

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H04394

研究課題名（和文）BGaN半導体検出器を用いた熱中性子イメージングセンサーの開発

研究課題名（英文）Development of thermal neutron imaging sensor using BGaN semiconductor detector

研究代表者

中野 貴之（Nakano, Takayuki）

静岡大学・電子工学研究所・准教授

研究者番号：00435827

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,500,000円

研究成果の概要（和文）：近年、中性子の利用拡大により、中性子イメージング技術に向けた新たな検出器の開発が期待されている。III族窒化物半導体材料であるBGaNを中性子半導体検出器として提案している。デバイスの実用化に向けて中性子捕獲反応の検出エネルギーの膜厚依存性を計算し、エネルギー弁別に必要な膜厚が5um以上であることを確認した。5um以上の高品質な厚膜結晶成長を実現するために、気相反応の抑制や成長温度の最適化および歪の制御により5um以上の厚膜結晶成長を達成し、最大21umの結晶成長の実現に至った。作製した厚膜BGaN結晶を用いて放射線検出器の作製を実現し、厚膜化による中性子捕獲信号検出の高効率化を達成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来の中性子検出では、中性子が電荷を持たないことから中性子と捕獲元素の壊変反応による荷電粒子を別の検出器で間接的に検出する手法が用いられている。今回開発しているBGaN検出器は有感層となる空乏層内で中性子捕獲から信号検出までの全工程を実施するため、疑似直接的な検出が可能であり、空間分解能の向上および線とのエネルギー弁別が可能である。本研究成果では、これまで提案と基礎検証であったものが厚膜化の影響による検出効率の改善や、デバイスサイズによる各特性の変化など、今後の特性改善に向けた大きな指針を得ており、結晶成長技術の開発により高解像度中性子イメージングの実用化が期待される結果を得た。

研究成果の概要（英文）：Recently, the expansion of neutron applications has led to the development of new detectors for neutron imaging technology, and we have proposed BGaN, a group-III nitride semiconductor material, as a neutron semiconductor detector. We have calculated the thickness dependence of the detection energy of neutron capture reaction for device application, and confirmed that the film thickness required for energy discrimination is more than 5 um. In order to achieve high-quality thick-film epitaxial growth of more than 5 um, we have achieved thick-film epitaxial growth of more than 5 um by controlling gas-phase reactions, optimizing growth temperatures, and controlling strain. The thick-film BGaN crystals were used to fabricate a radiation detection diode, and the neutron capture signal detection was improved by the thicker film.

研究分野：半導体結晶成長

キーワード：中性子検出 半導体検出器 イメージングセンサー BGaN III族窒化物半導体

1. 研究開始当初の背景

近年、中性子検出技術の利用分野の拡大に伴い、中性子検出器への要望が高まっている。中性子検出器の利用分野として、原子炉での核計装技術、ホームランドセキュリティーにおける核物質検知、学術および産業分野における重金属機器の内部イメージング、ホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) での中性子モニタリングなどが挙げられる。利用用途の拡大に伴い、期待される特性も異なっており高温耐性、検出感度、空間分解能、中性子・ γ 線 (n/ γ) 弁別性能など様々である。中性子イメージングにおいては、高い空間分解能を有した半導体検出器の実現が期待されており、新規中性子半導体検出器の提案と開発が各研究機関で行われている。

我々は、次世代の中性子検出器となる中性子半導体検出器の実現を目指し、これまで提案されているコンバーター層と半導体検出器が独立した検出機構は異なった、中性子捕獲と検出が同一層にて実施される B GaN 検出器開発を進めている。B GaN は III 族窒化物であり、B 原子が有感層内に原子レベルで混在しているため自己エネルギー減衰の影響がなく、 $^{10}\text{B}(n, \gamma)^7\text{Li}$ 反応で発生した α 線 (He 原子) と Li 原子の全エネルギーの検出が可能である。これまでの基礎検討により、pin ダイオード構造の作製を実現し中性子捕獲パルス信号の検出を実現してきた。本研究においては、中性子イメージングの実現に向けて結晶成長技術の向上による中性子捕獲率の向上、デバイス構造の最適化による検出効率の向上を実施し、B GaN 中性子イメージングセンサーに向けた基礎技術の構築を行う。

