

ラマン散乱を用いて SiC の物性をどのように評価するか (連載 その 3 : 後半)

中島信一 大阪大学 名誉教授

三谷武志 産業技術総合研究所

3. SiC の伝導性をどのようにして評価するか

3.3 高精度キャリア濃度決定法と移動度の推定

キャリア濃度および移動度をより精密に求めるためにはキャリア減衰、フォノンの減衰を考慮に入れた誘電関数を使って解析することが必要です[2,3,4]。これらの減衰定数を取り込んだ誘電関数を拡張誘電関数(extended dielectric function)と呼びますが、この拡張誘電関数を用いたLOPCモードの強度プロファイル計算式が中島ら[2,3,4]によって導出されています。この計算式を、測定したLOPCモードのラマンスペクトルに適用して形状をフィットさせ、プラズマ振動数 ω_p 、減衰定数 γ 、 Γ_L 、 Γ_T の最適値及びキャリア濃度を求めます。キャリア減衰定数 γ は移動度 μ に関係していて、 $\mu = e/m^* \gamma$ と表記されますから、 γ の最適値から移動度が求まります。またプラズマ振動数 ω_p とキャリア濃度 n とは式

$\omega_p^2 = \frac{4\pi n e^2}{\epsilon_\infty m^*}$ に関係しているので、フィッティングからキャリア濃度が推定できます。

3.4 ラマン移動度とホール(Hall)移動度

種々のキャリア濃度を持つn型4H-SiCに対し、この手法で求めた移動度をキャリア濃度の関数としてプロットしたのが図4です。比較のため電氣的な測定で求めた移動度が丸、三角、四角印でプロットしてあります。「その 3(前半) SiC の伝導性をどのようにして評価するか」で述べたように、ラマン測定と電気測定(C-V 測定、ホール測定)から得られたキャリア濃度はほぼ一致しています。それに対して、キャリア濃度が比較的低い場合には、図 4 に示すようにラマン測定から得られた移動度(ラマン移動度)はホール移動度(Hall mobility)に近づいていますが、キャリア濃度が高い場合には実測ホール移動度よりも小さくなる傾向があります。

ラマン測定から求めた移動度は光学移動度(optical mobility)とも呼ばれていて、これはドリフト移動度(drift mobility)に対応していますが、ホール移動度と同じような値を取るかどうかは未だ分かっていません。SiC 以外の半導体に対しても、ラマン移動度とホール移動度の値が違う場合があることが報告されています[10-13]。この問題に関してもまだ議論が続いていますが、その理由の一つとして考えられるのがドリフト移動度(drift mobility)とHall 移動度の違いです。ラマン散乱から得られた移動度は高周波領域でのドリフト移動度であって、ホール移動度と異なる事が起こり得ます。ホール移動度 μ_H 、ドリフト移動度 μ とホール因子 r_H (Hall scattering factor)の間には $\mu_H / \mu = r_H$ の関係があります[13,14]。

通常は $r_H = 1$ と仮定することが多いのですが、キャリアの散乱機構が変わると $r_H \neq 1$ となることや、ラマン解析から求められた移動度が Hall 移動度と異なるとする報告 [10-13] もなされています。ホール移動度は DC 測定法によるものであるのに対して、ラマン移動度は高周波(可視光)測定の結果に由来しているため、同一の値となるか分かりません。さらにホール移動度はキャリアとフォノンやイオン化不純物との散乱に由来するのに対して、ラマン(光学)移動度はプラズモン減衰に関係していることを考えれば、両者に違いがある事は妥当かもしれません。今後の検討が望まれます。

