

第7章 陽子線照射による非晶質 Si の光伝導の劣化

— 非晶質構造による耐照射性の向上 —

第7章 陽子線照射による非晶質 Si の光伝導の劣化 — 非晶質構造による耐照射性の向上 —

7. 1. 背景

応用的な重要性と相まって、結晶性 Si (c-Si) の照射損傷については 1950 年代から現在まで継続的によく調べられており、その原子構造、エネルギー構造、安定性等に関する知見が確立されている。一方、非晶質 Si (a-Si) については長距離秩序の欠如等の理由により、比較的研究は行われているにも関わらず、1、2 の例を除き、未だ明確な知見は得られていない[1]。

照射による c-Si の電気的特性の劣化は点欠陥導入に由来する。低線量ではまず、その欠陥が深い準位として働くことにより非輻射遷移を増強し、またキャリア数を減らす捕獲中心として作用する。つまり結晶構造がほとんど乱されていなくても、点欠陥が存在すれば c-Si の電子的劣化は容易に起こる。結晶の場合、一度格子位置からの弾き出しが起こると、結晶構造が剛直であるために、照射欠陥が消失するためには欠陥間の再結合かシンクへの移動を起こすしか方法はない。

しかしながら半導体非晶質構造はある程度の構造的自由度、フレキシビリティを持つため、結晶に比べて弾き出された原子を元に戻すこと、または緩和させることは容易である。つまり、非晶質材料には高い耐放射線性が期待できる可能性がある。

ところが水素化非晶質 Si (a-Si:H) について状況はそれほど単純ではない。この系では電子励起により欠陥が導入されることが Staebler-Wronski 効果(SW 効果)として知られている[2]。a-Si は欠陥を緩和することに関して c-Si より優れていても、陽子線照射による強い電子励起が起こり、SW 効果による欠陥生成が多量に発生し、全体として c-Si より耐照射性が悪くなってしまう可能性があり得る。

この章では、陽子線照射した結晶および非晶質 Si の光伝導度や暗伝導度の照射線量依存性を比較し、その劣化挙動の違いを吟味し、その耐放射線性について議論する。

7. 2. 実験結果

図 7-1 に a-Si:H と c-Si の光伝導スペクトルを示す。a-Si:H 試料、c-Si 試料ともに意図的な不純物添加を行っていないものを用いた。また、光伝導測定時の励起光による劣化を極力抑えるため、励起光はできるだけ弱くし、また測定時間もできるだけ短くして測定を行った。

図 7-1 の光伝導スペクトルは高エネルギー側で飽和しているが、おおよそバンド間遷移の光吸収スペクトルに相当すると思われる。a-Si:H の場合、バンドギャップ E_g は 1.5–1.6 eV に対応し、それより低エネルギー側に非晶質物質でよく観測される裾が存在する。未照射では c-Si の光伝導応答の方が a-Si:H のそれに比べておおよそ 1 桁程度大きい。これは移動度 μ や光キャリア寿命 τ などの差に起因する。しかしながら、 10^{-7} dpa 程度の照射の後、状況は完全に逆転する。a-Si:H の光伝導度は減少せず、むしろ若干増加しているのに対して、c-Si の光伝導度は劇的に 4 桁も減少する。

