

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月15日現在

機関番号：14701

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560017

研究課題名（和文） 混晶化合物半導体における電子正孔生成消滅過程の研究

研究課題名（英文） Study on Creation and Annihilation of electrons and holes in Compound Alloy semiconductors

研究代表者

篠塚 雄三（SHINOZUKA YUZU）

和歌山大学・システム工学部・教授

研究者番号：30144918

研究成果の概要（和文）： $A_{1-x}A_x^*B$ 型の化合物混晶において対角的な乱れがある場合、ポテンシャルエネルギー ϵ_A と ϵ_{A^*} の相対位置が ϵ_B と比べてどこに位置するかによって、バンドギャップの組成依存性において1) 単調な変化をする混晶と2) 大きく湾曲しギャップがゼロになることもある混晶の2つに分けられることを理論的に示した。また、深い準位を介してキャリアの多フォノン放出非発光捕獲過程が引き起こす過程を解析し、格子振動の減衰時定数が長く、キャリア濃度が高くキャリア捕獲確率が大きい場合は、キャリアのコヒーレントな連続捕獲並びに格子振動の振幅増大（欠陥反応につながる）の可能性があることを示し、その条件（発生確率）を半定量的に明らかにした。

研究成果の概要（英文）：We have theoretically studied the electronic states in $A_{1-x}A_x^*B$ type compound mix crystal with diagonal disorder using an extension of CPA. We found that 1) if the potential energy ϵ_B is larger or less than both ϵ_A and ϵ_{A^*} , the electronic energy spectrum of the mix crystal shows monotonous change in the composition dependence. On the other hand, 2) if ϵ_B is located between ϵ_A and ϵ_{A^*} , the electronic energy spectrum shows a large band gap bowing and the band gap sometimes becomes zero. We also studied possibility of feedback and inflation mechanism among carrier captures by a deep-level defect and transient induced lattice vibrations using proper configuration coordinate diagrams for many carriers. Treating the lattice motion classically we selfconsistently simulated the time evolution of the interaction mode and a series of athermal captures of electron(s) and hole(s). When both the activation energies E_{acte} and E_{acth} are small, a series of successive athermal captures is enhanced and probable for high carrier densities, however, we found that the possibility of inflation in the amplitude of the lattice vibration critically depends on the minority capture rate and the relative width of the phonon frequency distribution.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：光物性

1. 研究開始当初の背景

発光ダイオードやレーザーなどの半導体発光素子に用いられている窒化物混晶半導体には、現在も未解決の3つの謎（混晶化した場合、band gap energyの組成比依存性が線形から大きくずれ、大きなband gap bowingを示す。発光始状態の起源が不明、欠陥密度が高いにも関わらず非輻射過程の確率が低い）が残っている。

2. 研究の目的

本研究は、混晶化した化合物半導体におけるキャリアの生成・消滅過程（光吸収と発光および非発光再結合）を対象に、モデル理論と第一原理計算の協力によって包括的な理論研究を行い、窒化物混晶半導体での未解決の3つの謎（大きなband gap bowing、発光始状態の起源、低い非輻射過程）の解明に取り組む。特に、帯間遷移光吸収スペクトルの計算に基づく窒化物混晶での大きなband gap bowingなど特異な物性の解明、欠陥反応のシミュレーションによる熱活性化型およびコヒーレント捕獲の可能性とそれを支配する要因を明らかにする。以上、混晶化合物半導体を用いた発光素子の効率向上に関する一般的な理論的指針を与えることを目的とする。

3. 研究の方法

【研究課題1】

まず、アモルファスを対象とした S. Abe と Y. Toyozawa による Two Band CPA の理論 (J. Phy. Soc. Jpn. **50** (1981) 2185) と申請者による拡張 CPA 理論を結合し、その定式化を試みる。具体的には、2元混晶 A_xB_{1-x} 系の電子状態に対して tight binding model (diamond, zincblende, wurtzite 構造) を用い、2体グリーン関数を近似的に求めることで Two Band CPA 方程式を導く。その際、(a) 価電子帯と伝導帯のポテンシャルの空間的相関、(b) site energy に関する対角的な乱れ、(c) transfer energy に関する非対角的な乱れに着目して方程式を解き、特に乱れの相関相関によ

