

양전자 소멸 측정에 의한 n, p형 실리콘 구조 특성

이종용*

한남대학교 물리학과, 대전 306-791

(2012년 7월 13일 받음, 2012년 8월 20일 수정, 2012년 8월 29일 확정)

수명 측정법과 동시 계수 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법으로 p형과 n형 실리콘 시료에 3.98 MeV 에너지를 가진 $0.0 \sim 20.0 \times 10^{13}$ protons/cm² 양성자 빔 조사에 의한 결함을 측정하여 실리콘 결함 특성에 대하여 조사하였다. 양전자와 전자의 쌍 소멸로 발생하는 감마선 스펙트럼의 전자 밀도 에너지를 수리적으로 해석 방법인 S-변수와 열린 부피 결함에 대한 측정법으로서 양전자 수명 τ_1 과 τ_2 , 이에 따른 밀도 I_1 과 I_2 를 사용하여, 시료의 구조 변화를 측정하였다. 본 연구에서 측정된 S-변수와 양전자 수명은 시료에 조사된 양성자 조사량의 변화에 따라 결함이 증가하였으며, 양전자 수명 측정과 같은 경향을 보여준다. SRIM의 결과로써, 양성자 조사 에너지에 따른 Bragg 피크 때문에 양성자는 시료의 특정 깊이에 주로 결함을 형성하여 시료 전체에는 결함으로 잘 나타나지 않기 때문이다. 빔의 조사량에 따른 결함의 영향이 더 큰 것으로 나타났다.

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

I. 서 론

친환경적 고효율의 에너지 재료인 태양전지 [1,2]나 고 집적 성능을 위한 반도체 소자의 재료로 결정 실리콘 웨이퍼가 사용된다. 그리고 반도체 소자의 고속화, 고집적화 및 다기능화가 매우 빠르게 진행되고 있다. 특히 소비자의 욕구에 의하여 고집적도는 오늘날 꾸준히 향상되고 있으며 또한 실리콘 시료는 고 효율화 된 태양전지를 위한 광 생성에 의한 전자 및 정공들의 쌍을 많이 만들 수 있는 것과 빛을 많이 받기 위한 표면 전극, 반사 그리고 열손실 등과 수용 효율을 늘리기 위하여 손실을 줄이는 방법에 대한 연구를 하고 있다 [3,4]. 반도체의 경우는 많은 양의 저장 메모리를 지닌 미세형상으로 이루어진 경박 단소화의 양질의 조정에 대한 고려가 필요하다. 일반적으로 반도체 소자의 제작과정에서 증착, 식각 등 물리, 화학적인 변화를 반복함으로써, 제조 과정에서 발생하는 시편의 결함을 고려할 때 결함이 필수 불가결하다고 할지라도 실리콘 시료에 대하여 특히 p형과, n형인 불순물 실리콘 웨이퍼의 사용량의 증가 추세에 따라서 불순물 실리콘 웨이퍼의 신뢰도를 높이기 위한 결함에 대한 특성 연구가 반드시 필요하다.

양전자 소멸 측정법은 금속이나 반도체의 결함에 대한 특성이나 폐쇄 기공(closed pores) 결함 측정 [5]과 오픈 볼륨

결함 측정에도 이용되고 있으며 [6-8], 물질의 전자 구조, 결함 측정, 전자의 밀도분포 및 운동량 분포 등 핵과 고체 물리에서 사용되는 방법이다. 특히 전자의 반입자인 양전자는 전자와의 상호 작용을 통한 재료에서 원자 단위의 크기에 대한 결함 특성을 측정하는 수단으로 연구되어 왔다. 측정법이 용이하고 측정하는 경우에도 시료가 보존되는 방법의 하나로 시료에 전혀 영향을 주지 않으며, 나노미터 정도의 결함에 대하여 측정 할 수 있는 장점을 가지고 있다.

양전자 소멸 수명 측정법은 양전자가 p형, n형 결정 실리콘에서 연관된 열린 부피로 인한 결함들에 의하여 포획되는 이유와 결정 상태는 피하게 되고 정공에서 혹은 정공의 경계에서 포지트로늄을 형성하기 때문에 결함에 대한 중요한 것을 연구할 수 있게 한다. 결정에서는 대부분 짧은 수명을 가지는 파라포지트로늄(p-Ps)을 형성하게 된다. 포획된 양전자 수명은 결함 같은 정공에서는 정공의 표면에 대한 조건과 전자 밀도의 감소에 의하여 길어지는데 이것은 열린 부피에 의존하는 결함에 기인한다.

