

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 22 日現在

機関番号：13302

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13348

研究課題名(和文)狭ギャップ半導体における低次元鏡像電荷効果に基づく中赤外領域励起子制御

研究課題名(英文)Mid-infrared exciton control based on low-dimensional image charge effects in narrow-gap semiconductors

研究代表者

鈴木 寿一 (Suzuki, Toshi-kazu)

北陸先端科学技術大学院大学・ナノマテリアルテクノロジーセンター・教授

研究者番号：80362028

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：低誘電率ホスト材料上InAs薄膜構造(InAs/low-k構造)を作製し、この系の電流低周波ノイズの挙動を調べた結果、InAs薄膜内電子のクーロン相互作用の特徴的長さが20 nm程度であることがわかった。また、InAs/low-k構造におけるInAsとlow-k材料の間に高誘電率酸化物を挿入したInAs/high-k/low-k構造の作製に成功し、この系においては、界面の幾何学的不均一性による電子の散乱は抑制されるものの、界面近傍の意図せぬ固定電荷によるクーロン散乱の影響が大きいことが示された。

研究成果の概要(英文)：We fabricated and investigated InAs/low-k structures, where high-quality InAs thin films are bonded on host low-dielectric-constant (low-k) flexible substrates. From low-frequency noise measurements of the InAs/low-k, we found that the relevant length of Coulomb interaction is ~ 20 nm for electrons in the InAs. We also fabricated and investigated InAs/high-k/low-k structures, where high-k insulator layers are inserted between the InAs and the low-k. As a result, it is found that the InAs/high-k/low-k can suppress interface fluctuation scattering of electrons, whereas Coulomb scattering is enhanced by unintentional interface fixed charges.

研究分野：化合物半導体エレクトロニクス

キーワード：狭ギャップ半導体 低次元系 クーロン相互作用 固定電荷

1. 研究開始当初の背景

低次元における量子閉じ込め効果を用いれば、半導体励起子の束縛エネルギーを増大させることが可能である。例えば、理想的二次元系では、励起子束縛エネルギーは三次元系の場合の4倍に増大する。さらに、外部異種材料中に存在する半導体低次元構造においては、鏡像電荷効果が生じ、半導体内キャリアのクーロン相互作用を外部異種材料との誘電率差によって変調することが可能である。半導体内キャリアの運動は低次元に限定されるものの、クーロン相互作用は外部異種材料の誘電率に依存するためである。このことに基づき、低誘電率材料中にある半導体低次元構造におけるクーロン相互作用増強・励起子束縛エネルギー増大が早くから理論的に予想されていた。

しかしながら、エピタキシャル結晶成長で得られる低次元半導体ヘテロ構造では、この効果が顕著となる程の誘電率差を得ることが難しい。特に、束縛エネルギーが元来小さい InAs などの狭ギャップ半導体における中赤外領域励起子については、十分に大きい励起子束縛エネルギーを得ることが困難である。一方、狭ギャップ半導体のエピタキシャルリフトオフと、ファンデアワールス貼付を用いれば、誘電率差が大きい外部異種材料上に狭ギャップ半導体薄膜を形成することが可能である。これによれば、狭ギャップ半導体低次元構造と外部異種材料の間に充分大きい誘電率差を得て、上記のクーロン相互作用の制御、ひいては励起子束縛エネルギー増大を実現できる可能性がある。

2. 研究の目的

狭ギャップ III-V 族化合物半導体における中赤外領域励起子の束縛エネルギー制御に向けては、外部異種材料の誘電率を変化させた半導体低次元構造を作製し、半導体内キャリアのクーロン相互作用を変調することが有効である可能性がある。そこで、狭ギャップ III-V 族化合物半導体薄膜をエピタキシャルリフトオフとファンデアワールス貼付によって異種ホスト材料上に形成した低次元構造の作製と評価を行い、上記の可能性を検証する。この際、半導体に接する外部異種材料として系統的に誘電率を変化させることが可能な絶縁体に関する技術を開発し、半導体内キャリアのクーロン相互作用が外部異種材料の誘電率にどのように依存するかについて知見を得ることを目指す。

