

第1章

緒言

第1章 緒言

1. 1. 研究の背景

人類の歴史は、開拓の歴史であるといっても過言ではない。科学技術の分野においても、新たな“領域”の開拓が常に繁栄をもたらしてきた。21世紀を目前に控えた今日、科学技術においては、高エネルギー現象の利用、省エネルギー化への挑戦、巨大科学あるいは極微細化科学等、さまざまな方向への開拓が検討・実行されつつある。その中にひととき、人類に実り多い繁栄をもたらすであろう領域として核融合や宇宙開発などがある。しかしながら、これらの“領域”を開拓するためには、核融合中性子線や宇宙陽子線をはじめとした、従来よりも桁違いに強い放射線環境を手なずける必要がある。とりわけ、今日の電子技術の中核でありながら、放射線に対して極めて脆弱な半導体素子の耐放射線性向上は急務である。本論文では、半導体光検出材料や太陽電池用材料を主眼に置く。これらの材料は動作環境上の制約から十分な放射線遮蔽を施すことが困難であり、材料自身の耐放射線性の改善が切望されているからである。

半導体への照射効果については、従来の応用に適合した低線量域が主に調べられており、高線量域は測定上の困難等もあり、あまり顧みられていなかった。また、照射効果のうちの欠陥生成のみに注目が集まり、その他の照射効果である粒子線誘起伝導や同時照射効果はほとんど調べられていなかった。しかし近年の高エネルギー科学の進展により、半導体への高線量照射効果解明の必要性が増しつつある。高線量効果は単に核融合炉等への応用上重要であるだけでなく、近年の研究により基礎物性的な観点からも興味深いことが明らかにされつつある。高線量領域では、従来の低線量域とは異なる新しい現象がいくつも観測されている。例えば、結晶 Si のキャリア枯渇、キャリア枯渇と相関を持つ光伝導の急減少、不純物添加による光伝導の耐放射線性の向上、粒子線誘起伝導、同時照射下での光伝導の抑制、非晶質 Si の高い耐放射線性、永続的粒子線誘起伝導などである。耐放射線性の向上という応用のためにも、高線量域での基礎過程の解明・把握は極めて重要な意味を持つ。

本論文はこのような観点から、光検出用材料としての応用を念頭に置き、結晶および非晶質 Si への 17 MeV 陽子線による高線量照射効果を明らかにしたものである。高

線量照射下での現象・挙動に関する知見を蓄積するとともに、さらにその基礎過程を解明し、耐放射線性向上の指針を探索するものである。

以下、高線量放射線環境の具体例を概観した後、高線量放射線環境で重要になる概念については1.2節で紹介する。

1) 核融合炉でのプラズマ観察用光検出素子

核融合炉は21世紀半ばに実用化を目指しているが、核融合プラズマの発生・制御は極めて重要な課題の一つである。そのためにはプラズマ診断、すなわちプラズマ温度、イオン密度等のプラズマ閉じ込め状態、あるいは壁材料の温度の観測等が必要である。そのためにはプラズマからの発光を観察するなど、光を使った方法が高速かつ非接触で有望である。しかし、観測に際して光検出器は強力な放射線に曝されるという問題が発生する。

