「超高速・超省電力高性能ナノデバイス・システムの創製」 平成14年度採択研究代表者

# 吉川 明彦

#### (千葉大学工学部 教授)

「InN 系窒化物ナノデバイス/ナノプロセスの分子線エピタキシ法による新展開」

#### 研究実施の概要

InN をベースとした窒化物系材料の「超薄膜・超急峻界面制御」分子線エピタキシ(MBE) 法ナノプロセス技術を開発し、これにより InN 系ナノ構造本来の物性を発現させ、近未来 の大容量・超高速画像環境情報を支える超高機能光通信波長域レーザ、超高速光制御素子、 そして超高速・超省電力電子素子開発の可能性を検討することを目的とする。

H17年度はInNとその混晶およびそれらを用いたナノ構造をベースとしたデバイス構造 (主に発光デバイス、サブバンド間遷移(ISBT)超高速光変調デバイス)の構造設計・試作 とこれらの結晶品質の更なる向上が主な研究ターゲットであった。現在まで1.55µm帯InN 量子井戸、量子ドット積層構造、超薄膜InN-ISBT構造など基本デバイス構造の実現に成 功し、今後の更なるデバイス特性向上に向けた準備がほぼ完了したといえる。また、InN 系デバイス設計において重要な物性評価についてはAlInN混晶のボーイングパラメータや ISBT 構造設計に向けた InN における電子-フォノン相互作用を考慮した電子緩和速度な どについて明らかにし、InN 自身の基本物性評価(特に残留キャリア起源など)について も進展が見られた。

H17年度の主な研究成果を以下に示す。

- InN 量子ドット緩衝層を用いることによる In 極性 InN 単膜の結晶品質の改善に 成功。その結果残留キャリア密度が 10<sup>17</sup> cm<sup>-3</sup> オーダーまで低減。
- ② N極性 InN 量子ドット積層構造を作製し、InN を用いた量子ドットデバイスの 基礎構造の実現に成功。
- ③ 超薄膜 InN を用いた1分子層 InN/GaN 超格子構造の作製に成功。オーダリン グによる超平坦1分子層・分数層の InN ナノ構造形成の可能性が示され、この 構造を用いて今後高効率局在励起子発光や緑色・赤色域といった長波長化が期 待される。また1分子層 InN 層を用いた ISBT 構造の試作に成功。
- ④ 光通信波長帯光デバイス応用に向けた InN/InGaN MQWs 構造の結晶品質の改善(極性制御、膜厚依存性)と室温下 1.55μm 発光制御の実現。
- ⑤ AllnN 混晶のエピタキシ制御と光変調デバイス応用に向けた高 Al 組成

InN/Al<sub>0.5</sub>In<sub>0.5</sub>N 超格子構造の実現に成功。

⑥ InNのバンド端のエネルギー構造について、バンドギャップ、有効質量の値を 明らかにし、電子フェルミエネルギー以下に残留電子発生源となるバンドの一 つが存在する可能性を示した。

## 2. 研究実施内容

あると見積もられた。

# 2-1. 更なる高品質化・残留キャリア濃度低減に向けた InN ナノエピタキシー制御と残留キャリア起 源解明

2-1-1. InN 量子ドット緩衝層を用いた高品質 In 極性 InN 成長と残留キャリア濃度の低減化

- In 極性面上成長では成長温度が N 極性に比べ約 100 度低いにも関わらず、直線性に優れ た原子層ステップが得られることを確認した。このような成長表面は N 極性面では得られず、こ れは極性によるマイグレーション効果の違いを示している(図 1)。
- In 極性面成長は表面平坦性には優れているが、結晶品質については現在までN 極性において最も良い結果が得られている(前年、前々年度実施報告書参照)。今回、InN 量子ドット緩衝層を用いることによりIn 極性 InN の結晶品質の向上に成功した。X 線ωロッキングカーブ半値幅は特に非対称面で大きく改善し、1000 秒以下の値が得られるようになった。またこれらのサンプルでは残留キャリア濃度が 10<sup>17</sup>cm<sup>-3</sup> 台まで低減し、このようなエピタキシ制御による残留キャリア濃度の低減はその起源解明(後述)や p 型伝導制御において非常に重要な結果といえる。

<u>2-1-2. InNのキャリア濃度を考慮した物性パラメータ評価と残留</u> キャリア濃度の起源解明

電子濃度について、透過スペクトルから得られた状態密度関 数および PL スペクトル解析などを援用したフェルミエネルギー の見積もりなどに基づいて電子濃度が見積もられた。これと赤外 光反射スペクトルから見積もられた電子濃度との比較を行った。 これより、残留電子発生源として2つあることが推定された。一つ は、伝導帯内部であり、もう一つは伝導帯下端付近にあるバンド である。原因は結晶欠陥であると推定されるが、欠陥構造、その エネルギー準位、活性化エネルギーなどの詳細は未だ不明で



