疑似金属基板を用いた集積化 GaN 系面発光素子製作のための基本検討

# 研究代表者名 工学院大学・工学部情報通信工学科・本田徹

# 研究分担者名

工学院大学・工学部情報通信工学科・山口智広、星川侑也、渡邉悠斗、田沼圭亮

#### 1. はじめに

屋外大型ディスプレイの分野では、III-V 族窒化物半導体を利用した LED を用いる方法が大きな市場を獲得しており、これは同材料がディスプレイ応用に適していることを意味している。LED の小型化・集積化は、今後の更なる市場拡大における必須基盤技術となる。金属基板上への半導体成長ならびにデバイス製作は、縦方向電流注入による素子動作を可能にし、LED の集積化を可能にする。しかしながら、半導体成長に適する原子層単位の平坦性を有する金属基板表面を得ることは難しい。それに対し我々は、低コストで原子層単位の平坦性を有する金属基板表面を実現する手法として、エピタキシャル金属層を基板として用いる「疑似金属基板」を提案している。

一連の研究では、「屋外で使用可能なマイクロディスプレイへの応用を目指した集積化 GaN 系面発光素子の実現」をめざした「疑似金属基板を用いた集積化 GaN 系面発光素子の製作と評価」を研究目的としている。

### 2. 研究経過

本年度は、 $Al_2O_3$ 上に製作した疑似 Al 基板を用い、同基板上に GaN 薄膜を成長した。また、ケルビンフォース顕微鏡 (KFM) を用い、GaN 薄膜の表面ポテンシャル評価を通して同薄膜の極性評価を行った。

### 3. 研究成果

KFM 測定は、Pt コートされた Si カンチレバーを用い、カンチレバーとサンプル表面の間に 53kHz、 2.5V の交流電圧を加え行った。なお、カンチレバーの振動周波数は 63kHz であった。標準サンプルとして HVPE 法により製作された GaN の Ga 極性面および N 極性面の KFM 測定を行ったところ、Ga 極性面、N 極性面の相対表面ポテンシャルは、それぞれ 0.18~V、0.00~V であった。それに対して、製作した疑似 Al 基板上 GaN 薄膜における相対表面ポテンシャルは 0.10~V を示した(図 1 参照)。薄膜の持つキャリアタイプ(n 型)であることを考慮に入れると、疑似 Al 基板上 GaN 薄膜は Ga 極性を持っていると結論 つけられる。

#### 4. まとめ

疑似 Al 基板上成長 GaN の XRD 測定結果より、疑似 Al 基板成長に対する新たな利点が確認された。また、疑似 Al 基板上 GaN の極性評価に対する可能性が示唆された。

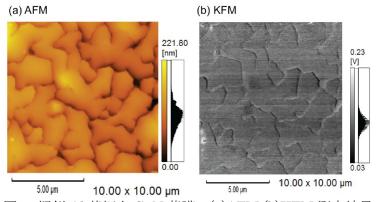


図1 疑似 Al 基板上 GaN 薄膜の(a)AFM (b)KFM 測定結果

タンデムセル太陽電池に向けた InxGa1-xN 薄膜の結晶成長と電気的特性評価

# 研究代表者名 名古屋大学大学院・工学研究科・本田 善央

# 研究分担者名

名古屋大学・大学院工学研究科・天野 浩、光成 正、久志本 真希、田村 彰 山口大学・大学院理工学研究科・只友 一行、岡田成仁、杉本浩平

# 1. はじめに

窒化物半導体を用いた高効率太陽電池の実現に向けて、現行の太陽電池として用いられているシリコンを結晶成長用基板として InGaN 系太陽電池を作製し、シリコンと窒化物半導体のタンデム型太陽電池を実現することを目的とする。しかし、シリコン基板上に窒化物半導体を積層する場合、Ga と Si が反応するため、中間層として AlN が必要とされている。この AlN は電気的には絶縁となることから、タンデム構造実現に向けて障害となる。さらに、タンデム構造のうち、窒化物半導体 InGaN 混晶を作製する技術は確立していない。特に In 組成 0.3 以上の InGaN 結晶は相分離が発生し良質な結晶が得られない。

平成26年度の研究課題では、活性層となるInGaN/GaN多重量子井戸層の高InNモル分率化および高品質化の手法を確立するため研究を行った。

### 2. 研究経過

有機金属気相成長法を用いて GaN 上に InGaN/GaN 多重量子井戸構造の成長を行った。各グループにより以下の項目を遂行した。名大:結晶成長中に試料表面にレーザー光を入射し、散乱光強度をモニターすることで表面状態のその場観察を行った。東北大:窒素極性面 GaN 上に InGaN/GaN 多重量子井戸構造を成長し、成長温度を変化させて InN モル分率を変化させ、LED 特性を評価した。山口大:活性層の下層に歪緩和超格子層を成長し、意図的にピットを発生させた。超格子の周期を変化させて作製し、フォトルミネッセンスと近接場光学顕微鏡を用いて発光特性を評価した。

