

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

(受託者) 国立大学法人北海道大学

(研究代表者) 金子純一 大学院工学研究科

(再委託先) 国立研究開発法人物質・材料研究機構、
国立研究開発法人産業技術総合研究所、株式会社日立製作所

(研究期間) 平成 24 年度～27 年度

1. 研究の背景とねらい

本研究開発においては高温・高放射線場で使用可能な原子炉用ダイヤモンド半導体デバイスを開発する。またナトリウム冷却高速炉ならびに水冷却高速炉を適応想定対象とする。このうち水冷却高速炉の一つである資源再生型沸騰水型炉では既存の改良型沸騰水型軽水炉の核・プロセス計装が踏襲されることから、本研究開発の成果は広く軽水炉での利用も可能となる。

本開発ではダイヤモンド半導体デバイスの耐放射線性、高温動作特性データを取得し、将来的な実用装置開発に必要な基礎データを取得すると共に、過酷事故に対応可能な原子炉格納容器内雰囲気モニタ (Containment Atmospheric Monitoring System; CAMS) 用 γ 線検出器を念頭に置き、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 (Field Effect Transistor; FET) の要素技術開発を行う。

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。さらに Si、SiC で問題となる $^{30}\text{Si}(n, \gamma)^{31}\text{Si}$ ($T_{1/2}=2.7\text{h}$, β^-) $\rightarrow$ ^{31}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。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℃で 250 時間以上連続動作するダイオードと紫外線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、軽水炉等の過酷事故対応として CAMS に要求される 300℃以上での動作も十分期待された。実際、本事業により検出器、FET 共に 3MGy 以上の γ 線照射に耐え (X 線照射では 10MGy)、500℃近くで安定して動作可能であることを実証した。

研究は大きく、①バルク結晶、物性評価用基本的電子デバイスに対する X 線、 γ 線、中性子照射による放射線照射実験、② ^{11}B ドープダイヤモンド合成技術の開発、③エリアモニターならびに CAMS 用放射線検出器の開発、④前置増幅器用金属-半導体電界効果トランジスタ (Metal-Insulator-Semiconductor FET; MISFET)、金属-絶縁体-半導体電界効果トランジスタ (Metal-Semiconductor FET; MESFET) の開発、⑤ダイヤモンド FET をもちいた前置増幅器の設計からなる。本開発により高い耐熱・耐放射線性を有するダイヤモンド半導体デバイスの実用化に大きく近づく。

2. これまでの研究成果

(1) ^{11}B ドープダイヤモンド合成技術と γ 線計測用金属-絶縁体-金属 (Metal-Intrinsic diamond-Metal; MIM) 型ダイヤモンド放射線検出器の開発 (北海道大学)

^{11}B ドープダイヤモンド膜の半導体特性を向上するために、 ^{11}B が 99.8%含まれるトリメチルボロンガスを使用して、マイクロ波プラズマ化学気相成長 (Chemical Vapor Deposition; CVD) 法で

合成を行った。Ib 基板の{100}面に2~4° のオフ角をつけて合成することでステップフロー成長させた。B/C が 10.0ppm になるようにガス流量を調整して合成した結果を図 1 に示す。二次イオン質量分析法(Secondary Ion Mass Spectrometry; SIMS)により $^{10}\text{B}/^{11}\text{B}=1/233$ の p 型ダイヤモンドの合成を確認した。活性化に影響を与える水素や窒素不純物は SIMS のバックグラウンド(BG)信号以下であり、通常ホウ素ドーピングした高品質 p 型ダイヤモンドと同等の性能を持つことをホール効果によって確認した。

γ 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特性を改善するために、平成 25 年度の研究で得られた知見に基づき、低メタン濃度で合成、さらにアニーリング処理等によって欠陥の低減を行った。メタン濃度を従来の 1% から 0.2% 程度まで下げることで合成速度を下げ、欠陥の低減を試みた。その結果、電荷収集効率(Charge Collection Efficiency; CCE)が正孔 100.5%、電子 96.9% から正孔 101.5%、電子 101.2% に改善し、さらにエネルギー分解能も 0.38% まで向上した。図 2 は室温から 500°C までの範囲で 5.486MeV α 線を測定した例であり、安定してエネルギースペクトル測定可能なダイヤモンド放射線検出器の開発に成功した。これらの結晶は日立製作所に供され、 γ 線照射試験ならびに高温環境での γ 線測定を行っている。