운동량 분포를 사용하는 도플러 넓어짐 소멸 측정법은 운동량을 가진 전자와 양전자의 쌍 소멸에 의하여 발생하는 것을 이용한 것으로써 양전자가 전자와 소멸 할 때 총 에너지가 $2 mc^2 - E_b$ 인 두 개의 감마선이 서로 반대 방향으로 방출하는 것이다. 이때 전자의 운동방향에 따라 한 광자에

* [전자우편] cylee@mail.hannam.ac.kr

너지는 $p_L c/2$ 가 늘어나고, 반면에 다른 광자의 에너지는 같은 양만큼의 에너지가 줄어든다. 이 경우 운동량 p_L 은 전자와 양전자 소멸 시 광자 방사가 일어나는 세로 방향의 성분이다. 사용되는 검출기는 광자들이 임의의 방향으로 방사하는 경우에도 청색 편이와 적색 편이로 이동된 광자 모두의 측정을 할 수 있다. 그러므로 동시 계수 도플러 넓어짐 측정 방법(Coincidence Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy, CDBPAS) [9]이 개발되었다. 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 비교할 수 있게 되었다. 코아 전자들의 에너지 분포는 각 원자들의 고유한 화학적 성분에 대한 특성으로 나타나고 주변의 화학적 영향을 많이 받지 않는 것으로 알려져 있다. 그러므로 동시 계수 측정법으로 얻은 높은 에너지 분포에서의 코아 전자와 양전자 소멸은 물질의 화학적 성분에 대한 정보를 얻을 수 있다.

본 연구에서는 조사된 양성자에 의하여 발생하는 p형과, n형 불순물 단결정 실리콘 시료의 결함에 대한 특성을 조사하고자 한다. 우주 개발의 관심에 따라서 입사되는 우주 방사선의 90% 정도인 양성자 조사에 따르는 실리콘 시료의 효율 저하에 대하여 양전자 수명 측정과 동시계수 도플러 넓어짐 양전자 소멸법(CDB)에 의한 결함의 양에 대한 분석을 사용하였다. 우주 방사선의 양성자 환경은 우주선에 사용되는 실리콘 반도체의 특성에 상당히 높은 영향을 줄 수 있다 [10,11]. 우주 방사선의 에너지 및 조사량에 대하여 실험실에서 양성자 조사량의 변화에 따른 시료 결함의 특성을 분석함으로써 우주 방사선에 의한 실리콘 소자의 영향에 대한 연구를 위한 실험을 목적으로 수행하였다.

