

「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」
平成 17 年度採択研究代表者

岸野 克巳

上智大学 理工学部・教授

ナノコラム結晶による窒化物半導体レーザーの新展開

1. 研究実施の概要

InGaN/GaN ナノコラムの発光特性の向上には、ナノコラムの形状の均一化と位置制御が必須であるため、本年度は分子線エピタキシー (MBE) 法による GaN 選択成長法の成熟化と GaN ナノコラム規則配列化の実現を主たる研究目標とした。さらに選択成長法の新たな展開として、ストライプ状開口部を設けた Ti ナノマスクパターン上に選択成長することで、一次元板状ナノ結晶 (ナノウォール) の成長の条件把握を深めた。これらと並行して、Si 基板上に自己形成ナノコラム LED を作製して諸特性の改善を進めつつ、ナノコラム金属転写による Si 基板除去と LED プロセスの開拓を行い、ナノコラム規則配列化によるデバイス作製の基礎技術の確立を進めた。また、これまでに引き続き、ナノコラム結晶効果の解明に向けて、単一、集団ナノコラムについて、光物性、フォノン物性、ランダム物性の研究を行った。とくに自己形成 GaN ナノコラム結晶において、ランダムレーズングと光のアンダーソン局在の観測に成功したのは特筆すべき成果であろう。一方、ナノコラム内の歪分布を知りデバイス設計に活用するため、有限要素法によるシミュレーションを行い、InGaN 量子ディスク面内の歪分布の解析法を確立した。

本年度は GaN ナノコラムのコラム径と位置制御に特段の進歩があり、コラム径と位置を 10nm 以下の精度で自由に制御しうる手法を手に入れた。そこで今後は、自己形成法ではなくは、ナノコラム規則配列化やナノウォールを基礎にして、規則配列ナノコラム LED、面発光型とファブリペロー型ナノレーザーに向けた研究を加速させる。また、コラム径を揃えて集団ナノコラムを作る、あるいは間隔を開けて単一ナノコラム評価がしやすい構造を作り、系統的な物性評価を進め、ナノ結晶効果を明らかにし、新領域の物性現象を探索する。

2. 研究実施内容 (文中にある参照番号は 4.(1)に対応する)

[ナノコラム規則配列化の探索]

(1)人工的な成長核配置によるナノコラムの組成と形状制御^{4, 8, 11)}

顕微鏡下において InGaN ナノコラム LED の近視野像を評価すると、多色発光となることがあり、マイクロメータ領域内に赤、緑、青、黄色の明るい発光スポットが観測され、まるで宝石箱を覗くよ

うで興味深い。何らかのナノコラム個性の違いによって、Inの取り込み量に分布ができ、発光色に変化がもたらされている。この発光色を制御できれば、原理的にはマイクロメータ空間での三原色制御ができるようになり、三原色ナノLED、あるいは白色LEDへの応用など、魅力的なデバイスの実現が期待される。それにはナノコラムの規則配列化による組成と形状制御が必須である。

GaNの選択成長は有機金属気相成長法(MOVPE)では手軽に行われている。しかしながらrfプラズマ分子線エピタキシー(rf-MBE)法による選択成長法はとて難しかった。SiO₂やSiN_x表面に結晶が析出し、MOVPE法のように選択成長用マスクに利用できないためである。本研究では、Tiマスク⁴⁾とAlナノパターン⁶⁾を用いる二つの方法を開拓し、世界で初めてGaN選択成長を行うことができた。ここでは制御性の高いTiマスク選択成長法⁴⁾について報告する。

この手法ではGaNテンプレート基板の上にTi薄膜を堆積したのちに、集束イオンビーム(FIB)装置によって、周期400nm-4μm、直径100-550nmのさまざまな三角格子もしくは正方格子状ナノホールパターン(領域:20μm×20μm)を作製した⁸⁾。Ti表面を窒化しTiN表面を作った上で、GaNナノコラムの選択成長を行った。成長温度を900°Cに固定してGaNナノコラムを3時間成長させた。窒素供給量を3.5sccmから1sccmの範囲で変化させたところ、少ない供給量ほど選択成長がしやすくなり、均一なナノコラム規則配列化に成功した¹¹⁾。図1は窒素供給量1.0sccmで成長した規則配列ナノコラムのコラム径制御性を示しており、コラム径は100nm~252nmの範囲で制御されている^{8, 11)}。

