

第5章 光・陽子線の同時照射効果

— 強放射線下での光検出という観点から —

第5章 光・陽子線の同時照射効果

— 強放射線下での光検出という観点から —

5.1. 背景

強放射線環境でも使用できる半導体光検出素子開発の基礎研究として、本論文の第3章では光伝導の線量依存性を、また第4章では陽子線誘起電気伝導の線量および線量率依存性を明らかにした。本章では、光と陽子線の同時照射効果、特に光および陽子線励起による伝導度増加の非線形現象である「光伝導の抑制」について報告し、その機構の解明を試みる。この現象は、半導体を用いた強放射線照射下での光検出において極めて重要な問題となることが予想される。また本章では機構解明の後に、光伝導の抑制解決の指針についても考察する。

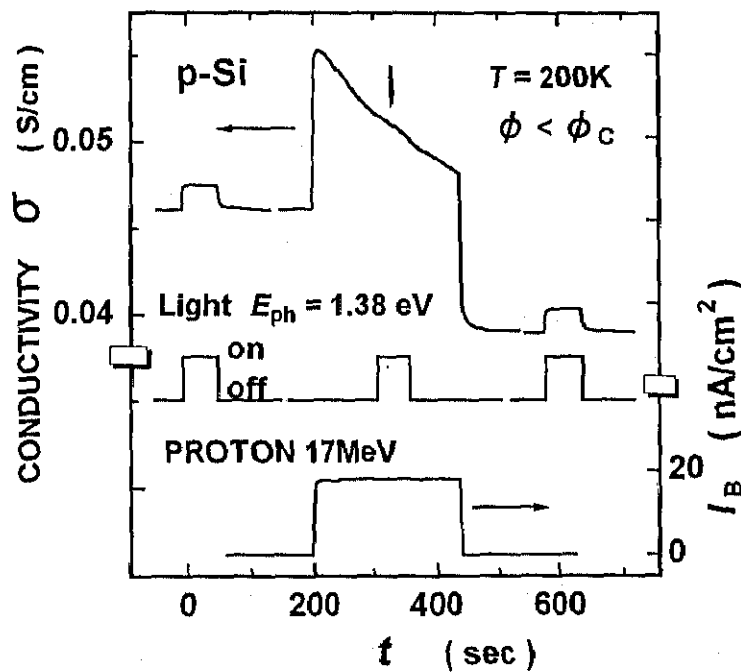


図5-1. 陽子線照射がある場合とない場合の光照射による伝導度の変化(上)、
光照射のタイミング(中央)、陽子線の強度(下)。

5. 2. 実験結果

図 5-1 に陽子線照射がある場合とない場合の、光照射により誘起される電気伝導度 σ の変化を示す。光照射下での σ は最初急に立ちあがり、照射中は一定の値を示す。陽子線照射下での σ の変化は、最初急に立ちあがるが徐々に減少していく。急な立ちあがりは電子励起、緩やかな減少は欠陥生成に起因する[1]。光による伝導度変化 $\Delta \sigma_L$ は、光単独照射にくらべ、陽子線の同時照射下では強く抑制される。陽子線照射後の $\Delta \sigma_L$ が同時照射前とほぼ同じ強度を示すので、同時照射下での $\Delta \sigma_L$ の強い抑制は欠陥生成に起因しない。むしろ陽子線による強い電子励起に関連すると考えられる。

