

n-InSb における 横磁気フォノン共鳴の測定

藤 澤 功 ・ 長 濱 治 男

Measurement of Transverse Magnetophonon Resonance for n-Type InSb

Isao FUJISAWA, Haruo NAGAHAMA

Measurement of the transverse magnetophonon resonance up to 1.8T has been performed between 55 and 112K with a number of n-InSb samples having carrier concentration in the range from $n=3\times 10^{13}\text{cm}^{-3}$ to $7\times 10^{14}\text{cm}^{-3}$. An empirical formula, $\Delta\rho_{\text{osc}}/\rho_0=A\exp(-\gamma N)\cos(2\pi\omega_0/\omega_c)$, is confirmed for the harmonic number $N\geq 3$, where $A\approx 1$ at 77K, the lowest damping factor γ (77K)=0.7 at $n=n_c\approx 1\times 10^{14}\text{cm}^{-3}$, $\gamma\propto n^{0.4}$ for $n>n_c$, $\gamma\propto 1/n^{0.2\sim 0.25}$ for $n<n_c$. Thus the maximum amplitude $\Delta\rho_{\text{osc}}/\rho_0$ at $N=3$ and $T=77\text{K}$ is about 12%. It is also disclosed that the optimum temperature for $N=3$ peak to be maximized is about 90K. The band-edge effective mass ratio of the electrons, which is slightly temperature dependent, is found to be 0.0135 at 77K and 0.0133 at 112K.

1. は じ め に

磁気フォノン共鳴 (Magnetophonon Resonance —以下 MPR と略す) は, 磁気抵抗が磁界の増加に伴い振動的に変化する現象で, 最初 Gurevich と Firsov¹⁾によって理論的に予言され, その後間もなく n-InSb において実際に観測された^{2,3)}。以後, MPR は半導体の様々な特性を研究するための有効な手段として知られるようになった。すでに Peterson⁴⁾によって解説されているように, 様々な方法によって数多くのデータが蓄積され, 有効質量, 変形ポテンシャル, 不純物レベルなどのバンドパラメータや, フォノン構造, 電子-フォノン相互作用の研究などにも広く応用され, 興味深い問題である。

しかし, これらの広範囲にわたる精力的な調査・研究にもかかわらず, 振動の大きさに関するものは少なく, 純度の高い単結晶でその振幅がどれくらいにまでなり得るのかといった定量的な知識はほとんどない。

n-InSb は等方的なバンド構造をもち, 結晶作製に関しても他の III-V 族化合物半導体に比べて

純度の高い単結晶を容易に得ることができる。また、伝導電子の移動度がこれらの中で最も大きい
ため、MPR のような量子化伝導を観測するのに好都合な半導体であると考えられる。しかし、
n-InSb における MPR の振幅に関しては、この半導体で最も早く観測されたにもかかわらず、こ
れまで実験的にあまり調べられていないため理論との対応づけが十分になされていない。また、
結晶の純度の目安とされているホール移動度は、結晶の不均一性の効果により高めに算出される
場合があり⁵⁾、もし振幅の大きさに関する定量的な知識が確立されるならば、この MPR は結晶評
価の有効な手段となるであろう。

本稿では、多数の n-InSb 試料を用いて、電流方向と磁界方向が互いに直交配置である横 MPR
の振幅の大きさについて、その 77K におけるキャリア濃度依存性、ホール移動度依存性、及び
55~112K の範囲での温度依存性の測定結果を紹介する。そして、結晶内の緩和時間が MPR の振
幅に大きな影響を与えることから、結晶評価への応用についても検討し、更に共鳴ピークの位置
から有効質量を算出する。

