

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：13801

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K14776

研究課題名（和文）中性子イメージングのための半導体ダイヤモンドの開発

研究課題名（英文）Development of a semiconducting diamond for neutron imaging

研究代表者

増澤 智昭（Masuzawa, Tomoaki）

静岡大学・電子工学研究所・講師

研究者番号：40570289

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：持ち運び可能な機材による中性子イメージングを実現するため、中性子捕獲層と信号捕獲層との積層構造を有するダイヤモンド中性子検出器を開発した。中性子検出の原理実証、及びホウ素と窒素の補償ドーピングによる低ノイズ化の実証を目的として研究を行った。
(1)半導体ダイヤモンドの合成と評価、(2)電極形成などの要素技術開発、(3)放射線信号読出しの実証、の各研究目標を達成し、中性子検出の原理実証に成功した。さらに、積層構造により、構想時の予想を超えて高感度できる新しいセンサ動作モデルを見出した。また、ホウ素・窒素補償ドーピングにより抵抗率の向上を実証し、暗電流低減による信号ノイズ比改善に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、積層型ダイヤモンド中性子センサを試作し、中性子検出の実証に成功した。さらに、積層構造により、構想時の予想を超えてセンサの感度を向上できる新しい動作モデルを見出した。中性子センサの高感度化により可搬型中性子イメージングが実現すれば、中性子捕獲療法の際の人体被曝量モニタリングや、金属ケース内の爆薬などの検出が容易になり、社会の安全・安心を支える基盤技術となる非破壊検査技術が実現できる。

研究成果の概要（英文）：A diamond neutron detector that consists of neutron-capture layer and signal collection layer has been developed. Two of the research objectives have been achieved: demonstration of neutron detection using boron-doped diamond layer, as well as reduction of dark current in the detector by boron-nitrogen double doping. Following three research goals have been achieved: (1) synthesis and characterization of functional diamond, (2) development of sensor fabrication process. (3) demonstration of neutron detection. In addition, a new operation model of neutron sensor that improves neutron sensitivity, has been newly discovered. Reduction of dark current in sensor has been realized by boron-nitrogen double doping.

研究分野：半導体工学、炭素系材料

キーワード：ダイヤモンド 放射線センサ 中性子 ホウ素添加ダイヤモンド

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高度成長期に建造されたトンネルや橋脚が耐用年数を迎えているが、現状ではコンクリート内部の鉄筋の状態を把握する有効な検査法がなく、目視やカメラ映像により老朽化の検査が行われている。構造物の非破壊検査として中性子イメージングが有効である。中性子線は重元素を透過しやすく、水素に感度を持つため、X線やγ線では検査が難しい金属内部の水分や腐食の検出に適している。壁などの片側から破損を発見する検査法も開発されており、中性子イメージングによる現場での非破壊検査が期待されるが、現状では持ち運び可能な中性子源の線量が限られており、イメージングを行うためにはセンサの感度向上が必須であった。

従来の中性子センサでは、透過性の高い中性子を吸収して光など別の信号に変換するコンバータが併用されることが多かった。一方、コンバータを使用すると、光の発散や信号伝播中のロスなど、コンバータに由来する理由でイメージングの画質が低下したり、信号ノイズが増加したりするなど、弊害も多かった。

研究代表者らは、低エネルギー中性子を効率良く検出できるホウ素 (^{10}B) の中性子捕獲反応に注目し、ホウ素を高濃度に含む半導体ダイヤモンドを用いることで、中性子センサの高感度化を図った。本研究のセンサは、コンバータによらず、不純物添加によって中性子を捕獲する新しい発想であり、GaNなどダイヤモンド以外の材料にも適用でき、個々のセンサ材料に限らない発展性を持つ。

2. 研究の目的

本研究では、持ち運び可能な機材による中性子イメージングを実現するため、**ダイヤモンドを用いた中性子センサ**を提案する。ホウ素 (^{10}B) 添加ダイヤモンドによる中性子捕獲層と、アンドープダイヤモンドによる信号捕獲層の積層構造とすることで、中性子捕獲確率の向上と信号読み出しを両立し高感度化を図る。ホウ素添加による中性子信号検出の原理実証、及びホウ素と窒素の補償ドーピング技術を応用した低ノイズ化の実証を研究目的とする。

