

양전자 소멸 측정법으로 양성자 조사에너지 변화에 대한 n, p형 실리콘 구조 특성

이종용*

한남대학교 물리학과, 대전 306-791

(2013년 10월 30일 받음, 2013년 11월 6일 수정, 2013년 11월 6일 확정)

동시 계수 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법으로 n형과 p형 실리콘 시료에 40.0, 3.98 MeV 에너지를 가진 $0.0 \sim 20.0 \times 10^{13}$ protons/cm² 양성자 빔 조사에 의한 결함을 측정하여 시료 특성을 조사하였다. 양전자와 전자의 쌍소멸로 발생하는 감마선 스펙트럼의 전자 밀도 에너지에 의한 수리적 해석 방법인 S-변수를 사용하여, 시료의 구조 변화를 측정하였다. 본 연구에서 측정된 S-변수는 시료에 조사된 양성자 조사량의 변화에 따라 결함이 증가하였으며, 그리고 40 MeV 양성자 빔의 세기는 n형 실리콘에서 빔의 조사량 20.0×10^{13} protons/cm²에서 3.98 MeV 보다 결함의 영향이 더 큰 것으로 나타났다. 그 결과 조사에너지와 조사량의 상관관계를 비교 분석하였다. SRIM 시뮬레이션의 결과는, 양성자의 Bragg 피크 특성 때문에 시료 전체에 대한 결함으로 나타나기 보다는 양성자가 시료의 특정 깊이에 주로 결함을 형성하는 것을 보여 준다.

주제어 : 양성자 조사, S-변수, 동시 계수 양전자 소멸 측정, n, p형 실리콘, 결함 특성

I. 서 론

친환경적 고효율의 에너지 재료인 태양전지 [1,2]나 고 집적 성능을 위한 반도체 소자의 재료로서 결정 실리콘 웨이퍼가 사용된다. 실리콘은 두 번째로 많은 원소이므로 이 실리콘 재료를 연구 하는 것은 커다란 이점이 있을 뿐만 아니라 소자로서 넓게 사용되므로 기계적 특성에 대하여 관심이 많기 때문이다. 반도체 소자는 제작과정에서 증착, 주입, 식각 등 물리, 화학적인 변화를 반복함으로써, 제조 과정에서 발생하는 시편의 결함을 고려할 때 결함이 필수 불가결하다고 할지라도 실리콘 시료는 특히 n형과, p형인 불순물 실리콘 웨이퍼의 사용량의 증가 추세에 따라서 사용하는 실리콘 웨이퍼의 신뢰도를 높이기 위해 결함에 대한 특성 연구가 반드시 필요하다. 실리콘 시료위에 n, p형 불순물 반도체를 만들기 위하여 실리콘 기판위에 조사되는 저 에너지 양성자 주입에서 생기는 결함뿐만 아니라 고 에너지 방사선에 대한 영향도 무시할 수 없기 때문에 이에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있는 실정이다 [3]. 기존의 실리콘 시료에 유도된 $\sim 1.0^{14}$ protons/cm²의 고 에너지, 고 선량에 의한 조사 방사선의 영향에 대한 결함의 양전자 소멸 측정 연구는 활발히 진행되어 왔다 [4,5].

양전자 소멸 측정법은 금속이나 반도체의 결함에 대한 특성이나 폐쇄 기공(closed pores) 결함 측정 [6]과 오픈 볼륨 결함 측정에도 이용되고 있으며 물질의 전자 구조, 결함 측정, 전자의 밀도분포 및 운동량 분포 등 핵과 고체 물리에서 사용되는 방법이다 [7-9]. 특히 전자의 반입자인 양전자는 전자와의 상호 작용을 통한 재료에서 원자 단위의 크기에 대한 결함 특성을 측정하는 수단으로 연구되어 왔다. 측정법이 용이하고 측정하는 경우에도 시료가 보존되며, 시료에는 전혀 영향을 주지 않는다. 또한 나노미터 정도의 결함에 대하여 측정 할 수 있는 장점을 가지고 있다.