II. 실험

단결정(001) 4" p형과 2" n형 Cz법으로 성장된 실리콘

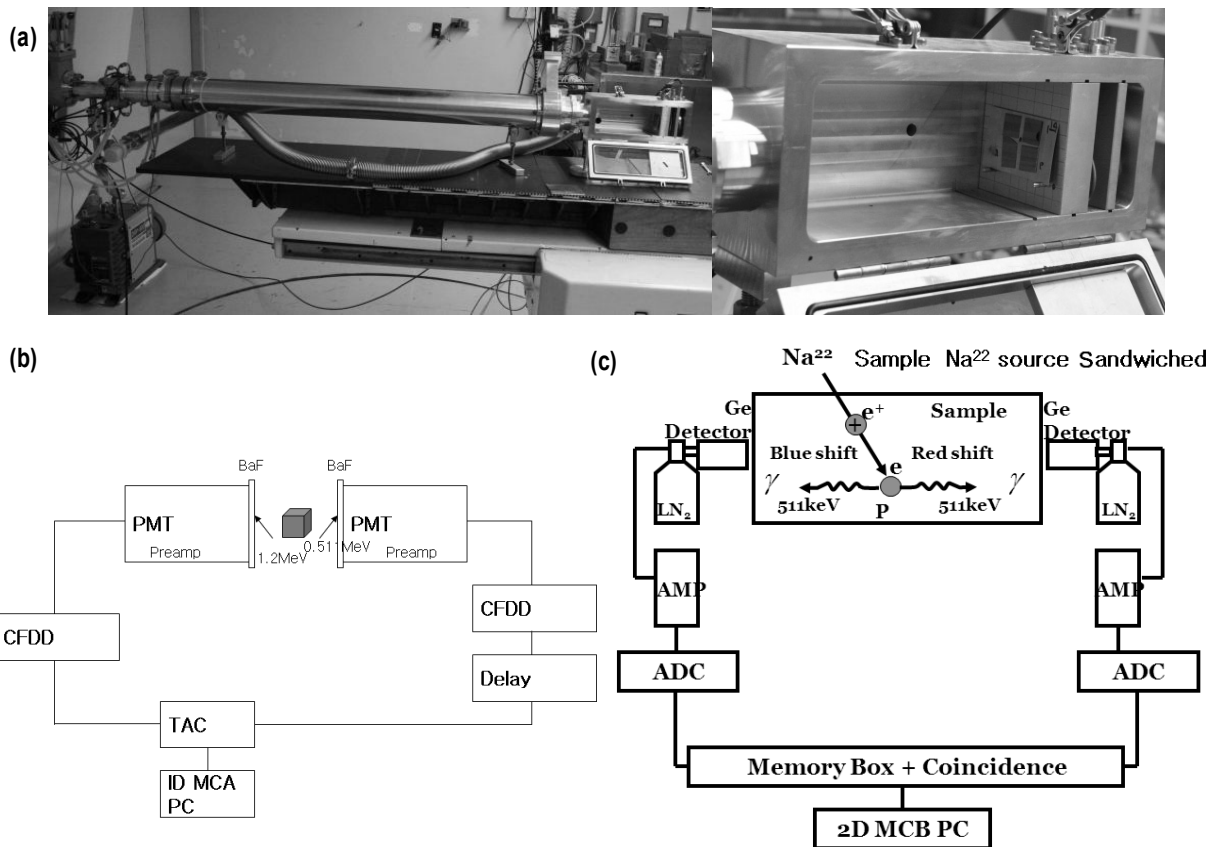


Figure 1. (a) The proton degrader path chamber, (b) schematic diagram of lifetime positron annihilation setup and (c) schematic diagram of coincidence Doppler Broadening Positron Annihilation setup.

시료를 각각 $20 \times 20 \times 0.5$ mm, $15 \times 15 \times 0.3$ mm로 제작하였으며, 양성자 빔 조사를 위하여 원자력의학원의 싸이클로트론 MC 50 가속기를 이용하였다. 빔의 세기는 초기 값을 20 MeV, $5 \mu\text{A}$ 로 사용하였고, 에너지 감손을 위하여 두께 1.4 ± 0.58 mm, 진공 거리는 180 cm로 놓았다. 뒷부분의 산란 에너지를 무시하고자 시료 뒤에 알루미늄의 얇은 막을 사용하였으며, 본 실험에서는 3% 이하로 맞추었다. 조사하는 빔의 반치 폭은 12 mm이고, 시료에 조사되는 양성자 빔의 에너지는 3.8 MeV, 21 nA이며, 빔의 크기는 지름이 약 20 mm의 크기로 조절하였다. 시료에 양성자 조사량을 변화시켰으며, 각각 0, 1.0, 10.0, $20.0 \times 10^{13}/\text{cm}^2$ 로 하였다. Fig. 1(a)는 에너지 감쇄용 양성자 조사 실험 장치를 보여 주고 있으며, p, n형 실리콘 시료는 양성자 조사량의 변화에 따른 양성자 빔 에너지에 의한 결함 정도를 알아보고자 하였다.

