半 導 体 検 出 器 の 放 射 線 損 傷†

道 家 忠 義

早稲田大学理工学研究所

東京都新宿区喜久井町17

半導体検出器はその高分解能のゆえに各方面で広く使用されているが、ロケットや人工衛星による宇宙放射線の観測、または核反応実験の場合などでしばしば多量の放射線を受け、検出器としての特性を著しくそこなうことがある。そのため、この種の実験を行なうにあたって、その放射線環境下における検出器の性能劣化の模様やその有効寿命等についての詳しい情報をあらかじめ知っておく必要がある。このような実用的要求から、半導体検出器の放射線損傷に関する研究はその出現当初から行なわれ、とくに1960年代前半における宇宙開発の進展時に大いに栄えた。そのころのシリコン検出器を中心とした研究の模様は1964年のG. Dearnaleyの総合報告に詳しい¹⁾。その後、この方面の研究は一時やや下火となったが、1960年代の末ごろから新たに実用化した γ 線検出用のリチウム・ドリフト型ゲルマニウム検出器の核反応実験での使用や、放射能発電器を備えた遠距離飛行を目的とする宇宙船（たとえば木星観測を目的とするPioneers F, Gや1976年から1979年に予定されている惑星圏外飛行用宇宙船）搭載用機器としての半導体検出器の使用に関連して、その放射線損傷の問題が再び注目を集めるようになった^{2), 3)}。このようにこの種の研究の原動力はむしろ実用面にあり、放射線損傷の機構やそれらと検出器特性との間の関係等、原理的な面ではまだ不明なところが多い。しかしここでは、できるだけ放射線損傷の機構にも触れながら、1960年代後半から現在に至るまでの、半導体検出器の放射線損傷研究の模様についてまとめてみた。

1. シリコンおよびゲルマニウムの放射線損傷

シリコンやゲルマニウムのような半導体結晶は放射線照射により、結晶格子内の原子が変位し、一対の空孔—格子間原子を作り出す。このような空孔—格子間原子の対はFrenkel欠陥とよばれ、半導体結晶における放射線損傷の基礎をなすものである。このほか、

熱中性子の捕獲に伴って起こる同位元素の転換により観測可能な変化が生ずる場合もあるが、シリコン、ゲルマニウムにおける放射線損傷の大部分はFrenkel欠陥に起因すると考えてよい。もちろん、Frenkel欠陥が直接半導体検出器の特性に影響を与えるわけではなく、そのほとんどが、作り出された空孔と結晶内にあるかじめ含まれている不純物原子との対や、空孔どうしの対ないしはそのかたまりによって作られた不純物準位によって変化する。半導体検出器の放射線損傷を考える場合、生成される不純物準位の問題とともに、それら準位をきめる欠陥の密度や空間分布が検出器の特性に大きく影響する。前にも述べたごとく変位原子によって生成されるFrenkel欠陥がそのまま問題となる不純物準位を与える欠陥を形成することは少ないが、その密度や空間分布は、問題となる欠陥のそれに十分対応するものと考えられる。これらはある程度計算から推定でき、各放射線によって起こる欠陥の種類や空間分布を判定する場合の基礎となるばかりでなく、そのような計算から放射線損傷におけるそれぞれの放射線の特徴を理解することができる。ここでは、以上のような見地から、まず電子線、 γ 線、陽子線、アルファ線、核分裂片、中性子線等それぞれの放射線損傷に対する特徴を述べ、ついで生成された格子欠陥の種類やその性格について述べよう。

1・1 照射放射線の種類による損傷の特徴

i) 電子および γ 線

電子線の照射により生成される変位原子は、弾性散乱におけるいわゆる“head on collision”によるものである。電子の質量は衝突核の質量に比しきわめて小さいため、かかる弾性散乱によって変位原子を生成するためにはかなりのエネルギーを必要とする。たとえ

† Radiation Damage of Semiconductor Detectors. Tadayoshi DOKE: Science and Engineering Laboratory, Waseda University, Kikui-chō-17, Shinjuku-ku, Tokyo.

ばシリコンやゲルマニウムの結晶で、正規の格子点から原子を1個たたきだすのに必要な最小のエネルギーは25eV程度で、これからFrenkel欠陥生成のための電子エネルギーのしきい値は、それぞれシリコンに対しては250 keV、ゲルマニウムに対しては600 keVと推定される。このしきい値以上で、生成変位原子数(Frenkel欠陥数)はエネルギーの増加とともに初めは急激に増加するが、相対論的速度領域にはいるとその増加の割合はしだいに低下していく。たとえば5MeVの電子が完全にシリコン内で停止してしまうまでにわずか数個のFrenkel欠陥を生成するにすぎない。したがって長い飛程をもつ高エネルギー電子線によって生成される欠陥は比較的一様な空間分布を示すはずである。

