

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 4日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22560328

研究課題名(和文) 希土類添加窒化物半導体を用いた集積型微小光源の開発とナノシステムへの応用

研究課題名(英文) Rare-earth doped gallium nitride semiconductor light emitting device and their application

研究代表者

岡田 浩 (OKADA HIROSHI)

豊橋技術科学大学・エレクトロニクス先端融合研究所・准教授

研究者番号：30324495

研究成果の概要(和文)：

窒化物半導体ヘテロ構造である AlGaIn/GaN 高電子移動度トランジスタ構造のチャンネル中にイオン注入法により希土類元素であるユーロピウム(Eu)を添加した新しい三端子型発光デバイスを開発した。電流注入発光スペクトルに希土類元素からの発光を確認した。集積型微小光源の開発に向けたプロセス開発や、光閉じ込め構造について検討した。この新しい発光デバイスの放射線耐性の優れた発光デバイスへの可能性を見出した。

研究成果の概要(英文)：

Novel three-terminal light emitting device based-on rare-earth (Eu) implanted AlGaIn/GaN high electron mobility transistor (HEMT) structure by ion-implantation process was investigated. In luminescence spectra by current injection of the fabricated device, clear peaks suggesting luminescence due to the transition of inner shell in rare-earth were confirmed. For system application of this light emitting device, their fabrication process and optical confinement were investigated. Potential for radiation hard light emitting device because of unipolar luminescence device was also investigated.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
2012年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子デバイス・電子機器

キーワード：窒化物半導体・発光デバイス・希土類元素・高電子移動度トランジスタ・イオン注入・ヘテロ構造

1. 研究開始当初の背景

微細加工技術の進展により、マイクロ、ナノ領域の光を操る技術が開発され、ナノバイオ分野のイメージング、情報処理分野における光コンピューティングの開発が注目されている。今後、微小領域の光を自在に操

る技術が確立し、機能を集積化したデバイスが実現できれば、イメージングのみならず、局所領域の光反応制御や、量子情報処理分野で新たな進展が期待できる。今日の技術では、レーザ光をミラーなど光学系で微小光とする手法が考えられるが、アセン

ブリッジ、低コスト化の問題や、さらにナノ領域の光分布を自在に制御することは困難であり、従来技術だけでは集積型微小光源実現の見通しはたっていない。

一方、半導体に希土類元素添加した発光デバイスの研究開発は長い歴史を有し、電流注入発光素子 (EL) や、レーザー応用を目指した展開が行われている。米国 Cincinnati 大学のグループでは、分子線エピタキシー法を用いて作製した Eu 添加 GaN において、光励起による Eu 準位を介した赤色レーザー発振といった報告や、我が国においても、阪大の藤原等のグループによる GaAs:Er,0 系の p-n 接合による発光デバイスや、名大の竹田等のグループによる希土類添加半導体薄膜の検討などが精力的に行われている。希土類元素の発光は、内殻遷移に基づくものであり、広い温度範囲での波長安定性や、優れた単色性を有するため、デバイス実現は、超安定なレーザや光アンプなど工学的に重要な課題である。

2. 研究の目的

本研究では、医療や分子生物学、量子情報など広い分野に応用可能な、新しい集積型微小光源を開発し、これを応用したナノシステムの試作を行う。提案する集積型微小光源は、ナノシステムに適合する小型化・集積化が可能という、従来の LED やレーザにはない特徴を有するため、この研究の推進により、高解像イメージングや、微小領域の光化学反応の制御による医療/生物分野への応用、量子デバイスとの融合による新しい量子情報システム構築など、新しい光応用技術の基盤が開発される。