2. 研究の目的

これまでに、B GaN 結晶成長の開発により $5\mu\text{m}$ の厚膜結晶成長を達成し、pin ダイオードの作製および中性子検出の実現を達成してきた。しかしながら検出感度は低く、中性子検出効率は 10-6% 台と非常に低い値であった。そこで本研究では、イメージングセンサーとしての実用化に向けて、検出効率、n/ γ 弁別比、エネルギー分解能などの向上が必要である。そこで本研究では、B GaN 熱中性子半導体検出器の実現に向けた、B GaN 結晶成長技術の開発・高効率検出デバイス構造の検討・B GaN 放射線検出パラメータのデータベース構築を行い高感度 B GaN 中性子半導体検出器の実現を目指した。

3. 研究の方法

B GaN 結晶成長は有機金属気相エピタキシー (MOVPE) 法を用いてサファイア (Al_2O_3) 基板上へ GaN 層を形成した GaN テンプレート上に成長を行った。B、Ga、N の原料にはそれぞれトリメチルボロン (TMB)、トリメチルガリウム (TMGa)、アンモニア (NH_3) を用いた。B 有機金属原料に用いたトリメチルボロン (TMB) は我々の検討により得られた気相反応を抑制する安定性の高い B 有機金属原料である。最適な結晶成長条件の検討においては、成長温度・成長圧力・ガス流量比・供給方法などを変化させて結晶成長を行い、SEM や AFM による表面観察および XRD、PL などを用いた結晶性評価を行った。

放射線検出特性評価においては、p 型 GaN テンプレート上に B GaN 層を形成した後、 50nm 程度の n-GaN 層を形成し、pin ダイオード構造を作製した。デバイス作製プロセスは、n 型電極形成後にエッチングにより p 型層まで掘り、p 型電極を形成することで pin ダイオードを作製した。作製したダイオードは、各種放射線照射を行い、エネルギースペクトル測定を実施した。

また、放射線検出特性の基礎データとして放射線シミュレーター PHITS Ver.3.08 を用いた計算により入射エネルギーや検出エネルギーなどの評価を実施した。

4. 研究成果

(1) シミュレーションを用いた中性子捕獲率の B GaN 膜厚依存性の評価

これまでの検討より、 $^{10}\text{B}(n, \gamma)^7\text{Li}$ 反応 (壊変) において生成される荷電粒子の飛程は約 $5\mu\text{m}$ であることを明らかにした。そこで、更に詳細なシミュレーションを実施し、壊変における各荷電粒子のブラッグカーブの導出、ブラッグカーブを考慮した中性子捕獲率の算出および、膜厚による検出エネルギーのシミュレーションを実施した。図 1 に壊変を起こした際の荷電粒子のブラッグカーブのシミュレーション結果を示す。図 1 より、飛程は α 線が約 $3.4\mu\text{m}$ 、Li イオンが約 $1.9\mu\text{m}$ であり、ブラッグピークは α 線が約 $1.4\mu\text{m}$ で Li イオンはエネルギーが小さいため存在していないことが確認できた。このブラッグカーブのデータをもとに、B GaN 薄膜における中性子の捕獲のみを考えた場合と全壊変エネルギーを検出した場合の各捕獲率を B GaN 層の膜厚および B 組成についてシミュレーションを行った。シミュ

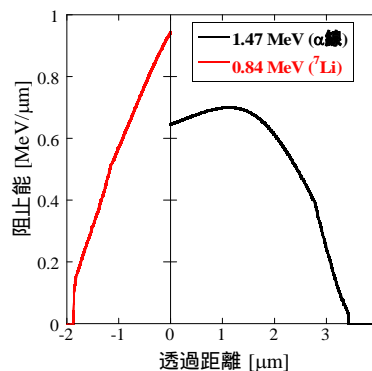


図 1、 α 壊変による発生する各荷電粒子の Bragg カーブ: B 原子の捕獲位置を $x=0$ として正方向に α 線、負方向に Li イオンが放出されたとした場合を仮定