一方 γ 線ではもっとも重要なエネルギー吸収過程としてコンプトン散乱の過程を考え、その反跳電子によって変位原子が生成されるものとするれば、Frenkel欠陥生成の γ 線のエネルギーしきい値は、シリコンおよびゲルマニウムに対しそれぞれ400 keVおよび750 keVということになる。いずれの場合も1 MeVの γ 線が1 cmあたり1個のFrenkel欠陥を生成する確率は 10^{-3} の程度できわめて低く、その分布は他の放射線の場合に比してもっとも一様性に富む。

ii) 陽子および α 線

陽子や α 線はエネルギーの高いうちは電離作用によってそのエネルギーのほとんどを失うが、飛程の末端において初めてシリコンやゲルマニウムの核との弾性散乱によるエネルギー損失が重要になってくる。このさい生成される反跳核によりまたいくつかの変位原子が生まれるがすでにエネルギーがかなり低下しているために、のちに述べる中性子や核分裂片の場合ほど局所的な損傷を与えることにはならない。図1はシリコン結晶における10MeV陽子と40MeV α 粒子により生成されるFrenkel欠陥の数の飛跡に沿った分布を示す。すなわち、1本の40MeV α 粒子の飛跡に沿って約400個のFrenkel欠陥が作られることになる。また、この場合欠陥のかかなりの部分が飛程の末端に集中するという特徴をもつ。ゲルマニウム結晶の場合に関してもほぼ同様のことがいえる。

iii) 核分裂片

核分裂片のような重荷電粒子の場合は陽子や α 粒子の場合と半導体結晶に与える影響はかなり異なる。図2は核分裂片の残留飛程(図ではエネルギーの減少過程で示されている)に対する電離作用に基づくエネルギー損失と核弾性散乱によるエネルギー損失とを示

図1 シリコンにおけるアルファ粒子および陽子の通路に沿ったFrenkel欠陥の分布

図2 軽い核分裂片のエネルギー損失分布、E: 電離作用によるエネルギー損失、N: 核弾性散乱によるエネルギー損失

す。図からわかるように電離作用によるエネルギー損失は飛程の末端にいくほど減少するが平均の値は α 粒子の場合の十数倍にも達し、局所的過熱または裸イオンどうしの反発作用により粒子の通路に沿ってかなりの格子欠陥が作られる。一方核弾性散乱によるエネルギー損失はこれと異なり飛程の末端にいくにしたがっ

てしだいに増加し、多数の反跳原子の放出によりいわゆる“displacement spike”の状態が作らる。このように核分裂片による格子欠陥の生成機構は他に比して複雑であり、定量的な推定はほとんど不可能に近い。したがってここでは格子欠陥生成の定性的話に止めておく。

iv) 中性子

中性子線照射の場合、Frenkel 欠陥生成のためのエネルギーしきい値はシリコンに対して $\sim 200\text{eV}$ 、ゲルマニウムに対して $\sim 500\text{eV}$ とかなり低いので、数MeV程度のエネルギーをもつ高速中性子線により生成される Frenkel 欠陥数の推定にはこれらの存在は無視できる。この程度のエネルギー領域におけるシリコン、ゲルマニウムの原子核に対する弾性散乱の衝突断面積は、数バースン程度でエネルギーの増加とともに徐々に減少する。また中性子のエネルギーを E_n とした場合、弾性散乱によってシリコンおよびゲルマニウムの反跳核に付与される平均のエネルギーは、それぞれ $0.066E_n$ と $0.026E_n$ で、かなり高いエネルギーをもった核がたたき出されることになる。これらは同種の原子核と衝突して効率よく多数の変位原子を作り出す。その結果 1MeV のエネルギーをもつ中性子を作る Frenkel 欠陥の数は1個あたり100 $\sim$ 500個程度である。また、これら中性子で作る Frenkel 欠陥は局所的な集まりを作るが、そのかたまり自身は γ 線の場合と同様比較的一様に分布する。

1.2 放射線により生成される格子欠陥

初期の理論では放射線によって作られる Frenkel 欠陥のうち、格子間原子は donor 型の、空孔は accep-

図3 放射線損傷により作られる各種欠陥のエネルギー単位

tor 型の深い不純物準位を作って、荷電担体の有効な捕捉中心ないしは再結合中心を形成するものと考えられていた。しかし、最近では格子間原子も空孔もいづれも荷電していることは可能であるし、条件によってはそのいずれもが donor 型にも acceptor 型にもなりうるということがわかっている。さらに 100K 以上の温度では、空孔は格子間隙を容易に通り抜け相互に集まっていわゆる cluster を作ったり、酸素やリン等の他の不準物と対となって新たに安定な不準物準位を形成するものと考えられている。図3は放射線照射によりシリコン中に新たに作られると考えられる不準物準位の種類と位置を示したものである*。これらの不純物準位はある場合に荷電担体の捕捉中心となったり、再結合中心となったりして、半導体検出器の出力波高値の低下、分解能の劣化、検出器の容量の変化や漏えい電流の増加をもたらす。これら検出器の諸特性と生成欠陥との関係についてはつぎの個々の場合に述べることにする。

