

CdTe 系放射線検出器の開発動向

(株) アクロラド 大野 良一

Recent state of CdTe-based radiation detectors

R. Ohno

Acrorad Co.,Ltd., Suzaki, Gushikawa City, Okinawa, 904-2234

e-mail:ohno@acrorad.jp

Recent state for development of CdTe-based radiation detectors is reviewed. The progress of the technologies such as the crystal growth of CdTe and CdZnTe, the deposition of electrodes on the crystal, the design of read out ASIC, and the bonding between crystal and ASIC, opened the way for the development of imaging devices for practical uses. A X-ray imager for non destructive inspections and a gamma ray imager for small animal radioisotope experiments or nuclear medicine are presented as examples.

1. まえがき

CdTe 系の化合物半導体は放射線の吸収効率がよく、室温での高抵抗化が可能である。このため、その光電効果を利用することによって、シンチレータ検出器のように放射線を光に変換する必要がなく、しかも室温で動作する小型高感度の検出器ができる。CdTe 検出器の開発は 1970 年代に始まったが 1-2)、当初は性能に再現性が得られず四半世紀にわたって不純物と検出特性の関連性などの基礎研究が行なわれていた 3)。その後 1990 年代になってようやく再現性のある CdTe の結晶成長技術が開発され 4)、さらにロシア生まれアメリカ育ちの結晶成長技術で CdZnTe を使った検出器が登場して 5)、実用的な CdTe 系検出器の開発が始まった。この CdTe 系検出器について最新の開発動向を紹介する。

2. 検出器の構成と特徴

CdTe 系検出器では、図 1 に示すように、結晶の対向する 2 面に電極を形成した検出素子に電圧を印加しておき、放射線照射で結晶中に生じた電子正孔対を電極に挿引して計測する。このとき生じる電子正孔対の数は、放射線エネルギーを半導体固有の電子正孔対生成エネルギー (ϵ 値: CdTe の場合は室温で 4.43eV) で除したものであり、120keV の放射線の場合には 1 発あたり約 27,000 個の電荷が発生する。検出器は、電流を計測する形式と電荷を増幅して統計処理することでエネルギースペクトルを得る形式とに分類される。

半導体検出素子の性能指標としては、キャリアのドリフト長、即ち $\mu \tau E$ の積 (μ : 移動度・ τ : 寿命・ E : 電界強度)が重要である。CdTe の場合、電子の $\mu \tau$ 積は $2-3 \times 10^{-3} \text{cm}^2/\text{V}$ 程度であるが、正孔の $\mu \tau$ 積は $3-5 \times 10^{-4} \text{cm}^2/\text{V}$ 程度しかない(6)。そのため、電荷の収集効率を上げるために、厚さ数 mm 以下の結晶に数千 V/cm の電圧を印加して使われるのが一般的である。そのような条件であつても、正孔の移動度が小

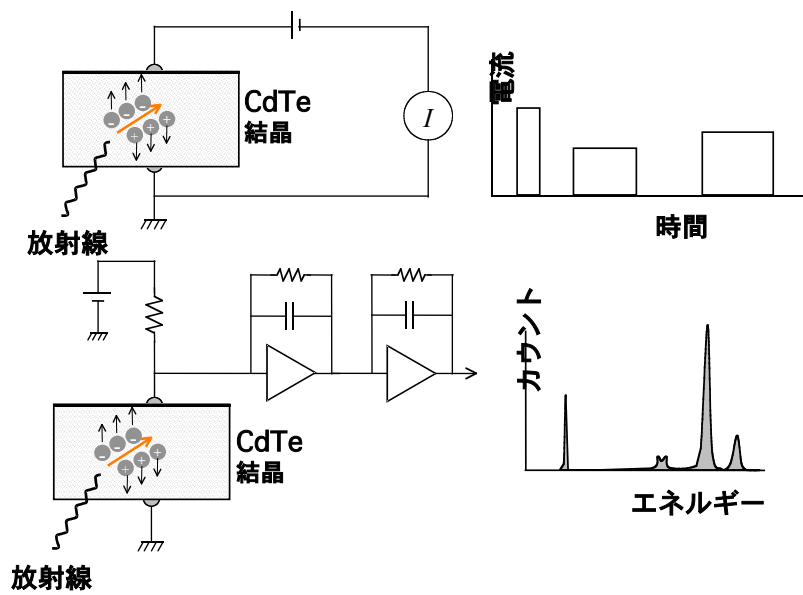


図1 CdTe半導体の放射線検出原理

さいために、放射線が素子のどの方向から入射するかによって検出器の出力が変化する場合がある。図2は、同一のCdTe 単位素子によって得られた²⁴¹Am のスペクトルである。陰極入射の場合には入射面近傍で発生する正孔の移動が収集効率に寄与する割合が小さいために正常なスペクトルが得られるが、陽極入射の場合は電極近傍で生じた正孔は完全に陰極まで移動することができないために波高値が低下してしまう。同じ素子でも結晶にもっと高い電圧を印加すれば、陽極入射のスペクトルの波高値は上がって陰極入射に近づいてくるが、同時に電極間を流れる漏れ電流も増加するので印加電圧には限界がある。この例が示すように、CdTe 系検出器の実用化に際してはその電荷収集特性を理解し、計測の目的によって素子の厚さや電極の種類などの設計を最適化することが必要である。