### 3. 研究成果

名大:その場観察より、高 InN モル分率を有する InGaN を成長する際に表面状態が悪化する傾向が精度よく観察された。表面状態の悪化は、特に In 原料供給量が高い場合に顕著にみられ、低温成長においては過剰に In 原料を供給すると In の凝集が発生し、表面平坦性に影響を与えることが分かった。東北大:窒素極性面に InGaN/GaN を成長する際、準安定な閃亜鉛鉱構造が混在し表面が荒れることが電子線後方散乱測定と走査電子顕微鏡観察により確認された。これを抑制するために InGaN と GaN の成長時にアンモニア供給量およびキャリアガス流量の最適化を行い、閃亜鉛鉱構造の混在を抑制し、表面平坦性に優れた結晶が得られた。成長条件の最適化を行った後、LED 構造を成長し、青色から赤色に渡る可視光 LED の発光が得られた。成長温度に対する発光波長は III 族極性上に成長した場合と比べ長波長で、窒素極性面成長においては In を取り込みやすいことが確認された。山口大:超格子層数を増やすほど、再表面に観察されるピットの直径が増大した。内部量子効率と比較すると、ピット直径がある程度拡大する範囲では効率が向上することが分かった。近接場光学顕微鏡で発光の空間分布を調べると、転位部付近の発光スペクトルは主な発光成分より高エネルギー側にポテンシャルバリアを有し、ポテンシャルバリア高さが超格子の層数に伴い上昇することが明らかとなった。つまりポテンシャルバリアの形成により貫通転位へのキャリアの拡散を妨げた結果であると推察される。

#### 4. まとめ

今年度は InGaN/GaN 活性層の高品質化に向けて多面的な検討を行った。今後は太陽電池の発電特性を調べ、高効率化を目指す。

太陽電池材料 Cu(In,Ga)Se2 カルコパイライト半導体単結晶の蛍光 X 線ホログラフィー

研究代表者名 広島市立大学・情報科学研究科・八方直久

研究分担者名 広島市立大学・情報科学研究科・窪田昌史 熊本大学・自然科学研究科・細川伸也 愛媛大学・理工学研究科・白方祥

東北大学・金属材料研究所・林好一

### 1.はじめに

カルコパイライト半導体  $Cu(In,Ga)Se_2$  (CIGS) を用いた太陽電池は、最近、20.7%の変換効率が達成され、その発電能力の高さとエネルギーペイバックタイム(設備投資回収期間)の短さから、太陽電池の主流となる可能性を有している。また、理論限界変換効率は最大 30%をとることが見込まれている  $^{1)}$ 。この半導体では伝導制御を真性欠陥で行っていることが特徴である。しかし、真性欠陥を含むことによる局所的原子配列の歪みは明らかにされていない。それを明らかにし、電子状態との間の関係を考察することで物性制御が可能となり、変換効率向上に結びつくものと期待される。蛍光 X 線ホログラフィー(XFH) は、最大で第 10 近接程度までもの三次元的原子配列を明らかにすることができるユニークな局所構造解析法であり  $^{2)}$ 、このような混晶系の局所構造解析に威力を発揮する。そこで本研究では、CIGS の微視的原子配置を直接的に観測することを目的として、まず、 $CuIn_{0.8}Ga_{0.2}Se_2$  バルク単結晶の  $Ga-K\alpha$  XFH 実験を行い Ga 周辺の局所構造解析を行った。

- 1) J. J. Loferski, J. Appl. Phys. 27, 777 (1956).
- 2) K. Hayashi et al., J. Phys.: Condens. Matter, (Topical Review) 24, 093201 (2012).

### 2. 研究経過

 $Ga-K\alpha$  XFH の測定は、2014 年 5 月に高エネルギー加速器研究機構・放射光施設 KEK-PF の 2 結晶分光・シリンドリカルベントミラー集光ビームライン BL-6C にて行った。愛媛大学の白方祥教授より御提供いただいた CuIn<sub>0.8</sub>Ga<sub>0.2</sub>Se<sub>2</sub> 単結晶の(110)表面に X 線を入射し、そのエネルギーを 10.5~14.0keV の範囲で 0.5keV 刻みで変化させて、計 8 つのホログラムを室温で測定した。試料を 2 軸で回転させ( $0^{\circ} \le \theta \le 75^{\circ}$  、 $0^{\circ} \le \phi \le 360^{\circ}$  の角度範囲を、それぞれ  $1^{\circ}$  と  $0.3^{\circ}$  刻み)、放出された  $Ga-K\alpha$ 蛍光 X線(9.3 keV)を円筒型グラファイト分光器を用いて分光・集光し、アバランシェ・フォトダイオードで検出した。一つの照射 X 線エネルギーでの生データの測定には約 3 時間を要した。2014 年 11 月に東北大学・金属材料研究所にて、林好一准教授との共同作業で、測定結果の解析(生データからのホログラム信号の抽出、原子像の再生など)を行った。

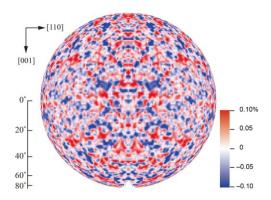
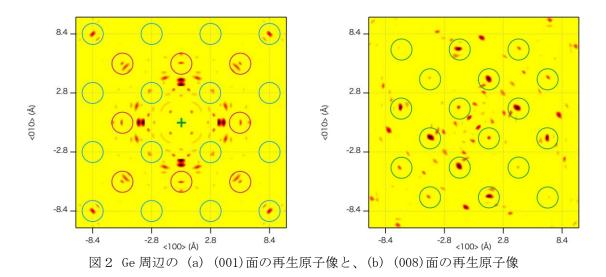


