

「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

(千葉大学大学院工学研究科 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」

1. 研究実施の概要

本プロジェクトでは、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している。

H18 年度は

- ① InN ナノ構造を用いた光・電子デバイスの設計・作製とその評価
 - ・ 近赤外域光デバイス応用に向けた InN/In_{0.7}Ga_{0.3}N 多重量子井戸構造
 - ・ GaN 中の極薄膜 1 分子層 InN をベースとしたナノ構造
- ② InN エピタキシ薄膜結晶中の残留電子密度の低減と p 型 InN の実現可能性の検討の二つを、主なターゲットとして研究を進めてきた。

①については、H18 年度は、高分解能 TEM による極めて完全性の高い 1 分子層 InN 層成長制御の実証に成功し、これらを用いた青・緑域高効率光デバイスへの応用に向けた構造・光学特性評価を行った。また InN/In_{0.7}Ga_{0.3}N 多重量子井戸構造については、結晶品質の大幅な改善を実現すると共に、デバイスシミュレータによる内部電場や遷移確率の見積りを行い、レーザ発振実現に向けた最適デバイス構造の設計手法を確立した。

②については、エピタキシ薄膜結晶の p 型伝導実現に関する検討においては、現在の残留電子密度の起源が主に刃状貫通転位に起因していることが明らかになり、また Mg ドーピングについては InN エピタキシにおける付着率がほぼ 1 であり、アクセプタ活性化エネルギーは 61meV 程度であることが明らかになり、p 型 InN の実現における重要な知見が得られた。

このように H18 年度は非常に完全性の高い InN ナノ構造作製手法が確立し、これらを用いたデバイス構造の設計・試作に取り掛かることができた。最終年度では、これらのデバイス特性評価を引き続き行い、InN ナノ構造の新規デバイス応用の可能性について検討を行う。

2. 研究実施内容

1. 1 分子層 InN 層成長制御の実験的検証とそのデバイス応用に向けた検討

既に、H17 年度の成果の一つとして、1 分子層厚に制御した InN の多重量子井戸(MQW)構造について報告した。この構造は、現在まで我々が培った精密 InN ナノエピタキシ制御の経験に基づき、

- ①GaN 上 InN 成長における臨界膜厚である 1 分子層厚成長による格子緩和の抑制、
- ②セルフオーダリング効果による超急峻膜厚制御、

③GaN マトリクス効果による成長温度の高温化

による結晶品質の飛躍的改善が実現できることが期待され、InN を用いた結晶完全性の高いナノ構造として非常に有望な構造といえる。

H18年度はこの1分子層 InN/GaN 多重量子井戸構造の構造・光学特性評価及びそのデバイス応用に向けた研究についてより詳細に検討を行った。

1-1. 1分子層 InN 層形成の実験的検証～高分解能 TEM 評価～

H17年度までは、1分子層 InN 層の形成について直接的な評価が行えず、InGaIn などの混晶が形成されている可能性を排除することはできなかった。

そこで、我々は、ミシガン大学と共同で超高分解能走査型 TEM により 650°C で成長した 1 分子層 InN/GaN MQW 構造を評価した。量子井戸構造の Z コントラストイメージから、In 原子 1 層の井戸層形成が確認でき、GaN 障壁層との相互拡散のない、非常に完全性の高い 1 分子層 InN 量子井戸の形成が確認された。このような極めて急峻性の高い 1 分子層形成には前述したセルフオーダリング効果が作用しているものと考えられ、また再現性も高いことが確認できている。このような InN を用いた 1 分子層厚制御は世界でも類がなく、現在、このナノ構造領域を用いた局在励起子による高効率発光デバイスへの応用とその実験的検証(デバイス特性)に向けた研究を行っている。

1-2. 1分子層 InN/GaN MQW 構造の構造・光学評価

- 1 分子層 InN 井戸からの高効率発光の確認:カソードルミネッセンス(CL)評価

前述の 1 分子層量子井戸構造では、非常に高い局在励起子効果が得られることが知られており、1 分子層 InAs/GaAs 系の研究によると励起子結合エネルギーは約 3 倍まで増加させることが可能であると報告されている。これは我々の InN ナノ構造を用いることにより、新規窒化物半導体室温励起子発光デバイスの実現が可能であることを示している。