3.5 p型 SiC におけるキャリア(正孔)濃度の推定

p 型 SiC の場合、LOPC モードは一成分 (ω_+ モード)だけが観測されますが、n型の場合と違って ω_+ モードのピーク振動数は正孔濃度が変わってもほとんど変化しません。従って、p型 SiC では LOPC モードをモニターとして電気伝導度の解析を行うことは容易ではありません。p 型 GaAs 半導体では一般にキャリア(正孔)濃度が増加すると LOPC モードの振動数はわずかに高波数側にずれ、さらに正孔濃度の増加すると振動数は減少し、裸の LO モードと TO モードの中間振動数領域まで下がり、高濃度領域では TO モードに接近する事が観測されます。このような p 型半導体の LOPC モードの振る舞いに対して多くの人によって、解析が行われています。p 型半導体の LOPC モードの振る舞いが n 型の場合に比べて大きく異なる事については色々な解釈がなされていますが、共通した考えは正孔プラズマの減衰が大きく、結合モードがフォノンの性格を強く持つため、LOPC モードの振動数が大きく変化せず、それが TO-LO フォノンの近くに存在するというものです[12]。

今まで述べたように p 型 SiC では、図 5 に示すように LOPC モードの振動数はキャリア濃度を変えても顕著に変化しません。しかし LOPC モードの半値幅はキャリア濃度が増加すれば、図 5[15,16]に示すように増加します。従って半値幅の測定値から正孔濃度を推定する事は可能です。しかし半値幅の値は測定条件によって変わりやすく、より正確な正孔濃度を求めるためには後で述べるように FTA モードのファノ干渉効果を利用した方が良いでしょう。

3.6 Fano 干渉による 4H-SiC のキャリア濃度評価

LOPC モードによる伝導性評価は、これまで紹介した通り理論・実験の両面から研究が進められており、比較的簡便且つ信頼性のある評価方法になっています。しかしながら、「その 3(前半) SiC の伝導性をどのようにして評価するか」の図 1 に示したように、n 型 SiC ではキャリア濃度が増大すると共に LOPC モードの非対称ブロードニングが大きくなり、ラマン強度もかなり弱くなるため、キャリア濃度が 10^{18}cm^{-3} 台の後半以降は評価が困難になるという側面もあります。一方、デバイスとしてはさらなる抵抗低減が重要ですから、より低抵抗の SiC 基板評価が今後必要になってきます。4H-SiC では 200cm^{-1} 近くの低波数領域に見られる FTA (折り返し音響) モードに対し Fano 干渉効果が現れます。ここではラマン散乱による低抵抗結晶の評価法として、この FTA モードの Fano 干渉効果を用いたキャリア濃度

評価方法 [16,17]について紹介したいと思います。この方法は比較的高レベルにドーピング(不純物濃度 10^{18} cm^{-3} 以上)された結晶であれば、p 型、n 型の両方に対し伝導性の評価が可能になります。

高キャリア濃度 SiC 結晶のラマン散乱では、連続的な電子励起と離散的なフォノンのエネルギーが同じエネルギーレベルに重なっている場合、離散準位(フォノン)のスペクトルに非対称なブロードニングやスペクトルのピーク位置の変化が起こりますが、これが Fano 干渉効果とよばれています[18]。この Fano 干渉は、Si をはじめとした半導体や BaTiO₃ などの強誘電体でも多く観測されています。図 6 に n 型(Nドーブ)と p 型(Alドーブ) 4H-SiC 結晶に対して、FTA モード形状のキャリア濃度依存性を示しました。キャリア濃度の増大と共に、FTA モードが低波数側へシフトし、且つ非対称なスペクトル変形が生じていることが分かります。このスペクトル形状を Fano の式[16-18]を用いて形状フィッティングを行い、干渉パラメータを決めます。n 型、p 型試料で、この干渉パラメータのキャリア濃度依存性が求められていますので、キャリア濃度が未知の試料でも FTA モードの形状フィッティングから最適パラメータを求めれば、それからキャリア濃度が推定できます。Fano 干渉パラメータのキャリア濃度依存性は、n 型、p 型 4H-SiC で若干違っていますが、これは電子-格子相互作用が両者で異なっているためと思われます。Fano 干渉効果から求められるキャリア濃度は電子、正孔に対して $5 \times 10^{17} \sim 5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ の領域にあり、その濃度推定の精度は高いと考えられます。解析の詳細については文献[16,17]を参照して下さい。

文献(3.前半部と 4.後半部共に記載)

