

## (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・学術院工学領域	中野 貴之
静岡大学・電子工学研究所	青木 徹、中川 央也
静岡大学・大学院総合科学技術 研究科	山田 夏暉、高橋 祐吏、坂井田 晃平、 太田 悠斗
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 $^3\text{He}$  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。新規 B 原料として提案しているトリメチルボロンを用いた結晶成長技術において、成長メカニズム解析により表面吸着原子の脱離温度が 1050~1060°C で起こることが明らかとなり、成長温度の低温化が厚膜化技術に重要であることがわかった。そこで、各成長温度で作製した B GaN 結晶より作製されたダイオードを用いて、中性子検出特性における B GaN 結晶成長温度依存性を評価した。

### 【実験方法】

本研究では、B GaN 結晶成長方法に有機金属気相エピタキシー(MOVPE)法を用いた。III 族原料の前駆体にトリメチルガリウム(TMGa)、トリメチルボロン(TMB)、V 族原料には  $\text{NH}_3$  を使用した。III 族原料と  $\text{NH}_3$  のキャリアガスには  $\text{N}_2$  ガスを用いた。p 型 GaN テンプレート基板上に成長温度を 920 ~ 1080 °C と変化させ、成長圧力 1.33 kPa にて B GaN 層を 30 ~ 120 min 成長させた。デバイス作製時には、B GaN 層上に、コンタクト層として n 型 GaN 層を 1.5 min 成長させた。各原料の供給量は  $\text{NH}_3$  流量を  $4.5 \times 10^{-2}$  mol/min、TMGa 流量を 6.9  $\mu\text{mol}/\text{min}$ 、TMB 流量を 0.11  $\mu\text{mol}/\text{min}$  であった。特性評価には、走査型電子顕微鏡(SEM)、原子間力顕微鏡(AFM)、X 線回折

(XRD)測定を用いた。

また、作製した B GaN デバイスを用いて、密封放射線源を用いた $\alpha$ 線照射、研究用原子炉を用いた中性子照射にて放射線検出特性評価を行った。エネルギースペクトル計測には放射線 Multi-Channel Analyzer(MCA)システムを使用した。

### 【結果および考察】

各成長温度で作製した B GaN 結晶の断面 SEM 像を図 1 に示す。成長温度 1060 °C 以上の脱離領域で作製した B GaN 結晶は層中に多くのボイドが形成されていることが確認された。これは、成長温度が高温になったことで表面吸着原子が脱離し、形成されたと考えられる。成長温度 1000 ~ 1050 °C の拡散律速領域で作製された B GaN 結晶は層中にボイドを含まず、平坦な表面が形成されていることが確認された。成長温度が低下したことで表面吸着原子の脱離を抑制し、表面拡散によって原子が安定して層中に取り込まれたためと考えられる。

成長温度 950 °C 以下の拡散律速領域で作製された B GaN 結晶は層中にボイドが形成されていなかったが、表面が粗面化されていることが確認された。成長温度が低下したことで表面吸着原子の脱離は抑制されたが、表面拡散長が短くなったことと成長温度の低温化により不純物の脱離が行われにくくなったため、膜中に不純物を取り込まれやすくなったと考えられる。その結果、ピットが形成されてしまい、異なる面方位のファセットが発生し、荒れた表面が形成されたと考えられる。

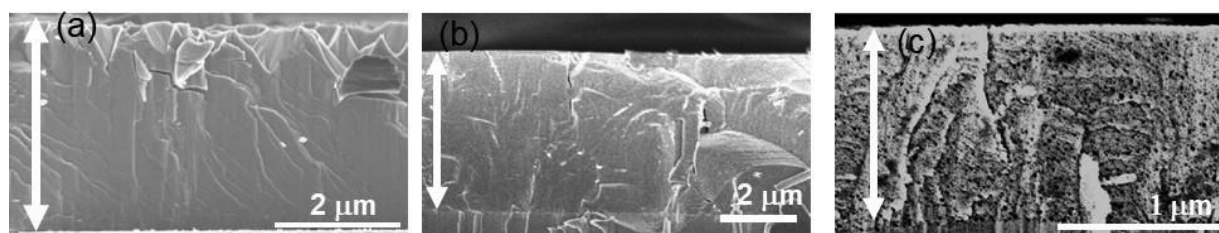


図 1、各温度領域で成長させた B GaN 薄膜の断面 SEM 像(a)拡散律速低温領域：950°C、(b)拡散律速高温領域：1050°C、(c)高温脱離領域：1060°C