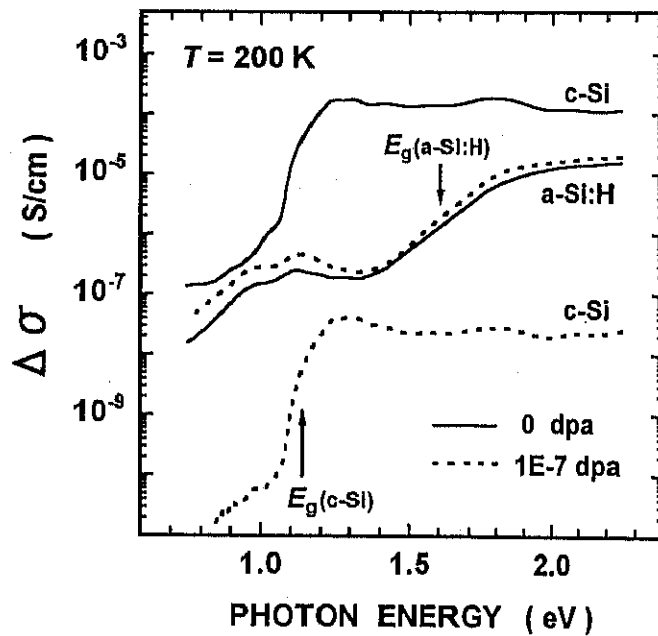


図 7-1. 水素化非晶質 Si (a-Si:H) と結晶 Si (c-Si) の光伝導スペクトル。

実線は未照射、点線は 1×10^{-7} dpa の照射後。

図 7-1 で注目すべきもう一点は、c-Si においても a-Si:H においても、絶対値は別として、照射の前後でスペクトルの形状がほぼ変化していないことである。このこと

はホストバンドの電子構造が 10^{-7} dpa 程度の低線量の陽子線照射では変化しないことを意味する。実際、c-Si では 10^{-7} dpa の照射により最大でも $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 程度の点欠陥しか導入され得ないので、当然の帰結である。ただし、これは我々が実験を行った 10^{-6} dpa 程度以下の照射についてのみ成立することで、さらに高線量においては変化し得る。

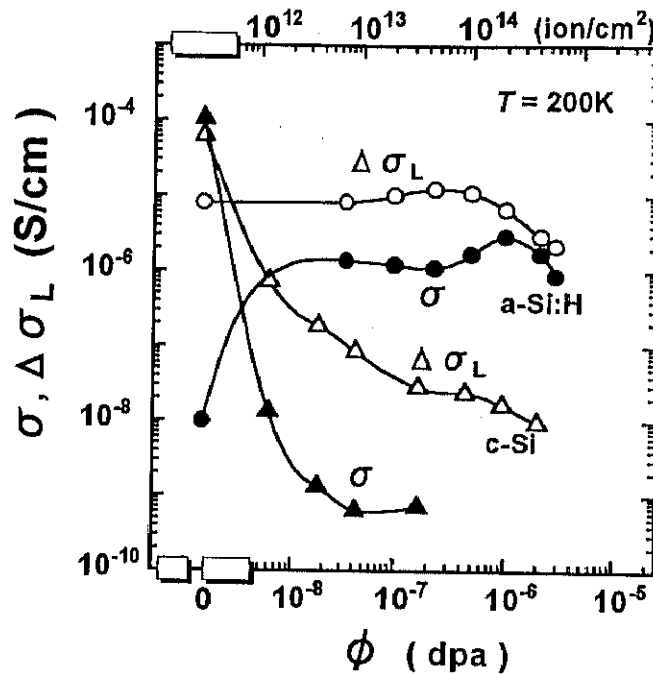


図 7-2. 非晶質 (a-Si:H) および結晶 (c-Si) の暗伝導度 σ 及び光伝導度 $\Delta \sigma_L$ の照射線量依存性。

光伝導の励起光エネルギーは 2.1 eV (非晶質)、1.3 eV (結晶) である。

図 7-2 に c-Si と a-Si:H の暗伝導度および光伝導度の照射線量依存性を示す。既に第 3 章で示したように、c-Si (無添加材) の光伝導度と暗伝導度は極めて低線量において急速に劣化した。図 7-1 において言及したように、c-Si (無添加材) の光伝導度は 10^{-7} dpa の照射により 4 桁ほど減少するが、暗伝導度はさらに急激に減少する。この c-Si (無添加材) における劣化は、照射による弾き出し欠陥が深い準位として作用するために引き起こされる。 $10^{-8} \sim 10^{-7}$ dpa 程度の低い照射量でも、c-Si (無添加材) の臨界線量 ϕ_c を越えてしまう。