申請者等のグループでは、かねてより窒化物半導体にイオン注入法により希土類元素を添加し、その発光特性を調べてきた。最近、AlGaIn/GaN の高電子移動度トランジスタ (HEMT) 構造に選択的にイオン注入した、独自の三端子型の発光デバイス提案、実現し、その発光特性を報告している。本グループのデバイスの特徴の1つは、他のグループが p-n 接合によるキャリア再結合過程を用いた発光原理であるのに対し、2次元電子ガス層の電子のみを用いている点である。発光デバイスの微細化で避けられない問題として、半導体素子の微細化によるキャリアの表面再結合の増大があり、現実に p-n 接合型の発光素子の微細化を阻害している。本グループ提案のデバイスは電子のみを用いるユニポーラデバイスであり、我々が提案する発光デバイスは微細化に最も適した構造と考えられる。また、光と単電子を融合した回路の大規模集積化には、使いやすい微小光源が必要である。おのおのの光源を制御できる集積型微小光源の実現

は、我々のグループの発光デバイスの技術の展開が適切であると考え、ナノシステムへの応用を視野にいたした研究の着想に至った。

3. 研究の方法

本研究課題では、ナノシステムに応用可能な集積型の微小発光デバイスの実現に向け、申請者等が独自に開発した希土類元素を添加した窒化物半導体発光トランジスタに着目し検討を行った。トランジスタ構造を所属機関にて行い、日本原子力研究所の実験施設において希土類元素のイオン注入を行った。作製したデバイスなど試料の評価を行い、以下の点について検討した。

- (1) 希土類元素添加三端子型発光デバイスのための AlGaIn/GaN 系ヘテロ構造の検討
- (2) GaN 系高電子移動度トランジスタ (HEMT) 構造への Eu 希土類元素のイオン注入条件およびデバイス作製プロセスの検討
- (3) 窒化物半導体発光デバイスを用いたシステム応用の検討

4. 研究成果

本研究の研究成果は大きく3つに大別することができる。以下にそれぞれの要点を記す。

- (1) 希土類元素添加三端子型発光デバイスのための AlGaIn/GaN 系ヘテロ構造の検討

本研究が目指す、希土類元素を窒化物半導体などのワイドバンドギャップ半導体に添加した構造は、希土類元素の内殻準位間の遷移を利用した温度変化に対しても波長安定性を有する発光が得られ、工学的に有用な新しい発光素子が期待できる。本研究では、電流注入発光素子の開発を目指して、AlGaIn/GaN の高電子移動度トランジスタ (HEMT) 構造のチャンネルに、選択的に Eu イオンをイオン注入するデバイス構造を提案し (図1) その効率的な電流注入発光を実現にむけた AlGaIn/GaN ヘテロ構造について検討した。

まず、Eu のイオン注入量、加速電圧などの注入条件と、発光素子の電気的特性および発光特性の関連について検討した。イオン注入した試料の van der Pauw 法によるホール効果測定から、シートキャリア濃度は Eu 注入量 $10^{14} \sim 10^{16} \text{cm}^{-2}$ に対して大きな変化はみられず、電子移動度はドーズ量の増加とともに

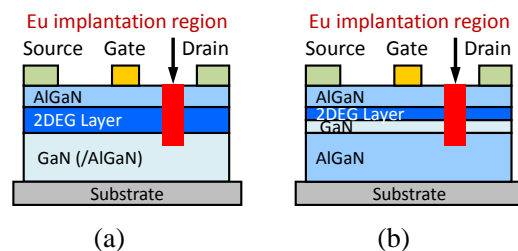


図1 本研究で検討した三端子型発光デバイス構造の断面模式図。(a)シングルヘテロ型構造および(b)ダブルヘテロ型構造。

低下した。すなわち、Eu 注入によるコンダクタンスの低下は、主としてキャリア移動度の低下によるものであることが分かった。電子移動度は Eu 注入量の増大とともに減少した。適切な注入量の設定により、注入領域の高抵抗化による電界集中が生じ、バイアスにより加速された電子による Eu イオンの衝突励起発光を引き起こすと考えられる。

