

機関番号：12501

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2008 年～2010 年

課題番号：20560005

研究課題名 (和文) 赤外光を用いた電子正孔移動度深さ分解法開発による窒化インジウムの輸送特性解明

研究課題名 (英文) Study on carrier transport processes in InN by the developing of sensing method of mobility depth profile by infrared spectroscopy

研究代表者

石谷 善博 (ISHITANI YOSHIHIRO)

千葉大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：60291481

研究成果の概要 (和文)：

InN は、0.63eV の小さな禁制帯幅など特異な物性をもち、高速電子素子への応用が期待される窒化物である。我々は、InN 表面や基板界面付近での電子蓄積層による電子物性解析の困難性を赤外分光により初めて解決し、内部領域における電子移動度が  $5000\text{cm}^2/\text{Vs}$  近くに及ぶことを解明した。電子・正孔散乱では刃状転位が主な散乱源であるが、正孔では更に Mg 散乱の効果が同様に大きいことを示した。InN/InGa<sub>N</sub> ヘテロ構造では界面付近局在電子は密度  $10^{13}\text{cm}^{-2}$  に及ぶこと、電子波動関数の染出しによりその移動度は InGa<sub>N</sub> により決まるため小さく、混晶の結晶性向上が必須であることを示した。

研究成果の概要 (英文)：

InN has a nitride material with the peculiarly small energy bandgap of 0.63 eV, and is expected to be applied to high frequency electronic devices. We have overcome the difficulty in physical analysis stemming from the electron accumulation layers around the surface and interface with the substrates. It is found that the mobility of electrons of inside regions is nearly  $5000\text{cm}^2/\text{Vs}$ . The edge-type dislocations are one of the main scattering centers of electrons and holes, in addition for holes, Mg or related complexes are also competitive scattering centers. For InN/InGa<sub>N</sub> heterostructure, the electrons localized around the interface has the density of the order of  $10^{13}\text{cm}^{-3}$ , and has mobility as small as that of InGa<sub>N</sub> because of the electron wavefunction penetration to the InGa<sub>N</sub> layer, which indicates the necessity of the improvement of the crystal quality of InGa<sub>N</sub> alloys.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成 20 年度	1,900,000	570,000	2,470,000
平成 21 年度	500,000	150,000	650,000
平成 22 年度	600,000	180,000	780,000
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 応用物性・結晶工学

キーワード：結晶評価、窒化インジウム、赤外光物性、電子素子

## 1. 研究開始当初の背景

窒化インジウム (InN) は、禁制帯幅以外の電気伝導特性等の物性や将来の電子素子像が不明な未開拓な窒化物であった。InN は、電子有効質量が小さく、高移動度が予測されたため高周波電子デバイスへの応用が期待

されていたが、現状の電子散乱特性については不明であった。特に散乱ポテンシャルの異方性に関するデータは全くなかった。正孔については、p 型化が確認されたところであったが、移動度の現状や正孔散乱特性については不明であった。これらのことから高周波デ

デバイスへの見通しについての情報は全く得られていなかった。一方、物性評価に関して、表面および界面に面密度  $10^{13}\text{cm}^{-2}$  台におよぶ高密度電子蓄積があり、これは電氣的測定および解析に対する大きな障害となっていた。我々は、フォノン・プラズモン領域の赤外分光解析により、この問題を解決できることを提案していた。これらの背景に基づき、本研究は InN の表面・界面電子蓄積による物性測定障害を克服した電子・正孔物性解析を行い、InN 系窒化物素子の先駆的基盤研究成果を得る必要があった。

## 2. 研究の目的

本研究では、InN の電子デバイスや高周波電子デバイス、更に将来テラヘルツデバイスに応用を行うために、InN の電子・正孔物性について以下の項目の達成を目的とした。

- (1) 表面や界面の電子蓄積層を除く内部バルク領域の電子および正孔物性の計測技術の確立。
- (2) 内部領域における正孔密度や移動度の初めての精密測定・評価
- (3) 電子・正孔散乱メカニズム解明
- (4) InN/InGaN などデバイス構造における電子散乱機構の解明と高性能化の提案。
- (5) 今後の InN 系高周波デバイスの開発方針の提案。