- [1] A. Mooradian and A. L. McWhorter, Phys. Rev. Lett. 19, 849 (1967).
- [2] S. Nakashima, T. Kitamura, T. Mitani, H. Okumura, M. Katsuno and N. Ohtani, Phys. Rev. B 76, 245208 (2007).
- [3] S. Nakashima and H. Harima, J. Appl. Phys. 95, 3541 (2004).
- [4] A. J. Sievers and J. P. Page, Phys. Rev. B 41, 3455 (1990).
- [5] N. T. Son, W. N. Chen, O. Kordina, A. O. Konstantinov, B. Monemar, E. Janzén, D. M. Hofman, D. Volm, M. Drechsler, and B. Meyer, Appl. Phys. Lett. 66, 1074 (1995).
- [6] S. Nakashima, T. Kitamura, T. Kato, K. Kojima, R. Kosugi, H. Okumura, H. Tsuchida, and M. Ito, Appl. Phys. Lett. 93, 121913 (2008).
- [7] C. Wetzal, W. Walukiewicz, E. E. Haller, J. Ager III, I. Grzegory, S. Porowski, and T. Suski, Phys. Rev. B 53, 1322 (1996).
- [8] H. Yugami, S. Nakashima, A. Mitsuishi, A. Uemoto, M. Shigeta, K. Furukawa, A. Suzuki, and S. Nakajima, J. Appl. Phys. 61, 364 (1987).
- [9] T. Kozawa, T. Kachi, H. Kano, Y. Taga, M. Hashimoto, N. Koide, K. Manabe, J. Appl. Phys. 75, 1098 (1994).

- [10] G. Irmer, M. Wenzel, and J. Monecke, Phys. Rev. B 56, 9524 (1997), G. Irmer, W. Siegel, G. Kühnel, J. Monecke, F.M. M. Yasuoka, and V.V. Toporov, Semicond. Sci. Technol. 6, 1072 (1991).
- [11] Y. C. Lin, C. H. Chiu, C. Fan, C. H. Chia, S. L. Yang, D. S. Chuu, M. C. Lee, W. K. Chen, W. H. Chang, and W.C. Chou, J. Appl. Phys. 102, 123510 (2007).
- [12] R. Fukasawa, Phys. Rev. B 50, 14119 (1994).
- [13] G. Ng, D. Vasileska, and D. K. Schroder, J. Appl. Phys. 106, 053719 (2009).
- [14] G. Irmer, W. Siegel, G. kuhnel, J. Monecke, M. M. Masuoka, B. H. Bairamov, and V. V. Toporov, Semicond. Sci. Technol. 6, 1072(1991).
- [15] R.Müller, U. Künecke, A. Thuairé, M. Mermoux, M. Pons, and P. Wellmann, phys. stat. sol. (c) 3, 558, (2006).
- [16] T. Mitani, S. Nakashima, M. Tomobe, J. Shi-yang, K. Kojima, H. Okumura, Mater. Sci. Forum, 778-780, 475 (2014).
- [17] T. Mitani, S. Nakashima, K. Kojima, T. Kato and H. Okumura, J. Appl. Phys. 112, 043514 (2012).
- [18] F. Cerdeira, T. A. Fjeldly, and M. Cardona, Phys. Rev. B 8, (1973) 4734.

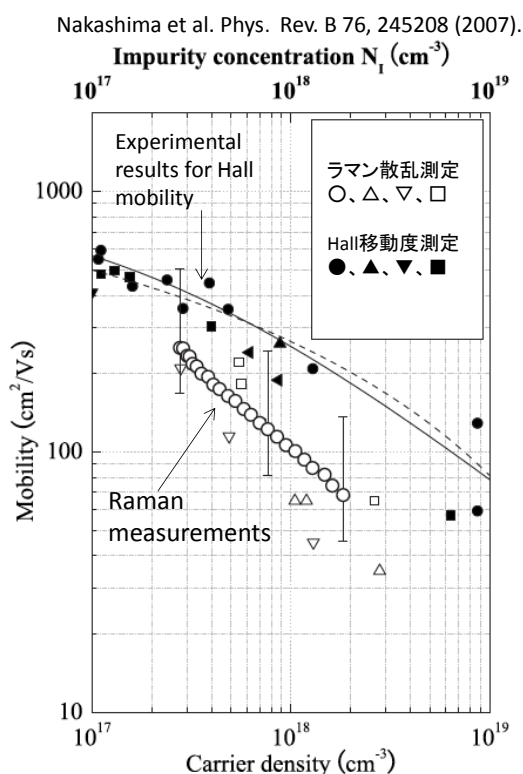


図4 キャリア濃度勾配を持つ4H-SiCのLOPCの解析から求めたラマン移動度のキャリア濃度依存性。マークをつけたのは多くの人によって測られたHall移動度のデータ[2]。