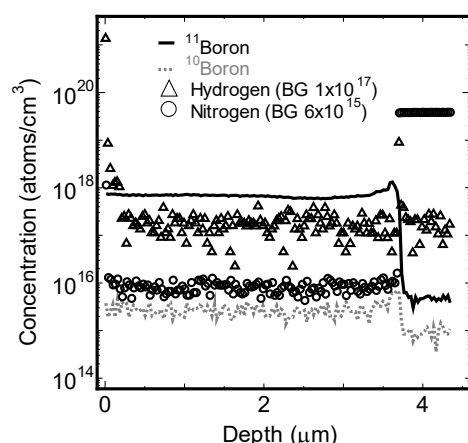


図 1 合成膜の SIMS 測定結果。

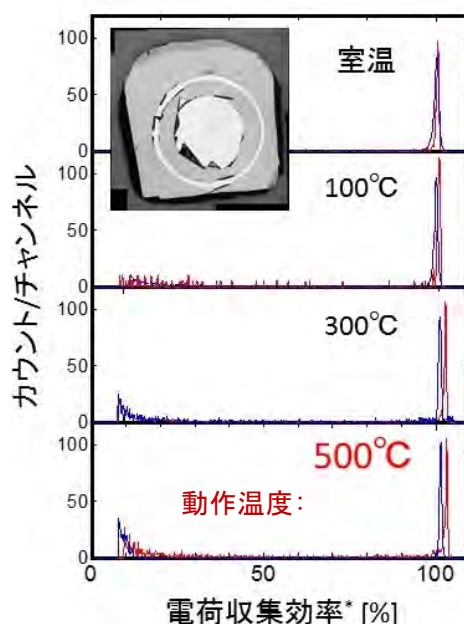


図 2 開発したダイヤモンド検出器の α 線スペクトルの温度変化

(2) ダイヤモンド金属-絶縁体-半導体電界効果トランジスタ(MISFET)の開発並びに γ 線計測用 pin 型ダイヤモンド放射線検出器の開発 (再委託先: 物材機構)

物材機構は前置増幅器に使用する MISFET の開発と γ 線用 pin 型ダイヤモンド放射線検出器の開発を主に担当している。本稿では後者に関して pin デバイスの基本的構成要素である n 型ダイヤモンド薄膜の耐放射線性について述べる。

n 型ダイヤモンド薄膜の成長はリンのドーピングのためホスフィン(PH_3)を使用し、マイクロ波プラズマ CVD 法により行った。ダイヤモンドをホモエピタキシャル成長させる基板には Ib 型単結晶ダイヤモンドを用い、成長前に熱混酸処理(HNO_3 、 H_2SO_4 、220 °C、2 時間)により清浄化した。van der Pauw 法により合成した n 型ダイヤモンドの Hall 効果測定を行い、移動度、キャリア濃度を決定した。Au/Ti のオーミック電極を 1 mm 間隔で 4 回対称に超高真空 EB 蒸着を用いて形成し、測

定用電極とした。電極サイズは直径 $300\ \mu\text{m}$ の丸型で、膜厚は Ti が $60\ \text{nm}$ 、Au が $80\ \text{nm}$ 程度である。Au/Ti 電極と n 型ダイヤモンド薄膜間には、n 型高濃度ドーパ層を選択成長により形成した。電極表面にボールボンディングにより $25\ \mu\text{m}$ 径の金線をボンディングした上でホール効果測定装置にセットした。室温から $873\ \text{K}$ の温度範囲で測定した。

Hall 効果測定では、室温から $873\ \text{K}$ の全測定温度範囲において安定に n 型電気伝導を示す負のホール係数を観測した。電子濃度の活性化エネルギーは $0.57\ \text{eV}$ であり、リンの形成するドナー準位から放出された電子であることを確認した。