発光波長486nm、コラム径が130nm、コラム周期が200nmとなった規則配列InGaNナノコラムのPL内部量子効率を評価したところ77%を得たが、この値は、文献値の中でも、もっとも高いグループに入るもので、優れた値といえる⁸⁾。図2では規則配列ナノコラム(赤色)と自己形成ナノコラム(青色)の面内のコラム径分布を比較した。平均コラム径はそれぞれ217nm、150nmで、標準偏差は4.6nmと87nmであった。自己形成法ではコラム径は広く分布したが、規則配列ナノコラムでは、マスクパターンの均一性に対応してコラム径のバラツキは±2%以内に制御され、径の均一化が達成され^{8, 11)}、ナノコラムの径と位置を

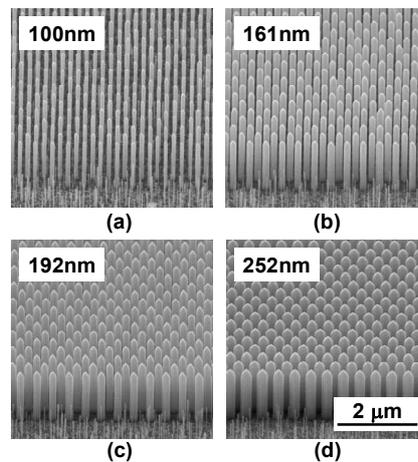


図1 規則配列 GaN ナノコラムのコラム径制御性、コラム径：100、161、192、252nm、供給窒素流量 Q_{N₂}=1.0sccm

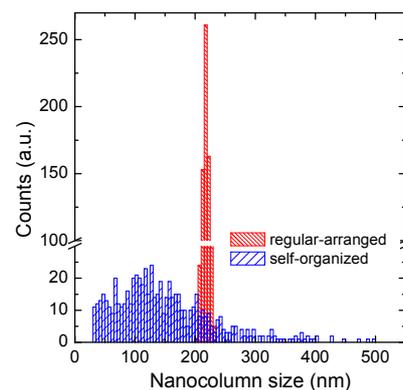


図2 ナノコラム径の面内分布

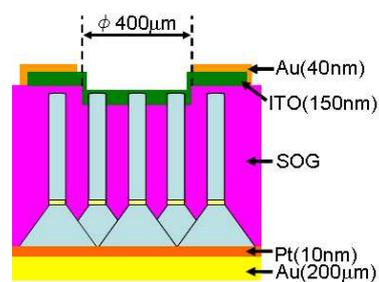


図3 金属転写法で Si 基板除去したナノコラム LED 構造

高精度に自由に制御しうる手法を確立した。最近、この手法を活用して新たなナノ構造(ナノリング)の探索も開始している¹⁴⁾。

[自己形成ナノコラム LED 高性能化]

(2) ナノコラム金属膜転写による Si 基板除去法とナノコラム LED 応用

(111)面 Si 基板上に作製されたナノコラム LED では、Si 基板が吸収媒質であるために発光性能の低下が懸念される。本年度はナノコラム LED の高性能化に向けて、高い反射率を有する金属基板へのナノコラム結晶の転写技術を開発した。ナノコラム LED 結晶の p 型層表面に下地層として Pt (10nm)を EB 蒸着法で成膜し、電解めっき法で厚さ約 50 μm の Au 膜を形成したのちに、HF+HNO₃ によるウェットエッチングでシリコン基板を除去した。基板が除去されむき出しとなった n 側ナノコラム間に SOG を充填し、直径 400 μm 円形領域のナノコラム上部の頭出しを行った後に、ITO 透明伝導膜を蒸着し、Au リング電極を形成した(図3を参照)。図4は 10mA 注入時の発光写真の一例でピーク波長 663nm の面内均一な赤色発光を得た。

(3) 自己形成ナノコラム LED の諸特性^{1, 5, 7)}

ナノコラム LED 結晶は、(111)面 n 型 Si 基板上に自己形成された直径 80~120nm の n 型 GaN ナノコラム内に InGa_N/Ga_N 多重量子井戸を作りこみ、その上に p 型 Ga_N クラッド層を成長させた。p クラッド層では Mg ドーピングを行い低温で成長することでナノコラム径が増加して最表面では連続膜となる。その最表面に電極を形成してナノコラム LED 構造を作製した。