동시 계수 양전자 소멸 측정과 양전자 수명 측정을 하기 위하여 양전자 소스는 활성화 면적의 직경이 9.53 mm이고, $5 \mu\text{m}$ 께의 니켈 foil로 양면을 감싸고 있는 $25 \mu\text{Ci}$ ^{22}Na 소스를 사용하였다. Fig. 1(b)는 양전자 수명 측정 실험 방법이며 Fast-Fast Coincidence 방법 [12]을 사용하였고, 상온에서 가우시안 해상도는 FWHM이 170 ps이었으며, 감마선은 Hamamatsu 3378 PMT로 측정하였다. Ortec사의 TAC와 CFDD를 사용하였다. 양전자의 열적 투과는 시료 내부에 들어가서 $100 \mu\text{m}$ 보다 깊게 투과하므로 본 실험에서 측정하려는 시료의 경우 두께가 $300 \mu\text{m}$ 이상이므로써 두께의 효과는 무시할 수 있다. Fig. 1(c)는 동시 계수 양전자 소

멸 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 p형과 n형 실리콘 시료 실험에는 100 MeV 이상 큰 에너지의 양성자 빔 조사 시에는 다발형 결함이 증가하는데, 이 경우에는 고립된 음전하 형태의 단 정공들의 결함의 모임이나 두 정공들의 결함의 모임으로 나타난다고 알려져 있으므로 [13] 양전자가 정공 결함근처에서 주변의 최외각 전자와 소멸할 경우 S-변수 값은 현저히 증가할 것이다. 그러나 시료가 단 결정 입자형태로서 3.98 MeV의 저 에너지 양성자 조사의 경우에 점 결함 형태로 나타나기 때문에 앞에서 나타나는 결함처럼 에너지의 크기에 따라서 다르게 구별되지는 않는다. Fig. 2는 양성자 빔의 에너지를 3.98 MeV로 고정시키고 p, n형 실리콘 시료에 조사하는 양성자 빔을 0, 1.0, 10.0, 20.0×10^{13} protons/cm²으로 변화시키면서 측

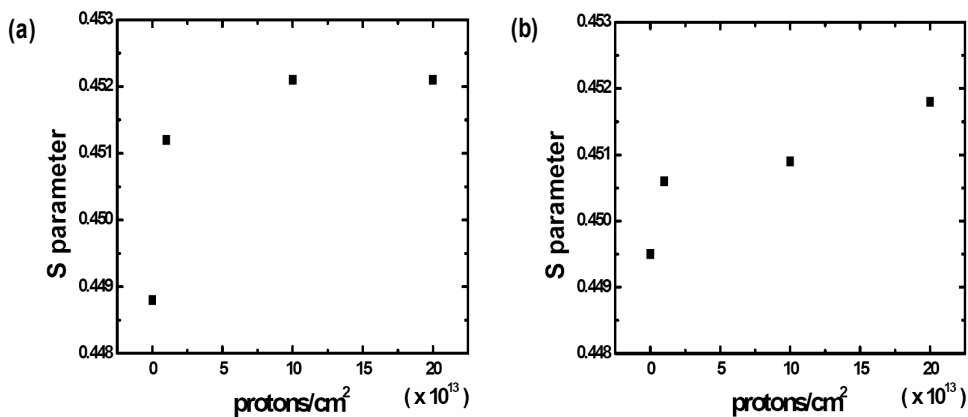


Figure 2. S parameters with CDBPAS in (a) n type, (b) p type silicon film vs. various proton irradiation beam.

