

平成 30 年 6 月 18 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06450

研究課題名(和文) 粒子線と光の組合わせによるワイドギャップ半導体の深い準位評価法の開発

研究課題名(英文) Development of evaluation methods of carrier trap centers in widegap semiconductors using particles beams with lights

研究代表者

坪内 信輝 (Tsubouchi, Nobuteru)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・主任研究員

研究者番号：10357535

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、絶縁性ワイドギャップ材料中を走るキャリア捕獲欠陥中心を評価するための手法を開発することを目的とする。粒子線を当該材料に入射させることにより過渡的なキャリア伝導を起こすとともに、捕獲準位深さに対応する光照射を行うことによる誘導電荷量の回復を指標として当該評価を行う装置の開発を行った。例として絶縁性ダイヤモンド中の電子と正孔の捕獲準位分布の検出を行い、本手法の有効性を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：The objective of this research is to develop evaluation methods of trap centers carriers running in highly-insulating materials. measurement system was constructed. Discrete particles directing to the samples inducing transient carrier conduction together with light irradiation corresponding to these energy levels are expected to regain signals of the induced charge. We developed the measurement apparatus, considering such an evaluation index. As examples, distributions of energy levels of electrons and holes in diamonds as a highly-insulator were investigated and clarified effectiveness of this method.

研究分野：材料物性工学、イオンビーム工学

キーワード：ワイドギャップ材料 粒子線 キャリア 捕獲準位 光

1. 研究開始当初の背景

数 eV 程度以上の大きなバンドギャップを有する SiC、GaN、ダイヤモンド、ZnO 等のいわゆるワイドギャップ半導体材料は、Si に代表される従来半導体では適用不可能な高出力素子、高周波出力素子、深紫外発光素子等の次世代電子デバイス創出が期待される基礎物性を有する。これらの素子の実現には高品質な結晶が必要不可欠である。とりわけ、これらワイドギャップ材料中のキャリア捕獲中心の実態を把握し、それらの混入量を低減することが重要である。しかしながら、申請時の時点では、Si 等の狭ギャップ従来半導体に比べて、固有の性質として高絶縁性となるワイドギャップ材料に対する捕獲中心を評価する方法については適当な方法がないため、不明な点が多いのが現状であった。その主な理由のひとつは、高絶縁性のため、測定用接触電極が外部への定常的な電流の取り出し口として十分機能しないことがある。例えば、光伝導に関連した各種方法では、定常的な 2 次光電流による外部電流取り出しが必要であるが、電極を介した非整流性の影響を大きく受けるため、信号が非常に不安定となる他、電子と正孔の寄与の分別評価が困難である。また、高絶縁性の場合には容量変化を利用した測定も容易ではない。

2. 研究の目的

本研究では、そのような状況の中、高絶縁性のワイドギャップ半導体中のキャリア捕獲準位を評価する新たな方法を開発することを目的とする。粒子線と光励起を組み合わせた評価系を構築することにより、これまでの高絶縁性材料の評価において用いられてきた、定常電流取り出しによる測定における問題点を克服した装置提案を行うための基盤的な技術的検討を行うことを目指した。

3. 研究の方法

上述の従来法の定常電流による検出に代わり、離散的に入射する弱い粒子線によって生じる電子・正孔対が誘起する誘導電荷を検出する。発生する過渡的な伝導キャリアの運動を鏡映電荷として捉える（誘導電荷を検出）。粒子線によってパルス的に発生する誘導電荷を利用することにより、電極媒介の定常電流出し入れの影響を回避できる。一方、そのようにして発生したキャリアの一部は捕獲準位に捕捉されるが、その深さに対応したエネルギーの光による励起を行うことにより、再励起されて誘導電荷の損失の回復として検出できることを意図している。