図1入射 X 線のエネルギーが 11.0 keV で測定した Ga-Kα XFH

# 3. 研究成果

入射 X線のエネルギーが 11.0 keV のときに得られたホログラムを図 1 に示す。<110>方位からの正射影となっている。この測定・抽出したホログラムに対して 3 次元フーリエ変換的なデータ処理(Barton のアルゴリズム 3))を施して再生した  $CuIn_{0.8}Ga_{0.2}Se_2$ の Ga 周りの(001)面の原子像を図 2 (a)に示す。赤黒色が原子位置を示し、黄色はバックグラウンドである。この面は陽イオン(Cu と In/Ga)が並ぶ面である。緑色の+印で示したのは蛍光発光中心の Ga の位置、赤色と水色の〇印はそれぞれ、理想的なカルコパイライト構造の Cu と In/Ga 原子位置を示す。強い虚像が見られるが、理想位置付近に原子像が認められた。ただし、次に示す Se の像と比べると全体的に弱い。また、(008)面の原子像を図 2 (b)に示す。この面は陰イオン(Se)が並ぶ面である。陽イオンに比べ比較的はっきりと原子像が観測された。これらの結果から、Se 周辺において、陽イオxaのサイトの方が乱れていることが推測される。(b)



3) J. J. Barton, Phys. Rev. Lett. 67, 3106 (1991).

# 4. まとめ

太陽電池材料  $CuIn_{0.8}Ga_{0.2}Se_2$  の Ga 周りの局所的な原子配置を明らかにするために  $Ga-K\alpha$  XFH の測定を行い原子像を得た。虚像が多く、予備的な解析の段階ではあるが、Ga 周辺の陽イオンの位置が乱れていること

が分かった。今後、原子像の強度・位置についての詳細な解析を行い、変換効率との関連を考察したい。この結果は2015年4月末にバート・ホンネフ(ドイツ)で開かれる国際ワークショップ「Element Specific Structure Determination in Materials on Nanometer and Sub-Nanometer Scales using modern X-Ray and Neutron Techniques」で発表し、プロシーディング(Zeitschrift fuer Physikalische Chemie)にまとめる予定である。また、最終的には J. Appl. Phys.または Jpn. J. Appl. Phys.に投稿する予定である。

# 5. 発表(投稿)論文

• "Distorted and undistorted atomic sites in a ferromagnetic semiconductor Ge<sub>0.6</sub>Mn<sub>0.4</sub>Te film clarified via x-ray fluorescence holography", N. Happo, K. Hayashi, S. Senba, H. Sato, M. Suzuki, and S. Hosokawa, Journal of the Physical Society of Japan, **83**, 113601-1-4 (2014).

# 研究課題名 Si<sub>1-x</sub>C<sub>x</sub>混晶の固相再結晶化過程に関する研究

研究代表者名 山梨大学大学院・総合研究部・有元圭介

# 研究分担者名

東北大学・金属材料研究所・米永一郎、大野裕、沓掛健太朗、出浦桃子

### 1. はじめに

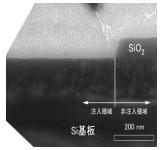
電子デバイスの性能を向上させる上で、材料面でのアプローチとしてはキャリア移動度を高めることが効果的である。特に、正孔移動度は電子移動度よりも低いため、これを改善することは電子デバイスの特性向上に大きく寄与する。半導体デバイスの製造は大規模な設備投資を要するため、従来の製造技術との整合性も実用化に向けて重要な要素である。Siプロセス技術と整合性が良い材料系として、我々は Siと Cを用いた C を用いた C を用いた C を用いた C を用いた C を用いた C を開かる。C を用いた C を引力を印加すると、エネルギー・バンド構造の変調により C を開かての正孔有効質量が低減し、移動度が上昇すると期待されている。実際に、圧縮応力の印加が移動度の向上に寄与することがこれまでの実験で確認されている。しかしながら、結晶性や表面モフォロジーも移動度に対して大きく影響するため、様々な方面で改善すべき課題が残されている。その一つに、C ののののでは、この問題を解決するため、試料への不純物打ち込み後の電気的活性化過程において結晶構造や結晶欠陥がどのように変化してゆくのかを調べた。