エネルギー準位、活性化エネルギーなどの詳細は未だ不明で 図1. In 極性 InN の表面モフォロジー ある。 これらの解析の結果、我々の試料における最低電子濃度は、2-3×10<sup>17</sup>cm<sup>-3</sup> と見積もら れた。ホール電子濃度 9×10<sup>17</sup>cm<sup>-3</sup> より低いのは、表面、界面、粒界での電荷蓄積の影響で

#### 2-2. InN ナノ構造を用いた超高機能光デバイス構造の検討

<u>2-2-1. InN 量子ドット積層構造の作製</u>

In 極性面上成長に比べて、成長温度の高温化が可 能な N 極性 InN 量子ドットの積層構造の作製に成功 した。InN 量子ドットと同じ成長温度(550°C)の低温 GaN キャップ層 (10nm)、表面平坦性・結晶性改善を 目指した高温(645°C)GaN キャップ層(10nm)を併用し 積層構造(10~20 周期)を作製することにより表 面・界面平坦性が改善されることを見出した。各周 期で RHEED パターンから InN 量子ドットの形成を確 認し、XRD 測定から比較的シャープなサテライトピ ークを確認した(図 2 はその一例)。今後は断面 TEM



図 2. 19 周期 N 極性 InN 量子 ドット/GaN 積層 構造の XRD 測定結果。

像によるドット形成状態、ドット領域からの発光の確認が課題である。

2-2-2. 1 分子層 InN/GaN 多重量子井戸構造

InN/GaN ヘテロ構造は大きな伝導帯バンドオフセット(~1.8eV)を有し、デバイス応用 において非常に興味深い構造であるが、前述した大きな格子不整合度、最適成長温度差 によりデバイス品質の結晶性を維持した InN/GaN ヘテロ構造の実現は困難であった。我々 はこれらの問題を InN 層厚の超薄膜1分子層制御により解決した。InN 層厚を臨界膜厚程 度に制御することにより格子緩和を防ぎ、さらに1分子層程度であるためバルク結晶の 場合よりさらに高温側成長限界温度が高くなることを見出した。

• In 極性 InN バルク層の高温側成長限界温度は約 500℃であるが、1 分子層 InN/GaN 超 格子では現在まで 650℃まで良好な周期構造の形成が可能であることがわかった。

• この1分子層 InN/GaN 超格子では断面 TEM 像からもあらたな欠陥発生は見られず、図 3 に示したように非常に平坦な InN 超薄膜層が形成されていることがわかる。図 3(a)で は1分子層 InN 層、図 3(b)では分数層 InN 層の形成が確認された。これらの結果はセル フオーダーリング効果による InN 超薄膜層形成を示唆するものと我々は考えており、今 後の超薄膜 InN 超格子の研究やそのデバイス応用において非常に興味深い。

 現在までこれらの構造は室温下で最長 450nm 付近での発光制御が可能なことから、今後はこれらの構造を用いた局在励起子発光デバイス、緑色・赤色といった長波長域での 高効率光デバイスへの応用を目指す。

2-2-3.1 分子層 InN を用いたサブバンド間遷移光変調素子構造への応用

従来の GaN/AlN 超格子を用いたサブバンド間遷移デバイスに1分子層 InN 層を組み込むことにより、ISBT 波長のさらなる短波長化、歪補償による超格子構造の品質改善を目指した。GaN(2nm)/AlN(4nm)100 周期超格子とその GaN 層の中心に1分子層 InN を挿入し

た構造を作製し ISBT 吸収を確認したところ、それぞれのサンプルで約 1.6μm での ISBT 吸収が見られ InN 層導入による効果は現在のところ見られていない。これは内部電場の 影響であると考えられ、今後はさらに膜厚を薄膜化して比較を行う。



図 3(a)1 分子層 InN/GaN 多重量子井戸構造の断面 TEM 像(b)分数層 InN/GaN 多重量子井戸構造の断面 TEM 像

### 2-3. 近赤外域光デバイス実現に向けた InN 系多重量子井戸構造の作製

1.55µm をカバーする窒化物系光デバイスの基礎構造として InN/InGaN MQWs 構造を提案 し、そのキーマテリアルとなる高 In 組成 InGaN のエピタキシ制御、高品質化を実現し、結 果として MQWs の光学特性の飛躍的改善を実現した。

2-3-1. 高 In 組成 InGaN 混晶のエピタキシ制御と高品質化

• 高 In 組成 InGaN (主に  $X_{In}$ =0.7) 混晶のエピタキシ制御、極性依存性について調べた。 N 極性に比べ In 極性面でより高品質、平坦な結晶が成長可能であることを見出し、 $\omega$ ロッキングカーブ半値幅 340 秒 (002)、2500 秒 (102) という結果が得られた。これは 現在まで報告されている高 In 組成 InGaN 混晶の中でもっとも良い結果であり、今後の MQWs 構造の成長において In 極性面制御がより有望であるという結論にいたった。