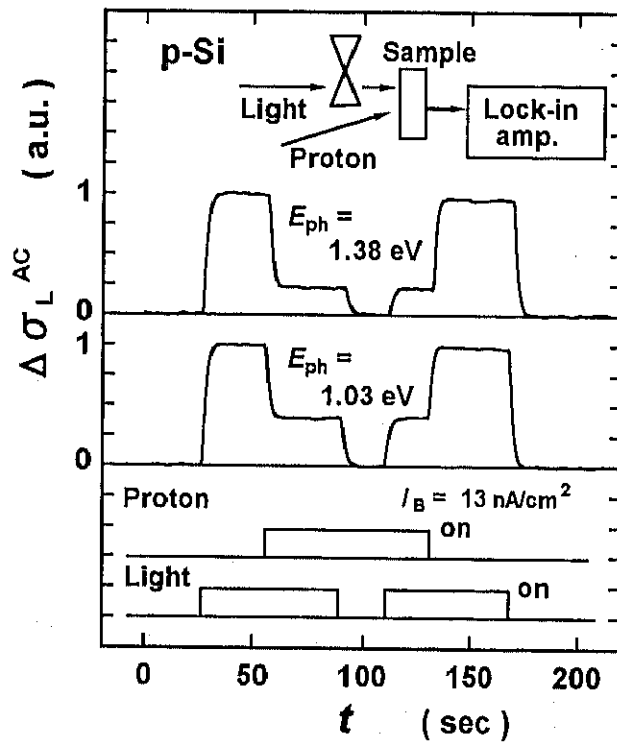


図 5-2. 位相検波法により測定した陽子線同時照射下での光伝導 $\Delta \sigma_L^{AC}$ の減少 (光子エネルギー $E_{ph} = 1.03$ eV および 1.38 eV)。光および陽子線の照射タイミングは図の下側に示す。光伝導度 $\Delta \sigma_L^{AC}$ は光のみの照射での値により規格化してある。

図 5-1 の測定方法では、同時照射下での光励起による伝導度変化が、陽子線による伝導度増加のゆらぎ (主原因は陽子線強度のゆらぎ) と同程度の大きさのため、光伝導成分の正確な抽出が困難である。そこで励起光のみを機械式チョッパーで変調し、

ロックインアンプで光による伝導度変化分 $\Delta \sigma_L$ のみを検出する位相検波法 (AC法) を適用した。結果を図 5-2 に示す。最初、試料はエネルギー 1.38 eV (または 1.03 eV) の光のみで照射されており、通常の光伝導 $\Delta \sigma_L$ の信号が観測される。そこへ陽子線の同時照射を行うと、 $\Delta \sigma_L$ の値は同時照射前の値の 20 % (または 40 %) 程度まで減少する。つまり光伝導度は、非照射下に比べ同時照射下では著しく抑制される。

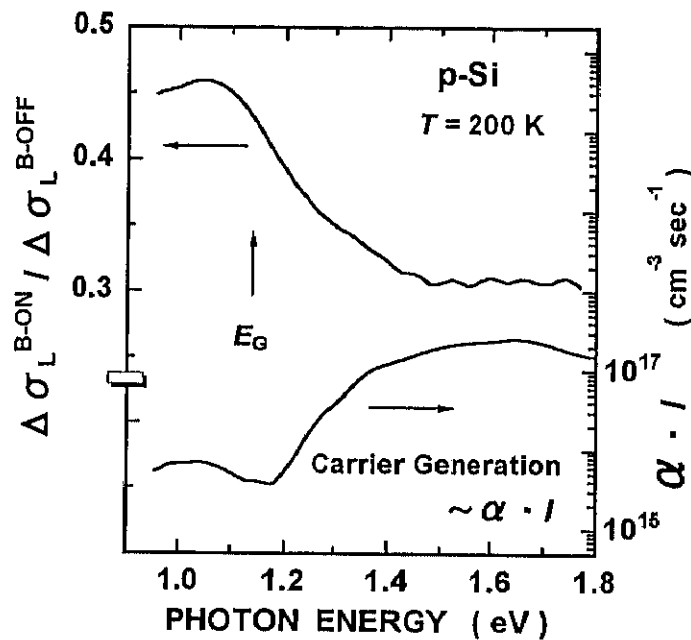


図 5-3. 光伝導残留率 $R_{\text{PCR}} = \Delta \sigma_L^{\text{B-ON}} / \Delta \sigma_L^{\text{B-OFF}}$ の励起光子エネルギー依存性。光キャリア生成率の指標のひとつである αI も参考のため、図の下側に示す。ただし、 α は吸収係数 (cm^{-1})、 I は光子束 ($\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$) である。

ここで光単独照射での光伝導度 $\Delta \sigma_L^{\text{B-OFF}}$ に対する同時照射下での光伝導度 $\Delta \sigma_L^{\text{B-ON}}$ の比を光伝導残留率 R_{PCR} 、すなわち $R_{\text{PCR}} = \Delta \sigma_L^{\text{B-ON}} / \Delta \sigma_L^{\text{B-OFF}}$ 、と定義する。図 5-2 に示すように、 R_{PCR} は励起光エネルギー E_{ph} に依存する。光伝導残留率 R_{PCR} の E_{ph} 依存性を図 5-3 に示す。