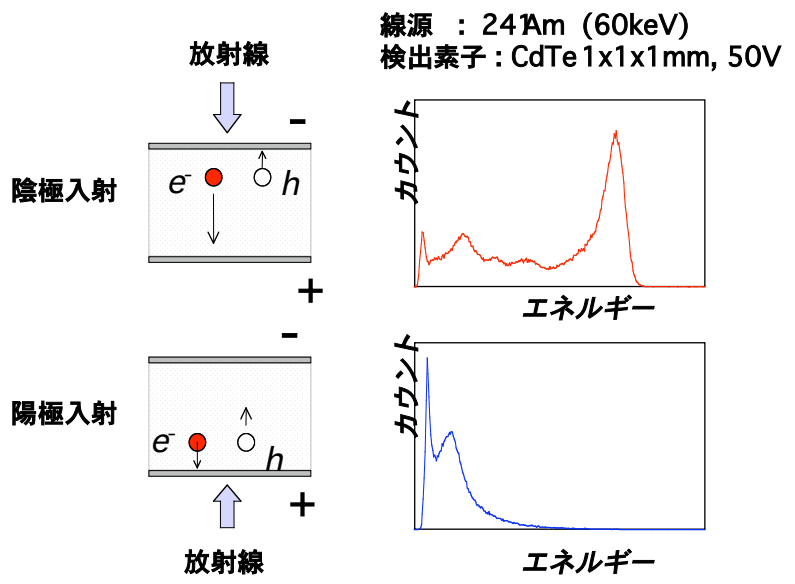


図2 検出放射線の入射面によるスペクトルの違い

最近では、さまざまな目的に適した素子構造を有する検出器が開発され、さらに素子自体あるいは素子表面の電極を分割してピクセル化し、各ピクセルに対応する読出回路を設けることによって、画像検出器を開発する動きが活発化している。画像検出器の開発には、抵抗値などの電気特性が均一な結晶を成長する技術、結晶表面に目的に応じた電極を形成して素子化する技術、多くのピクセルからの信号に対応する多チャンネル信号読出回路の技術、素子と回路を接

合する技術の4つが必要不可欠である。以下にこれらの基礎技術の開発現状とそれによって実用化された画像検出器の例を示す。

3. 開発の現状

3. 1 結晶製造 (CdTe と CdZnTe)

CdZnTe (通称 CZT) は、CdTe に Zn を加えた混晶であり、Cd の 10% 程度を Zn で置換したものがよく使われている。CdTe と CZT とでは平均原子番号や密度はほとんど変わらない。検出素子用の結晶には、素子に電圧をかけた状態での漏れ電流が小さいことと電荷収集特性が良いことの2点が要求される。具体的には比抵抗が $1 \times 10^9 \Omega \text{cm}$ 以上あり、 $\mu \tau$ 値が電子で $1 \times 10^{-3} \text{cm}^2/\text{V}$ 以上、正孔で $1 \times 10^{-4} \text{cm}^2/\text{V}$ 以上であることが要件である。さらに画像検出器の実用化には、これらの電気特性が結晶全体にわたって均一であることが重要である。

CdTe 結晶は、THM (Traveling Heater Method) によって製造されることが多い⁷⁾。図3はその

原理を示したものである。この方法ではまず、石英アンブルの下から順に CdTe 種結晶、微量の Cl を添加した Te、原料となる CdTe 多結晶インゴットを配置しておき、ヒーターで Te の部分だけを約 900℃ に加熱融解する。するとその上下の CdTe が Te に溶解して CdTe で飽和した Te-Cd-Cl の融帯が形成される。この温度を保ちながらアンブルを徐々に下降させることによって、Te の融帯が上の CdTe を溶解する一方で下から極微量で一定の Cl が補償のためにドーピングされた CdTe が析出しながら上へ移動する。この方法で得られる Cl ドープ CdTe 結晶は P 型で比抵抗は $3 \times 10^9 \Omega \text{cm}$ 程度、 $\mu \tau$ 値は電子で $10^{-3} \text{cm}^2/\text{V}$ 台、正孔で $10^{-4} \text{cm}^2/\text{V}$ 台である。従来、THM は溶液からの結晶成長であるために成長速度が遅く大型結晶の製造には適さないというのが通念であったが、現在ではこの方法により図4に示すような直径 75mm、長さ 150mm の CdTe 単結晶が製造されている。この結晶からは図5に示

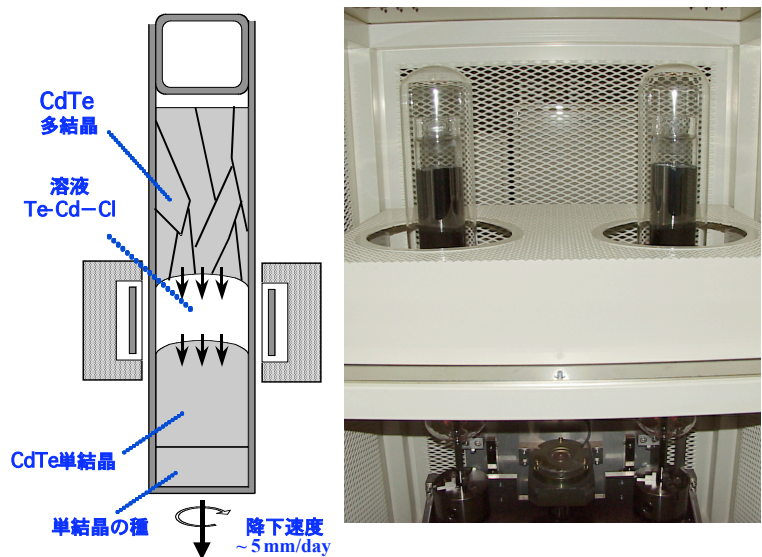


図3 THMによる CdTe:Cl の結晶成長(Acrorad)