운동량 분포를 사용하는 도플러 넓어짐 소멸 측정법 [8]은 운동량을 가진 전자와 양전자의 쌍 소멸에 의하여 발생하는 감마선을 이용한 것으로서 양전자가 전자와 소멸 할 때 총에너지가 $2mc^2 - E_b$ 인 두 개의 감마선이 서로 반대 방향으로 방출하는 것이다. 이때 전자의 운동방향에 따라 한 광자 에너지는 $p_Lc/2$ 가 늘어나고, 반면에 다른 광자의 에너지는 같은 양만큼의 에너지가 줄어든다. 도플러 넓어짐 소멸 측정에서 이용하는 양전자 소멸 운동량 p_L 은 전자와 양전자 소멸시 광자 방사가 일어나는 세로 방향의 성분이다. 사용되는 검출기는 광자들이 임의의 방향으로 방사하는 경우에도 청색 편이와 적색 편이로 이동된 감마선을

* [전자우편] cylee@mail.hannam.ac.kr

측정 할 수 있다. 새로운 방법인 동시 계수 도플러 넓어짐 측정법(Coincidence Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy: CDBPAS)은 [10] 기존 방법보다 약 1,000배 이상 상당히 많은 잡음을 줄임으로서, 이 측정 방법으로 분해능이 현저하게 증가되어 코아 전자들의 높은 운동량 소멸에 대한 정보를 얻을 수 있고 이론적 계산과 비교 할 수 있게 되었다.

본 연구에서는 조사된 양성자에 의하여 발생하는 n형과, p형 불순물 단결정 실리콘 시료의 결함에 대한 특성을 조사하고자 한다. 양전자 소멸에 의하여 ppm 단위의 결함까지 측정할 수 있기 때문에 우주 개발의 관심에 따라서 입사되는 우주 방사선의 90% 정도인 양성자 조사에 따르는 실리콘 시료의 효율 저하를 측정하고자 한다. 특히 우주 방사선이 넓은 에너지 분포로 양성자를 방사하므로 고 에너지와 저에너지의 조사량 변화에 따른 동시계수 도플러 넓어짐 양전자 소멸법(CDB)에 의한 결함의 양에 대한 분석을 하였다. 우주 방사선의 양성자 조사는 우주선에 사용되는 실리콘 반도체 소자의 특성에 상당한 영향을 줄 수 있기 [5,11] 때문에, 본 연구의 목적은 우주 방사선의 에너지 및

조사량에 대하여 실험실에서 양성자 조사량과 에너지 세기의 변화에 따른 실리콘 시료 결함의 특성으로 분석하고자 한다.

II. 실험

단결정(001) 2" n형 실리콘과 4" p형 실리콘은 Cz 법으로 성장시킨 실리콘 시료를 각각 20×20×0.3 mm, 20×20×0.5 mm로 제작하였으며, 양성자 빔은 원자력의학원의 사이클로트론 MC 50 가속기를 사용하여 빔을 발생시킨 후, 양성자를 조사하였다. 빔의 세기는 초기 값을 각각 40 MeV와 20 MeV, 5 μA로 사용하였고, Fig. 1(a)와 같이 에너지 감쇄용 양성자 조사 실험 장치를 사용하여 20 MeV에서 3.98 MeV 목표의 에너지 감손을 위하여 두께 1.4±0.58 mm, 진공 거리는 180 cm로 놓았다. 뒷부분의 산란 에너지를 저감하고자 시료 뒤에 알루미늄의 얇은 막을 사용하였으며, 본 실험에서는 3% 이하로 맞추었다. 조사하는 빔의 반치 폭은 12 mm이고, 시료에 조사되는 양성자 빔의