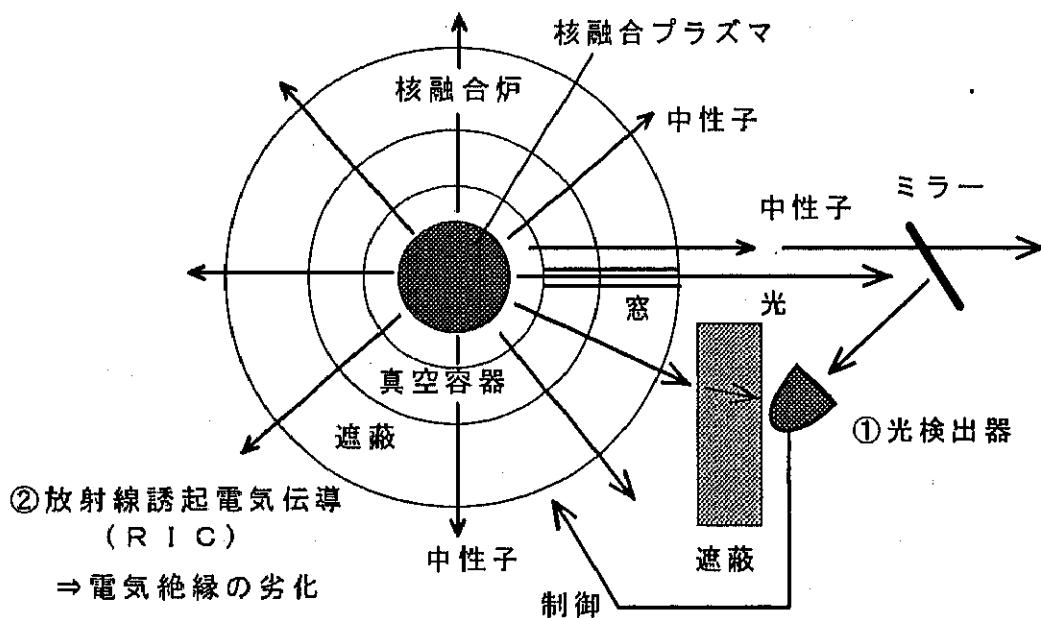


図1-1. 核融合炉におけるプラズマ観察の概念図

確かに光学的鏡と遮蔽を組み合わせ、ある程度光検出器の被曝量を減らすことは可能であるが、従来の半導体光検出器は放射線に対して大変脆弱である。核融合炉での材料に対する中性子負荷を年間10 dpa程度(中性子負荷1 MW・年/m²) [1]とすると、従来の半導体材料の限界は10⁻⁹ dpa以下[2]なので、放射線量を少なくとも元の10⁻¹⁰以

下にしなければならない。これを実現するには、鏡を何枚も組み合わせ、大変厚い遮蔽を設けなければならないし、信頼性も低下する。

半導体光検出素子の耐放射線性を一度に 10^{10} 倍改善することは不可能であるが、耐性が数桁でも改善されれば遮蔽構造や鏡を簡略化でき、また全体の信頼性も向上する。単に素子を頻繁に交換するという選択肢もあるが、交換が煩雑であること、また素子の信頼性が低い点を考慮すると、最良な選択ではない。つまり耐放射線性の高い光検出器の開発は、核融合の実現において極めて重要である。

我々はこのような観点から、17 MeV 陽子線の照射下・照射直後の光伝導、粒子線誘起伝導、暗伝導度などのその場測定を通して、耐放射線性の高い光検出器用材料探索の基礎となる研究を行ってきた。

2) 宇宙用 Si 太陽電池の高線量での異常劣化

1995 年、宇宙開発事業団 (NASDA) のテスト用人工衛星がアポジエンジンの不調から当初予定していた静止軌道に入ることができず、準周回軌道に入ることを余儀なくされた[3]。準周回軌道は放射線の強いヴァン・アレン帯を通過するため、予定していた静止軌道に比べ、数桁高い線量の宇宙放射線に晒されることとなった。それまで宇宙線による Si 太陽電池の短絡電流 I_{sc} 等の劣化については

$$I_{sc} = I_{sc0} - C \log (1 + \phi / \phi_r) \quad (1.1)$$

という緩やかな依存性のみが知られていた[3]。この劣化の対数依存性は、照射により導入された欠陥が再結合中心としてのみ働くという仮定の下に説明される。NASDA はこの依存性を仮定し、既に持っていた低線量のデータを高線量側へ外挿し、太陽電池は十分に耐えうると予想していた。

しかし結果は予想に反して、ある線量を境に太陽電池の出力は急速に劣化していった。NASDA はこの高線量での異常劣化現象を重大に考え、この機構解明に精力的にのりだした。そして加速器を用いた地上での高線量照射により、異常劣化現象が再現されたという報告が 1996 年の夏頃、原研高崎の TIARA 研究発表会[4]や応用物理学会[5]などで発表された。この時点で我々は始めて太陽電池に関するこの現象を知ったわけである。しかし、我々は類似の現象である光伝導の二段階劣化を、その数年前である