3. 研究の方法

異種ホスト材料上に狭ギャップ III-V 族化合物半導体である InAs の高品質薄膜が形成された構造を作製する。具体的には、InAs 薄膜をエピタキシャルリフトオフするための

積層構造を分子線エピタキシー格子不整結晶成長によって作製し、エピタキシャルリフトオフされた InAs 薄膜をファンデアワールス力によって低誘電率異種ホスト材料上に貼付形成する。また、InAs 薄膜とホスト材料の間に誘電率を変化させた絶縁体を挿入した構造を作製する技術を検討する。このために、組成比の制御によって誘電率を系統的に変化させることが可能な混合酸化物を成膜し、その物性を評価する。こうして得られた構造について、半導体内キャリアのクーロン相互作用を評価する。

4. 研究成果

(1) InAs/low-k 構造の作製と評価

図 1 に示すプロセスを用いて、低誘電率 (low-k) 異種ホスト材料上 InAs 薄膜構造 (InAs/low-k 構造) を作製した。このプロセスでは、エピタキシャルリフトオフした InAs 薄膜を中間支持体に保持した後、ファンデアワールス力によって low-k 材料上に貼付形成する。low-k 材料として比誘電率が約 3 の polyethylene terephthalate (PET) を用いた。また、InAs 膜厚は、ウエットエッチングによって ~ 10-100 nm の範囲で制御した。このとき、InAs 薄膜内に二次元的に閉じ込められた電子は高い移動度を示すが、膜厚の減少とともに移動度低下が観測された。この電子移動度の膜厚依存性は、InAs/low-k 界面の幾何学的不均一性による散乱と界面電荷からのクーロン相互作用による散乱が支配的な電子散乱機構であることを示している。

この InAs/low-k 構造における電流低周波ノイズを調べた結果、図 2 に示すように大きい $1/f$ ノイズが観測された。このときの Hooge パラメータは、低い電子移動度を有する InAs/GaAs 構造と比較してかなり大きい。 $1/f$ ノイズの膜厚依存性から、上記の散乱機構ともなって生じる移動度揺らぎがノイズをもたらししていることが明らかとなった。移動度とその揺らぎの解析によって、界面の幾何学的不均一性が 2 nm 程度であること、界面における電荷が $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ 程であること、クーロン相互作用の特徴的な長さが 20 nm 程度であることがわかった。このクーロン相互作用は、InAs 薄膜に接する外部異種材料の誘電率を系統的に変化させることで変調できる可能性がある。

(2) 誘電率を系統的に変化させることが可能な混合酸化物

InAs 薄膜に接する材料の誘電率がクーロン相互作用に与える影響を明らかにするには、上記構造における InAs と low-k 材料の間に所望の誘電率を有する絶縁層を挿入した試料による検討が有効である。そこで、誘電率を系統的に制御することが可能な絶縁

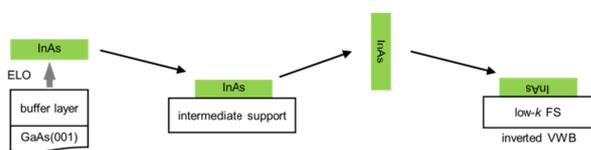


図 1. InAs/low-k 構造の作製プロセス

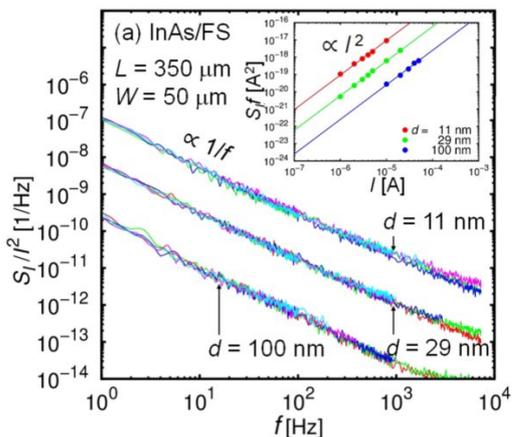


図 2. InAs/low-k 構造における電流低周波ノイズスペクトル

体として、混合酸化物 AlTiO の原子層堆積技術を検討した。AlTiO は、Al₂O₃ と TiO₂ の混合酸化物であり、Al と Ti の組成比による誘電率制御の可能性が有る。原子層堆積における原料として、trimethyl-aluminum (TMA)、tetrakis-dimethylamino-titanium (TDMAT)、H₂O を用い、TMA-H₂O と TDMAT-H₂O の堆積サイクル数によって組成を変化させた AlTiO を成膜することで、その誘電率を系統的に制御できることを確認した。