図 3 に積算線量 $3\ \text{MGy}$ までの X 線照射薄膜試料の移動度の温度依存性を示す。室温付近の移動度は $400\ \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ であり、照射前に比べ特性には全く変化が見られなかった。図 4 に示すキャリア濃度に関しても有意な変化は見られなかった。

以上の Hall 効果測定の結果より、 $3\ \text{MGy}$ の X 線照射によって n 型ダイヤモンド薄膜の電気特性に影響を与えうる結晶格子の劣化は発生しないことを明らかにした。

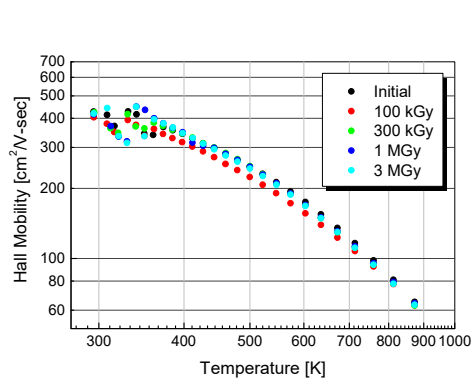


図 3 X 線照射前後の n 型ダイヤモンド薄膜の移動度温度依存性。

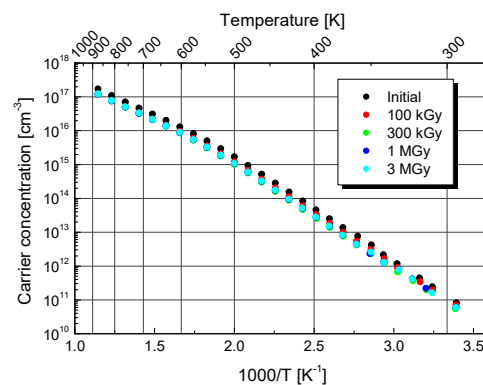


図 4 X 線照射前後の n 型ダイヤモンド薄膜のキャリア濃度温度依存性。

(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（再委託先：産総研）

過酷事故環境下においても動作が可能な半導体素子回路を実現するためには、ダイヤモンドの結晶およびデバイスが放射線環境下や高温環境下において、どの程度の性能劣化を引き起こすかを事前評価する必要がある。

まず、半導体ダイヤモンドが X 線および γ 線に対してどの程度の性能劣化を引き起こすかを評価した。図 5 にフーリエ変換赤外分光 (Fourier Transform Infrared Spectroscopy; FT-IR) による γ 線照射に対する p 型ダイヤモンド薄膜の電気伝導性 (アクセプタ) 評価結果を示す。 γ 線 $550\ \text{kGy}$ 照射後においても p 型伝導に関するピークに劣化が見られていない。

なお、 $10\ \text{MGy}$ までの X 線照射耐性試験においても、基本的電子デバイスであるショットキーダイ

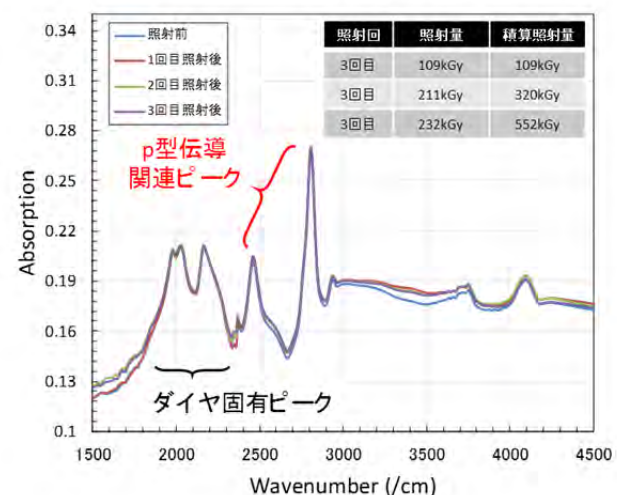


図 5 γ 線照射に対する p 型半導体特性評

オードに有意な劣化は見られていない。

次に高温で動作するショットキー電極をゲートに有する MESFET を試作し、高温耐性パッケージに搭載し評価した。図 6 において、FET は 450℃においても安定に動作していることがわかる。単一基本 MESFET における X 線耐性試験を行っており、10MGy までの照射で一部素子における閾値変動の影響があるものの、最大ドレイン電流、相互コンダクタンスの劣化は見られていない。