対照的に a-Si:H の光伝導は陽子線照射に対して驚くべき安定性を示す。光伝導度は 10^{-6} dpa まで全然減少せず、むしろ若干増加している。 10^{-6} dpa を越えると、光伝導度は徐々に減少し始める。第 3 章などで議論したように、c-Si における光伝導の減少は、照射による光キャリア寿命の減少に起因するが、a-Si:H についても同様な機構が推定される。暗伝導度は、最初の増加を別にすれば、光伝導度とほぼ同様な依存性を示す。最初の増加は永続的励起伝導 (PEC) で、次の章で詳しく議論する。

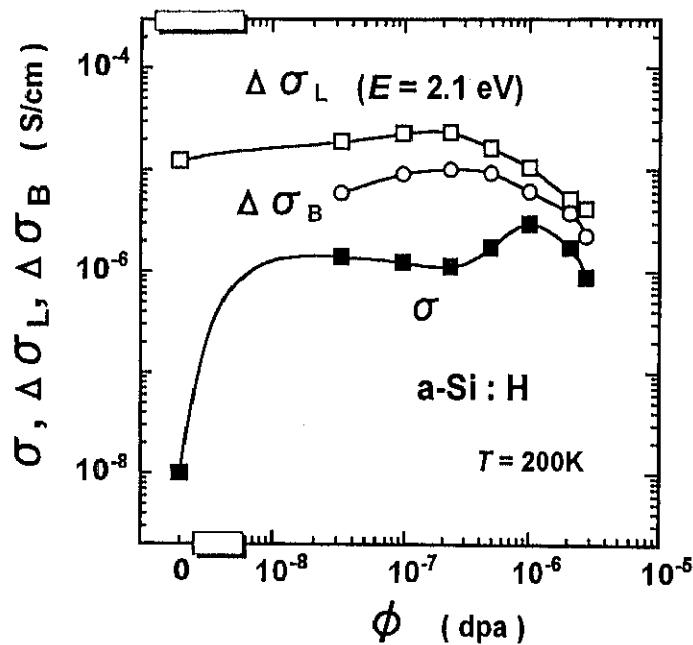


図 7-3. 17 MeV 陽子線による粒子線誘起伝導度 $\Delta \sigma_B$ と、光伝導度 $\Delta \sigma_L$ および暗伝導度 σ の線量依存性の相関。

図 7-3 は陽子線による a-Si:H の粒子線誘起伝導 $\Delta \sigma_B$ と光伝導 $\Delta \sigma_L$ と暗伝導度 σ の線量依存性を比較したものである。線量の増加に伴い、 $\Delta \sigma_B$ は $\Delta \sigma_L$ と平行して変化する。この平行な変化から、 $\Delta \sigma_B$ と $\Delta \sigma_L$ が同様の機構により支配されていることが推測される。即ち、粒子線誘起伝導の少なくとも高速成分 $\Delta \sigma_B$ の機構は、光伝導と同様に電子励起による電子正孔生成によると考えられる。

最高 3×10^{-6} dpa までの照射を行った結果、 $\Delta \sigma_L$ は初期値の 1/3、照射の途中で得られた最大値の 1/4 まで減少した。この減少した分の多くは、450 K の熱焼鈍により回復する。450 K 付近ではガンガリング・ボンド (DB) が消滅することが知られているので[3]、

高線量域での光伝導や粒子線誘起伝導の減少は DB の生成によると考えられる。熱回復が起こることは、観測された劣化が水素が失われたためでも、再結晶化の結果でもないことを示す。