2. 半導体検出器の放射線損傷

放射線損傷において問題となる半導体検出器の特性は、a) 出力パルスの波高値、b) エネルギー分解能、c) パルスの立ち上がり時間、d) 出力パルス波高値とエネルギーとの比例関係等である。このうち d) は核分裂片の低エネルギー領域で問題となっているだけで他ではこの特性の変化はほとんど認められていない。このようなカウンターとしての動特性以外に漏えい電流一印加電圧、検出器の容量一印加電圧等の静特性、さらにこれら動静両特性の温度変化等が放射線損傷の結果生まれる欠陥の性質を調べるために測定されている。これら諸特性の変化と現在までに積み上げられてきた半導体結晶における格子欠陥の知識とから、放射線により生成される格子欠陥の性格はある程度理解される。ここでは、放射線照射による検出器の諸特性の変化を中心として述べるが、その原因をなしている生成格子欠陥の性格についても触れたい。

2.1 表面障壁型シリコン検出器 (p-n ジャンクシ

* 最近 L.W. Aukerman (*IEEE, NS-17*, No. 6, p. 245 (1971)) はシリコン表面障壁型検出器に $0.2\sim 0.4\text{MeV}$ の陽子を照射し、その結果 $E_c-0.24\text{eV}$, $E_v+0.26\text{eV}$ (donor 型), $E_c+0.32\text{eV}$ (acceptor 型), $E_c-0.47\text{eV}$ (donor 型) など4つのレベルを見出しており、初めのレベルを (vacancy-oxygen), 2番目を (divacancy), 4番目を (Si P-3) に相当するとしている。

ジョン型も含む)

表面障壁型シリコン検出器は表面における不感層がきわめて薄くできるため、主として重イオン用の放射線検出器として使用されてきた。また検出器としての安定性においてすぐれている p-n ジャンクション型検出器も、最近では表面における不感層をかなり薄くできるようになり、表面障壁型との間に本質的な差はなくなった。したがって両者の用途はほぼ等しい。ただ放射線損傷の機構を理解する場合、一般に前者では素材として n 型のシリコンを、後者では p 型のシリコンを使用していることを念頭に置かねばならない。放射線損傷の結果生まれる欠陥の濃度が、これら素材中に含まれる donor 型または acceptor 型の不純物の濃度を上まわればその検出器の特性は著しく劣化する。そのため放射線損傷の比較のさいには、素材中に含まれる不純物の濃度、あるいはその比抵抗をつねに念頭におく必要がある。

i) 電子・陽子・アルファ粒子による放射線損傷

初めに、生成された格子欠陥の性格を知るうえで重要な特性である、検出器の容量と印加電圧の関係の放射線照射による変化について述べよう。1964年 R.E. Scott はシリコンの p-n ジャンクション型の検出器で、1MeV の電子の照射 (10^{15} 個/cm²) はその容量の増大を、31MeV, 8.2MeV の陽子の照射 (10^{12} 個/cm²) は容量の減少をもたらすことを見出した⁹⁾。この事実は、検出器の容量が $\sqrt{\text{acceptorの濃度}}$ に比例することから、電子の照射では有効な acceptor の濃度は増大するが、陽子の照射ではそれらが減少することを示している。これらを説明するため Scott は電子照射により作られる格子欠陥は、空孔-酸素原子対による acceptor ($E_c - 0.17\text{eV}$) であり、陽子照射によるものは空孔-空孔対のいわゆる divacancy による donor であるとした。後者は陽子により生まれる Frenkel 欠陥の空間密度が高いため、空孔対ができやすいとして考えられた。divacancy ののできる条件として、陽子1個ごとの飛跡に沿って生まれる Frenkel 欠陥の密度が電子のそれより高いためか、全体としての高照射率によるものかを調べるために Scott は陽子の照射率を1/1000に減らした実験を試みたが、前と同様検出器の容量は減少するという結果を得た⁹⁾。一方表面障壁型半導体検出器では、1MeV以下の陽子線照射では検出器の容量が増加するが、1MeV以上の陽子に対して容量の増加を示すのは印加電圧が高いときのみである^{10), 11)}。表面障壁型を電子で照射した場合、照射量の少ないうちは検出器の容量は減少するが、ある程度以上

では逆に増加の傾向を示す⁹⁾。このような傾向に対し、Y.M. Liu, J.A. Coleman は、照射量に対する初期の減少は、負に帯電した空孔-酸素原子対ないしは空孔-リン原子対から成る格子欠陥の生成が、初めから存在した donor 型不純物原子による空間電荷を打ち消すために生じ、 10^{13}e/cm^2 以上の照射における検出器容量の増加は、逆に、正に帯電した divacancy の生成の結果によると考えた⁹⁾。このような考えは当然陽子や中性子照射の結果に対しても適用されるべきものと考えられるが、いくつかこれと矛盾する結果も得られている。たとえば G.G. George, E.M. Gunnarsen による 2MeV の電子線と 14MeV の中性子線照射の結果はいずれも検出器容量の減少を示している⁹⁾。