1993 年頃に発見[6]し、ほぼ基礎的な過程を明らかにしていた[2]。

当初、原研グループにより高線量域での急激な劣化はキャリア移動度の劣化によると説明された[7]。しかしこの可能性をすぐに、当時既に出版されていた我々のデータ[2]により実験的に否定され、むしろキャリアの枯渇との関連性が示唆された。同時期に山口ら[8]もキャリアの枯渇によるモデルを提案している。しかし異常劣化のモデルの詳細については今も議論が分かれている[9]。

このように宇宙用 Si 太陽電池の劣化においても、我々が研究を行っている耐放射線性光検出材料の劣化現象と同様の現象が観測され、その背景にある物理の普遍性が確認されるの同時に、応用上からも本研究の重要性が増した。

3) 欧州における巨大陽子-陽子衝突実験用の半導体素粒子検出器の耐放射線性向上

また、ヨーロッパでも同じ問題が異なる応用のために盛んに議論されている。ヨーロッパにおいて高線量域でのキャリア密度の減少が重要な問題となっている事例は、巨大陽子-陽子衝突実験 (Large Hadron Collider: LHC) に用いる Si 素粒子検出器であった。LHC 実験に用いる素粒子検出器は極めて強い放射線を受けることとなる。従来の Si 検出器では、実験中にキャリア密度が減少し空乏層幅が変化した結果、測定結果の信頼性が著しく損なわれてしまう。欧州素粒子研究機構 CERN やイギリスの素粒子実験物理学者たちは、複雑な欠陥反応モデルの数値計算と赤外吸収や DLTS などの実験手法を併用し、欠陥生成・成長機構を明らかにし、適当な不純物の添加等により素粒子検出器の耐照射性の向上を目指している[10, 11]。

以上のように、近年全く異なる応用を目指した 3 つの耐放射線性の研究が、“高線量照射効果”という共通の key-word で結ばれつつある。

本論文は、世界的に高まっている高線量域での耐放射線性向上という要請を考慮しながら、本著者が独自の視点で、新たに観測された高線量域での現象の挙動を明らかにし、機構を解明したものである。高線量域で展開されている他の研究が、照射後の欠陥構造という一側面のみ注目する傾向にあるのに対して、著者は動的な照射効果、粒子線誘起伝導や同時照射効果なども含めたより広い意味での“高線量照射効果”について検討しており、独自性は極めて高い。

本内容は、科学技術庁金属材料技術研究所で行った、結晶および非晶質 Si を対象とした耐放射線性の高い光検出器材料開発の基礎となる研究成果の一部を“高線量効果”という観点からまとめたものである。

1. 2. 高線量・高線量率照射での重要な概念

前節で示した応用例など、従来以上の高線量・高線量率の放射線に耐え得る半導体素子の開発が望まれている。本節では、そのような高線量・高線量率照射された半導体において重要であり、また本論文において議論される重要な概念を紹介したい。

第一は「キャリア減少」である。これは放射線の照射により導入された欠陥中心が自由キャリアを捕獲し、その密度を減らす現象である。現象自体は古くから知られており、carrier removal という語が使われている。特に、捕獲欠陥が多量にできて、キャリアのほぼ全てが捕獲された状態を、我々は「キャリア枯渇」と呼んでいる。

従来、半導体素子への放射線の影響は、主に低線量域において調べられていた。そのため低線量域で重要な現象、すなわち照射欠陥が禁制帯中の再結合中心として働き、少数キャリア寿命 τ を短くする現象が主に議論されてきた。少数キャリア寿命 τ の線量依存性は以下の式[12]

$$1/\tau = 1/\tau_0 + K\phi \quad (1.2)$$

で与えられる。ただし、 τ_0 は未照射での再結合寿命、 K は損傷係数である。寿命の逆数は再結合率であり、式(1.2)は欠陥準位を介した再結合率が欠陥濃度、すなわち線量 ϕ に比例することを表した式である。照射による再結合中心の増加は低線量域から重要である。高純度の結晶 Si では、 10^{12} cm^{-3} 程度の再結合中心の導入による寿命の変化が測定可能であると言われている[13]。キャリア密度の減少も同時に起きているが、仮に $1.000 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ キャリアがある系で $1.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 程度のキャリア捕獲欠陥が導入されても、キャリア密度は $1.000 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ から $0.999 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ に減るだけで、この変化は実質的には無視できる。つまり「キャリア減少」は多数キャリア捕獲欠陥密度が未照射での自由キャリア密度に近づいた時、すなわち「高線量域」で重要となる。