イオン注入法による希土類元素添加に用いる半導体母材構造と、イオン注入条件の関連について検討を行った。本研究で提案する電流注入発光素子では、電極からの電流がイオン注入法により添加した希土類元素を効率的に励起し、発光を得ることが必要である。電子デバイスとして一般的に用いられている AlGaIn/GaN の高電子移動度トランジスタ (HEMT) 構造であるシングルヘテロ構造が基本構造として考えられるが、シングルヘテロ構造では電流の閉じ込めが 2 次元電子ガス層の上側のみであり、イオン注入により生じた高抵抗領域の下側を流れる可能性がある。このような発光に寄与しない電流成分を削減し、効率を上げる方策として、電流の通電領域を構造的に制限する AlGaIn/GaN/AlGaIn のダブルヘテロ構造について素子 (図 1 (b)) を作製し、その特性を調査した。

ダブルヘテロ構造を用いた発光デバイス作製では、Eu イオン注入後にシングルヘテロ構造に比べて明らかな高抵抗化が生じ (図 2)、ダブルヘテロ構造の採用により、電流狭窄効果が得られることが示された。また、照射エネルギーの依存性からは、Eu 注入量の深さ分布が浅くなる低加速エネルギーでは、極端な高抵抗化が生じ、Eu 注入ピークがチャンネル層になるような加速エネルギーを選択すること、注入量依存性からは、注入量増加とともにチャンネルの高抵抗化が生じ、電流注入発光に不適切であることがわかった。これを加味して注入量をさらに減少させて高抵抗化を避けたダブルヘテロ構造においても電流励起による明確な発光が観測されなかった。この原因は明らかではないが、抵抗を下げるために希土類元素の添加量を低減させたことが発光の低下につながったことや、ダブルヘテロ構造の場合は、発光特性が得ら

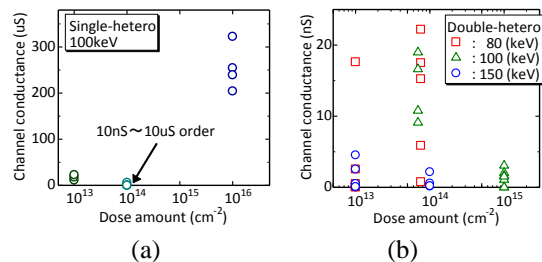


図 2 (a) シングルヘテロ構造および (b) ダブルヘテロ構造の Eu イオン注入後のチャンネルコンダクタンス。

れているシングルヘテロ構造に比べてデバイス中の電流通電領域が数 10nm の厚さに制限されており、イオン注入時に導入された欠陥の影響を受けやすくなっていることなどが考えられる。

(2) GaN 系高電子移動度トランジスタ (HEMT) 構造への Eu 希土類元素のイオン注入条件およびデバイス作製プロセスの検討

前項でえたイオン注入条件をもとに作製したデバイスを作製し、電流注入発光特性を評価した。図 3 に示すように、ソースドレイン間バイアス $V_{DS}=100V$ により注入部分に赤色発光が得られ、注入量の増加とともに明確な赤色発光が認められた。発光強度にはトランジスタのチャンネル中のイオン注入領域の位置依存性がみられ、GaN 系トランジスタ特有のバーチャルゲート効果が作用している可能性を見出した。EL 発光のスペクトル分析から、Eu イオンの内殻遷移 ${}^5D_0 \rightarrow {}^7F_2$ に対応する 620nm 付近にピークをもつスペクトルが得られ、作製したデバイスにおいて希土類元素、すなわち Eu からの発光が得られていることを示した。すなわち、希土類元素を添加したトランジスタ型の発光デバイスでの希土類発光動作を世界で初めて実証した結果が得られた。

また、GaN への Eu の添加方法として結晶成長時に Eu を添加した発光素子についても検討を行い、特に、希土類元素添加層に Mg を共添加した層において、Eu からの効率の良い発光が得られることを実験的に示し、p-n 接