つぎにシリコン表面障壁型検出器の電子、陽子、 α 粒子照射の結果生ずる出力パルス波高値や分解能の劣化について見ると、それらのしきい値は0.4~0.6MeVの電子、1MeV以上の電子、1MeV以下の陽子、1MeV以上の陽子、5MeV程度の α 粒子に対して、それぞれ 10^{15} 個/cm²⁹⁾, $10^{13}\sim 10^{14}$ 個/cm²⁹⁾, $\sim 10^{13}$ 個/cm²⁶⁾, $10^{11}\sim 10^{12}$ 個/cm²^{7), 10)}, $\sim 10^{10}$ 個/cm²^{11), 12)} で、これらの比率はさきに示したそれぞれのエネルギーにおける各粒子の1個あたりの変位原子生成数にほぼ反比例している。放射線損傷を受けた表面障壁型半導体検出器で、単一エネルギーの α 線のスペクトルを測定するさい、しばしば複数のピークをもつ波高分布を得ることがある。とくに印加電圧の低いときにはそのような傾

図4 2MeV陽子の照射前後におけるThC, ThC' α 線による表面障壁型シリコン検出器の出力パルスの波高分布

図5 4.5MeV α 粒子の照射量に対する ^{241}Am α 線の分解能の変化 (●: パルス率, ×: ^{241}Am α 線 (電気雑音を含む))

図6 表面障壁型シリコン検出器における200keV, 800keV 陽子の表面照射と裏面照射の場合における雑音レベルの変化の比較

向が著しい。これは放射線照射の不均一さや放射線自身による生成格子欠陥の分布の不均一さに帰因すると考えられている。図4は $6 \times 10^{12} \text{ p/cm}^2$ の陽子線照射前後の ThC , ThC' の α 線によって得られた波高分布を示す¹⁰⁾。照射後は明らかに波高値が低下するとともにダブル・ピークが観測されている。印加電圧を増しても波高値が照射前の値に近づくのみで依然としてダブル・ピークを示す。図5は表面障壁型検出器に4.5 MeV の α 線を照射したときの ^{241}Am から得られる α 線スペクトルの分解能の劣化の割合を示す¹²⁾。図からわかるようにもしも使用上のエネルギー分解能に対する条件が半値幅で100keV程度でもよく、そのときの漏えい電流の増加もたいして測定に影響しないことがわかっている場合にはその照射量の限界は $10^{11} \alpha/\text{cm}^2$

ということになる。一般に漏えい電流の増加に対する対策としては低い入力抵抗を使用するとともに過剰な印加電圧を加え欠乏層が完全に広がったものの使用が望まれる。

Coleman らは表面障壁型検出器に1MeV以下の陽子を照射する場合、表面(Auを蒸着した面)から照射するより裏面(Alを蒸着した面)から照射するほうが検出器の耐放射線性が著しく向上することを見出した。図6はその1例を示す。明らかに電気的離音レベルの変化のしきい値が前方入射の場合より後方入射の場合のほうが少なくとも 10^4 倍ほど増していることがわかる。Coleman らによれば、陽子照射による検出器容量の増加から当然 donor 型格子欠陥が作られていると考えられるゆえ、表面からの照射は欠乏層に donor 型欠陥を増し検出器としての特性を劣化することになるが、オーミックな接触部を構成する裏面は donor 型の欠陥ができてほとんど検出器の特性に影響を与えないためとしている。実用的にはこの方法は低いエネルギーの陽子が多量に存在するなかでの高エネルギー陽子のエネルギー分布の測定につごうよく、人工衛星や宇宙船による高エネルギー陽子の測定にきわめて適している。

ii) 核分裂片による放射線損傷

表面障壁型の検出器は入射面における不感領域をきわめて薄くできるので、核分裂片等の比較的低いエネルギーの重荷電粒子の測定に適している。しかし、初めにも述べたように、核分裂片は他の放射線に比し与える放射線損傷の割合が大きい。したがって、電子、陽子等の測定に使用される表面障壁型検出器と同じ不純物濃度をもつシリコンの素材を使用するかぎりにおいては、核分裂片による検出器の特性の劣化は他の放射線の場合よりもひどく、 $10^7 \sim 10^8 \text{ f/cm}^2$ で問題となるような変化を示す。しかし、核分裂片のシリコン内の飛程($\sim 20 \mu\text{m}$)が短いことからあまり比抵抗の高い素材を使う必要はなく、比抵抗の低い素材を選ぶことによって、核分裂片に対する表面障壁型検出器の使用限界を $10^8 \sim 10^9 \text{ f/cm}^2$ に上げることができる¹³⁾。また一般に使用せるシリコン・ウェファア全域にわたって欠乏層を作るに必要である以上の印加電圧を与えておくことにより、その使用限界を高めることができる¹³⁾。

