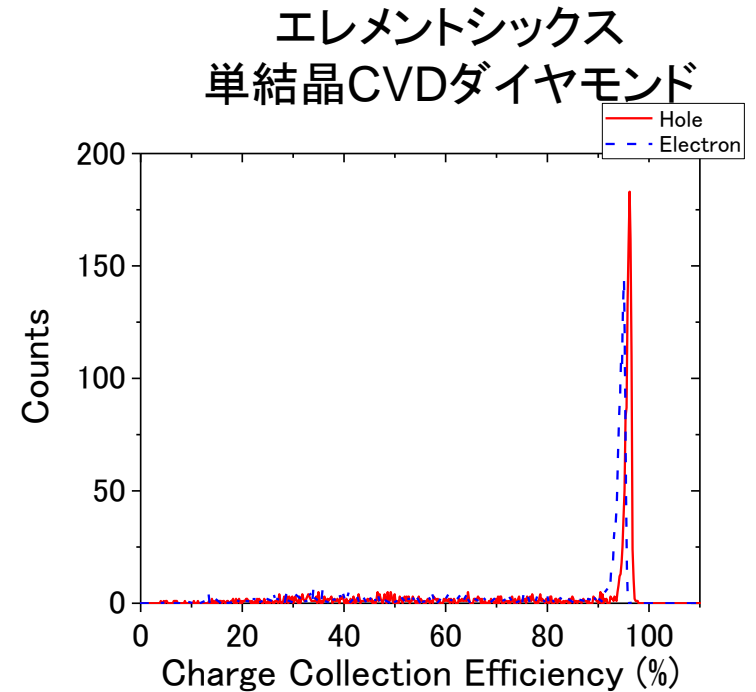
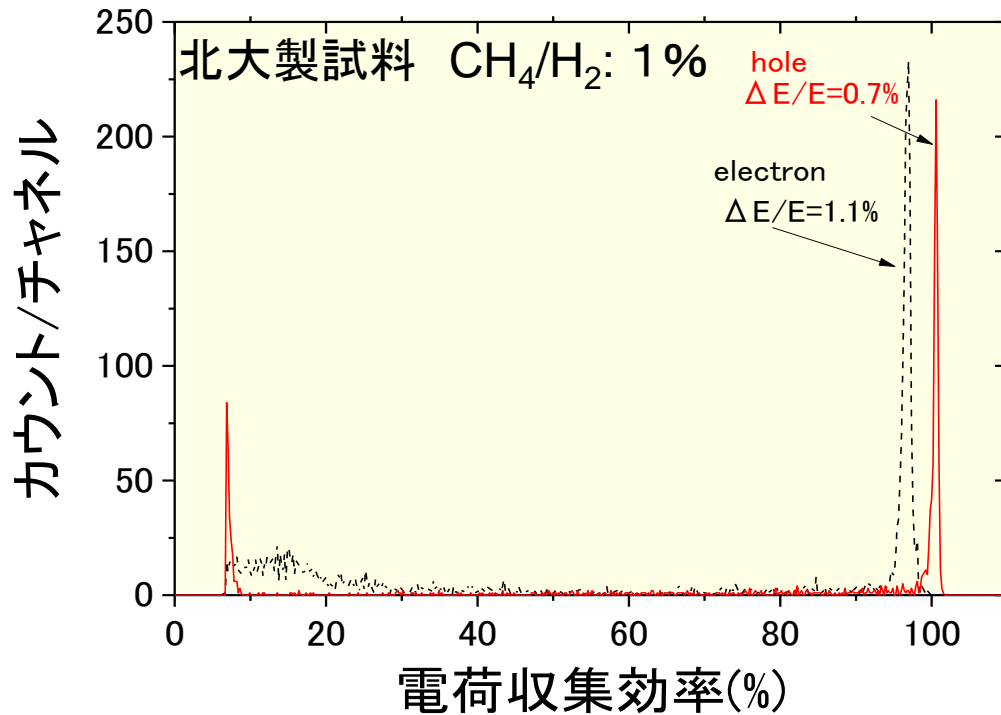
# 電荷捕獲の無い結晶が求められる理由