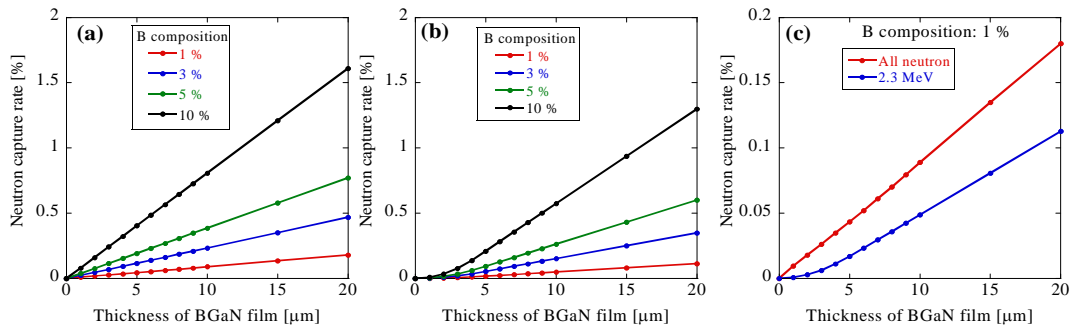


図 2、BGaN 膜厚および B 組成による中性子捕獲率のシミュレーション結果：(a)検出エネルギーを考慮しない捕獲率、(b)全 α 壊変エネルギー 2.3MeV を検出した場合のみの捕獲率、(c)B 組成 1% の場合の比較図

レーション結果を図 2 に示す。検出エネルギーを考慮しない場合については、B 含有量に依存した線形的な変化を示しており、組成および膜厚に依存した変化が確認された。一方で、壊変エネルギーである 2.3MeV の検出の場合には、図 1 に示した各荷電粒子の飛程が考慮されており、5 μm 以下の膜厚が薄い領域においては、飛程の影響により検出効率が低く膜厚の増加に伴い増加することが確認された。また 5 μm 以上の領域では線形的に上昇していることが明らかとなった。B 組成 1% で比較したグラフにおいて明らかなように 5 μm 以下の領域において飛程(ブラッグカーブ)の影響が顕著に表れている。しかしながら、5 μm 以上では、一定の減少を維持して同様に増加しており、膜厚が十分に厚い場合には大きな差はないと考えられる。更に、膜厚に依存した検出エネルギーピークのシミュレーション結果を図 3 に示す。BGaN 膜厚が 10 ~ 500nm 程度の非常に薄い領域においては、Li イオンのエネルギーに由来する 0.83MeV のピークが支配的であるが、膜厚の増加と共に 2.31MeV のピークが支配的となり、2 μm 以上ではメインピークは 2.31MeV になることが確認された。5 μm 以上では他のピークはほとんどノイズレベルであり、2.31MeV 近傍の検出がメインとなることが確認できる。これらの結果より、約 5 μm 以上の膜厚が中性子検出には重要ではあるが、2 μm 程度の膜厚を有していれば、中性子検出が可能であり検討の可能性があることが示唆された。

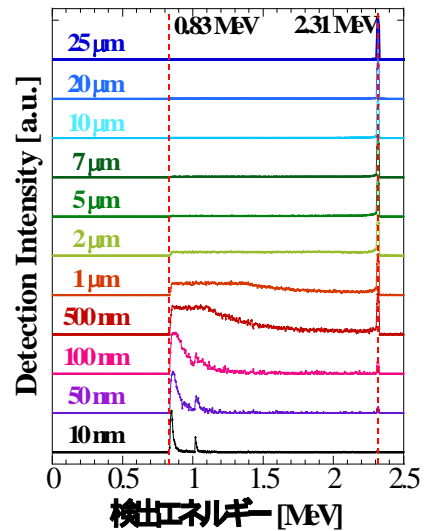


図 3、各 BGaN 膜厚における中性子捕獲反応の検出エネルギーのシミュレーション結果

(2)BGaN 厚膜結晶成長技術の検討

これまでの検討により、BGaN 成長において成長温度が結晶成長に及ぼす影響を速度論解析により明らかにした。そこで、律速段階の異なる成長温度で成長を行い、各成長温度において作製した BGaN 薄膜を評価することで詳細な検討を実施した。各成長温度で作製した BGaN 結晶の断面 SEM 像を図 4 に示す。成長温度 1060 $^{\circ}\text{C}$ 以上の脱離領域で作製した BGaN 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 $^{\circ}\text{C}$ の拡散律速領域で作製された BGaN 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。