図4 THMによる CdTe 結晶(Acrorad)

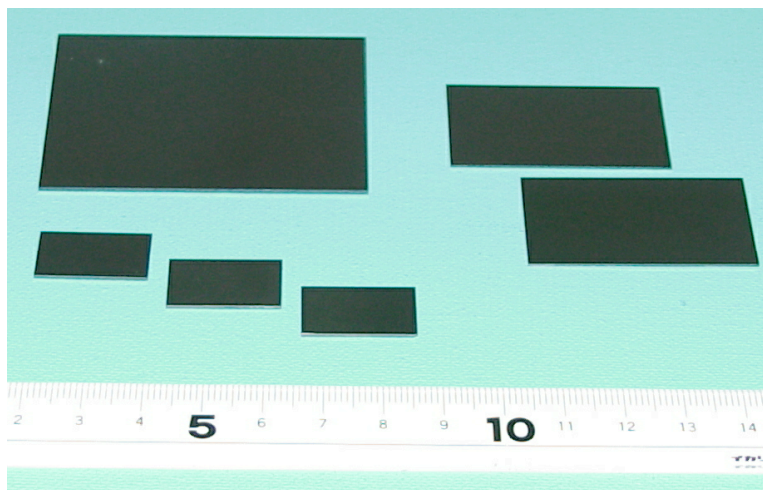


図5 CdTe 結晶ウェーハ(Acrorad)

圧容器の中で全体を加熱して溶解反応させた後に、ルツボの下から徐々に固化させて結晶を成長させる。この方法では比抵抗が最大で $1 \times 10^{11} \Omega \text{ cm}$ の CZT 結晶が得られ、CdTe 結晶に比べて検出素子の漏れ電流が小さくなるというメリットがある。一方、CZT の $\mu \tau$ 値は電子で $10^{-3} \text{ cm}^2/\text{V}$ 台であるが、正孔では $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V}$ 台と小さく、十分な波高値を得るには CdTe の場合より高い電圧を印加しなければならない。また、CZT 結晶は結晶成長の原理上、結晶の成長方向で Zn の濃度が連続的に変化するので、全体にわたって電気特性が均一な結晶を得ることはできない。さらに、高压条件下で3元素系混晶の単結晶を育成することは困難なため、多くの結晶欠陥を含む多結晶インゴットが育成されているのが現状であり、画像検出器用の結晶としては均一性に課題がある。

すように検出素子用に最大 50mm 角の単結晶ウェーハが加工されており、特に面内で電気特性が均一であることが必要な画像検出器用に適している。

CZT 結晶は、主に HPB (High Pressure Bridgman) 法により Ar ガスで 1~15Mpa の圧力をかけて製造されている。図6はその原理を示したものである(8-9)。この方法では、直径 100mm 程度のカーボン製のルツボに所定量の原料を入れ、高

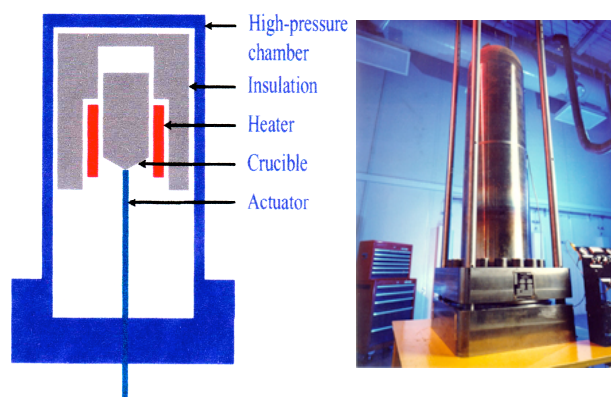


図6 HPB による CZT の結晶成長
(eV Products 社会社案内より)

3. 2 電極形成 (検出素子)

結晶の表面に形成する電極には、大別してオーム型とショットキー型がある。オーム電極としては Pt が一般的であり、無電解メッキ法や真空蒸着法などで結晶の対向する2面にそれぞれ陽極と陰極として形成される。オーム電極による素子は固体電離箱として動作し、その漏れ電流は電圧印加方向によらず結晶

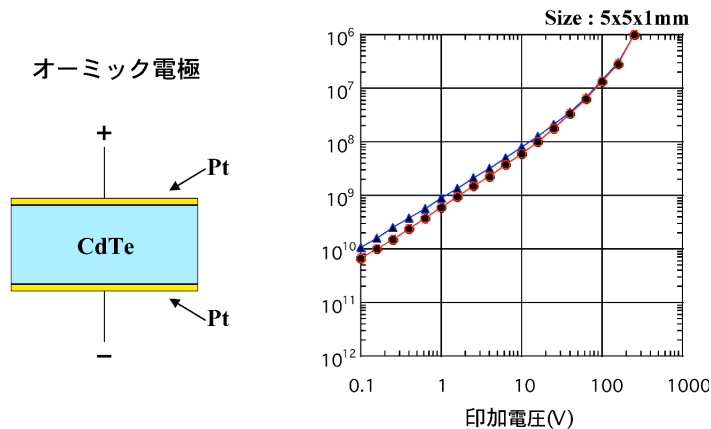


図7 オーム電極構造と V-I 特性

の比抵抗で決まる。Pt/CdTe/Pt 系素子の場合、室温で図7に示すように電解強度が約 1,000V/cm まではほぼ直線的な I-V 特性が得られる。この素子は特性が経時変化することもなく、安定した検出器を構成することができるが、40°C以上の動作温度では漏れ電流の増加が顕著になるため、使用環境によっては素子の冷却手段が必要になる場合がある。