電荷捕獲がわずかでもある場合、高計数率時には瞬く間に検出器が動作不能に。極めて不純物・欠陥の少ない単結晶が必要。ダイヤモンドは特にバンドギャップが広いので必須。



# 4年前の北大製ダイヤモンド…電子に対して3%の電荷捕獲

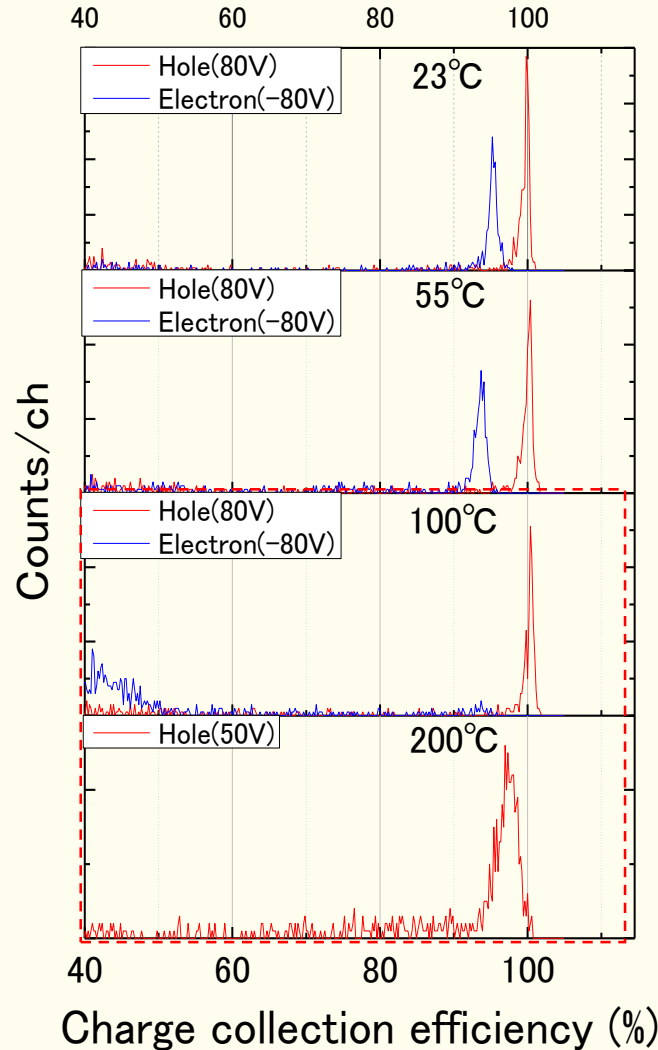


電荷収集効率の算出には  $\epsilon_{\text{Diamond}} = 13.1 \text{ eV}$ ,  $\epsilon_{\text{Si}} = 3.62 \text{ eV}$  を使用。

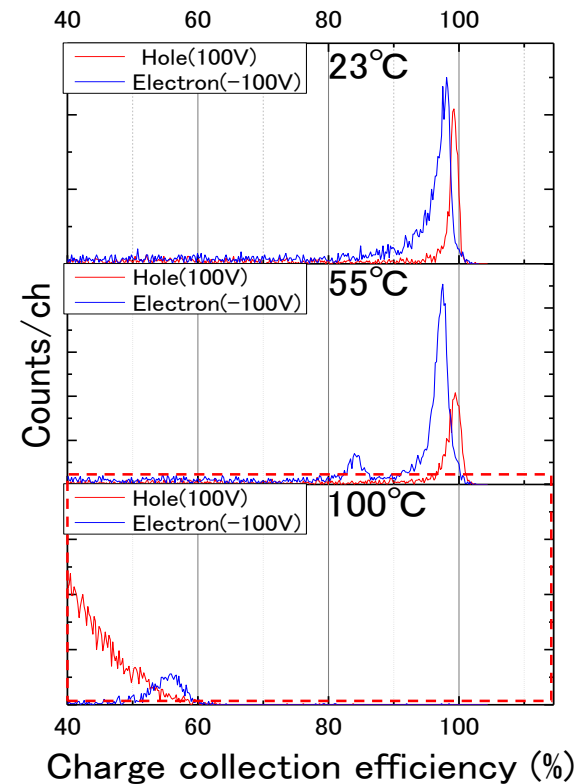
試料	北海道大学(試料3つの平均値)		エレメントシックス社(試料8つの平均)	
	Hole	Electron	Hole	Electron
電荷収集効率(%)	99.5 ± 0.8	97.1 ± 1.4	96.6 ± 1.9	95.6 ± 2.3
エネルギー分解能(%)	0.84 ± 0.4	1.1 ± 0.1	1 ~ 2%	