3. 研究の方法

(1) センサ作製

ダイヤモンド中性子センサは、ホウ素 (B) 添加層/アンドープ層積層構造を形成することで作製した。ダイヤモンドの合成には、熱フィラメント CVD を用いた。基板には Si (100) 面を使用し、基板表面にアンドープ多結晶ダイヤモンド膜を合成した。合成後に Si 基板をエッチングにより除去しダイヤモンド自立膜を得た。この自立膜上に B 添加層を合成した。B 添加にはホウ酸トリメチルを用い、反応ガス中の B 濃度を 1% とした。B 添加は TOF-SIMS により確認した。得られた B 添加層/アンドープ層積層構造を熱酸化炉に導入し、表面を酸化処理し表面伝導層を除去した。B 添加層及びアンドープ層に電極としてアルミニウムを蒸着した。得られた検出器の構造を図 1 に示す[1, 2].

(2) 作製されたセンサの物性評価

ダイヤモンド結晶形状観察には電界放射走査型電子顕微鏡 (FE-SEM) を用いた。ダイヤモンドの結晶性評価のため、ラマン分光法による測定を行なった。レーザー励起波長 488nm, レーザーパワー 1mW, スポット径 1 μm の条件で測定を行なった。

(3) 中性子粒子信号検出

中性子検出には、カリホルニウム (^{252}Cf) 中性子源を用いた。中性子源とダイヤモンド検出器を約 7cm 離して配置し、中性子源および検出器をパラフィンブロックで覆って測定を行った。パラフィンは周辺に放射される中性子の遮蔽、およびホウ素が吸収しやすい熱中性子 (運動エネルギー 25meV 程度の中性子) への変換に用いた。ホウ素 (^{10}B) が熱中性子を吸収すると、 $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)^7\text{Li}$ 反応によって α 粒子と Li が生成される。これらは荷電粒子であり、検出器と相互作用して検出器内に信号電荷が発生する。発生した信号電荷をプリアンプにて収集・増幅しマルチチャンネルアナライザーによって信号パルスを計数した。

(4) α 粒子検出による検出器内部のキャリア輸送特性分析

ダイヤモンド内のキャリア輸送を調べるため α 粒子検出を行った。 α 粒子検出ではアメリカン (^{241}Am) α 粒子源を用い、Am から放射された α 粒子は電極を透過しダイヤモンド膜内で捕獲される。 α 粒子は大気中および検出器内で散乱により減速される。検出器内での飛程は約 7 μm であり、B 添加層付近で信号キャリアが生成される。測定では、 α 粒子を B 添加層側から入射させ、印加電圧の正負を入れ替えて測定を行いキャリア輸送特性を評価した。

4. 研究成果

(1) 作製されたセンサの物性評価

試作されたダイヤモンド放射線センサの電子顕微鏡像とラマン分光スペクトルを図2に示す。いずれもホウ素添加層側を測定した結果である。CVDにより粒径約200-300 nmの多結晶膜が得られた。ラマン分光では 1333 cm^{-1} にダイヤモンドの sp^3 結合に由来するピークが観察され、CVDによって多結晶ダイヤモンド膜が合成されたことが確認された。また、 1500 cm^{-1} 付近に見られる分布から、アモルファス炭素成分をわずかに含むことが示唆される。ホウ素添加によるフェノ効果は見られず、試料中のホウ素濃度は $3\times 10^{20}\text{ cm}^{-3}$ 未満と推定された。

(2) 中性子粒子信号検出

添加層／アンドープ層積層構造ダイヤモンド検出器により検出された中性子信号の測定結果を図3に示す。積層構造検出器では比較試料のB添加層を有しないアンドープ層のみの試料と比較して800 chに幅を持つピークが現れ、低チャンネル側に肩状のバックグラウンドが観察された。幅広のピークは中性子が捕獲され生成された α 粒子信号、肩状のバックグラウンドはダイヤモンド内でのキャリア散乱または捕獲により減衰した信号によると考えられる。

(3) α 粒子検出による検出器内部のキャリア輸送特性分析

B添加層側電極にバイアス電圧として負電圧を印加した場合、B添加層付近で発生したキャリアのうち、正孔はB添加層側電極に到達して読み出され、電子はダイヤモンド膜中を走行して反対側の電極に到達する。バイアス電圧を逆向きにした場合、正孔がより長い距離を走行して電極に到達する。 α 粒子検出の結果を図4に示す。B添加層側電極に負電圧を印加した場合に最も α 粒子の信号強度が高い結果であった。この結果から、B添加層の形成により電極での正孔の読み出し効率が改善し、感度が向上したことが示唆された。