一方、P 型 CdTe 結晶の表面に仕事関数の小さな金属との接触によるショットキー障壁を形成することによってダイオード特性を持たせることができる。その例が In/CdTe/Pt 系の素子である 10)。この素子では図8に示すように、逆バイアス時の漏れ電流が Pt/CdTe/Pt 系素子の場合に比べて2桁以上低減されるため、優れた検出器を構成することができる。すなわち、素子の漏れ電流が小さいため

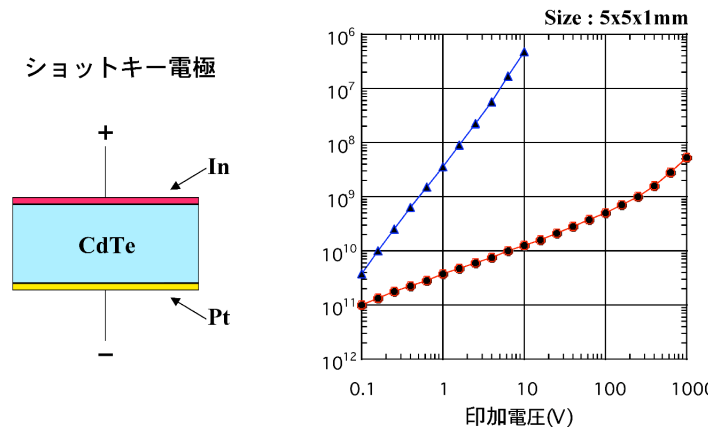


図8 ショットキー電極構造と I-V 特性

に高い電圧を印加することができるので、正孔がトラップされてしまう前に収集することができ、シャープなエネルギースペクトルが得られる。ただし、陽極から遠い結晶内部では電解強度は低下するので、実用的な素子厚は 1mm 程度以下に制限される。また、この In/CdTe/Pt 系の素子では、ダイオードを構成することにより、時間とともに電荷の収集効率が低下するポラリゼーションと呼ばれる現象が生じる。この現象は、P 型 CdTe の深いアクセプタ準位に関係すると考えられ、その進行具合は動作温度が低く印加電圧が高いほど遅くなる。なお、この現象は、ある段階で素子への電圧印加をリセットすることで初期特性を回復することができるので、室温での使用に実用上の大きな問題はない。

図9は、同じ面積を有する Pt/CdTe/Pt 系素子と In/CdTe/Pt 系素子のエネルギー分解性能を比較した例である。In/CdTe/Pt 系素子では高電圧を印加することにより電荷収集効率が改善され、エネルギースペクトルの FWHM は Pt/CdTe/Pt 系素子に比べて大きく向上する。