ナノコラム LED 研究のマイルストーンとして目指したのは、低抵抗化:数十 Ω 、波長域拡大:370~650nm、半値幅:150meV@ $\lambda = 500\text{nm}$ で、概ね達成することができた。昨年度から引き続いた実験で、ナノコラムが紫外域 LED の作製にも有効であることを示した^{1, 5)}。また、電極構造の工夫、最表面平坦化の促進などにより、直径 500 μm の円形電極に対して素子抵抗は 13 Ω まで低減化された。今後は ITO 透明電導膜の利用、Ga_N/AlGa_N 超格子電流広がり層の導入、Be ドーピングの活用⁷⁾などでさらなる改善が期待される。初期のナノコラム LED の発光スペクトルは、半値幅が数百 meV とブロードであったが、自己形成ナノコラムの均一化を図ったところ、波長 570nm の半値幅は 184meV となって、同じ波長域における InGa_N 量子井戸の半値幅(Mukai et al., JJP 37 (1998) L479)と同程度まで改善された。しかしながら、さらなる LED 諸特性の改善にはナノコラム規則配列化が必須であり、今後は規則配列ナノコラム LED の開拓に集中する。



図4 10mA 注入時の発光写真

[Ga_N ナノウォール構造の実現]

(4) ナノウォール形状の結晶軸方向依存性

GaN テンプレート上に電子ビーム描画装置を用いて、直線状に窓を開けたナノマスクパターンを形成し、選択成長法によって幅 100~500nm の Ga_N ナノウォールを成長し、InGa_N 量子井戸を内在化させ、ナノウォール形状のストライプ方向依存性、発光特性への影響について調べた。図5は、六方晶系の m 軸と a 軸方向にストライプ

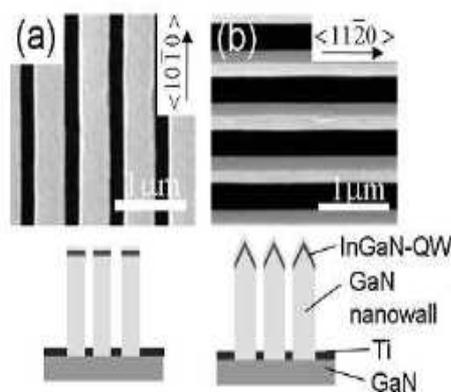


図5 Ga_N ナノウォールの表面SEM像と断面形状の模式図、(a)m軸方向ストライプ、(b)a軸方向ストライプ

窓をもつマスクパターン上に形成された、典型的な InGaN/GaN-MQW ナノウォールの表面 SEM 像とその断面模式図である。多くのナノウォールについて評価したところ、m 軸方向ナノウォールは上部に(0001)面の極性面が形成されやすく、a 軸方向ナノウォールでは c 面から約 45 度傾いた半極性面が形成されやすい傾向が見られた。室温で InGaN 量子井戸の PL 発光を観測したところ、前者の発光ピーク波長が 450nm であるのに対し、後者の a 軸方向ナノウォールは、発光強度が 10 倍から 100 倍程度強く、410nm 付近の短波長で発光する傾向がみられた。

[ナノコラム結晶効果の解明]

(5) 単一 InGaN/GaN ナノコラムからの励起子分子発光¹⁶⁾

rf-MBE 法によってサファイア基板(0001)面上に InGaN/GaN ナノコラムを成長した。試料の層構造は、サファイア基板側から GaN 層(1.45 μ m)、InGaN 活性層(5nm)、GaN キャップ層(35nm)からなり、ナノコラム径は 80 から 120nm で、すべての層がノドープである。単一ナノコラムの分光を行うために、機械的にサファイア基板からナノコラムを分離し、純水中に分散させ、マイクロミラーアレイ加工を施した Si 基板上に散布した。Ti:サファイアレーザ(375nm)による選択励起・顕微分光法で評価したところ、励起子分子発光が観察され、しかも、この材料系では初めて正の励起子分子束縛エネルギーが観測された¹⁶⁾。

