

研究課題名
窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用

研究代表者名

東北大学・多元物質科学研究所・福山博之

受け入れ研究者

東北大学・金属材料研究所・松岡隆志

研究分担者名

三重大学大学院工学研究科・三宅秀人, Ma Bei, 宮川鈴衣奈
東京大学・生産技術研究所・藤岡洋, 弘前大学・大学院理工学研究科・岡本浩
東京農工大学・共生科学技術研究院・熊谷義直, 富樫理恵
千葉大学・工学研究科・石谷 善博, 福井大学・工学研究科・山本暁勇
東北大学・多元物質科学研究所・秩父重英, 三重大学・工学研究科・伊藤智徳
京都工芸繊維大学・基盤科学部門・播磨弘, 名古屋大学・工学研究科・天野 浩
東北大学・金属材料研究所・片山竜二, 東北大学・多元物質科学研究所・安達正芳

1. はじめに

本共同研究は、III族窒化物の結晶成長に起因する課題を克服し、素子としての潜在的な可能性を顕在化させるため、窒化物半導体の結晶成長、物性評価および素子利用の観点から多面的な研究を進めるとする主旨のもと、受け入れ研究者である金研の松岡隆志教授と窒化物研究を担う気鋭の研究分担者との間で共同研究体制を構築し、窒化物半導体分野で金研と多元研が協力して研究拠点となることを目指している。

2. 研究経過

H23年度には、下記の研究会を開催した。第5回の研究会では、松岡隆志教授から共同研究の趣旨説明があり、その後、最新の窒化物研究に関する11件の講演があった。第6回の研究会では、11件の講演があり、活発な議論がなされた。

(1) 第5回 窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用

日時：平成23年8月8日（月）13:30-17:00

8月9日（火）9:30-12:15

会場：東北大学金属材料研究所 2号館1F講堂

研究会の概要

1. 松岡隆志（東北大金研）：はじめに

本共同研究の趣旨および共同研究体制のあり方について説明があった。

2. 藤岡 洋（東大生研）：窒化サファイア基板を用いたLEDの作製

PSD法によって窒化サファイア基板の上にAlN酸化層を形成し、N極性からAl極性へ極性反転を行った。Al極性上に発光素子を作製し、ピーク波長416nmの明瞭な青色発光を確認した。

3. 花田 貴（東北大金研）：InNのX線回折強度の温度因子の測定とバンドギャップ温度依存性に関する考察
InNのフォノンの二乗平均振幅の温度依存性をX線回折で評価した。さらに、電子の効果を取り除いても、関連物質の中でInNのバンドギャップ温度依存性が小さいことを支持する見積もりをtight binding近似で行った。

4. 熊谷義直（東京農工大学）：VPE炉内1000℃以上の高温域におけるサファイア表面の挙動

(0001)サファイアの常温・高温熱処理時の表面形状を検討した。その結果、水素と窒素が共存する場合は、1030~1430°C熱処理で表面に AlN ウィスカーが形成される、また、水素はサファイアを分解し、Al ガスを生成し、窒素は Al ガスと反応して AlN を形成することが明らかとなった。

5. 石谷善弘 (千葉大学) : InN の正孔散乱過程

InN について、赤外光学遷移エネルギーにより、アクセプター活性化エネルギーを得た。非輻射再結合について、p 型および n 型での活性化エネルギーを得た。また、p-InN の局在状態について検討した。

6. 秩父重英 (東北大多元研) : フェムト秒電子ビームを用いた窒化物半導体の時間分解分光計測(II)

成長条件や膜品質の異なる MOVPE 成長した AlN エピタキシャル膜のマクロ領域時間分解カソードルミネセンス (TRCL) 計測を行った。その結果、低温における輻射寿命と点欠陥密度に相関性を見出した。