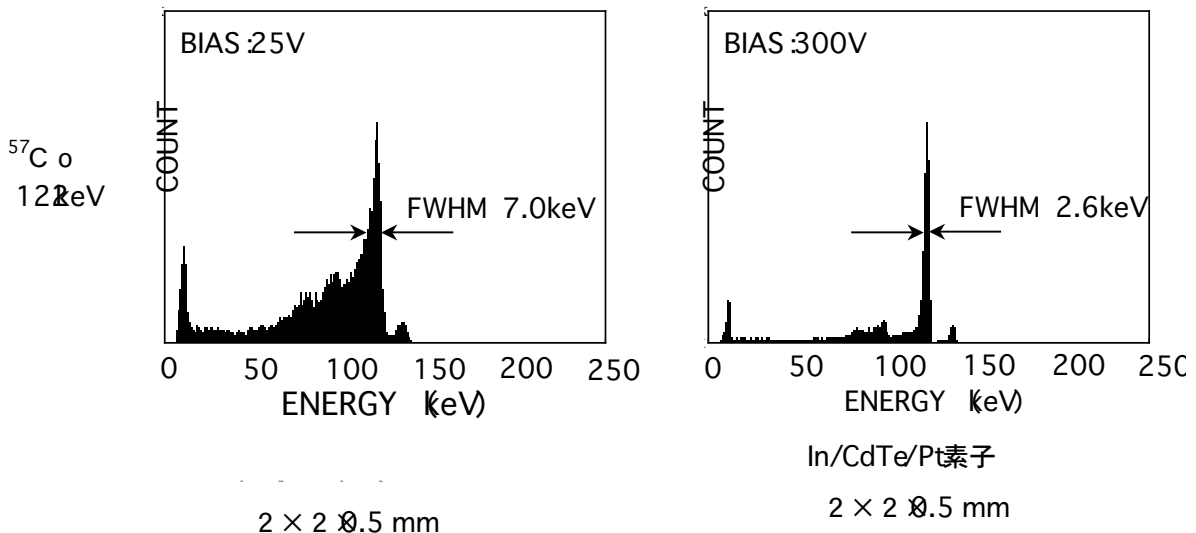


図9 オーミック電極素子とショットキー電極素子の ^{57}Co のスペクト

最近ではこれらの電極形成技術を使って、画像検出器用に様々な形状の素子が開発されている。図10はその例である。エネルギーが100keV以下のX線用としては結晶厚を1mm以下とし、一方の面の電極をフォトリソグラフィによって0.1mmピッチのピクセル状に分割したモノリシックアレイ型の二次元素子が開発されている。100keV以上の γ 線に対して高い感度が要求される場合には、電極面と平行な方向から放射線を入射するようにした多チャンネル一次元アレイ素子を複数重ねることによってピクセルピッチ1.4mmで放射線の有効吸収厚が5mm以上の二次元素子が作られている。

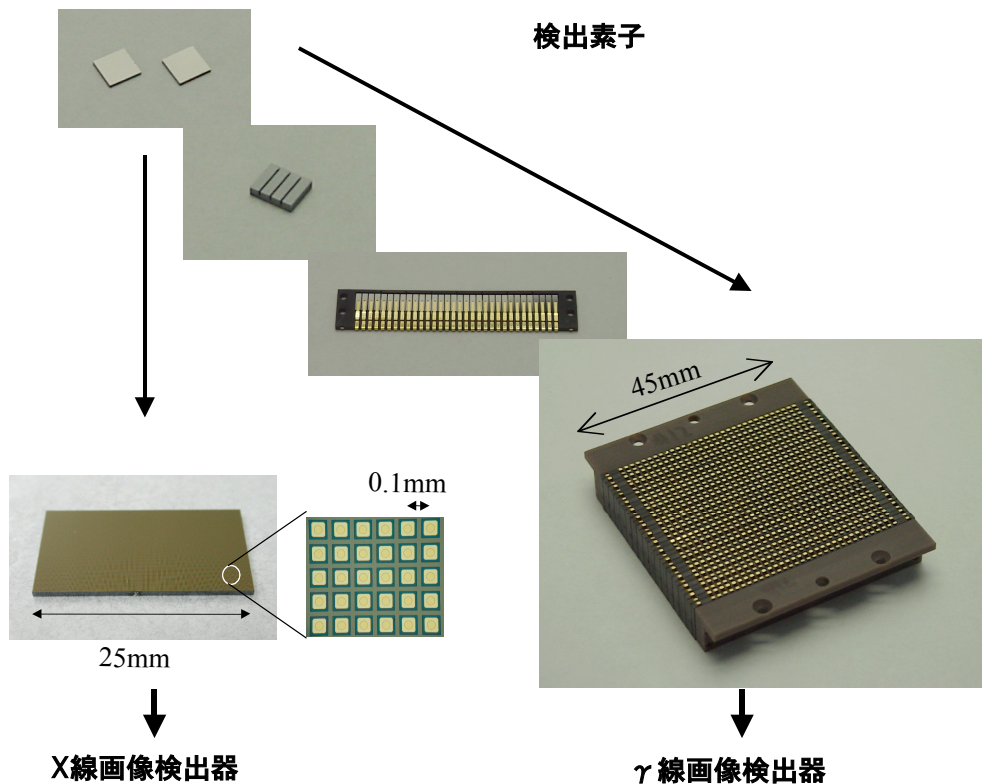


図10 画像検出素子の例

3. 3 信号読出し回路 (ASIC)

ピクセル状の二次元素子から放射線画像を得るためには、ピクセル一つ一つに対応するアナログ信号読出し回路 (ASIC) が必要になる。ASIC は機能面から電流計測タイプの検出器用とエネルギー計測タイプの検出器用とに分類され、構造面からは配線を介してピクセル素子と接続する一次元型とピクセル素子に直接接合する二次元型とに分類される。電流計測タイプは回路構成が単純であるため既に1チャンネル当り0.1mmの大きさまで集積化された二次元型ASICが開発されている。一方エネルギー計測タイプの回路はかなり複雑なため、現在は一次元型が開発されている段階である。

図11に現在までに開発されているASICチップの例を示す。ともに $0.35\mu\text{m}$ のCMOSプロセスで製造されている。電流計測用の二次元型ASICは、 $1\times 2\text{cm}^2$ の中に約20,000チャンネルの回路を有し、各チャンネルにCdTeピクセルの電極と接続するためのパッドがある。エネルギー計測用の一次元型ASICは、 $1\times 1\text{cm}^2$ に128チャンネル分の回路を有し、周辺部にワイヤボンドのための

パッドがある。現在はエネルギー計測用の ASIC 設計技術を発展させて、0.2mm ピッチの CdTe ピクセル素子と直接接合することが可能な二次元型 ASIC の開発も進められている。