(4) 研究成果のまとめと意義

各年度の研究目標を以下の通り定めて研究を遂行した。

- ① センサのための半導体ダイヤモンドの合成と評価（令和2年度～令和3年度前半）
- ② 電極形成などセンサ試作のための要素技術開発（令和3年度）
- ③ 放射線信号読み出しの実証実験（令和3年度後半～令和4年度）

本研究により、半導体ダイヤモンド合成技術と、電極形成などセンサ作成の要素技術を開発し、ホウ素添加ダイヤモンドをコンバーター層として組み込んだ積層型ダイヤモンド中性子センサを試作した。多結晶ダイヤモンドを用い、センサを薄膜構造にすることでコンバーター内蔵型センサに近い動作が得られ、中性子検出の実証に成功した。①～③の研究目標を全て達成した。

さらに、積層構造により、中性子センサの感度が大幅に向上できることが明らかとなり、研究構想時の予想を超えてセンサの感度を向上できる新しい動作モデルを見出した。また、ダイヤモンドへのホウ素・窒素補償ドーピングを行い、当初狙いであった抵抗率の向上を実証し、センサの暗電流低減による信号ノイズ比の改善に成功した。

今後は補償ドーピングの最適化による高抵抗化で中性子センサのさらなる高感度化を実現し、社会の安全・安心を支える基盤技術となる中性子イメージングを実現する。

参考文献

- [1] T. Miyake, H. Nakagawa, T. Masuzawa, T. Yamada, T. Nakano, K. Akagi, T. Aoki, H. Mimura, “Diamond radiation detector with built-in boron-doped neutron converter layer”, *Physica Status Solidi A* 219, 2100315 (2021) (論文掲載誌の表紙として採択) DOI: 10.1002/pssa.202100315
- [2] 増澤智昭、三宅拓、中川央也、中野貴之、都木克之、青木徹、三村秀典、山田貴壽、“多結晶ダイヤモンド放射線検出器のキャリア輸送特性評価”、2022年第36回ダイヤモンドシンポジウム、2022年11月16～18日、慶應義塾大学矢上キャンパス
- [3] T. Masuzawa, T. Miyake, H. Nakagawa, T. Nakano, K. Takagi, T. Aoki, H. Mimura, T. Yamada, “Characterization of diamond radiation detector with B-doped/undoped stacked structure”, *Diamond and Related Materials* 136, 109985 (2023). DOI: 10.1016/j.diamond.2023.109985
- [4] 増澤智昭、三宅拓、山田貴壽、中野貴之、都木克之、青木徹、三村秀典、“多結晶ダイヤモンドへのアルファ線照射による信号評価 [21a-P01-1]”、2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会、2022年9月20～23日、東北大学川内北キャンパス

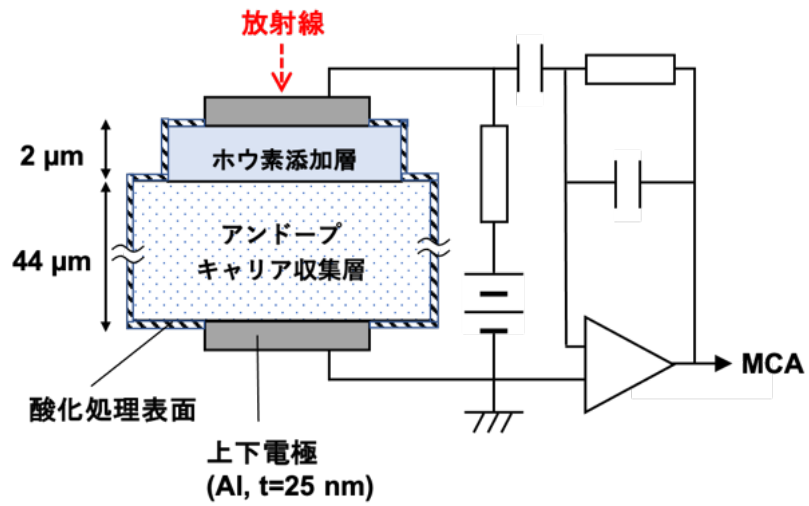


図1 検出器構造と放射線信号読み出し回路の概念図 [1, 2]

