

## 過酷事故対応を目指した原子炉用ダイヤモンド半導体デバイスに関する研究開発

研究代表者 金子 純一 国立大学法人北海道大学大学院工学研究院  
参画機関 国立大学法人北海道大学、独立行政法人物質・材料研究機構、  
独立行政法人産業技術総合研究所、株式会社日立製作所  
研究開発期間 平成24年度～27年度

### 1. 研究開発の背景とねらい

本事業では過酷事故に対応可能な原子炉格納容器内雰囲気モニター(CAMS)用 $\gamma$ 線計測システムを念頭に置き、 $\gamma$ 線計測用ダイヤモンド放射線検出器ならびに前置増幅器用ダイヤモンド電界効果トランジスタ(FET)の開発を行う。また、ダイヤモンド半導体デバイスの耐放射線性能強化の基礎となるバルクダイヤモンドならびに基本的電子デバイスに対する放射線照射実験も行う。

ダイヤモンドは原子番号の小さな炭素が共有結合によって強固に結びつくことで形作られ、Siと比較して4桁以上高い耐放射線性を持つ<sup>(1)</sup>。さらにSi、SiCで問題となる $^{30}\text{Si}(n, \gamma)^{31}\text{Si}$  ( $T_{1/2}=2.7\text{h}$ ,  $\beta^-$ )  $\rightarrow$   $^{31}\text{P}$  反応に相当する半導体特性に影響を与える核反応が無いため、中性子に対しても高い耐性を持つ<sup>(2)</sup>。禁制帯幅5.5eVのワイドバンドギャップ半導体であることから500°Cで250時間以上連続動作するダイオードとUV検出器がすでに研究提案グループにより実証されており、高速炉や軽水炉の過酷事故対応として要求される300~700°Cでの動作可能性がある<sup>(3)</sup>。

研究は大きく、①バルク結晶、電気特性評価用基本的電子デバイスに対するX線、 $\gamma$ 線、中性子照射による放射線照射実験、②エリアモニターならびにCAMS用 $\gamma$ 線検出器の開発、③前置増幅器用金属-絶縁体-半導体電界効果トランジスタ(MISFET)及び金属-半導体電界効果トランジスタ(MESFET)の開発、④ダイヤモンドFETをもちいた前置増幅器の検討からなる。研究代表者等の行った先行研究により、300kGy程度の $\gamma$ 線照射によって電極金属が相互拡散によって劣化する事が分かっており、これに対処するため高温動作と耐放射線性を兼ね備えたダイヤモンド電極の開発が①には含まれる。

本開発により初期的ではあるが高い耐熱・耐放射線性を有するダイヤモンド半導体デバイスが実現する。CAMS用 $\gamma$ 線検出器に関して過酷事故を想定した耐熱、耐放射線への要求性能は220°C、2MGyから300°C、5MGyと厳しくなった。本研究で開発する $\gamma$ 線用ダイヤモンド検出器とダイヤモンドFETをベースにダイヤモンドCAMS、エリアモニター並びにPWR起動系モニター用前置増幅器の実用化が十分期待できる。将来的にn型ダイヤモンドの性能向上等によりノーマリーオフ型ダイヤモンドトランジスタの出現によりダイヤモンドICが実現した場合、原子炉格納容器内設置マルチプレクサ-による原子炉格納容器電気ペネトレーションの大幅削減、PWR用事故後監視系の長寿命化等も期待できる。高速炉、軽水炉の安全性向上に加え、知的財産権の取得による日本の国際競争力確保への貢献も目指す。

### 2. 研究開発成果

2.1  $\gamma$ 線計測用MIM(Metal Intrinsic-diamond Metal)型ダイヤモンド放射線検出器の開発  
放射線照射試験用イントリンシックダイヤモンド試料を化学気相合成(CVD)法により合成し、産総研において自立膜化した同試料、市販の照射試験用ダイヤモンド、産総研及び物材機構で合成

した n 型と p 型ダイヤモンド薄膜試料に X 線を照射し、紫外可視吸光スペクトル(UV-VIS)、電子スピン共鳴(ESR)、フーリエ変換赤外吸光スペクトル(FT-IR)等における照射前後の変化の有無を調べた。図 1 に示すように  $10^4$ Gy まで差異は見られなかった。