# 結晶の不完全性は高温動作を大きく制限\*

北大製試料 メタン濃度1.0%



E6 試料



※両試料とも同じプロセスで検出器化

電荷収集効率の算出には  $\epsilon_{\text{Diamond}} = 13.1 \text{ eV}$ ,  
 $\epsilon_{\text{Si}} = 3.62 \text{ eV}$ を使用。

北大試料、E6試料ともに電子は100°Cで計測不能に

\* M. Tsubota Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **789** (2015) 50–56.

# 研究目的

---

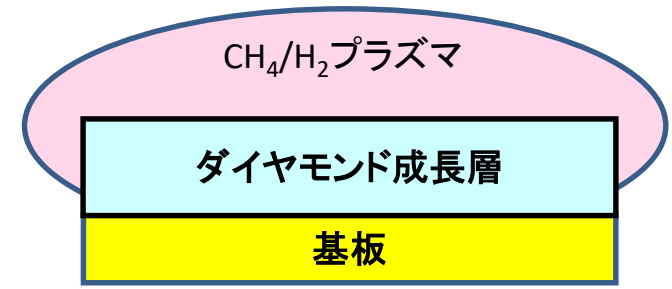
核融合プラズマ診断用人工ダイヤモンド放射線検出器開発の一環として、電荷捕獲準位低減を試みる。

具体的には合成時の大気 混入の低減、低メタン濃度合成条件の探索を行う。合成結晶から製作した検出器の電荷キャリア輸送特性評価、14MeV中性子応答関数測定を行う。

# 単結晶ダイヤモンド合成と解決すべき課題

マイクロ波プラズマCVD法により、ダイヤモンド単結晶基板上に結晶をホモエピタキシャル成長させ合成

成長層の結晶品質は  
下地基板と合成条件に大きく依存



CVD合成法 概略図

## 合成上の課題点と対策

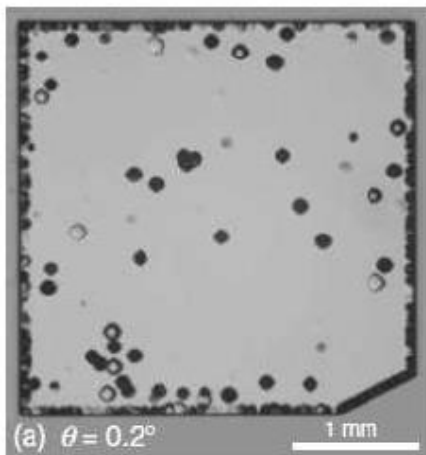
- 成長層の応力割れ 防止 ⇒ II a型基板の使用
  - 異常成長の抑制 ⇒ オフ角制御処理
  - 基板の再利用 ⇒ ダイレクトウェハー法
- ほぼ解決済み