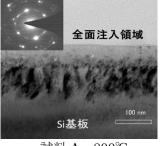
#### 2. 研究経過

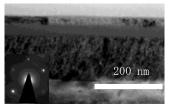
試料の結晶成長は、ジシラン(DS)およびトリメチルシラン(TMS)を原料としてガスソース分子線エピタキシー法を用いて行った。成長層中に形成される結晶欠陥と不純物活性化プロセス後の結晶性との関係を調べるため、 $\mathrm{Si}_{1-x}\mathrm{C}_x$ 混晶層の組成を漸次変化させる傾斜組成法と、成長前に基板に  $\mathrm{Ar}^+$ イオンを注入して歪み緩和を促進するイオン注入歪み緩和法を用いた薄膜試料を作製した。以下、前者を試料  $\mathrm{A}$ 、後者を試料  $\mathrm{B}$  と記す。また、比較用にイオン注入歪み緩和法を用いず、 $\mathrm{Si}_{1-x}\mathrm{C}_x$ 混晶層の組成が均一な試料  $\mathrm{C}$  を用意した。これらの薄膜を用い、ソース・ドレイン領域の形成条件が異なる  $\mathrm{MOSFET}$  デバイスを作製し、不純物の電気的活性化過程における結晶モフォロジーの変化と電気抵抗との関係を調べた。結晶モフォロジーの観察は透過電子顕微鏡を用いて行った。また、ラマン分光測定、吸収率測定、 $\mathrm{DLTS}$  測定、 $\mathrm{Hall}$  測定およびコンタクト  $\mathrm{AFM}$  を用いた電気的特性評価により、結晶欠陥の様態や電気的性質を調べた。

# 3. 研究成果

成長した薄膜試料にホウ素を注入し、熱処理を行ったものの断面 TEM 像を図1に示す。熱処理は窒素 雰囲気中で行い、熱処理時間は全て1時間であった。650℃における1時間の熱処理は、通常の Si-MOSFET では結晶性回復と電気的活性化が可能な条件である。しかしながら試料Aにおいては、この条件では電気 的活性化ができないことが分かった。これは、格子位置へのホウ素原子の取り込みが炭素の存在によって 阻害されることを示している。熱処理温度を 800℃とすると、注入領域の結晶化が完全に完了した。しか しながら、再結晶化領域は多結晶となる。これも Si-MOSFET の場合と大きく異なる現象である。寄生抵 抗は 650℃で熱処理した場合と比較すると1桁減少した。このことは、ホウ素原子が格子位置に取り込ま れる割合が増加したためと考えられる。800℃での熱処理における炭素原子の挙動については更に調べる必 要がある。一方試料 B では、650℃での熱処理でも結晶化が誘起され、しかも表面側からも結晶化するこ とが確認された。類似の成長条件で作製した試料を用いた追実験でもこの現象は再現しており、イオン注 入歪み緩和法を用いた場合に特有の現象である。800℃で熱処理した試料 B の高分解能 TEM 像を図2に 示す。基板に近い側から結晶化した領域には基板結晶に対して{111}双晶の関係にある多量の面欠陥が形成 されている。それに対し、表面に近い領域の結晶は多結晶状である。寄生抵抗を測定した結果、試料 A と 試料 B では大きな違いが見られなかった。これらのことから、イオン注入歪み緩和法を用いることにより 活性化プロセスを低温化できるという大きなメリットを見込めることが明らかとなったが、寄生抵抗の低 減を実現するため、更に条件の最適化が必要である。図3に、試料 C の AFM 電流像を示す。この試料の 熱処理後の結晶性等は試料 A のそれと類似している。650℃で熱処理した試料では電気抵抗の不均一が見 られる。この像で一定のコントラストをもつドメインのサイズは TEM で観察される結晶粒径より大きい。 これまでに得た TEM 像では確認できないような、より大きなスケールでの不均一性が存在していること が分かる。800℃で熱処理した試料の AFM 電流像は均一であることから、650℃で熱処理した試料の不均 一性はアモルファス領域と結晶領域の混在を示唆している。この点も踏まえ、更に詳細な研究を行う必要がある。







試料 A、650℃

試料 A、800℃

試料 B、650℃

図1 熱処理後の試料の断面 TEM 像

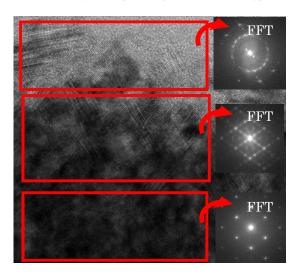


図2 熱処理後の試料 B の高分解能 TEM 像と FFT 像

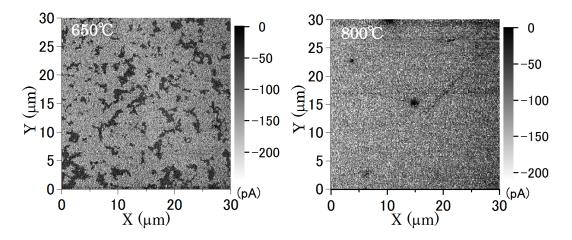


図3 コンタクト AFM 電流像(試料 C)

# 4. まとめ

以上の結果から、圧縮ひずみ  $Si/Si_{1-x}C_x$ へテロ構造デバイスにおけるソース・ドレイン領域の固相結晶化・電気的活性化過程においては、熱処理条件だけではなく結晶成長時の条件に対応する結晶欠陥の様態や分布の違いが、結晶回復のため必要な熱処理温度や結晶回復が誘起されやすい部位、結晶化後の微細構造に大きく影響することが明らかとなった。本研究の範囲では、従前と比較して寄生抵抗を 1 桁減少させることができたが、これは通常の Si-MOSFET のそれと比較すると依然として 1 桁高い値である。今後はイオン注入歪み緩和法の条件の最適化や、更に高温での熱処理など、条件を広げて寄生抵抗の更なる低減を目指す。