具体的に検討・構築した測定系の概略は以下の通りである。粒子線としてはアルファ線（エネルギー 5.4 MeV、入射レート $\sim 10^4/s$ ）を使用した。試料は絶縁性の単結晶ダイヤモンド板（大きさ 3 mm 角程度）を用い、高真空チャンバ内に設置した。試料の表と裏の両面には、Ti/Au の 2 層から構成される金属多

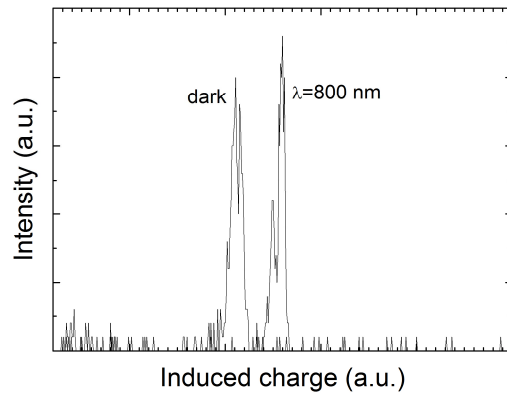


図 1 正孔による誘導電荷スペクトルと波長 800 nm の光照射時のスペクトル。

層膜の電極が取り付けられている。この一方の電極を通して、正あるいは負バイアス電圧（大きさ 200 V 程度まで）の印加を行った。アルファ線の入射時に誘起される誘導電荷を増幅し、多チャンネル波高分析器にて検出した。それと同時にハロゲン光源からの白色光を 400 nm から 1000 nm の波長領域から切り出し、順次その中心波長を変化させながら、板状試料に照射を行い、誘導電荷量の変化を検出した。

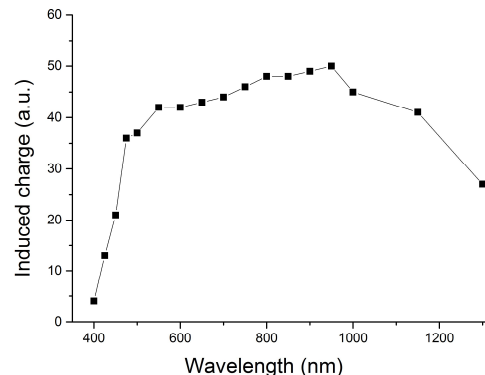


図 2 正孔による誘導電荷ピーク位置の波長依存性。

4. 研究成果

(1) 正孔キャリア

+170 V の正バイアスを印加し、励起正孔キャリアの走行を調べた。図 1 はその場合の誘導電荷スペクトルを示す。光照射の無い場合に比べて、例えば波長 800 nm の光照射を行うと、そのピークは誘導電荷が増加する方向にシフトすることが分かる。

照射する光の波長を変化させながら誘導電荷ピーク位置の波長依存性を調べた。ここでは、長波長の 1300 nm から短波長へと 400 nm まで掃引しながらスペクトルの観察を行った。結果を図 2 に示す。掃引した全ての波長領域において、正方向へのピーク位置のシフトが観察された。これは、それぞれの波長に対応する光子エネルギーによって、捕獲されている正孔が解放され、誘導電荷に寄与して