2-3-2. In 極性および N 極性 InN/InGaN 多重量子井戸構造(MQWs)

①構造評価

• 両極性面上で InN/InGaN MQWs 構造の成長を行い、In 極性面上でよりシャープなサテ ライトピークが得られ良好なヘテロ界面が形成されていることを確認した。これは上 記の InGaN 混晶の結果に起因する。これらの構造の格子歪・緩和状態について調査し、 In<sub>0.7'0.8</sub>Ga<sub>0.3'0.2</sub>N 障壁層を用いた場合 InN 井戸層厚が約 2nm 以下の場合 InN 層は InGaN 障壁層にコヒーレント成長することを実験的に確かめた。 ②In 極性 MQWs 構造を用いた室温下 1.55µm 発光制御

- 光通信波長をカバーする InN/InGaN MQWs 構造の最適化
  上記の結果を踏まえ、最終的な MQWs 構造として極性は In 極性、InN 井戸幅(1nm)/ In<sub>0.7</sub>Ga<sub>0.3</sub>N 障壁層(3~4nm)とし周期数は 20 以下とした。
- 高 In 組成 InGaN 中間層の挿入とその高品質化を実現することにより InN/InGaN MQWs 構造の光学特性に改善が見られた。図 4 に InN(~1nm)/In<sub>0.7</sub>Ga<sub>0.3</sub>N(~3nm)MQWs 構造 の室温 PL スペクトルを示す。1.55µm 付近の発光を確認し、InN 系光デバイスの活性 層構造の最適化がほぼ終了した。現在、レーザダイオードへの応用に向けた高密度 光励起による評価、p型 GaN 上に作製した LED 構造について検討を行っている。



図 4 InN/In<sub>0.7</sub>Ga<sub>0.3</sub>N MQWs 構造の構造図と室温 PL スペクトル。複数のピークが見られるのは膜の干渉効果によるもの。

<u>2-3-3.</u> AlInN 混晶のエピタキシ制御と 2eV 伝導帯バンドオフセットを有する InN/Al<sub>0.5</sub>In<sub>0.5</sub>N 超格子構造の成長・ISBT 光デバイス応用の可能性

- Al<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>N 混晶を全組成域で成長し、光学的バンドギャップエネルギーの組成依存 性を明らかにした。ボーイングパラメータが従来の報告値(3.0eV)よりも高い 4.96eV であることがわかった。これにより InN/Al<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>N 超格子において X<sub>A1</sub>が 0.6~0.7 の とき GaN/A1N 超格子の伝導帯バンドオフセットと同等な値(約 1.8eV)が得ることが できることがわかった。
- InN/Al<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>N 超格子による ISBT 超高速光変調デバイスの実現を目指し、高 Al 組 成域(本実験では X<sub>A1</sub>~0.6)での超格子構造の作製を試みた。より高温での成長を 可能にするためN極性面成長を行い、テンプレートに MOCVD 法で成長したN極性 GaN、 InN 井戸層成長にシャッターコントロール法を用いることにより、結晶性および光学 特性において飛躍的改善がみられた。100 周期 InN/Al<sub>0.55</sub>In<sub>0.45</sub>N 超格子構造において

室温下 0.79~1.45eV の範囲で発光を確認し、その発光波長制御に成功したが、未だ ISBT 吸収は確認されていない。さらなる界面平坦性の向上が課題である。

#### 2-4. デバイス設計に向けた物性パラメータ評価

プラズマーフォノン領域の赤外反射、バンド端付近の光反射・透過、PL(偏光)の実験 的スペクトルと理論的スペクトルの比較により下記の結果を得た。

2-4-1. バンド端エネルギー構造の評価

スペクトル解析における遷移行列要素評価を行うことにより以下のことが分かった。

- ・ バンドギャップは低温で 0.67 eV 室温で 0.63eV 程度である。
- ・ 電子有効質量はバンドの底で 0.05m<sub>0</sub> である。
- ・ 価電子帯では A,B,C の 3 つのバンドが 20meV 程度以内の近い位置に存在する。

2-4-2. ISBT 設計にむけた電子―フォノン相互作用強度の評価

プラズマーE1・LOフォノン結合モードのエネルギー広がり幅の温度(フォノン密度) 依存性より、エネルギー反交差領域で広がり幅のピークが観測され、この値はGaAsの5 倍程度であることが分かり、InN系デバイスは従来のInGaAs系デバイスに比べISBT光変 調素子の高速化(0.1psオーダー)が十分望まれることを実験的に証明した。

