

研究種目：基盤研究(S)
 研究期間：2004～2008
 課題番号：16106001
 研究課題名（和文） 加工シリコン基板上への窒化物半導体の選択再成長法によるナノヘテロ構造の創製
 研究課題名（英文） Selective epitaxial growth of nitride nano-hetero structures on patterned silicon substrate
 研究代表者
 澤木 宣彦 (SAWAKI NOBUHIKO)
 名古屋大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号：70023330

研究成果の概要：

加工 Si 基板上への選択 MOVPE 法により、(0001)、(1-101)、(11-22)ならびに(11-20)面を有する AlGaIn/GaN、GaIn/InGaIn 微細ヘテロ構造を作製した。この構造は自然形成原理に従って形成されるため、表面平坦性、結晶性に優れることを明らかにした。特に、窒素を最表面とする(1-101)半極性面 GaN は不純物ドーピング特性に優れ、Mg ドーピングで高い正孔濃度が得られ、炭素ドーピングでも p 形伝導が得られることを明らかにした。Si 基板上に半極性 GaN-LED とストライプレーザ構造を作製し、光集積デバイスのためのナノヘテロエピタキシの有効性を実証した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2004年度	53,800,000	16,140,000	69,940,000
2005年度	10,700,000	3,210,000	13,910,000
2006年度	8,700,000	2,610,000	11,310,000
2007年度	10,600,000	3,180,000	13,780,000
2008年度	5,400,000	1,620,000	7,020,000
総計	89,200,000	26,760,000	115,960,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：窒化物半導体、ナノヘテロ構造、MOVPE、選択成長、不純物ドーピング

1. 研究開始当初の背景

GaN は主として(0001)サファイア基板上に作製されていたが、光デバイスの高度化のため、欠陥の低減、p 形不純物の高濃度化、Si 等異種基板上への半極性、無極性面を有する窒化物ヘテロ構造の作製法の開発が望まれていた。特に、ヘテロ構造を有する光デバイスを作製する際にヘテロ界面に発生する分極電界の抑制のため、(0001)面とは異なる面上へのデバイス作製技術の確立が渴望されていたが、その不純物ドーピング特性は未踏の研究テーマであった。他方、窒化物結晶は

物理的・化学的堅牢なため加工技術が未熟でその微細加工技術は未踏の分野であった。

2. 研究の目的

加工を施したシリコン基板上への選択成長法により、GaN 微細単結晶（多面体）を自然形成原理に従って成長させ、これを用いた窒化物半導体ナノヘテロ構造による高温でも量子効果が発現する新規光・電子デバイスのシリコン基板上での実現を目標とし、(1)ファセット面上での窒化物系ヘテロ構造の形成過程の理解とその制御手法の確立、(2)

窒化物結晶ファセット面上における欠陥生成と不純物ドーピング機構の理解、(3)窒化物微細ヘテロ・量子井戸構造の作製法の提案とナノ情報デバイスへの適用性の明示、を具体的な研究課題とした。

3. 研究の方法

(1)窒化物結晶はファセット面により成長条件が大きく異なる。減圧 MOVPE 装置を購入し、成長温度、成長圧力、V/III比等を精密に制御しながらファセット特有の成長条件、不純物導入条件を精査すると共に、GaN/Si 成長における緩衝層の役割を検証し、その最適化を図ると共に、ヘテロ界面に寄生する欠陥（ミスフィット転位、積層欠陥）の低減効果を、TEM、REM、CL、XRD 法により評価した。

(2)成長用基板として(111)Si 基板の他、(001)、(311)並びに(110)Si 基板をもちい、それぞれの面に異方性エッチングを施して、微細(111)ファセット面を作製し、その上への GaN 選択成長を試みた。GaN 結晶の成長は常に Si の <111>軸に沿って成長するが、成長用基板によって基板面に平行な結晶面が異なり、よって、(0001)面とは異なる窒化物ファセット面が得られた。

(3)窒化物結晶はファセット面により最表面の構成元素（及びその構造）が異なるため、不純物ドーピング特性の面依存性を精査した。

4. 研究成果

(1)ファセット面上での窒化物系ヘテロ構造の形成過程の理解とその制御手法の確立

①GaN/Si 界面における AlN 緩衝層はマイクロピラミッドを形成し欠陥低減に寄与していること、Ga と Si との反応抑制に AlInN が有効であることを明らかにし、HVPE 成長で 200nm を越える厚膜の成長を達成した。

