

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 7 日現在

機関番号：82108
研究種目：基盤研究(C) (一般)
研究期間：2019～2021
課題番号：19K04480
研究課題名(和文) GaAs基板上への高格子不整合エピタキシャル薄膜の実現と拡張赤外光検出器への展開

研究課題名(英文) Epitaxial growth of largely lattice-mismatched thin films on GaAs and its application to infrared photodetectors

研究代表者
間野 高明 (MANO, Takaaki)
国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・主幹研究員

研究者番号：60391215
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：安価で高性能な赤外線検出器実現に向けて、汎用性の高いGaAs基板上のIn(Ga)Asのメタモルフィック成長技術の開発を進めるとともに、赤外線検出器の試作と特性評価を通して、その応用の可能性を探索する基礎研究を行った。GaAs(111)A上のInAs成長に関して、成長条件の最適化を行い、貫通転位密度やロッキングカーブの半値幅が移動度特性に与える影響を明らかにした。また、新たに、InAs/GaAs(111)Aメタモルフィック接合界面を利用した赤外線検出器のアイデアを着想し、低暗電流の赤外線検出器をGaAs基板上に簡便な手法で実現できる可能性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、環境センサーや監視カメラなどの必要性からその重要性がさらに増している赤外線検出器の高性能化や低価格化につながる可能性のある、ナローギャップ半導体を汎用半導体基板上に結晶成長する基盤的研究を進めたものである。格子不整合系の結晶成長という学術的観点では、結晶性の評価に関して多方面からの解析を行うことにより従来法の指針では十分ではないことが明らかとなった。また、特殊な界面構造に着目し、それを用いた新しいバンドエンジニアリングによる受光デバイスの可能性を実証した。これらの研究成果の技術的・学術的価値は高く、近未来社会で社会実装されるデバイスの開発に貢献できると考えられる。

研究成果の概要(英文)： Towards the realization of low-cost, high quality infrared photodetectors, we have developed metamorphic growth of In(Ga)As on conventional GaAs substrates and investigated their potential application to photodetectors. We investigated the InAs growth on GaAs(111)A under various growth conditions. We optimized the growth and found the relationship between the threading dislocation density, X-ray diffraction rocking curve, and mobility. We have also developed a new type of infrared photodetectors in which metamorphic interface of InAs/GaAs(111)A plays an important role. The photodetectors exhibit low dark current properties at 77K due to the dislocation-free GaAs barrier. By illuminating infrared light, clear photocurrent signal was observed. After optimization of the device structures and the measurement systems, we succeeded in the infrared light detection at room temperature with a cutoff wavelength of 3 μ m.

研究分野：半導体エピタキシャル成長

キーワード：分子線エピタキシー 赤外線検出器 ガリウム砒素 インジウム砒素 格子不整合

1. 研究開始当初の背景

赤外線検出器は、内閣府が提唱する Society5.0 の超スマート社会において、フィジカル空間をサイバー空間と繋げるための「目」として欠かすことのできない構成要素の一つで、今後その重要性・必要性が飛躍的に高まると考えられる。赤外線の波長帯の中で、拡張近赤外域（波長 1.5 ~ 3 μm 範囲を拡張近赤外域と便宜的に定義する）は、分子の基準振動の倍音や結合音と適合し、さらに、物質中での透過性が非常に高いため、食品、医療、製薬分野などにおける非破壊、非侵襲のリアルタイム検査装置等への応用が期待されている(図 1)、同波長帯は、汎用な化合物半導体基板である GaAs や InP と格子整合する材料系を用いて実現することが困難な領域である。InP 基板と格子整合する $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ のカットオフ波長は 1.7 μm であり、InP や GaAs 基板上の量子構造のサブバンド間遷移を用いたものでは、通常、検出波長は 4 μm より長波長域となる。 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の In 組成を $x > 0.53$ とし、狭バンドギャップ化させれば拡張近赤外域に適合するが、In 組成を増加させると格子定数も大きくなり適合する基板材料が存在しなくなる。そこで、基板材料と格子定数の異なる格子不整合系成長を行い、転位の形成により格子緩和させた疑似基板を作製する手法が用いられている。しかし、これは同時に貫通転位形成を引き起こし、検出器性能に大きな影響を与える暗電流特性が大幅に悪化する。厚膜成長を行いながら格子定数を徐々に緩和させることにより貫通転位密度を低減させる手法が広く用いられているが、数 μm 厚にもおよぶバッファ層を成長させているにもかかわらず、貫通転位に起因する高い暗電流の問題は完全には解決できていない。以上のように、拡張近赤外域の高性能赤外検出器実現のために、貫通転位密度の少ない高品質な高 In 組成(x) の $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 疑似基板をできるだけ簡便な結晶成長で、さらに安価な基板上に実現することが望まれていた。