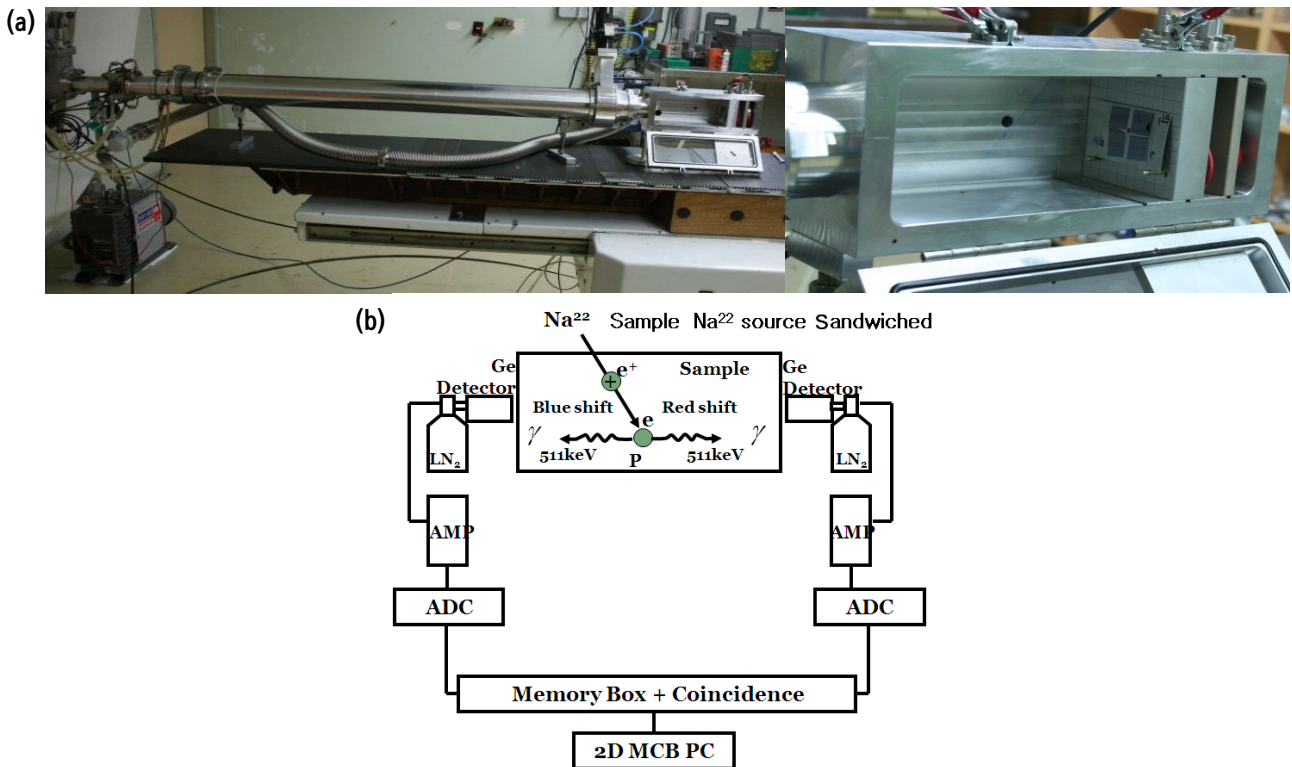


Figure 1. (a) The proton degrader path chamber. (b) Schematic Diagram of Coincidence Doppler Broadening Positron Annihilation setup.

에너지는 각각 40 MeV와 3.8 MeV, 21 nA이며, 빔의 크기는 지름이 약 20 mm의 크기로 조절하였다. 시료에 입사하는 양성자 조사량을 각각 0, 1.0, 10.0, 20.0×10¹³ protons/cm²로 변화 시켰다.

