

(12) III族窒化物半導体を用いた中性子イメージングセンサーの開発

静岡大学・大学院工学領域

中野 貴之

静岡大学・電子工学研究所

青木 徹

静岡大学・創造科学技術大学院

中川 央也

静岡大学・大学院総合科学技術研究科

山田 夏暉、丸山 貴之、坂井田 晃平

近畿大学・原子力研究所

若林 源一郎

【研究背景】

放射線の透過性を利用した検出器は様々な分野で利用されており、非破壊検査装置などの需要が拡大している。放射線検出において、中性子線についても、X線などと異なる透過性を持つことから、ホームランドセキュリティにおける核物質輸送検査、ホウ素中性子捕獲治療(BNCT)法、金属機器の非破壊検査など様々な分野で新しく注目をされている。このような中性子線の利用において、検出技術は重要な基盤技術であり高感度な中性子検出器として ^3He ガスを用いたガス計数管が広く利用されている。しかしながら、世界的な He ガスの枯渇問題により供給が困難になってきており、新しい中性子検出技術の開発が期待されている。本研究では、次世代の中性子検出器として中性子半導体検出器に着目し、熱中性子捕獲断面積が大きい B 原子を含む B GaN 半導体を利用した B GaN 熱中性子半導体検出器を提案し、開発を進めている。III 族窒化物半導体である B GaN は GaN の Ga 原子を B 原子に置換した材料であり、結晶成長技術による作製とデバイス作製が重要な課題となっている。そこで、B GaN 結晶成長技術の開発により厚膜 B GaN 結晶成長の実現を目指し、B GaN 熱中性子半導体検出器の開発を行った。特に、B GaN 結晶成長における B 有機金属原料と NH_3 の気相反応によるアダクトの形成が結晶品質の劣化を引き起こしており、本研究では新規 B 有機金属原料の利用による新しい結晶成長技術の開発を実施した。更に、作製した結晶を用いてダイオードを作製し、放射線検出特性を評価することで B GaN 半導体検出器の中性子検出器としての可能性を評価した。

【実験方法】

本研究では、有機金属気相エピタキシー(MOVPE)法を用いて、B GaN 結晶成長を行った。Ga 有機金属原料および N 原料には、トリメチルガリウム[TMGa, $(\text{CH}_3)_3\text{Ga}$]と NH_3 を用いた。B 有機金属原料には、従来の B 有機金属原料であるトリエチルボロン[TEB, $(\text{CH}_3\text{CH}_2)_3\text{B}$]と、新規 B 有機金属原料であるトリメチルボロン[TMB, $(\text{CH}_3)_3\text{B}$]を用いた。TMB は H_2 希釈 0.5% ガスを用いた。c 面サファイア基板上に GaN バッファー層を約 $2 \mu\text{m}$ 成長後、B GaN 層を約 $1 \mu\text{m}$ 成長した。主な B GaN 成長条件は、キャリアガス: N_2 、成長圧力:100 Torr、成長温度:1080 °C、ガス総流量:4100 sccm とした。 NH_3 ガス流量、TMB 流量、TMGa 流量をそれぞれ変化させることで各依存性を調査した。なお、TMB 流量、TMGa 流量はそれぞれ H_2 ガスを含めた流量にて制御を行った。作製した試料の評価には、SEM、AFM、XRD、PL、SIMS を用いた。

作製した B GaN 結晶を用いて、デバイスプロセスを行うことで縦型 pin ダイオードを作製した。作製したダイオードの特性評価には、 α 線による放射線検出特性評価と原子炉における熱中性子照射実