## 3. 研究の方法

半導体中キャリア・フォノン相互作用波数域である赤外域の分光エリプソメトリ・偏光反射分光スペクトルで光進入長の大きな波数依存を用い、表面および基板界面における電子蓄積構造を区別した内部バルク部のキャリア濃度や異方性を含めた移動度情報を求め、それらの温度変化 (5K - 500K) 等を合わせて散乱機構を解明した。x 線回折ロッキングカーブ半値幅の異方性より刃状転位と螺旋転位密度を求め、電子散乱速度を各欠陥種、LO フォノン散乱・不純物散乱・圧電散乱等に分解し、InN の本質的移動度特性を解明した。また、ルミネッセンス測定解析に

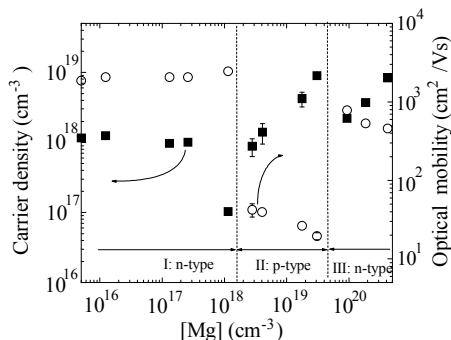


図1 Mg ドーピング密度に対するキャリア密度および移動度。

より欠陥周りでのキャリアダイナミクスを解析する。最後に HEMT 用ヘテロ接合構造での移動度解析より界面急峻性や貫通転位が移動度に与える影響を数値計算の援用により解析し、高周波電子素子に求められる InN 系結晶特性について考察した。

## 4. 研究成果

### (1) 内部バルク領域測定技術確立

フォノン・プラズモン領域における大きな屈折率分散即ち光侵入長が試料電子密度や移動度に依存することを用いて、赤外反射分光およびエリプソメトリにおける実験的および理論的解析から、キャリア密度や移動度の深さ分解を可能とすることを示した。特に TO フォノンより低エネルギー側と LO フォノンより高エネルギー側の両領域におけるスペクトルフィッティングの両立が表面・界面の影響、内部領域の物性解明に必要不可欠であることが分かり、内部領域物性解析が達成された。

### (2) 正孔物性解明

赤外分光により、電気測定のような伝導度の膜厚依存性測定の必要がなく、個々の試料における InN の正孔密度・移動度特性が初めて明らかにされた。(図1)

Mg ドープ InN の赤外反射・透過分光よりアクセプター価電子帯間の電子遷移による光吸収から正孔有効質量は  $0.59m_0$  程度であること、低 Mg 密度時のアクセプタ活性化エネルギーは  $70\text{meV}$  程度であること、温度上昇により活性化エネルギーは減少し、室温では  $20\text{meV}$  程度となり、これが高い正孔密度発現の要因となっていることが分かった。

### (3) InN 中電子・正孔散乱過程解明

#### ① 内部バルク領域電子密度・移動度評価

電子散乱特性の深さ分解を行い、表面蓄積電子の赤外スペクトルへの影響は無視できることが分かり、これは表面電子の赤外光振動数域の高周波移動度が小さいことによると解釈された。

バルク領域のコラム状グレイン境界

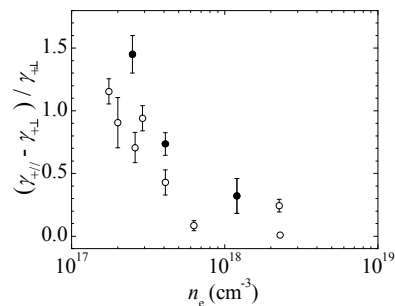


図2 LOPC 高エネルギー分枝の散乱速度異方性。  $\gamma_{+//}$ : c 軸平行方向の散乱速度、  $\gamma_{+⊥}$ : c 軸垂直方向の散乱速度。○: 刃状転位密度  $2 \times 10^{10}\text{cm}^{-2}$  以上。●: 刃状転位密度  $1.5 \times 10^{10}\text{cm}^{-2}$  以下。

を含まない部分では、 $2 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ までの残留電子密度が低下していること、また波移動度は約 $5000 \text{cm}^2/\text{Vs}$ まで増加していることが解明された。