동시계수 양전자 소멸 측정 [12]을 하기 위하여 양전자 소스는 활성화 면적의 직경이 9.53 mm이고, 5 μm 두께의 니켈 foil로 양면을 감싸고 있는 25 μCi ²²Na 소스를 사용하였다. Fig. 1(b)는 동시 계수 양전자 소멸 분광 실험 장치를 보여 주고 있으며, 양전자 소스는 시료 한 쌍의 가운데에 샌드위치 형태로 배치하였다. 측정에 의한 511 keV 감마선 에너지 검출을 위하여 Ortec사 Gem 20180-P 검출기 그리고 내부 및 외부 증폭기를 사용하여 측정하였다. 또한 동시 계수 측정을 위하여 Labo-eq사의 NT24-DUAL을 사용하였다.

III. 결과 및 고찰

가속기로부터 시료에 조사된 양성자는 얇은 알루미늄 창 의 박막을 통과한 수소 빔 라인에 의해 발생되며, 빔이 사각형 모양이나 빔의 거리 조절을 하여 크기와 에너지를 변화시킬 수 있다. 양성자 빔의 조사에 의한 결함은 n형과 p형 실리콘 시료 실험에는 40 MeV 이상 큰 에너지의 양성자 빔을 조사하는 경우에는 두 빈자리(di-vacancies)들과 다발(cluster) 결함이 증가하는데, 이 경우에는 고립된 음전하 형태의 단 빈자리들의 결함의 모임이나 두 빈자리들의 결함의 모임으로 나타난다고 알려져 있으므로 [13] 양전자

가 빈자리 결함근처에서 주변의 최외각 전자와 소멸할 경우 양전자와 전자의 쌍소멸로 발생하는 511 keV 감마선 스펙트럼의 수리적 해석 방법인 에너지 비율에 의한 S-변수 값은 증가할 것이다. 그러나 시료가 단 결정 입자형태로서 3.98 MeV의 저 에너지 양성자 조사의 경우에는 점 결함 형태로 나타나기 때문에 앞에서 나타나는 결함처럼 에너지의 크기에 따라서 다르게 구별되지는 않는다. Fig. 2는 양성자 빔의 에너지를 40.0 MeV와 3.98 MeV로 고정시키고 n, p형 실리콘 시료에 조사하는 양성자 빔을 0, 1.0, 10.0, 20.0×10¹³ protons/cm²으로 변화시키면서 측정한 S 변수의 값이다. 이때 S-변수의 각 표준 편차는 약간 차이가 있지만 일반적으로 측정된 값이 ~10⁻⁴이다. 측정된 S-변수 값에 대하여 무시할 정도로 작은 값을 알 수 있다. 저 에너지의 세기를 변화시키면서(3~5 MeV), 조사량을 고정시켰을 때는 조사에너지에 따른 S 변수 값에서의 변화가 거의 없다는 것은 기 발표된 [14] BaSrFBrI:Eu 영상 판의 경우를 통하여 S 변수 값이 조사에너지에 비례하여 큰 변화가 없었음을 보여주고 있다. 하지만 조사 에너지를 일정하게 고정 시킨 후 조사량의 변화에 따라서는 차이가 나타남을 알 수 있다 [8]. Fig. 2에서 조사에너지가 40.0 MeV와 3.98 MeV인 경우는 n형과 p형 실리콘 시료에서 조사량의 크기에 따라 모두 결함의 양이 증가하며 S-변수 값이 증가하는 것으로 나타난다. Kelly et al. [15]는 불순물의 종류가 다른 n, p형 실리콘에서 도플러 넓어짐 소멸 측정은 S-변수 값이 큰 차이가 없다고 했지만 본 실험에서 동시 계수 양전자 소멸로 측정된 값은 차이를 보여주고 있다.