比較のため、光キャリア生成率の大小を表す指標のひとつ[2]である αI の E_{ph} 依存性も示した。ただし、 αI は吸収係数 α (cm^{-1}) と光子流束 ($\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$) の積である。 R_{PCR} は $E_{\text{ph}} < E_g$ で大きく、 $E_{\text{ph}} > E_g$ で小さい。

光伝導残留率 R_{PCR} は陽子線の強度 I_B にも依存する。測定された依存性を図 5-4 に示す。 I_B が増加すると、 R_{PCR} は減少し、抑制が強くなったことがわかる。

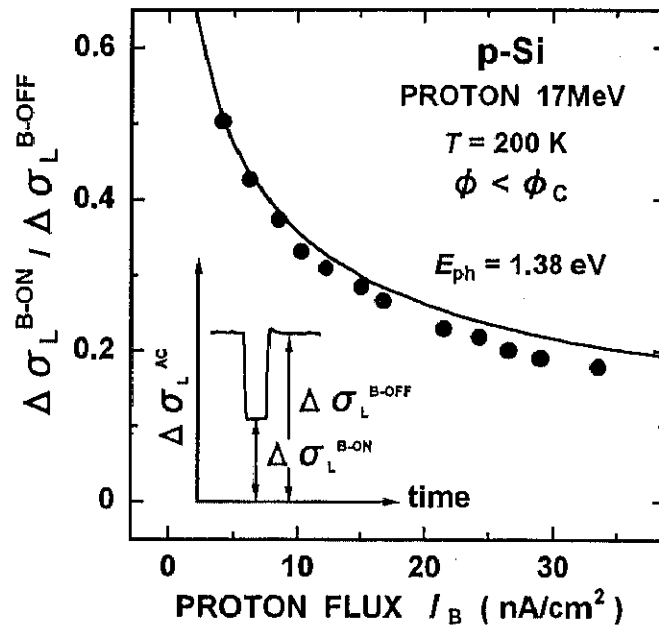


図 5-4. 光伝導残留率 $R_{\text{PCR}} = \Delta \sigma_L^{\text{B-ON}} / \Delta \sigma_L^{\text{B-OFF}}$ の陽子線束 I_B 依存性。

励起光子エネルギー $E_{\text{ph}} = 1.38 \text{ eV}$ 。黒丸は実験結果、実線は式(5.4)を用いて計算されたもの。挿入図は光伝導残留率 R_{PCR} の定義を示す。

図 5-5 に、陽子線の同時照射の前後と照射直下での光伝導度 $\Delta \sigma_L$ の励起強度 I_L 依存性を示す。全ての依存性は線形で、 $\Delta \sigma_L = A I_L$ と表せる。ここで A は比例係数である。照射直下での A は、照射前後に比べ著しく小さくなり、照射前の値の約 1/3 まで減少する。この A の減少がまさに今まで議論してきた同時照射下での光伝導の抑制に対応する。

図 5-5 に示すように、照射後の係数 A は照射前にくらべ、若干減少している。この減少は欠陥生成によると考えられる。実際、 R_{PCR} は積算線量、つまり欠陥濃度に依存する。約 600 秒の陽子線照射の後、我々は同じ実験を繰り返したが、結果は定性的には同じなもの、定量的には若干の差異が現われた。陽子線の線量が増加すると、光伝導残留率 R_{PCR} は増加、つまりは光伝導の抑制は弱くなる。