図 1

2. 研究の目的

本研究の目的は、我々が独自に研究開発を進めてきた InAs 超薄膜による特異な格子緩和機構を用いた ATLAS 法により、高 In 組成の格子緩和 InGaAs 疑似基板を GaAs(111)A 基板上に結晶成長により高品質かつ簡便に実現することである。成長の最適化により、低貫通転位密度で高品質な成長技術を確立するとともに、その疑似基板上の赤外線検出器の試作・動作検証まで実施する。そして、低コストと高性能を両立した拡張近赤外光検出器実現の可能性を実証する。また、研究を進める過程で、ATLAS 法を派生させた形の新しい構造を用いた赤外線検出器実現も試みた。

3. 研究の方法

本研究では、III-V 族化合物半導体用の標準的な分子線エピタキシー装置を用いて、汎用性の高い GaAs 基板上に、格子定数大きく異なるナローギャップ半導体である InGaAs を高品質に結晶成長させるための成膜技術開発を進めた。具体的には、GaAs(111)A 基板上に様々な条件で InAs を成長し、その表面粗さ、格子定数、ロッキングカーブ半値幅、移動度の評価などを行い、成長条件の最適化を行った。また、InAs/GaAs(111)A ヘテロ界面特性に注目して、新しい赤外線検出器デバイスの可能性を見出し、実際にデバイス試作・評価まで行き、基礎技術の開発を行った。

4. 研究成果

以下に三年間の研究で得られた主要な成果について各項目ごとに、簡潔に述べる。

(1) GaAs(111)A 基板上の InAs 成長条件の最適化

ATLAS 法においては、GaAs(111)A 基板上に InAs 薄膜を結晶成長して格子緩和を促進する。その上に InGaAs を成長した際に、InAs が柔軟な緩衝層として働くことにより、平坦性に優れ、ほぼ格子緩和した InGaAs が成長できる。しかし、平面 TEM 観察により InGaAs 中の貫通転位密度評価を行ったところ、図 2 に示すように、想定してよりも多くの貫通転位が観察された。その原因として InAs 薄膜成長時に転位が形成されてそれが表面に伝搬していることが想定された。そこで転位低減の鍵となる InAs 成長条件の最適化を試みた。

初めに、GaAs(111)A 基板上に 300nm の InAs を成長し、成長温度に対する依存性を調べた。420 ~ 500 の成長温度の範囲では、420 では図 3 に示すように成長の安定性によ



図 2

$\text{In}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}/\text{InAs}/\text{GaAs}(111)\text{A}$ の平面 TEM 像