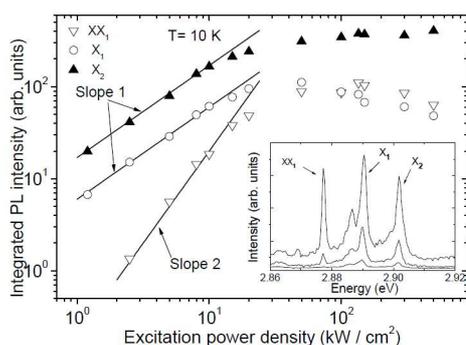


図6 InGaN 単一ナノコラムの顕微 PL 特性、スペクトルと励起光強度依存性を示した。

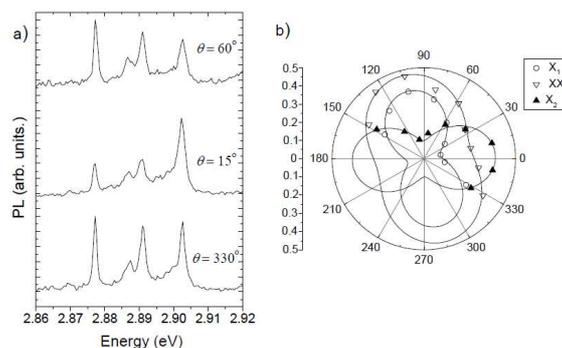


図7 InGaN 単一ナノコラムの顕微偏光 PL 特性、
a) 偏光 PL スペクトルの偏光子角度 θ 依存性と
b) PL 強度の極座標上へのプロット。

図6は、10K における発光のスペクトルとその発光強度の励起密度依存性で、発光スペクトルに 3本の輝線、 XX_1 、 X_1 、 X_2 が観察された。これまでに報告されている通り、これは単一のナノコラム中に複数個のナノ局在発光中心が存在していることを示している。励起光強度を 120 W/cm^2 から 500 W/cm^2 に変化させながら各輝線を観測すると、 XX_1 は 200 W/cm^2 以上で検出され始め、それ以上の励起光強度では励起光強度の自乗に比例して発光強度が強くなった。一方、 X_1 、 X_2 の励起強度依存性は線形的であった。このことより XX_1 は励起子分子発光、 X_1 、 X_2 は励起子発光と考えることができる。さて励起子分子発光と励起子発光が同じナノ局在中心から発光しているとするれば、偏光方向は一致しなければならない(この性質は、励起子分子発光の再結合過程が、 $XX \rightarrow X+h\nu_{XX}$ となることに起因している)。図7は、図6の 3本の輝線の偏光顕微 PL 測定結果で、偏光子の回転角 θ に従ってスペクトル強度が変化した。極座標プロットすると、 XX_1 の偏光方向は X_1 に一致するが、 X_2 とは異なっている。これは XX_1 と X_1 が同じナノ局在中心を起源としていることを示しており、これらの発光ピークエネルギーの差から励起子分子束縛エネルギーを求めると、13meV と見積もられた。これまでの研究では、(0001)面上の窒化物量子井戸における励起子分子束縛エネルギーは、分極誘起電界のため負の値が報告されていた。本実験によってこの材料系では初めて、正の励起子分子束縛エネルギーを観測し定量することに成功した¹⁶⁾。これはナノコ

ラム効果による分極誘起電界の低減を示すと考えられる。

(6) ナノコラムにおける歪制御と歪分布解析¹⁷⁾

ナノコラム内では InGaN 量子井戸層の歪が低減していることが、これまでの実験結果で予測されている。これを裏付けるために有限要素法によるシミュレーションを行った。図8は、膜厚 3 nm の $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{N}$ 単一量子井戸を内包する直径 200 nm のナノコラムに対する計算結果の一例である。コラム中心では格子不整合度から予想される歪 ($\epsilon_{xx} = -2.6\%$)を示したが、これは通常の 2次元系の量子井戸と同様の値である。一方でコラム側面は、自由空間に開放されていることを反映して、歪が-1.5 から-1.0%程度にまで低減して

いる¹⁷⁾。今後はコラムの直径やキャップ層厚みなど構造パラメータを変化させながらこのような計算を実施し、ナノコラム物性の予測やコラム構造設計に活用したい。

昨年度から継続してトップダウン方式でナノコラム構造を作り、発光スペクトルを観測しながら、ナノ結晶の歪軽減効果について調べた。ここでは反応性ガス支援イオンビームエッチング (CAIBE)法を用いて InGaN/GaN 量子井戸構造をナノコラム形状に加工して、顕微発光測定、顕微時間分解発光測定を行ったところ、加工をすることによって、発光スペクトルのブルーシフト、発光強度の増大、輻射再結合寿命の高速化が観測された。これは表面歪みの緩和によって内部電界が遮蔽されたことを示しており、加工ナノコラムにおいても“ナノコラム効果”が検証された¹⁷⁾。

(7) 自己形成(In,Ga)N ナノコラムの光物性^{2, 3, 9, 10, 12, 13, 16)}とランダムレージングの観測

これまで自己形成(In, Ga)N ナノコラムにおいて、励起子・励起子分子、コラム形状固有の励起子物性と光学特性^{2, 10, 16)}、ラマン散乱¹²⁾など、さまざまな光物性評価を進めてきた。さらに、ナノコラムの可能性を探るべく、赤外域で発光する InAlN あるいは InN ナノコラム^{9, 13)}、GaN/AlN 超格子ナノコラム³⁾の赤外域サブバンド間遷移などについてナノコラム物性の評価を進めた。