Fig. 2는 같은 조사에너지 세기에서도 조사량의 증가에

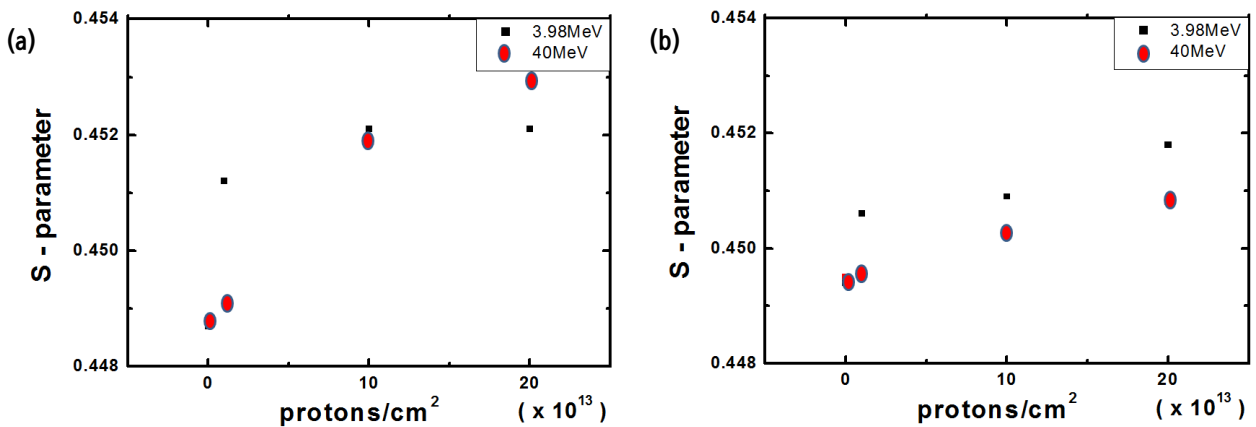


Figure 2. S parameters with CDBPAS in (a) n type, (b) p type silicon film vs. 40, 3.98 MeV with various proton irradiation beam.

따라서 결함의 양이 증가함을 알 수 있다. Hori et al. [16]은 10 MeV 에너지의 양성자 조사량에서 p형 실리콘의 경우 일부가 불순물 도판트 종류에 따라서 S-변수는 변화하는 것을 보여주고 있다. 그 이유는 전자 밀도의 변화로 양전자 소멸률이 다르게 나타나기 때문으로 생각된다. Johnson et al. [17]의 결과에 따르면 12 MeV 양성자 빔 조사의 경우 Si-H의 결합에서 깊이가 상대적으로 많이 증가하며, 미세 틈새 결합과 단 빈자리 결합이 많이 나타나게 되고 중성이나 음의 값을 갖는 퍼텐셜로써 주변의 전자와 소멸하는 빈도수가 증가하는 때문으로 보인다. 그리고 결합 모델 이론 [18]에 의하면, 운동량이 낮은 전자 입자로 인하여 결정 경계표면에 음 전하를 띤 층이 생길 것이다. 그러므로 결합 경계면 근처에는 전자선에 의한 음 전하를 띤 입자가 많이 형성 될 것이고, 양전자는 속도가 낮은 전자와 소멸하면서 S-변수 값이 증가 할 것이다. 이것은 단 빈자리(mono-vacncy)나 결합 다발(두개 혹은 그 이상의 빈자리 결합; di-vacncies or cluster)들을 모두 포함하여 S-변수의 크기로 나타나게 된다. 본 실험의 동시 계수 양전자 소멸 측정으로 점 결합 형태의 빈자리와 양성자 조사에서 많이 나타나는 프렌켈(Frenkel) 결합, 또는 불순물 등의 결함을 측정하였음을 알 수 있다 [3]. S. Fatima et al. [19]에 의하면 S-변수는 도핑의 종류에 의한 변화에 대하여도 측정이 가능한 것으로 알려지고 있다. Fig. 2의 S-변수 값은 p형 실리콘 보다, n형 실리콘 시료는 $1.0, 10.0 \times 10^{13}$ protons/cm²에서 양성자 조사량에 의한 결함을 생성 시키는데 더 많이 기여함을 알 수 있다. 즉 n형 실리콘은 양성자 조사량이 아주 작은 경우에도 빔 조사의 영향에 따른 결함의 변화가 쉽게 나타날 수 있다. 양성자 조사에 의한 영향