る三角形の構造が見えるもの、表面の粗さにはあまり大きな変化は見られなかった。また、420 と 460 の試料の平面 TEM 観察を行ったところ貫通転位密度はそれぞれ、 $1.5 \times 10^9/\text{cm}^2$ と $8.0 \times 10^8/\text{cm}^2$ と低温の成長の方が貫通転位が多いことが分かった(図 4)。それに伴って、77K における移動度も、 $7.02 \times 10^3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ (400) と $1.2 \times 10^4 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ (460) と高温成長の方が良い。一方、基板温度を 500 まで上げても、移動度は上昇しなかった。このことから、460 程度が良好な成長条件といえる。一方、X 線回折測定により格子緩和度及び、InAs111 反射のロッキングカーブ半値幅の評価を行ったところ、いずれの場合も、半値幅は約 1000 秒と非常に広いことが分かった。逆格子マップ測定において観察された InAs の逆格子点の伸びから、InAs 成長膜の(111)A 面が厳密に GaAs(111)A と平行ではなく、波打っているような描像が想定されている。ロッキングカーブの広さは、厚膜成長時に局所的な歪を増幅して結晶性の低下を招く可能性がある。また、格子緩和度は、いずれの場合もほとんど緩和しているが、残留している歪は、0.2%(400) ~ 0.28%(500) と温度が低いほどわずかに少ないことが分かった。

続いて、さらに低温層を導入することを試みた。低温層の導入は格子緩和を促進してその上に高品質層を作製するのに有用であり、このような格子不整合系の結晶成長においてはしばしば用いられている手法である。初めの 5ML の InAs を 220、320 の低温で成長した試料を作製して、その特性を比較した。残りの 300nm の InAs の成長温度は、460 である。その結果、図 5 に示すように、平坦性に関しては、RMS が 0.7~0.8nm 程度となり、(460 ですべて成長した場合の RMS は 1.14nm) 大きな改善効果が得られた。また、残留歪は 0.3% 程度と若干増加する傾向がみられたが、ロッキングカーブの半値幅は、500 秒程度まで低下し、劇的な改善効果が得られた。一方平面 TEM 観察では、貫通転位密度が、 $2.5 \times 10^9/\text{cm}^2$ とかなり増加してしまっ

た。それに伴い移動度も、減少する傾向が観察された。以上の結果から、成長温度としては 460 程度が最適条件であるものの、ロッキングカーブの半値幅が非常に広く、厚膜成長の際には、貫通転位密度を犠牲にしても低温層導入などを検討することにより、均一性を向上させる必要があることが分かった。また、半導体の結晶品質の指標としてロッキングカーブの半値幅がよく用いられるが、貫通転位密度とのほとんど関連性が見られないこともわかった(むしろ負の相関がある)。

(2) InAs/GaAs(111)A を用いた赤外線検出器

InAs/GaAs(111)A の成長条件の最適化の検討を行い、ある程度の方向性は得られたが、この貫通転位が残る InGaAs を用いて赤外線検出器を作製すると暗電流が充分下がらない可能性がある。そこで、従来の研究計画であった、InGaAs 層の pn 接合の作製ではなく、InAs/GaAs(111)A 界面をそのまま使う新しい検出器のアイデアに着想した。初めは、神戸大学より報告のあるシングルヘテロ太陽電池型の動作原理に基づく赤外線検出器を目的として実験を開始したが、その後、それとは反対の電圧条件下でデバイスが動作することを見出した。