7. 伊藤智徳 (三重大学) : GaN 表面状態図から見た再構成, H 吸着, Mg 取り込み

種々の面指数の GaN 表面における H 吸着および Mg 取り込みについて、量子論に基づく計算手法を用いて評価した。

8. 山本嵩勇 (福井大学) : 窒化物半導体の触媒援用 MOVPE 成長

Pt 族金属を触媒に用いた MOVPE 法による InN および GaN の成長に関する研究について報告があり、成長速度や表面マイグレーションの促進効果があることを明らかにした。

9. 天野 浩 (名古屋大学) : 日本のエレクトロニクス産業の歴史に学ぶ窒化物半導体開発の未来

日本のエレクトロニクス産業の特徴について説明があったのち、日本の技術力を生かした研究開発の例として、高 In 組成 InGaIn 成長に関する研究について報告があった。

10. 富樫理恵 (東京農工大学) : HVPE 法による InN 高速・厚膜成長の予備検討

MBE 法で成長した InN/サファイアテンプレートを用いて、Cl₂ 供給分圧の変化による HVPE InN 成長速度の影響について検討した結果について報告があった。

11. 金 廷坤 (京都工芸繊維大学) : n 型 AlGaIn 混晶のプラズモン-LO フォノン結合モード観察とキャリア有効質量の決定

Al_xGa_{1-x}In について LOPC (LO phonon-plasmon-coupled) モード解析を行った。その結果、LOPC モード (L+) モードは n-Al_xGa_{1-x}In (x~0.67) で明瞭に観察された。また有効質量についても評価した。

12. 安達正芳 (東北大多元研) : Ga-Al フラックスを用いた AlN の液相成長とその結晶評価窒化サファイア基板上に Ga-Al フラックスを用いた AlN の液相成長法を試み、LPE-AlN 膜の TEM による転位解析および CBED による極性判定を行った。

13. 松岡隆志 (東北大金研) : 終わりに

(2) 第 6 回 窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用

日時 : 平成 23 年 12 月 26 日 (月) 13:30-16:50

12 月 27 日 (水) 9:30-12:25

会場 : 東北大学金属材料研究所 本多記念館 3 階視聴覚室

研究会の概要

1. 松岡隆志 (東北大金研) : はじめに

本共同研究の研究体制のあり方および今年度の成果の取りまとめについて説明があった。

2. 藤岡 洋 (東大生研) : 窒化サファイア基板上 PSD-GaN の特性

PSD 法により成長した AlN 層の低温酸化膜を利用した極性反転プロセスの開発について報告があった。

3. 安達正芳 (東北大多元研) : 窒化サファイア基板上 LPE-AlN 膜のツイストドメインとそのシングル化

Ga-Al フラックスから成長した AlN に存在する面内回転ドメインについて、その成因とドメインの消去法について考察した結果について報告があった。

4. 三宅秀人 (三重大学) : HVPE 法による AlN 成長における転位低減技術とエッチピット評価

EPD 法により AlN 膜の転位密度を評価し、エッチピットのサイズにより転位の判別が可能であることを報告した。また、AlN 自立基板上に AlN 厚膜を積層し、10⁶ cm² 台の高品質 AlN 膜を得たことを報告した。

5. 宮川鈴衣奈 (三重大) : MOVPE 法による AlN 成長におけるサファイア界面の制御と TEM 観察

AlN バッファの成長温度依存性について報告があり、800~900°C ではアモルファス状の膜であるのに対し、

1100°C以上では、Tilt 揺らぎの小さな AlN 膜であり、かつ、AlN/サファイア界面に AlON 層を形成していることが分かった。また、AlN バッファ層上への高温 AlN 成長についても報告があった。

6. 熊谷義直 (東京農工大学) : InN の HVPE 成長への原料供給分圧の影響

HVPE 法による InN の高速成長と高品質化を目的とした研究について報告があった。アンモニアおよび塩素ガスの供給分圧を増大するとモロロジーが悪化した。また、成長速度は塩素供給分圧に対して比例して増大し、膜厚が大きくなるほどツイスト揺らぎは小さくなった。