本年度はとくに、自己形成ナノコラムのもつランダム媒質性を基礎に興味深い物性現象が見

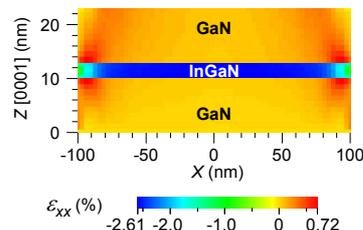


図8 有限要素法による歪の計算例、直径 200 nm のナノコラム中に存在する 3nm の $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{N}$ 単一量子井戸を仮定し、ここでは、面内の歪 ϵ_{xx} を示した。

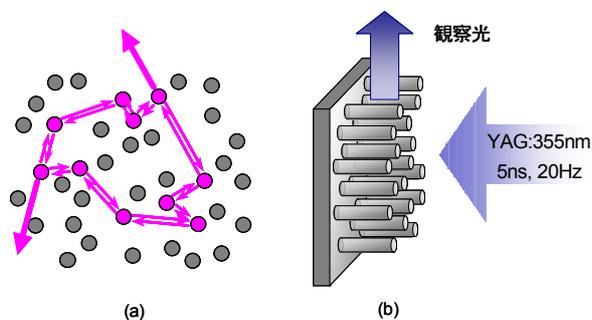


図9 GaN ナノコラムにおけるランダムレージング

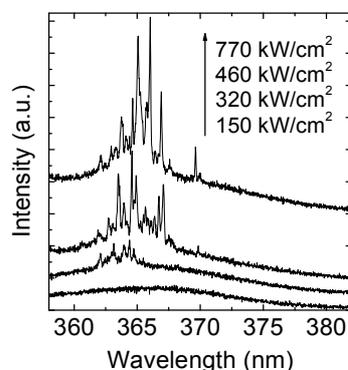


図10 GaN ナノコラムの室温ランダムレージングスペクトル

られた。ランダムに配列した散乱体中では、光の多重散乱と干渉効果による光の局在効果が発現される。とくに、ランダム系媒質中の光の多重散乱において、図9(a)のように一部が循環するパス、いわゆる共振器を形成し、かつ利得媒質がある場合、その微小共振器においてレーザ発振が起きることが知られており、これはランダムレージングと呼ばれている。この結果、GaN系半導体としてはじめてランダムレージングを観測し、全体計画書で当初に予測した現象の観測に成功した。半導体におけるランダムレージングは、ZnOやGaAs系の微粒子やコラム形状のZnOで報告されているが、GaN系での報告例はこれまで無かった。図10にその発振スペクトルを示した。励起密度が低い時(150kW/cm²)は、自然放出によるブロードな発光ピークのみが観察されたが、励起密度を上げると362~370nmの範囲で複数のレーザ発振ピークが観察された。

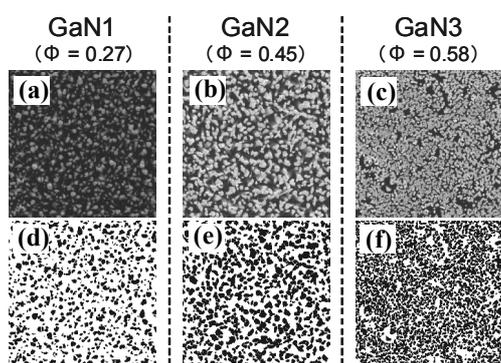


図11 4.5 μm 四方 GaN ナノコラムの SEM 写真 (a)-(c)と計算に取り込んだ配置データ (d)-(f)