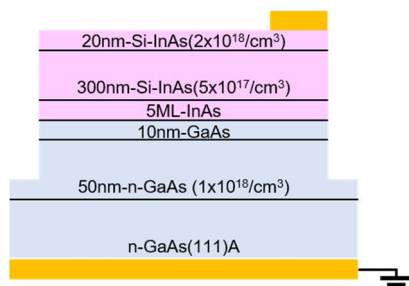


図 6 作製したデバイスのポンチ絵

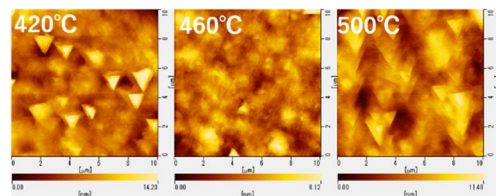


図 3 300nm-InAs/GaAs(111)A の AFM 像

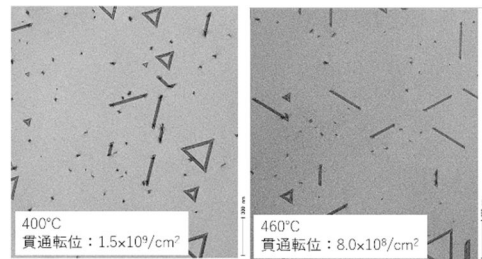


図 4 300nm-InAs/GaAs(111)A の平面 TEM 像

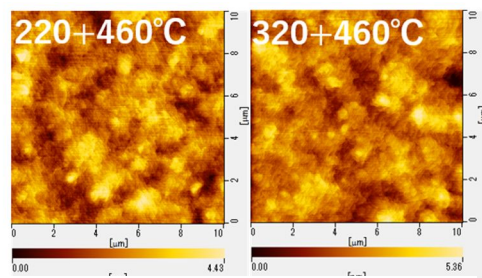


図 5 低温層を導入した 300nm-InAs/GaAs(111)A の AFM 像

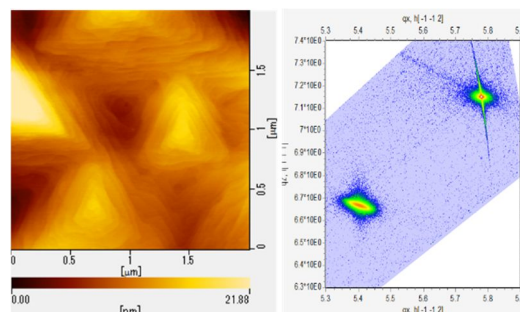


図 7 高速成長した InAs の AFM と XRD 逆格子マップ

試料は GaAs(111)A 基板上に、基板温度 520 で、n-GaAs (Si: $1 \times 10^{18}/\text{cm}^3$) + 10nm-undoped-GaAs、続いて、基板温度 460 で 5ML-undoped-InAs + 300nm-n-InAs (Si: $5 \times 10^{17}/\text{cm}^3$) + 20nm-n-InAs (Si: $2 \times 10^{18}/\text{cm}^3$) を成長した。赤外線検出器は、GaAs 基板裏面及び InAs 表面にオーミック電極を作製した後、ウェットエッチングにより $200 \times 200 \mu\text{m}^2$ のメサ構造を形成することにより作製した(図 6)。従来 InAs を成長する際は、0.2~0.3ML/s の比較的遅い成長速度で、V 族の割合を高くして成長していたが、厚膜成長を容易にする目的で、成長速度を 1ML/s まで増加させている。図 7 に示すように、成長速度を増加させると表面のうねりが大きくなる傾向が観察されたが、平坦性の高い膜は成長できる。また、XRD 測定の結果格子緩和度などに大きな差はみられなかった。高速成長が可能であることを見出したのは、成長時間の大幅な短縮につながり応用を見据えると意義のある成果である。

続いて、77K における電流電圧特性を図 8 に示す。暗電流条件においては InAs と GaAs を接合しているだけに関わらず、青線のように、逆方向順方向ともに、極めて高い耐圧特性を有することが分かった。順方向(電子が GaAs から InAs に流れる)において、約 1V の耐圧性があるのは、バンドギャップが大きく異なりオフセットの大きな InAs と GaAs が接合することにより、GaAs のバンドが大きく曲がりバリアを形成しているためと考えている。続いてここに、赤外線を照射した。赤外線は、セラミック光源から出る赤外光を 1.5 ミクロンのロングパスフィルターを通して照射している。赤外線を照射すると明確な光電流が観察された(赤線)。電圧の印加とともに、大きく増加している。暗電流はほぼゼロであるので、良好な感度特性といえる。なお、室温においても、暗電流は増加するものの明確な感度があることが確認されている。