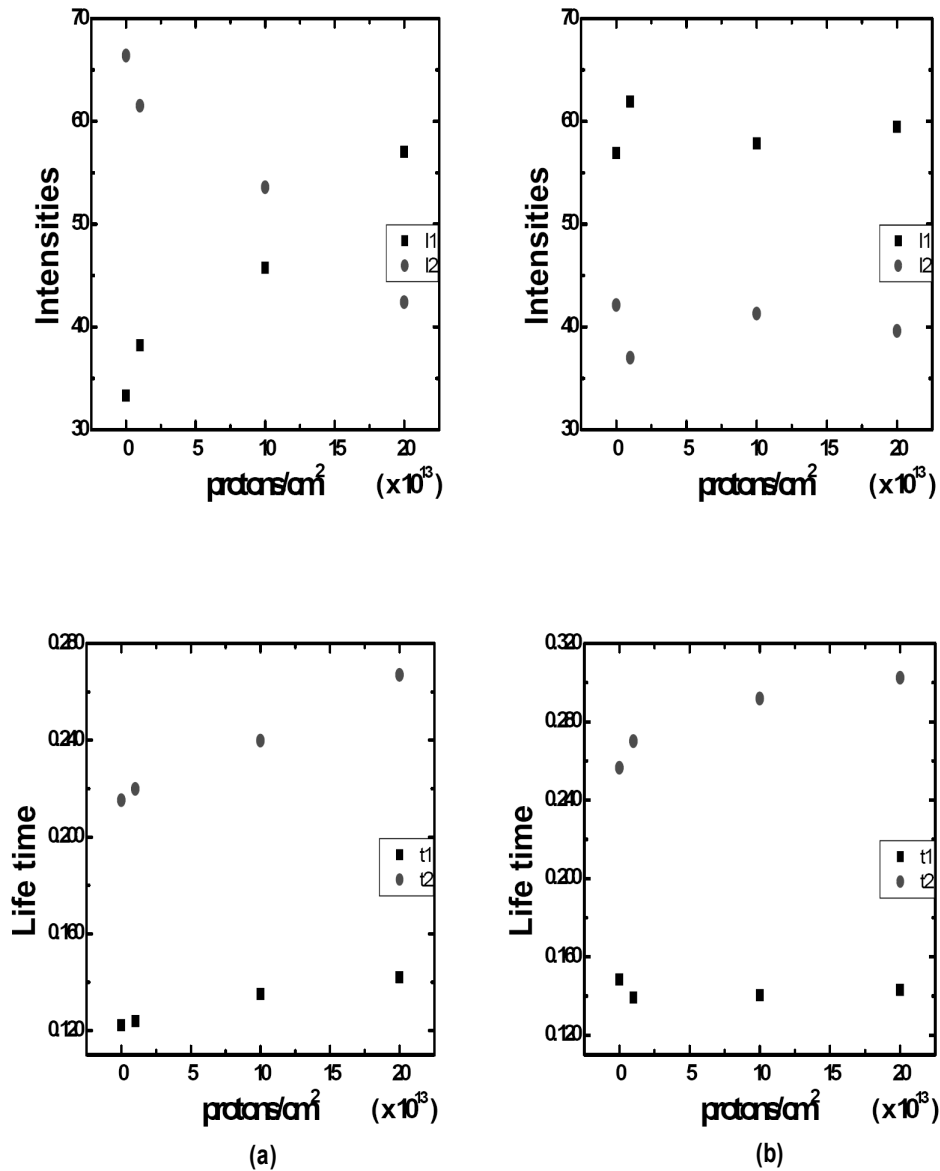


Figure 3. lifetime and intensities components in (a) p type (b) n type silicon film vs. various proton irradiation beam.

정한 S 변수의 값이다. 에너지의 세기를 변화시키면서, 조사량을 고정 시켰을 때는 조사에너지에 따른 S 변수 값에서의 변화가 거의 없음을 보여준다. 기 발표된 [14] BaSrFBrI:Eu 영상 판의 경우에 대하여도 S 변수 값이 조사에너지에 비례하여 큰 변화가 없었다. 그러나 조사량의 변화에 따라서는 차이가 나타남을 알 수 있다.

Fig. 2(a), (b)에서 p형과 n형 실리콘 시료의 경우에 조사량의 크기에 따라 모두 결함의 양이 증가하며 S-변수 값이 증가하는 것으로 나타난다. Kelly와 Lambrecht [15]에

의하면 p, n형 실리콘에 조사를 하여도 도플러 넓어짐 소멸 측정의 S-변수 값이 큰 변화가 없다고 했지만 동시 계수 양전자 소멸로 측정한 본 실험에서는 차이를 보여주고 있다. 그 이유는 Johnson 등 [16]의 결과에 따르면 양성자 빔 조사의 경우 Si-H의 결합의 깊이가 상대적으로 많이 증가하며, 미세 틈새 결합과 단 정공 결합이 많이 나타나게 되고 중성이나 음의 값을 갖는 퍼텐셜로써 주변의 전자와 소멸하는 빈도수가 증가하는 때문으로 생각된다. 그리고 Gupta와 Carlson [17], 결합 모델 이론에 의하면, 운동량