我々は 1 分子層 InN/GaN MQW 構造を CL により評価し、その発光強度を比較評価した。図1は 10 周期 1 分子層 InN/GaN 多重量子井戸構造の断面 SEM 像とその CL パンクロ像である。パンクロ像で示したように、MQW 層からの発光は下地層である GaN 層よりも明らかに強く、その発光強度はこのサンプルで 10 倍以上強いことがわかった。このような優れた発光特性は 1 分子層領域に局在した励起子効果によるものと考えている。

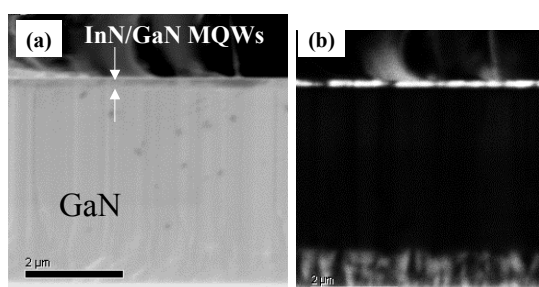


図1 (a) 10 周期 1 分子層 InN/GaN MQW の断面 SEM 像
(b) その CL パンクロ像。MQW 層領域からの発光強度が下地 GaN テンプレートに比べて飛躍的に高いことがわかる。

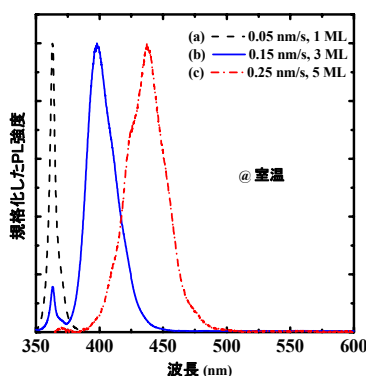


図2. 1分子層 InN/GaN MQW の室温 PL スペクトル

● 1 分子層 InN/GaN MQW の構造評価

1 分子層 InN の層厚制御について更に詳細な検討を行った。結晶品質の点から、成長温度は650°Cに固定し、InN の供給速度を増加させて実験を行った。図2に室温 PL 測定の結果を示す。InN の供給速度が 0.05nm/sec の場合、1 分子層井戸の形成は確認できず、GaN 層からの発光のみが観測された。一方、供給速度を 0.15、0.25nm/sec に増加させると InN 井戸層の形成が XRD 測定から確認され、さらに井戸層からの発光が 398,437nm にそれぞれ観測され、発光波長の長波長化が確認された。

これらの形成過程は成長時の In の付着過程と強い相関を持っており、この MQW 構造の成長可能温度は、In 付着率に依存していることがわかった。また、これらの構造評価から、供給速度が 0.15、0.25nm/sec のサンプルの InN 井戸層厚はそれぞれ 1 分子層、1.4 分子層と見積もられ、1.4 分子層のサンプルでは成長表面に多数のマクロ欠陥が観測された。これは臨界膜厚である 1 分子層以上の井戸層厚を形成したため、結晶性が悪化したものと考えられ、高品質化において 1 分子層厚の精密な成長制御が重要であることがわかった。

1-3. 1 分子層 InN を用いたデバイス応用に向けた研究

1 分子層 InN を用いた新規デバイス構造の一つとして 1 分子層 InN/GaN/AlN 超格子によるサブバンド間遷移 (ISBT) 構造に関する研究を H17 年度から行っている。この構造では InN/AlN 間の極めて大きい伝導帯バンドオフセット (約 3.5eV) を用いた 1 μm 以下の ISBT 波長制御が理論的に可能であり、また InN 層挿入により歪補償構造の設計が可能であり、これによる超格子の高品質化が期待できる。

H18 年度は引き続き、この ISBT 構造に関する研究を行い、図3に示すように、1 分子層 InN 挿入による歪補償構造の実現とそれによるクラックの低減、結晶品質の改善に成功した。またこれらの構造からは、光通信波長帯付近に明瞭なサブバンド間吸収も観測され、1 分子層 InN/GaN/AlN 超格子の ISBT 光デバイス応用への可能性が実験的に示された。また理論計算との比較から、窒化物半導体特有のピエゾ効果によるバンドの傾斜と GaN 井戸層中の 1 分子層 InN 位置により、サブバンド間吸収ピークが大きく変化することがわかった。