験を実施した。

【結果および考察】

最初に、各 B 有機原料(TMB、TEB)を用いた BGaN 結晶成長において、NH₃ 流量が BGaN 結晶に与える影響を評価した。図1に、NH₃ ガス流量を変化させて作製した BGaN 結晶の XRD 測定結果を示す。TEB を用いた成長では、NH₃ ガス流量が増加すると BGaN に由来するピーク位置が低角側にシフトしていることが確認された。これは BGaN 結晶中における BN モル分率が減少したことにより、格子定数が小さくなり低角側にシフトしたためである。つまり、NH₃ 流量の増加に伴い BGaN 結晶中の BN モル分率が減少していることを示しており、NH₃ が増加したことにより TEB との気相反応が増え、表面反応により取り込まれる B の量が減ったことを示唆している。一方で、TMB を用いた結晶成長においては、NH₃ 流量を変化させた場合においても BGaN ピーク位置に変化がない結果となった。これは、TMB が TEB よりも安定であり、十分な熱量が得られない気相では分解が起こらず反応が進行せず、基板表面にて分解・反応を起こすことで供給した B 原料が結晶に取り込まれており、BN モル分率が変化していないと考えられる。したがって、TMB の利用により気相反応を抑制した BGaN 結晶成長が可能であり、結晶品質の向上に有効な手法であることが示唆された。

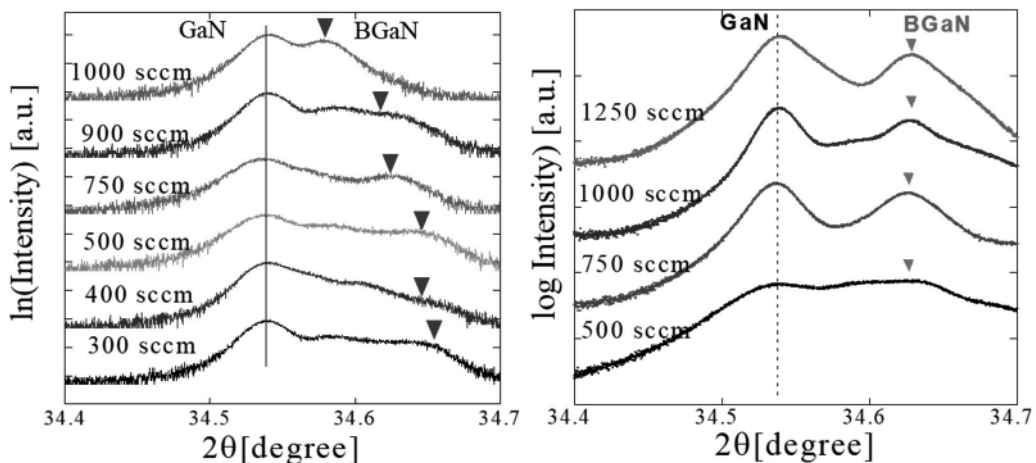


図 1、各 B 有機金属原料を用いて作製した BGaN 薄膜の NH₃ 流量依存性評価結果
(XRD 2θ-ω 測定結果 左図:TEB 使用、右図:TMB 使用)

次に、TMB を用いた BGaN 結晶成長において、TMB 流量が BGaN 結晶に与える影響を調査した。図2に、TMB 流量を変化させて作製した BGaN 結晶の BN モル分率の評価結果を示す。TMB 流量依存性の結果から BN モル分率は TMB 流量 0.25 sccm ~ 0.75 sccm までは上昇傾向にあるといえる。1.0 sccm のような B 有機金属原料供給が過剰な条件では、BN モル分率が減少した傾向が確認された。これは、過剰な TMB に対して NH₃ が気相反応を起こして TMB が消費されてしまった可能性や、BN 由来の sp² 結合が支配的となり GaN とは異なる配向性を示したため、BGaN のピークとして見られない B が存在している可能性などが考えられる。また、成長条件により B の取り込みが飽和状態になっている可能性も考えられる。