2. 磁気フォノン共鳴

MPR は強磁界中で伝導電子が LO フォノンの吸収・放出を伴って、量子化されたランダウ準位
間を共鳴的に遷移することによって生じる。横 MPR でその共鳴条件は、

$$\omega_0 = N\omega_c = NeB/m^* \quad (1)$$

の関係式で与えられる。ここで、 ω_0 は LO
フォノンの角周波数、 ω_c はサイクロトロン
の角周波数、 N はハーモニクナンバーと
呼ばれる整数である。(1) 式が成り立つ条
件のもとで、LO フォノンによる電子の散
乱が共鳴的に増大し、磁気抵抗は極大を示
す。それは図-1 に示すように、遷移の始
状態および終状態の状態密度がともに、散
乱による準位の広がりを考慮しなければ、
 $k_H = 0$ のところで発散しているためであ
る。LO フォノンによる散乱の効果を調べ
るには量子論の計算によらねばならないが、

Gurevich ら¹⁾の理論では、共鳴点において磁気抵抗が発散する結果となっている。しかし、実際
には散乱による影響で、無限に鋭いエネルギー準位は一定量 Γ で広げられるため、磁気抵抗は \cos
関数的な振動を示す⁶⁾。

n-InSb の場合、伝導帯が大きな非放物線性をもつため、ピーク位置は N の小さなもののほど(1)
式で与えられる磁界より高磁界側にずれてくる。非放物線性の考察には、Kane のバンド理論が有
効である。Palic⁷⁾はこの理論を n-InSb の伝導帯に関して、

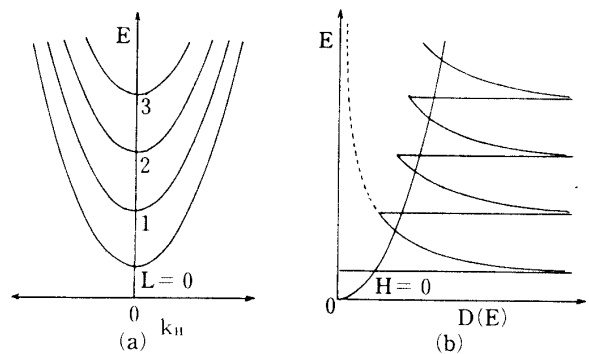


図-1 ランダウ準位のエネルギー (a)
および状態密度 (b)

$$E_L = -\frac{1}{2}E_G + \frac{1}{2}E_G \left\{ 1 + 4\left(L + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{4}g \frac{m^*}{m}\right) \frac{\hbar\omega_C}{E_G} \right\}^{1/2} \quad (2)$$

の単純な式で表した。ここで、 E_G , g , L はそれぞれバンドギャップ、実効 g ファクタ、ランダウ量子数である。非放物線性の効果を考慮した共鳴磁界の変化は、Kahlert⁸⁾によって計算されている。

3. 実験方法

3. 1 試料

測定には、モンサント、東芝総合研究所、住友電工社、および玉川大学工学部において作製された n-InSb 単結晶を用いた。試料は、その中においてキャリア濃度勾配を最小にするために、結晶の成長方向に対して垂直な面から切り出したウェーハから、厚さ 0.5mm, 幅 1 mm, 長さ 4 mm のブリッジ型に超音波加工したものである。n-InSb の伝導帯は丸いバンドをもつため、試料の電流方向がどの結晶軸方向に対応するかについては、特別な注意は払わなかった。寸法は遊尺顕微鏡およびダイヤルゲージにより測定し、電極の金線は In で合金接合した。これらの試料のキャリア濃度 n とホール移動度 μ はそれぞれ $3 \times 10^{13} \sim 7 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$, $3 \times 10^5 \sim 1 \times 10^6 \text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ の範囲で、77K のホール係数と伝導率から求めている。