つまり、これらのことを超格子構造設計において考慮することで、より容易にサブバンド間吸収位置を制御できることも明らかになった。最終年度は、1 分子層 InN を用いたデバイスとして、この ISBT 光スイッチング素子と前述した青・緑域半導体レーザーへの応用に向けたデバイス特性評価を行う。

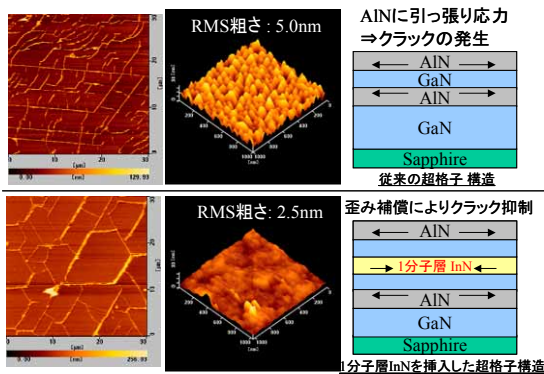


図3. 挿入していない GaN/AlN 超格子 (上) と 1 分子層 InN を挿入した InN/GaN/AlN 超格子 (下) の原子間力顕微鏡による表面像と構造模式図

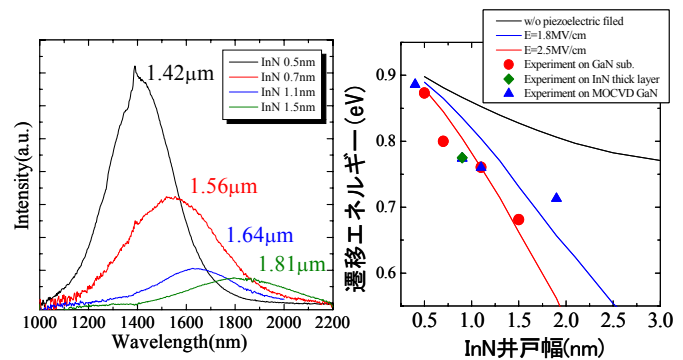


図4. (a) GaN バルク基板上 InN/In_{0.7}Ga_{0.3}N MQW 構造の室温 PL スペクトルの InN 井戸幅依存性。(b) デバイスシミュレータによる量子井戸の遷移エネルギー計算結果と実験結果との比較

2. 近赤外域光デバイス応用を目指した InN/In_{0.7}Ga_{0.3}N 多重量子井戸構造の作製とデバイス設計に向けたシミュレータによる特性評価

H17年度までに我々は In 極性制御により、比較的高品質な InN/In_{0.7}Ga_{0.3}N 多重量子井戸構造の作製に成功し、室温下での光通信波長帯を含む近赤外域発光の確認に成功している。H18 年度は、これらの構造の InN 井戸幅依存性を調査し、実験結果とデバイスシミュレータを用いた理論計算結果を比較評価することで、デバイス設計において重要な内部電場やバンドオフセット量を評価した。

図4(a)に GaN バルク基板上に成長した InN/In_{0.7}Ga_{0.3}N MQWs の室温 PL スペクトルの InN 井戸幅依存性を示す。InN 井戸幅増大に伴い、PL ピークのレッドシフト、強度の低下が見られた。

図4(b)に実験結果とデバイスシミュレータによる理論計算の比較を示す。ここで InN や In_{0.7}Ga_{0.3}N に関するパラメータは、我々のグループにより求めた結果を用いている。InN/In_{0.7}Ga_{0.3}N のバンドオフセット比を 6:4、内部電場 2.5MV/cm を仮定した場合、実験結果との非常に良い一致が得られた。また、PL 強度の低下も内部電場を考慮した場合の遷移確率の低下と比較的近い傾向を示していることから、InN/In_{0.7}Ga_{0.3}N MQW 構造におけるピエゾ電界の大きさや、バンドオフセット量に関する知見が得られ、デバイス作製時には、遷移確率の急激な低下を防ぐための 1nm 以下の井戸層厚(この構造における臨界膜厚)制御や InGaN 障壁層の In 組成の増加が重要であることがわかった。

