

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 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ン法による新展開

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点)

研究代表者

吉川 明彦(千葉大学大学院工学研究科 教授)

主たる共同研究者

吉田 貞史(埼玉大学大学院理工学研究科 教授)

奥村 元((独)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)

永沼 充(帝京科学大学生命環境学部 教授)

吉田 清輝(古河電気工業(株)横浜研究所基盤技術センター 主査)

3. 研究内容及び成果

窒化インジウム(InN)は、理論電子移動度が高いため高速電子素子材料として期待されてきた。また、GaN との混晶として、青色発光デバイスの材料としても使われてきている。しかし、純粋な InN は、成長が難しく、品質と純度の高い結晶は得にくいため、物性計測の多くは、低純度の多結晶材料を用いて行われ、エネルギーバンドギャップを含め、信頼に足るデータが得られていなかった。このような状況の中で、本研究プロジェクトは開始され、以下の研究目的を設定した。

①分子線エピタキシン法(MBE)を主たる成膜法とし、その場観察手法を駆使して、エピタキシー過程を解明し、物性制御の技術を開拓すること。②基礎的物性の精密な評価を進めるとともに、残留キャリア密度を低減し、p型伝導の制御を図ること。③ InN および InN ベースの混晶について、デバイス設計に必要な基本物性パラメータを決定すること、④ InN/GaN および InN/InGaN 系のヘテロ構造を中心に、ナノ構造の作製に役立つプロセスを確立・発展させること。⑤ InN の特徴を活かした新規のナノデバイス構造を探索し、これを作製し評価すること。

本研究では、以下の3課題を中心に、研究を進めた。主要な成果を、各課題毎に記す。

InN 系窒化物の結晶成長過程の解明と結晶構造および伝導特性の制御

InN のエピタキシー過程を、その場観察が可能な分子線エピタキシー法を活用して調べ、表面の極性やストイキオメトリーへの依存性を明らかにした。また GaN 上に成長した InN の臨界膜厚が約1分子層であることを明らかにした。さらに、貫通転位がエピタキシーに与える影響を調べ、InN/GaN 界面で発生する高密度の刃状貫通転位が、残留ドナーとして働くことを示した。これらの知見を礎に、 10^{19}cm^{-3} あった残留電子密度を $2\sim 6\times 10^{17}\text{cm}^{-3}$ まで低減させ、 $2000\text{cm}^2/\text{Vsec}$ 程の電子移動度を持つ高品質結晶の成長を可能とした。これらの成果を基に、Mgドープを行い、InN のp型伝導を実現した。電解液を用いた C-V 特性計測により、p型 InN 層の形成を確認した。正孔の移動度は、正孔濃度が $2\times 10^{18}\text{cm}^{-3}$ の時、約 $25\text{cm}^2/\text{Vsec}$ であった。In 組成の高い InGaN や AlInN 三元混晶について、組成を精密に制御し、擬似格子整合した量子井戸構造を実現し、高品質化も達成した。このように、InN 系窒化物の成長過程の研究により、原子レベルの表面平坦性と構造・組成制御性を備えた成長技術を開拓した。

InN 系窒化物および関連量子井戸構造の基礎物性の計測と評価

InN 結晶について、光吸収やフォトルミネッセンスのスペクトルを計測するとともに、プラズマ領域やバンド端領域での赤外反射スペクトルの計測も行った。さらに、光学遷移過程の解析も進め、観測された光学遷移は、Burstein-Moss 効果を含むバンド間遷移であることを示し、InN のバンドギャップは、室温で 0.63eV 、極低温で 0.67eV であることを明らかにした。また、InN について、電子の有効質量、価電子帯構造と光学特性の関係、励

起子の結合エネルギー、誘電定数などを明らかにした。高 In 組成の InGa_N 混晶や InN 系量子井戸の基礎的物性パラメータも明確化した。

InN 系窒化物ナノ構造の設計・作製・評価とデバイス応用探索

InN 系材料のエピタキシー過程に関する知見と制御技術を基に、デバイス応用上で問題となる格子不整合の問題を回避するために、種々のナノ構造の活用可能性を探索した。特に、InN のナノ粒子からナノ薄膜構造などの成長技術を開拓し、それらを活用してナノ構造デバイスの試作と評価を進めた。主要成果は以下の通りである。

(1) 高品質 InN/InGa_N 量子井戸や InN/AlInN 量子井戸の形成と光通信波長域での発光波長制御を進め、近赤外域の光デバイスへの展開可能性を示した。(2) InN 量子ドット、ナノコラムなどの成長メカニズムをその場観察 MBE 法を用いて調べ、低次元量子構造の成長技術を開拓した。(3) 1分子層厚の InN を GaN マトリクスに埋め込んだ一連の量子井戸構造を試作し、青紫から青緑色域で高効率の発光特性を持つことを示した。また、発光ダイオードの試作にも成功し、本構造の発光素子への応用可能性を示した。(4) 1分子層の InN をチャンネル層に埋め込んだ AlGa_N/GaN HEMT 構造に関し、デバイス特性のシミュレーションを行い、閉じ込めに伴う移動度向上の可能性を理論的に検討した。また、関連素子構造も試作し、1分子層厚 InN を有する HEMT 構造において移動度向上を実験的に確認し InN の電子素子応用の可能性を示した。