図 2 に各温度で作製した B GaN 結晶の BN モル分率と AFM 測定による表面粗さの RMS 値を示す。成長温度 1000 ~ 1050 °C の拡散律速領域では、表面 RMS 値が 2 nm 程度と小さく、BN モル分率も 1.2 ~ 1.5 % と最も高い特性を示した。成長温度 1060 °C 以上の脱離領域では、表面 RMS 値は 2 ~ 3 nm 程度であったが BN モル分率は 1 % 程度と低下しており、B を含んだ表面吸着原子の脱離が発生していると考えられる。成長温度 950 °C 以下の拡散律速領域では表面 RMS 値が 30 nm 以上と悪化し、BN モル分率も 1 % 程度と低下した。成長温度の低下による、結晶性が劣化し、B GaN 結晶中の B 原子の割合が減少したと考えられる。また、図 1 の SEM 像に示されているように、ピットが形成され、ファセットが発生したことで表面 RMS 値が増大したと考えられる。

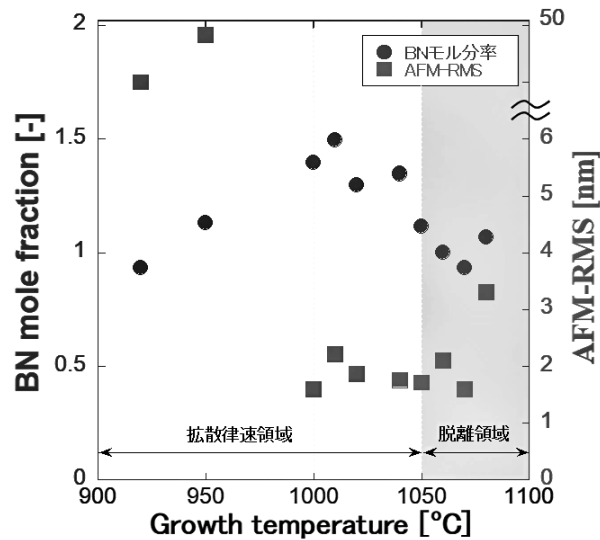


図 2、各成長温度で成長した B GaN 薄膜の BN モル分率と表面粗さ (AFM-RMS) の関係

次に成長させた B GaN 結晶を用いて中性子検出デバイスを作製し、特性評価を行った。図 3 に各成長温度で作製した B GaN デバイスの  $\alpha$  線エネルギースペクトルピークの印加電圧依存性を示す。Hecht の式を用いたフィッティングによって移動度寿命時間積 ( $\mu_e \tau_e$ ) を導出した。成長温度 1050 °C で作製した B GaN デバイスが最大値を示した。成長温度 1070 °C で  $\mu_e \tau_e$  積が低下した原因は、成長温度が高温化したことで層中に多くのボイドが形成されて移動度が低下したためだと考えられる。また、成長温度 1010 °C においても  $\mu_e \tau_e$  積が低下した結果となった。成長温度が低温下したことで不純物の取り込みが増え、結晶性が劣化したことに起因していると考えられる。

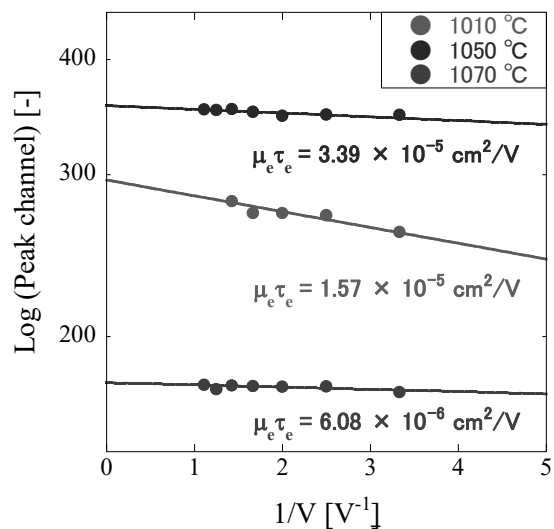


図 3、各温度領域で成長した B GaN 結晶を用いて作製したダイオードの  $\alpha$  線エネルギースペクトル位置の印加電圧依存性

続いて作製した pin ダイオードを用いて中性子照射実験を行った。図 4 に各 B GaN デバイスの 2D エネルギースペクトル測定結果を示す。図 4 の中性子照射時における