3. 2 磁界

磁界には、磁極の直径が 25cm, ギャップが 6 cm で、1.8T まで発生できる電磁石を用いた。磁束密度は n-Ge のホール素子によるデジタルガウスメータを用いて測定した。このホール素子は、磁束密度が 0.1~1.8T の範囲で水素と重水素の核磁気共鳴により校正しており、この範囲内での磁束密度の測定誤差は 0.5% 以下におさえることができる。n-InSb の横 MPR に対して、この磁束密度は (1) 式での $N \geq 2$ の共鳴を生じさせることができるが、ほとんどの測定は $N \geq 3$ について 0.3~1.4T の範囲で行ったため、磁束密度の測定誤差は 0.1% 以下である。

3. 3 測定方法

横 MPR の振動は、磁界の増加に伴い単調に増加する磁気抵抗の上に重ね合わされた小さな振動現象である。この微弱な振動成分を正確に測定するために、今回は、InSb 試料に抱き合わせて置かれたホール素子からのホール電圧で磁気抵抗の単調増加成分を打ち消す、差動法⁹⁾を採用した。また、ホール素子には、磁界の変化に対しての直線性がよい n-GaAs ($n = 6 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$) を用いた。

差動法により測定した一例を図一 2 に示す。縦軸は、振動の振幅を定義するため、磁気抵抗の変化 $\Delta\rho = \rho_H - \rho_0$ を零磁界の抵抗 ρ_0 で規格化してある。共鳴磁界と振幅は以下の方法で決定した。図に示したように、まず全ての極大極小にそれぞれ接するように滑らかな曲線を引く。そして、それらの 2 つのエンベロープのちょうど中間に参照曲線を引き、その参照線と平行な線が個々のピークに接した点を共鳴位置とした。また、振幅はそれぞれピークにおいて極小点を通るエンベ

ロープからのずれが最大となるものを採用した。図中の垂線は、上記の方法で決定した $N=4$ に対する振幅の大きさを示す。

4. 実験結果

図-3は $T=77K$, $N=3$ の振幅 $\Delta\rho/\rho_0$ がホール移動度とどのように関係するかを示したものである。高い移動度の試料ほど振幅が大きくなるという傾向がみられる。しかし、同じ移動度をもつ試料間において、それらの振幅に大きな違いがある。緩和時間がレベルの広がり即ち振幅の大きさに相関するため、それらの中で最も大きなものが、関連した移動度に対して実際の振幅となるべき値である。即ち、図の最高点を結ぶエンベロープが現在入手可能な結晶で得られるホール移動度と振幅の理想的な関係を与えている。

図-4はキャリア濃度の関数として上記の振幅を示したものである。ここにおいてもまた同じキャリア濃度の試料で振幅に大きな違いがみられる。この結果から横 MPR が関与する限り、 $n=1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ をわずかに下まわったキャリア濃度付近の結晶が最良であると推測できる。ここで、この濃度を n_c と命名する。

図-5は、いくつかの代表的な試料でのハーモニックナンバー N と振幅の関係の一例を示したものである。測定温度は $77K$ であるが、A の試料については $112K$ での結果も示した。 $N \geq 3$ のピークにおいて、 N 番目の振幅が $\exp(-\gamma N)$ に比例しており、振動項は次の経験式

