

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整備すると共に、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°C 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°C 以上での動作も十分期待できる。

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。最近の過酷事故時の想定検討の進展により、CAMS については最高到達温度:300°C、許容線量:5MGy が要求されるが、ダイヤモンド半導体デバイスは十分にこの目標を達成可能と考えている。さらに厳しい温度環境での動作を求められる機器も多く、本研究の範囲でその適用可能範囲を明らかにする。

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 $2\sim 4^\circ$ 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}B と比較して 2 桁以上 ^{11}B ドープ量が多い 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) 信号以下であった。

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 0.2~0.5% 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。アニーリングによる欠陥低減の試みは、構造欠陥に起因しカソードルミネッセンススペクトルに現れるバンド A 発光が消失し、正孔の電荷収集効率も改善した。しかし、電子に対して顕著な影響は観測されなかった。

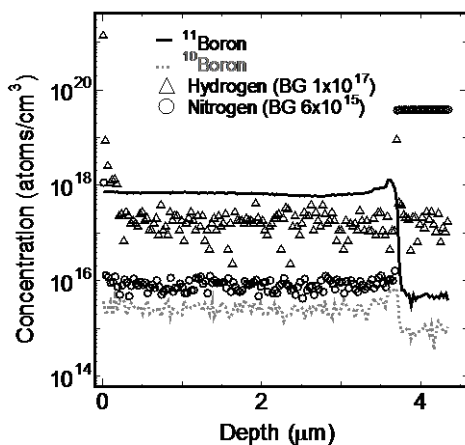


図 1 合成膜の SIMS 測定結果。

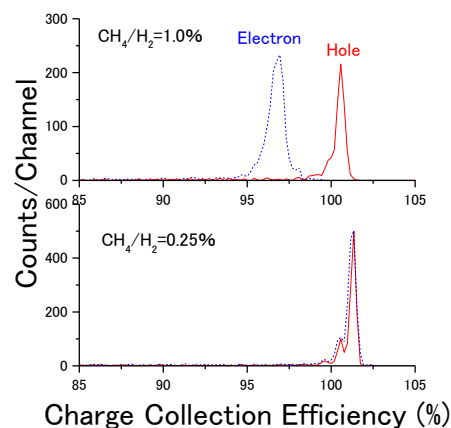


図 2 合成条件による電荷収集効率 (CCE) の変化。

(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 nm、Au が 80 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 型高濃度ドープ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 K の温度範囲で測定した。

Hall 効果測定では、室温から 873 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 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 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する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 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。

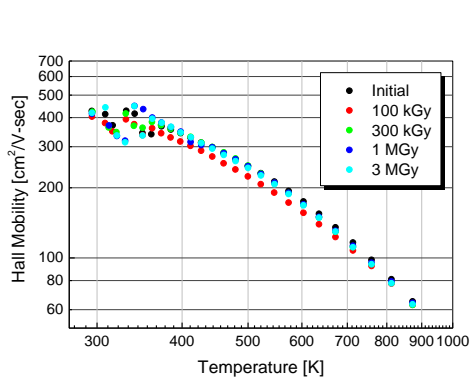


図 3 X 線照射前後の n 型ダイヤモンド薄膜の移動度温度依存性。

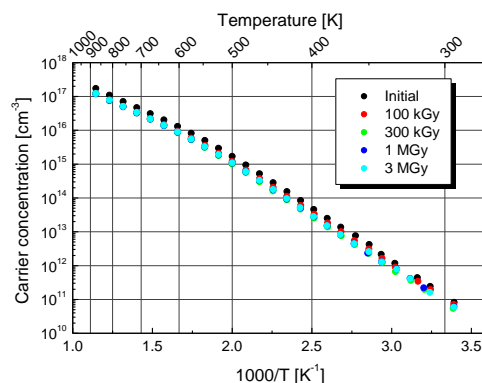


図 4 X 線照射前後の n 型ダイヤモンド薄膜のキャリア濃度温度依存性。

(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 550kGy 照射後においても p 型伝導に関するピークに劣化は見られていない。