る依存性を明らかにする。一般に Saxson-Huttner の定理により、理論的には $A_{1-x}B_x$ 混晶の 1電子エネルギー は A 結晶と B 結晶でのエネルギーバンドの和領域のみに限られる。したがって GaN_xP_{1-x} 混晶のような大きく、かつ $x=0.5$ に関して非対称な band edge bowing は One Band CPA では説明できない。どのような場合に E_g が大きな bowing を示すか、またどの組成比で E_g の最小化あるいは最大化が生じるか、その条件を明らかにする

【研究課題2】

混晶中のポテンシャルゆらぎが引き金となって生じる外因性自己束縛の出現条件を変分法を用いて理論的に求める。その際、(a) cation である III 族原子を置換して混晶化する場合、(b) anion である V 族原子を置換して混晶化する場合、(c) 両者とともに置換して混晶化する場合、のそれぞれに応じて、キャリア（電子、正孔）に対する有効ポテンシャルの符号の組み合わせが異なるため、状況に応じて発光始状態の多様性が期待できる。

【研究課題3】

典型的な格子欠陥（置換型不純物、空格子、antisite 欠陥など）において、局在電子状態の波動関数とエネルギー準位（禁制帯中の位置と荷電状態による変化）、欠陥まわりの局在格子振動モードの性質（実空間での変位様式）、および電子状態と格子振動の結合の強さ、について密度汎関数法を用いた第一原理計算を行い、定量的に明らかにする。

4. 研究成果

【研究課題1】

混晶量子井戸での電子状態に対して (a) transfer energy に関する非対角的な乱れ ($t_{AB} \neq t_{AA} \neq t_{BB}$) に対する CPA 方程式を導くこと、また $A_{1-x}A_x^*B$ 型の化合物混晶の対角的な乱れ ($\epsilon_A \neq \epsilon_{A^*}$) に対する CPA 方程式を導くことに成功した。これらについての結果は 2009 年秋の応物学会等において発表した。

$A_{1-x}A_x^*B$ 型の化合物混晶において対角的な

乱れがある場合、ポテンシャルエネルギー ϵ_A と ϵ_{A^*} の相対位置が ϵ_B と比べてどこに位置するかによって、1) バンドギャップの組成依存性において単調な変化をする混晶 (図1) と2) 大きく湾曲しバンドギャップがゼロになることもある混晶 (図2) の2つに分けられることを理論的に示した。これらについての結果は2010年秋の応物学会等において発表した。

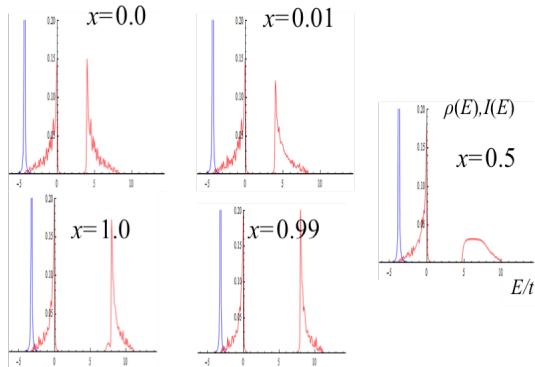


図1 組成比 x に対する状態密度 $\rho(E)$ と光吸収スペクトル $I(E)$ の変化。 $\epsilon_A = 4$, $\epsilon_{A^*} = 8$, $\epsilon_B = 0$ の場合。

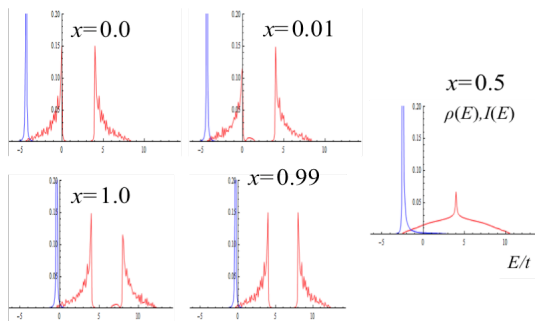


図2 組成比 x に対する状態密度 $\rho(E)$ と光吸収スペクトル $I(E)$ の変化。 $\epsilon_A = 0$, $\epsilon_{A^*} = 8$, $\epsilon_B = 4$ の場合。