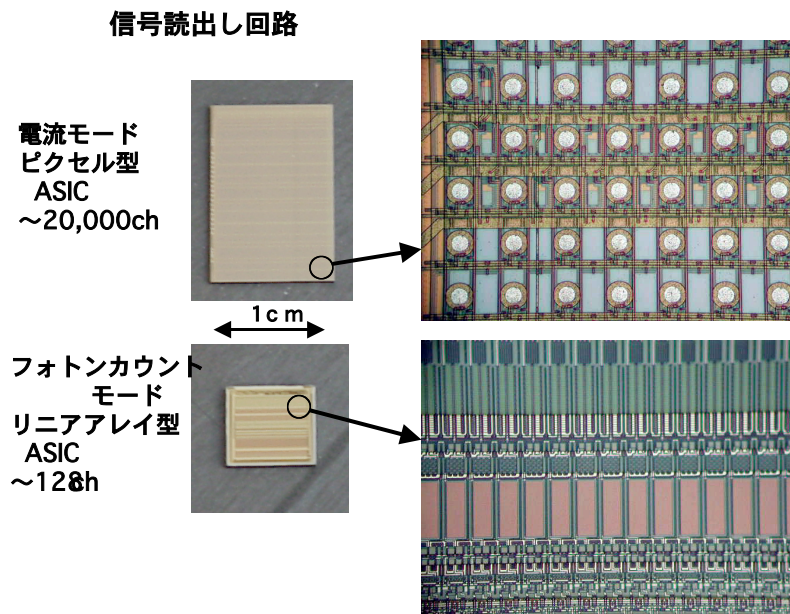


図 11 信号読出し ASIC チップの例

3. 4 結晶と回路との接合（画像検出装置）

上述したような CdTe 二次元素子とそれらに対応する信号読出し ASIC とを接合することによって画像検出器が構成される。そのような CdTe 系の画像検出器は従来のシンチレータ検出器に比べて、放射線感度・エネルギー分解能・位置分解能を同時に向上することができるというメリットがあり、医療用や非破壊検査用のイメージャーとして積極的に開発が進められている。

まず、結晶厚 1mm 程度で十分な吸収率が得られる 100keV 以下の X 線用の画像検出器として、

図 1 2 に示すようなハイブリッド構造で検出器が構成されるようになっている。ここで CdTe 側のピクセル電極のピッチは 0.1mm である。ピクセル電極と ASIC 上の電極パッドとの接続は、ASIC 側のパッド上に Bi-Sn 系の低融点ハンダの bumps を形成し、130℃

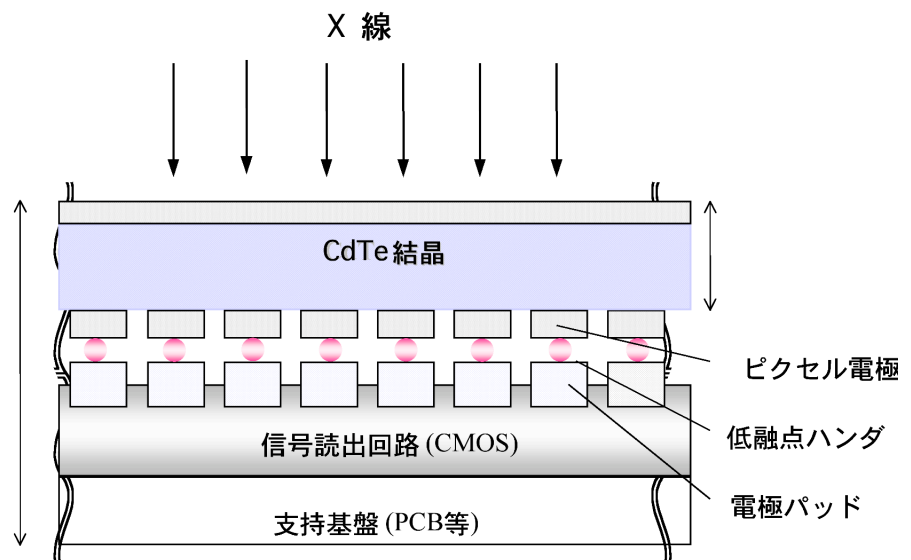


図 12 X 線画像検出器の基本構成

程度の温度で融解したハンダバンプに CdTe 素子を接触させて行う。図 1 3 は、この方法で得られる CdTe ハイブリッドモジュールを二次元配置した X 線画像検出器の例を示す。この検出器は 50×50mm の有効視野があり、空間分解能 0.1mm のデジタル画像をフレーム速度 50fr/sec で撮ることができる。図 1 4 はこの検出器で撮影された 1 円硬貨の画像である。硬貨の裏と表のデザインが明確に認識されており、CdTe 検出器の感度の高さを示している。今後エネルギー弁別機能を有する二次元型 ASIC が開発されれば、このような構造の高分解能型検出器で X 線や γ 線のエネルギー分析が可能になり、非破壊検査や保安検査の分野に応用されるものと期待される。