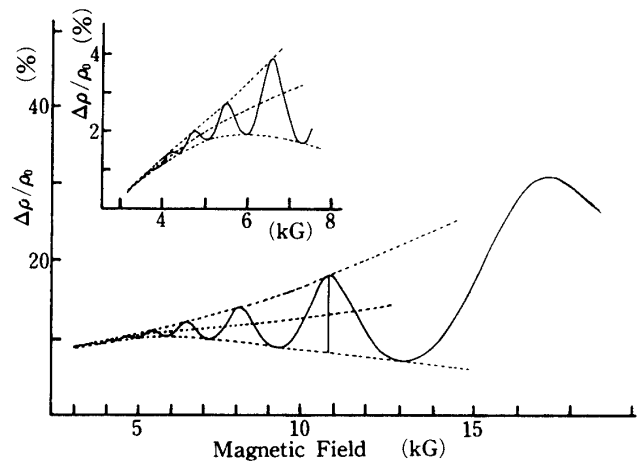


図-2 横 MPR の振動の記録

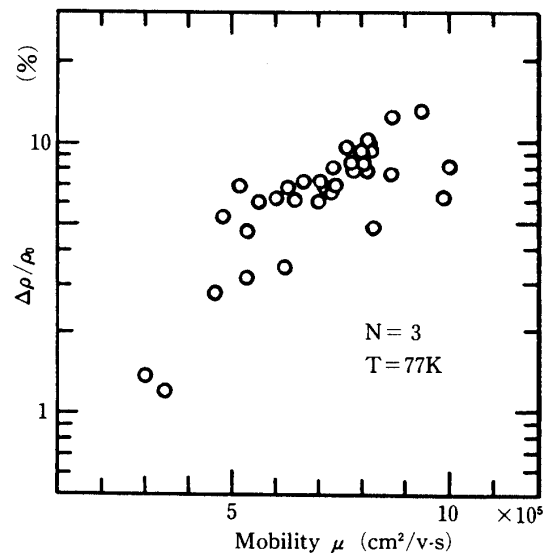


図-3 $N=3$ に対する振幅の移動度依存性

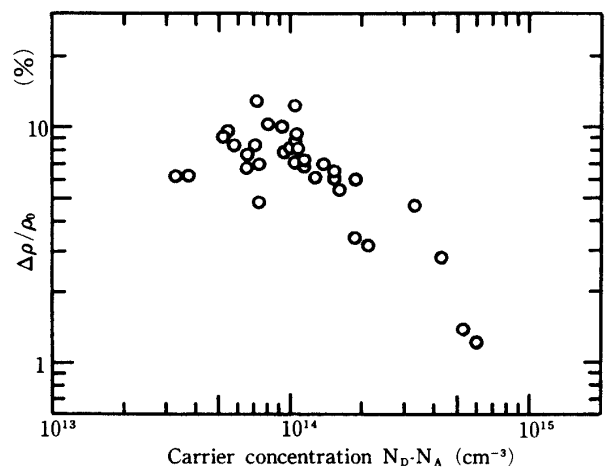


図-4 $N=3$ に対する振幅のキャリア濃度依存性

$$\frac{\Delta\rho_{osc}}{\rho_0} = A \exp(-\gamma N) \cos(2\pi \frac{\omega_0}{\omega_c}) \quad (3)$$

をよく満足することがわかる。ここで、 γ はともに定数である。前者Aは、図の直線を $N=0$ へ外挿して求められ、 $T=77K$ では約1となる。この定数Aは温度の降下に伴い減少するという結果が得られたが、これは低温側でLOフォノンの励起が弱くなるためと説明できる。後者の定数 γ はダンピングファクタと呼ばれるもので、磁界の減少(N の増加)に伴った振幅の減衰の度合いを決定する重要なパラメータである。 γ は図-5の傾きから直接求められ、キャリア濃度や移動度だけでなく温度にも依存する。一般的に γ の値は高い移動度をもつ試料ほど小さく、振動は緩やかに減衰し、温度上昇に伴い増加する。

77Kで得られた γ の値をキャリア濃度に対してプロットすると、図-6に示したように、その特性には、(I)上で定義した n_c 付近でダンピングが最小となる、(II)