本研究プロジェクトでは、共同研究者の中山ら(千葉大)は結晶成長と欠陥の電子物性に関する理論研究を進めた。永沼ら(帝京科学大)は高密度励起下の光物性評価とデバイスシミュレーションを担当した。吉田清輝ら(古河電工)はTEMとSIMSによる評価を行い、InN関連の結晶構造とドーピング特性を明らかにした。吉田貞史ら(埼玉大)はInN系窒化物やヘテロ界面の物性評価およびIn組成の高いInGa_Nの赤外分光エリプソメトリー計測を担当した。奥村ら(産総研)はIn組成の高いInGa_Nの成長制御と1分子層InNをチャンネルに埋め込んだHEMTのシミュレーションと試作検証を進めた。これら共同研究者間の密接な連携により、研究目標を達成し、InNを用いた発光素子などを試作し、その可能性を実証できた。また、その他のナノ構造の形成に関する知見も得た。このように、InNを基盤とした材料やデバイスに関し、広範な知見を提供し、今後の発展への道を示した。

4. 事後評価結果

4-1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

InNに関しては、エピタキシー過程の研究とそのバンドギャップ、伝導帯と価電子帯の構造、誘電関数などの基礎物性の研究を、また3元混晶についても、エピタキシー過程に加えて、バンドギャップ、ボウイングパラメータ、およびフォノンエネルギーの組成依存性など基礎物性の研究を進めた。これらについて多くの論文を発表している。研究期間の後半ではInNのデバイス化を志向した研究についても発表している。発表論文は、英文65件、和文14件である。口頭発表は、国際会議45件、国内会議98件であり、ポスター発表は国際会議26件、国内会議0件である。この他、国際会議で16件、国内会議で5件の招待講演を行った。特許は国内6件、外国1件(6カ国)を出願した。研究開始時に、基礎的な物性定数も信頼に足るものがなかったが、本研究により、デバイス化に必須の基礎物性の理解が進んだことは評価に値する。主要成果と課題を以下に示す。

特記すべき成果は下記の通りである。

- [1] InN 系材料のエピタキシー過程が解明され、極めて平坦な表面と高品質の結晶が実現した。
- [2] 残留電子濃度の低減とその起源を調べ、主として刃状貫通転位に因ることを見出した。成長条件を改善し、電子濃度を 10^{17}cm^{-3} 台まで下げ、Mg ドープでp型化に成功、正孔移動度約 $25 \text{cm}^2 \text{Vsec}$ を得た。
- [3] 成長条件を最適化し、1分子層の InN を InGa_N および GaN に埋め込んだ量子井戸や超格子を作製、X線回折で、良好なサテライトピークを観測した。また、この構造を活かした発光ダイオードを試作し、青紫、青緑色の発光を確認した。1分子層のInNを埋め込んだHEMT構造の可能性を検討し、電子の移動度や濃度に関して調べ、電子素子応用の道筋を示した。

一方、今後さらに研究を進めるべき事項は次の通りである。

- [1] 発光ダイオードにおける発光機構の解明と発光効率の改善。
- [2] 未だシミュレーションと基礎実験評価に留まっている1分子層のInNを埋め込んだHEMT構造の優位性の実験的検証。
- [3] その他のデバイスへの応用展開とシステム化への取り組み。

4-2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

InN, GaN, AlNなどの窒化物混晶がカバーできる禁制帯の範囲はきわめて広い。この可能性を活かすには、高品質InN膜の成長と活用技術の確立が、必須である。本研究で開発されたInN系の結晶成長技術は、得られた結晶の構造評価・電気/光学特性から判断すると、国内外のトップクラスのものである。この分野は、さらに重要性が増し、産業への展開も期待でき、波及効果は大きい。

InNの素子応用に向けた研究が進んだことも評価できる。特に、1分子層 InN 埋め込んだ量子井戸構造の試作と評価が進み、発光素子や電子素子への応用の展望が開けたことの意義は大きい。今後の発展には、InN分子層の均一性向上、発光や電子輸送機能の解明など、更なる研究を要することは言を待たない。

4-3. その他の特記事項(受賞歴など)

中間評価の際の指摘を活かし、デバイス関連構造の試作評価に努めたことと、相互の分担を明確にしグループ間連携を改善した点を評価する。TEM による構造評価では共同研究者の寄与が大きい。特に、領域総括からの助言を活かして、1分子層の InN 層を埋め込んだ構造の試作と評価を進め、デバイス化の足がかりを築いたことは高く評価できる。

本研究と関連し、文部科学省科学研究費補助金(特定領域研究)「窒化物半導体のフロンティア」(平成18年～23年)(領域代表者:名西愷之立命館大教授)が発足した。その中で、吉川教授は、「総括班」として領域の立ち上げおよび運営に携わるとともに、「物性評価」班の代表者を務め、研究課題「極広域分光による窒化物半導体ナノデバイス構造の精密評価」を推進することとなった。

また、1分子層 InN 井戸/GaN マトリックス MQW 構造による発光素子開発に関して「発光波長が青色から緑色までをカバーする高効率レーザダイオードの開発」を目指して、平成19年度より企業との共同研究を開始した。