3. InN 系材料のデバイス応用実現を左右する InN の p 型ドーピング特性評価

3-1. 高品質 In 極性 InN 単結晶の残留電子の起源

我々はその場観察精密エピタキシー制御により高品質 InN 単結晶成長に成功し、現在では $\sim 3 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ まで残留電子密度の低減に成功している。これらの InN 結晶中のホール効果測定電子密度と (102) 面 X 線ロックアップカーブ半値幅の関係を系統的に調べた結果 (図 5)、X 線回折半値幅の増大、特に刃状貫通転位密度の増大に伴い、電子密度は増大し、移動度は低下していることがわかった。このような刃状転位密度と残留電子密度の相関について考察するため、我々はこの刃状貫通転位の未結合手がドナとなり、単純に 1 価のドナになると仮定して考えた。その場合、 10^{10}cm^{-2} の刃状転位密度は約 $3.5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ の電子密度源になる。この値は、測定した残留電子密度と非常に近い。つまり、現在の高品質 InN 単結晶における残留電子密度の主要因は刃状貫通転位である可能性が高く、残留電子密度低減のためには、刃状転位密度の飛躍的低減が必要であることが明らかになった。

3-2. InN 単結晶における Mg ドーピング量の評価とそのアクセプタ活性化エネルギー

- 高品質化に伴い、残留電子密度の大幅な低減が実現されたので、H18 年度は In 極性 InN における Mg ドーピングの効果について調査した。図 6 に Mg セル温度をそれぞれ変化させた多層 InN:Mg 構造の SIMS 測定結果を示す。InN 中の Mg 量はセル温度の上昇に伴い、18 乗から 20 乗まで変化していることがわかった。

これらの結果から、InN エピタキシーにおける Mg ドーピングは付着係数がほぼ 1 であり、少なくとも 20 乗以上の Mg の取り込みが可能であることがわかった。しかし、先に述べた刃状貫通転位による $\sim 10^{17} \text{cm}^{-3}$ の残留電子密度により、未だホール測定による p 型伝導制御は確認されていない。今後は、刃状転位低減による残留電子密度の低減はもちろん、pn 接合構造による評価も含めたより直接的な p 型伝導性評価が重要であり、現在これらに関する検討をおこなっている。

- InN:Mg サンプルの PL 励起光強度依存性評価により、Mg によるアクセプタ準位からの発光とバンド端(もしくは浅いアクセプタ準位)発光の二つのピークが明瞭に観察された。この結果から、Mg アクセプタ準位の活性化エネルギーが約 61meV であることがわかり、p 型 InN 実現に向けた重要な知見が得られた。

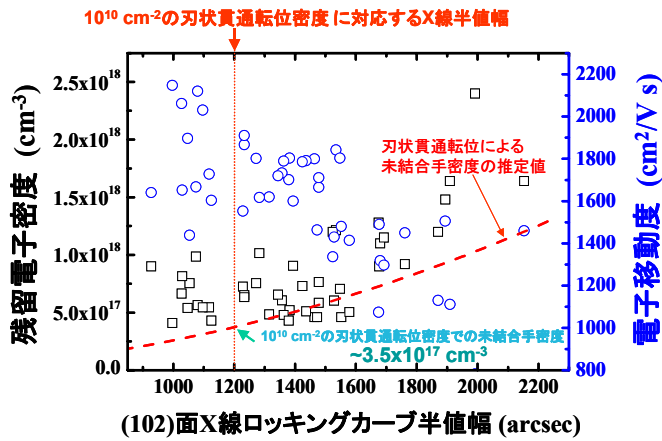


図5. InN の残留電子密度とX線ロックアップカーブ半値幅（非対称面(102)）との関係。□と○はホール測定電子密度と移動度測定結果、朱色破線はX線回折半値幅から推定した刃状貫通転位密度に存在する未結合手密度である。ここに示した電子密度は先に示した表面および界面に存在する電子密度の影響を除いたInN膜中の値を示す。