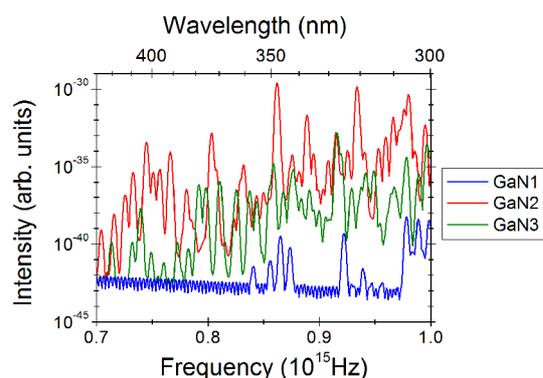


図12 GaN ナノコラム試料における局在スペクトル

(8) ランダム配置 GaN ナノコラム内の光局在の解析

ナノコラムがランダムに配置され、試料間でコラム密度も異なる自己形成 GaN ナノコラムでは、強励起下の光局在の振る舞いには試料依存性がある。図11に示すように、三つのサンプル(GaN1:コラム充填率 $\phi = 0.27$, GaN2: $\phi = 0.46$, GaN3: $\phi = 0.58$)で強励起実験を行ったところ、GaN2のみランダムレージングが観測された。GaN3では自然放出増幅光(ASE)が観測されたが、GaN1は励起強度を上げてても通常自然放出光しか観測されなかった。サンプルの表面写真(図12(a)-(c))から5nm刻みで媒質の有無を画像的に取り込み、シミュレーションを行う試料配置モデルを図11(d)-(f)のように再現した。

これを用いて解析を行い、GaNの室温発光波長域(365nm付近)に対応する周波数領域において、図12に示すように、各試料に対する局在光スペクトルを得た。ランダムレージングが生じた試料領域とSEM写真の領域が、同一である保証はないが、同じ測定試料上の領域であり、大よその振る舞いを議論することができると考えている。図12をみると、すべての試料で局在効果を示すスパイク状のスペクトルが得られたが、局在効果はGaN2, GaN3, GaN1の順で強くなる。このことはGaN2でランダムレージング、GaN3でASEが観測されたことに対応していると考えている。

(9) InGaN ナノコラムにおける光のアンダーソン局在の観測

不均一ポテンシャル中における波動関数の局在はアンダーソン局在として知られているが、ランダム系の光局在は“光のアンダーソン局在”と呼ばれる。自己形成ナノコラムは、各ナノコラムの位置・形状が不規則な“ランダム媒質”で、光は多重散乱と干渉効果によって局在を生じる。自己形成 GaN ナノコラムは、平均自由行程と波長が同程度であるため強い局在効果が予想されるが、ナノコラム・ランダムにおける光局在効果はほとんど研究されてこなかった。

本年度は、自己形成 GaN ナノコラムに InGaN 単一量子ディスクを内在化させたサンプルについて

て、フォトルミネッセンス(PL)の高分解能測定を近接場光学顕微鏡(SNOM)によって行い、光局在の直接観察を行った。図13は、二つの異なる波長 402nm と 375nm を用いつつ、6 μ m 四方の領域を 150 点 \times 150 点で SNOM 観察を行って得た PL 発光積分強度の空間分布である。空間分解能は約 60nm、PL 強度の違いは色の違いで

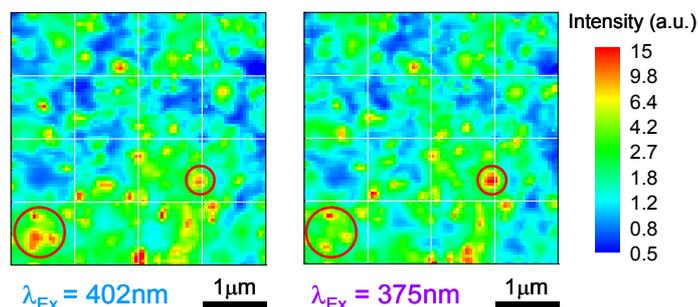


図13 PL 強度分布の励起波長依存性

表示し、赤い部分が強い発光を示している。PL 強度分布の物理的起源としては、①In 組成揺らぎ・結晶性、②励起光の局在効果、③発光の局在効果、の3つが考えられる。各波長の PL 強度分布のヒストグラム解析から、いずれもポアソン分布に近い形状となり、ランダム効果を反映した光局在が起きていると考えられる。

光局在としては②あるいは③がありえるが、各ナノコラム発光の間にはコヒーレンスが無いことを考えると③はほぼ無視でき、ランダム局在効果は②の励起光において起きていると考えられる。図13は波長の異なる励起光(402nm と 375nm)による SNOM 観察であることに注意しよう。全体的に見て発光分布が似ているのは、サンプル自体の In 組成揺らぎや結晶性に起因するものであろう。しかし、図中の赤丸の部分などに注目すると、励起光源の違いによって PL 強度が大きく異なる領域が複数存在する。つまり、励起光の波長の違いによって局在が異なっていて、図13の高い光強度の領域に励起が局在していることを示している。以上より、本研究では、ナノコラムにおける光のアンダーソン局在の直接観察に成功したと結論付けられる。