(4) 前置増幅器と計装システムの検討（再委託先：日立製作所）

原子力発電プラントの計装システムの一つである γ 線線量率モニタについて、過酷事故環境下でも連続動作が可能な計装システムの開発を目的として、本プロジェクトにおいてダイヤモンド放射線検出器の開発とダイヤモンド FET を用いた前置増幅器の検討を進めている。従来検出器向けに実施してきた基本性能項目（線量率直線性、エネルギー特性）及び信頼性試験項目（温度／湿度サイクル、耐震性）に加え、耐過酷環境性として耐熱性（300℃目標）及び耐放射線性を評価した。

一例として図 7 に北大から供されたダイヤモンド検出器素子と市販ダイヤモンドから製作した検出器素子の γ 線計数率の温度変化を示す。横軸は温度、縦軸は室温時の γ 線係数率を 1 とした場合の相対値であり、CAMS では $\pm 4\%$ の変化までが認められている。市販試料から製作した検出器では 300℃に達する前に計数率が大きく減少したが、北大試料では室温から 370℃付近まで安定した計測が可能であることを確認した。また、通常環境下での連続運転を実施し、1 ヶ月以上の安定動作を確認した。耐放射線性については、積算線量 5MGy の照射前後で計数率に有意な差がないことを確認した。

3. 今後の展望

事業開始時に目標としたダイヤモンド放射線検出器とダイヤモンド FET の 300℃以上での安定動作、3MGy 以上の耐放射線性能は共に達成された。動作温度については測定装置の測定上限温度である 500℃付近まで安定して動作することを確認した。検出器については MIM 型、pin 型を組み合わせることで CAMS で必要となる 7 桁のダイナミックレンジも達成した。

現在、本事業で開発に成功したダイヤモンド放射線検出器、ダイヤモンド FET をもちいた CAMS のプロトタイプ開発ならびにダイヤモンド IC の要素技術開発が始まっており、近い将来、過酷事故対応可能な原子炉用計装装置の出現が期待される。

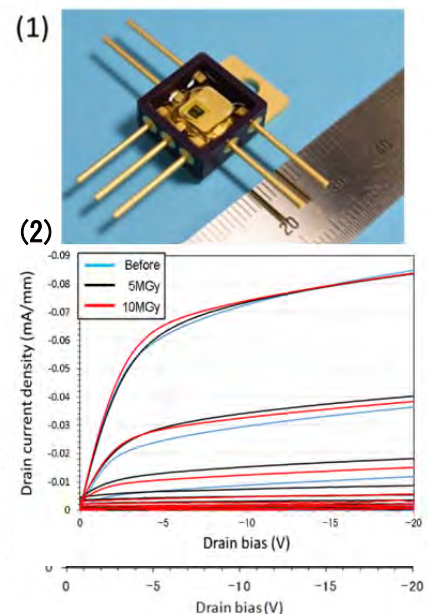


図 6 高温パッケージ搭載ダイヤモンド FET と 450℃における素子特性

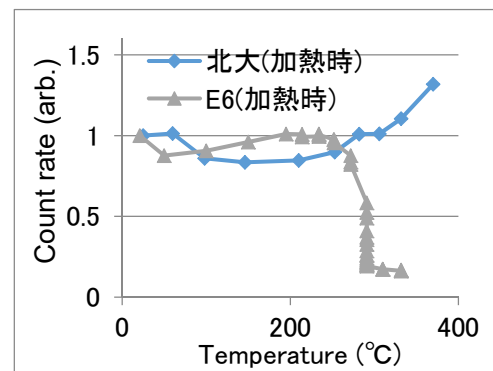


図 7 北大製ダイヤモンド素子と市販ダイヤモンドから製作した素子の計数率の温度依存性