電荷キャリア輸送特性の向上 ⇒ 不純物低減  
(電荷捕獲準位の除去) 合成条件の最適化

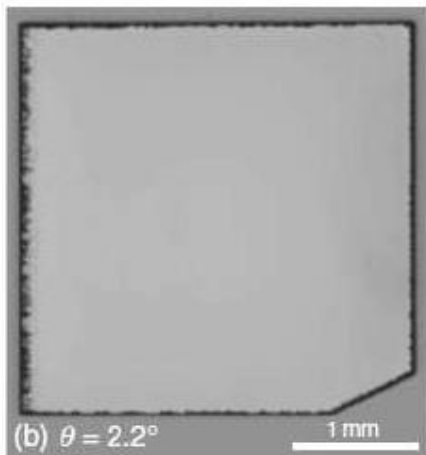
# オフ角制御基板による異常成長の抑制\*

結晶の成長面となる(001)面を $\langle 110 \rangle$ 方向に約3度傾けて研磨し、ステップ数を増加

オフ角制御なし



オフ角制御あり



CVD合成ダイヤモンド 微分干渉顕微鏡像例\*

オフ角度  $\approx 0$ 度

異常成長 原点

ステップフロー成長

異常成長 原点

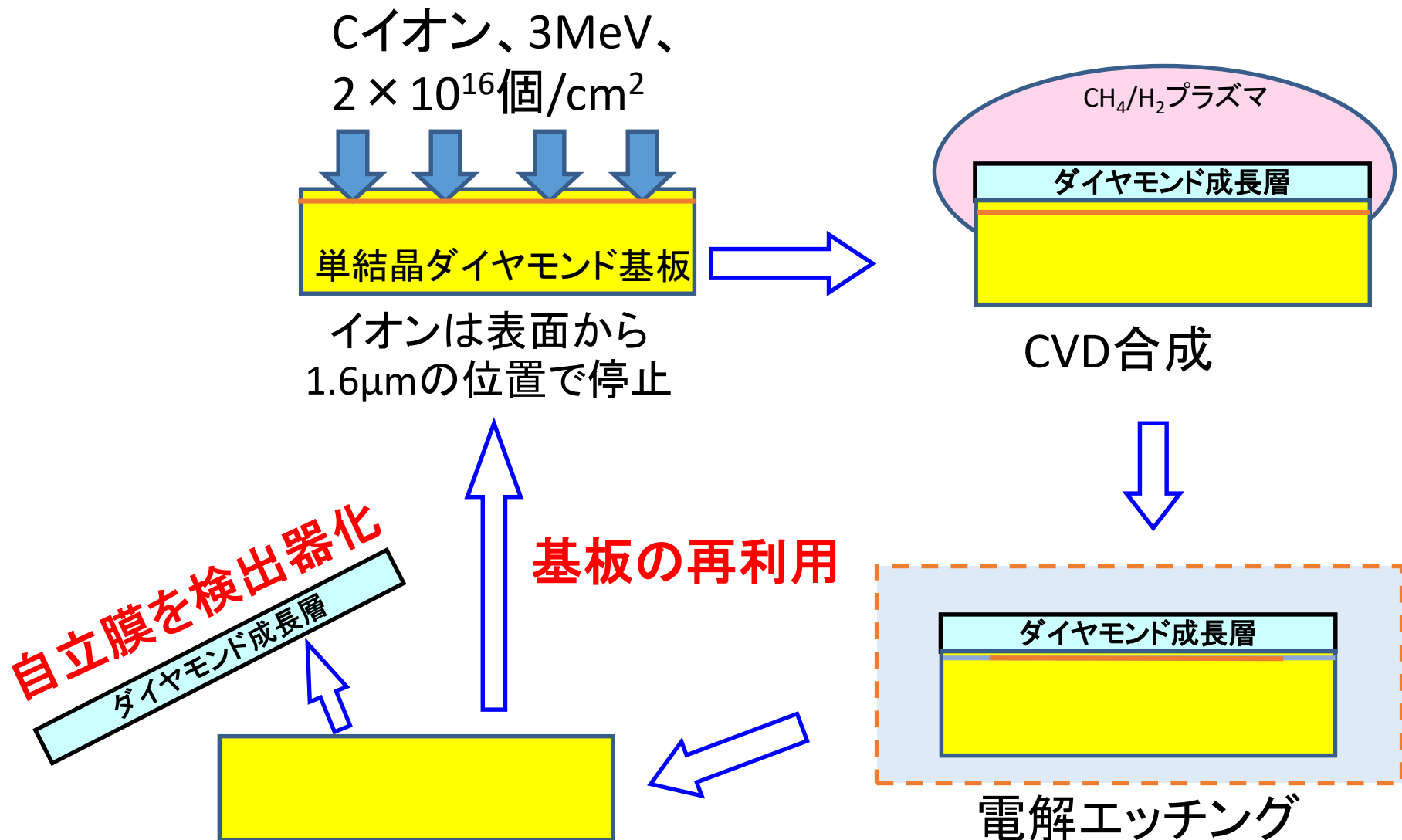
CVD合成