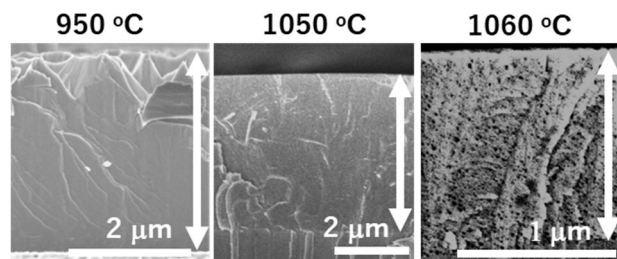


図 4、各成長温度で作製した BGaN 薄膜の断面 SEM 像

成長温度 950 $^{\circ}\text{C}$ 以下の拡散律速領域で作製された BGaN 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 5 に各温度で作製した BGaN 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、BGaN 結晶中の B 原子の割合が減少したと考えられる。また、図 4 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。

これらの結果より、成長温度が拡散律速領域の高温領域において高品質かつ B 組成の高い結晶成長が可能であることが示唆された。

次に、検討により得られた結果を基に 1030 ~ 1050

の高温拡散律速領域で厚膜結晶成長を実施した。図 6 に作製した膜厚 5.0 μm および 21.2 μm の BGaN 層の断面 SEM 像を示す。膜厚 5.0 μm の BGaN 層は BGaN 高温成長時に発生するボイドがなく平坦な表面を持った結晶が確認された。一方で膜厚 21.2 μm の BGaN 成長を実現したが、表面の凹凸が大きくなっていることを確認した。

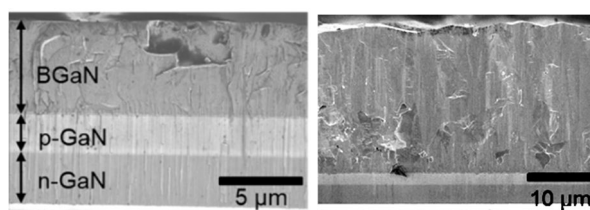


図 6、作製した厚膜 BGaN 結晶の断面 SEM 像(a) 5.0 μm-BGaN (b) 21.2 μm-BGaN

次に、各膜厚の BGaN 層に対して、AFM を用いて表面ラフネスの変化を調べた。図 7 に BGaN 膜厚(a) 5.0 μm (b) 21.2 μm の 3D-AFM 像及び(c)各膜厚の BGaN 層に対する RMS 値を示す。5μm の BGaN 膜では GaN のキャップ層を成長しない場合には、約 4nm 程度のラフネスであった。更に GaN コンタクト層を形成した場合に、表面平坦性が回復し 2nm 程度になることが確認された。21.2μm の BGaN 膜においては、GaN コンタクト層を形成した場合に、6nm 程度のラフネスとなっており、3次元島状成長が顕著となり GaN 層の成長を行っても表面の平坦性は十分に回復はしておらず、デバイス作製に影響を与える可能性が示唆された。しかしながら、十分な厚膜結晶成長が達成され、中性子検出効率の向上に向けた可能性が示唆された。

