

過酷環境下で動作可能な新規 B GaN 中性子半導体検出器に向けた高品質結晶成長技術の開発

静岡大学 電子工学研究所

中野 貴之*

1. はじめに

福島第一原発事故以来、原子力発電の安全な運用に対する要求が高まっている。一方で、高温ガス炉（HTGR）や高速増殖炉（FBR）といった従来炉よりも高温で動作する原子炉へ開発がシフトしている。核計装システムは原子炉を安全に運用するために重要な技術であり、過酷環境下での中性子計測が必要な技術である。従来の炉内核計装に用いられていた Fission chambers は高温耐性が 300°C と高く、過酷環境下での中性子計測に有用であったが、新型炉では 500°C 以上の超高温となるため従来の核計装技術の利用が困難となっている。そこで高温動作が可能かつ、耐放射線性にも優れた放射線検出器としてワイドギャップ半導体である B GaN 中性子検出器が期待されている。我々が提案し開発を行っている B GaN 中性子検出器は、ワイドギャップ半導体を用いており高温動作が期待される半導体検出器である [1, 2]。さらに、B GaN は GaN 半導体を母体材料として、B 原子を Ga 原子と置換した半導体である。B 原子が半導体構成元素として用いられることから、空乏層領域に B 原子を含む検出器の作製が可能であり、有感層中で B 原子による中性子捕獲と生成荷電粒子の検出が可能な半導体検出器が期待される。図 1 に B GaN 検出器の中性子検出原理を示す。B GaN による中性子検出過程は以下のとおりである。

- ① 熱中性子が B GaN 中の ^{10}B 原子に捕獲され $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応 (α 壊変) により α 線と Li イオンを生成
- ② α 壊変により生成された荷電粒子 (α 線、Li イオン) が、そのまま B GaN 層を励起し電子正孔対を生成
- ③ 生成された電子正孔対を電気信号として取り出すことで α 壊変エネルギーに相当する中性子捕獲信号を検出

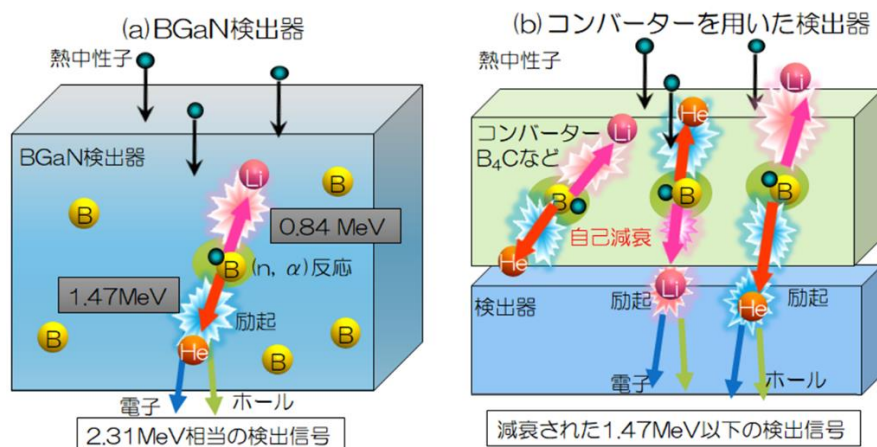


図 1、中性子検出器の検出原理の概要図 (a) B GaN 検出器、(b) コンバーター層を用いた検出器

一般的に用いられる中性子検出器ではコンバーター層やシンチレーター層を介した間接的な検出手法であることから、図 1 b に示すように自己減衰などにより検出できるエネルギーが 1.47 MeV 以下となるのに対して、BGaN 検出器では 2.31 MeV での検出が可能である。このような中性子捕獲反応の全エネルギーを検出可能であることから、環境 γ 線との弁別が可能であり高 n/γ 比の検出器により高 γ 線環境下で利用可能な中性子検出器が期待される。

しかしながら、期待される高温耐性や高 n/γ 比を実現するために必要な高品質結晶の作製は達成されておらず、結晶成長技術開発によりデバイスの高性能化が期待されている。これまでの研究により 5 μm 厚の BGaN 結晶成長を達成し、デバイスにより中性子検出を実現しているが、特性向上に向けて結晶成長技術の向上が期待される。そこで本研究では、これまでに達成してきた厚膜 BGaN 結晶成長技術を基盤技術として、歪制御手法として AlGaN を下地層に用いた高品質 BGaN/AlGaN 結晶成長技術の開発を行った。