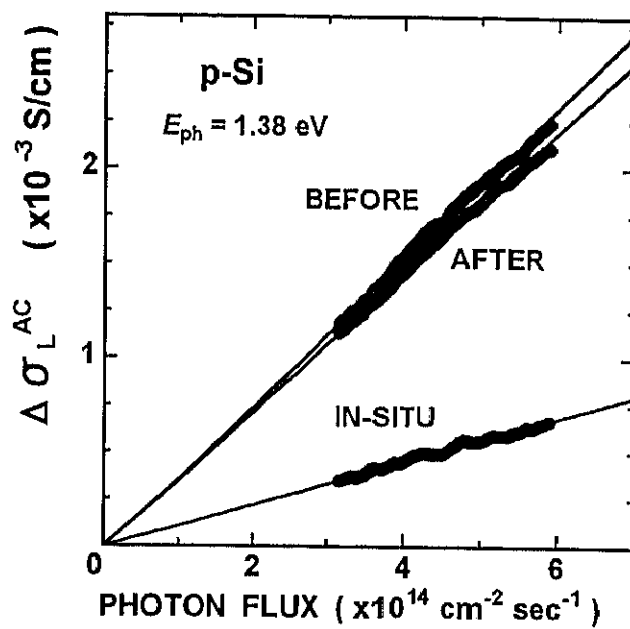


図 5-5. 陽子線同時照射中の光伝導の光子束依存性 (In-situ と記したもの)。比較のため、同時照射をする前 (before) と後 (after) に光単独照射で測定した依存性も示す。黒丸が実験結果で、実線は実験結果をよく再現するように引いた原点を通る直線である。

5. 3. 考察

17 MeV 陽子線の照射により、Si 中には高密度の電子正孔対が形成される[1]。同時照射下での光伝導の抑制もこの高密度励起効果との関連が予想される。しかしながら、光伝導現象は、光吸収（キャリア生成）、キャリアの熱平衡化、輸送、緩和（再結合）からなる複合過程である。それぞれの過程が高密度励起の影響を受ける可能性があり、どのような機構で光伝導の抑制が起こるのかを特定することは容易でない。以下、実験事実をもとに、抑制の機構を考察する。

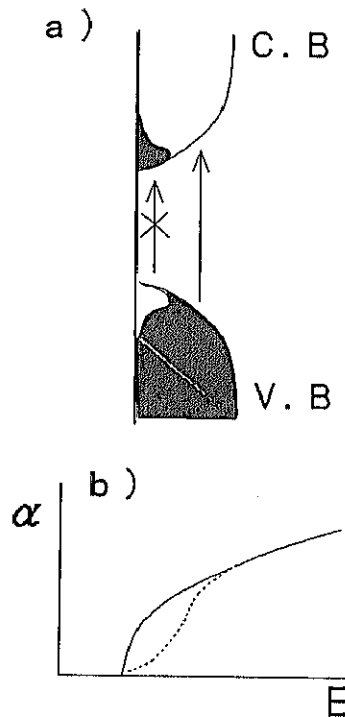


図 5-6. 高密度励起下において励起状態が占有されることにより光吸収のブリーチングが起こることを模式的に書いた図。(a) エネルギーバンド図、(b) 吸収係数 α の変化。
C.B と V.B はそれぞれ伝導帯と価電子帯を表す。

ひとつの可能性は、高密度励起により励起状態が占有され、光吸収過程が一部禁止されることにより起こるものである。この過程を模式的に書いたのが図 5-6 である。以下この機構をブリーチングモデルと呼ぶ。陽子線により強励起されたキャリアの一部が伝導帯の底付近を占有し、価電子帯から伝導帯底への遷移が（一部）禁止される。結果として光吸収が抑えられ、光伝導も減少する。このモデルによれば、伝導帯での

バンド内緩和により、バンド底付近の状態が励起キャリアにより占有される。この底付近の状態への光励起の場合において、光吸収の禁止（光伝導の抑制）が起こることとなる。

すなわち光伝導の抑制はバンド端近傍の光励起で一番顕著となることが予想される。しかし図 5-3 に示すように、観測された励起光エネルギー依存性は反対で、バンド端では抑制が弱く、より高エネルギー側で顕著になる。この結果は、ブリーチングモデルから予想されるバンド端近傍で抑制が顕著になるという依存性とは相容れない。結論として、観測された光伝導の抑制は、ブリーチングモデルでは説明できない。陽子線による励起キャリア密度を粗く見積もってみたが、伝導帯の大きな状態密度を満たせるほどには高密度になっていないようだ。