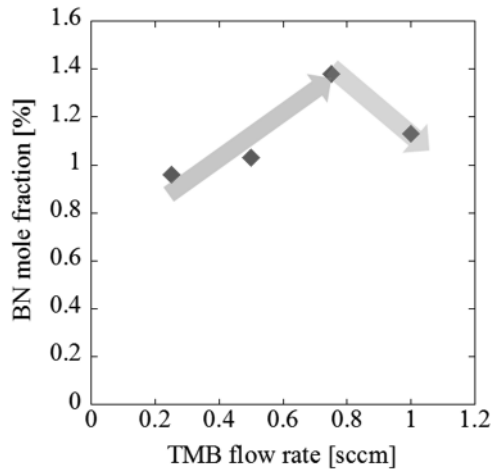


図2、BGaN 結晶中の BN モル分率の TMB 流量依存性(XRD $2\theta - \omega$ 測定結果より)

TMB を用いた結晶成長技術により、寄生反応の抑制された BGaN 結晶成長が可能となったため、厚膜 BGaN 結晶の作製を試みた。p 型 GaN テンプレート上に膜厚約 $2 \mu\text{m}$ の BGaN 成長を達成し、縦型ダイオードの作製を行った。p 型基板上に、BGaN 結晶を成長した後に、コンタクト層として n 型 GaN を 10nm 成長し pin 構造を形成した。作製した基板を、RIE ドライエッチングによりエッチングを行いメサ構造を形成し、下部に p 型電極を上部に n 型電極を形成し、pin ダイオードを作製した。作製したデバイスの断面構造および表面顕微鏡像を図 3 に示す。

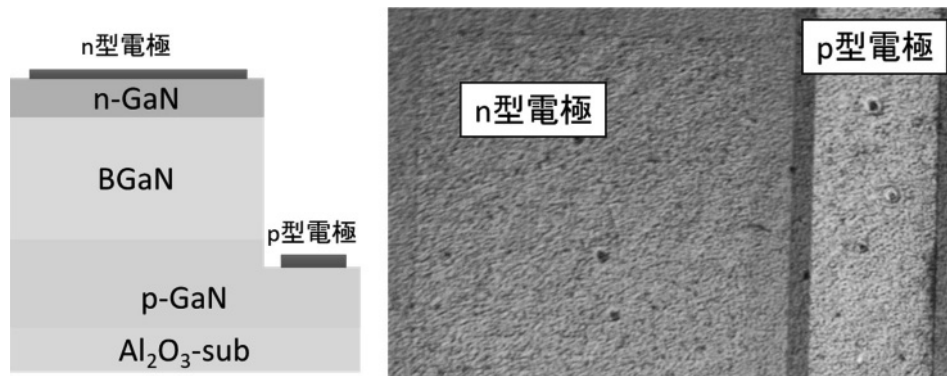


図 3、作製した pin ダイオードの断面構造(左図)と光学顕微鏡像(右図):n 型電極領域 $800 \times 1200 \mu\text{m}^2$

作製した BGaN 縦型ダイオードを用いて α 線照射によるパルス信号を観測した。各パルス検出信号の波形を図 4 に示す。検出信号の波高値は pin-GaN ダイオードを用いたものと比較して 30%程度の低い値となった。この原因としては、BGaN の結晶性の劣化、移動度の低下などが考えられる。続いて、BGaN 縦型ダイオードを用いて α 線のエネルギースペクトル測定を行った。測定結果を図 5 に示す。各照射エネルギーから得られたピーク位置を元に、放射線シミュレーション PHITS コードを用いて評価を行った結果、 $2 \mu\text{m}$ の BGaN 層が全て有感層として機能していることが明らかとなった。