2. BGaN/AlGaN 結晶成長方法および評価方法

高品質 BGaN/AlGaN 結晶成長を検討するにあたり、結晶成長技術については有機金属気相エピタキシー (Metal Organic Vapor Phase Epitaxy: MOVPE) 法を用いた。c 面サファイア基板上に、GaN バッファ層を形成した後に AlGaN 層を成長し、さらに BGaN 層を成長させた。III 族原料にはトリメチルガリウム (TMGa)、トリメチルボロン (TMB)、トリメチルアルミニウム (TMA1) を使用し、V 族原料には NH_3 を使用した。pin 構造を作製する際には、ドーパント用有機金属原料にモノメチルシラン (MMSi) とビスシクロペンタジエニルマグネシウム (Cp_2Mg) を使用した。AlGaN 結晶の成長条件は基板温度 1080 $^\circ\text{C}$ 、圧力 20 kPa で TMA1 流量条件の異なるサンプルを作製した。AlGaN 結晶の構造特性評価には、X 線解析 (XRD) 法を用いた。pin ダイオード作製では、n 型 AlGaN 層を下地層とした BGaN-pin 構造を作製し、電気特性評価、放射線検出特性評価を行った。

3. BGaN/AlGaN 結晶成長の検討および評価

GaN および $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ($x=0.044$) を下地層として TMB 流量条件 (0.09 or 0.31 $\mu\text{mol}/\text{min}$) の異なる BGaN 成長を実施した。各 BGaN 層の結晶性および BN モル分率を XRD 測定によって導出した。結果を表 1 に示す。

表 1、下地および BGaN 成長条件の異なる各 BGaN 膜の結晶性および BN モル分率評価

	BGaN/AlGaN	BGaN/GaN	BGaN/AlGaN	BGaN/GaN
TMB flow rate [$\mu\text{mol}/\text{min}$]	0.09	0.09	0.31	0.31
BGaN-XRD FWHM [arcsec]	453	423	493	659
BN-mole fraction [%]	0.3	0.4	0.6	0.8
lattice mismatch [%]	0.09	-0.08	0.04	-0.21

BN モル分率は(0002)面の $2\theta - \omega$ 測定より導出を行っており、 c 軸長のみで導出したものである。得られた結果から、AlGaIn バッファ層を用いた場合に、TMB 流量が多くなっても結晶性が良好であることが確認された。また、格子不整合も小さく高品質な BGaN 結晶成長が実現していることがわかる。AlGaIn バッファ層の導入により歪制御がなされた可能性を示唆しており、AlGaIn バッファ層を用いて pin-BGaN の成長を実施した。各 TMB 流量条件(0.09 or 0.31 $\mu\text{mol}/\text{min}$)で作製した 2 個のサンプルの断面 SEM 像および表面光学顕微鏡像を図 2 に示す。