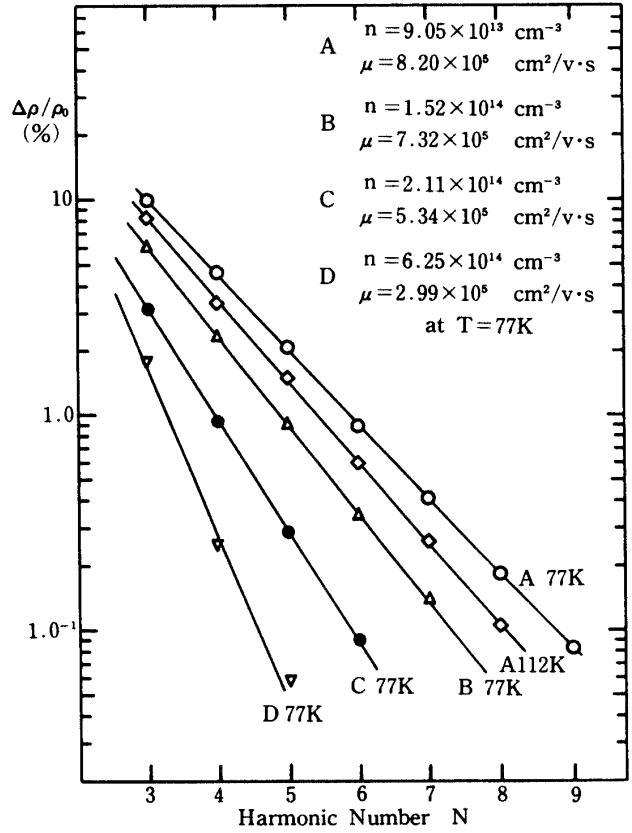


図-5 $N \geq 3$ のハーモニクナンバー対振幅特性

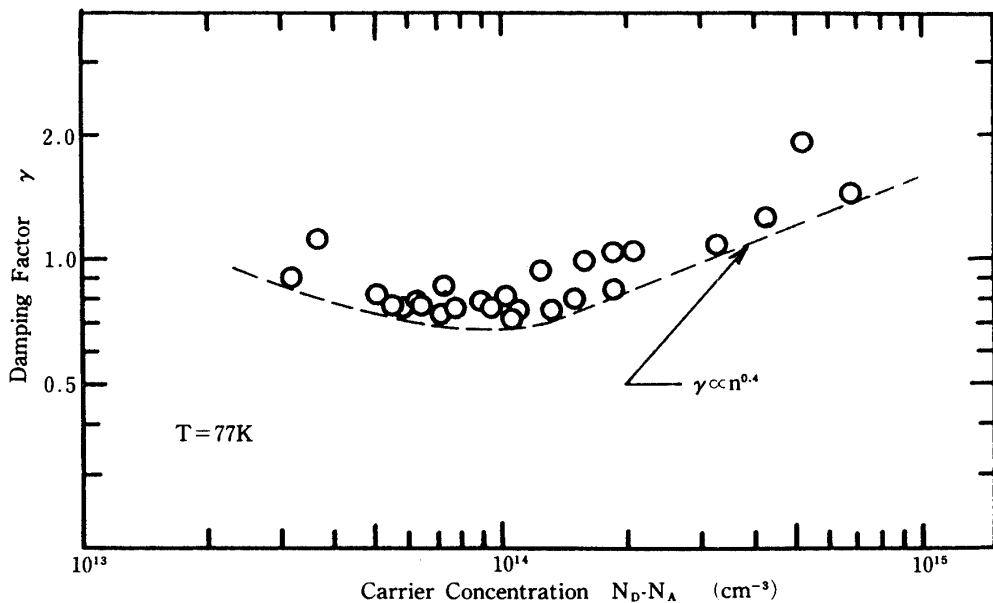


図-6 ダンピングファクタ γ のキャリア濃度依存性

$n > n_c$ の領域で $\gamma \propto n^{0.4}$ の依存性がみられる、
(III) $n < n_c$ の領域で再び γ がわずかに増加するなどの注意すべきいくつかの特徴があらわれる。ここでは、散乱が γ を大きくさせる方向に働くため、測定点の下限のエンベロープが理想的な $n-\gamma$ 特性を表している。

図-7はキャリア濃度が異なる3つの試料について、 $N=3$ に対する振幅の温度依存性を示したものである。試料のキャリア濃度や移動度に関係なく、約90K付近で $\Delta\rho/\rho_0$ は最大となる。これは、低温側ではLOフォノンの数によって、高温側では散乱によるダンピングの増加でそれぞれ制限されるためである。