AlTiO 酸化物中の深い準位について調べるために、これをゲート絶縁膜として用いた GaN 系金属-絶縁体-半導体 (MIS) 電界効果デバイスを作製し、低周波ノイズを測定したところ、Lorentz 型電流ノイズスペクトルが観測された。このノイズスペクトルと Poole-Frenkel 型のゲートリーク電流の両者を解析することで、深い準位のエネルギーレベルの評価が可能であることが示された。

(3) InAs/high-k/low-k 構造の作製と評価

InAs/low-k 構造における InAs と low-k 材料の間に所望の誘電率を有する酸化物絶縁層を挿入した試料を作製する技術を検討した。作製プロセスについての試行錯誤的検討を経て、図 3 に示すプロセスを用いた InAs/high-k/low-k 構造の作製に成功した。このプロセスでは、エピタキシャルリフトオフした InAs 薄膜を中間支持体に保持した後、InAs 上に Al₂O₃ 絶縁層を原子層堆積してからファンデアワールス力によって low-k 材料上に貼付形成する。ただし、この際、プロセス途中での試料変形を避けるために、InAs に接する Al₂O₃ 絶縁層に加えて、変形抑制の役割

を果たす AlN 絶縁層を用いた。得られた InAs/high-k/low-k 構造に対する特性評価と解析を行った。図 4 に示す電子移動度の膜厚依存性から、InAs 膜厚 15 nm 程度以下における電子移動度低下は観測されず、界面の幾何学的不均一性による散乱が抑制されていることが示された。この InAs/high-k/low-k 構造においては、Al₂O₃ の高い比誘電率 (約 10) のために、InAs/low-k 構造と比較してクーロン相互作用も抑制されることが期待できる。しかしながら、この構造におけるクーロン散乱による電子移動度は InAs/low-k 構造より低いことがわかった。さらに、InAs 薄膜内の電子密度は InAs/low-k 構造より高くなった。これにより、原子層堆積した Al₂O₃ 絶縁層内のドナーから InAs 薄膜への変調ドーピングが生じており、イオン化ドナーが界面近傍の意図せぬ固定電荷としてクーロン散乱を引き起こしていることが予想された。

上記の可能性を詳しく調べるため、走査透過型電子顕微鏡 (STEM) による InAs/Al₂O₃ 界面近傍の評価を行った。図 5 に InAs/Al₂O₃ 界面近傍の STEM 高角度環状暗視野 (HAADF) 像を示す。さらに、STEM 内でエネルギー分散 X 線分光法 (EDX) および電子エネルギー損失分光法 (EELS) による解析を行った。図 6 に、EDX の 0-K 信号強度、EELS の 0-K エッジ信号強度、EELS の 0-K サテライト信号強度の位置依存性を示す。0-K 信号強度と 0-K エッジ信号強度が界面で立ち上がる同一の位置依存性を示すのに対し、0-K サテライト信号強度は Al₂O₃ 絶縁層内で界面から 1 nm 程度離れた位置で立ち上がる。これは、Al₂O₃ 絶縁層内で界面から 1 nm 程度の範囲にのみ正にイオン化した酸素欠損が存在していることを示唆している。これにより、図 7 のバンド図に示すように、界面近傍における Al₂O₃ 絶縁層中の酸素欠損がドナーとして変調ドーピングを