# 研究課題名 InN高圧MOVPEにおける異相混入の抑制に関する理論検討

研究代表者名 九州大学・応用力学研究所・寒川義裕

研究分担者名

東京農工大学・共生科学技術研究院・熊谷義直、富樫理恵 東京工芸大学・工学部・曽根順治 東北大学・金属材料研究所・松岡隆志、片山竜二、谷川智之

#### 1. はじめに

InNとGaNの混晶である $In_xGa_{1-x}$ Nは、その混晶組成xを制御することにより、吸収波長をInN(x=1.0)の~1800nmからGaN(x=0.0)の~350nmまでの範囲で任意に制御できる材料である。近年、この赤外~紫外の広範な範囲で吸収波長を制御できるInGaNを多接合太陽電池に応用する試みがなされている。当該材料の開発では、InNの分解温度が低いため、典型的な常圧MOVPE成長では高In組成材料の成長温度を高く設定することが難しく、高品質薄膜材料を得ることが困難といった技術的課題を抱えている。この課題克服のためには、高圧(加圧)MOVPEにより最適な成長温度を上昇させ、得られる薄膜の結晶性を向上させることが一つの解決手段として考えられる。しかし、InN高圧(加圧)MOVPEにより成長温度の上昇が可能となる一方で、異相が混入する成長条件が出現するといった新たな問題が発生することが明らかとなった。本研究では、InN高圧(加圧)MOVPEにおける異相混入メカニズムを解明し、異相の混入を抑制する作製指針を提案することを目的として理論解析を行う。

### 2. 研究経過

本研究は、理論(九州大学、東京農工大学)と実験(東北大学、東京工芸大学)の協調により、InN材料の開発(異相混入の抑制、貫通転位の低減)を加速することを目的としている。これまでに、実験研究により、以下の知見が得られている。(1)平坦な(000-1)面上に2次元的に結晶成長が進行する場合、ウルツ鉱型構造のInNが成長する、(2)(1-1-1)ファセット面を含む島状成長が起こる場合、閃亜鉛鉱型構造のInNが混入する。これらの知見を受けて、理論解析では、成長条件と成長面方位の相関を解析し、成長形の状態図を作成する。状態図を基に松岡研究室(東北大金研)にて成長実験を行い、状態図の妥当性および異相の混入メカニズムに関する考察・検証を行う。以上により、InN薄膜の開発を進める。

## 3. 研究成果

本課題実施機関の共同研究により、次の成果が得られた:(1) 量子計算科学により高圧(加圧)下における InN 表面構造状態図を作成した、(2) 成長条件により表面再構成構造が変化することで各結晶面の相対的安定性が変化しファセット面が形成されることが示された、(3) 異相混入の要因となるファセット形成条件を表面構造状態図により明らかにした。ここで得られた知見を、The 5<sup>th</sup> International Conference on White LEDs and Solid State Lighting (WLED-5) / 済州島 / 2014 年 6 月、33rd Electronic Materials Symposium (EMS-33) / 修善寺 / 2014 年 7 月、【招待講演】 2nd Intensive Discussion on Growth of Nitride Semiconductors (IDGN-2) / 仙台 / 2014 年 10 月、【招待講演】 SPIE Photonic West OPTO 2015 / サンフランシスコ / 2015 年 2 月にて報告した。また、【Invited Review Paper】 Y. Kangawa et al., "[Selected Topics in Applied Physics ~Progress and Future Prospects in Nitride Semiconductors~] Progress in theoretical approach to InGaN and InN epitaxy: In incorporation efficiency and structural stability", Jpn. J. Appl. Phys. 53, 100202 1-11 (2014)が掲載された。

# 4. まとめ

本課題研究では、量子計算科学により、成長条件(原料ガス分圧、成長温度、全圧)と高圧(加圧)下における InN の気相成長機構の相関を理解することを目的としている。本課題実施機関の共同研究により InN 高圧(加圧)成長条件(温度、供給ガス分圧)と異相混入との相関を明らかにした。これまでに得られた知見を実験にフィードバックし、結晶成長条件の更なる最適化を図ることで、高品質(低転位密度、高相純度)InN 結晶の作製が期待できる。加えて、高圧(加圧)MOVPE に関する結晶成長機構の理解が深まり、同手法を他の材料へ展開する基盤を構築することができる。

化合物半導体結晶における欠陥の評価とそのデバイスに与える影響に関する研究

研究代表者 金沢工業大学・大学院工学研究科・上田 修

研究分担者 東北大学・金属材料研究所・松岡隆志、片山竜二 東北大学・電気通信研究所・末光哲也 福井大学・山本あき勇 弘前大学・小林康之

#### 1. はじめに

半導体レーザ、発光ダイオード(LED)などの光デバイスおよび MESFET、HEMT などの電子 デバイスは、現在、社会および産業の様々なシステム・電子機器に用いられており、その材料・構造も 多種多様となっている。従って、高性能で高信頼なシステムや電子機器を実現するためには、これらの キーデバイスの性能を向上させるとともに、長期信頼性も同時に確保する必要がある。そのためには、デバイス用材料・構造の最適設計化とともに、材料の高品質化(欠陥低減)や劣化の未然防止を図ることが不可欠となる。