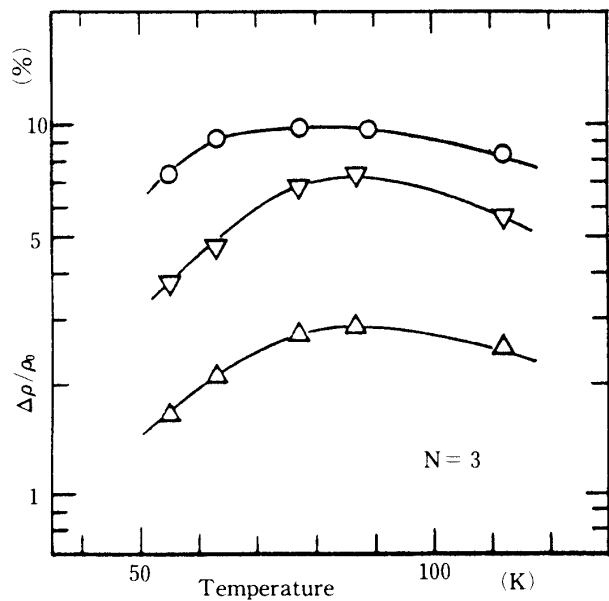


図-7 $N=3$ の振幅の温度依存性

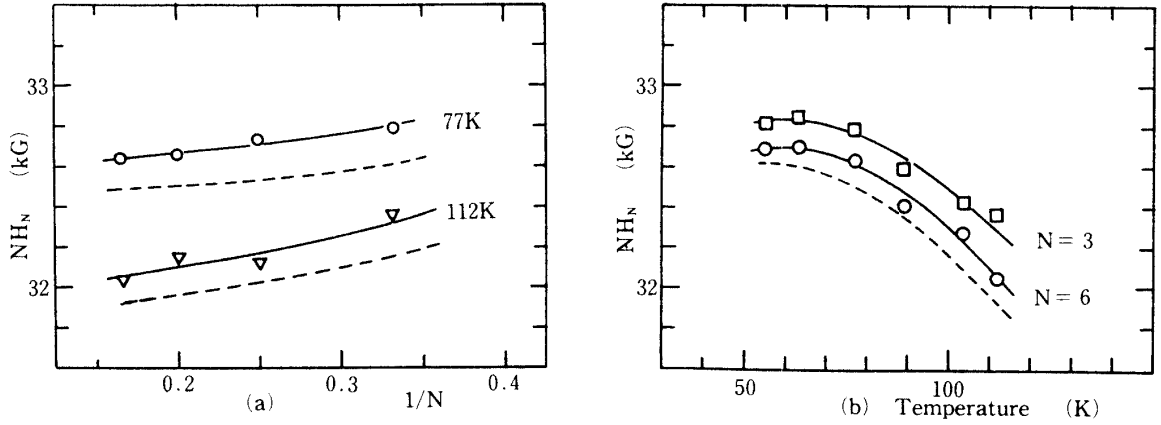
5. 考察

5.1 不均一性の効果

散乱の存在が無限に鋭いランダウ準位のブロードニングを引き起こし、結果的にMPRの振幅を有限な大きさに押さえている。従って、結晶内の緩和時間に大きく依存する振幅やダンピングの大きさから、その試料の純度や結晶性を評価することは大変価値のあるものである。

ホール係数と零磁界での抵抗率から算出している、いわゆるホール移動度が、結晶純度の重要な尺度として一般的に用いられているが、この移動度の信頼性を確認する意味で、図-3が大変役に立つ。図に示したように、同じホール移動度をもつ試料間で、その振幅 $\Delta\rho/\rho_0$ に大きな相違がみられた。これは、振幅の小さい方の試料において、不均一性の効果とその試料の移動度を実際の値より高めに算出させる⁹⁾ためと考えられる。こういった結晶の不均一性は、ジグザグな電子の流れを引き起こし、例えば、縦負磁気抵抗効果を妨げるといった働きもする¹⁰⁾。