【研究課題2】

については、研究を行ったが、残念ながら発表できるほどの進展は得られなかった。現在、引き続き研究中である。

【研究課題3】

化合物半導体中の典型的な格子欠陥（置換型不純物、空格子、アンチサイト欠陥など）において、禁制帯中の中程に位置する深い準位は欠陥まわりの格子変位と強く結びつくことが多く、欠陥増殖・生成反応の反応中心として働くことが多い。これら欠陥を介してキャリアの多フォノン放出非発光捕獲過程が引き起こす過渡的格子振動のダイナミクスについて、格子変位の配位座

標が様々な振動数をもつ基準振動の重ね合わせであることに基づき、シミュレーションを行った。その結果、格子振動の減衰時定数が長く、キャリア濃度が高く、したがってキャリア捕獲確率が大きい場合は、キャリアのコヒーレントな連続捕獲並びに格子振動の振幅増大の可能性があること (図3)、したがって欠陥反応が誘起される可能性を示し、その条件（発生確率）を半定量的に明らかにした (図4)。これらの結果はMRS2009年秋の年会 (Boston, USA) にての招待講演にて発表した。半導体発光素子の信頼性確保において不可欠となっているこの再結合促進欠陥反応の機構に関して、本科研費研究成果の取りまとめとして、シュプリンガー社から2012年発行予定の図書 (上田修, S. ピアートン編集) に総合報告を執筆した。また、第48回応用物理学会スクールにて「励起ナノプロセス入門—基礎と将来展望—」およびMRS (アメリカ材料科学学会) の2012年春の学会において成果の発表を行なった。

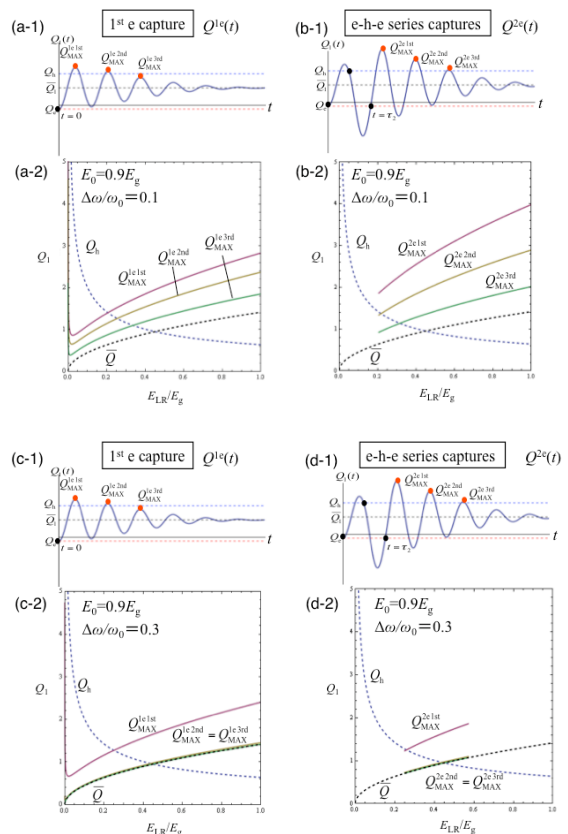


図3 キャリヤ捕獲が誘起する過渡的格子振動の最大振幅。(a) (c) electron 1個のみ捕獲されるときと (b) (d) electron-hole-electron と捕獲されるとき。