이 낮은 전자 입자는 결정 경계표면에 음 전하를 띤 층이 생길 것이다. 결합 경계면 근처에는 전자선에 의한 음 전하를 띤 입자가 많이 형성될 것이고, 양전자는 속도가 낮은 전자와 소멸하면서 S-변수 값이 증가할 것이다. 이것은 단 정공이나 결합 다발(두개 혹은 그 이상의 정공 결합)들을 모두 포함하여 S-변수의 크기로 나타나게 된다. 본 실험에서 S-변수의 각 표준 편차는 약간 차이가 있지만 일반적으로 측정된 값은 $\sim 10^{-4}$ 이다. 본 실험의 동시 계수 양전자 소멸 측정으로 점 결합 형태의 정공, 갈라짐에 따른 틈새 또는 불순물 등의 결합을 알 수 있다. Fatima 등 [18]에 의하면 S-변수는 도핑의 종류에 의한 변화에 대하여 측정이 가능한 것으로 알려지고 있다. Fig. 2의 S-변수 값은 p형 실리콘보다, n형 실리콘 시료는 $1.0, 10.0 \times 10^{13}$ protons/cm²에서 양성자 조사량에 의한 결합을 생성시키는데 더 많이 기여함을 알 수 있다. 즉 n형 실리콘은 양성자 조사량이 아주 작은 경우에도 빔 조사의 영향에 따른 결합의 변화가 쉽게 나타날 수 있다.

Fig. 3(a), (b)는 양전자 수명 측정에 의한 결과를 나타내고 있다. 양성자 빔의 조사에 의하여 발생할 수 있는 프렌켈 쌍의 결합 등에 의한 p형과 n형 실리콘의 경우 [19] 조사량의 크기에 따라서 p형 실리콘의 양전자 수명 τ_2 가 220~260 ps, n형 실리콘의 τ_2 가 270~300 ps로써, 조사량의 증가에 따라 τ_2 모두 증가하고 있으며, p형 실리콘에서 I_2 는 조사량에 따라 감소하지만 n형 실리콘에서는 큰 변화를 보이지 않는다. p형 실리콘에서는 n형 실리콘 전자

밀도가 다르기 때문에 양성자(H⁺) 조사에 의한 영향을 크게 받아서 I_2 가 더 크게 나타난다. 전자빔 조사에서와 같이 [19] n형 실리콘의 양전자 수명 τ_2 이 p형 실리콘의 τ_2 보다 크게 나타나고 있다. 이것은 양전자 수명 τ_2 가 두 정공 결합을 만들기 때문에 [20] 전자 밀도 에너지의 세기를 측정하는 S-변수의 크기가 다르게 나타나는 것과 일치한다. p형 실리콘에서 τ_1 은 조사량에 따라서 증가하지만 n형 실리콘에서는 크게 변화하지 않는 경향을 보이고 있다. 또한 I_1 의 경우는 p형 실리콘에서 조사량에 따라 증가 하지만 n형 실리콘에서는 큰 차이를 보이지 않는다. n형 실리콘의 양전자 수명 τ_2 가 280ps인 것은 Poirier 등 [20]에 따르면 두 정공 결합에 기인한 것이라고 말할 수 있다. 또한 p형 실리콘에서 I_2 가 $66 \pm 2\%$ 에서 $42 \pm 1.6\%$ 로 감소한 것은 두 정공 결합 형태가 양성자 조사에 따라 감소하였으며, 반면에 양전자 수명이 짧은 τ_1 에서 I_1 은 단 정공결합 혹은 파라포지트로늄이 증가하게 되었음을 말하게 된다 [21].

Fig. 4(a), (b)는 양성자 빔 에너지에 따른 SRIM 시뮬레이션 결과를 보여주고 있는데, 실험에서 사용한 p형과 n형 실리콘의 두께는 300 μ m 이상이다. 3.98 MeV를 조사한 시뮬레이션의 결과는 투과 깊이가 n, p형 실리콘이 각각 141, 169 μ m이며, 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. 그리고 양전자가 열화 되는 투과 깊이가 100 μ m 정도이므로 양성자 빔에 의한 결합