図-4及び図-6にみられる $n < n_c$ でのダンピングの増加は、その領域でホール移動度が減少していることから考えて、 n_c 以下のキャリア濃度の減少が補償効果によりもたらされたものであると推測することができる。このキャリア濃度領域の試料を200℃で約1週間熱処理すると、 $5 \times 10^{13} \text{cm}^{-3}$ 程度の補償アクセプタ濃度の減少がある^{11,12)}。MPRの測定結果でも、最高20%の γ の減少 ($\gamma_{\text{before}} = 0.92 \rightarrow \gamma_{\text{after}} = 0.73$) が得られた。結果として熱処理後の $\Delta\rho/\rho_0$ や γ は、図-3, 4, 6のそれぞれ上限・下限に近づき、測定点のバラツキが少なくなる傾向がみられた。これらの事実から、 $n < n_c$ での残留不純物は結晶の不均一性によって形成される深い準位のアクセプタであると考えられる。従ってこれらの図から、現在入手可能な最高純度の $n\text{-InSb}$ 結晶は、キャリア濃度が $1 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$ 、77Kのホール移動度が $8 \times 10^5 \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ である。



(a) NH_N - $1/N$ 特性

(b) NH_N -温度特性

図-8 ハーモニックナンバーN と共鳴磁場の積の変化

5. 2 有効質量の算出

MPR のピークに対する磁場から、伝導帯の底の有効質量を求めることができる。図-8 は、共鳴磁場の値を個々のピーク位置 (磁場) とそのハーモニックナンバーの積 NH_N で表したものである。InSb の伝導帯が大きな非放物線性を持つため、 NH_N は N の値で一定とはならない (図-8 (a))。またピーク位置は温度に依存し、60K から110K に上昇したとき15%低磁場側へシフトした (図-8 (b))。さらに、観測されるピーク位置は、振動の減衰率が大きくなると式 (1) で与えられる磁場より高磁場側へずれてくる。式 (3) より、 $\Delta\rho_{osc}/\rho_0$ は

$$\tan(2\pi\frac{\omega_0}{\omega_c}) = -\frac{\gamma}{2\pi} \quad (4)$$

を満足する磁場で極大となる。このダンピングによる補正は図-8 において破線で示した。

有効質量は、LO フォノンエネルギーの温度依存性を考慮し、式 (2) を用いて非放物線性の補正を行って決定した。その結果を図-9 に示す。図の破線は Kane のバンド理論から得られる

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{m} + \frac{2P^2}{3\hbar^2} \left(\frac{2}{E_G} + \frac{1}{E_G + \Delta} \right) \quad (5)$$

によって、 $P^2=20\text{eV}$, $\Delta=1.0\text{eV}$, $E_G(0)=0.23\text{eV}$, $E_G(T)=-0.96 \times 10^{-4}\text{deg} \cdot \text{K}^{-1}$ として計算したものである。今回の MPR によって得られた有効質量比は、77K で $m^*/m=0.0135$, 112K で $m^*/m=0.0133$ である。この値の理論値からのずれは、77K で1.05%, 112K で0.6% となる。