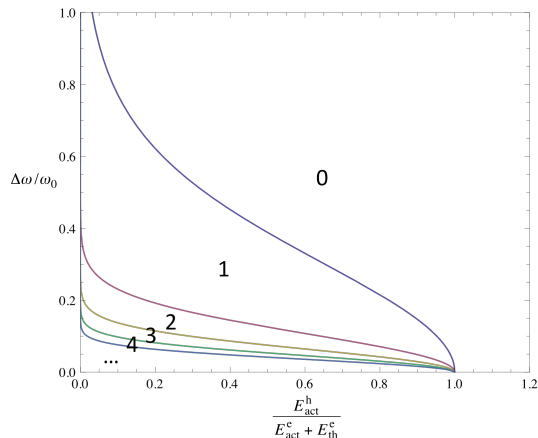


図4 e捕獲のあとの過渡的格子振動の間にhの非発光捕獲に必要な格子変位を通過する回数。横軸を $E_t^h / (E_{act}^e + E_{th}^e)$ に置き換えるとゼロでない領域では、1個のe捕獲で欠陥反応が生じることになる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計4件)

- ① K. Suzuki, M. Wakita and Y. Shinozuka, Feedback and Inflation Mechanism in Successive Multiphonon Carrier Captures at Deep-level Defects, 2012 MRS Spring Meeting proceedings 査読有 Symposium G (2012) 印刷中
- ② 原 愛美、篠塚雄三, 化合物混晶半導体の電子状態の理論, 光物性研究会論文集 査読無 Vol. 21 (2010) 158-161
- ③ Y. Shinozuka: Mechanisms of Recombination-enhanced Defect Reactions in Semiconductors, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 査読有 1195 (2010) B02-02.
- ④ 日野 篤、篠塚雄三: 化合物混晶半導体の電子状態の理論, 光物性研究会論文集 査読無 Vol. 20 (2009) 365-368

[学会発表] (計9件)

- ① 鈴木圭以、篠塚雄三, 半導体中の欠陥反応の機構, 第59回応用物理学会 18p-E1-1, 2012年3月18日 早稲田大学
- ② 鈴木圭以、篠塚雄三, 半導体中の欠陥反応の機構, 第7回励起ナノプロセス研究会 2011年11月1日 堺市国際障害者交流センター
- ③ 篠塚雄三, 励起ナノプロセス入門「総

論」第48回応用物理学会スクール(招待講演)2011年8月29日 山形大学

- ④ 原 愛美、篠塚雄三, 化合物混晶半導体の電子状態の理論, 第20回光物性研究会 2010年12月11日 大阪市立大学
- ⑤ 原 愛美、篠塚雄三, 混晶半導体の電子状態の理論的研究, 応用物理学会2010年度秋季大会 2010年9月16日長崎大学
- ⑥ 日野 篤、篠塚雄三, 化合物混晶半導体の電子状態の理論, 第20回光物性研究会 2009年12月12日 大阪市立大学
- ⑦ Y. Shinozuka, Mechanisms of Recombination-enhanced Defect Reactions in Semiconductors, Materials Research Society 2009 Fall Meeting, 30 Nov. 2009, Sheraton Hotel Boston USA
- ⑧ M. Negoro, S. Matsutani, T. Higashi, and Y. Shinozuka, Mechanism of Capture-Enhanced Defect Reactions in Semiconductors, Int. Symposium on the Physics of Excitation-assisted Nano-processes 20 Nov. 2009, Daiwa Roynet Hotel, Wakayama, Japan
- ⑨ 日野 篤、篠塚雄三, 化合物混晶半導体の電子状態の理論, 応用物理学会2009年度秋季大会 2009年9月10日富山大学

[図書] (計1件)

- ① Y. Shinozuka, "Mechanism of Defect Reactions in Semiconductors" in "Reliability and Materials Issues of Optical Devices" Ed. by O. Ueda and S. Pearton (Springer Verlag, 2012) 印刷中

[その他]

ホームページ等

<http://www.wakayama-u.ac.jp/~yuzo/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

篠塚 雄三 (SHINOZUKA YUZO)
和歌山大学・システム工学部・教授
研究者番号: 30144918

(2) 研究分担者

小田 将人 (ODA MASATO)
和歌山大学・システム工学部・助教
研究者番号: 70452539