以下、a-Si:H における (次章で議論する永続的励起伝導を除いた) 粒子線誘起伝導 (RIC) の挙動をまとめると次のようになる。

- a) 低線量域では、陽子線の電子励起により電子・正孔対が形成され、RIC が起こる。
- b) 弾き出された原子は半導体非晶質構造の柔軟性のために構造的に緩和され、致命的な欠陥は、なかなか生成されない。この過程で陽子による電子励起が重要な役割を果たしている可能性もあり得る。
- c) 高線量になると、徐々に緩和しそこなった DB などが蓄積されてきて特性が劣化してくる。
- d) 450K の熱焼鈍で DB は消滅し、ほぼ最初の伝導度がよみがえる。

7. 3. 考察 —— 耐放射線性の高い光検出器への応用に向けて ——

図 7-2 より、a-Si:H は c-Si に比べて極めて高い耐照射性を示すことが示された。我々は、核融合炉用の耐放射線性の高い光検出器をひとつのターゲットと考えており、既に第 3 章で浅い不純物添加により結晶 Si の光伝導の耐放射線性が向上することを示した。すなわち、高濃度の不純物添加により臨界線量を高線量域に移動させることができる。しかし同時に高濃度の添加は暗伝導度を上昇させ、光伝導の検出を困難にする。 $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 程度の不純物添加 (臨界線量 $4 \times 10^6 \text{ dpa}$) は SN 比の良い検出のための限界に迫っており、この方法の限界は 10^6 dpa 程度にあると推定される。

a-Si:H の高い耐照射性は、不純物添加における耐照射性の向上とは異なる原理に基づいており、いわば「非晶質構造の導入による耐照射性向上」とも呼べるものである。よって上記の限界は超えられる可能性がある。実際、光伝導度は 10^6 dpa までは全く減少せず、むしろ若干増加さえする。また 10^6 dpa 以上では緩やかな減少を示すものの、 $3 \times 10^6 \text{ dpa}$ においても照射前の値の 1/3 程度にしか劣化しない。さらに 450 K 程度の熱処理により、欠陥がある程度消去され光伝導度を回復できる点は、応用上有利である。

a-Si:H の高い耐照射性の起源については、非晶質の柔軟構造による欠陥の緩和という可能性が第一候補である。しかし、次章で述べる永続的励起伝導が耐照射性において重要な役割を果たしている可能性もあり得る。不純物添加した a-Si:H において、暗伝導度が高いものほど、光伝導度も大きいという報告[4]がある。この関係が即、我々の試料にも適用可能であるかは自明ではないが、永続的伝導のため暗伝導度は高く、それ故に高い光伝導度がいつまでも保持されるという可能性もあり得る。

7. 4. まとめ

a-Si:H の照射誘起劣化を c-Si と比較しながら、その場光伝導、粒子線誘起伝導、暗伝導の測定より評価した。不純物無添加 c-Si の光伝導は、 10^{-8} dpa 程度の極めて低線量の照射で著しく劣化する。しかし、不純物無添加 a-Si:H の光伝導は、照射に対して極めて高い安定性を示し、 10^{-6} dpa 程度まで減少しない。 10^{-6} dpa を過ぎると、光伝導は徐々に減少するが、c-Si に比べて減少の程度は緩やかである。また、450 K 程度の熱処理で特性がある程度回復できる。この結果は、耐照射性光検出素子材料として a-Si:H が極めて有望であることを示している。

粒子線誘起伝導には、光伝導と同程度に速い成分と極めて遅い成分が存在した。遅い成分については次章で議論する。速い成分は、光伝導とほぼ平行するような線量依存性を示す。速い成分は、光伝導と同様な過程、即ち電子・正孔対生成で起こるものと推測される。

【参考文献】

- [1] 例えば、A. Scholz and B. Schroder, *J. Non-cryst. Solids*, **137&138**, 259 (1991).
- [2] D. L. Staebler and C. R. Wronski, *Appl. Phys. Lett.*, **31**, 292 (1977).
- [3] M. Stutzman, W. B. Jackson and C. C. Tsai, *Phys. Rev. B*, **32**, 23 (1985).
- [4] D. A. Anderson and W. E. Spear, *Phil. Mag.*, **36**, 695 (1977).