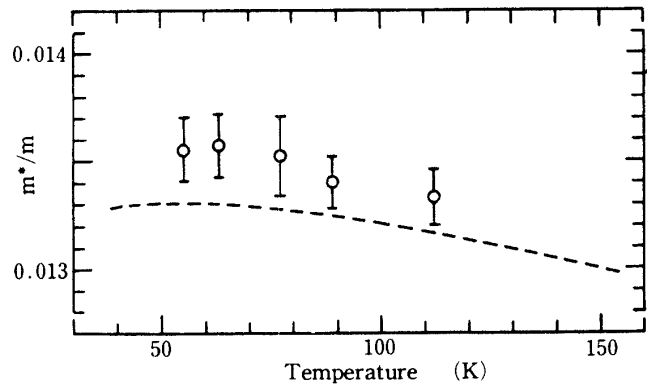


図-9 有効質量比の温度依存性

6. ま と め

横 MPR の最も信頼できる振幅の大きさがどれくらいになるかを調べるために、多数の n-InSb 試料を用いて実験を行った。その結果、次の特徴を確認した。

(1) 77K で、 $N = 3$ の共鳴ピークは $n = n_c \doteq 1 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$ 付近で最大となり、その大きさは約 12% となる。

(2) $N \geq 3$ の振幅について、経験式、

$$\Delta\rho_{\text{osc}}/\rho_0 = A \exp(-\gamma N) \cos(2\pi\omega_0/\omega_c)$$

は振動成分をよく満足し、 $T \geq 77\text{K}$ で A は約 1 となる。

(3) 77K の γ は $n = n_c$ で最小となり、その値は約 0.7 である。さらに、 $n > n_c$ で $\gamma \propto n^{0.4}$ 、 $n < n_c$ で $\gamma \propto 1/n^{0.2 \sim 0.25}$ のキャリア濃度依存性を示す。

(4) $N = 3$ のピークは約 90K で最も大きくなる。

(5) 共鳴ピークの位置から算出した電子の有効質量は、77K で 0.0135、112K で 0.0133 となり、エネルギーギャップの膨張から算出された値にほぼ一致する。

ここで得られた結果と知識は半導体結晶の純度を保証するのに大変有効である。今回の測定結果から、現在入手可能な最高純度の n-InSb 結晶は、 $n = 1 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$ 、 $\mu(77\text{K}) = 8 \times 10^5 \text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ である。今後、結晶育成技術が一段と進歩し、残留不純物の著しい減少が得られるならば、それらの結晶は、振幅とダンピングの両方において、今回の結果を卓越するであろう。

これらの測定結果は、ランダウ準位に有限な幅を取り入れた伝導度の計算などの理論的裏付けが得られるならば、さらに貴重なものになると思われる。振幅を制限するメカニズムの解明については、今後検討していくことにする。

参 考 文 献

- 1) V.L. Gurevich and Yu.A. Firsov : Sov. Phys. -JETP 13 (1961) 137.
- 2) S.M. Puri, T.H. Geballe : Bull. Amer. Phys. Soc. 8 (1963) 309.
- 3) S.S. Shalyt, R.V. Parfen'ev and V.M. Muzhdaba : Sov. Phys. -Solid State 6 (1964) 508.
- 4) R.L. Peterson : Semiconductors and Semimetals, (Academic Press, New York, 1975) Vol. 10, p.221.
- 5) C.M. Wolfe and G.E. Stillman : Semiconductors and Semimetals, (Academic Press, New York, 1975) Vol. 10, p.175.
- 6) J.R. Barker : J. Phys. C Solid State Phys. 5 (1972) 1657.
- 7) E.D. Palic, G.S. Picus, S. Teitler and R.F. Wallis : Phys. Rev. 122 (1961) 475.
- 8) H. Kahlert : Phys. Rev. B18 (1978) 5667.
- 9) R.A. Stradling and R.A. Wood : J. Phys. C Solid State Phys. 1 (1968) 1711.
- 10) K. Imamura, K. Haruna and I. Ohno : Jpn. J. Appl. Phys. 19 (1980) 495.
- 11) I. Ohno, M. Koike and I. Fujisawa : Defect & Radiation Effect in Semiconductors, 1980 (Inst. Phys. Pub. Div., Bristol and London 1981) p.311.
- 12) I. Ohno, I. Fujisawa and K. Imamura : Jpn. J. Appl. Phys. 21 (1982) 1174.