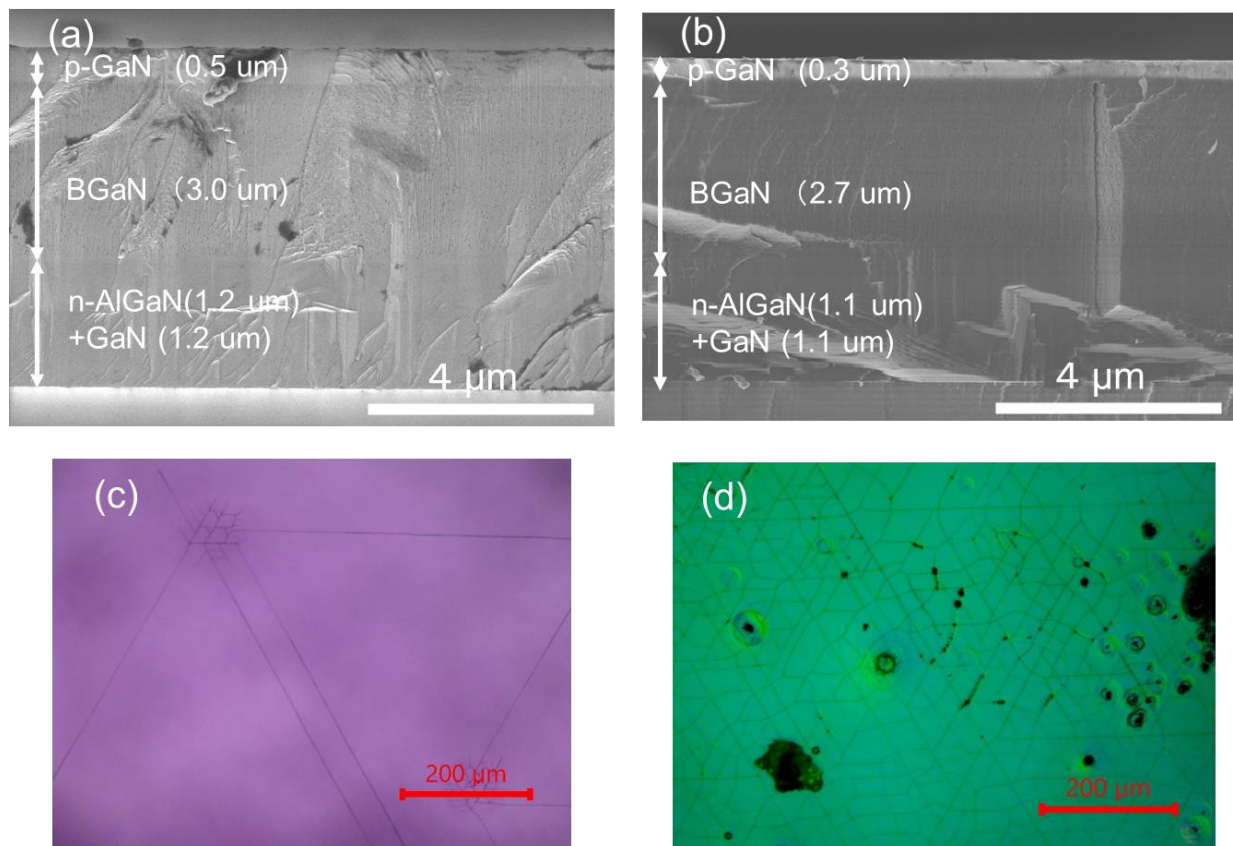


図 2、各 TMB 流量条件(0.09 or 0.31 $\mu\text{mol}/\text{min}$)で作製した BGaN-pin 構造の断面 SEM 像および表面光学顕微鏡像：(a) TMB 0.09 $\mu\text{mol}/\text{min}$ 断面 SEM、(b) TMB 0.31 $\mu\text{mol}/\text{min}$ 断面 SEM、(c) TMB 0.09 $\mu\text{mol}/\text{min}$ 光学顕微鏡像、(d) TMB 0.31 $\mu\text{mol}/\text{min}$ 光学顕微鏡像

断面 SEM 像より、大きな欠陥がない結晶成長がなされていることが確認できる。また表面光学顕微鏡像より、厚膜 BGaN 結晶において引張歪の影響によるクラックが若干発生しているが、通常の BGaN 成長に比べて非常に少ないことが確認できた。TMB 流量が増えた場合にはクラックの量が増えており、BGaN の格子定数の縮小による引張歪の影響が出ていることが示唆される。AlGaIn バッファ層の組成制御によって、さらに減らすことが今後期待される。

次に、上記の2つの結晶を用いて BGaN-pin ダイオードを作製し電気特性評価を実施した。TMB 流量 0.31 $\mu\text{mol}/\text{min}$ で作製された BGaN pin ダイオードの I-V 測定結果を図 3 に示す。立ち上がり電圧が約 3V 程度であり、pin-BGaN の理論的な内臓電位と同程度であった。また、電極サイズによる電流密度に大きな変化がないことが確認された。n-GaN を下地層に用いた場合には、閾値電圧が 10V 以上になる高抵抗層の存在が示唆されているのに対して AlGaIn 層の利用により高抵抗となる層が減少していることを示唆している。これらの結果は AlGaIn 下地層を用いることにより歪応力が圧縮応力となり欠陥の生成メカニズムが変化したためだと考えられる。