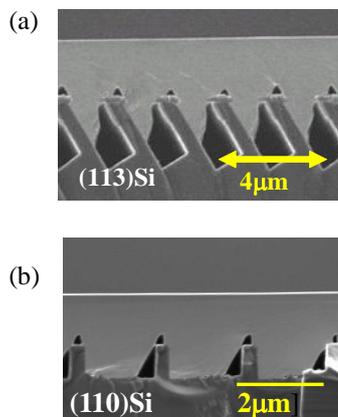


図 1. (a)(113)Si 基板上(11-22)GaN と (b)(110)Si 基板上(11-20)GaN の断面 SEM 像

②ファセット面上での成長条件を精査することによりファセット固有の成長条件を見出し、傾斜(001)Si 基板上への(1-101)GaN、(113)Si 上への(11-22)GaN、(110)Si 上への(11-20)GaN の選択成長法を確立した。

③ファセット面上への GaN 成長において、1%を超えない Al を混入すると格子歪みが著しく低減されることを見出した。

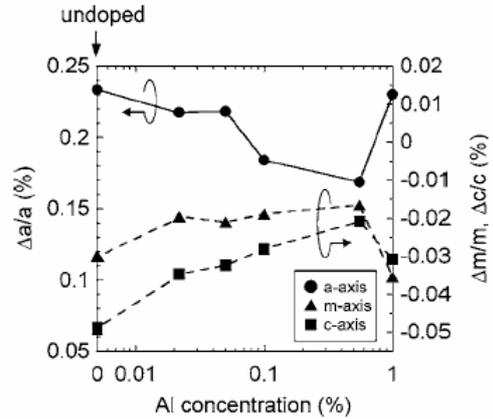


図 2.(001)Si 基板上に成長した(1-101)GaN 結晶の格子歪みの Al 濃度依存性

④マイクロファセット面上への AlGaIn、InGaIn 混晶の成長を行い、その組成並びに膜厚不均一性を評価した。リッジ成長（膜厚不均一）は化学種の気相中の拡散現象によるもので、組成不均一性は化学種のファセット面上での表面拡散によるものであること、Ga の拡散現象が支配的決定要因であること、減圧成長により拡散長が著しく長くなることを見出した。また、化学種の拡散長は最表面の結晶構造により左右され、ファセットによって異なること、(0001)面上に比べて、非極性ファセット面上では化学種の拡散長が著しく長いことを見出された。

(2)ファセット面上への不純物ドーピング機構の理解

①最表面が窒素で終端された(1-101)面 GaN の成長では、炭素が窒素を置換し、浅いアクセプタとして活性化し高濃度の p 形層が得られることを明らかにした。

②同上(1-101)GaN 成長において Si は Ga を置換し浅いドナー準位を形成することを明らかにした。

③Mg は(1-101)GaN において Ga を置換し浅いアクセプタ準位を形成すること、自己補償効果が小さく(0001)GaN に比べて一桁高い正孔濃度が得られることを明らかにした。また、表面偏析現象は(0001)面に比べて弱いことを明らかにした。これは(1-101)面が窒素終端面であるためと予想された。

④Mg ドープ p 形試料のフェムト秒分光で光

励起キャリアのエネルギー緩和過程を評価したところ、価電子帯頂上近傍に不純物帯の存在が示唆され、不純物準位の不規則性に基づく数 ps の短い緩和時間が見出された。

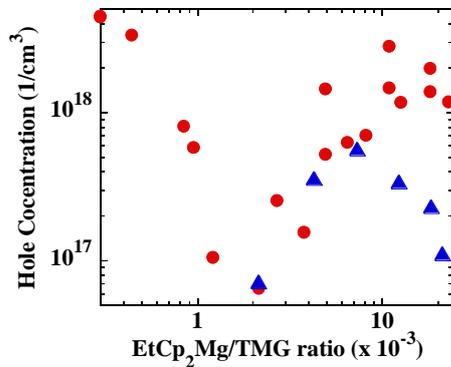


図 3. (1-101)および(0001)GaN の Mg ドーピング特性：非極性面では高いドーピング濃度でも正孔濃度の飽和効果が弱く、優れたドーピング特性が得られる。

