

ダイヤモンド検出器の医療応用 — 固体電離箱から光刺激蛍光線量計まで —

小山 浩司*¹
Koyama Koji

金 聖祐*¹
Kim SeongWoo

眞正 浄光*²
Shinsho Kiyomitsu

1. はじめに

医療における放射線利用は年々拡大しており、診断 X 線撮影、CT 検査、IVR、放射線治療等、多様な場面で放射線計測技術が不可欠となっている。とりわけ近年は、患者被ばくの最適化や線量の記録・管理が国際的に強く求められており、小型・高感度・組織等価な線量計の重要性が高まっている。

従来、診断領域の線量測定には空気充填型電離箱（指頭形・平行平板形等）が広く用いられてきた¹⁾。空気充填型電離箱は高い信頼性を有する一方で、感度確保のために一定以上の体積を必要とし、小型化には限界がある。また、温度・気圧補正が必要であり、感度や空間分解能の点において課題が残る。

こうした背景から注目されているのが、半導体を用いた固体電離箱である²⁾。固体電離箱は、放射線照射によって半導体中に生成される電子・正孔対を電流として検出する。気体に比べて密度が高く、同じ体積当たりに生成されるキャリア数が桁違いに多いため、大幅な小型・高感度化が可能となる。代表的な材料としては Si や Ge が知られているが、Si は原子番号 (Z 値) が低く X 線・ γ 線との相互作用が弱く、Ge は優れたエネルギー分解能を持つものの液体窒素冷却が必須で運用上の制約が大きい。CdTe は Z 値が高く室温動作も可能だが、正孔の輸送特性に課題がある。

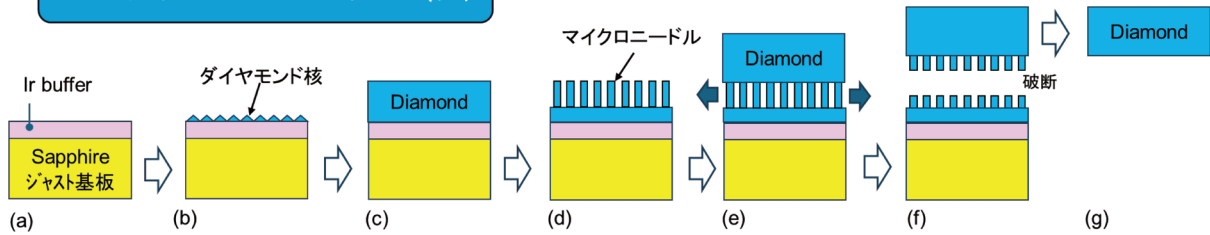
放射線検出器材料に求められる性質として、①高密度・高 Z 値による高い相互作用確率、②電子・正孔対生成エネルギー (W 値) の小ささ、③良好なキャリア移動度・寿命 ($\mu\tau$) 積、④室温動作を

可能にする広いバンドギャップ、そして医療応用においては⑤人体組織との等価性（実効 Z 値が軟組織の 7.4 に近いこと）が挙げられる。

これらすべての観点で優れた候補として近年注目されるのがダイヤモンドである³⁾。ダイヤモンドは約 13 eV の低い W 値、高いキャリア移動度、5.47 eV の広いバンドギャップ、高い熱伝導率を有し、原子番号 (Z=6) が軟組織に近い。加えて放射線損傷への耐性にも優れ、長期安定性が期待できる。

しかし、ダイヤモンド検出器の普及は長らく進まなかった。その最大の障壁が大面積・大型結晶の実現の困難さにある。1990 年代後半に気相合成法 (CVD 法) が確立され、高品質な単結晶ダイヤモンドが合成できるようになり^{4,5)}、検出器の安定性が飛躍的に向上した。しかし、従来のホモエピタキシャル成長法は、高温高压合成 (HPHT) 法で得られる数ミリ角程度の小さい種結晶を用いるため大口径化が難しく、産業応用が進まなかった。サファイアや酸化マグネシウム、Si 等の非ダイヤモンド基板を使用するヘテロエピタキシャル成長法は大口径化に原理的に有利であるものの、基板との熱膨張係数差に起因する大きな応力が長年実用化の壁となってきた⁶⁾。近年、成長技術の革新によりこの壁が破られ、放射線検出器に利用可能な高品質の大面積ダイヤモンド基板の製造が実現した。本稿では、ヘテロエピタキシャルダイヤモンドの作製技術と、ヘテロエピタキシャルダイヤモンドを用いた検出器の特性について、固体電離箱としての応用と光刺激蛍光 (OSL) 特性の両面から紹介する。