核分裂片の場合は他の放射線とは異なり、生成電子-空孔対数が核分裂片のエネルギーに必ずしも比例しない。一方 α 粒子に対してはかかる比例関係が確立しているので、その関係に基づいて核分裂片による出力パルスの波高値を校正すると、真の核分裂片のエネルギ

図7 核分裂片による放射線損傷のために生じた“ionization defect”の増加分 ΔE_0 の検出器内電場に対する変化

よりも数 MeV も少ない値が得られる。この差は pulse height defect とよばれる。H.C. Britt, G.C. Benson は表面障壁型と p-n ジャンクション型のシリコン検出器を核分裂片と α 線で照射し、その場合の pulse height defect を測定した。その結果、pulse height defect の変化は印加電圧の程度に関係なく核分裂片の照射量にほぼ比例することを見出した。図7はかれらが測定した毎平方 cm あたり1個の核分裂片の照射による pulse height defect の変化量の検出器中の平均電場に対する変化の結果を示す。また、核分裂片によって生ずる pulse height defect の変化は検出器内での吸収エネルギーを等しくした場合、 α 線によるものよりも30倍も大きな値を与えることを見出している。これは、放射線損傷に関して核分裂片のほうが α 粒子よりもはるかに効果的であることを示している。図7からわかるように pulse height defect は検出器の内部電場はかなり依存している。白石は pulse height defect を電場に依存する部分とそうでない部分とに分け、前者は核分裂片の照射によって増大するが後者は照射の有無にかかわらずほぼ一定の値を保つことを見出している¹⁵⁾。

核分裂片によって生成される電子-ホール対は、その通路に沿って円筒状の高密度プラズマを作る。このプラズマを電場によって引き離すのであるが、核分裂片によるパルスの立ち上がり時間はこのようなプラズマの分離時間によってきまる。P. Mulás, E.L. Haines は time of flight の装置を用いて、核分裂片の照射量に対する立ち上がり時間の変化を測定した¹⁶⁾。その結果波高値にはほとんど変化が検出できなかったにもかかわらず $\sim 10^6$ f/cm² の照射量で nsec 程度の立ち上がり時間の遅れを検出した。これは核分裂片によ

る放射線損傷のために検出器の内部電場が弱まるためと考えられている。

2.2 リチウム・ドリフト型シリコン検出器

リチウム・ドリフト型シリコン検出器は、有効厚さが5 mm 近くまでとれるため、比較的能量の高い荷電粒子の測定に使用されている。しかし、つぎのような理由で表面障壁型や p-n ジャンクション型に比し放射線に対して弱いと考えられる。いまある有効厚さをもつリチウム・ドリフト型検出器に電圧 V を加えて測定する場合を考える。初めはリチウムによってできる donor の濃度とシリコンの素材のなかに含まれる acceptor の濃度とが打ち消し合って見掛け上の真性半導体となるが、放射線損傷によりしだいに acceptor の濃度が増し電圧 V で初めの実効厚さを保持できる濃度を越えたときに検出器としての特性が劣化し始めると考えられる。そのときの acceptor の濃度は、表面障壁型や p-n ジャンクション型の素材中の donor や acceptor の濃度の $1/100 \sim 1/1000$ で、ほぼその程度リチウム・ドリフト型のほうが表面障壁型や p-n ジャンクション型より耐放射線性が弱いということになる。たとえば、H.M. Mann, J.L. Yntema の測定結果に従えばリチウム・ドリフト型シリコン検出器の 4MeV 陽子、43MeV α 粒子に対する特性劣化のしきい値は 10^8 個/cm² であった¹⁷⁾。この値は、43MeV の α 粒子の生成する Frenkel 欠陥の数が 5MeV α 粒子のそれに比し数倍高いことを念頭においても、前に示した 1MeV 以上の陽子や 5MeV の α 粒子の表面障壁型に対するしきい値のちょうど数十分の一から数千分の一低いことになっている。また、J.A. Coleman, J.W. Rodgers の ⁶⁰Co γ 線の照射の実験では 10^5 R でかなり大きな変化が起きており、これは表面障壁型の場合の百分の一程度の値である¹⁹⁾。しかし、最近における Y.M. Liu, J.A. Coleman の測定では、特性劣化のしきい値は 0.6MeV および 1.5MeV の電子、1.9 MeV の陽子、Pu-Be 中性子源からの中性子に対してそれぞれ $\sim 10^{15}$ e/cm², $\sim 10^{13}$ e/cm², $\sim 10^{11}$ p/cm², $\sim 10^{10}$ n/cm² と表面障壁型の場合のかれらの実測値とほぼ一致する結果を得ている¹⁹⁾。このうち、中性子によるしきい値はのちに述べるようにリチウム・ドリフト型ゲルマニウム検出器の場合とほぼ同じである。このような実測結果の差をどのように解釈すべきかいまのところわからない。