これまで、1)デバイスの材料である各種半導体薄膜の高品質化および2)デバイスの劣化メカニズムに関して多くの研究がなされてきたが、1)については依然として不十分な材料も多く、また2)では未解明な点も少なくない。そこで、本研究では、主として、ナイトライド系材料(InGaN, AlGaN, AlInN)から作製される発光デバイスおよび電子デバイスの高性能化および高信頼化を実現することを目的とする。

具体的には、まず上記材料の高品質化を妨げる要因の一つである、結晶成長時導入欠陥(grown-in 欠陥と呼ぶ)特に点欠陥と転位の微細構造、光学的特性、および電気的特性に与える影響について調べる。次いで、これらの結晶欠陥が光デバイス(太陽電池含む)および電子デバイスの特性や信頼性に与える影響について明らかにし、高性能化および高信頼化に繋げる。

### 2. 研究経過

#### 2-1 研究の進め方と方法

本研究では、1年を前期、後期の2期に分け、下記のように研究を進めることにした。

前期:ナイトライド系薄膜の grown-in 欠陥および熱的不安定性(組成揺らぎ) についてマクロおよびナノレベルの評価(評価方法:光学的評価(PLなど)、電気的評価(デバイス特性評価、DLTSなど)、および構造評価(TEMなど)) を行う。また、それらの、材料の物性に与える影響についても調べる。本研究では、以下のような材料系に焦点を絞る。

発光デバイス、電子デバイス用 InGaN/GaN, AlGaN/GaN 系材料および太陽電池用 AlGaN/InGaN 系材料 後期:前期で得られた結果に基づいて、欠陥のデバイスの信頼性に与える影響について調べる。また、研究の纏めを行うと共に、欠陥低減方法およびデバイスの性能向上、信頼性向上の方策についても議論 する。研究体制と主な役割は、以下の通りとした。

研究代表者 上田 修(金沢工大): TEM による格子欠陥評価およびデバイス劣化解析 研究分担者

松岡隆志、片山竜二(東北大):結晶成長、発光デバイス作製および評価

末光哲也(東北大) : GaN 系 HEMT 作製およびデバイス特性・信頼性の評価

山本あき勇(福井大) : InGaN/AlInN 系太陽電池作製および評価

小林康之(弘前大) : GaN 系デバイスの高機能化(チップの機械的転写技術) および評価

2-2 研究の経緯

本研究においては、以下の通り、各メンバによる研究が精力的に進められた。

上田: Ⅲ-V族化合物半導体薄膜中の欠陥評価に関するこれまでの成果を纏める一方、Ⅲ-V族化合物半導体発光デバイスの3つの主要な劣化モードに関しても、これまでの研究成果の纏めを行った。また、GaN系発光デバイスの劣化メカニズム解明の予備実験として、InGaN/GaN系QW構造への光照射実験を進めた。

末光: GaN 系 HEMT のプロセス技術を構築し、既存 AlGaN/GaN 構造においてゲート長 100-300nm の HEMT を試作し、良好なトランジスタ特性を得た。特に、HEMT の耐圧および信頼性向上を 目的として、傾斜フィールドプレート構造を導入するためのプロセス技術を提案し、その効果の

確認を進めた。一方、電子移動度の向上を目的として、窒素極性 InGaN チャネル HEMT を提案し、その実現に向けて松岡グループと検討を進めている。

- 松岡、片山:まず発光デバイスとしては InGaN/GaN 多重量子井戸発光ダイオード構造を検討し、一方で電子デバイスとしては AlGaN/GaN 高電子移動度トランジスタ構造を検討した。
- 山本:バルク形 InGaN/AlInN 系太陽電池への適用をねらいとして、AlInN、InGaN の MOVPE 成長に ついて検討を進めた。AlInN 膜成長では TMA とアンモニアとの中間反応によるアダクトの抑制に ついて、InGaN 膜成長では厚膜化に伴う相分離現象の発生について検討した。
- 小林: GaN 系デバイスの高機能化のために、層状 BN を剥離層とする GaN 系デバイスの機械的転写技術の開発を進めた。 GaN 系デバイスの機械的転写技術のメカニズムを解明するために、分子線エピタキシー法による層状 BN 成長の準備を進めた。

#### 3. 研究成果

以上の研究経過を経て、各メンバが上げた成果は、以下の通りである。

### 上田:

- ・Ⅲ-V族化合物半導体薄膜中の grown-in 欠陥および熱的に不安定性な構造を評価し、低減方法を提案
- ・Ⅲ·V族化合物半導体発光デバイスの3つの主要な劣化機構を解明し、それらの抑制方法について提案
- ・III-V ナイトライド系における劣化メカニズム解明の予備実験として InGaN/GaN 系 SQW 構造への 光照射実験を行い、劣化現象を検証 (p-GaN クラッド層厚さの増大とともに劣化が抑制された)

# 末光:

- ・AlGaN/GaN HEMT において、傾斜フィールドプレートの導入により、従来のフィールドプレート 構造と比較して高い耐圧向上効果および電流コラプス抑制効果を確認
- ・傾斜フィールドプレート構造付き HEMT のゲート遅延時間解析を行い、フィールドプレートの効果によってドレイン空乏領域の広がりが従来構造より大きく、これが耐圧向上や高周波特性のドレイン電圧依存性に影響していることを解明