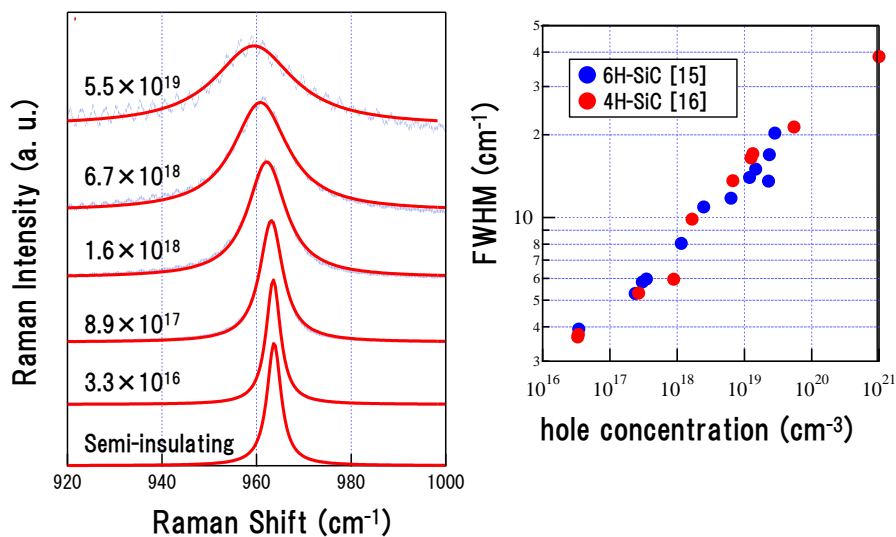


図5 (a)種々の正孔濃度を持つp型4H-SiCにおけるLOPCモードのラマンスペクトル[16,17]、(b)LOPCモードの半値幅(FWHM)の正孔濃度依存性。

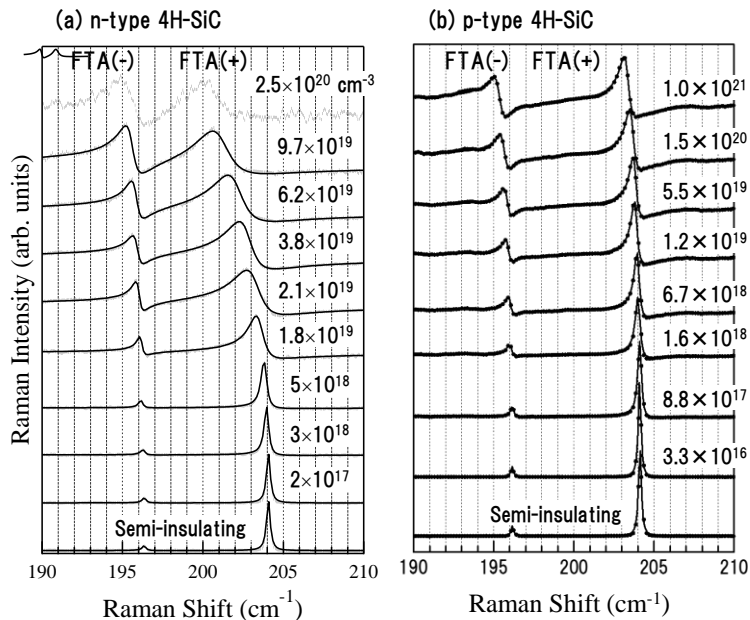


図6 種々のキャリア濃度の4H-SiC結晶のFTAのFano干渉スペクトル。(a)Nドーピングのn型結晶、(b)Alドーピングのp型結晶。