

平成22年 5月30日現在

研究種目：基盤研究（B）  
 研究期間：2006～2009  
 課題番号：18360155  
 研究課題名（和文） 光・電子集積回路用長寿命発光素子のための Si 上無転位 GaN の成長  
 研究課題名（英文） Growth of dislocation-free GaN on Si substrates for long-life optical devices in opto-electronic integrated circuits  
 研究代表者  
 成塚 重弥（NARITSUKA SHIGEYA）  
 名城大学・理工学部・教授  
 研究者番号：80282680

研究成果の概要（和文）：光・電子集積回路に用いる長寿命発光素子を実現するため、Si 基板上の GaN 無転位領域の成長に関し研究した。転位密度低減のためにはマイクロチャンネルエピタキシー（MCE）技術を用いる。MCE には、GaN の選択成長、横方向成長が必要である。本研究では、アンモニアを用いる有機金属分子線成長を使用することにより、広い温度範囲（600°C-850°C）で良好な GaN 選択成長に成功した。また、1 $\mu$ m と短い横方向成長ではあるが MCE にも成功できた。

研究成果の概要（英文）：Growth of dislocation-free GaN on Si substrates is investigated for realizing long-life optical devices in opto-electronic integrated circuits. Micro-channel Epitaxy (MCE) is used to reduce the dislocation density. Selective growth and lateral growth of GaN are necessary for MCE. Consequently, excellent selective growth in wide temperature range of between 600-850°C and preliminary MCE were successfully achieved using NH<sub>3</sub>-based metal organic chemical vapor deposition, though the width of the lateral growth is as long as 1 $\mu$ m.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	7,600,000	0	7,600,000
2007年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2008年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2009年度	2,300,000	690,000	2,990,000
年度			
総計	14,800,000	2,160,000	16,960,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：電気・電子材料、光・電子集積回路、MBE エピタキシャル、窒化ガリウム、格子欠陥、マイクロチャンネルエピタキシー、有機金属分子線成長、選択成長

1. 研究開始当初の背景 | Si をベースとした集積回路技術はこれまで | すでに飛躍的な進化を遂げ、コンピュータ・通信をはじめ各種のハイテク分野に多大な貢

献を果たした。しかし、スケール則にのっとりその性能改善は限界に近く、今後予測される情報処理量の大幅な増加に対処するためには、光素子を集積化した光・電子集積回路(OEIC)の実現が待たれる。OEICはSi電子集積回路とデータ入出力用の光素子とを集積化することにより作製され、飛躍的な情報処理能力の向上が期待できる。

Siは光を出せない間接遷移材料であり、光素子を作るには直接遷移材料をSiに組み合わせる必要がある。つまり、Si基板上にGaAs、InP、GaN等の直接遷移材料を成長させる必要がある。この場合、Siとの間に結晶形、格子定数、熱膨張率の違いが存在するため、大量の転位・欠陥が成長層中に発生し、良好な光素子作製のための大きな障害となっている。多年にわたる転位密度低減の努力にもかかわらず、いまだに多くの転位(最も進んだGaAs/Siの例においても $\sim 10^6 \text{cm}^{-2}$ 位の転位)が残留し、抜本的な転位密度低減化技術の出現が待たれている。

我々は、Si基板上に無転位領域を成長するための手段として、マイクロチャンネルエピタキシー(Micro Channel Epitaxy; MCE)を提案し、すでにGaAs、InPの無転位領域の成長に成功している。MCEでは、バッファ層上にSiO<sub>2</sub>マスクを塗布し、ストライプ状の開口(マイクロチャンネル)を作製し、そこから液相成長(LPE)により横方向成長をおこなう。バッファ層中の転位はマイクロチャンネル上方には伝播するが、横方向成長領域では図1のエッチピットの観察結果からわかるように、無転位のGaAs成長領域が得られている。

一方、ナイトライド系材料は、紫外から赤外領域までおよぶ広い波長範囲での発光が可能であり、高い耐電圧特性、優れた熱的安定性、さらには材料的にも無公害という優れた特徴を持つため、21世紀の新材料として大きな注目を集めている。