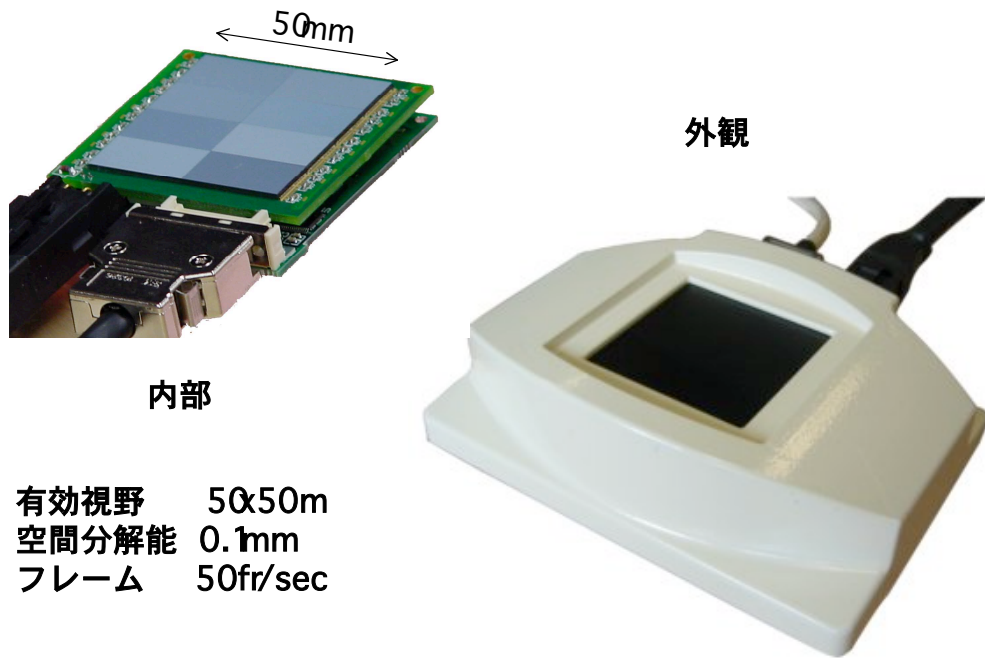


図 13 X線画像検出器 (D I C)

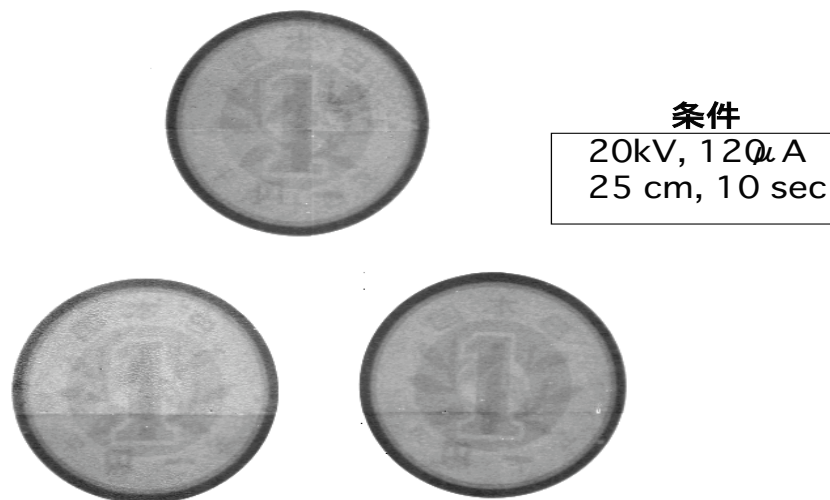


図 14 X線画像検出器による 1 円硬貨の画像

また、医療用等で 100keV 以上の特定の放射線だけを感度良く検出する必要がある γ 線画像検出器として、図 1 5 に示すような検出器構造が採用されている。ここで CdTe 素子の電極は γ 線の入射方向と並行な面に形成されており、この方法で γ 線を十分吸収しながら生じた電荷を完全に収集することが可能になる。図 1 6 は、この検出器構造を採用した γ 線画像検出器の例を示す。この検出器では、ピッチ 1.4mm の 1,024 チャンネルの CdTe 二次元 Cd 素子モジュールの各ピクセルがその背面のスプリングコネクタによって後段のフレキシブル基板上の合計 8 個の 128 チャンネル ASIC と接続されている。また CdTe モジュールの前面には同じピッチで穴空け加工したタングステンシートを積層した厚さ 10~20mm のコリメータがある。この検出器は 45×45mm の有効視野に 1,024 個の画素があり、小型・軽量でありながら感度・エネルギー分解能・空間分解能に優れることが特徴である。図 1 7 はこの検出器の全面に Tc-99m (140keV) を照射した状態で全チャンネルから得られる合計のエネルギースペクトルであり、FWHM で 5.6% の値が得られている。この検出器はこれらの特徴から、図 1 8 に事例を示すような RI を使う小動物による研究や、従来の医療用大型シンチレーションカメラによる核医学診断を補完するイメージャーとしての利用が期待されている。

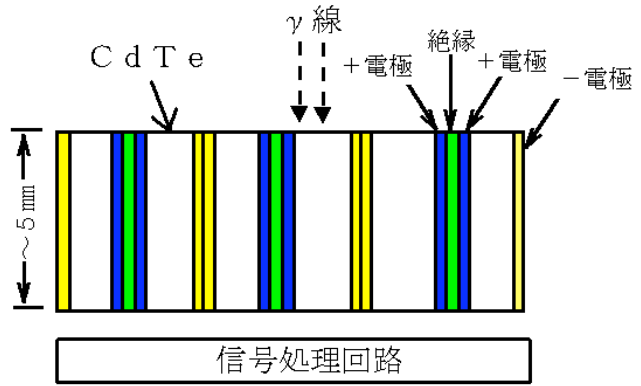
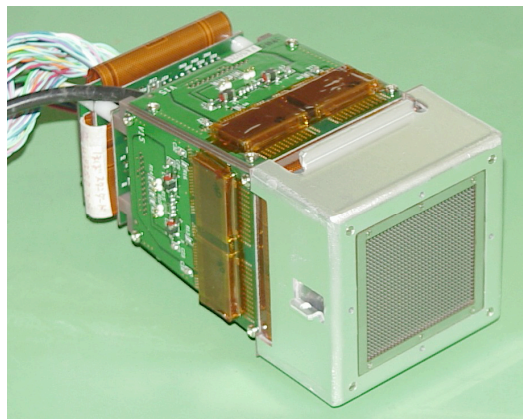