3. 研究実施体制

(1)「岸野」グループ

①研究分担グループ長： 岸野 克巳(上智大学、教授)

②研究項目

- a) InGaN 量子井戸を内在した単一ナノコラムを取り出し、顕微 PL 測定装置を用いて発光スペクトルの井戸数依存性、温度依存性、励起光強度依存性、励起波長依存性等の系統的評価を行う。
- b) 集団ナノコラムの光物性、フォノン物性、および電気物性を評価し、ナノコラム結晶の基礎物性の理解を進めるとともに、新規ナノ物性の発現可能性を探る。
- c) Ti マスクを用いた GaN ナノコラムの選択成長条件を詳細に調べ、ナノコラムの位置と形状の制御技術を確立する。成長温度、原料供給比、Ti マスク厚さなどをパラメータとする。
- d) 規則配列ナノコラム上に InGaN 量子井戸を成長し、ナノコラム形状や周期による発光色制御技術を確立する。GaN ナノコラムや InGaN 量子井戸の成長条件と発光特性の関係を精査して、RGB 三原色ナノコラム LED 等への応用に向けた基礎技術を開発する。
- e) Al(Ga)N/GaN 多層膜反射鏡を内在したナノコラムの成長条件を把握し、ナノコラム DBR の形状制御条件、反射率の評価、共振器構造の作製と評価を行う。規則配列技術導入して形状制御性と反射率の向上を進める。
- f) ナノコラムのランダム物性と光伝搬を近接場光学顕微鏡(SNOM)と統計学的手法を用

いて考察する。さらに、光励起によるランダムレージングの可能性を調べる。

g) (111)シリコン基板上に電流注入型ナノコラム LED を成長し、紫外から赤色までの広い波長域で、ナノコラムによる窒化物材料の波長域拡大の可能性を示す。p型ドーピングと素子抵抗や InGaN 活性層の井戸幅依存性などをデバイス構造で評価する。ここではナノレーザにおいて重要となる素子抵抗、発光強度、発光スペクトル半値全幅などの特性に注目する。

h) 金属膜へのナノコラム転写技術や透明絶縁材料によるナノコラムの充填法など、ナノコラムデバイスに適したデバイス構造の確立に向けた要素技術を開発する。

i) GaN ナノウォールの作製を進め、発光特性を調べ、新領域ナノ構造の可能性を調べる。

(2)「川上」グループ

①研究分担グループ長：川上 養一(京都大学、教授)

②研究項目

a) MMA 構造を用いて、個別 InGaN ナノコラムに形成された局在中心の空間的広がりやポテンシャル深さなど閉じ込め次元性に関して、スペクトル線幅と再結合寿命の温度依存性から評価する。MBE 成長および微細化加工試料において系統的な比較を行うことによって、局在中心の形成機構とその制御法に関して有用な知見を得たい。

b) 誘導結合プラズマ型反応性イオンエッチング装置(ICPRIE)を用いて、物理エッチングと化学エッチングの個別制御による垂直加工と低損傷プロセスの最適化を図る。これによって、直径数 100nm 以下の加工ナノコラムを作製し、この手法においても“ナノコラム効果”を利用した素子として展開可能であることを実証する。

c) 有限要素法によってナノコラム中の歪分布およびポテンシャル分布を正確に評価し、実験で明らかとなった表面再結合速度のデータも参照に加工ナノコラムの構造・作製プロセスを最適化する。加工後の高速熱処理や化学処理による非輻射再結合中心の抑制が重要なポイントであり精査する。

d) “集団ナノコラム効果”を検証するために、SNOM 分光におけるイルミネーションおよびコレクションモードにて同時に測定可能なマルチモード SNOM 装置を用いて、ナノコラム群におけるフォトン局在効果をマッピング観測する。有限差分時間領域法(FDTD)シミュレーションによる理論計算との比較から、規則配列ナノコラムにどのような不規則性を加えればこの効果を積極的に利用可能かについて、上智大グループと十分なブレインストーミングを行う。

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表 (原著論文)

1. H. Sekiguchi, K. Kishino and A. Kikuchi, "GaN/AlGaIn nanocolumn ultraviolet light-emitting diodes grown on n-(111) Si by RF-plasma-assisted molecular beam epitaxy", *Electronics Letters* **44**, No.2 (2008) 151-152.
2. K. Kouyama, M. Inoue, Y. Inose, N. Suzuki, H. Sekiguchi, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi, K. Kishino, "Photoluminescence of exciton and biexciton in GaN nanocolumns", *Journal of Luminescence* **128**, No.5 (2008) 969-971.
3. K. Tanaka, K. Ikuno, Y. Kasai, K. Fukunaga, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi, K. Kishino, "Ultrafast intersubband relaxation dynamics at 1.55 μ m in GaN/AlN multiple quantum disk nanocolumns", *Journal of Luminescence* **128**, No.5 (2008) 1084-1086.
4. K. Kishino, T. Hoshino, S. Ishizawa and A. Kikuchi, "Selective-area growth of GaN