リチウム・ドリフト型検出器の放射線損傷の機構は最近の W.H. Kool, J.J. Goedbloed, C.A.J. Ammer-

laan の実験によりかなり明らかになってきた²⁰⁾。これらのリチウム・ドリフト型・シリコンに対する γ 線照射の実験に従えば、 γ 線によって生まれた空孔は結晶内の酸素と対を作り、リチウム・イオンと結合して安定な中性複合体 ($\text{Li}^+ + \text{OV} + e \rightarrow \text{LiOV}$) を作る。またべつな可能性としてはリチウム・イオンが LiV 複合体を作って安定化する。その結果、いままで donor としてのリチウムと相互に打ち消し合っていた acceptor 型不純物の過剰分の濃度が増加し、真性半導体がしだいに P 型に変化していく。もしもこのような過程が事実であれば、リチウム・ドリフト型検出器はリチウム・イオンを再ドリフトすることにより acceptor と donor 濃度のバランスをとることができ、容易に再生可能なはずである。事実、リチウムの再ドリフトによりほとんど完全に回復した例が何人かの研究者によって報告されている^{17), 18)}。このような回復の容易さは、放射線損傷に敏感であるという上記の欠点がある程度補っているといえよう。

2.3 リチウム・ドリフト型ゲルマニウム検出器

リチウム・ドリフト型ゲルマニウム検出器が広く実用化したのは1960年代の半ばごろからである。初めは放射性同位元素を線源とする γ 線のスペクトロスコピー用に使用されていたが、しだいに核反応時に放出される γ 線の測定に使用されだすようになると、同時に放出される速中性子による検出器の放射線損傷に関心が向けられるようになった。初め C. Chasman, K.W. Jones, R.A. Ristinen によって約 3cc の平板型リチウム・ドリフト型ゲルマニウム検出器を用いて行なわれた実験では、1.2MeV から 16.3MeV の速中性子を少なくとも 10^{11} 個/cm² 照射した結果、検出器のエネルギー分解能に本質的な変化は起こらなかった²¹⁾。その後、H.W. Kraner, C. Chasman, K.W. Jones は、4 cc 平板型検出器を使用して、組織的に測定を行ない、同検出器のエネルギー分解能の劣化は、1.1MeV から 16.5MeV の中性子に対して、 10^{10} n/cm² 以上の照射で起こることを確認している²²⁾。さらに最近、P.H. Stelson, J.K. Dickens, S. Raman, R.C. Trammell は 30cc 容積をもつ比較的大型のリチウム・ドリフト型ゲルマニウム検出器を Pu-Be 線源からの中性子で照射し、分解能の劣化を調べたところ 6×10^9 n/cm² で ²⁰⁸Tl からの γ 線 (2.614 MeV) の半値幅が 50% 以上増加することを認めた²³⁾。前の 2 つの実験結果と Stelson らの結果との食い違いのおもな原因は生成電荷収集のさいの荷電担体の通過距離の差であろう。また、

図8 Ge(Li) 検出器に 5.75MeV の中性子を照射した場合の ⁶⁰Co γ 線による出力パルスの波高分布

図9 照射せる中性子線束に対する Ge(Li) 検出器のエネルギー分解能 (電気雑音の寄与を除く) の変化

のちに述べるように、エネルギー分解能の劣化は、主として空孔が収集電極へ移動するさいに起きる欠陥への捕捉による。したがって平均して電子よりも空孔のほうが、移動距離の長い同軸型のほうが分解能への影響は大きい。Stelson らは分解能のテストに使用した γ 線のエネルギーが高いほど、分解能の劣化の度合いが大きいことから Chasman, Kraner らの実験では分解能のテストに ⁶⁰Co の 1.33MeV の γ 線を使用していることを指摘、これも上記の差の原因の一部であろうと考えている。

図8は Kraner らによって測定された 5.75MeV の

中性子を照射した場合の ^{60}Co γ 線のエネルギー分布の変化を示す。図から明らかなように $6.7 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2$ の照射で各ピークの半値幅は約 2.5 倍の増加を、その位置は約 0.7% の減少を示している。図 9 はこれらの測定結果を中性子の照射量とエネルギー分解能の劣化の関係としてまとめたものである。縦軸の分解能としては、電気的雑音の寄与を除いた、荷電担体の欠陥への捕捉による波高分布の広がりのみを使用している。明らかに 5×10^9 から 10^{10} n/cm^2 の照射量のところで分解能の劣化が始まっている。これら分解能劣化のしきい値は理論的考察から期待されるごとく中性子のエネルギーの増加とともに減少の傾向にある。