オフ角度  $\approx 2.2$ 度

異常成長 原点

異常成長 原点

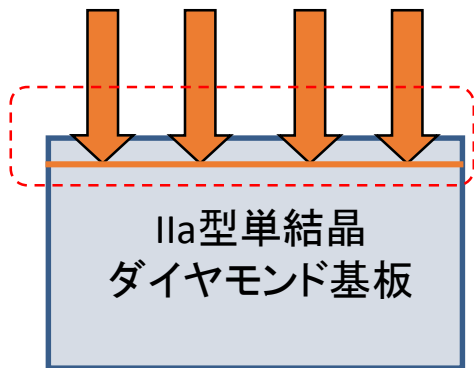
# ダイレクトウェハー法\*による自立膜の製作



図中で基板層のエッチングプロセスは省略

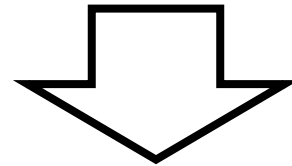
# イオン注入の影響?

Cイオン、3MeV、  
 $2 \times 10^{16}$ 個/cm<sup>2</sup>



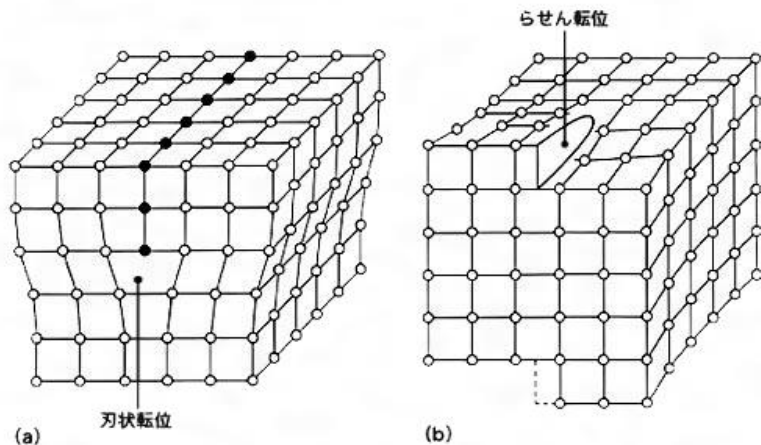
〈仮説〉

イオン注入時に基板に生じた欠陥が成長層に引き継がれている?