이 훨씬 크다는 것을 알 수 있다. 또한 n형 실리콘에서는 40 MeV의 양성자 빔을 조사하였을 때, 10×10^{13} protons/cm² 이하에서는 S-변수가 작게 나타나지만 그 이상에서는 3.98 MeV 양성자 빔 에너지로 조사된 것보다 크게 나타났다. 이때 SRIM의 결과에서 40 MeV의 경우는 양성자의 Bragg 피크가 9.33 mm 이므로 0.3 mm 인 n형 실리콘 시료의 깊이를 지나게 된다. 그러므로 양성자 조사의 경우에는 저에너지 양성자 조사의 경우 시료 내에 Bragg 피크가 생기므로 조사량이 적은 경우이라고 하여도 고 에너지보다 저에너지에서 더 크게 나타나게 된다. 그러나 조사량이 증가할수록 고 에너지로 인한 결합 발생하는 빈도가 훨씬 커지므로 고 에너지에서 결함의 양이 더 크게 증가한 것으로 보여 진다. p형 실리콘 시료는 양성자 빔의 영향에 상대적으로 적게 반응하기 때문에 결합 빈도수에 차이가 나는 것을 알 수 있으며, 조사량이 증가하여도 저에너지 양성자 조사의 경우가 시료 내에 Bragg 피크로 인하여 계속 같은 경향을 보이고 있다. R. Poirier [20]에 따르면 조사 에너지를 40.0 MeV, 3.98 MeV로 고정시키면 조사량에 따른 결함의 증가는 단 빈자리로 나타나는 프렌켈 결합보다는 두 빈자리나 불순물 그리고 다발 빈자리 등의 결함에 기인한 것이라고 말할 수 있다. 그 이유는 저 에너지 양성자 조사에서는 프렌켈 결합이 많이 나타나지만 조사에너지가 커질수록 다발 결합이 증가하기 때문이다.

Fig. 3은 40.0 MeV 양성자 빔 에너지에 따른 SRIM 시뮬레이션 결과를 보여주고 있는데, 실험에서 사용한 n형과 p형 실리콘의 두께는 0.3 mm과 0.5 mm이다. SRIM 은 시료에 조사되는 에너지를 가진 입자들과 그 에너지로 인하여 투과 깊이를 측정하는 시뮬레이션 도구이다. 시료에 조

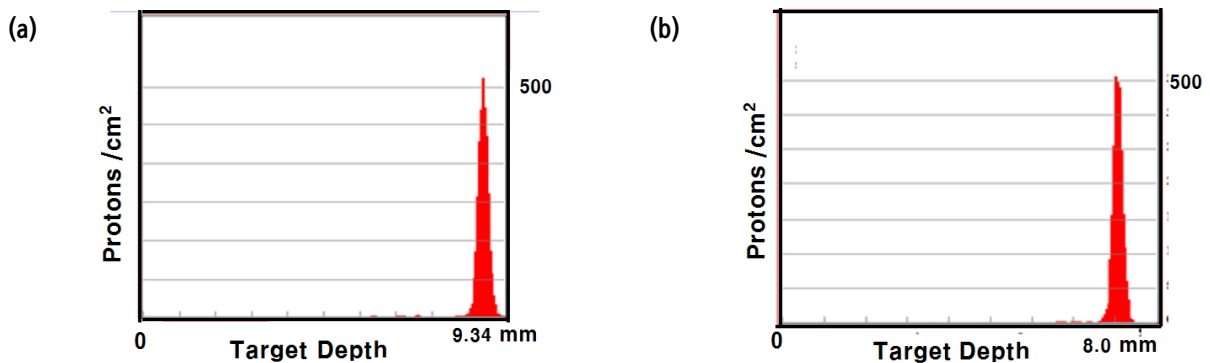


Figure 3. SRIM simulations in n, p type silicon film by 40.0 MeV proton irradiation: (a) n type (b) p type each.