赤枠に示す領域に各デバイスにおいて中性子捕獲信号を確認した。BGaN 結晶の構造特性の違いによらず、中性子信号の検出を実現した。また、 $\alpha$ 線 2.3 MeV 照射時においても同様の範囲に捕獲信号を確認した。この結果より、BGaN デバイスによって捕獲された中性子は $\alpha$ 壊変によって発生した 2.3 MeV の全エネルギーを検出していることが明らかとなった。また、成長温度 1050 °C で作製した BGaN デバイスの $\alpha$ 線検出ピークが最もシャープであった。成長温度が最適化されたことで、結晶性が向上しているためだと考えられる。

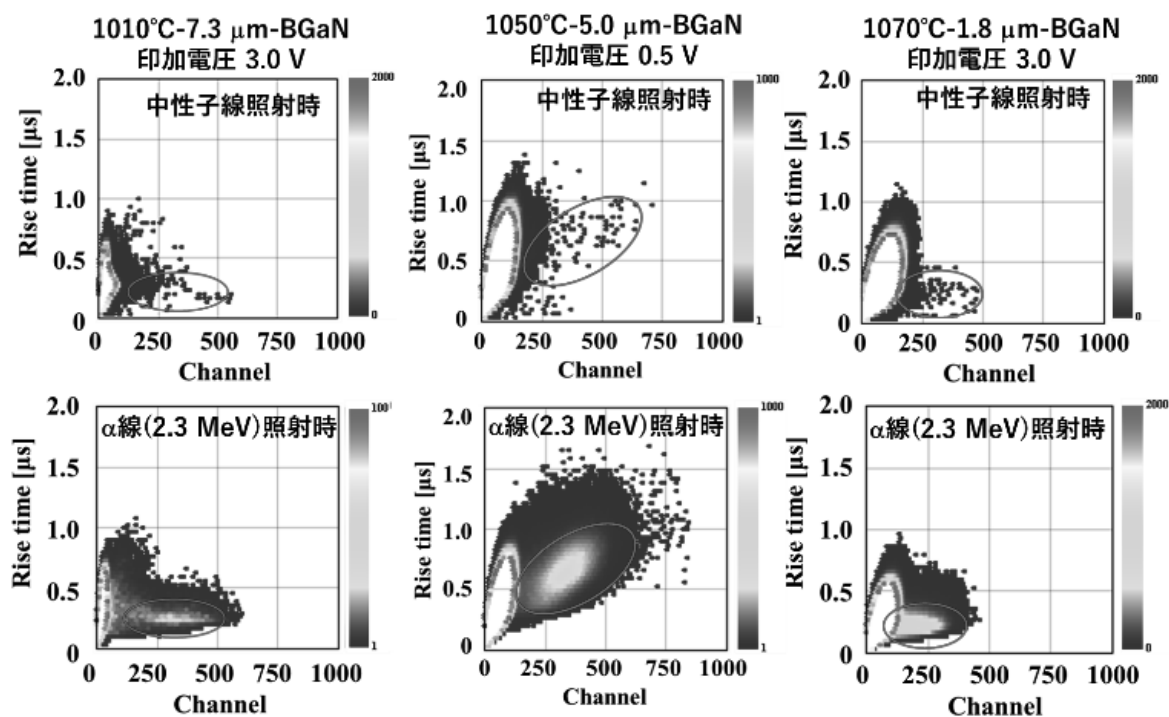


図 4、各温度領域で成長した BGaN 結晶を用いて作製したダイオードの  $\alpha$  線(2.3MeV)および中性子照射における 2D エネルギースペクトル測定結果

これらの結果より、BGaN の構造特性、放射線検出特性の成長温度依存性を明らかにした。さらに律速過程の制御によって高い放射線検出特性を保持した BGaN 検出デバイスを作製し、中性子検出を達成した。