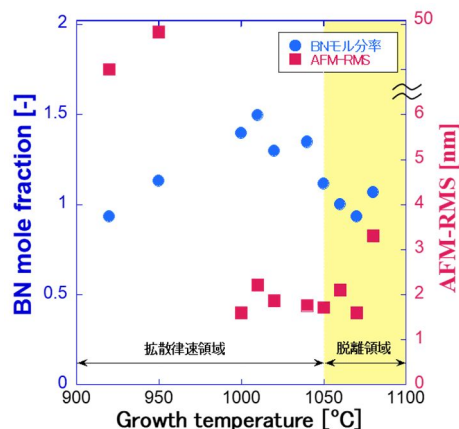


図 5、各成長温度で作製した BGaN 結晶の BN モル分率と表面ラフネスの成長温度依存性

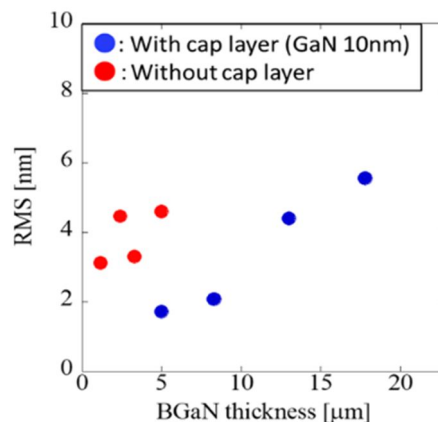


図 7、作製した BGaN 結晶の表面 AFM 測定による表面ラフネスの膜厚依存性

(3)BGaN-pin ダイオードの作製と評価

厚膜結晶成長が各条件で達成されたことから、デバイス作製における検討を実施した。厚膜デバイスにおいて課題となる高段差のリフトオフプロセスにおいて条件を検討することで、13μm の高段差でのリフトオフプロセスを実現した。図 8 に作製した 7.3μm の BGaN-pin ダイオードの断面 SEM 像、およびデバイス構造図と表面光学顕微鏡像を示す。デバイス作製を実施し、13.1μm のデバイスプロセスを実現したが、特性評価結果において、良好なデバイス特性を得たのは 8μm の結晶が最大膜厚であった。

代表的な検出特性を示した 7.3μm-BGaN 検出器の検出エネルギースペクトルを図 9 に示す。壊変反応と同程度のエネルギーである 2.3MeV の線照射において 100Channel 付近でエネルギーピークを確

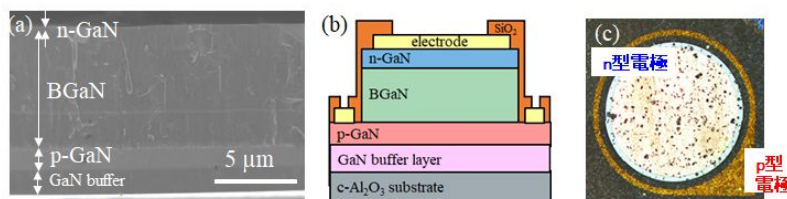


図 8、(a)BGaN-pinダイオードに用いた7.3μm-BGaN結晶の断面SEM像、(b)ダイオードの断面構造図、(c)ダイオードの光学顕微鏡像

認することができた。更に、中性子照射を実施したところ、同様の位置においてエネルギーピークが存在することが確認された。これは、BGaN 検出器の提案内容を示唆した結果であり、また $5\mu\text{m}$ 以上で壊変エネルギーのピークが支配的になっている結果を再現したものである。これらの結果より、BGaN 結晶が機能しており、更に提案の通りの検出機構がなされていることが示唆された。

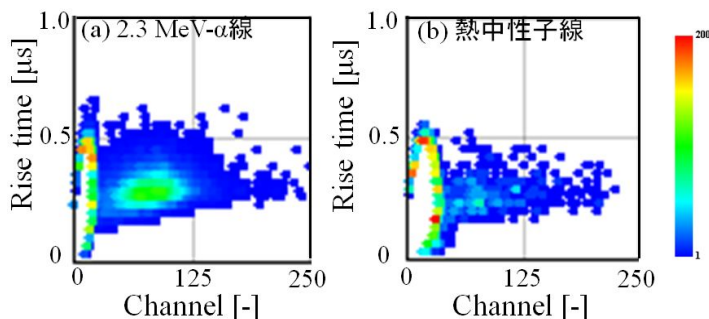


図9、BGaN-pin ダイオードを用いて測定した各放射線照射時の2D エネルギースペクトル(a)2.3MeV- α 線、(b)熱中性子照射

次に、作製した各膜厚の中性子検出効率を評価した結果を図10に示す。成長条件およびデバイスプロセス条件などから特性が十分に得られた結果のみで評価を行った。図2cで示したシミュレーション結果にトレースする形でプロットしており、同じプロットが出来るように実験値に20倍および3000倍の係数をかけている。結果より、理論値と同様の傾向が確認され、全エネルギー領域の検出では直線的な増加が確認された。また、2.3MeVのエネルギー検出においては、膜厚が $5\mu\text{m}$ 以上で急激に上昇することが確認された。理論値(シミュレーション結果)との比較においては、実験値は理論値に対して低く、全エネルギー領域の捕獲率では約1/20に、2.3MeVの検出効率では約1/3000になった。これは、有感層領域が十分に機能していないことや中性子エネルギーの不均一性などが影響していると考えられる。しかしながら、中性子検出効率は最大で $1.18 \times 10^{-3}\%$ となっており、厚膜化と成長温度の最適化により大きな改善が見られたことから、イメージングセンサーとしての可能性が示唆された。

