

論文の内容の要旨

2次元陽電子消滅2光子角相関の低温そのまま測定による 絶縁性結晶および Si 中の欠陥の研究

武内 伴照

絶縁性結晶に陽電子を入射すると、多くの場合、電子との束縛状態であるポジトロニウム (Ps) を生成する。Ps は、電子と正孔の束縛状態である励起子の正孔を陽電子で置き換えたものにあたり、いわば励起子の「同位体」である。Ps は、陽電子消滅2光子角相関(Angular Correlation of positron Annihilation Radiation: ACAR)法を用いて、その運動量分布の測定が可能であり、波動関数の情報を直接得ることが出来る。このことは、エネルギーの情報が得られる励起子の研究と相補的な研究が可能であることを意味する。半導体物性や光学デバイスの特性を理解する上で重要な励起子の「同位体」にあたる Ps の波動関数を調べることは、興味深い。

本研究では、絶縁結晶中の Ps の振る舞いを2次元陽電子消滅2光子角相関(Two-Dimensional Angular Correlation of positron Annihilation Radiation: 2D-ACAR)装置を用いて研究を行った。2D-ACAR 測定は、運動量分布を2次元マップとして得ることができるため、これまで一般的であった1次元角相関測定に比べて、より詳細な情報を得ることができる。

試料は氷(Ih)およびアルカリハライド(KCl、KI)を用いた。これらの絶縁結晶中において、低温下で Ps は非局在状態になることが知られており、その波動関

数について 2D-ACAR 法で調べた。非局在 Ps がウムクラップ散乱されることによって現れるピークの強度分布の測定結果を、ベーテ・サルペータ方程式にもとづく第一原理計算の結果と比較、検討をおこなった。氷(Ih)の測定については、試料の作成から測定までを十分に氷点以下に保つ必要があるため、低温を保つ工夫が必要であった。

KCl と KI および氷(Ih)の低温での 2D-ACAR を測定し、非局在 Ps による鋭いピークの強度を詳細に解析した。氷(Ih)に対して、初めて 2D-ACAR による Ps ピークの定量的な解析を行った。KCl と KI に対して、過去の 2D-ACAR では観測できなかった、非常に弱い偶数指数のピークが観測できた。その結果、奇数指数のピークがほとんどないだけでなく、偶数指数のピークも、 $(2,0)(2\pi/a)$ 以外は大変弱いこともわかった。このことは、KCl および KI 中の Ps が、陽イオンと陰イオンをほとんど区別せず、波動関数が結晶中で高周波成分をほとんど持たないことを意味する。

これらの実験結果を再現する試みとして、ベーテ・サルペータ方程式にもとづく第一原理計算を行った。その結果、氷(Ih)に対して、本研究で用いた理論計算では実験結果が再現できなかった。これは、実際の氷(Ih)中の水素原子の位置が不確定であることが原因と考えられ、氷(Ih)中の Ps に対しては、計算方法のさらなる工夫が必要ながことが明らかとなった。KCl、KI に対しては過去の理論計算では再現できなかった実験結果の傾向を、非常に良く再現することが分かった(図 1)。この結果から、アルカリハライド中の非局在 Ps 波動関数は、結晶運動量で特徴づけられた陽電子-電子ペア状態の重ね合わせの状態となっている可能性が示唆された。

本研究ではさらに、氷の 2D-ACAR 測定で用いた低温測定手法を応用し、さらに低い温度である液体窒素温度程度を保ったまま測定可能な装置の開発を行った。シリコンは半導体デバイスの基盤となる重要な材料であり、その最も基本的な欠陥である単空孔を調べることは非常に重要である。ところが、シリコン単空孔は、200K 程度以下の低温でのみ安定に存在し、それ以上の温度では不安定となり、格子間原子と再結合したり互いに結合し複空孔となる。このため、

シリコン単空孔は、その導入から測定までを常に低温に保つ必要があり、実験が難しく、これまで十分な研究が行われてこなかった。特に、ACAR 装置を用いた、シリコン中の単空孔での電子運動量分布の測定はこれまで行われていなかった。そこで、液体窒素温度程度を保ったままで測定可能な装置の開発をし、シリコン単空孔について 2D-ACAR の測定を行った。