#### 【まとめ】

中性子イメージングセンサーの実現に向けて BGaN 結晶成長技術の開発を行った。拡散律速領域でも特に高温領域で作製された BGaN 結晶がボイドを含まない平坦な表面を形成し、最も高い BN モル分率を示した。作製した BGaN 中性検出デバイスを用いた放射線検出特性においては高い移動度寿命時間積を示し、中性子検出を実現した。これらの結果より、BGaN 結晶を用いた中性子検出器の実現が示唆された。

## 業績一覧

### 2019年 研究発表

- [1] Yuri Takahashi, Takayuki Maruyama, Natsuki Yamada, Kazushi Ebara, Yuto Ohta, Hisaya Nakagawa, Shigeyoshi Usami, Yoshio Honda, Hiroshi Amano, Kazunobu Kojima, Shigehusa Chichibu, Yoku Inoue, Toru Aoki, and Takayuki Nakano, “Evaluation of BGaN growth temperature dependence and fabrication of neutron semiconductor detectors”, The 9th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors (APWS2019), MoP-GR-12, Okinawa Institute of Science and Technology Graduate University, Okinawa, Japan, November 10-15, 2019  
(論文要旨)各成長温度領域で作製した BGaN 結晶を用いたダイオードを用いて、放射線検出特性評価を行い、拡散律速領域の高温成長条件にて作製した BGaN 結晶が移動度寿命積と中性子検出効率で良い結果を得られたことを示した。
- [2] T. Nakano, Y. Takahashi, Y. Ohta, N. Yamada, H. Nakagawa, Y. Honda, H. Amano, K. Shima, K. Kojima, S. F. Chichibu, Y. Inoue, T. Aoki, “Improvement of neutron detection efficiency for BGaN semiconductor detectors”, 2019 IEEE Nuclear Science Symposium (NSS) and Medical Imaging Conference (MIC), R-04-450, Manchester Convention Centre, Manchester, UK, October 26 - November 2, 2019  
(論文要旨)BGaN 成長温度の最適化を行い、厚膜 BGaN 結晶を実現し、ダイオードを作製したことで中性子検出効率の向上を達成した。
- [3] 太田 悠斗、高橋 祐吏、丸山 貴之、山田 夏暉、中川 央也、川崎 晟也、宇佐美 茂佳、本田 善央、天野 浩、嶋 紘平、小島 一信、秩父 重英、井上 翼、青木 徹、中野 貴之、“BGaN 結晶成長における TMB 流量依存性の検討および中性子検出デバイスの作製”、第 80 回応用物理学会秋季学術講演会、20p-PB4-79、北海道大学札幌キャンパス、2019年9月18-21日  
(論文要旨)BGaN 結晶成長条件における TMB 依存性を評価したもので、TMB の流量増加に伴う BGaN 結晶中の BN モル分率依存性の変化と、各 BGaN 結晶を用いたダイオードの作製と放射線検出特性評価を実施し、TMB 流量依存性による中性子検出効率の向上を行った。
- [4] 中野貴之、青木徹、“BGaN を用いた中性子半導体検出器の開発”、日本結晶成長学会ナノエピ分科会「第 11 回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会」、Fr-I2、広島大学東広島キャンパス 学生会館レセプションホール、2019年6月13-15日 (招待講演)  
(論文要旨)BGaN を用いた中性子検出半導体検出器についての招待講演であり、これまでに行ってきた BGaN 結晶成長技術の開発と、作製した BGaN 薄膜を用いた中性子測定実験の結果についての発表
- [5] 太田悠斗、高橋祐吏、丸山貴之、山田夏暉、中川央也、川崎晟也、宇佐美茂佳、本田善央、天野浩、嶋紘平、小島一信、秩父重英、井上翼、青木徹、中野貴之、“BGaN 結晶成長における TMB 流量依存性の検討および中性子検出器の開発”、日本結晶成長学会ナノエピ分科会「第 11 回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会」、Fr-

P23、広島大学 東広島キャンパス 学士会館レセプションホール、2019年6月13-15日

(論文要旨)BGaN 結晶成長における TMB 流量依存性についての検討結果であり、TMB 流量の増加に伴い BN モル分率がどのように変化するかを評価し、BN モル分率 1.8%程度で B の取り込みが飽和することを明らかにした。またデバイスの作製も実施し、 $\alpha$ 線検出特性において大きな変化は見られないことを確認した。

実験・測定補助者

中川 央也、山田 夏暉、高橋 祐吏、坂井田 晃平、太田 悠斗  
(計 5 名)