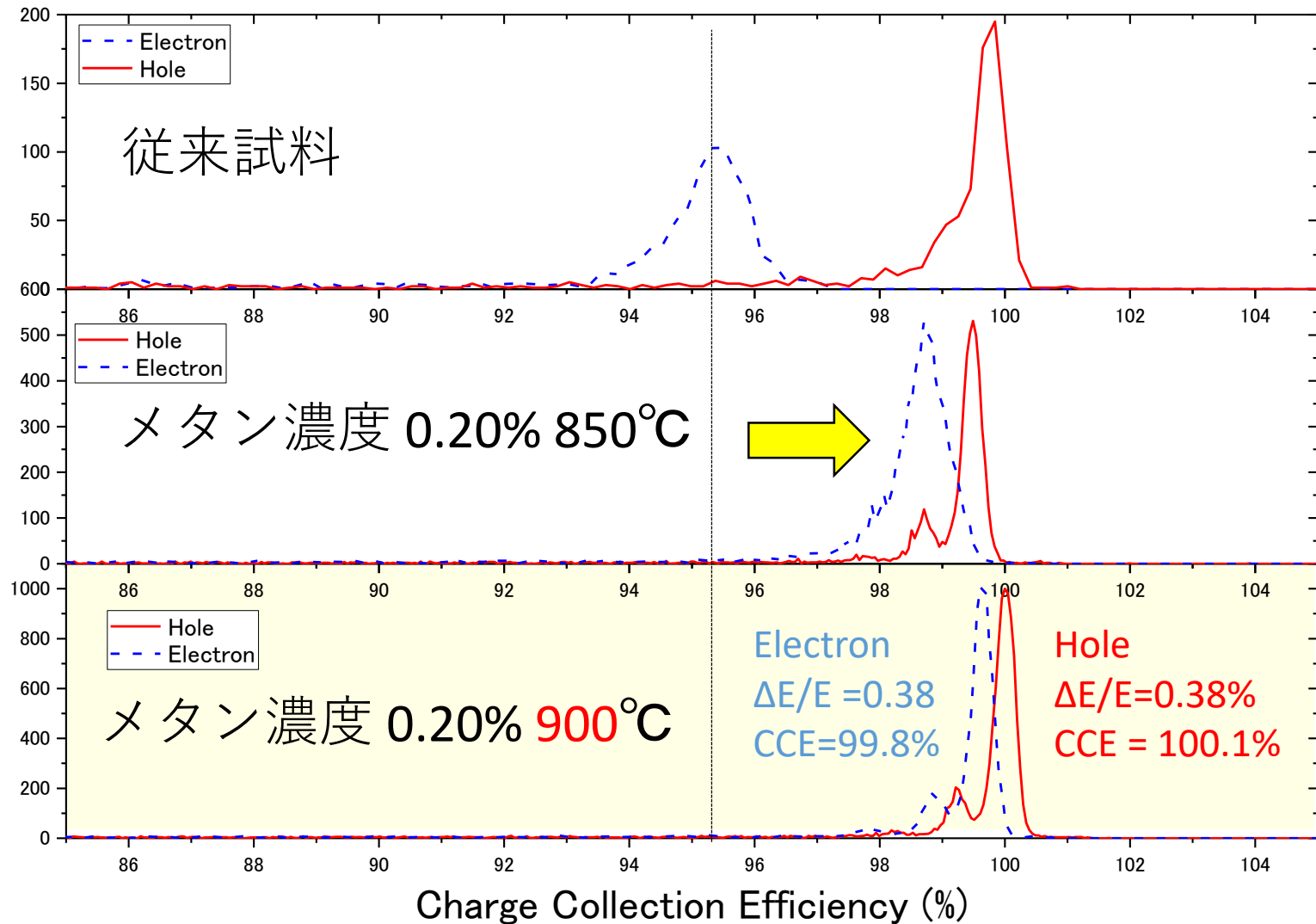
〈対策〉

メタン濃度をさらに下げ、合成速度を低くして欠陥の導入を防ぐ



合成途中に発生する構造欠陥の抑制にも有効

# トップクラスのCCE、エネルギー分解能を達成



電荷収集効率(CCE)の算出には  $\varepsilon_{\text{Diamond}} = 13.1 \text{ eV}$ ,  $\varepsilon_{\text{Si}} = 3.62 \text{ eV}$ を使用。