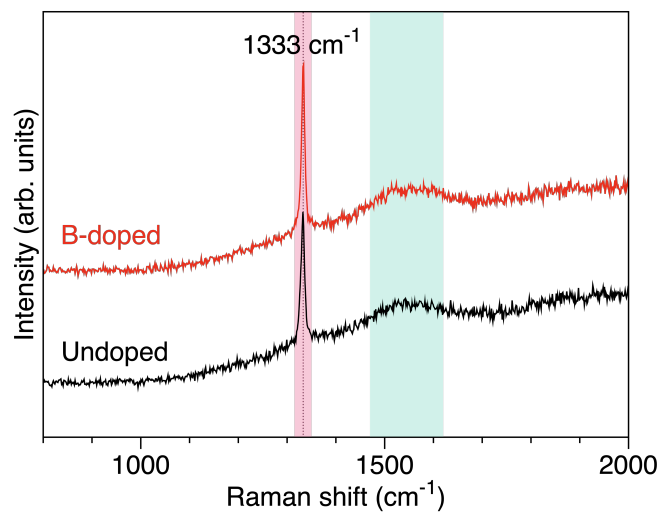
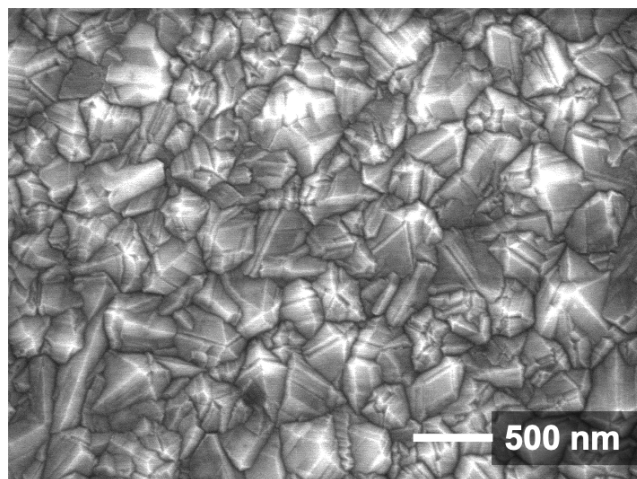


図2 作製されたダイヤモンド中性子センサ物性評価の結果例[1].
電子顕微鏡像(上), ラマン分光スペクトル(下) [1, 2]

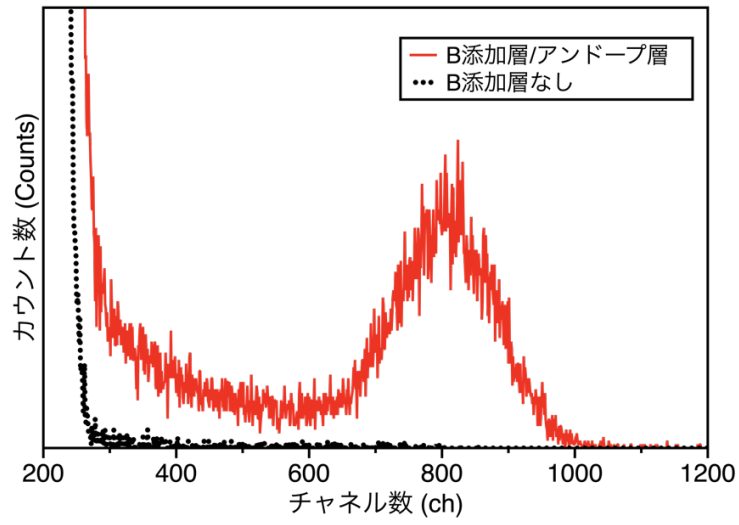


図3 B添加層/アンドープ層積層構造ダイヤモンド検出器により
検出した中性子信号[1, 2]