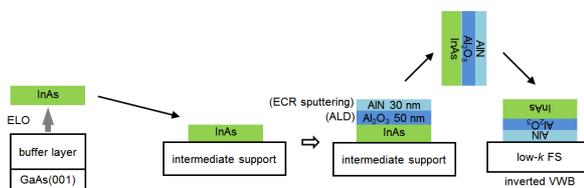


図 3. InAs/high-k/low-k 構造の作製プロセス

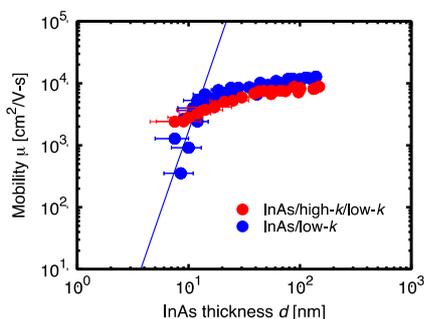


図 4. InAs/high-k/low-k 構造および InAs/low-k 構造における電子移動度の膜厚依存性

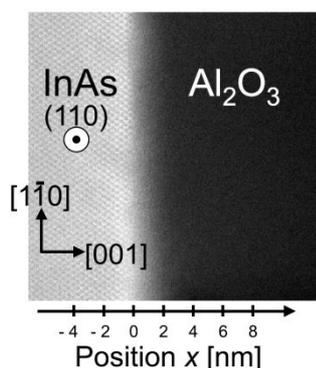


図 5. InAs/Al₂O₃ 界面近傍の STEM-HAADF 像

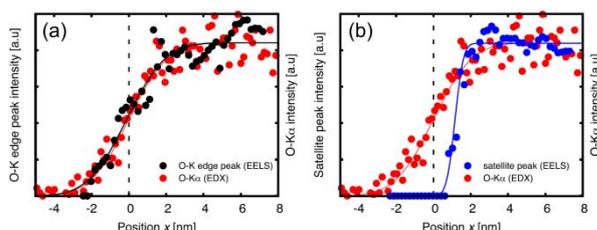


図 6. InAs/Al₂O₃ 界面近傍における酸素による EDX および EELS 信号の位置依存性

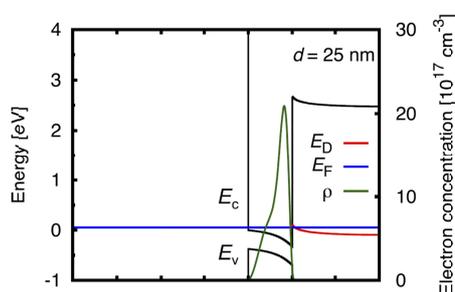


図 7. InAs/Al₂O₃ のバンド図

引き起こし、イオン化して正に帯電した酸素欠損ドナーが界面近傍の固定電荷となっていることが強く示唆された。この意図せずに発生する固定電荷は InAs 薄膜内キャリアのクーロン相互作用に大きく影響しており、InAs 薄膜に接する外部異種材料の誘電率によるクーロン相互作用の変調を検証するうえでの障害であることがわかった。

(4) 混合酸化物内の固定電荷

混合酸化物 AlTiO について、原子層堆積によって得られた薄膜において意図せず発生する固定電荷に関する詳しい検討を行った。原子層堆積におけるサイクル数によって組成と膜厚を精密に制御した AlTiO ゲート絶縁膜を有する GaN 系 MIS 電界効果デバイスを作製し、その閾値電圧の絶縁膜厚依存性を系統的に調べることで、混合酸化物内の固定電荷についての知見を得ることを試みた。その結果、閾値電圧は絶縁膜厚に線形に依存することがわかり、半導体との界面近傍に存在する正の固定電荷が支配的であることが明らかとなった。この正の固定電荷の密度は、AlTiO

中の Al 組成が高いほど高く、Ti 組成の増加とともに減少する。また、電子トラップをもたらす界面準位密度をコンダクタンス法で調べたところ、固定電荷密度と界面準位密度の間には明確な相関が存在しないことがわかった。この正の固定電荷は、酸化物中の酸素欠損ドナーがイオン化したものである可能性が高く、それを前提とすれば、上記の組成依存性は、Ti 組成の増加とともに酸素欠損に由来するドナーの生成確率が低下することを意味している。この現象は、Ti-O および Al-O の結合エネルギーの差異から説明できると考えられる。また、このような酸化膜中の固定電荷をふまえたデバイス閾値電圧制御を検討した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

[1] S. P. Le, D. D. Nguyen, and T. Suzuki, “Insulator-semiconductor interface fixed charges in AlGaIn/GaN metal-insulator-semiconductor devices with Al₂O₃ or AlTiO gate dielectrics” *Journal of Applied Physics* (査読有) 123 (2018) 034504-1~7.