マイクロニードル法



ステップフロー法



図1 マイクロニードル成長法（上段）とステップフロー成長法（下段）のプロセスフロー

2. ヘテロエピタキシャルダイヤモンド作製技術

ヘテロエピタキシャル成長法の主要な課題の1つは下地基板に用いる材料とダイヤモンドの熱膨張係数（CTE）差に起因する応力である。本研究ではサファイア（ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ）上にIrバッファ層を形成した基板を採用した。サファイアは大面積・高品質・低コストの利点を持ち、そのCTEはダイヤモンド（ $1.5 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$ ）と比較的近い（a軸： $4.2 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$ 、c軸： $5.3 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$ ）。

応力低減の初期技術としてマイクロニードル成長法を開発した（図1上段）。Ir/サファイア基板上にマイクロ波プラズマCVD（MPCVD）法で第1のダイヤモンド層を成長後、マイクロニードル形状に加工し、その上に厚い（ $800\sim 1000\mu\text{m}$ ）第2層を成長する。冷却過程においてCTE差による応力でマイクロニードルは破断し、第2層がサファイアから自然分離してダイヤモンド結晶が得られる。本手法により直径1インチまでのダイヤモンド基板を実証できた^{7,8)}。一方でニードル加工プロセスがコスト面のボトルネックとなることが明らかになった。

そこでより生産性の高いステップフロー成長法を新たに開発した（図1下段）。サファイアに微傾斜（ミスオリエンテーション）を付与したIr/サファイア基板上でダイヤモンドをステップフロー成長させることで、応力を大幅に低減しつつ結晶の均一性を向

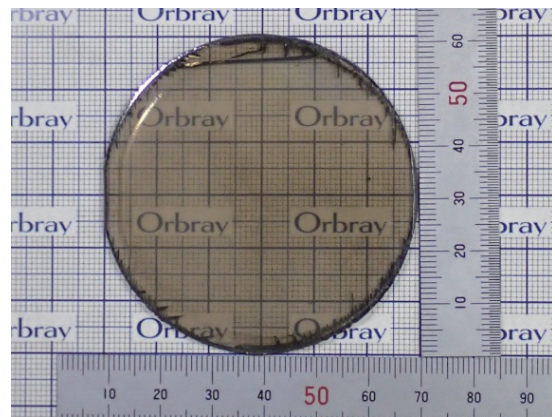


図2 直径60 mmのダイヤモンド結晶

上させる。この手法は複雑なマイクロニードル加工を必要とせず、低コストで大面積成長が可能である。

得られたダイヤモンドの結晶品質を評価すると、(004)ピークの半値全幅（FWHM）53 arcsec（秒角：3600分の1度）、(311)ピークで93 arcsecを達成した。ホモエピタキシャルダイヤモンドの(004)ピークFWHMは一般に30~60 arcsec程度であり、これに匹敵するヘテロエピタキシャルダイヤモンドとして世界最高水準の結晶品質である。

本技術により直径2インチを超えるヘテロエピタキシャルダイヤモンド基板の量産技術の確立に成功した⁹⁾（図2）。今後は直径4インチ、6インチへと更なる大口径化に向けて研究を推進する。

表1 HED-IC と代表的な参照線量計間の絶対感度及び体積正規化感度の比較¹⁰⁾

| Detector | Active volume (mm ³) | Sensitivity (nC mGy ⁻¹) | Sensitivity ratio | Volume-normalized sensitivity ratio (relative to Radcal 9015) |
|----------------------------|----------------------------------|-------------------------------------|----------------------|---|
| Radcal 9015 10X6-6M | 6000 | 2.1×10 ⁻¹ | 1 | 1 |
| PTW 30013 Farmer Chamber | 600 | 2.0×10 ⁻² | 9.5×10 ⁻² | 9.5×10 ⁻¹ |
| IBA Dosimetry CC13 | 130 | 3.6×10 ⁻³ | 1.7×10 ⁻² | 7.9×10 ⁻¹ |
| PTW 60019 microDiamond | 0.004 | 1×10 ⁻³ | 4.8×10 ⁻³ | 7.1 |
| PTW microSilicon T60023 | 0.03 | 1.9×10 ⁻² | 9.1×10 ⁻² | 1.8×10 ¹ |
| Heteroepitaxial Diamond IC | -1 V | 4.80 | 3.4×10 ⁻² | 2.0×10 ² |
| | -5 V | 4.80 | 1.9×10 ⁻¹ | 1.1×10 ³ |
| | -10 V | 4.80 | 3.4×10 ⁻¹ | 2.0×10 ³ |
| | -50 V | 4.80 | 1.1 | 6.5×10 ³ |
| | -100 V | 4.80 | 2.2 | 1.0×10 ⁴ |