「高線量照射」の例として前節で示した 3 つの例（核融合炉光検出器、宇宙用太陽電

池、素粒子検出器)の全てで「キャリア減少・枯渇」が問題となっている。

第二は「二段階劣化」である。粒子線照射された結晶 Si の光伝導は、低線量において再結合中心の増加に伴い、式(1.2)に似た比較的緩やかな依存性の劣化を示す。この劣化は「キャリア枯渇」まで緩やかに続くが、ひとたび「枯渇」が起こると状況は一変し、光伝導は急激に減少する。この現象を「光伝導の二段階劣化」と呼び、我々がバルク Si において最初に観測した現象である。後に「宇宙用太陽電池の二段階劣化」が見つかり、多くの注目を集めた。現在も機構の詳細を巡り、いくつかのグループで研究が続けられている。

本論文の内容のうち最も特色ある成果のひとつが「粒子線誘起伝導」である。これは粒子線照射下で材料の電気伝導度が増加する現象である。粒子線照射自体が極めて複雑な現象であるため、伝導度変化にどのような物理的素過程が関与しているかを特定することは、極めて難しい問題である。粒子線照射が固体に与える影響は粗く 3 つに区分けされる。電子励起、原子変位、核反応である。今回実験で使用した 17 MeV 陽子線は Si と相互作用して若干の核反応を引き起こすが、その反応断面積が小さいため、その寄与はとりあえず無視することができる。核変換で生成される不純物濃度は最大でも 10^{10} cm^{-3} 以下である。

高エネルギーの粒子線はそのイオントラックに沿って、局所的かつ高密度・高エネルギーの電子励起を起こすと言われている。実験に用いた陽子線は 17 MeV という非常に高いエネルギーを持つので、固体の構成元素を極めて高いエネルギー状態まで励起すると考えられる。その結果、エネルギー的に可能な多数の緩和チャンネルを通し、様々な緩和過程（電子放出、光子放出、原子放出、原子変位、欠陥生成、格子振動、等）が同時に、しかも相互作用を及ぼしながら進行すると考えられる。これらの過程が伝導度に影響を与える可能性は十分にあり得る。

また、陽子線・構成原子の衝突による欠陥生成が行われ、欠陥に起因したエネルギー準位が生成される。それらはキャリア捕獲、キャリア散乱、再結合、キャリア供給などに寄与し、電気伝導に重大な影響を与える。また、そのようにして導入された多数の原子空孔や格子間原子の存在はイオン伝導を引き起こし、電気伝導度に寄与する可能性も有り得る。

本論文では照射下での試料温度を安定させて、結晶 Si と非晶質 Si の粒子線誘起伝導 (RIC) を測定した。結晶 Si の RIC は、実際には上で記述したような極めて複雑な過程が起こっていると予想されるのにも関わらず、挙動的には光伝導とよく似た現象として記述可能であった。それに対して非晶質 Si の RIC は永続的励起伝導とでも呼ぶべき、光伝導とはかなり異なる挙動を示した。構成元素もほぼ同じで、局所的結合形態もほぼ同じである結晶と非晶質で、極めて異なる RIC が観測された点は極めて興味深い。

1. 3. 本論文の構成

本論文は 9 つの章からなる。第 3 章から第 8 章は巻末に示した 6 編の論文の内容をもとに書き直したものである。各論文の試料の作成方法や実験装置については共通する部分が多いので、第 2 章にまとめて記述した。