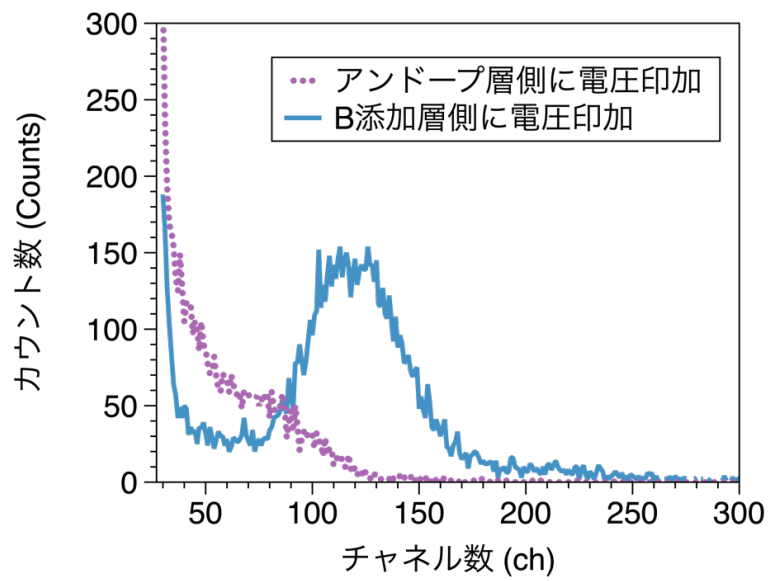


図4 電圧印加の向きによる α 粒子検出特性比較[3, 4]

5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Miyake Taku, Nakagawa Hisaya, Masuzawa Tomoaki, Yamada Takatoshi, Nakano Takayuki, Takagi Katsuyuki, Aoki Toru, Mimura Hidenori	4. 巻 219
2. 論文標題 Diamond Radiation Detector with Built In Boron Doped Neutron Converter Layer	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 physica status solidi (a)	6. 最初と最後の頁 2100315 ~ 2100315
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssa.202100315	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 -

1. 著者名 Masuzawa Tomoaki, Miyake Taku, Nakagawa Hisaya, Nakano Takayuki, Takagi Katsuyuki, Aoki Toru, Mimura Hidenori, Yamada Takatoshi	4. 巻 136
2. 論文標題 Characterization of diamond radiation detector with B-doped/undoped stacked structure	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Diamond and Related Materials	6. 最初と最後の頁 109985 ~ 109985
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.diamond.2023.109985	査読の有無 無
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9件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 増澤智昭
2. 発表標題 薄膜・表面物性と検出器開発
3. 学会等名 令和4年度次世代光電子分光研究会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 増澤智昭、三宅拓、中川央也、中野貴之、都木克之、青木徹、三村秀典、山田貴壽
2. 発表標題 多結晶ダイヤモンド放射線検出器のキャリア輸送特性評価
3. 学会等名 2022第36回ダイヤモンドシンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 増澤智昭、三宅拓、山田貴壽、中野貴之、都木克之、青木徹、三村秀典
2. 発表標題 多結晶ダイヤモンドへのアルファ線照射による信号評価
3. 学会等名 2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Taku Miyake, Hisaya Nakagawa, Tomoaki Masuzawa, Takatoshi Yamada, Takayuki Nakano, Katsuyuki Takagi, Toru Aoki, Hidenori Mimura
2. 発表標題 Radiation Detector Made of Polycrystalline Diamond with Boron-doped Layer for Neutron Conversion
3. 学会等名 15th International Conference on New Diamond and Nano Carbons (NDNC2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Miyake, H. Nakagawa, T. Masuzawa, T. Yamada, T. Nakano, K. Takagi, T. Aoki, H. Mimura
2. 発表標題 Diamond radiation detector with built-in boron-doped neutron converter layer
3. 学会等名 The 19th International Conference on Global Research and Education (inter-Academia 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Miyake, T. Masuzawa, H. Nakagawa, T. Yamada, T. Nakano, T. Aoki, H. Mimura
2. 発表標題 Characterization of B-doped polycrystalline diamond for radiation detection
3. 学会等名 14th International Conference on New Diamond and Nano Carbons (NDNC2020/2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三宅拓, 中川央也, 三村秀典, 増澤智昭
2. 発表標題 ダイヤモンドへのホウ素・窒素補償ドーピング
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岡賢治, 中川央也, 増澤智昭, 青木徹, 伊藤哲
2. 発表標題 赤外レーザーによるオーミック型CdTe放射線検出器のキャリア輸送特性の経時変化測定
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三宅 拓、中川 央也、増澤 智昭、中野 貴之、青木 徹、三村 秀典
2. 発表標題 多結晶ダイヤモンド薄膜を用いた放射線測定
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究協力者	青木 徹 (Aoki Toru)		

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	三村 秀典 (Mimura Hidenori)		
研究協力者	山田 貴壽 (Yamada Takatoshi)		
研究協力者	岡野 健 (Okano Ken)		

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