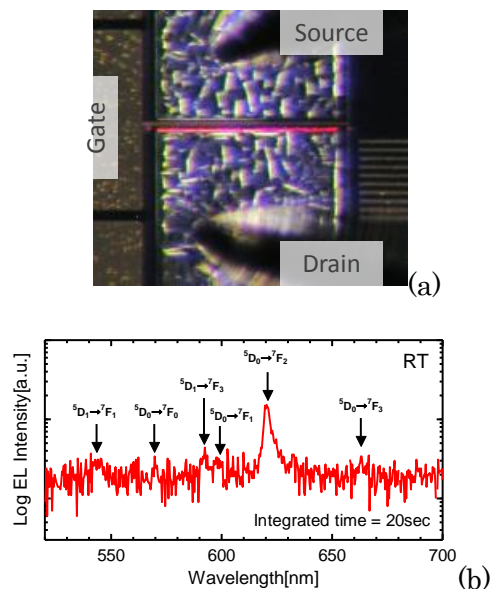


図 3 Eu 添加三端子型発光デバイスの (a) 発光写真 (赤く棒状に見える部分がデバイスからの発光) と、(b) 発光スペクトル。波長 620nm に希土類元素 Eu の ${}^5D_0 \rightarrow {}^7F_2$ 内殻遷移に対応する発光ピークが観測された。

合を形成した LED 構造においても電流注入発光を確認した。ここで得られたスペクトルは、イオン注入法によって観測されたピーク位置と異なっており、Mg 共添加により発光中心である GaN 中の Eu の周辺構造が変化していることが示唆された。

(3) 窒化物半導体発光デバイスを用いたシステム応用の検討

提案している発光素子は希土類元素の内殻遷移に基づく発光であり、原子からの発光という究極的な点光源になる可能性がある。発光素子はマイクロオーダーの発光領域をもつデバイスについて検討してきたが、さらなる微細化にむけたデバイス作製プロセスの検討を行った。特に提案構造ではイオン注入を用いるため、イオン注入のプロセスへの影響を考慮する必要がある。一般的に GaN 結晶は優れた化学的安定性を有するかは未知であり、実際に実験検討を行った。イオン注入による注入損傷が Eu をイオン注入した窒化物半導体表面は注入後の熱処理により結晶性を回復し、バッファードフッ酸 (BHF) やアルカリ系現像液に対しては化学的安定性を維持するが、硫酸と過酸化水素水混合液に浸漬するとエッチングが生じることを見出し、良好な発光特性を得るにはこれを避けた半導体プロセスが重要であることを見出した。

シリコン集積回路との一体化する光源としての応用を見据え、誘電体多層膜を用いた分布ブラッグ反射鏡構造を用いた光閉じ込めについても検討した。提案している発光デバイスの 620nm 近傍での発光はシリコンホトダイオードで検出可能な波長域であり、光電子集積回路への応用が期待できる。また、シリコン集積回路との一体化について、発光ダイオードとシリコン制御回路を一体化するデバイスや、GaN 光検出回路とシリコン信号処理回路の一体化についての検討も行った。

本課題で検討した発光デバイスは、希土類元素の内殻準位の遷移に基づく発光を利用するものであり、希土類元素の励起にはトランジスタのキャリアである電子を用いる。この点は従来の半発光ダイオード (LED) が電子-正孔対の再結合に基づいている点と異なる。提案デバイスの特徴は、ナノ光源の実現において、電子のみの閉じ込め構造の設計を考えればよいという利点のほかに、希土類元素の内殻遷移に基づく発光は放射線照射損傷の影響を受けにくく、放射線耐性の高い発光デバイスになる可能性がある。しかし、発光デバイスのベースとなる AlGaIn/GaN のトランジスタ自身の放射線照射効果についてはまだ不明確な点がある。本研究では、窒化物半導体の HEMT 構造プロトン照射実験を行ってホール効果測定に基づく評価を行った (図 4)。同様な陽子線照射に