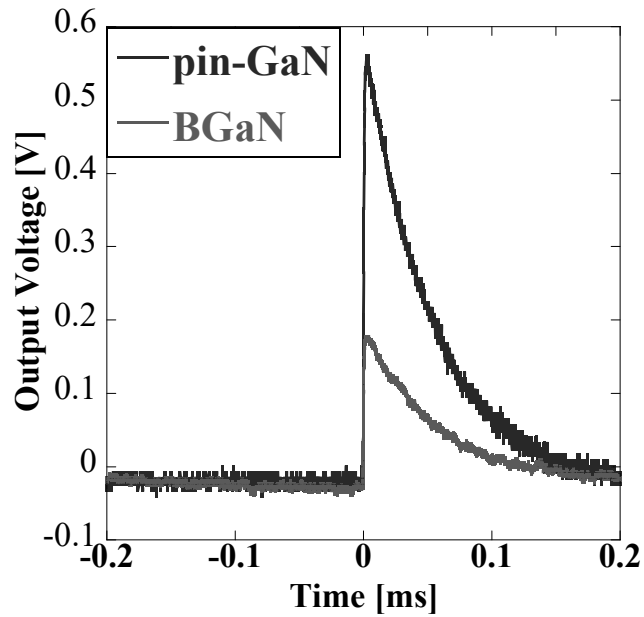


図4、GaN および B GaN-pin ダイオードの α 線パルス信号波形

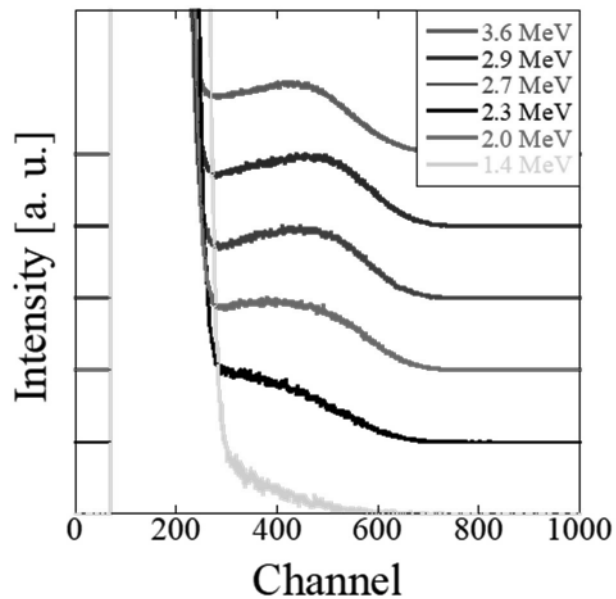


図5、B GaN ダイオードによる各エネルギーの α 線エネルギースペクトル測定結果

次に、B GaN ダイオードを用いて原子炉内で中性子線照射実験を実施した。得られたエネルギースペクトルの 2 次元マップを図6に示す。横軸が検出チャンネル、縦軸が信号立上り時間となる 2 次元マップにおいて立上り時間 $0.2 \sim 0.5 \mu \text{ sec}$ 、検出チャンネル 250~400 チャンネルにて中性子捕獲信号が得られており、B GaN 検出器を用いた中性子検出に成功した結果となった。また、250 チャンネル以下の信号ノイズが大きく、検出効率も $7 \times 10^{-6}\%$ と非常に低い値であり、今後デバイスの高性能化が更に必要であることを示唆した結果となった。