7. 松岡隆志 (東北大金研) : 窒化インジウムのエピタキシャル成長に関する研究の進展

InN の結晶成長について、加圧型 MOVPE 装置を開発し、N 極性ウルツ鉱型単相の単結晶薄膜を得た。また、InN と格子整合性の良い基板材料として LaBGeO₅ を見出し、そのバルク結晶の成長を行った。

8. 山本暁勇 (福井大学) : Si(111)基板上への中間組成 InGaN 膜の MOVPE 成長

InGaN/Si 構造タンデム型太陽電池の実現を目的として、AlN/Si(111)基板上への InGa_xN_{1-x} 膜の MOVPE 成長を検討した結果および今後の課題について報告があった。

9. 金 延坤 (京都工芸繊維大学) : InGaN 混晶フォノンのラマン散乱研究

ラマン散乱研究によって In_xGa_{1-x}N (x=0.11-0.54) のフォノンスペクトルを観察した結果について報告があった。

10. 片山竜二 (東北大金研) : ワイドギャップ半導体導波路の作製と光学特性

MBE 法による縦 QPM 構造 (極性反転 GaN/AlN/sapphire) の作製および反応性スパッタリング法によって a-TiO_x 膜を製膜した横 QPM 構造 (a-TiO_x/GaN/sapphire) の作製について報告があった。

11. 秩父重英 (東北大多元研) : フェムト秒電子ビームを用いた窒化物半導体の時間分解分光計測(III)

時空間同時分解カソードルミネッセンス測定への搭載を目的として光電子銃を開発し、InGa_xN 薄膜について計測を行った結果について報告があった。

12. 今井大地 (千葉大学) : InN の基礎吸収端エネルギー以下の光・電子物性の検討

InN について、FTIR の外部光導入機構による PL 測定を極低温および室温下で行い、0.07 eV から InN の基礎吸収端エネルギーを含む 0.8 eV 程度までの発光を観測した。これにより、これまで不明であった InN における深い準位に関わるキャリア状態遷移過程の抽出を試みた。

13. 福山博之 (東北大多元研) : 終わりに

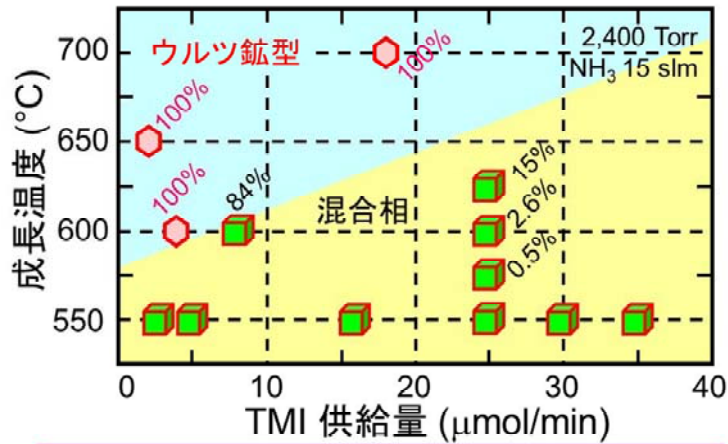


3. 研究成果

(1) 高品質 InN の成長と光学物性評価

2400 Torr における InN の相安定図を温度と TMI の供給量に対して作成し、ウルツ鉱型の InN 単相が得られる領域を明らかにした。その結果、ウルツ鉱型の InN 相は、高 V/III 比でかつ高温ほど安定であることが分かった (図 1)。図 2 に種々の成長条件で作製した InN のラマンスペクトルを示す。成長温度が低くなるとジंकブレンド型の InN が混在することが分かった。

相純度の相図(成長圧力2,400 Torr)