ついては、LED 構造への照射では 1×10^{13} の照射によって発光特性の劣化が報告されており、申請者らもホトルミネセンス (PL) 測定でも同様の結果を報告している。今回の結果ではより高い照射量に対してもキャリア濃度の低下は見られていない。陽子線照射による欠陥は GaN 中の正孔に影響し、電子-正孔を用いる LED などのバイポーラーデバイスには敏感に照射効果が表れるのに対し、HEMT のようなユニポーラーデバイスでは、多数キャリアである電子への陽子線照射効果が表れにくいことが考えられる。つまり、本研究で提案するトランジスタに希土類元素を添加した発光デバイスは、電子のみをキャリアとして用いるため、従来の LED やレーザーに比べて高い放射線耐性を有する可能性があることを見出した。

以上のように本研究では Eu を添加した三端子型発光デバイスにおいてトランジスタ型の発光デバイスにおいて、希土類元素からの発光を実証するデータを得るとともに、イオン注入によるトランジスタのチャンネル中への不純物添加という独創的なプロセスを応用したデバイスプロセスについて、実験に基づいた指針を得た。さらに、耐放射線性に優れた発光デバイスへの可能性を示した。

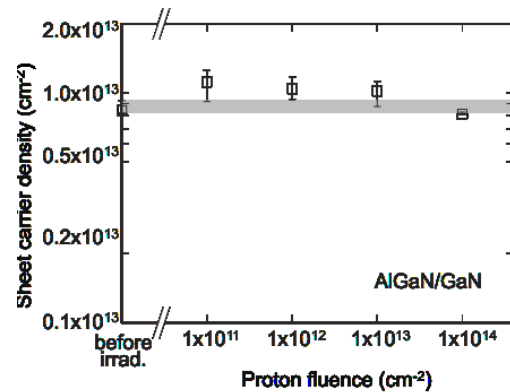


図 4 AlGaIn/GaN HEMT のシートキャリア濃度のプロトン照射量依存性

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 7 件)

- ① C.Y.Lee, F.Matsuno, Y.Hashimoto, H.Okada, K.Sawada, and A.Wakahara, Intelligent Ultraviolet Sensor Composed of GaN-Based Photodiode and N-Channel Metal Oxide Semiconductor Si-Charge Transfer Type Signal Processor, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, Vol.51, 2012, 044101