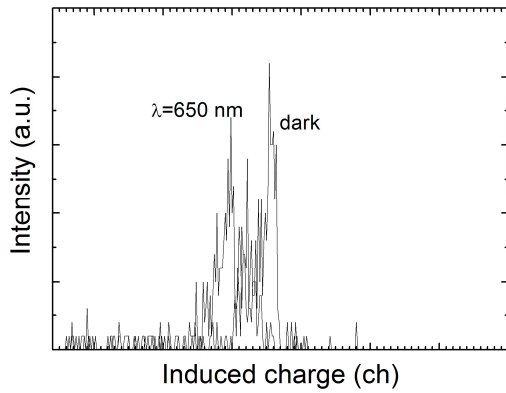


図3 電子による誘導電荷スペクトルと波長 650 nm の照射時のスペクトル。

いることを示す。すなわち、その光子エネルギーに対応する深さを閾値とするような捕獲準位が存在することを示す。これによると、400 nm ~ 1300 nm の広い領域に渡って、連続的な捕獲準位が存在することが示唆される。また、シフト量は、大雑把には相対的な捕獲準位密度に対応するが、それに捕獲（解放）断面積も考慮に入れる必要があり、それらの積に比例する量に対応するものと思われる。また、誘導電荷量の正方向のシフト量が向上する領域（領域 I）と低下する領域（領域 II）に分けられることがわかった。具体的には領域 I の 950-1300 nm にかけては正シフト量が向上し、その後 550 nm までなだらかに下がる。その間の 800-1000 nm 付近は比較的緩やかな平坦部となっている。領域 II の 550 nm から 400 nm にかけては、急速にシフト量が低下し、400 nm では照射無しの状態にかなり近づく。

(2) 電子キャリア

バイアスを負の -170V 印加した励起電子キャリアの走行を調べた場合の誘導電荷スペクトルの結果を図 3 に示す。照射の無い場合に比べて、例えば波長 800 nm の照射を行うと、ピーク位置は誘導電荷が減少する方向にシフトした。正孔の場合と同様に、照射する光の波長を長波長の 1300 nm から短波

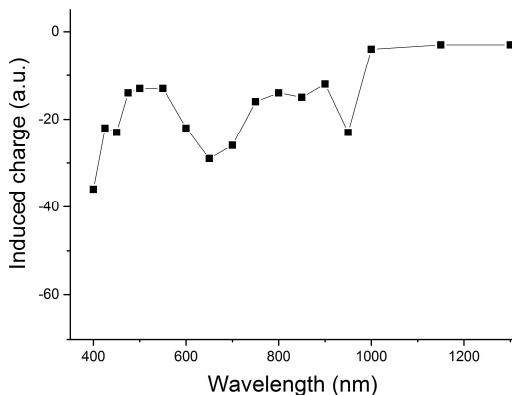


図4 電子による誘導電荷ピーク位置の波長依存性。

長の 400nm へと掃引しながら誘導電荷ピーク位置の波長依存性を調べた結果を図 4 に示す。図に示す通り、掃引した波長領域において、負の方向へのピーク位置のシフトが観察された。これは、それぞれの波長において、照射により誘導電荷が減少していることを示す。その理由としては、以下のような 2 つの物理過程が内包されている可能性が考えられる。ひとつは、上述の正孔の場合と同様に、空準位に捕獲された走行電子キャリアが、サブギャップ光の照射により解放され、誘導電荷が上昇する。もうひとつは、ギャップ内に、電子励起を起こる前に既にもともと準位を満たしていたところにサブギャップ光が照射され、充満状態が解放される結果、そこに空準位が生成される。その空準位に、電子励起後の走行キャリアが捕獲される結果、誘導電荷量が減少する効果である。すなわち、電子の場合においては、後者の効果が信号に大きく寄与していることが示唆される。一方、正孔の場合は、上述の通り、電子の場合と違って観察を行った全波長領域で誘導電荷量のシフトは正であるが、その量に増減がある。すなわち、領域 I では、上述の前者の効果が大きく、領域 II では後者の効果が次第に顕著になってくるため、シフト量が次第に減少する。一方、その量が前者の効果を凌駕するほどではないため、全体として正のシフトを示す状況が起こっていると推察される。

今回検討された検出方法で得られた結果は、図 5 に示す、別途測定された光吸収スペクトルを部分的に反映している。図 5 からは 1000 nm から短波長にわたって連続的に延びる状態密度が存在することが読み取れる。上述の本手法で得られた結果は、これらの内の、電子と正孔の捕獲準位に關与する一部の状態密度をそれぞれ独立に取り出して検出したことに対応する。その一方、上述の通り、ピーク位置のシフトは想定よりも複雑な物理過程を含む可能性も示している。測定原理のさらなる検証も含めた、掛かる現象の追加的な理解が必要である。