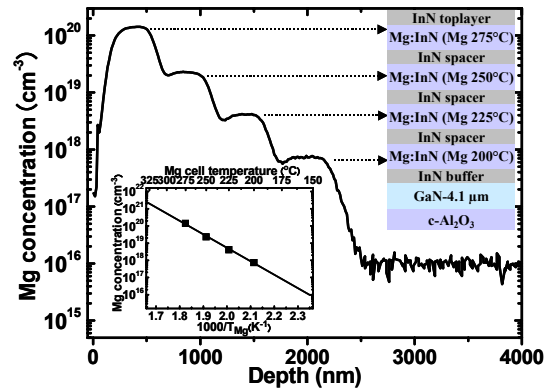


図6. Mgセル温度を200, 225, 250, 275°Cと変化させた添加量の異なる多層InN:Mg構造のSIMS測定結果(Mgをイオン注入したInN:Mg標準サンプルで校正してMg密度を求めた)。各InN:Mg層の厚さは420nm、アンドープInNスペーサ層の厚さは120nmとした。

3. 研究実施体制

(1) 千葉大学グループ

① 研究者名

吉川 明彦 (大学院工学研究科 教授)

② 研究項目

- ・ InN/InGaN MQWs 構造の光通信波長域での光デバイス特性評価
- ・ 半導体レーザ設計に必要な InN 系混晶、量子井戸構造のパラメータ、光学定数の導出
- ・ 超高速光変調デバイスへの応用に向けた InN 系超格子構造の設計・作製・評価
- ・ InN ナノ構造の構造・光学特性評価
- ・ InN 単結晶の残留電子濃度の更なる低減化と p 型伝導制御の可能性に関する検討

(2) 千葉大学/埼玉大学グループ

① 研究者名

吉田 貞史 (工学部電気電子システム工学科 教授)

② 研究項目

- ・ 分光エリプソメトリによる $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶における屈折率の組成依存性
- ・ フォトリフレクタンスによる $\text{InN}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 多重量子井戸構造のバンドオフセット量解析

(3) 千葉大学/帝京科学大学グループ

① 研究者名

永沼 充 (帝京科学大学理工学部 教授)

② 研究項目

- ・高密度光励起による InN/In_{0.7}Ga_{0.3}N 多重量子井戸構造の発光強度・スペクトルの励起光強度依存性評価

(4) 産総研研究グループ

① 研究者名

奥村 元 (パワエレクトロニクス研究センター 主幹研究員 (センター総括))

② 研究項目

極薄膜 InN、InGaN 層をチャンネル層に用いた AlGaIn/GaN HEMT 構造のデバイス特性評価

- ・顕微ラマン/PL マッピング法を用いた InN, 高 In 組成 InGaIn 混晶、極薄膜 InN の面内の歪、残留キャリア、組成不均一評価
- ・1 分子層オーダーの InN もしくは高 In 組成 InGaIn 混晶チャンネル層を用いた AlGaIn/GaN HEMT 構造の試作とデバイス特性向上の可能性に関する検討

(5) 古河電工グループ

① 研究者名

吉田 清輝 (横浜研究所・基盤技術センター 主査)

② 研究項目

- ・SIMS による InN 単結晶の不純物の種類と量の解析
- ・InN 系超格子、InN 量子ドット積層構造、1 分子層 InN 超格子について断面 TEM により評価し、ナノ構造/キャップ層界面の欠陥発生の有無についても評価する。

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

- W.Terashima, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshiwaka, "Growth and Characterization of AlInN Ternary Alloys in Whole Composition Range and Fabrication of InN/AlInN Multiple Quantum Wells by RF Molecular Beam Epitaxy", **Japanese Journal of Applied Physics**, Vol.45, No.21, L539-L542, (2006)
- X.Wang, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, "Step-Flow Growth of In-Polar InN by Molecular Beam Epitaxy", **Japanese Journal of Applied Physics**, Vol.45, No.28, L730-L733, (2006)
- S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshiwak, "Fabrication and characterization of 20 periods InN/InGaIn MQWs", **Physica Status Solidi (c)**, Vol.3, (6), 1953-1957, (2006)