- ② A. Abderrahmane, S. Koide, T. Tahara, S. Sato, T. Ohshima, H. Okada and A. Sandhu, Effect of Proton Irradiation on 2DEG in AlGaIn/GaN Heterostructures, Journal of Physics Conference Series, 査読有、433、2013、012011
- ③ Abdelkader Abderrahmane, Shota Koide, Shin-Ichiro Sato, Takeshi Ohshima, Adarsh Sandhu, and, Hiroshi Okada, Robust Hall Effect Magnetic Field Sensors for Operation at High Temperatures and in Harsh Radiation Environments, IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS, 査読有、Vol.48、2012、pp. 4421-4423
- ④ H. Okada, A. Abderrahmane, S. Koide, H. Takahashi, S. Sato, T. Ohshima and A. Sandhu, Effects of Proton Irradiation on the Magnetoelectric Properties of 2DEG AlGaIn/GaN Micro-Hall Sensors, Journal of Physics Conference Series, 査読有、Vol.352、2012、012010
- ⑤ S. B. Shin, K. Iijima, J. Chiba, H. Okada, S. Iwayama, and A. Wakahara, Integration of Micro-Light-Emitting-Diode Arrays and Silicon Driver for Heterogeneous Optoelectronic Integrated Circuit Device, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、Vol.50、2011、04DG12
- ⑥ Yasufumi Takagi, Takanobu Suwa, Hiroto Sekiguchi, Hiroshi Okada, and Akihiro Wakahara, Effect of Mg codoping on Eu³⁺ luminescence in GaN grown by ammonia molecular beam epitaxy, Applied Physics Letters, 査読有、Vol.99、2011、171905
- ⑦ 近藤正樹、秦貴幸、岡田浩、若原昭造・古川雄三、Eu 添加 AlGaIn/GaN HEMT 構造を用いた発光素子の検討、電子情報通信学会技術研究報告、査読無、SDM・シリコン材料・デバイス 110 巻、2010、pp. 11-16 [学会発表] (計 15 件)
- ⑧ H. Okada, S. Koide, S. Sato, T. Ohshima and A. Sandhu, Robust Hall effect magnetic field sensors for operation at high temperatures and in harsh radiation environments, International Magnetics Conference, INTERMAG 2012、2012 年 5 月 11 日、バンクーバー (カナダ)
- ⑨ H. Okada, K. Kumagai, T. Kawai, H. Sekiguchi, and A. Wakahara, Development of Lattice-Matched GaPN/ AlGaPN DBR on Si, IEEE Photonics Conference 2012、2012 年 9 月 27 日、サンフランシスコ (米国)
- ⑩ 関口寛人, 大谷龍輝, 高木康文, 岡田浩, 若原昭造, Mg 共添加による GaN:Eu の発光特性向上のメカニズム、第 59 回応用物理学関係連合講演会、2012 年 3 月 17 日、東京
- ⑪ 大谷龍輝, 松村亮太, 関口寛人, 高木康文, 岡田浩, 若原昭造, NH₃-MBE 法による GaN:Eu LED の発光特性、第 59 回応用物理学関係連合講演会、2012 年 3 月 17 日、東京
- ⑫ 近藤正樹, 岡田浩, 関口寛人, 若原昭造, 佐藤真一郎, 大島武, 希土類添加 III 族窒化物半導体を用いた三端子型発光デバイスの作製(4)、第 59 回応用物理学関係連合講演会、2012 年 3 月 16 日、東京
- ⑬ M. Kondo, T. Hata, H. Okada, A. Wakahara, S. Sato, and T. Ohshima, Eu selective doped light emitting transistor based on AlGaIn/GaN heterostructure, Asia-Pacific Interdisciplinary Research Conference 2011、2011 年 11 月 18 日、豊橋
- ⑭ Hiroshi Okada, Takanobu Suwa, Yasufumi Takagi, Hiroto Sekiguchi, and Akihiro Wakahara, Effects of Mg co-doping on Eu site in GaN by NH₃-MBE, International Conference on Nitride Semiconductors 2011、2011 年 7 月 11 日、Glasgow (英国)
- ⑮ T. Suwa, Y. Takagi, H. Sekiguchi, H. Okada, A. Wakahara, Effect of Nitrogen Source on Doping Properties of GaN:Eu Grown by MBE, 3rd International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials、平成 23 年 3 月 6 日、名古屋
- ⑯ 岡田浩、秦貴幸、近藤正樹、若原昭造、古川雄三、大島武、佐藤真一郎、AlGaIn/GaN 発光デバイスの希土類イオン注入条件についての検討、第 5 回高崎量子応用研究シンポジウム、平成 22 年 10 月 14 日、高崎
- ⑰ 近藤正樹、秦貴幸、岡田浩、若原昭造、古川雄三、佐藤真一郎、大島武、AlGaIn/GaN 発光デバイスの希土類イオン注入条件についての検討、電子情報通信学会シリコン材料・デバイス研究会、平成 22 年 5 月 13 日、浜松
- [その他]
<http://www.int.ee.tut.ac.jp/oeg>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡田 浩 (OKADA HIROSHI)

豊橋技術科学大学・エレクトロニクス先端融合研究所・准教授

研究者番号：30324495

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

若原 昭浩 (WAKAHARA AKIHIRO)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：00230912