観察されたこれらの捕獲準位の候補としては、点欠陥、不純物、複合欠陥等のゼロ次元の欠陥の他に、一次元的欠陥（転位）が考

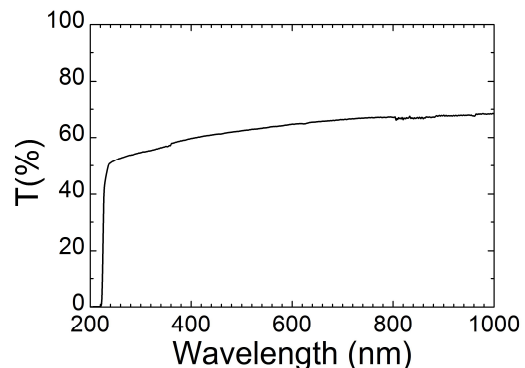


図5 試料の光吸収スペクトル。

えられる。実際に、偏光顕微鏡観察や断面透過電子顕微鏡観察を行ったところ、電極に挟まれた板状試料の電流が流れる方向（結晶成長方向）に走る刃状転位や混合転位を主とした貫通転位が 10^4 cm^{-2} から、多いときで 10^6 cm^{-2} 程度存在することが判明した。これらの欠陥類が点欠陥も含めてキャリア捕獲準位の形成に大きな役割を果たしている可能性がある。

(3) 今後の課題

用いたアルファ線の強度は弱いため、長時間測定においてはノイズの影響が大きくなり、信号のドリフトも出やすい。信号の増強や測定時間の短縮には、粒子線強度の増強が有効であるが、その一方、荷電粒子であるため、帯電の影響が強くなることから、その強度を十分高くすることは難しい。装置のコンパクト化には逆行するが、中性化した粒子線の使用が有効と思われる。また、より幅広い材料での適用試験を行う必要がある。

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5件)

N. Tsubouchi, Y. Mokuno, “Microstructures of threading dislocation bundles included in CVD homoepitaxial diamond plates”, *Diamond and Related Materials*, 査読有 vol.78, 2017, 144-148.

DOI:10.1016/j.diamond.2017.07.007

N. Tsubouchi, Y. Mokuno, “Configuration of a single grown-in dislocation corresponding to one etch pit formed on the surface of CVD homoepitaxial diamond”, *Journal of Crystal Growth*, 査読有, vol.455, 2016, 71-75,

DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2016.09.030

N. Tsubouchi, Y. Mokuno, S. Shikata, “Characterizations of etch pits formed on single crystal diamond surface using oxygen/hydrogen plasma surface treatment”, *Diamond and Related Materials*, 査読有, vol.63, 2016, 43-46.

DOI: 10.1016/j.diamond.2015.08.012

[学会発表](計6件)

坪内信輝、小倉政彦、空野由明、牧野俊晴、CVD ホモエピダイヤモンド薄膜中に形成されるドーム状成長丘の微細構造、第64回応用物理学関係春期学術講演会、パシフィコ横浜(神奈川県)、2017年3月16日

N. Tsubouchi, Y. Mokuno, “Etch-pit and grown-in dislocations in CVD homoepitaxial diamond”, 2016 International Conference on Solid State Devices and Materials, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba,

2016.9.28.

N. Tsubouchi, S. Shikata, Y. Mokuno, “Evaluation of dislocations included in CVD single crystal diamond using etch pits formed by oxygen/hydrogen plasma treatment”, International Conference on New Diamond and Nano Carbons 2015, Shizuoka, 2015.5.27.

[図書](計1件)

N. Tsubouchi (分担執筆)、Woodhead Publishing、Power Electronics Device Applications of Diamond Semiconductors 1st Edition、2018、410ページ(p.137-153)

[産業財産権]

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

坪内 信輝 (TSUBOUCHI, NOBUTERU)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・主任研究員

研究者番号：10357535

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()