いま、平板型検出器の厚さを W とし、電子および空孔の易動度を μ 、検出器内の電場の強さを E とすれば、検出器の中心部で発生する電子—空孔対により誘起されるパルスの立ち上がり時間は $W/2\mu E$ であるが、両電極の近傍で発生する電子—空孔対によるものは $W/\mu E$ となり、立ち上がり時間から電子—空孔対の発生個所に関する情報を得ることができる。Kraner らは小型の平板型ゲルマニウム検出器を使用して、出力パルスの立ち上がり時間の分布を求め、上記の予想にはほぼ一致した結果を得た。かれらはこのうち遅い立ち上がり時間をもつパルス（電極付近で発生する電子—空孔対に起因するパルス）のみを選ぶ方法を使用して、中性子による放射線損傷を受けたゲルマニウム検出器にコリメートした ^{60}Co の γ 線源で n^+ 接合部を照射した場合と p^+ 接合部を照射した場合の波高分布の測定を試みた。その結果を図 10 に示す。 p^+ 接合部を照射した場合（電子が荷電担体を形成している）は波高値、分解能いずれもほとんど劣化していないが、 n^+ 接合部を照射した場合（空孔が荷電担体を形成している）は明らかに波高値、分解能に著しい劣化が起こっている。これはリチウム・ドリフト型ゲルマニウム検出器を速中性子で照射した場合の放射線損傷によって生ずる出力波高分布の劣化は空孔の生成欠陥への捕捉によることを示している。以上の実測結果は中性子線照射によって生まれる欠陥は深いエネルギー準位にある acceptor であるという従来の定説で十分説明できる。

中性子による放射線損傷を受けたリチウム・ドリフト型ゲルマニウム検出器もシリコン検出器の場合と同様温度を上げリチウムの再ドリフトを行なうことによって容易に元の特性に戻すことができる^{22)~24)}。図 11 は F.S. Goulding, R.H. Pehl によって示された約 9.5cc の容積をもつ平板型リチウム・ドリフトゲルマニウム検出器の熱処理および再ドリフト過程にお

図10 10^{10} n/cm^2 の中性子 (16.5 MeV) の照射を受けた Ge(Li) 検出器の出力パルスのうち遅い立ち上がりのもののみ選んだときの ^{60}Co γ 線のパルス波高分布。ここで○は p^+ 接合部に、●は n^+ 接合部にコリメートされた γ 線を照射した場合である。

図11 Ge(Li) 検出器の各段階（表1）における ^{60}Co 1.17 MeV ピークの形状の変化

ける ^{60}Co γ 線の波高分布の変化の模様を示す²⁴⁾。図中の番号に対応する諸条件は表1に示した。この検出器が受けた中性子の照射量はわかっていない。このなかの変化のなかで特徴的なことは、77 K から室温 (25 °C) に温度を上げふたび 77 K にして ^{60}Co の波高分布を測ったところ、放射線損傷を受けた直後より波高値、分解能ともに著しく劣化したことである。また、このような過程の繰り返しは徐々に分解能の改善をもたらした。Goulding によれば、初めの室温への温度上昇による特性の劣化は donor 型の欠陥が生成されるため、その後の特性の回復はさきに述べたような

表 1

実験番号	日 付	実 験 内 容
1	1968-4-24	初回テスト (77K) その状態で保存
2	1968-5-1	使用前テスト (77K) 中性子線照射—損傷起こる X線実験
3	1968-5-28	使用后テスト (77K)
4	1968-5-28	スキャン・テスト (77K)
5	1968-5-28	短時間25°Cまで上げる
6	1968-5-29	同上
7	1968-5-29	同上
8	1968-5-29	5分間25°Cまで上げる
9	1968-5-31	同上
10	1968-5-31	8分間25°Cまで上げる
11	1968-5-31	12分間25°Cまで上げる
12	1968-5-31	15分間25°Cまで上げる 400°Cに上げ3日間再ドリフト
13	1968-6-7	再テスト (77K)

注 測定はすべて77Kで行なわれた。

リチウム・イオンの生成欠陥への捕捉により検出器自身がP型に変化していく結果空孔を捕捉するための欠陥の濃度がしだいに減少していくことによると考えられる。また、400°Cまで温度を上げ再ドリフトした結果は完全に検出器の特性が回復したことを示している。一方、Kraner らの経験では熱処理の温度をそれほど上げず、単に常温での再ドリフトのみで検出器の特性のかなりの回復をみている²¹⁾。

2.4 高純度ゲルマニウム検出器

リチウム・ドリフト型ゲルマニウム検出器はその性能を維持するため常温に放置できないという欠点をもつため、その必要性のない高純度のゲルマニウム検出器の出現をみ、徐々に大型化されつつある。その素材となる高純度ゲルマニウムの不純物濃度はリチウム・ドリフト型検出器の素材に用いられるゲルマニウムのその1/100から1/1000程度のものであり、最近では、かかる素材を用いた検出器に対する放射線損傷の研究も始められている。図12は J. Llacer, H.W. Kraner によって 0.1~1cc の容積の高純度ゲルマニウム検出器について測定された 1.6MeV, 2.6MeV の中性子の照射量に対するエネルギー分解能の劣化の様様を示す²⁵⁾。この図からわかるようにいずれも $1 \times 10^{10} n/cm^2$ 付近で分解能の劣化が始まっており、リチウム・ドリフト型の場合と放射線損傷に対する感度において大差