(DOI: 10.1063/1.5017668)

[2] T. Ui, R. Mori, S. P. Le, Y. Oshima, and T. Suzuki, “An InAs/high-k/low-k structure: electron transport and interface analysis” *AIP Advances* (査読有) 7 (2017) 055303-1~8.

(DOI: 10.1063/1.4983176)

[3] S. P. Le, T. Ui, T. Q. Nguyen, H.-A. Shih, and T. Suzuki, “Low-frequency noise in AlTiO/AlGaIn/GaN metal-insulator-semiconductor field-effect transistors” *Journal of Applied Physics* (査読有) 119 (2016) 204503-1~6.

(DOI:10.1063/1.4952386)

[4] S. P. Le, T. Ui, and T. Suzuki, “Low-frequency noise in InAs films bonded on low-k flexible substrates” *Applied Physics Letters* (査読有) 107 (2015) 192103-1~4.

(DOI: 10.1063/1.4935458)

[学会発表] (計 7 件)

[1] 佐藤拓, 瓜生和也, 岡安潤一, 君島正幸, 鈴木寿一, 「ダブルリセス構造を有するノーマリオフ型 AlGaIn-GaN MOSFET の DIBL 特性 (招待講演)」電気学会電子デバイス研究会, 2018/03/27, 絹の溪谷碧流(栃木県日光市)

[2] T. Sato, K. Uryu, J. Okayasu, M. Kimishima, and T. Suzuki, “ Drain-induced barrier lowering in normally-off AlGaIn-GaN MOSFETs with single- or double-recess overlapped gate ” 49th International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), 2017/09/21, Sendai International Center (Sendai, Miyagi).

[3] S. P. Le, D. D. Nguyen, and T. Suzuki, “ Threshold voltages of Al₂O₃/AlGaIn/GaN and AlTiO/AlGaIn/GaN metal-insulator-semiconductor devices ” 49th International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), 2017/09/21, Sendai International Center (Sendai, Miyagi).

[4] T. Ui, R. Mori, S. P. Le, Y. Oshima, and T. Suzuki, “ Fabrication and characterization of InAs/high-k/low-k structures ” 48th International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), 2016/09/27, Tsukuba International Congress Center (Tsukuba, Ibaraki).

[5] S. P. Le, T. Ui, and T. Suzuki, “ Low-frequency noise exponents in InAs thin films on flexible or GaAs(001) substrate ” 43rd International Symposium on Compound Semiconductors, 2016/06/27, Toyama International Conference Center (Toyama).

[6] S. Yamaguchi, T. Ui, J. Liang, H.-A. Shih, and T. Suzuki, “ Fabrication and characterization of AlTiO/InAlN/AlN/GaN metal-Insulator-semiconductor field-effect transistor ” 47th International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), 2015/09/28, Sapporo Convention Center (Sapporo, Hokkaido).

[7] S. P. Le, T. Ui, T. Q. Nguyen, H.-A. Shih and T. Suzuki, “ Low-frequency noise in AlTiO/AlGaIn/GaN metal-insulator-semiconductor heterojunction field-effect transistors ” 47th International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), 2015/09/28, Sapporo Convention Center (Sapporo, Hokkaido).

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ

<http://www.jaist.ac.jp/nmcenter/labs/suzuki-www>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

鈴木 寿一 (SUZUKI Toshi-kazu)

北陸先端科学技術大学院大学・ナノマテリアルテクノロジーセンター・教授

研究者番号: 80362028

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

(4)研究協力者

なし