MIM 型ダイヤモンド放射線検出器の開発では  $\gamma$  線検出感度を向上するため、従来  $50\mu\text{m}$  程度の結晶厚さを  $100\mu\text{m}$  以上にすることが必要である。そこで合成時間を 100 時間以上とすることで厚さ  $100\mu\text{m}$  以上のイントリンシックダイヤモンド試料を合成した。合成に使用する下地基板として(001)面を $\langle 110 \rangle$ 方向に3度傾けて研磨した高压高温合成IIa型ダイヤモンド基板を製作した。同基板と移動式ホルダーユニットを使用し合成を行い、検出器化の後、室温における電気特性と  $\gamma$  線応答を測定した。図 2 に示すように、これまで標準的に製作してきた厚さ  $50\mu\text{m}$  程度の MIM 型検出器と同等の性能を得ることに成功した。

## 2. 2 ダイヤモンド MISFET の開発並びに $\gamma$ 線計測用 pin 型ダイヤモンド放射線検出器の開発

X 線照射によりダイヤモンドと金属炭化物電極間の界面部分が受ける影響を明らかにするため、図 3 に示すようにスパッタリング法によってダイヤモンド上に高融点金属炭化物電極を成膜した基本的ダイヤモンド電子デバイスを製作した。室温から  $600^\circ\text{C}$  の範囲における印加電圧-漏れ電流特性などの動作特性を評価した。図 4 に示すように  $600^\circ\text{C}$  まで比較的良好なオーミック電極特性を持つことを確認した。

ダイヤモンド pn 接合試料を製作し、超高真空高温加熱プローブシステムを用いて、室温から  $500^\circ\text{C}$  の範囲における印加電圧-漏れ電流特性などの動作特性を評価した。Ib 型単結晶ダイヤモンド基板{111}表面にホウ素ドーパ型 p 型ダイヤモンド薄膜、リンドーパ型 p 型ダイヤモンド薄膜を積層形成し、pn 接合試料を製作した。超高真空中において室温から  $600^\circ\text{C}$  までの温度範囲で印加電圧-漏れ電流特性を評価した結果、良好な特性が再現性良く得られた。

絶縁材料の MISFET の動作に与える影響を評価するため、p 型ダイヤモンド薄膜と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  等の絶縁材料を使用した MISFET を製作し、出力変調特性などのトランジスタとしての動作特性を室温で評価した。その結果、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  スパッタリング成膜に伴う表面へのダメージとそれに伴うリーク電流の増加などの問題点を明らかにした。

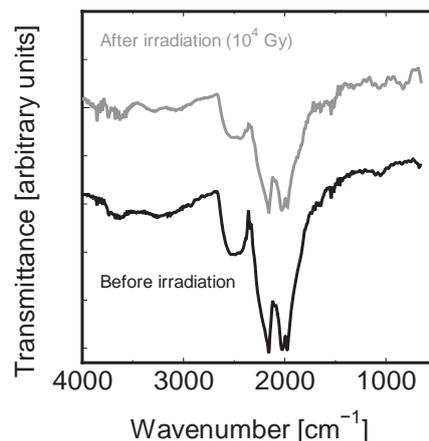


図 1 X 線照射前後のダイヤモンド試料の FT-IR スペクトル。 $1 \times 10^4$  Gy 照射時点で大きな変化は見られない。次年度以降、 $3 \sim 5 \times 10^6$  Gy までの照射を行う。

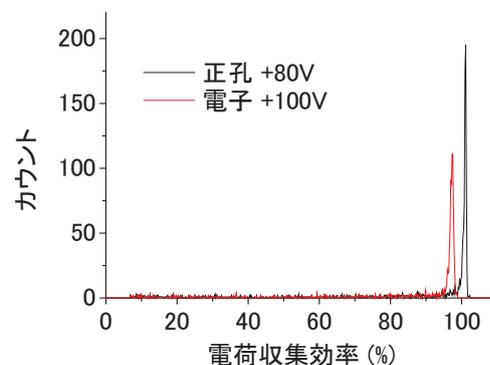


図 2 合成した単結晶 CVD ダイヤモンド(厚さ:  $105\mu\text{m}$ )の電荷収集効率。電子、正孔とも従来と同程度の性能を達成できることを確認。