試料は、液体窒素中で低温電子線照射することにより単空孔を導入したシリコン単結晶を用いた。低温電子線照射後、試料温度を上げることなく低温そのままでの測定を行うために、低温そのまま測定装置を開発した。同装置を用いて、液体窒素温度電子線照射後のシリコン試料を低温そのままの状態、陽電子寿命測定および同時計数ドップラー広がり(CDB)測定、電子スピン共鳴(ESR)測定を行った。

その結果、陽電子捕獲サイトの陽電子寿命 τ_2 は 10K–80K の測定温度で約 266ps となった。過去の報告にある、理論計算によるシリコン中の空孔クラスター内における陽電子寿命計算値や、低温電子線照射したシリコンの陽電子消滅実験の結果によれば、今回の低温電子線照射したシリコン中の主な陽電子捕獲サイトは単空孔であることが示唆された。また、CDB 測定結果の S–W 相関からは、陽電子捕獲サイトは少なくとも複空孔ではないことが示唆された。実験で用いたシリコンは浮遊帯域融解(Floating Zone; FZ)法により作製されており、不純物酸素量が少ないことから、空孔–不純物複合体は形成していないと考えられる。したがって、主な陽電子捕獲サイトは、単空孔であると結論づけた。同試料の ESR 測定を行ったところ、共鳴信号は検出されなかった。FZ 法により作製されたシリコンのフェルミレベルは Mid Gap 付近にあると考えられることから、単空孔は負の 2 価に荷電しているとは考えにくく、荷電状態は中性であると同定された。すなわち、今回用いた試料の主な陽電子捕獲サイトは、荷電状態が中性のシリコン単空孔であることが結論づけられた。

同試料を 2D-ACAR 測定し、シリコン単空孔において初めて電子運動量分布を得た(図 2)。

絶縁結晶中の Ps についての研究結果は、2D-ACAR 法を用いて、物質中の最

も軽い束縛状態の波動関数に関する直接的な観測および第一原理による理論計算との比較を行い、その振る舞いの一旦を明らかにしたものである。この成果は、物質中の複合粒子の解明の一環として意味を持つものである。

Si 中の空孔型欠陥の研究の結果は、陽電子消滅測定装置を低温そのまま測定可能に改良し、ESR 測定と組み合わせることで、その荷電状態を把握しつつ、従来には報告例の無かった Si 中の単原子空孔の電子運動量分布を得ることに成功したものであり、今後ますます集積化する半導体デバイスの開発や評価にとって重要なデータとなることが予想される。