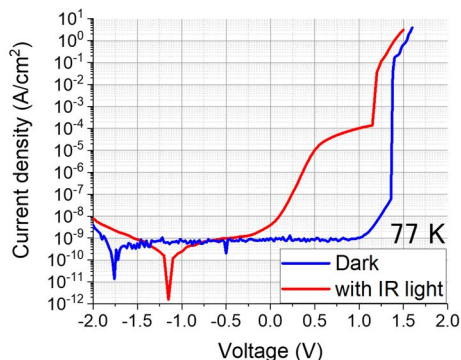


図 8 赤外線検出器の電流電圧特性。暗電流条件と赤外線照射時

図 9 に 100K における分光感度特性を示す。実験は、セラミック光源を分光器を通して試料に照射して、ロックイン測定により測定した。ドープした InAs のバンドギャップに相当する 3 ミクロン程度にカットオフを持つ明瞭な分光感度特性が観測された。量子効率の数%程度と十分に高いとは言えないが、暗電流が低いこと及び汎用で安価な GaAs 基板上に極めて簡便な手法で形成していることを考慮すると将来性の高い結果であると考えている。

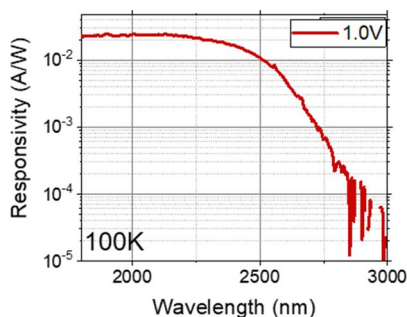


図 9 100K における分光感度特性

以上のように、貫通転位の問題より、若干の軌道修正は行うことになったが、GaAs 基板上の拡張赤外検出器の実現に向けて、極めて有望な成果を得ることができた。

(3) その他の副次的成果

その他、(111)A 上の格子不整合材料系の研究として、InAlAs/InP(111)A 上の InAs 量子ドット形成の実験も行い、格子歪と拡散現象のバランスにより、極めて興味深い逆 S-K 量子ドット形成のようなモードが起きること明らかにした。通常の砒素分子線照射下においては、前述の InAs/GaAs と同様に、界面で格子不整合転位が形成されて、二次元成長が継続して量子ドットができないことが知られている。しかし、液滴エピタキシーより InAs 量子ドットを強制的に作製すると、そこから InAs が流れ出して濡れ層のような二次元層が量子ドットの周りに形成しされて歪エネルギーが安定化され、量子ドット形状が保持されることが明らかとなった。この成果に関しても、通信波長帯量子光源実現に向けてさらに継続している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ohtake Akihiro, Mano Takaaki, Sakuma Yoshiki	4. 巻 10
2. 論文標題 Strain relaxation in InAs heteroepitaxy on lattice-mismatched substrates	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 4606-1-4606-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-61527-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Mano Takaaki, Ohtake Akihiro, Ha Neul, Noda Takeshi, Sakuma Yoshiki, Kuroda Takashi, Sakoda Kazuaki	4. 巻 21
2. 論文標題 Annealing-Induced Structural Evolution of InAs Quantum Dots on InP (111)A Formed by Droplet Epitaxy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 3947 ~ 3953
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.cgd.1c00276	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 間野高明、大竹晃浩、川津琢也、宮崎英樹、佐久間芳樹
2. 発表標題 InAs/GaAs(111)Aのメタモルフィック成長とその赤外線検出器応用
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 赤外線検出素子、その製造方法、および赤外線検出装置	発明者 間野高明、大竹晃浩、宮崎英樹、野田武司、佐久間芳樹	権利者 物質・材料研究機構
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-191169	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	大竹 晃浩 (OHTAKE Akihiro) (30267398)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・主幹研究員 (82108)	
研究協力者	川津 琢也 (KAWAZU Takuya) (00444076)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・主任研究員 (82108)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関