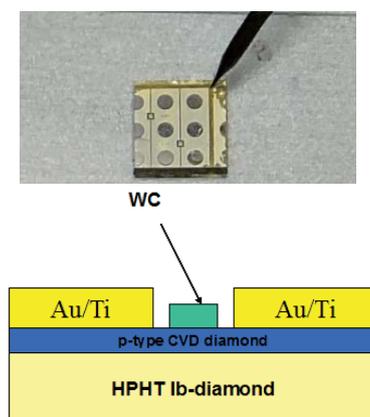


図 3 製作した高融点炭化物電極を使用した基本的ダイヤモンド電子デバイスの断面図と写真

### 2. 3 ダイヤモンド金属-半導体電界効果トランジスタ (MESFET) の開発

ショットキー電極に使用する金属の違いが MESFET の動作に与える影響を評価するため、図 5 に示す Ru、Ir、Pt をショットキー電極とした基本的ダイヤモンド電子デバイスを製作し、X 線照射前の室温から 500°C を含む範囲の印加電圧-漏れ電流特性などの動作特性を評価した。漏れ電流は比較的少なく良好なショットキー界面が形成されていることを確認した。特に Pt 電極では高温での漏れ電流特性が良好であることを確認した。

ダイヤモンド MESFET の設計に必要なドーピング構造とゲート長を決定するため、MESFET 構造を一次元に単純化したモデルをもちいてデバイスシミュレーションを行った。最適化したエピタキシャル膜厚、エピタキシャル膜中不純物濃度、ゲート長、ゲート幅でのデバイス特性を室温~500°C の範囲で評価し図 6 に示すように前置増幅器用 FET として十分な性能を持つことを確認した。

### 2. 4 前置増幅器と計装システムの検討

ダイヤモンド電界効果トランジスタを使用した前置増幅器とダイヤモンド放射線検出器を含む計装システムの設計の前提となる基礎データを取得するために各種試験を実施した。市販ダイヤモンド放射線検出器、既存の日立製シリコン半導体放射線検出器に対して耐震試験を含む各種信頼性試験を行い、試験前後での漏れ電流特性などの特性変化の差異を明らかにした。これにより、ダイヤモンド放射線検出器を実プラントに適用する際に必要となる性能の到達度の評価と改善点の抽出を試みた。 $\gamma$  線照射試験、耐震試験、温度湿度試験を行った結果、市販ダイヤモンド放射線検出器と日立製シリコン半導体放射線検出器の特性は、指示誤差、温度特性、衝撃試験、加振試験、耐震試験において判定基準を満足した。図 7 に  $\gamma$  線照射試験結果を示す。一方、エネルギー特性については判定基準を満足せず、湿度特性においては正常な計測を継続できなかった。また、加振中は、正常な計測を継続出来ない事があった。これらを解決するために、低エネルギー $\gamma$ 線遮蔽の低減、湿度影響の低減、及びコネクタ構造を改良した検出器容器の設計が今後の課題となる。

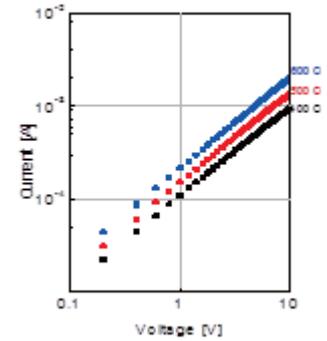


図 4 製作した高融点炭化物電極を使用した基本的電子デバイスの 400°C ~ 600°C における I-V 特性

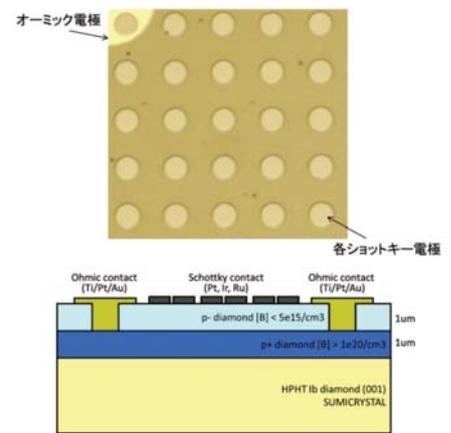


図 5 製作したショットキー電極を使用した基本的ダイヤモンド電子デバイスの断面図と写真

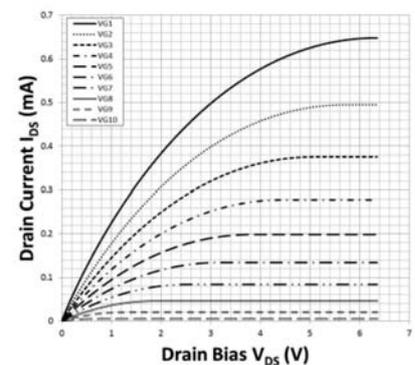


図 6 設計した MESFET の動作特性シミュレーション結果の例 (500°C)。室温~500°C の範囲において前置増幅器用 FET として十分な性能が出せることを確認した。