### 松岡、片山:

・サファイア基板上 InGaN/GaN 多重量子井戸発光ダイオード構造を作製し、成長温度の変更による 組成制御技術の確立と、電流注入発光を実現

#### 山本

- ・AlInN の MOVPE 成長では、成長圧力とサセプタ上基板位置を適当に選択することにより、アダクト 形成が抑制できることを実証
- ・InGaN の MOVPE 成長では、成長温度に依存した相分離の臨界膜厚が存在し、厚膜化には成長温度の 低下が必須であることを解明

#### 小林:

・層状 BN により GaN デバイス構造をサファイア基板から別基板に剥離し機械的に転写する手法を提案 ・層状 BN を用いた機械的転写により転写された LED 等のデバイスの劣化ダメージが極めて小さいことを 評価。

## 4. まとめ

行きたい。

本研究課題について、6名のメンバにより1年間研究を進めた結果、以下の成果が得られた。 上田は、III-V族化合物半導体薄膜中の欠陥・組成変調構造・秩序構造を評価し、低減方法を提案した。 また、発光デバイスの3つの主要な劣化機構を解明し、抑制方法についても提案した。さらに、InGaN/GaN 系 SQW 構造への光照射実験を行い、劣化現象を検証した。また、末光は、AlGaN/GaN HEMT において、 傾斜フィールドプレートの導入により、高耐圧向上効果および電流コラプス抑制効果を確認する一方、 同構造の HEMT では、ドレイン空乏領域の広がりが従来構造より大きく、これが耐圧向上や高周波特性の ドレイン電圧依存性に影響していることを解明した。さらに、松岡、片山は、サファイア基板上 InGaN/GaN 多重量子井戸 LED 構造を作製し、成長温度の変更による組成制御技術の確立と、電流注入発光を実現した。 一方、山本は、AlInN の MOVPE 成長では、成長圧力とサセプタ上基板位置を適当に選択することでアダクト形成が抑制できることを実証した。また、InGaN の MOVPE 成長では成長温度に依存した相分離の 臨界膜厚が存在し、厚膜化には成長温度の低下が必須であることを解明した。さらに、小林は、層状 BN により GaN デバイス構造をサファイア基板から別基板に剥離し、機械的に転写する手法を提案し、同機械 的転写法により、転写された LED 等のデバイスの劣化ダメージが極めて小さいことを明らかにした。 これらの成果に引き続き、残された課題、新たな問題点の解決などについて、次年度も研究を継続して

# 研究課題名 GaAs:Nδドープ超格子の光学特性評価とエネルギー構造の解明

# 研究代表者名 埼玉大学・大学院理工学研究科・八木修平

研究分担者名 埼玉大学・大学院理工学研究科・矢口裕之、高宮健吾、金日国

### 1. はじめに

高効率な中間バンド型太陽電池の光吸収層材料として、GaAs 中に数%の窒素を添加した GaAsN 混晶の利用が検討されている。我々はこれまで、GaAs 中に窒素を $\delta$  ドープ状に添加した層を周期的に形成した「 $GaAs:N\delta$  ドープ超格子」を用いることで、一様に N ドープした通常の GaAsN 混晶に比べ高エネルギー伝導帯サブバンド (Eバンド) に起因する光学遷移が増強することを見出し、これらの超格子構造がより優れた中間バンド材料と成り得ることを示した。本研究では、 $GaAs:N\delta$  ドープ超格子の詳細なエネルギー構造および光学特性を明らかにし、中間バンド材料としての特性を調べることを目的とした。特に、共同利用のフーリエ赤外分光 (FT:IR) により、中間バンド型太陽電池動作のキーポイントとなる中間バンド(E) 一伝導帯(E)間の光学遷移による光吸収特性の評価を行った。

#### 2. 研究経過

RF プラズマ分子線エピタキシー法により、GaAs(001)基板上に周期 4 - 6 nm、平均窒素濃度 0.2 - 2.2%、積層数 20 層の GaAs:N  $\delta$  ドープ超格子を作製した。これらの試料について、フォトリフレクタンスおよび FT-IR によりエネルギー構造や光学特性の評価を行った。FT-IR 測定では中間バンドー伝導帯間の光学遷移による光吸収を評価するために、GaAs pin 構造の i 層中に超格子構造を配置した試料を作製し、順方向バイアスの印加により電流を注入することで、中間バンド内へのキャリア供給を行った。

### 3. 研究成果

フォトリフレクタンス測定の結果、作製した超 格子試料内で中間バンド型のエネルギー構造が形成 されていることが確認された。 超格子周期や δ ドー プ層内の窒素濃度に対し光学遷移エネルギーが系 統的に変化したことから、これらの構造パラメー タにより中間バンド構造のエネルギー配置を制御 できることが実験的に示された。図 1(a)に周期 5 nm, 平均窒素濃度 1%の GaAs:N δ ドープ超格子の FT-IR 透過スペクトルを示す。試料両端への電圧印 加により電流を流して超格子構造へキャリアを注 入することで、透過率が減少することが観測され た。無バイアス状態に対するバイアス印加時の透 過率の変化量 (T<sub>bias</sub>/T<sub>0</sub>) を、図 1(b)に示す。この 試料の中間バンドー伝導帯間のエネルギーギャッ プに相当する 0.4 eV 付近で特に吸収率が減少して いることから、中間バンドへ供給された電子が伝 導帯へ遷移することで光吸収が生じていると考え られる。