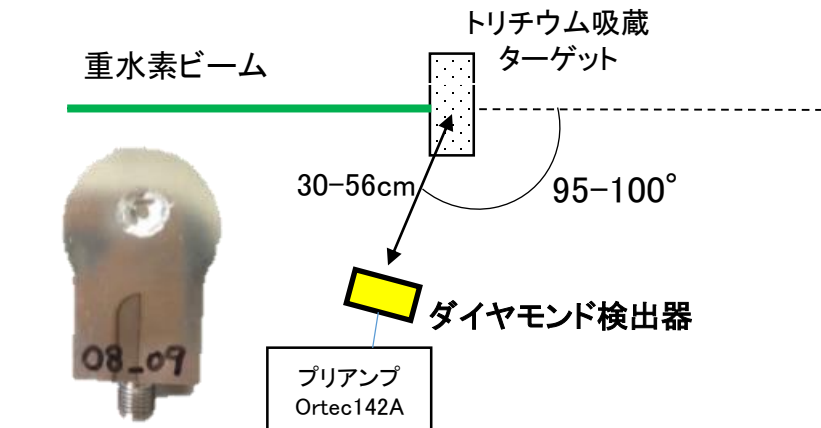


# 14MeV中性子に対する応答関数評価

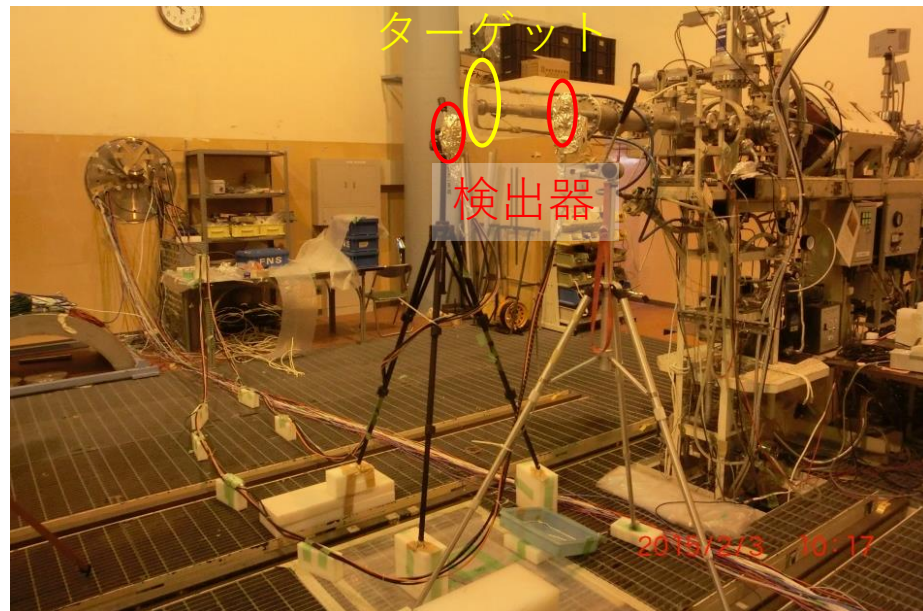
日本原子力研究開発機構 核融合中性子源(FNS)