사되는 양성자는 투과 깊이가 Bragg 피크로 알려져 있다. 3.98 MeV로 조사한 시뮬레이션의 결과는 투과 깊이가 n, p형 실리콘이 각각 141, 169 μm 이며, 40 MeV로 조사한 경우에는 시뮬레이션 결과는 n, p형 실리콘이 각각 9.34 mm, 8.0 mm 이므로 Bragg 피크는 시료의 밖에서 나타난다. 이때 양성자 조사에 대한 시뮬레이션 결과로써 Bragg 피크가 나타나므로 X-선 조사 [14]와 달리 에너지의 크기에 따라 일정한 투과 깊이에서 피크가 나타나는 현상을 보여주고 있다. 그 결과 조사량이 10×10^{13} protons/cm² 이하에서는 결합의 양도 양성자 조사 에너지가 40.0 MeV 보다 3.98 MeV에서 증가하는 것을 보여준다. 그리고 양전자가 열화 되는 투과 깊이가 100 μm 정도 이상이므로 양성자 빔에 의한 결합을 측정할 수 있음을 보여준다. Fig. 3에서 같은 에너지의 크기라도 n형 시료가 p형 시료보다 더 깊게 투과함을 알 수 있으며 이 결과로써 결합의 생성은 비슷한 에너지의 세기보다는 도너(donor) 불순물 시료의 종류와 양성자 빔의 조사량에 더 영향을 받는 것으로 나타난다.

IV. 결 론

본 실험에서는 동시 계수 양전자 소멸 측정을 이용한 양성자 조사 빔의 변화에 따른 결합의 크기를 연구하였다. 양성자 빔을 n, p형 실리콘에 조사시켰을 때 조사량의 변화에 따라서 S 변수 값은 일정하게 증가하였으나, n형 실리콘에서 더 많이 증가하였다. 이것은 인과 실리콘의 코어 전자의 운동량은 비슷하고, 2p 전자들로서 가 전도대 전자가 증가하기 때문으로 생각된다. n형 실리콘의 경우는 40.0 MeV, 조사량이 10×10^{13} protons/cm² 이하에서는 3.98 MeV에서 나타나는 결합의 크기가 작았으나, 그 이상에서는 커지는 것을 알 수 있었다. 양성자 빔 조사량의 크기를 변화 시키면 두 빈자리 또는 다발 결합이 증가하므로 결합 형태의 크기는 변화하게 된다. 저 에너지 양성자 빔 조사량의 증가는 두 빈자리 결합의 양을 증가시키기보다 단 빈자리 결합 [21]을 증가시키는 것으로 알려져 있다. X-선 조사의 경우와 마찬가지로 에너지의 변화에 따른 결합의 급격한 증가는 보이지 않는다.

본 연구에서 측정된 S-변수와 SRIM 시뮬레이션 결과는 시료에 조사된 양성자의 빔 에너지에 따르는 영향 보다는, 도판트 불순물의 종류와 양성자 조사량의 변화에 따라서

결함에 미치는 영향이 더 크다는 것을 보여주고 있다.

감사의 글

이 논문의 원자력 의학원 가속기 이용 기술 개발팀의 사 이클로트론 사용에 대한 도움에 감사드립니다.