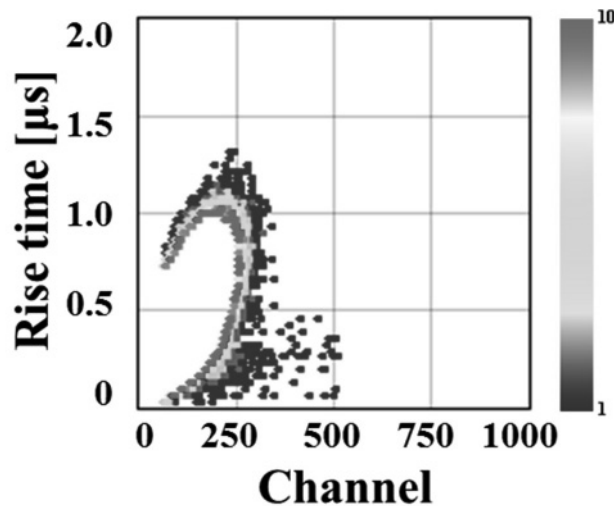


図6、BGaN-pin ダイオードを用いた中性子検出測定結果

【まとめ】

本研究では、B 有機金属原料に TMB を用いる BGaN 結晶成長技術を用いて諸特性を評価した。今回の研究結果から TMB を用いることにより寄生反応が抑制されることで、安定した BGaN 結晶成長が達成された。この成長方法を用いて BGaN 縦型ダイオードの作製を実現した。更に、本デバイスにより α 線および中性子検出エネルギースペクトルを得るに至った。しかしながら、検出感度については未だ低いため、今後のデバイス開発により中性子イメージングセンサーの実現が期待される。

業績一覧

2018 年度 研究発表

[1] Takayuki Maruyama, Yuri Takahashi, Natsuki Yamada, Kazushi Ebara, Hisaya Nakagawa, Shigeyoshi Usami, Yoshio Honda, Hiroshi Amano, Kazunobu Kojima, Shigefusa F. Chichibu, Yoku Inoue, Toru Aoki, and Takayuki Nakano, “Fabrication and evaluation of thick BGaN neutron detection diodes”, The International Workshop on Nitride Semiconductors 2018 (IWN 2018), GR10-4, Ishikawa Ongakudo, ANA Crowne Plaza Hotel Kanazawa, & Motenashi-Dome, Kanazawa, Japan, November 11-16, 2018

(論文要旨)

BGaN 結晶成長技術における厚膜結晶成長技術の開発を行い、 $5\mu\text{m}$ までの結晶成長を実現した。更に、放射線検出特性を評価し、厚膜化による中性子検出効率の向上を実現した。

[2] N. Yamada, K. Mochizuki, T. Maruyama, K. Ebara, Y. Takahashi, H. Nakagawa, S. Usami, Y. Honda, H. Amano, K. Kojima, S. F. Chichibu, Y. Inoue, T. Aoki, T. Nakano, “Radiation detection characteristics of BGaN semiconductor detectors”, 2018 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, and Workshop on Room-Temperature Semiconductor X-Ray and Gamma-Ray Detectors (NSS/MIC/RTSD), R-08, the International Convention Centre Sydney, Sydney, Australia, November 10-17, 2018

(論文要旨)

BGaN ダイオードを用いた放射線検出特性の評価を実施し、移動度寿命積および有感層膜厚の評価を実施した。BGaN 層が全て空乏化して有感層として機能し、中性子検出を行っていることを明らかにした。

[3] 丸山 貴之、高橋 祐吏、山田 夏暉、江原 一司、望月 健、中川 央也、宇佐美 茂佳、本田 善央、天野 浩、小島 一信、秩父 重英、井上 翼、青木 徹、中野 貴之、“MOVPE 法を用いた厚膜 B Ga N 結晶成長の検討および縦型中性子検出デバイスの作製”、第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、20a-146-6、名古屋国際会議場、2018 年 9 月 18-21 日

(論文要旨)

BGaN 結晶成長技術における厚膜結晶成長技術の開発を行い、厚膜成長においても BN モル分率約 1.5%の結晶成長を実現した。更に、本結晶を用いて縦型 pin 構造の中性子検出ダイオードを作製した。

[4] 山田 夏暉、丸山 貴之、中川 央也、井上 翼、青木 徹、中野 貴之、“B Ga N 半導体検出器の基礎電気特性及び放射線検出”日本原子力学会 2018 秋の大会、2A06、岡山大学津島キャンパス、2018 年 9 月 5-7 日

(論文要旨)

BGaN ダイオードを用いた放射線検出特性の評価を実施し、移動度寿命積および有感層膜厚の評価を実施した。 α 線検出測定により B Ga N 層が有感層として機能していることを、放射線シミュレーション結果を用いて明らかにした。

実験・測定補助者

中川 央也、山田 夏暉、丸山 貴之、坂井田 晃平 (計 4 名)