図12 照射せる中性子線束に対する高純度Ge検出器のエネルギー分解能(電気雑音の寄与を除く)の変化

図13 中性子照射により損傷を受けた高純度 Ge 検出器の熱処理各段階における ^{60}Co 1.33 MeV ピークの形状の変化

はない。図13はこの実験において損傷を受けた高純度ゲルマニウム検出器の熱処理による回復過程を示す ^{60}Co γ 線 (1.33MeV) の波高分布を示す。ここで“Final”とあるのは $8 \times 10^{10} n/cm^2$ の中性子照射後24時間77Kで放置したあとで測定された ^{60}Co の波高分布である。図からわかるように室温での熱処理はかえ

って分解能を著しく劣化させている。しかし、200°Cないしは 250°C での 1~2 時間にわたる熱処理は中性子照射前よりも分解能においてすぐれた結果を与えている。また、このような中性子による放射線損傷と熱処理の繰り返しはさらに分解能の向上をもたらす。これらの結果は Goulding, Pehl によって測定された 42 MeV 陽子 10^{11} 個/cm² の照射を受けた高純度ゲルマニウム検出器の結果とも矛盾しない²⁴⁾。このような簡単な熱処理による特性の回復ないし改善はリチウム・ドリフト型の場合と異なり放射線損傷で作られた捕捉中心としての空孔—格子間原子対の消滅を意味する。また、室温での分解能の劣化は、温度の上昇とともにしだいに集まり合って大型の空孔塊を作り、空孔自身の密度は減少しても、その捕捉断面積が著しく大きくなり、結果として分解能の劣化をもたらすものと考えられる。また、このような局所的な損傷は一樣に分布した小型の欠陥よりも熱処理効果が容易であることが、高純度ゲルマニウム検出器の特性回復が簡単な熱処理で可能である原因とも考えられる。

以上、放射線検出器の放射線損傷の研究に関する最近の模様についてまとめてみたのであるが、何らかの意味で研究上の参考になれば幸いである。

文 献

- 1) G. Dearnaley: *Nucleonics*, **22**, (7) 78 (1964)
- 2) R.H. Parker and J.B. Barengoltz: *IEEE*, **NS-18**, (5) 41 (1971)
- 3) J.H. Trainor and B.J. Tecgarden: *IEEE*, **NS-18**, (6) 237 (1971)
- 4) R.E. Scott: *IEEE*, **NS-11**, (3) 206 (1964)
- 5) R.E. Scott: *Nucl. Instr. and Meth.*, **32**, 171 (1965)
- 6) J.A. Coleman, D.P. Lone, J.H. Trainor and D.J. Williams: *IEEE*, **NS-15**, (1) 482 (1968)
- 7) J.A. Coleman, D.P. Lone, J.H. Trainor and D.J. Williams: *IEEE*, **NS-15**, (3) 363 (1968)
- 8) Y.M. Liu and J.A. Coleman: *IEEE*, **NS-17**, (6) 192 (1971)
- 9) G.G. George and E.M. Gunnersen: *Nucl. Instr. and Meth.*, **25**, 253 (1964)
- 10) R. Grube, E. Fretwurst and G. Lindström: *Nucl. Instr. and Meth.*, **101**, 97 (1972)
- 11) G. Dearnaley: *IEEE*, **NS-10**, (1) 106 (1963)
- 12) F.A. Hanser and B. Sellers: *Rev. Sci. Instr.*, **41**, 780 (1970)
- 13) F.S. Goulding: *Nucl. Instr. and Meth.*, **43**, 1 (1966)
- 14) H.C. Britt and G.C. Benson: *Rev. Sci. Instr.*, **35**, 842 (1964)
- 15) F. Shiraishi: *Nucl. Instr. and Meth.*, **69**, 316 (1969)
- 16) P. Mulás and E.L. Haines: *Rev. Sci. Instr.*, **40**, 507 (1969)
- 17) H.M. Mann and J.L. Yntema: *IEEE*, **NS-11**, (3) 201 (1964)
- 18) J.A. Coleman and J.W. Rodgers: *IEEE*, **NS-11**, (3) 213 (1964)
- 19) Y.M. Liu and J.A. Coleman: *IEEE*, **NS-19**, (3) 346 (1972)
- 20) W.H. Kool, J.J. Goedbloed and C.A.J. Ammerlaan: *J. Appl. Phys.*, **42**, 2024 (1971)
- 21) C. Chasman, K.W. Jones and R.A. Ristinen: *Nucl. Instr. and Meth.*, **37**, 1 (1965)
- 22) H.W. Kraner, C. Chasman and K.W. Jones: *Nucl. Instr. and Meth.*, **62**, 173 (1968)
- 23) P.H. Stelson, J.K. Dickens, S. Raman and R.C. Trammell: *Nucl. Instr. and Meth.*, **98**, 481 (1972)
- 24) F.S. Goulding and R.H. Pehl: *IEEE*, **NS-19**, (3) 91 (1972)
- 25) J. Llacer and H.W. Kraner: *Nucl. Instr. and Meth.*, **98**, 467 (1972)