3. 固体電離箱としてのヘテロエピタキシャルダイヤモンド

本研究で開発したヘテロエピタキシャルダイヤモンド固体電離箱 (IC) は、4×4×0.5 mm³ の極めて小さなダイヤモンド基板に Ti/Au 電極を形成した構造を有する。感度体積は約 4.8 mm³ であり、一般的に診断領域で利用される空気充填型電離箱 (約 6000 mm³) の約 1/1250 である。

3.1 低電圧動作と高い線量直線性

診断 X 線領域 (50 ~ 120 keV) において、-1 ~ -100V という低バイアス条件下で評価を行ったところ、0.25 ~ 13.1 mGy の範囲において R² > 0.997 という優れた線量直線性が得られた¹⁰⁾。更に、-5 V 印加時には標準的な空気充填型電離箱 (Radcal 社製 9015 型) とほぼ同等の感度 (約 0.9 倍) を示し、-100V ではそれを上回る 10 倍の感度が得られた。

3.2 体積正規化感度における優位性

感度を体積で正規化すると、その優位性は更に明確となる。ヘテロエピタキシャルダイヤモンド IC は空気充填型電離箱と比較して、-1 V で約 200 倍、-10 V で約 2000 倍、-100 V で約 13000 倍という極めて高い体積効率を示す (表 1)。

これはダイヤモンドの高密度 (3.51 g/cm³) 及び低い W 値 (約 13 eV) に起因する高い電荷生成効率によるものである。小型でありながら高感度であるという特性は、局所線量測定や空間分解能を重視する応用において大きな利点となる。

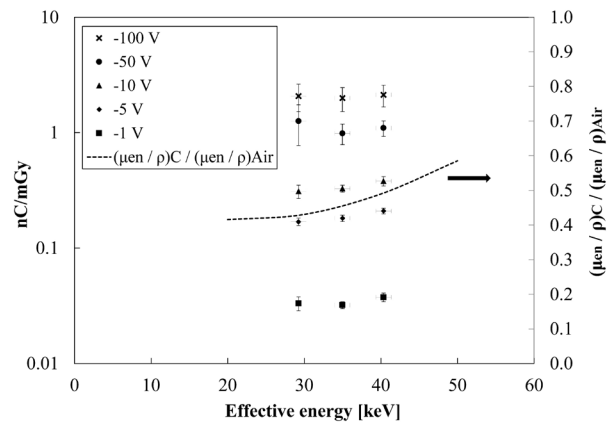


図3 診断領域におけるエネルギー依存性

3.3 診断領域におけるエネルギー依存性

診断 X 線領域 (実効エネルギー 28 ~ 40 keV) において評価したところ、エネルギー依存性は最大でも約 10% 以内に収まり、補償フィルタを用いずとも実用上十分に平坦な応答が得られた。ヘテロエピタキシャルダイヤモンド IC の構造と今回の実験条件に基づいた PHITS によるモンテカルロ計算や、炭素と空気の質量エネルギー吸収係数 (μ_{en}/ρ) の比 (C/air) の緩やかな増加とも整合する結果が得られ、実験結果と良好に一致した¹⁰⁾ (図 3)。この結果は、ヘテロエピタキシャルダイヤモンド IC が診断 X 線領域において安定かつ信頼性の高い線量測定を実現できることを示している。