高V/III比かつ高温ほどウルツ鉱型が優位

図1 2400 TorrにおけるInNの相安定図

成長条件: 圧力 1,600 Torr, TMI 15 μmol/min, NH₃ 8.5 slm

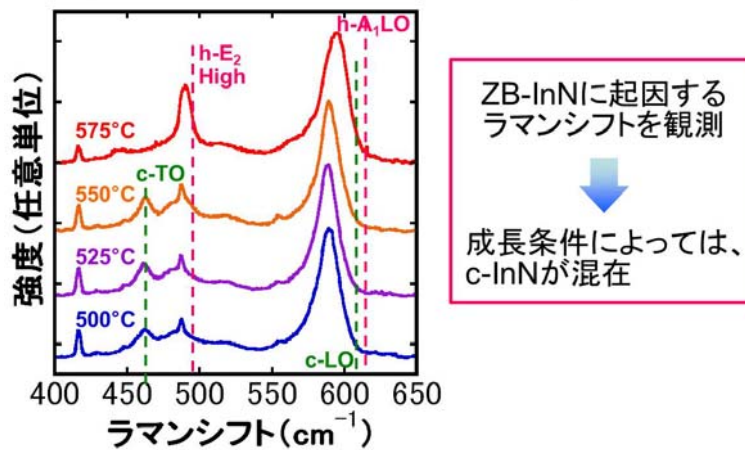


図2 種々の成長条件で作製したInNのラマンスペクトル

(2) Ga-Al フラックスを用いた液相成長法による AlN 膜の作製

サファイア窒化法によって得られた厚さ 10 nm の AlN 薄膜をテンプレートに用いて, Ga-Al フラックスを用いた新たな液相成長法を開発した. この方法によれば, 成長温度 1300 °Cにおいて, 5 h の成長時間で厚さ 2 μm の高品質 AlN 膜を得ることができる. 透過型電子顕微鏡 (TEM) の観察結果より, この AlN 膜中には, 刃状転位が支配的に存在し, その貫通転位密度は, $5 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-2}$ であった.

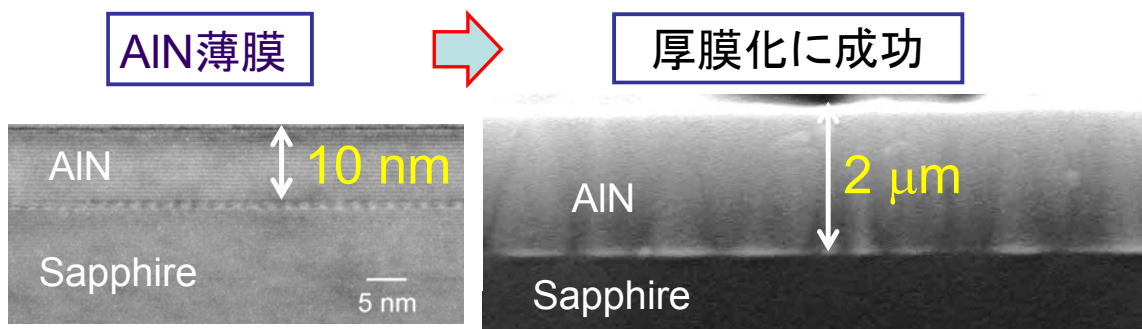


図3 Ga-Al フラックスを用いた液相成長法による AlN 膜の厚膜化

4. ま と め

窒化物半導体は、省エネルギーの発光素子や高密度 DVD 用ピックアップ素子として用いられているだけでなく、その物性値からは、高周波・高出力・高耐圧・高温動作スイッチング素子用材料としても期待されている。また、太陽電池用材料としても期待されている。窒化物半導体を用いたエレクトロニクスの飛躍的發展のためには、素子に用いられる薄膜の高品質化が必要であり、エピタキシャル成長技術を見直す必要がある。また、InN-GaN 系には相分離領域があり、緑色 LED では相分離が生じており、その光出力は青色に較べて一桁ほど低いことも問題である。この重点研究には、日本の第一線で活躍している理論・結晶成長・物性評価の主要な研究者に参加頂き、上記の窒化物半導体を課題について、共同研究を行い、平成 21～23 年度にかけて合計 6 回の研究会を開催した。

これまでの共同研究では、国内の研究者に限っていたが、今後は、海外の研究者にも声をかけ、金研と多元研を中核とした国際的な共同研究ネットワークの形成に貢献したいと考えている。