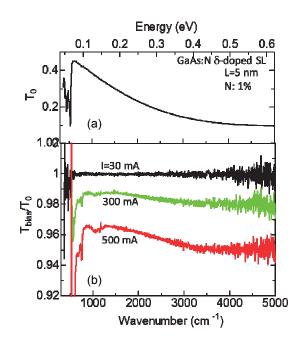


図 1 GaAs:N δ ドープ超格子の FT-IR スペクトル

## 4. まとめ

中間バンド型太陽電池の吸収層材料としての利用を目指し、 $GaAs:N\delta$ ドープ超格子の作製と光学特性評価を行った。共同利用で用いた FT-IR では、pn 接合を利用したキャリア注入によるダイナミックな光学応答を調べることで、従来観測が難しかった中間バンドから伝導帯への電子遷移による光吸収特性を観測することができ、非常に有益な結果が得られた。今後これらの結果についてより詳細な解析を進めることで、高効率太陽電池への応用へ向けた研究を推進する予定である。

次世代太陽電池に向けた高品質窒化物半導体薄膜の選択成長

## 研究代表者名

三重大学・大学院地域イノベーション学研究科・三宅 秀人

### 研究分担者名

三重大学・大学院工学研究科・岡田 俊祐、秋山 亨 大阪大学・大学院工学研究科・森 勇介、今出 完、今西 正幸、 大阪大学・工学部・林 正俊 東北大学・多元物質科学研究所・福山 博之

### 1. はじめに

窒化物半導体からなる青色発光ダイオードは、一般に Ga 極性で成長した(0001) (+c 面) GaN 上に作製されている。N 極性 $(000\overline{1})$  (-c 面) GaN を利用できると、分極方向を反転することでデバイス設計の自由度が拡がり、デバイス特性の向上も期待できる。しかし、サファイア基板上に作製した現状の-c 面 GaN には格子不整合に起因した  $10^9$  cm $^{-2}$  程度の高密度の貫通転位が存在する。この貫通転位は非輻射再結合中心として働くため、高効率発光デバイスを実現するには、転位密度低減技術が必要不可欠である。本研究では、貫通転位を低減させることで知られる選択成長法に着目し、-c 面 GaN の選択成長を試み、転位密度を低減できることを報告する。

#### 2. 研究経過

c 面から m 軸方向に  $0.8^\circ$ 傾斜したサファイア基板上に、厚さ  $1.35~\mu m$  の- c 面 GaN を MOVPE 成長した。この上に、ウィンドウとマスクの幅が共に  $5~\mu m$  であり、GaN の< $1\bar{1}00$ >方向に平行なストライプ状  $SiO_2$  マスクパターンを形成した。-c 面 GaN の MOVPE 再成長においては、成長温度と成長圧力をパラメータとした。成長した試料のモフォロジは走査型電子顕微鏡(SEM)で、貫通転位密度はカソードルミネッセンス(CL)における暗点密度を用いて評価した。

#### 3 研究成果

ストライプパターン上に再成長した GaN 結晶の表面と断面の SEM 像を図 1 に示す。成長温度の低温化にともない GaN 結晶が水平方向に伸張していき、 $SiO_2$ マスク上に数  $\mu m$  程度成長している。一方、垂直方向には最大で 500 nm しか成長していない。+c 面 GaN の選択成長の場合、1050 °C 以上の高温成長では、側壁面である $\{11\bar{2}0\}$ 面が不安定となるために水平方向成長が促進される。一方、低温成長では垂直方向に伸びることが知られている。しかし、今回の実験では、+c 面 GaN の場合とは異なり、成長温度の低下とともに水平方向成長が促進され、垂直方向成長が抑制されている。この原因は、低成長温度領域では、-c 面 GaN の側壁面である $\{11\bar{2}0\}$ 面よりも水平面である $\{000\bar{1}\}$ 面が安定面となるためと考えられる。CL 測定により貫通転位の伝搬特性を観察したところ、 $SiO_2$ マスク上に成長した領域では結暗点が全く確認されなかった。

# 4. まとめ

N極性 GaN の選択成長における成長挙動を明らかにした。N極性 GaN の選択成長においては、成長温度が低いほど横方向成長が促進されることが分かった。貫通転位の伝搬特性は通常の ELO と同様にマスク領域の貫通転位がマスク部で終端し、ウィンドウ領域の貫通転位は屈曲せず表面まで伝播した。

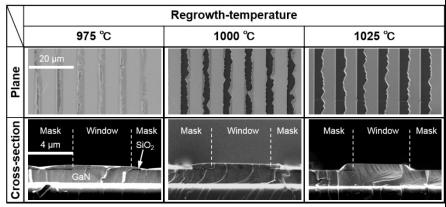


図1 異なる成長温度で再成長した GaN の表面モフォロジ