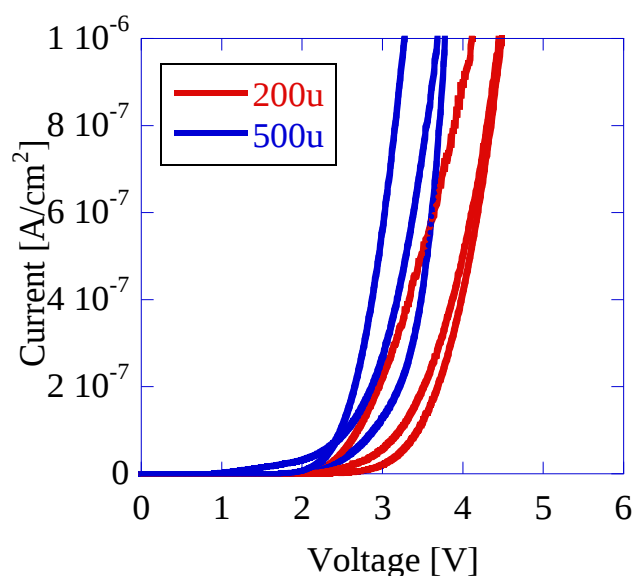


図 3、BGaN/AlGaIn ダイオードの IV 測定結果 (TMB 流量 0.31 $\mu\text{mol}/\text{min}$ 、電極サイズ 200 or 500 μm)

さらに、500 μm 電極のデバイスで α 線および中性子を照射して放射線検出特性を評価した。2.3MeV- α 線照射にて検出ピークが確認された。また中性子照射においても同様の位置に検出信号が確認された。これは 2.3MeV の α 線のピーク位置と同様のエネルギーの荷電粒子を検出していることを示唆しており、BGaN/AlGaIn 構造にて中性子検出を達成したことを示唆している。一方で、エネルギーピークよりも高チャネル位置でピークが確認されている。この原因については解明されておらず AlGaIn を下地層とした場合に、n-AlGaIn 層を走るキャリアの影響で検出ピークが分離したなどの理由が考えられる。検出特性については、TMB 流量 0.09 $\mu\text{mol}/\text{min}$ も同様の結果であり、ピーク分離の原因については今後の検討課題である。

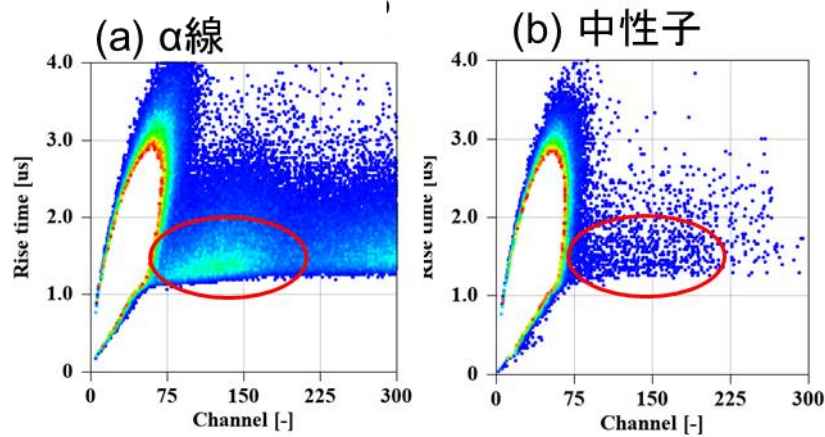


図 4、BGaN/AlGaN ダイオードを用いて測定した放射線測定結果(2D マップ測定) : (a) 2.3MeV- α 線、(b) 中性子

4. まとめ

本研究では、AlGaN 結晶をバッファ層とした BGaN デバイス作製を行った。AlGaN 層を用いた BGaN 成長により圧縮歪を有する高品質な BGaN 結晶成長を達成し、さらに pin ダイオードの作製を実現した。作製した検出器においては中性子検出信号を得るに至っており、結晶性の向上が検出特性向上に寄与したことが示唆された。一方で AlGaN バッファ層により、高チャンネルに検出ピークが確認された。今後のさらに詳細な評価により検出過程の解明が期待される。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、天野工業技術研究所から多大なご支援を頂きました。また近畿大学原子炉等共同利用による援助を受けました。ここに記して謝意を示します。

参考文献

- [1] Takayuki Nakano, “Study of group-III nitride semiconductor for novel neutron semiconducting detector”, JSAP Review 2023 (2023) 230201
- [2] Takayuki Nakano, Ken Mochizuki, Takuya Arikawa, Hisaya Nakagawa, Shigeyoshi Usami, Yoshio Honda, Hiroshi Amano, Adrian Vogt, Sebastian Schütt, Michael Fiederle, Kazunobu Kojima, Shigefusa F. Chichibu, Yoku Inoue, and Toru Aoki, “Effective neutron detection using vertical-type BGaN diodes”, Journal of Applied Physics (J. Appl. Phys.), **130** (2021) 124501