- nanocolumns on titanium-mask-patterned silicon (111) substrates by RF-plasma-assisted molecular beam epitaxy", *Electronics Lett.* **44**, No.13 (2008) 819-821.
5. H. Sekiguchi, K. Kato, J. Tanaka, A. Kikuchi and K. Kishino, "Ultraviolet GaN-based nanocolumn light-emitting diodes grown on n-(111) Si substrates by rf-plasma-assisted molecular beam epitaxy", *physica status solidi (a)* **205**, No.5 (2008) 1067-1069.
 6. S. Ishizawa, A. Kikuchi and K. Kishino, "Selective growth of GaN nanocolumns on predeposited Al patterns by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", *physica status solidi (c)* **5**, No. 6 (2008) 1879-1882.
 7. H. Sekiguchi, K. Kato, A. Kikuchi and K. Kishino, "Effect of Be-doping on InGaN/GaN nanocolumn light-emitting diode structures by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", *physica status solidi (c)* **5**, No.9 (2008) 3069-3072.
 8. H. Sekiguchi, K. Kishino and A. Kikuchi, "Ti-mask selective-area growth of GaN by RF-plasma-assisted molecular-beam epitaxy for fabricating regularly arranged InGaN/GaN nanocolumns", *Applied Physics Express* **1**, No.12 (2008) 124002
 9. V. Darakchieva, M.-Y. Xie, F. Tasnadi, I.A. Abrikosov, L. Hultman, B. Monemar, J. Kamimura and K. Kishino, "Lattice parameters, deviations from Vegard's rule, and E_2 phonons in InAlN", *Applied Physics Letters* **93** (2008) 261908.
 10. K. Kouyama, M. Inoue, Y. Inose, N. Suzuki, H. Kunugita, K. Ema, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Exciton and biexciton properties in GaN nanocolumn: dependence on morphology and diameter", *physica status solidi (c)* **6**, No.1 (2009) 141-143.
 11. K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Improved Ti-mask selective-area growth (SAG) by rf-plasma-assisted molecular beam epitaxy demonstrating extremely uniform GaN nanocolumn arrays", *Journal of Crystal Growth*, **311**, 7 (2009) 2063-2068.
 12. T. Sekine, K. Muramoto, S. Suzuki, H. Kuroe, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Raman Scattering from Plasmon in Si-doped GaN nanocolumns" *Proc. of the 21st Int. Conf. on Raman Spectroscopy*, in press.
 13. K. Fukunaga, K. Kouyama, M. Hashimoto, K. Ema, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Evaluation of bandgap energy and carrier density for InN nanocolumns", *Journal of Luminescence*, in press.
 14. T. Kouno, K. Kishino, H. Sekiguchi, and A. Kikuchi, "Ti-mask selective-area growth of GaN nanorings by RF-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", *physica status solidi*, in press.
 15. R. Bardoux, A. Kaneta, M. Funato, Y. Kawakami, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Positive biexciton binding energy in a localization center formed in a single InGaN/GaN quantum disk", *Phys. Rev. B*, **79**, 1 (2009) in press.
 16. K. Kato, K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Overgrowth of GaN on Be-doped coalesced GaN nanocolumn layer by rf-plasma-assisted molecular beam epitaxy - Formation of high quality GaN microcolumns", *Journal of Crystal Growth*, in press.
 17. H. Sekiguchi, K. Kishino, J. Tanaka, and A. Kikuchi, "High-optical-efficiency regularly

- arranged InGaN/GaN nanocolumns fabricated by selective-area growth with rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy using Ti mask”, *physica status solidi*, submitted.
18. Y. Kawakami, A. Kaneta, L. Su, Y. Zhu, K. Okamoto, M. Funato, A. Kikuchi, and K. Kishino, “Radiative and nonradiative recombination processes in InGaN/GaN nano-pillars fabricated by post-growth chemically assisted ion beam etching”, *J. Appl. Phys*, submitted.

(2) 特許出願

平成 20 年度 国内特許出願件数：2 件（CREST 研究期間累積件数：6 件）