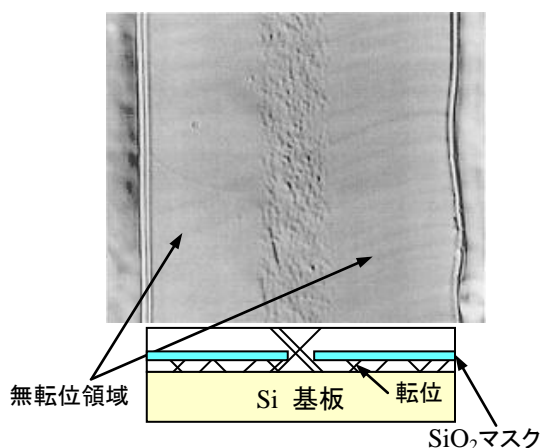


図1. マイクロチャンネルエピタキシー(MCE)によるSi基板上の無転位GaAs領域

## 2. 研究の目的

以上のような背景のもと、本研究の目的を、良好な光素子の実現が可能な無転位ナイトライド系材料をSi基板上に成長すること、また、成長した無転位領域を利用して、ナイトライド系材料による光素子を作製することとした。

## 3. 研究の方法

LPEを用いたナイトライド系材料の横方向成長は難しい。なぜなら、金属Gaとアンモニアガスの反応は激しく、結晶成長を安定に制御することが困難である。また、アンモニアガスの代わりに窒素ガスを用いた場合も、窒素が金属Ga中へほとんど溶解しないためLPEは困難である。本研究ではこの問題を解決し、GaNの横方向成長を達成するために、分子線成長(MBE)を用いた低角入射マイクロチャンネルエピタキシー(Low Angle Incidence Micro-Channel Epitaxy; LAIMCE)を用いる。

LAIMCEでは、ストライプ状の開口(マイクロチャンネル)をマスクに作製する。MBEを用い、分子線を低角でマイクロチャンネルに入射させると、分子線の優れた直進性のため、横方向成長が可能となる。LAIMCEによれば、マイクロチャンネル上部では転位が残留するが、横方向成長領域では転位の伝播はなく、無転位領域が得られる。

良好なLAIMCEを実現するためには、横方向成長技術のみならず、マスク上に成長しない選択成長技術が必要である。本研究では、良好な選択成長を実現するために、Gaの原料として有機金属材料を用い、有機金属材料のマスク上では分解が進まず、結晶上のみで分解するという特性を利用する。また、LAIMCE成長層が持つ3次元的な構造は、ヘテロ界面で発生する転位を低減させるばかりでなく、基板と成長層との熱膨張差に起因する応力の緩和にも有用である。

以上の目的を達成するために、次の項目に関し本研究を遂行した。

- ① 有機金属ガス導入制御系の増設
- ② 有機金属分子線成長(MOMBE)によるGaNの成長
- ③ MOMBEによる低温選択成長条件の導出
- ④ MOMBEを用いたGaN低角入射マイクロチャンネルエピタキシー
- ⑤ ドロップレットエピタキシーによるGaN、InNドットの作製
- ⑥ GaAs基板表面の窒化によるc-GaN超薄膜の作製
- ⑦ GaAs低角入射マイクロチャンネルエピタキシー
- ⑧ Si基板上GaN系光学デバイスの作製に向けて

#### 4. 研究成果

##### (1) 有機金属ガス導入制御系の増設

既存の分子線成長 (MBE) 装置に、選択成長がおこないやすい有機金属 (MO) が成長原料として使用できるよう、有機金属ガス導入制御系を増設した。制御系として、MO バブラ、ガス流量制御器、ガス流切り替え装置等を適宜組み合わせ原料ガスの切り替えが急峻におこなえるよう設計した。MBE 成長室中が高真空環境に保てるよう、本制御系ではキャリアガスを使用せず、原料ガスの飽和蒸気圧のみで原料ガスを供給し、ガスの切り替えが良好におこなえるよう考慮した。また、ガス流切り替えの安定性を向上させるため、ターボ分子ポンプを用いたベントラインを増設した。

##### (2) 有機金属分子線成長 (MOMBE) による GaN の成長

MBE を改造し作製した有機金属分子線成長 (MOMBE) を使用して、GaN 成長のための条件を導出した。成長温度、トリメチルガリウム (TMG) 流量、アンモニア (NH<sub>3</sub>) 流量などの成長条件の最適化をおこなうことにより、サファイア基板上に良好な GaN が結晶成長できるようになった。