#### 3. 研究実施体制

千葉大学研究グループ

①研究分担グループ長:吉川 明彦(千葉大学工学部電子機械工学科、教授) ②研究項目:InN系窒化物ナノデバイス構造の製作と物性評価およびデバイス試作

- 近赤外域光デバイスを目指した InN/In<sub>0.55<sup>\*</sup>0.70</sub>Ga<sub>0.45<sup>\*</sup>0.3</sub>N 量子井戸構造の作製と評価とLD 構造設計
- 2. サブバンド間遷移デバイスを目指した InN/InAIN 超格子構造の作製と評価と ISBT 光変調デバイス構造設計
- 3. InN のナノエピタキシプロセス・物性制御(量子ドットの成長、InN の残留キャ リア濃度の低減、結晶品質の向上、極性依存性)に関する研究と理論的考察

産業技術総合研究所研究グループ

 ①研究分担グループ長:奥村 元 (産業技術総合研究所パワーエレクトロニクス研究センター、センター 長代行、総括研究員)

- ②研究項目: InN 系光・電子デバイス構造への応用に向けた厚膜 InGaN 混晶の成長と高 品質化
  - 1. InN 系光・電子デバイス応用に向けた高 InN モル比 InGaN の高品質化

2. 光・電子デバイス設計に向けた光学特性評価による高 InN モル比 InGaN の物性 評価

埼玉大学研究グループ

①研究分担グループ長:吉田 貞史(埼玉大学工学部電気電子システム工学科、教授) ②研究項目:SiC 基板上 InN 単膜成長および InN/InGaN 超格子の成長

- 1. SiC 基板上厚膜 InN の高品質化、残留キャリア密度の低減
- 2. SiC 基板上 InN/In<sub>0.55<sup>°</sup>0.70</sub>Ga<sub>0.45<sup>°</sup>0.3</sub>N 超格子構造の作製

帝京科学大学研究グループ

①研究分担グループ長: 永沼 充(帝京科学大学理工学部、教授)

②研究項目: InN 系発光デバイス、ISBT 構造の光励起・超高速光応答評価および光デバ イスの設計

イズの政司

- 1. InN LD, ISBT 構造の光学特性評価
- 2. InN LD, ISBT 光変調デバイスのシミュレーション

古河電工研究グループ

①研究分担グループ長:吉田 清輝(横浜研究所 基盤技術センター、主査) ②研究項目: InN 系ナノデバイス構造の評価

- 1. SIMSによる不純物測定の評価法を改善し、InNエピタキシャル層中の残留不 純物に関する評価
- 2. 量子井戸構造、超格子構造の透過型電子顕微鏡による測定

# 4. 主な研究成果の発表(論文発表および特許出願)

- (1) 論文(原著論文)発表
- X.Wang, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, "Effect of epitaxial temperature on N-polar InN films grown by molecular beam epitaxy", J.Appl.Phys., Vol.99, 073512, (2006)
- M.Yoshitani, K.Akasaka, X.Wang, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, "In situ spectroscopic ellipsometry in plasma-assisted molecular beam epitaxy of InN under different surface stoichiometries", J.Appl.Phys., Vol.99, 044913, (2006)
- E.S.Hwang, E.M.Park, E.K.Suh, C.H.Hong, H.J.Lee, X.Wang, A.Yoshikawa, "Electron transport in InN layers grown by plasma-assisted molecular beam epitaxy", J.Korean Physical Society, Vol.48(1), 93-97 (2006)
- T. Kitamura, X.Q. Shen, M. Sugiyama, H. Nakanishi, M. Shimizu, and H. Okumura, "Generation of Cubic Phase in Molecular-Beam-Epitaxy-Grown Hexagonal InGaN Epilayers on InN", Jpn. J. Appl. Phys., 45, No.1A, 57 (2006)

- S.B.Che, T.Shinada, T.Mizuno, Y.Ishitani, A.Yoshikawa," Polarity dependence of In-rich InGaN and InN/InGaN MQWs", Mat.Res.Soc.Symp.Proc., Vol.892, FF06-03, (2005)
- X.Wang and A.Yoshikawa,"Molecular beam epitaxy growth of GaN, AlN and InN", Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials, Vols.48-49, 42-103, (2005)
- S.B.Che, W.Terashima, Y.Ishitani, T,Matsuda, H.Ishii, S.Yoshida and A.Yoshikawa,"Fine structure N-polarity InN/InGaN multiple quantum wells grown on GaN underlayer by molecular-beam epitaxy", Appl.Phys.Lett., Vol.86, 261903, (2005)
- J.W.Pomeroy, M.Kuball, H.Lu and W.J.Schaff, X.Wang and A.Yoshikawa,"Phonon lifetimes and phonon decay inInN", Appl.Phys.Lett., Vol.86, 223501, (2005)

## (2) 特許出願

H17年度出願件数:1件(CREST研究期間累積件数:2件)