- S.B.Che, K.Akasaka, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, “Study on influence of atomic hydrogen irradiation on growth and property of N-polarity InN”, **Physica Status Solidi (c)**, Vol.3, (6), 1540-1543, (2006)
- Y.Ishitani, W.Terashima, S.B.Che, A.Yoshikawa, “Conduction and valence band edge properties of hexagonal InN characterized by optical measurements”, **Physica Status Solidi (c)**, Vol.3, (6), 1850-1853, (2006)
- W.Terashima, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, “Fabrication of InN/AlInN MQWs by RF-MBE”, **Physica Status Solidi (c)**, Vol.3, (6), 1591-1594, (2006)
- X.Wang, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, “Growth of In-polar and N-polar InN nanocolumns on GaN templates by molecular beam epitaxy”, **Physica Status Solidi (c)**, Vol.3, (6), 1561-1565, (2006)
- W.Yamaguchi, S.B.Che, N.Kikukawa, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, “Towards fabrication of In-polar InN films and InN/GaN MQWs”, **Physica Status Solidi (c)**, Vol.3, (6), 1511-1514, (2006)
- X.Wang, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, “Temperature-dependent growth and characterization of N-polar InN films by molecular beam epitaxy”, **Physica Status Solidi (b)**, Vol.243, (7), 1456-1460, (2006)
- Y. Iwahashi, H. Yaguchi, A. Nishimoto, M. Orihara, Y. Hijikata, and S. Yoshida, “RF-MBE growth of cubic InN films on MgO (001) substrates”, **Physica Status Solidi (c)**, Vol. 3, (6), 1515-1518, (2006)
- E.S.Hwang, E.M.Park, E.-K.Suh, C.-H.Hong, H.J.Lee, X.Wang, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, “Electron behavior and impurity properties as functions of growth temperature for InN grown by using plasma-assisted molecular beam epitaxy”, **J. Korean Phys. Soc.**, Vol.49, 1530, (2006)
- S.B.Che, T.Shinada, T.Mizuno, X.Wang, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, “Effect of precise control of V/III ratio on In-rich InGaN epitaxial growth”: **Japanese Journal of Applied Physics**, Vol.45 Part 2, L1259-L1262, (2006)
- X.Wang, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, “Experimental determination of strain-free Raman frequencies and deformation potentials for the E_2 high and $A_1(\text{LO})$ modes in hexagonal InN”, **Applied Physics Letters**, Vol.89, 171907, (2006)
- A. Yoshikawa, S.B. Che, W. Yamaguchi, H. Saito, X.Q. Wang, Y. Ishitani, and E.S. Hwang, “Proposal and achievement of novel structure InN/GaN multiple quantum wells consisting of one monolayer and fractional monolayer InN wells inserted in GaN matrix”, **Applied Physics Letters**, Vol.90, 073101 (2007).
- X.Wang, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yosihkawa, “In situ spectroscopic ellipsometry and RHEED monitored growth of InN nanocolumns by molecular beam epitaxy”, **Journal of Crystal Growth**, Vol.301/302, 496, (2007).

- X.Wang, S.B.Che, Y.Ishitani, A.Yoshikawa, “Threading dislocations in In-polar InN films and their effects on surface morphology and electrical properties”, **Applied Physics Letters**, Vol. 90, 151901 (2007)
- M.Oda, T.Nakayama, “Charge Injection from Si Substrate into Amino Acids”, **Japanese Journal of Applied Physics**, Vol.46, 8939 (2006)
- T.Nakayama, S.Itaya, D.Murayama, “Nano-scale view of atom intermixing at metal/semiconductor interfaces”, **J. Phys. Conf. Ser.**, Vol.38, 216 (2006)
- T.Nakayama, Y.Takei, “Surface strain and hexagonal/cubic polymorphism in InGaN epitaxy: first-principles study”, **Physica Status Solidi (c)**, Vol.4, 299 (2007)
- H.Ishii, Y.Tomita, T.Nakayama, “Relaxation processes of transient current in nano-contact system: effects of electrode”, **Physica Status Solidi (c)**, Vol.4, 481 (2007)

※その他(国内:査読なし)

- 寺嶋亘、崔成伯、石谷善博、吉川明彦、”AlInN3 元混晶の成長と InN/AlInN MQWs 構造の作製評価”、**信学技報**、Vol.105、No.325-327、29、(2005)
- 味村裕、寺嶋亘、崔成伯、石谷善博、吉川明彦、”RF-MBE 法により成長した AlInN 薄膜の CL 測定による評価”、**信学技報**、Vol.106、No.336、25、(2006)

(2) 特許出願

平成 18年度特許出願:2 件(CREST 研究期間累積件数:4 件)