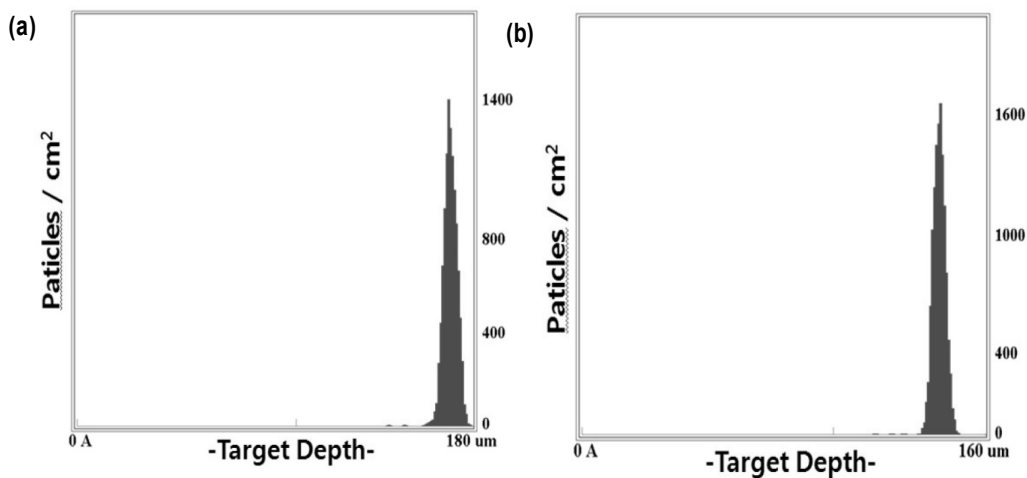


Figure 4. SRIM simulations in n, p type silicon film by 3.98 MeV proton irradiation: (a) n type (b) p type each.

을 측정할 수 있음을 보여준다. Fig. 4에서 같은 에너지의 크기라도 n형 시료가 p형 시료보다 더 깊이 투과함을 알 수 있으며 이 결과로써 결함의 생성은 에너지의 세기보다는 양성자 빔의 조사량에 더 영향을 받는 것으로 나타난다.

IV. 결 론

본 실험에서는 동시 계수 양전자 소멸 측정과 양전자 수명 측정을 이용한 양성자 조사 빔의 변화에 따른 결함의 크기를 연구하였다. 양성자 빔을 p, n형 실리콘에 조사시켰을 때 S 변수 값은 같이 증가하였으나, n형 실리콘에서 더 많이 증가하였으며, 이것은 인과 실리콘의 코어 전자의 운동량은 비슷하고, 2p 전자들로서 가 전대 전자가 증가하기 때문으로 생각된다. 수명측정 실험으로부터 양성자 빔 조사량의 크기를 변화 시키면 두 공공 또는 다발 결함이 증가하므로 결함 형태의 크기는 변화하게 된다. 그러나 양성자 빔 조사량의 증가는 두 공공 결함의 양을 증가시키기 보다는 단 공공 결함을 증가시키는 것으로 나타났다. 그러므로 p형 실리콘에서 τ_2 의 다 공공 결함 형태의 크기는 증가하였으나 I_2 의 감소로 나타났다. 반면에 p형 실리콘에서 작은 양전자 수명의 변화는 없지만 I_1 의 증가로 나타났다. n형 실리콘은 τ_2 결함의 크기는 변화하지만 I_2 는 서서히 증가함을 보여준다. 그리고 n형 실리콘은 양전자 수명 τ_1 에 기여하는 I_1 이 더 크게 나타났음을 보여준다. 이 경우는 단 공공 결함의 양이 다 공공 결함보다 더 큰 영향을 주는 것임을 보여준다. 또한 X-선 조사의 경우와 같이 에너지의 변화에 따른 결함의 증가는 보이지 않는다.

본 연구에서 측정된 SRIM 시뮬레이션 결과와 S-변수와 양전자 수명은 시료에 조사된 양성자의 빔 에너지에 따라 변하는 것 보다는, 양성자 조사량의 변화에 따라 결함에 대한 변화가 생겼음을 보여주고 있다.

감사의 글

이 논문은 2012년도 한남대학교 학술 연구비 지원에 의해 수행하였습니다. 또한 원자력 의학원 가속기 이용 기술 개발팀의 사이클로트론 사용에 대한 도움을 감사드립니다.