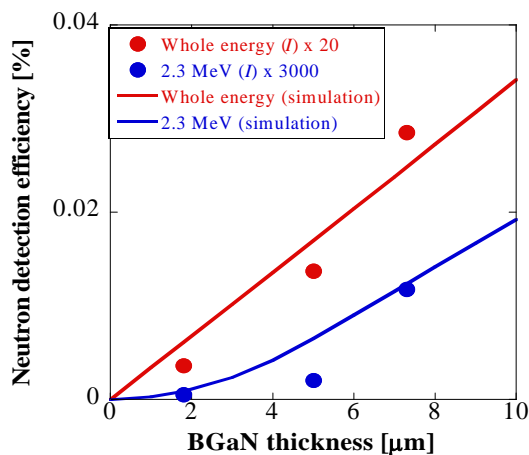


図10、各膜厚のBGaN 検出器の熱中性子検出効率およびシミュレーションによる理論値

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nakano Takayuki, Mochizuki Ken, Arikawa Takuya, Nakagawa Hisaya, Usami Shigeyoshi, Honda Yoshio, Amano Hiroshi, Vogt Adrian, Sch?tt Sebastian, Fiederle Michael, Kojima Kazunobu, Chichibu Shigefusa F., Inoue Yoku, Aoki Toru	4. 巻 130
2. 論文標題 Effective neutron detection using vertical-type BGaN diodes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 124501 ~ 124501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0051053	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 中野貴之、青木徹	4. 巻 47
2. 論文標題 III族窒化物半導体を用いた中性子検出器の開発	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 放射線	6. 最初と最後の頁 52-55
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計20件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 A. Miyazawa, Y. Ohta, S. Matsukawa, K. Hayashi, H. Nakagawa, S. Kawasaki, Y. Ando, G. Wakabayashi, Y. Honda, H. Amano, K. Shima, K. Kojima, S. F. Chichibu, Y. Inoue, T. Aoki, T. Nakano
2. 発表標題 Impact of growth pressure on the neutron-detection efficiency of BGaN diodes
3. 学会等名 2021 IEEE NUCLEAR SCIENCE SYMPOSIUM AND MEDICAL IMAGING CONFERENCE (2021 IEEE NSD MIC) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takayuki Nakano, Toru Aoki
2. 発表標題 Proposal and Development of Novel Neutron Detector using Boron Gallium Nitride
3. 学会等名 The 7th International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurement Methods and their Applications (ANIMMA 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中野 貴之、青木 徹
2. 発表標題 族窒化物半導体を用いた中性子検出器の開発
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 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
2. 発表標題 Evaluation of BGaN growth temperature dependence and fabrication of neutron semiconductor detectors
3. 学会等名 The 9th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors (APWS2019)（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 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
2. 発表標題 Improvement of neutron detection efficiency for BGaN semiconductor detectors
3. 学会等名 2019 IEEE Nuclear Science Symposium (NSS) and Medical Imaging Conference (MIC)（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中野貴之、青木徹
2. 発表標題 BGaNを用いた中性子半導体検出器の開発
3. 学会等名 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」（招待講演）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

静岡大学工学部電子物質科学科 中野研究室HP
<https://wpp.shizuoka.ac.jp/nakano/>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	青木 徹 (Aoki Toru) (10283350)	静岡大学・電子工学研究所・教授 (13801)	
研究分担者	井上 翼 (Inoue Yoku) (90324334)	静岡大学・工学部・教授 (13801)	
研究分担者	本田 善央 (Honda Yoshio) (60362274)	名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授 (13901)	
研究分担者	小島 一信 (Kojima Kazunobu) (30534250)	大阪大学・工学研究科・教授 (14401)	
研究分担者	嶋 紘平 (Shima Kohei) (40805173)	東北大学・多元物質科学研究所・助教 (11301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------