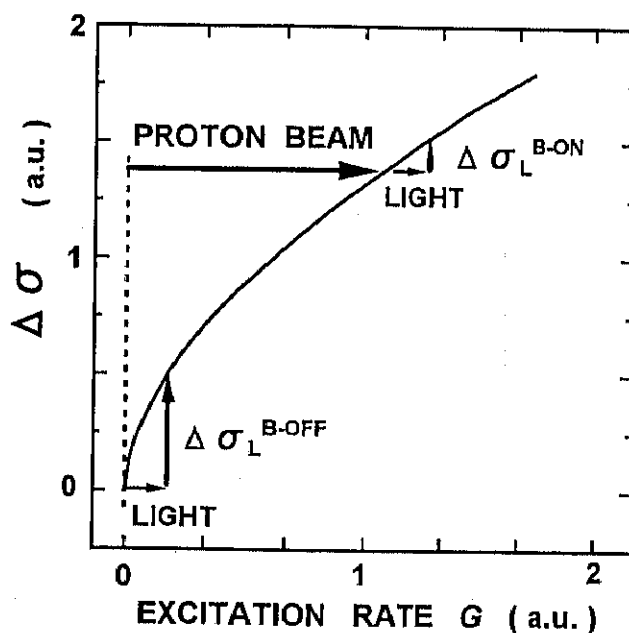


図 5-7. キャリヤ生成率 G に対する伝導度の増加 $\Delta\sigma$ の飽和的依存性を模式的に書いたもの。

飽和的依存性があると、光伝導残留率 $R_{\text{PCR}} = \Delta\sigma_L^{\text{B-ON}} / \Delta\sigma_L^{\text{B-OFF}}$ が 1 以下になる

こと、つまり陽子線との同時照射下で光伝導が抑制されることがわかる。

別の可能性として、伝導度増加量 $\Delta\sigma$ の高密度励起下における飽和的な励起強度 G 依存性が考えられる。これを模式的に示したのが図 5-7 である。 $\Delta\sigma$ は通常の低密度

励起下において、励起強度 G に対して線形に増加することは知られており、また我々の試料においても確かめられている。しかし高密度励起下においても比例関係が保持される保証はない。もし図 5-7 に示したような飽和傾向が存在すれば、光伝導残留率 $R_{PCR} = \Delta \sigma_L^{B-OFF} / \Delta \sigma_L^{B-ON}$ は 1 よりも小さくなる。

光および 17 MeV 陽子線に対する伝導度増加分の励起粒束依存性は、第 4 章で既に示した。それらのデータの横軸をキャリア励起強度 G ($\text{ehp} \cdot \text{cm}^{-3} \text{sec}^{-1}$) でプロットし直して 1 枚の図にまとめたのが、図 5-8 である。ちなみに G の単位は、1 秒あたり 1 cm^3 の領域に生成される電子・正孔対 (ehp) の数である。

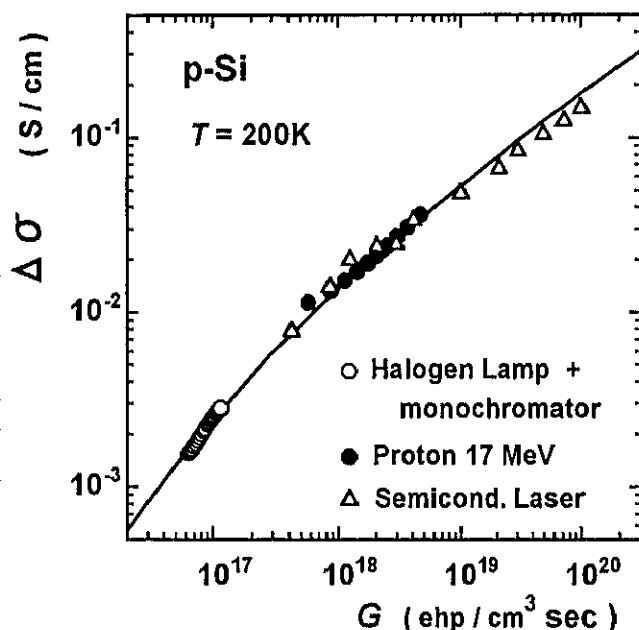


図 5-8. 伝導度の増加分 $\Delta \sigma$ のキャリア生成率 G 依存性。それぞれ、100 W ハロゲンランプからの光を 30 cm シングル分光器を通した光子エネルギー $E_{ph} = 1.38 \text{ eV}$ の励起 (白丸)、半導体レーザーからの $E_{ph} = 1.85 \text{ eV}$ の励起 (白三角)、17 MeV 陽子線励起 (黒丸)。実線は式(5.1)でフィットしたもの。