References

- [1] K. D. Lee, Y. D. Kim, S. S. Dahiwal, H. Boo, S. Park, S. J. Tark, and D. Kim, *J. Korean Vac. Soc.* **21**, 29 (2012).
- [2] G. P. Willeke, *Sol. Energ. Mater. Sol. Cell* **72**, 191 (2002).
- [3] N. Y. Artyunov, M. Lsayed, R. Rause-Reberg, V. V. Emtsev, G. A. Oganessian, and V. V. Kozlovski, *J. Condes. Matter* **25**, 035801 (2013).
- [4] A. Uedono, Y. K. Cho, S. Tanigawa, and A. Ikari, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 1 (1994).
- [5] S. Dannefaer, P. Mascher, and D. Kerr, *J. Appl. Phys.* **73**, 3740 (1993).
- [6] C. He, M. Muramatsua, T. Ohdairaa, N. Oshimaa, A. Kinomuraa, R. Suzukia, and Y. Kobayashia, *Radiation Phys. and Chem.* **76**, 204 (2007).
- [7] C. Y. Lee and S. H. Bae, *J. Korean Vac. Soc.* **19**, 489 (2010).
- [8] K. H. Lee and C. Y. Lee, *J. Korean Vac. Soc.* **20**, 367 (2011).
- [9] H. E. Schaefer, R. Würschum, R. Birringer, and H. Gleiter, *Phy. Rev. B* **38**, 9545 (1988).
- [10] K. G. Lynn, J. E. Dickman, W. L. Brown, and M. F. Robbins, *Phy. Rev. B* **20**, 3566 (1978).
- [11] Z. Jin, G. Niu, J. D. Cressler, C. J. Marshall, P. W. Marshall, H. S. Kim, R. A. Reed, and D. L. Harame, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, **48**, 2244 (2001).
- [12] R. Krause-Rehberg and H. S. Leipner, *Positron Annihilation in Semiconductors*, (Springer, Heidel-

- berg, 1999).
- [13] L. S. Vlasenko, M. P. Vlasenko, V. A. Kozlov, V. V. Kozlovskii, *Semiconductors* **33**, 1059 (1999).
- [14] J. G. Shin, C. Y. Lee, S. H. Bae, J. H. Kim, and J. H. Kwon, *Kor. J. Mater. Res.* **18**, 427 (2008).
- [15] J. J. Kelly and R. M. Lambrecht, *Phys. Lett. A* **60**, 475 (1977).
- [16] F. Hori, T. Chijiwa, R. Oshima, and T. Hisamatsu, *Physica B* **273**, 480 (1999).
- [17] N. M. Johnson, F. A. Ponce, R. A. Street, and R. J. Nemanich, *Phys. Rev. B* **35**, 4166 (1987).
- [18] T. K. Gupta and W. G. Carlson, *J. Mater. Sci.* **20**, 3487 (1987).
- [19] S. Fatima, B. G. Svensson, and C. Jagadish, *Conference on Optoelectronic and Micro-electronic Materials And Devices Proceedings*, 154 (1996).
- [20] R. Poirier, V. Avalos, S. Dannefaer, F. Schiettekatte, and S. Roorda, *Nuclear Instr. Meth. Bin Phys. Res.* **206**, 85 (2003).
- [21] S. Vayrynen, *Irradiation of Silicon Particle Detectors with MeV - Protons*, (University of Helsinki, Helsinki, 2010).

Investigation of Various Radiation Proton Energy Effect on n, p Type Silicon by Positron Annihilation Method

Chong Yong Lee*

Department of Physics, Hannam University, Daejeon 306-791

(Received October 30, 2013, Revised November 6, 2013, Accepted November 6, 2013)

The n-type and p-type silicon samples were exposed by 40.0, 3.98 MeV proton beams ranging between 0 to 20.0×10^{13} protons/cm². Coincidence Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy (CDBPAS) were applied to study of defect characteristics of p type and n type silicon samples. In this investigation the numerical analysis of the spectra was employed to the determination of the shape parameter, S, defined as the ratio between the amount of counts in a central portion of the gamma spectrum and the total counts of whole gamma spectrum. The S-parameter values strongly depend on the irradiated proton beam that indicated the defects generate more, rather than the energy intensity. 40 MeV irradiated proton beam in the n-type silicon at 20.0×10^{13} protons/cm² was larger defects than 3.98 MeV irradiated proton beam. It was analysis between the proton irradiation beams and the proton intensities of the irradiation. Because of the Bragg peak, SRIM results shows mainly in a certain depth of the sample to form the defect by the proton irradiation, rather than the defects to appear for the entire sample.

Keywords : Proton irradiation; S-parameter; CDBPAS; n, p type Si; Defect characteristics

* [E-mail] cylee@mail.hannam.ac.kr