### ② キャリア散乱過程の解明

電子散乱では、c軸平行および垂直方向震動するプラズモンからの赤外光周波数の高周波移動度異方性を調べた結果、残留電子密度の低下および刃状転位密度の増加に対してc軸平行方向振動の移動度が減少したことが分かった。この結果より刃状転位がc軸に平行に振動する電子散乱の支配要因であることが分かった。(図2)正孔では特に、LOフォノン・プラズモン結合による高エネルギー分枝のエネルギーがLOフォノンエネルギーから殆どシフトしておらず、結合が非常に弱くなっていることが判明した。

電子では、転位散乱成分がまだ残っているが、点欠陥によっても大きな散乱を受けていると思われる。残留電子密度は $10^{17} \text{cm}^{-3}$ 台でこの発生源となる正に帯電した点欠陥を中心とする散乱源があり、この欠陥種および転位減少によりInN中の電子の移動度は $5000 \text{cm}^2/\text{Vs}$ を超えるものと予測される。

一方正孔のc軸垂直方向の散乱速度にはドーパされたMg密度に比例した増加が検知されたことから、転位による散乱に加えてMgまたはこれに関連した複合欠陥による散乱がMg密度増加に伴って支配的になることが解明された。従って、正孔移動度にはInN本来の特性が一部表れていることと解釈される。

### (4) 発光過程評価による欠陥評価

#### ① InN

n型およびp型InNのフォトルミネッセンス強度・スペクトルの温度依存性解析により、n型では非輻射再結合過程活性化エネルギーが25-60meVであり、p型では9-15meVであることが解明された。(図3)Mgドーパ試料では微量ドーパおよび欠陥の多い過剰ドーパのn型領域で同様の40-60meVの活性化エネルギーであったことから、p型とn型の違いは、欠陥種の違いよりむしろ非輻射再結合中心となる深い準位の電子占有状態がp型とn型で異なるために活性化エネルギーが

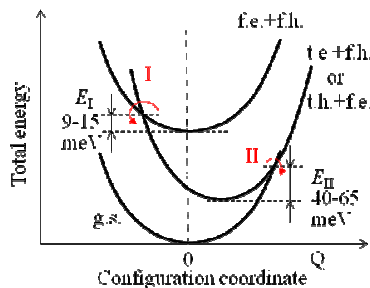


図3 非輻射性キャリア再結合過程の配位座標表示。f.e.: 伝導帯内電子、f.h.: 価電子帯内正孔、t.e.: 深い準位に捕獲された電子、t.h.: 深い準位に捕獲された正孔。

異なることと解釈された。現在、そのエネルギーレベル情報が得られつつあり、また格子振動情報からその欠陥種の同定が望まれる。

#### ② InGaN

In組成50%のInGaNについてパルス電子ビーム照射により時間分解CL測定を行った。蛍光寿命は2ns程度であり、局在キャリアの発光再結合速度がGaNに比べ低減していることが分かった。この結果から、InGaN結晶中では組成不均一場での局所的圧電分極による電場が発生し、再結合確率の低下とキャリア散乱速度の増加を引き起こしていると考えられる。

また、電子線照射により発光強度の増加およびピーク波長の高エネルギーシフトが観測され、局所的電子線照射によるアニール効果が得られることが分かった。

### (5) ヘテロ界面における局在電子特性

III族極性InGaN/InN/GaN/サファイア基板構造の赤外反射分光による深さ分解解析により $\text{In}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{N}/\text{InN}$ 界面で電子蓄積が存在することが分かった。(図4)しかし、その移動度は単膜InNの値より小さいことが判明した。電解液型容量-電圧特性およびバンド接合に関する理論計算により、X線回折では検知できないInN上の $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ( $x \leq 0.8$ )では微小な格子緩和が起きていること、電子波動関数がInGaN領域まで大きく染み出しており、InGaNの低移動度特性に大きく影響されていることが分かった。このため $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ の結晶性を上げ、また格子緩和メカニズムを解明する必要がある。

### (6) 現在の問題点と今後の展望

InNの結晶性は当初より飛躍的に向上し、内部領域での移動度は $5000 \text{cm}^2/\text{Vs}$ 近くにおよぶことが分かった。点欠陥または複合欠陥による散乱成分は電子密度減少と共に減少しているが、散乱速度の異方性の増加から転位による電子散乱速度は大きい。また他の半導体での転位散乱でよくみられるように、その移動度の温度依存性は小さく、今後刃状転位を減らしてゆくことで飛躍的移動度向上が得られると予測される。