##### (3) MOMBE による低温選択成長条件の導出

MOガスの分解が結晶表面における触媒反応で促進されることを利用し、MOMBEを用いた GaN の選択成長を試みた。その結果、600°C–850°C の広い温度範囲において、GaN の選択成長に成功した。(図 2) 従来の N ラジカル等を用いる MBE にくらべ非常に広い温度範囲で選択成長可能となり、なおかつ低温領域での選択成長にも成功した。従来、MOMBE による GaN の選択成長に関する研究はほとんど無く、初めての系統的な選択成長の実験となった。600°C という低い温度での選択成長の実現は、OEIC 作製ばかりでなく、素子作製全般にわたる応用の観点からも意義深い結果である。

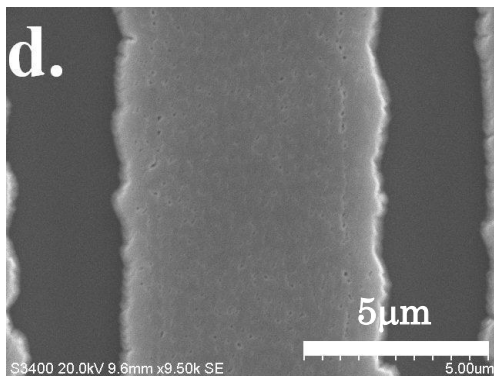


図 2. MOMBE による GaN 選択成長層の表面 SEM 写真 (成長温度 700°C)

##### (4) MOMBE を用いた GaN 低角入射マイクロチャンネルエピタキシー

上記で導出した選択成長条件を使用し、MOMBE を用いて GaN の低角入射マイクロチャンネルエピタキシー (LAIMCE) を試みた。図 3 に示すように、今のところ 1 μm 程度ではあるが、SiO<sub>2</sub> マスク上にはっきりと横方向成長領域を確認することが出来、初期的な段階ではあるが LAIMCE 成長に成功した。また、LAIMCE の成長温度依存性を調べたところ、成長温度が横方向成長に大きな影響を与えることも判明した。

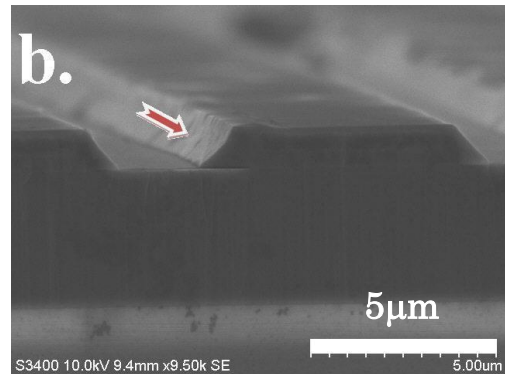


図 3. MOMBE による GaN の LAIMCE 成長層の断面 SEM 写真 (成長温度 820°C)

##### (5) ドロップレットエピタキシーによる GaN、InN ドットの作製

ドロップレットエピタキシーを用いて GaN と InN のナノドットの作製をおこなった。ドロップレットエピタキシーでは、最初に基板の上に III 族原料である Ga (In) を供給し、ナノサイズの金属 Ga (In) の液滴を形成する。次に、V 族原料であるアンモニアを供給し液滴を結晶化させ GaN (InN) ドット構造を得る。本研究ではドット構造の結晶性を向上させるために、アンモニア供給雰囲気での熱処理の効果も調べた。その結果、熱処理は結晶化を

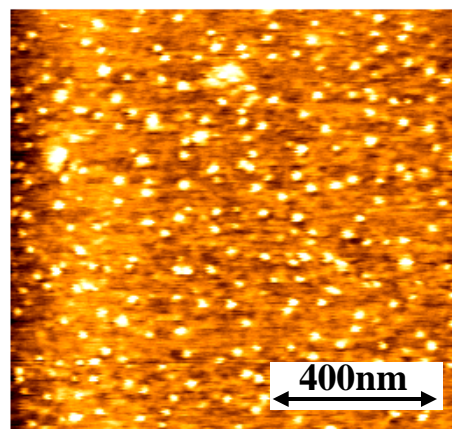


図 4. ドロップレットエピタキシーを用いて Si 基板上に作製した GaN ドット構造の AFM 像

促進させるばかりでなく、ドットサイズの微細化ならびにドット密度の向上にも効果があることが分かった。Si 基板上に GaN のドット構造を作製した場合の AFM 像を図 4 に示す。ドット径はおおよそ 35nm、高さは 2nm、密度は  $3 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$  とナノサイズのドットを高密度で得ることに成功した。InN ドット作製の場合も同様の傾向が示されたが、熱処理温度が 600°C を超すとドットそのものが消滅することも判明した。