図 15 γ 線画像検出器の基本構成



内部

有効視野 50×50mm
画素数 1,024
空間分解能 1.4mm

外観

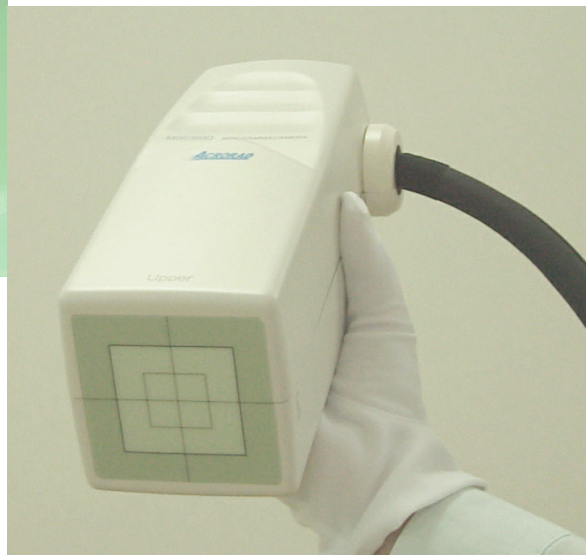


図 16 γ 線画像検出器 (MG C)

Tc-99m (140keV線源)
7.5mCi, 300 sec

FWHM 5.6 %

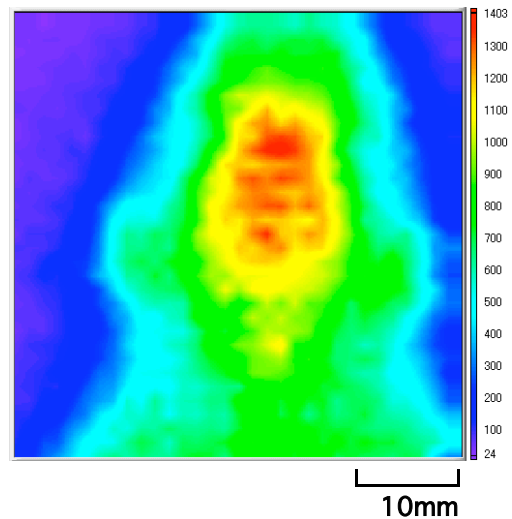
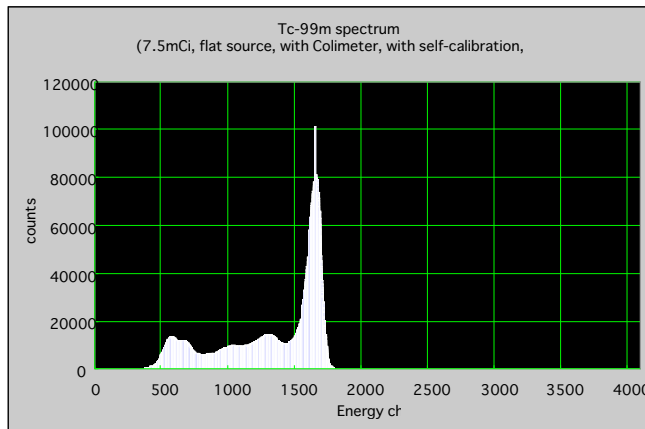


図 17 γ 線画像検出器の 1024 c h 合計のスペクトル

図 18 ラ

ットの頭部 (脳) の R I 画像

(京都大学薬学部提供)

4. まとめ

最近の CdTe 系検出器の開発動向を紹介した。CdTe 系検出器の開発は、長い間研究レベルであったが、近年の結晶製造技術の進歩によって画像検出器の実用化段階に入っている。画像検出器の実用化には、抵抗値などの電気特性が均一な結晶を成長する技術、結晶表面に目的に応じた電極を形成して素子化する技術、多くのピクセルからの信号に対応する多チャンネル信号読出回路の技術、素子と回路を接合する技術の 4 つが必要不可欠である。最近ではこれら基礎技術が総合的に向上しており、小型で高感度であるという検出器の特徴を活かした実用的な装置として、リアルタイムで X 線や γ 線を画像化する装置が開発されている。

参考文献

- 1) R. O. Bell, N. Hemmat, and F. Wald, Phys. Stat. Sol. (a), **1**(1070)375
- 2) K. Zanio, J. Electron. Mat., **3**(1974)327
- 3) B. Biglari et al., J. Cryst. Growth., **89**(1988)428
- 4) M. Ohmori, Y. Iwase, and R. Ohno, Mat. Sci. Eng., **B16**(1993)283
- 5) J. F. Butler, C. L. Lingren, and F. P. Doty, IEEE Trans. Nucl. Phys., **39**(1992)605
- 6) G. Sato et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., **49**(2002)1258
- 7) M. Funaki et al., Nucl. Instr. and Meth., **A436**(1999)111
- 8) C. Szeles and M. C. Driver, SPIE, **3346**(1998)1
- 9) C. Szeles and E. Eissler, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 484(1998)309

10) T. Takahashi et al., Nucl. Instr. Meth., **A436**(2000)111