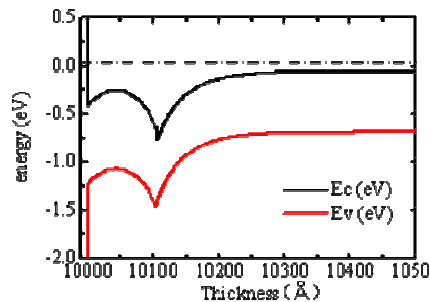


図4 InN/ $\text{In}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{N}$ ヘテロ構造におけるバンド図。一点鎖線はフェルミレベルを示す。

ヘテロ接合では、2次元的に蓄積された電子ガスの移動度はInGaNの移動度により決まっており、混晶の結晶性向上が必須である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 12 件)

- 1) D.Imai, Y.Ishitani, M.Fujiwara, X.Q.Wang, K.Kusakabe, and A.Yoshikawa, “**Carrier recombination processes in Mg-doped N-polar InN films**”, Applied Physics Letters , (2011)
- 2) N. Ma, X. Q. Wang, F. J. Xu, N. Tang, B. Shen, Y. Ishitani, and A. Yoshikawa, “**Anomalous Hall mobility kink observed in Mg-doped InN: Demonstration of p-type conduction**”, Applied Physics Letters **97**, pp. 222114 (2010)
- 3) Y. Ishitani, K. Kato, H. Ogiwara, S. B. Che, A. Yoshikawa, and X. Wang, “**Carrier recombination processes in In-polar n-InN in regions of low residual electron density**”, Journal of Applied Physics **106**, pp. 113515-(1-7) (2009)
- 4) 石谷善博, 藤原昌幸, 吉川明彦, 「**InNの結晶欠陥とキャリアダイナミクス**」日本結晶成長学会誌 **36**, pp. 45-53 (2009)
- 5) Q. Zhang, X. Wang, X. W. He, C. M. Yin, F. J. Xu, B. Shen, Y. H. Chen, Z. G. Wang, Y. Ishitani, and A. Yoshikawa, “**Lattice polarity detection of InN by circular photogalvanic effect**”, Applied Physics Letters **95**, pp. 031902-(1-3) (2009)
- 6) Y. Ishitani, M. Fujiwara, X. Wang, S. B. Che, and A. Yoshikawa, “**Hole density and anisotropic mobility of Mg-doped InN from the analysis of LO phonon-hole plasmon properties**”, Physica Status Solidi (c) **6**, pp. S397-S400 (2009)
- 7) M. Fujiwara, Y. Ishitani, X. Wang, S. B. Che, and A. Yoshikawa, “**Infrared analysis of hole properties of Mg-doped p-type InN films**”, Applied Physics Letters **93**, pp. 231903-(1-3) (2008)
- 8) Y. Ishitani, M. Fujiwara, X. Wang, S. B. Che, and A. Yoshikawa, “**Anisotropic damping of longitudinal optical phonon-plasmon coupling modes of InN films**”, Applied Physics Letters **92**, pp. 251901-(1-3) (2008)
- 9) X. Wang, S. B. Che, Y. Ishitani, and A. Yoshikawa, “**Hole mobility in Mg-doped p-type InN films**”, Applied Physics Letters **92**, pp. 132108-(1-3) (2008)
- 10) G. Franssen, A. Kamińska, T. Suski, I.

Gorczyca, A. Svane, H. Lu, W. J. Schaff, E. Dimakis, A. Georgakilas, S. B. Che, Y. Ishitani, and A. Yoshikawa, “**Conduction band filling in In-rich InGaN and InN under hydrostatic pressure**”, Physica Status Solidi (c) **5**, pp. 1488-1490 (2008)

- 11) Y. Ishitani, X. Wang, S. B. Che, and A. Yoshikawa, “**Effect of electron distribution in InN films on infrared reflectance spectrum of longitudinal optical phonon - plasmon interaction region**”, Journal of Applied Physics **103**, pp. 053515-(1-10) (2008)
- 12) G. Franssen, I. Gorczyca, T. Suski, A. Kamińska, J. Pereiro, E. Muñoz, E. Illiopoulos, A. Georgakilas, S. B. Che, Y. Ishitani, A. Yoshikawa, and N. E. Christensen, “**Bowing of the band gap pressure coefficient in In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N alloys**”, Journal of Applied Physics **103**, pp. 033514-(1-6) (2008)