なお、10MGy 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°C においても安定に動作していることがわかる。単

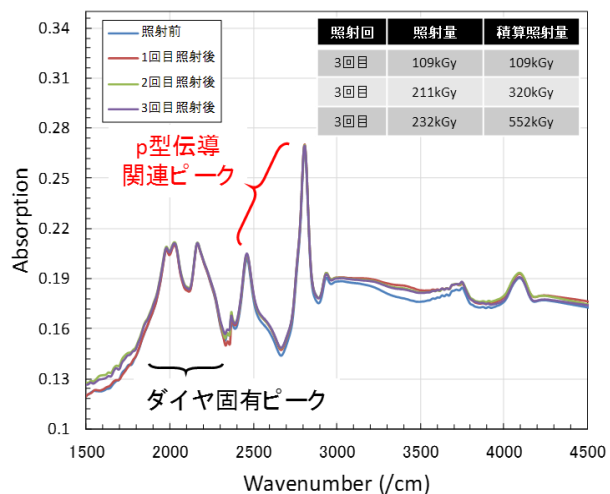


図 5 γ 線照射に対する p 型半導体特性評価

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°C目標)及び耐放射線性を評価した。

平成26年度までの成果として、市販単結晶ダイヤモンドを用いた試作検出器について上記項目の評価を実施した。検出器パッケージの改良により、基本性能や信頼性試験については原子炉プラントで使用されているシリコン半導体検出器と同等の性能が得られ、実用化の見通しを得ることができた。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。

耐熱性については、平成25年度実施の試験で200°C以上になると計数率が急激に低下する事象が見られたことを受け、計数率とエネルギー分布の温度依存性の評価を実施した。その結果、パッケージ配線に由来する要因と単結晶ダイヤモンド素子自体に由来する要因を推定した。

3. 今後の展望

ダイヤモンドに対する耐放射線性能を明らかにするために、X線、 γ 線、中性子線の照射実験を継続する。¹¹Bドーパダイヤモンドの合成条件探索を継続し、半導体特性の向上をすすめる。高温動作可能な放射線検出器の作製のためにガードリングの導入を行う。ダイヤモンドpn接合型基本的電子デバイスの耐熱および耐放射線性能を向上するため、高融点金属を拡散防止中間層として用いたpn接合を作製する。作製試料の室温から500°C以上までの温度範囲における電圧電流特性、容量電圧特性、容量周波数特性等の基礎電気特性を評価する。MESFETの高電流化をはかるため、平成26年度に検討した構造をもとに改良型MESFETを並列大型化する。並列大型化には、ドレインのワイヤボンディング並列配線およびSiO₂もしくはAl₂O₃パッシベーション膜を利用した配線技術の開発を行い、総ゲート幅を5mm以上とする。試作した並列大型MESFETは電流-電圧および容量-電圧等を測定し特性を評価する。課題となっている高温時の温度依存性について、パッケージ形状及び配線方法を改良した検出器について再度試験を実施し、パッケージ部分の要因を排除したダイヤモンド素子自体の要因を検討する。本プロジェクト全体の成果を元に、シビアアクシデント環境下でも連続動作が可能な計装システムの構成案を検討する。

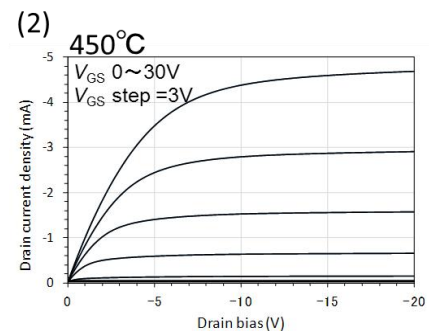
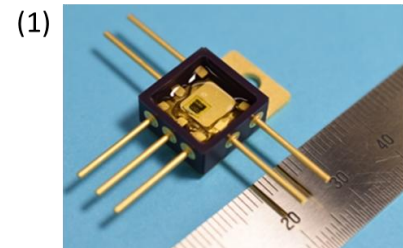


図6 高温パッケージ搭載ダイヤモンドFETと高温での素子特性。