참고문헌

- [1] Teresa Oh, J. Korean Vacuum Soc. **20**, 189 (2011).
- [2] G. P. Willeke, Sol. Energ. Mater. Sol. Cell. **72**, 191 (2002).
- [3] B. J. Kang, S. Park, S. H. Lee, H. Kim, B. G. Shin, S. Kwon, J. W. Byeon, S. Yoon, and D. Kim, Korean J. Mater. Res. **20**, 617 (2010).
- [4] K. D. Lee, Y. D. Kim, S. S. Dahiwal, H. Boo, S. Park, S. J. Tark, and D. Kim, J. Korean Vacuum Soc. **21**, 29 (2012).
- [5] Chunqing He, M. Muramatsua, T. Ohdairaa, N. Oshimaa, A. Kinomuraa, R. Suzukia, and Y. Kobayashia, Radiation Phys. and Chem. **76**, 204 (2007).
- [6] I. Y. Dekhtyar, D. A. Levina, and V. S. Mikhalekov, Sov. Phys. Dokl. **9**, 492 (1964).
- [7] C. Y. Lee, W. N. Kang, Y. Nagai, K. Inoue, and M. Hasegawa, J. Korean Vacuum Soc. **17**, 160 (2008).
- [8] J. H. Kim, Y. Nagai, and C. Y. Lee, J. Korean Vacuum Soc. **18**, 447 (2009).
- [9] K. G. Lynn, J. E. Dickman, W. L. Brown, and M. F. Robbins, Phy. Rev. B **20**, 3566 (1978).
- [10] S. Dannefaer, P. Mascher, and D. Kerr, J. Appl. Phys. **73**, 3740 (1993).
- [11] Z. Jin, G. Niu, J. D. Cressler, C. J. Marshall, P. W. Marshall, H. S. Kim, R. A. Reed, and D. L. Harame, Nuclear Science, IEEE Transactions **48**, 2244 (2001).
- [12] R. Krause-Rehberg and H. S. Leipner, *Positron Annihilation in Semiconductors* (Springer, Heidelberg, 1999).
- [13] L. S. Vlasenko, M. P. Vlasenko, V. A. Kozlov, and V. V. Kozlovskii, Semiconductors **33**, 1059 (1999).
- [14] J. G. Shin, C. Y. Lee, S. H. Bae, J. H. Kim, and J. H. Kwon, Korean J. Mater. Res. **18**, 427 (2008).
- [15] J. J. Kelly and R. M. Lambrecht, Phys. Lett. A **60**, 475 (1977).
- [16] N. M. Johnson, F. A. Ponce, R. A. Street, and R. J. Nemanich, Phys. Rev. B **35**, 4166 (1987).

- [17] T. K. Gupta and W. G. Carlson, *J. Mater. Sci.* **20**, 3487 (1987).
- [18] S. Fatima, B. G. Svensson, and C. Jagadish, *Opto-electronic and Micro-electronic Materials And Devices Proceedings, Conference on 154* (1996).
- [19] A. Polity, F. Borner, S. Huth, S. Eichler, and R. Krause-Rehberg, *Phys. Rev. B* **58**, 10363 (1998).
- [20] R. Poirier, V. Avalos, S. Dannefaer, F. Schiettekatte, and S. Roorda, *Nuclear Instr. Meth. Bin Phys. Res.* **206**, 85 (2003).
- [21] L. Henry, M. -F. Barthe, C. Corbel, P. Desgardin, and G. Blondiaux, *Phys. Rev. B* **67**, 11520 (2003).

Investigation of Proton Irradiated Effect on n, p type Silicon by Positron Annihilation Method

C. Y. Lee*

Department of Physics, Hannam University, Daejon 306-791

(Received July 13, 2012, Revised August 20, 2012, Accepted August 29, 2012)

It is described that the proton beam induced micro-size defects and electronic deep levels in n or p type single crystal silicon. Positron lifetime and Coincidence Doppler Broadening Positron Annihilation Spectroscopy were applied to study of characteristics of p type and n type silicon samples. In this investigation the numerical analysis of the Doppler 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 spectrum and the total counts of whole spectrum. The samples were exposed by 3.98 MeV proton beams ranging between 0 to $\sim 10^{14}$ particles. The S-parameter values strongly depend on the irradiated proton beam, that indicated the defects generate more. Positron lifetime shows that positrons trapped in vacancies and lifetime τ_2 increased according to proton irradiation.

Keywords : Proton beam, S-parameter, Positron lifetime, Coincidence doppler broadening positron annihilation spectroscopy, n, p type Si

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