[学会発表] (計 32 件)

国際

1. Y. Ishitani, M. Fujiwara, D.Imai, X. Wang, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa,” **Electron and hole scattering dynamics in InN films investigated by infrared measurements**”. European Material Research Society Spring Meeting, 9-14 May 2011, Nice, France (Invited Talk)
2. Y.Ishitani, M.fujiwara, X.Wang, K.Kusakabe, and A.Yoshiakwa, Characterization of Mg-doped InN by infrared spectroscopy Workshop on Frontier Photonic and Electronic Materials and Devices March 16-18, 2011 Granada, Spain (Invited Talk)
3. Y.Ishitani, M.Fujiwara, X.Wang, K.Kusakabe, and A.Yoshiakwa, Carrier scattering and non-radiative recombination properties of n-type and p-type InN films International Workshop on Nitride Semiconductors September 19-24, 2010 Tampa, USA
4. M.Fujiwara, Y.Ishitani, X.Wang, K.Kusakabe, and A.Yoshiakawa Mg impurity level in highly doped p-type InN studied by temperature dependence of infrared spectra International Workshop on Nitride Semiconductors September 19-24, 2010 Tampa, USA
5. X.Q.Wang, Y.Ishitani, and A.Yoshikawa, Demonstration of p-type InN by temperature-dependent Hall effect measurements International Workshop on Nitride Semiconductors September 19-24, 2010 Tampa, USA
6. Y. Ishitani, M.Fujiawa, X.Wang, K.Kusakabe, and A.Yoshiakawa, Characterization of electron and hole mobility of InN by infra

- red spectroscopy Asia Pacific Workshop on Widegap Semiconductors 2009 May 24 - 28, 2009 Zhangjiajie, China
7. Q. Zhang, X. Wang, X. W. He, C. M. Yin, B. Shen, Y. H. Chen, Y. Ishitani, and A. Yoshikawa, "Polarity detection of wurtzite semiconductors based on circular photogalvanic effect" Asia Pacific Workshop on Widegap Semiconductors 2009, 24 - 28 May 2009, Zhangjiajie, China
  8. M. Fujiwara, Y. Ishitani, X. Wang, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, "Optical characterization of hole scattering processes in InN Japan-Korea Asia Core Program General Meeting September 25, 2009 Sendai, Japan
  9. Y. Ishitani, X. Wang, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, "Effects of threading dislocations and other defects on reduction of band-edge photoluminescence in n-InN films European Materials Research Society 2009 Fall Meeting September 14 - 18, 2009 Warsaw, Poland
  10. X. Wang, Q. Zhang, B. Shen, Y. Chen, Y. Ishitani, and A. Yoshikawa, "Polarity determination of InN by using circular photogalvanic effect", European Materials Research Society 2009 Fall Meeting, Warsaw, Poland, 14 - 18 September 2009
  11. Y. Ishitani, M. Fujiwara, X. Wang, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, "Deterioration of electronic and radiative properties in n- and p-type InN films by edge-type dislocations 8<sup>th</sup> International Symposium on Nitride Semiconductors October 18 - 23, 2009 Jeju, Korea
  12. X.Q. Wang, G. Zhao, B. Shen, Y. Ishitani, H. Harima, and A. Yoshikawa, "Systematic Study on P-Type Doping of InN Layers with Both In- and N-Polarities for Wide Range Mg Doping Levels", 8<sup>th</sup> International Symposium on Nitride Semiconductors, October 18 - 23, 2009, Jeju, Korea
  13. Y. Ishitani, K. Kato, X. Wang, and A. Yoshikawa, "Radiative and non-radiative carrier recombination properties of InN Asia Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors September 13 - 18, 2009 Gyeongju, Korea (Invited Talk)
  14. Y. Ishitani, X. Wang, S.B. Che, and A. Yoshikawa, "Hole density and anisotropic mobility of Mg-doped InN from the analysis of LO phonon - hole plasmon properties International workshop on nitride semiconductors 2008 October 6-10 2008, Montreux, Switzerland
  15. X. Wang, A. Uedono, S. B. Che, Y. Ishitani, and A. Yoshikawa, "P-type conductivity control and hole conduction properties of Mg-doped InN", International Workshop on Nitride Semiconductors, 6 - 10 October 2008, Montreux, Switzerland,
  16. Y. Omori, Y. Ishitani, X. Wang, S.B. Che, and A. Yoshikawa, "Radiative lifetime analysis on ultra thin InN/GaN-quantum well structures by transient photoluminescence measurements Nanotechnology materials and devices conference October 21 2008 Kyoto, Japan
  17. Y. Ishitani, X. Wang, S.B. Che, and A. Yoshikawa, "Present status of electron and hole properties of InN Asian core workshop on wide bandgap semiconductors, October 22, 2008, Gwangju, Korea, (Invited Talk)
  18. M. Fujiwara, Y. Ishitani, X. Wang, S.B. Che, and A. Yoshikawa, "Simultaneous extraction of p-type carrier density and mobility in InN layers by infrared reflectance measurements Electronic Materials Conference 2008年6月26日 California, USA
- 国内
19. 石谷善博、藤原昌幸、草部秀一、吉川明彦、「p型InNにおけるMgアクセプタの活性化エネルギー」第4回窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用 1月17日2011年 東北大学金属材料研究所
  20. 石谷善博、今井大地、草部秀一、吉川明彦、「p型n型InNの非輻射電子・正孔再結合過程」第3回窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用 10月25日2010年 東北大学金属材料研究所
  21. 今井大地、石谷善博、草部秀一、吉川明彦「フォトルミネッセンス法によるN極性MgドープInNのキャリア再結合過程評価」応用物理学会結晶工学分科会主催 2010年・年末講演会 2010年12月17日 学習院創立百周年記念会館、東京
  22. 藤原昌幸、石谷善博、草部秀一、吉川明彦「Mgドープp型InNの極低温におけるアクセプタ活性化エネルギー評価」応用物理学会結晶工学分科会主催 2010年・年末講演会 2010年12月17日 学習院創立百周年記念会館、東京
  23. 今井大地、石谷善博、草部秀一、吉川明彦「N極性MgドープInNにおけるフォトルミネッセンス温度依存特性解析」2010年秋季第71回応用物理学会学術講演会 2010年9月14日 長崎大学
  24. 田中宏和、石谷善博、草部秀一、吉川明彦「赤外分光法によるInN/InGaN界面における二次元電子ガスの観測」2010年春季第57回応用物理学関係連合講演会 2010年3月17日 東海大学