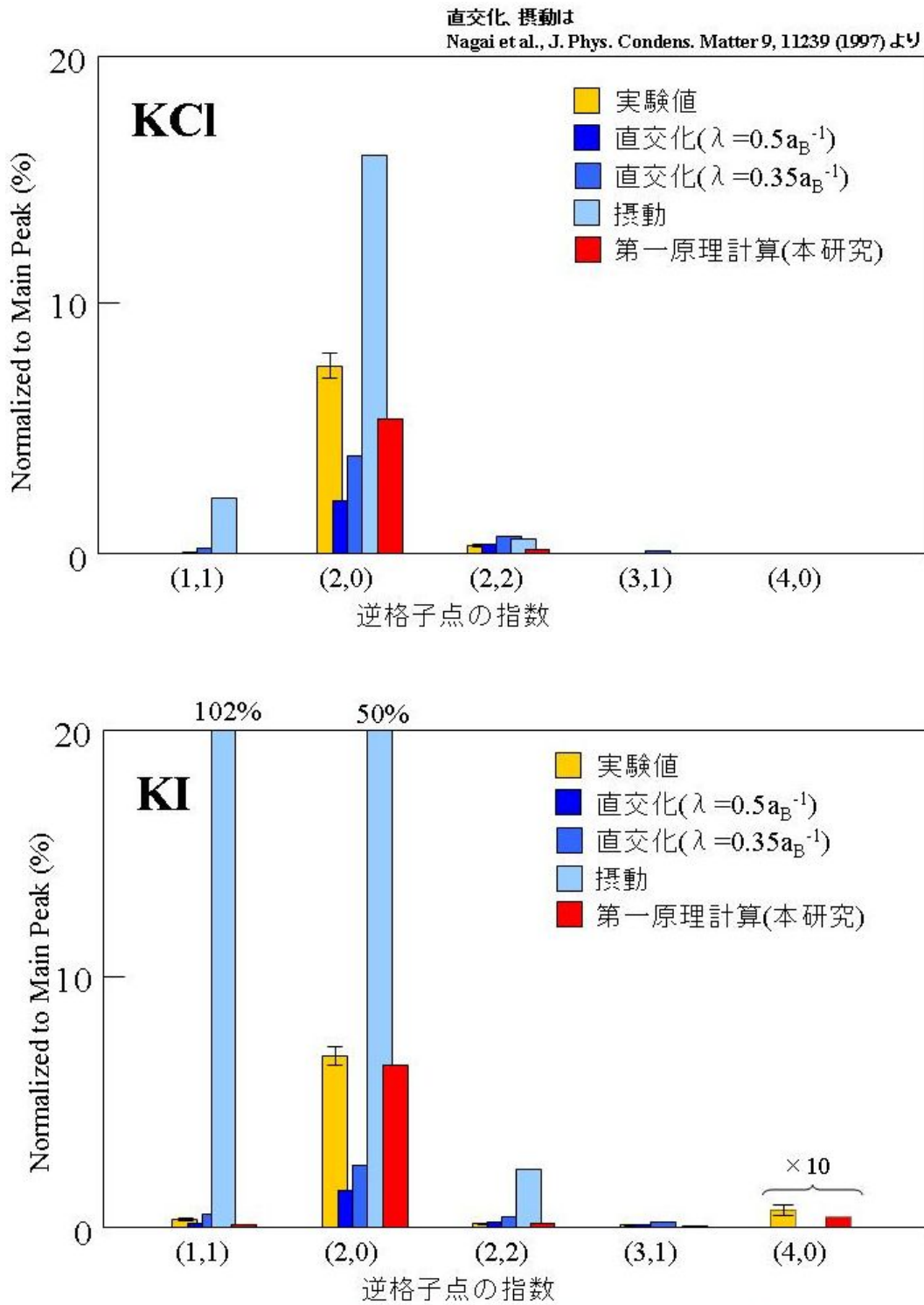


図 1. KCl と KI の Ps ピーク強度比の比較(a_B : ボーア半径)。

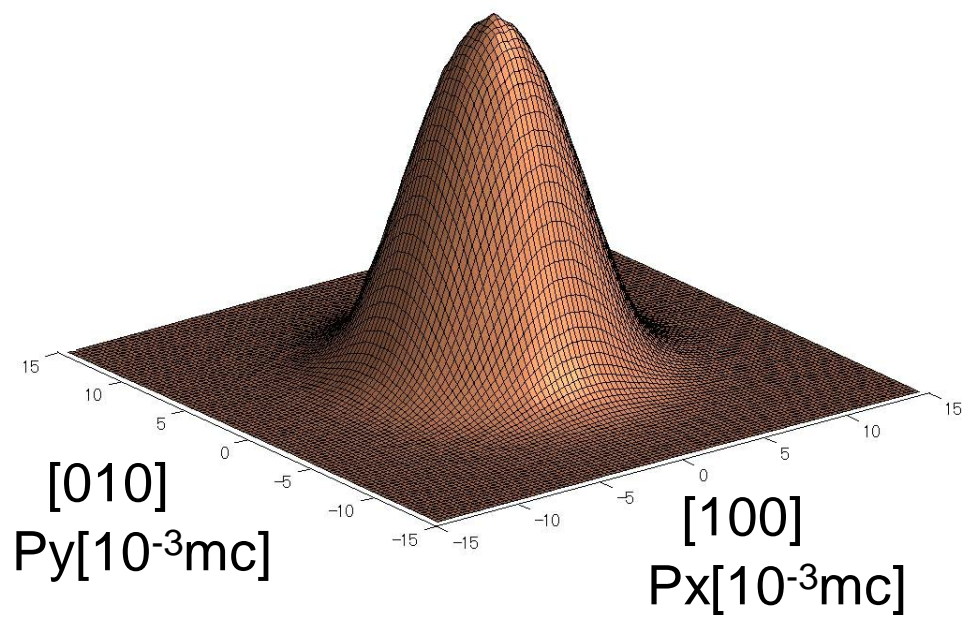


図 2. Si 単原子空孔の電子運動量分布