陽子線束から G への変換は、TRIM コードにより計算した電子的エネルギー損失 S_e (eV/cm)

$$S_e = - \left(\frac{dE}{dx} \right)_e \quad (5.1)$$

を用いた。\$S_0\$ は 1 個の陽子が単位長さだけ固体中を進むときに電子励起として失うエネルギー量を表す。キャリア励起強度 \$G\$ (ehp/cm\$^3\$sec) は以下で与えられる。

$$G = S_0 I_{\text{proton}} / E_{e-h} \quad (5.2)$$

ここで、\$I_{\text{proton}}\$ は陽子線流束(protons/cm\$^2\$sec)、\$E_{e-h}\$ は電子正孔生成エネルギー(eV/ehp)である。

横軸を \$G\$ でプロットすることにより、陽子線励起およびレーザー光励起のデータが同一の曲線上にのった。ただし、この一致は \$E_{e-h}\$ の値として、電子線照射の実験から求められた \$E_{e-h} = 3.88\$ eV [3]を用いた結果である。

高密度励起下での \$\Delta \sigma\$ の飽和傾向については既に第 4 章で触れた。飽和傾向の起源として、励起キャリアの二分子的再結合 (\$\Delta n \propto G^{0.5}\$) を考慮することにより、おおよそ実験結果を説明できる。しかし観測された飽和傾向は二分子再結合で説明されるよりも若干強く、それ以外の機構、例えば高密度励起によるキャリア移動度 \$\mu\$ の減少なども寄与していると思われる。いずれにしろ飽和の機構として、二分子的再結合過程が支配的であることは確かである。よって、第 4 章の議論から以下の式、

$$\Delta \sigma(G) = a \left(\sqrt{1 + \frac{G}{G_0}} - 1 \right) \quad (5.3)$$

で図 5-8 に示した \$\Delta \sigma\$ の \$G\$ 依存性を再現できるはずである。\$a\$ と \$G_0\$ を fitting parameters として実験データを再現したのが図 5-8 の実線である。この曲線により実験データはよく再現される。また fitting の結果、\$a = 5.78 \times 10^{-3}\$ S/cm と \$G_0 = 9.80 \times 10^{16}\$ cm\$^3\$ sec\$^{-1}\$ という値が得られた。しかし、物質パラメータから式(4.11)により求まる \$G_0\$ の値は \$6.3 \times 10^{17}\$ cm\$^3\$ sec\$^{-1}\$ であった。fitting から求まったの値はむしろ移動度の減少までを繰り込んだ有効値であると考えらるべきであろう。実際、有効値が式(4.11)で算出されるよりも小さい値にシフトすることは、二分子再結合のみから予想されるよりも低い励起強度で実際の飽和が始まっていることを示し、二分子再結合以外の機構の寄与も効いていることを示唆している。

本章での光励起の実験は、図 5-8 の白丸で示された励起強度 \$G\$ に対して線形の依存

性が観測される範囲で行われた。陽子線の励起強度域は図に黒丸で示したが、対照的に飽和傾向が観測される強励起域に属する。これで光伝導の抑制は、伝導度の励起強度依存性の飽和で説明できそうである。そこで、定量的にこのモデルにより他の実験事実も説明できるか試みる。

図 5-4 に示したように、光伝導残留率 $R_{PCR} = \Delta \sigma_L^{B-ON} / \Delta \sigma_L^{B-OFF}$ は陽子線束が増えると減少する。 R_{PCR} は以下の表式で与えられる。

$$R_{PCR}(G_B) = \frac{\Delta \sigma_L^{B-ON}}{\Delta \sigma_L^{B-OFF}} = \frac{\Delta \sigma(G_B + G_L) - \Delta \sigma(G_B)}{\Delta \sigma(G_L)} \quad (5.4)$$