25. 今井大地、石谷善博、草部秀一、吉川明彦 N-極性 MgドープInNにおけるフォトルミネッセンス特性の解析 2010年春季第57回応用物理学関係連合講演会 2010年3月17日 東海大学
26. 藤原昌幸、石谷善博、草部秀一、吉川明彦 高濃度Mgドープp型InNにおけるアクセプタ活性化エネルギーと不純物バンド 2009年秋季第70回応用物理学学会学術講演会 2009年9月10日 富山大学
27. 海口翔平、石谷善博、草部秀一、吉川明彦 ガードリングを用いたInN pn接合のダイオード特性評価 第1回窒化物半導体結晶成長講演会 2009年5月15日 東京農工大学
28. 藤原昌幸、石谷善博、草部秀一、吉川明彦 赤外分光法によるp型InNの正孔濃度及び移動度評価 第1回窒化物半導体結晶成長講演会 2009年5月15日 東京農工大学
29. 石谷善博、田中宏和、吉川明彦 In極性InN/InGaNヘテロ界面における電子蓄積の観測 第56回応用物理学関係連合講演会 2009年3月31日 筑波大学
30. 加藤健太、石谷善博、吉川明彦 六方晶n型InNにおける非輻射キャリア再結合過程の残留電子濃度・転位密度依存性 第56回応用物理学関係連合講演会 2009年3月31日 筑波大学
31. 藤原昌幸、石谷善博、崔成伯、吉川明彦 赤外分光エリプソメトリによるp-InNの正孔移動度の異方性解析 第69回応用物理学学会学術講演会 2008年9月4日 中部大学
32. 石谷善博、藤原昌幸、崔成伯、吉川明彦 赤外分光法によるn型およびp型InN薄膜のキャリア密度および移動度評価 電子情報通信学会 サマーセミナー 2008年6月27日 機械振興会館 (招待講演)

(3)連携研究者  
なし。

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

<http://www.semi-te..chiba-u.jp>

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

石谷善博 (YOSHIHIRO ISHITANI)  
千葉大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：60291481

### (2)研究分担者

なし。