#### (6) GaAs 基板表面の窒化による c-GaN 超薄膜の作製

GaAs(001) 基板表面を窒素ラジカルにより窒化することにより立方晶 c-GaN の超薄膜の作製に成功した。窒化温度、窒化時の As 供給の有無が生成する窒化超薄膜に与える影響を調べた。表面格子定数の変化を反射高速電子線回折 (RHEED) を用いその場で調べ、それが上部に成長する GaAs 薄膜の成長様式にも大きく影響を及ぼすことを解明した。本成果は窒化超薄膜を用いた多層構造を作製するためにも欠かせない条件となり、その意義は大きい。

#### (7) GaAs 低角入射マイクロチャンネルエピタキシー

GaN による横方向成長をおこなう前に、GaAs を用いた LAIMCE を試み、LAIMCE を実現する際の問題点、留意点を検討した。その結果、マスクパターンを使った成長の初期段階におけるマスク端での分子線の遮断効果により、横方向成長が阻害されること、成長上面に発生する斜めファセットが横方向成長形状を大きく左右することなど、良好な横方向成長を達成するために克服しなければならない複数の条件が存在することが確認された。また、成長層側面下部に発生する逆メサ状ファセットの横方向成長に与える効果も調べた。従来は成長層側面に存在する順メサ状ファセットのみに注目しており、それと成長上面との間の面間拡散により、成長形状が大きく変化することはわかっていた。今回の実験によると、成長層側面下部に発生する逆メサ状ファセットもその生成、拡大のメカニズムを通じ横方向成長の形状に大きな影響を与えることが判明した。ビーム誘起横方向エピタキシー (BILE) の実験結果によると、成長層側面下部に存在する逆メサ状ファセットは、成長層先端の隆起にも影響を及ぼすので、その制御が良好な横方向成長をおこなうためにも重要である。

#### (8) Si 基板上 GaN 系光学デバイスの作製に向けて

発光素子の試作には及ばなかったが、基板

が選択成長に与える影響に関して調査した。MBEによるGaNテンプレート基板ならびに有機金属気相成長 (MOCVD) によるGaNテンプレート基板の双方を基板として用い、MOMBEによるGaNの選択成長をおこない両者の差を検討した。その結果、テンプレート基板の質 (転位密度、平坦性など) が上部のGaNの選択成長にも大きな影響を与えることが判明した。以上により、LAIMCEをおこなう際にも、テンプレート基板の質の向上が重要であることがわかった。

#### 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 15 件)

- 1) Shigeya Naritsuka, Midori Mori, Yoshitaka Takeuchi, Takahiro Maruyama, "Influence of substrate temperature on nitridation of (001) GaAs using RF-radical source", J. Cryst. Growth, 311 (2009) 2992-2995 (査読有) .
- 2) Shigeya Naritsuka, Shuji Matsuoka, Yuji Ishida, Takahiro Maruyama, "Effect of crystallographic orientation of microchannel on low-angle incidence microchannel epitaxy on (001) GaAs substrate, J. Cryst. Growth 311 (2009) 1778-1782 (査読有) .
- 3) S. Naritsuka, S. Matsuoka, Y. Ishida, T. Maruyama, "Effect of crystallographic orientation of microchannel on low-angle incidence microchannel epitaxy on (001) GaAs substrate", Journal of Crystal Growth 311 (2008) 1778-1782 (査読有) .
- 4) S. Naritsuka, S. Matsuoka, Y. Yamashita, T. Maruyama, "Optimization of initial growth in low-angle incidence microchannel epitaxy of GaAs on (001) GaAs substrates" Journal of Crystal Growth (2008), 310(7-9), 1571-1575 (査読有) .
- 5) S. Naritsuka, Y. Tejima, K. Fujie, T. Maruyama, "Liquid-phase epitaxy of GaAs by temperature difference method to realize wide lateral growth" Journal of Crystal Growth (2008), 310(7-9), 1642-1646 (査読有) .
- 6) H. Otsubo, T. Kondo, Y. Yamamoto T. Maruyama and S. Naritsuka, "Effect of substrate surface on GaN dot structure grown on Si(111) by droplet epitaxy", Phys. Stat. sol. No.7 (2007) 2322-2325 (査読有) .
- 7) Y. Yamamoto, M. Mori, H. Otsubo, T. Maruyama and S. Naritsuka, "GaAs/ c-GaN/ GaAs Multi-Layered Structure Fabricated by Using RF-Plasma Source Nitridation Technique", Phys. Stat. sol. No7(2007)2326-2329 (査読有) .
- 8) T. Maruyama, H. Otsubo, T. Kondo, Y.