第 3 章では、結晶 Si の光伝導の陽子線線量依存性において観測された二段階的劣化現象 (低線量での緩やかな劣化と高線量での急激な劣化) について議論する。光キャリアの寿命や暗伝導度の線量依存性との比較から、高線量での劣化は移動度の減少ではなく、暗キャリアの枯渇とそれに呼応した光キャリア寿命の急激な減少で説明される。また光キャリア寿命の二段階減少の機構を提案する。

第 4 章では、第 3 章での光伝導の線量依存性をもとに、粒子線誘起伝導の線量依存性について議論する。粒子線伝導においても二段階劣化が観測されるが、その減少の度合いや線量率依存性が光伝導とは異なる。この類似点・相違点は拡張された Shockley-Read 方程式により説明される。

第 5 章では陽子線と光の同時照射効果について論じる。これは強い放射線環境で光伝導型 Si 光検出器が正常に動作するかというものである。同時照射により、光・陽子線単独照射の単純な和ではない効果、すなわち非線型効果が観測され、光伝導が著しく弱められる。この機構についても議論がなされる。

第 6 章では最近のトピックである宇宙用太陽電池の異常劣化現象について、光伝導の二段階劣化現象と比較して、その機構について考察する。現在提案されているいくつかのモデルの優劣、残された問題についても言及する。

第 7 章では、水素化非晶質 Si ($a\text{-Si:H}$) における光伝導の陽子線線量依存性について議論する。結晶 Si で観測されたような明らかな二段階劣化は、 $a\text{-Si:H}$ では観測さ

れない。また結晶に比べ、極めて高い耐放射線性が観測された。これは、融通性のある非晶質構造が照射欠陥を緩和・消滅させることに有利なためであると考えられる。

第8章では、 $a\text{-Si:H}$ の粒子線誘起伝導について、光伝導と比較しながら議論する。光照射の場合、Staebler-Wronski 効果[14]により伝導度が減少するのに対して、陽子線照射の場合、逆に伝導度が増加した。さらに数桁増加した伝導度は陽子線照射終了後も30時間以上にわたり、ゆっくりと減衰しながら持続した。この現象の機構についても考察する。

最後に、第9章では本論文の成果を総括する。

【参考文献】

- [1] 石野栞、原子力工学シリーズ8「照射損傷」(東京大学出版会、1979年) p.201.
- [2] H. Amekura, N. Kishimoto and T. Saito, *J. Appl. Phys.* **77**, 4984 (1995).
- [3] 平成9年度宇宙開発事業団委託業務成果報告書“太陽電池の放射線劣化メカニズムの検討(その3)” 1998年3月 (財)日本電子部品信頼性センター
- [4] 大島武、森田洋右、梨山勇、川崎治、久松正、松田純夫、第5回 TIARA 研究発表会要旨集(1996年6月、高崎) p.10.
- [5] 久松正、川崎治、松田純夫、第57回応用物理学会学術講演会予稿集(1996年9月) p.673. 8a-V-9.
- [6] 雨倉 宏、岸本直樹、斎藤鉄哉、第41回応用物理学関係連合講演会講演予稿集 p.695、29p-ZL-10 (1994年3月)。
- [7] T. Ohshima, Y. Morita, I. Nashiyama, O. Kawasaki, T. Hisamatsu, T. Nakao, Y. Wakow and S. Matsuda, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **43**, 2990 (1996).
- [8] M. Yamaguchi, S. J. Taylor, S. Matsuda and O. Kawasaki, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 3141 (1996).
- [9] H. Amekura, N. Kishimoto and K. Kono, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **45**, 1508 (1998).
- [10] B. C. MacEvoy, G. Hall and K. Gill, *Nucl. Instr. & Meth. In Phys. Res.* **A 374**, 12 (1996).
- [11] K. Gill, G. Hall and B. MacEvoy, *J. Appl. Phys.* **82**, 126 (1997).
- [12] S.M. Sze, *Physics of Semiconductor Devices*, 2nd ed. (J.Willy, New York, 1981), p.810.
- [13] 石野栞、*日本金属学会誌* **6**, 829 (1967).
- [14] D. L. Staebler and C. R. Wronski, *Appl. Phys. Lett.* **31**, 292 (1977).