### 3. 今後の展望

北海道大学の担当する $\gamma$ 線計測用MIM型ダイヤモンド放射線検出器の開発については平成24年度に引き続き、北海道大学、物材機構、産総研で合成したダイヤモンド試料に対して3MGy以上のX線を照射し、UV-VIS、ESR、FT-IR等における照射前後の変化の有無を明らかにする。また産総研及び物材機構で製作された基本的電子デバイスに対するX線照射も開始する。

$\gamma$ 線、中性子照射実験の準備として高温高真空プローバシステムならびに半導体パラメータアナライザを導入する。窒素汚染対策ならびに原料ガスの高純度化、合成条件の最適化により $\gamma$ 線計測用MIM型ダイヤモンド放射線検出器の電荷キャリア輸送の特性を改善を試みる。 $\gamma$ 線に対する試作検出器のリニアリティとダイナミックレンジを評価する。

物材機構の担当するダイヤモンドMISFETの開発並びに $\gamma$ 線計測用pin型ダイヤモンド放射線検出器の開発については、n型ダイヤモンドの特性再現性を向上するため、リンドーブ量を高い精度で制御可能とするn型ダイヤモンドCVDガス流量制御システムを整備する。平成24年度に引き続き、X線照射試験用n型ダイヤモンド薄膜試料、耐熱耐放射線増幅器用pn接合試料、およびn型ダイヤモンドを用いたショットキー構造をもつ基本的電子デバイスを作製・評価する。pin型ダイヤモンド放射線検出器の製作、評価を行い、 $\gamma$ 線照射試験用に供する。p型ダイヤモンド(100)表面にMISFETを作製し室温から500°C以上の高温環境下におけるFET動作特性を評価する。

産総研が担当するダイヤモンドMESFETの開発については、X線照射試験用p型ダイヤモンド薄膜試料の合成・評価をおこなう。高温動作FETを高利得・低雑音化するための試みとして、低抵抗コンタクト層を形成し電気特性を評価する。イオン注入もしくは高濃度ホウ素ドーブCVD成長によるp+膜選択成長を行い、ソース・ドレイン領域に用いるコンタクト層の形成技術を確立する。平成24年度に行った構造設計結果に基づきコルビノ型MESFETを試作しFET動作特性を評価する。

日立製作所の担当する前置増幅器と計装システムの検討に関しては、ダイヤモンド電界効果トランジスタを用いた前置増幅器・ $\gamma$ 線計測用ダイヤモンド検出器を使用した計装システムを設計するための基礎データを取得するため今年度に引き続き各種試験を継続する。

### 4. 参考文献

- (1) F.H. Ruddy, et al., "The effects of intense gamma-irradiation on the alpha-particle response of silicon carbide semiconductor radiation detectors", Nucl. Instrum. Meth. B 263, p163 (2007).
- (2) S. Almaviva, et al., "Characterization of damage induced by heavy neutron irradiation on multilayered  ${}^6\text{LiF}$ -single crystal chemical vapor deposition diamond detectors", J. Appl. Phys. 106, p073501 (2009).
- (3) K. Ikeda, et al., "Thermally Stable Schottky Barrier Diode by Ru/Diamond", App. Phys. Exp. 2, p011202 (2009).

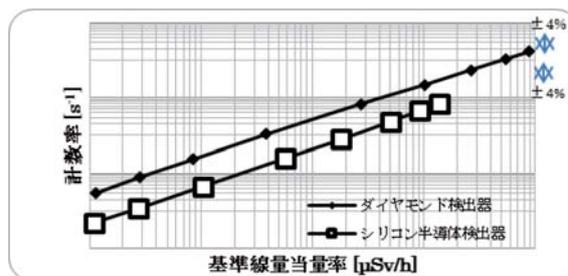


図7 市販ダイヤモンド検出器とシリコン半導体検出器の $\gamma$ 線評価試験結果例。