Yamamoto, S. Naritsuka, "Fabrication of GaN dot structure by droplet epitaxy using NH<sub>3</sub>", J. Crystal Growth 301-302 (2007) 486-489 (査読有) .

- 9) S. Naritsuka, S. Matsuoka, T. Kondo, K. Saitoh, T. Suzuki, Y. Yamamoto and T. Maruyama, "Formation mechanism of rotational twins in beam-induced lateral epitaxy on (111)B GaAs substrate", J. Crystal Growth 301-302 (2007) 42-46 (査読有) .
- 10) S. Naritsuka, T. Kondo, H. Otsubo, K. Saitoh, Y. Yamamoto and T. Maruyama, "In situ annealing of GaN dot structures grown by droplet epitaxy on (111) Si substrates", J. Crystal Growth, (2007) 300(1) 118-122 (査読有) .
- 11) Atsushi Hattori, Shigeeya Naritsuka, Kei Tsuge and Takahiro Maruyama, "Study of lateral growth of AlGaAs microchannel epitaxy", 名城大学総合研究所 総合学術研究論文集 第6号、2007年3月、p97-104 (査読有) .
- 12) M. Mizutani, F. Teramae, O. Kobayashi, S. Naritsuka and T. Maruyama, "Precise control of growth of DBR by MBE using in-situ reflectance monitoring system", phys. stat. sol. (c)3(2006)659-662 (査読有) .
- 13) M. Mizutani, F. Teramae, K. Takeuchi, T. Murase, S. Naritsuka and T. Maruyama, "Precise control of Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Structural Growth Using Molecular Beam Epitaxy In Situ Reflectance Monitor" Jpn. J. Appl. Phys, 45 4B(2006) 3552-3555 (査読有) .
- 14) Y. Yamamoto, S. Matsuoka, T. Kondo, T. Maruyama and S. Naritsuka, "Fabrication of nitrided mask on GaAs surface and its machinability in STM lithography", Materials Research Society Symposium Proceedings 891 (2006) 157-162 (査読有) .
- 15) T. Kondo, K. Saito, Y. Yamamoto, T. Maruyama and S. Naritsuka, "Fabrication of GaN dot structures on Si substrates by droplet epitaxy", phys. stat. sol. (c)(2006) 1700-1703 (査読有) .

[学会発表] (計46件)

国際会議 (12件)

- 1) D. Kanbayashi, Y. Ando, T. Kawakami, S. Naritsuka, T. Maruyama "AlGaAs-based optical device fabricated on Si substrate using microchannel epitaxy" The TMS Annual Meeting & Exhibition, Washington State Convention Center, WA, USA, February 14-18, (2010).
- 2) Shigeeya Naritsuka, Yohei Monno, Midori Mori, Yoshitaka Takeuchi and Takahiro Maruyama "XPS Study of Nitridation Mechanism of GaAs (001) Surface using

RF-radical Source", SemiconNano 2009, O-14, Anan, Tokushima, August 10-13, (2009) (invited).