中性子発生数:  $\sim 10^{11}$  neutron/cm<sup>2</sup>·sec

加速電圧: 350kV      ビーム電流: 0.5-1mA



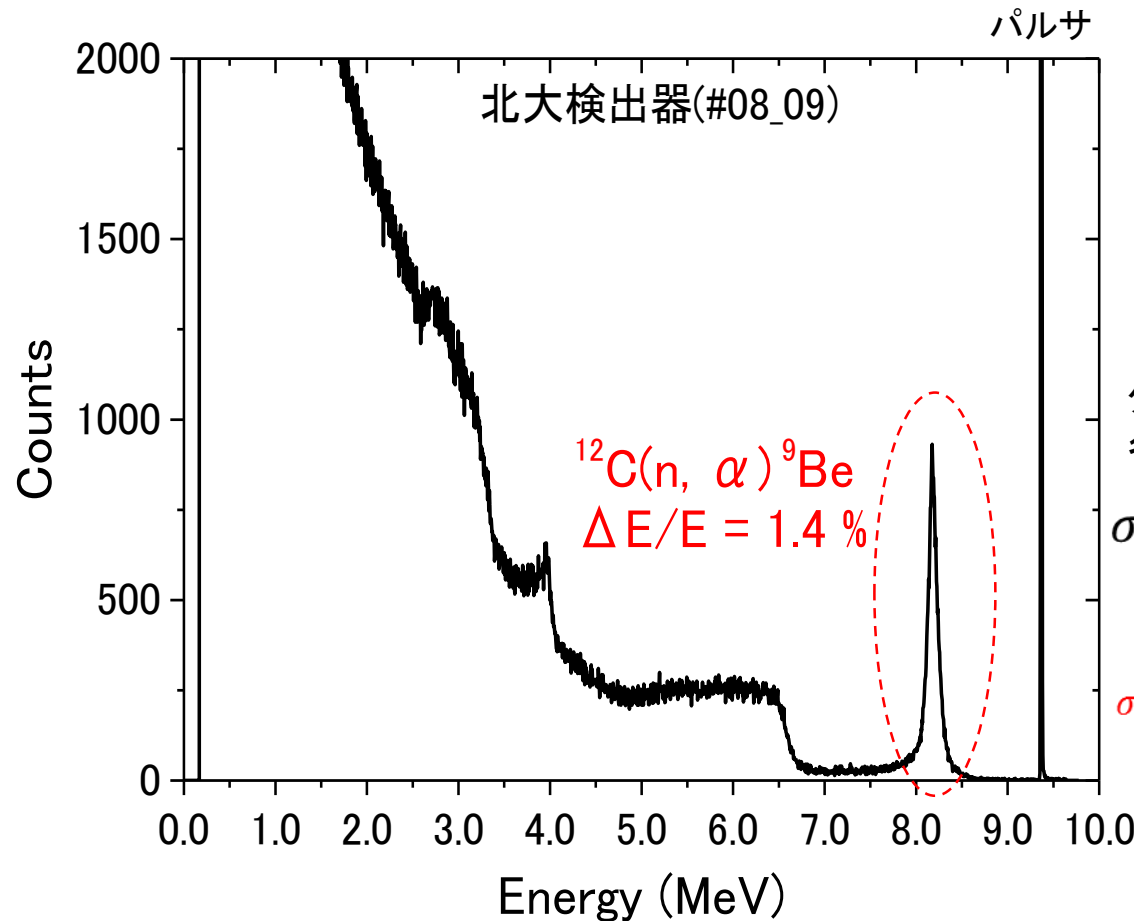
測定体系



試料	ダイヤ 厚み ( $\mu$ m)	5.5MeV $\alpha$ 線に対する エネルギー分解能(%)	
		正孔	電子
08_09	70	0.38	0.38
16_03	150	0.38	0.38
NIFSE6_2*	300	0.48	0.48

\* E6社製単結晶CVDダイヤモンドは9個評価したうち最も電荷収集効率、エネルギー分解能の優れた結晶を使用。

# 14MeV中性子に対する世界最高のエネルギー分解能達成



サイズ: 5 mm x 5 mm x 70  $\mu\text{m}$   
電極:  $\phi 3\text{mm}$ 、Pt-Ti/Au  
ビーム軸に対して100度  
ターゲットから30cmに設置  
計数率: 400cps

ダイヤモンド検出器エネルギー分解能  
各種データが存在する $\theta = 95^\circ$ で算出

$$\sigma_{ex}^2 = \sigma_{diam}^2 + \sigma_{sc}^2 + \sigma_{sl}^2 + \sigma_{noise}^2$$

実測値                      ターゲット内      ターゲット内      回路系ノイズ  
   散乱[1]                      減速[1]

$$\sigma_{diam} = \sqrt{0.017^2 - 0.0145^2 - 0.0023^2 - 0.0020^2}$$
$$= 0.78\%$$

エネルギー分解能1.4%。中性子広がりを除いた  
検出器固有のエネルギー分解能は0.8%程度。  
ここまで来るのに「20年」。