3.4 光刺激蛍光 (OSL) 特性と窒素濃度の役割

ヘテロエピタキシャルダイヤモンドは電離箱としてだけでなく、蓄積型線量計としても機能する可能

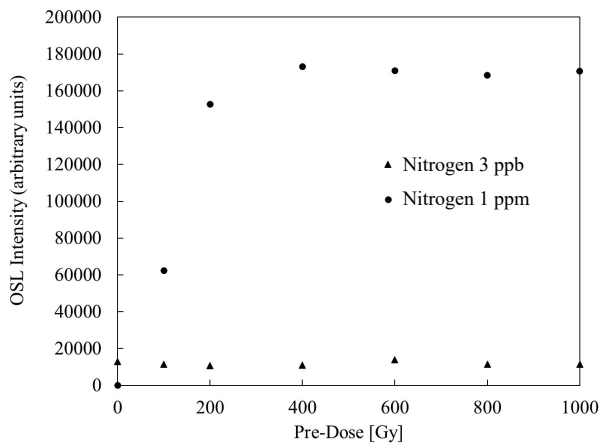


図4 プレ照射による増感効果

性がある。不純物としてドーピングさせた窒素の濃度が異なる2種類のヘテロエピタキシャルダイヤモンド(3 ppb 及び 1 ppm)を用いて OSL 特性を評価した。窒素濃度 1 ppm 試料では 3 ppb 試料に比べ約 1 桁高い OSL 強度が得られた¹¹⁾。これは窒素関連欠陥(NV 中心等)がトラップ及び再結合中心として機能するためと考えられる。

3.5 プレ照射による増感効果

図4では最大 1000 Gy までのプレ照射を行い、OSL 感度の増大を調べた。増感効果は 400 Gy 付近で飽和し、500℃で 60 秒間アニールすると完全に初期状態へ戻った。発光スペクトルは 500~800 nm に広がる単一の広帯域であり、ピークは 620~650 nm 付近に現れた。プレ照射前後でスペクトル形状は変化せず、新たな発光中心の生成ではなく既存欠陥の電荷占有状態の変化による可逆的増感であることが示唆された。

4. おわりに

本稿では、ダイヤモンド検出器の医療放射線応用について、固体電離箱としての高感度線量計特性と OSL 蓄積型線量計特性の両面から述べた。使用したダイヤモンドはヘテロエピタキシャル成長法により製造したもので、その作製技術についても紹介した。

応力低減技術の開発により、実現困難とされてき

た直径 2 インチを超える高品質ダイヤモンドの量産技術を確立した。また、ヘテロエピタキシャルダイヤモンドが低電圧で動作する高感度固体電離箱として実用化可能であることを示した。小体積でありながら高い電荷生成効率を有するため、従来の空気充填型電離箱と同等以上の感度を、よりコンパクトな構成で実現できる。この特性は、装置組込み型線量計や可搬型線量計への応用に加え、微小領域の線量評価を可能とする高空間分解能リアルタイム線量計への展開を示唆する。大面積基板と組み合わせたアレイ化により、線量分布の可視化デバイスへの発展も期待される。

更に、ダイヤモンドは窒素やボロン等の添加量を精密に制御できる材料基盤である。不純物濃度の制御によりトラップ準位や発光中心を設計できれば、今回示した蓄積型線量計やシンチレータとしての機能最適化も可能となる。すなわち、本材料は電離箱型検出、蓄積型線量計、更には発光検出へと展開可能な、多機能放射線検出材料として発展する可能性を有している。

ヘテロエピタキシャルダイヤモンド技術は医療放射線検出の新時代を切り拓き、放射線診療の安全性向上と医療被ばく管理の高度化への貢献が期待される。

参考文献

- 1) F. H. Attix., *Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry*. Wiley-VCH, New York, 1986.
- 2) M. J. Yaffe., *et al.*, *Phys. Med. Biol.*, **42**, 1 (1997)
- 3) D. Araujo., *et al.*, *Materials*, **14**, 7081 (2021)
- 4) S. Koizumi., *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **71** (8) 25 (1997)
- 5) D. Takeuchi., *et al.*, *Phys. Status Solidi A*, **186**, 269 (2001)
- 6) M. Schreck., *et al.*, in *Power Electronics Device Applications of Diamond Semiconductors*. Woodhead, Cambridge, UK, 2018, p. 58.
- 7) H. Aida., *et al.*, *Appl. Phys. Express*, **9**, 035504 (2016)
- 8) S-W. Kim., *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **117**, 202102 (2020)
- 9) S.W. Kim., *et al.*, *Appl. Phys. Express*, **14**, 115501 (2021)
- 10) K. Shinsho., *et al.*, *Med Phys.*, **53**, e70363 (2026)
- 11) K. Shinsho., *et al.*, *J Mater Sci: Mater Electron*, **37**, 270 (2026)

(*¹Orbray 株式会社, *² 東京都立大学)