これに式(5.1)を代入して計算した結果を図 5-4 に実線で示す。実験結果をほぼ再現する。

光伝導抑制の励起光子エネルギー E_{ph} 依存性は、吸収係数 α の E_{ph} 依存性で説明できる。 α が小さいと光の侵入長は長くなり、励起キャリアの密度は相対的に低くなる。逆にバンド端より高エネルギー側では α が大きく、相対的に励起キャリア密度が高い領域が現われる。結果として、光伝導の抑制はバンド端より高エネルギー側で顕著になり、実験結果と一致する。

図 5-5 に示した同時照射下での光子束依存性は飽和傾向と矛盾するものではない。光子によるキャリア生成率 G_L は陽子線による G_B に比べて小さいので、同時照射下での伝導度の増加 $\Delta \sigma_L^{B-ON}(G_L)$ は、

$$\begin{aligned} \Delta \sigma^{B-ON}(G_L) &= \Delta \sigma(G_B + G_L) - \Delta \sigma(G_B) \\ &\sim G_L \cdot \left[\frac{d\Delta \sigma}{dG} \right]_{G=G_B} \quad (G_L \ll G_B) \quad (5.5) \end{aligned}$$

となり、 G_L に比例する。

光伝導残留率 R_{PCR} は陽子線の積算線量にも依存する。積算線量が増えると、 R_{PCR} は増加、つまり光伝導抑制は弱くなる。これは欠陥が多いほど、励起キャリアの寿命が短くなり、励起キャリアの有効密度が小さくなることから説明される。これは励起強度が減ったことと同様な効果であり、励起強度が減れば光伝導の抑制も弱まることから実験事実をよく説明する。

以上のように光伝導抑制の機構は特定されたので、次はこの現象の防止法を検討する。光伝導抑制は励起伝導度 $\Delta\sigma$ の飽和的依存性、この場合励起キャリアの二分子的再結合によるので、これを何とか回避すればよい。即ち、材料が強励起になるのを避ければよい。このためには式(4.11)で定義した $G_0 = Cn_0^2/4$ を大きくすればよい。例えば、キャリア濃度 n_0 のを大きくする方法があるが、これは暗電流も同時に増やしてしまう。励起キャリア寿命 τ を減少させ、有効再結合定数 C を増加させる方法もあるが、光伝導の感度を減少させる。これらの処方は、高感度の光検出という観点とはトレードオフの関係にある。即ち、それらのパラメーターには最適値が存在する。これらの最適化により、光伝導の抑制は軽減され、強放射線下での光検出が可能になると思われる。

5. 4. まとめ

17 MeV 陽子線と光の同時照射下で、光照射による伝導度の変化（光伝導）を観測した。これは強放射線下での半導体光検出器の挙動を明らかにする上での重要な実験であり、かつ我々の照射施設およびその場測定系のようなよく制御された環境でのみ実行可能な実験である。その結果、光単独照射時に比べ陽子線・光同時照射下では、光伝導度が20-40%に減少すること（光伝導の抑制）が見出された。

この同時照射下での光伝導抑制の度合いは、励起光の光子エネルギー、陽子線の流束、積算線量に依存する。しかしそれらの依存性は、抑制の原因として、高密度励起下での伝導度の飽和した励起強度依存性 $\Delta\sigma(G)$ を考慮することにより、なかば定量的に説明される。この飽和傾向は、主に高密度励起下での励起キャリアの二分子的再結合に起因する。

光伝導抑制は、これまで考慮されていなかった光検出素子の耐放射線性の問題であり、その重要性が本実験により初めて明らかにされた。すなわち、強放射線用光検出素子は耐照射性を向上させるだけでなく、光伝導の抑制を避ける必要もある。

光伝導抑制の機構が明らかにされたので、対策を立てることができる。試料の多数キャリア密度を上げるか、励起キャリア寿命を減らし、なおかつ光伝導の感度が落ちないように最適化することにより、光伝導の抑制は軽減され、強放射線下での光検出が可能になると思われる。

【参考文献】

- [1] H. Amekura, N. Kishimoto and K. Kono, *J. Appl. Phys.* **84**, 4834 (1998).
- [2] R. H. Bube, *Photoelectronic Properties of Semiconductors* (Cambridge Univ. Press, 1992) p.24.
- [3] E. Baldinger, W. Czaja and A. Z. Farooqi, *Helv. Phys. Acta.* **33**, 551 (1960).