- 3) Shigeeya Naritsuka, Hiroaki Otsubo, Shoji Osaki, Takahiro Maruyama, "Fabrication of InN dot structures by droplet epitaxy using NH<sub>3</sub>", XXI Congress and General Assembly of the International Union of Crystallography (IUCr), Grand Cube Osaka, August 23-31(2008).
- 4) Shigeeya Naritsuka, Shuji Matsuoka, Yuji Ishida and Takahiro Maruyama, "Effect of crystal orientation of microchannel on low-angle incidence microchannel epitaxy on (001) GaAs substrate", Abstract of International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2008), Vancouver, Canada, August 3-8(2008).
- 5) Shigeeya Naritsuka, Midori Mori, Yoshitaka Takeuchi and Takahiro Maruyama, "Influence of substrate temperature on nitridation of (001) GaAs using RF-radical source", Second International Symposium on Growth of III-nitride(ICGN-2), Laforet Shuzenji, July 6-9(2008).
- 6) S. Naritsuka, Y. Tejima, K. Fujie and T. Maruyama "Liquid phase epitaxy of GaAs by temperature difference method to realize wide lateral growth", The 15th International Conference on Crystal Growth 823, Salt Lake City, Utah, USA, 12-17 August (2007).
- 7) S. Naritsuka, S. Matsuoka, Y. Yamashita, Y. Yamamoto and T. Maruyama, "Growth Optimization of Low Angle Incidence Microchannel Epitaxy of GaAs layer on (001)GaAs substrates", The 15th International Conference on Crystal Growth 948, Salt Lake City, Utah, USA, 12-17 August (2007).
- 8) S. Matsuoka, Y. Yamamoto, T. Kondo, T. Maruyama, S. Naritsuka, "Low angle incidence microchannel Epitaxy of GaAs layer on GaAs (001) substrates" TMS Annual Meeting & Exhibition, Orlando, Florida, USA, Feb.25-March 1, (2007).
- 9) Y. Yamamoto, M. Mori, H. Otsubo, T. Maruyama and S. Naritsuka, "GaAs/ c-GaN/ GaAs Multi-Layered Structure Fabricated by Using RF-Plasma Source Nitridation Technique" International Workshop on Nitride Semiconductors, Kyoto, Oct 22-27 (2006).
- 10) H. Otsubo, T. Kondo, Y. Yamamoto T. Maruyama and S. Naritsuka, "Effect of substrate surface on GaN dot structure grown on Si(111) by droplet epitaxy", International Workshop on Nitride Semiconductors, Kyoto, Oct 22-27 (2006).
- 11) S. Naritsuka, T. Kondo, H. Otsubo, K. Saitoh, Y. Yamamoto and T. Maruyama, "In-situ annealing of GaN dot structures grown by

droplet epitaxy on (111) Si substrates”, First International Symposium on Growth of III-Nitrides, Linkoping, Sweden, June 4-7, (2006).

12) S. Naritsuka, S. Matsuoka, T. Kondo, Y. Yamamoto, K. Saitoh and T. Maruyama, “Formation mechanism of rotation twin in beam induced lateral epitaxy on (111)B GaAs substrate”, The 14<sup>th</sup> International Conference on MBE, Tokyo, Sept 3-8 (2006).

国内会議（34件）

1) 成塚重弥 “低温バッファ層の科学”、日本学術振興会、結晶成長の科学と技術161委員会 第61回研究会、京都市産業技術研究所 工業技術センター、京都、12月4日(2009)、(招待講演)。

2) 成塚重弥、門野洋平、森みどり、竹内義孝、丸山隆浩、“RFラジカル源を用いたGaAs(001)表面窒化によるGaN超薄膜の形成” 第70回応用物理学会学術講演会 8a-F-1、富山大学、9月8日-9月11日(2009)。

3) 成塚重弥、行田哲也、山本芙美、手嶋康将、丸山隆浩、“Ni-SiドーピングしたGaAsからの近赤外発光”、第56回応用物理学関係連合講演会 31p-P11-4、筑波大学(つくば) 3月30日-4月2日(2009)。

4) 成塚重弥、森みどり、竹内義孝、神林大介、門野洋平、丸山隆浩 “RF-ラジカルを用いたGaAs(001)表面の窒化における格子緩和メカニズム” 第38回結晶成長国内会議 06aA08、仙台市戦災復興記念館、11月4~6日(2008)。

5) 成塚重弥 “GaAs表面窒化によるGaN超薄膜の作製とGaAs/c-GaN/GaAs多層構造の作製” 東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究会、ホールサムインばんじ、11月17日(2006)。

6) 成塚重弥、大坪弘明、近藤俊行、山本陽、丸山隆浩 “GaNドット構造の液滴エピタキシーにおけるアンモニア雰囲気中の熱処理効果” 第36回結晶成長国内会議、01pB02、大阪大学11月1日(2006)。

他28件

[その他]

ホームページ等

[http://www.rz.meijo-u.ac.jp/labo/naritsuka\\_maruyama/nm\\_main.htm](http://www.rz.meijo-u.ac.jp/labo/naritsuka_maruyama/nm_main.htm)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

成塚 重弥 (NARITSUKA SHIGYA)

名城大学・理工学部・教授

研究者番号：80282680

### (2) 研究分担者

丸山 隆浩 (MARUYAMA TAKAHIRO)

名城大学・理工学部・准教授

研究者番号：30282338

天野 浩 (AMANO HIROSHI)

名城大学・理工学部・教授

研究者番号：60202694

### (3) 連携研究者

なし