(3)窒化物微細ヘテロ・量子井戸構造の作製法の提案

- ①MOVPE 成長における化学種の拡散長と同程度のサイズを有するファセット面上にヘテロ構造を作製すると、サイズにより組成、膜厚の制御が可能であることを明らかにした。また、Si 基板上に作製するトレンチを浅くすることで GaN 量子細線が作製できることを実証した。
- ②Si 基板上で GaN の c 軸を傾けることにより、熱膨張係数差に起因する歪みが低減されクラックフリーで低欠陥の試料が得られることを実証した。これは、ウルツ鉱構造である GaN の熱膨張係数が C 軸方向とそれに垂直尚方向とで大きく異なるためである。
- ③(1-101)GaN 上の化学種の拡散長は(0001)面上に比べて長いため、GaN/AlGaN、GaN/InGaN ヘテロ多層構造では混晶組成の不均一性が小さく、急峻なバンド端吸収特性を示すことを明らかにした。同構造を有するストライプ上に作製した導波路は優れた光学利得を示し、光励起による誘導放出が得られた。
- ④半極性(1-101)GaN 並びに半極性(11-22)GaN 面上に InGaN/GaN 量子井戸構造を作製し、これを活性層とする LED を試作した。p 形層としては、Mg ドープ層の他、炭素ドーピング層を用いた。両試料共にレッドシフトの小さな良好な発光特性を示した。

(4)次世代の光電子集積デバイス、Si ホトニクス等の分野で Si 基板上への光デバイス作製技術の高度化が渴望されている。本研究成果

は、Si 基板上の任意の位置に任意の大きさの光デバイスを作製する技術を提供するものであるが、特に、Si 基板上で半極性(1-101)、(11-22)GaN と無極性(11-20)GaN の成長を実証した点で、世界の窒化物関係研究者に大きなインパクトを与えた。

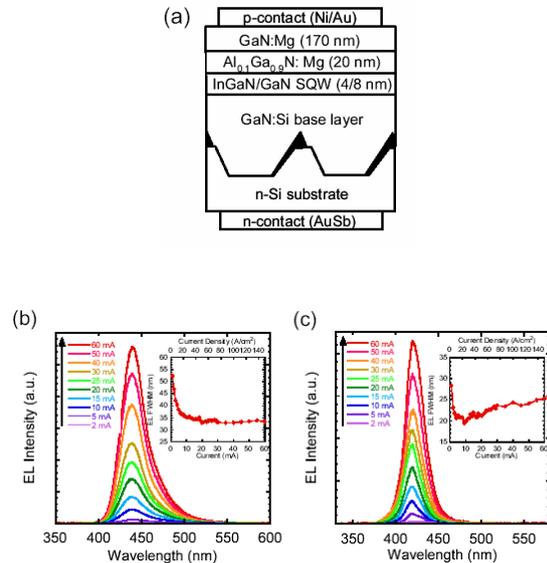


図 4. (001)および(113)Si 基板上に選択成長させた(1-101)および(11-22)GaN を用いて作製した半極性 GaN-LED の構造(a)と発光スペクトル(b : (1-101)),(c : (11-22)).

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 43 件)

- (1) "Growth and properties of semi-polar GaN on a patterned silicon substrate," N.Sawaki, T.Hikosaka, N.Koide, Y.Honda, M.Yamaguchi and T.Tanaka, J. Crystal Growth, 査読有, Online 14 Jan. doi.10.1016 (1-8pp) (2009).
- (2) "Growth of non-polar (11-20)GaN on a patterned (110)Si substrate by selective MOVPE," T.Tanikawa, D.Rudolph, T.Hikosaka, Y.Honda, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, J. Crystal Growth, 査読有, 310, 4999-5002 (2008).
- (3) "Fabrication and properties of semi-polar (1-101) and (11-22)InGaN/GaN MQW light emitting diode on patterned Si substrates," T.Hikosaka, T.Tanikawa, Y.Honda, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, phys. sta. sol.(c) 査読有, 5, 2234-2237 (2008).
- (4) "Growth of semi-polar (11-22)GaN on a (113)Si substrate by selective MOVPE," T.Tanikawa, T.Hikosaka, Y.Honda, M.Yamaguchi

- and N.Sawaki, phys. sta. sol.(c) 査読有, 5, 2966-2968 (2008).
- (5) "Al doping in (1-101)GaN films grown on patterned (001)Si substrate," T.Hikosaka, Y.Honda, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, J. Appl. Phys. 査読有, 101, 103513(1-5pp) (2007)
- (6) "Transport properties of the two-dimensional electron gas in Al_xGa_{1-x}N/GaN heterostructures," X.X.Han, Y.Honda, T.Narita, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, J. Phys.:Condens. Matter 査読有, 19, 046204 (1-11pp) (2007).
- (7) "Mg doping in (1-101)GaN grown on a 7-degree-off oriented (001)Si substrate by selective MOVPE," T.Hikosaka, N.Koide, Y.Honda, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, J. Crystal Growth 査読有, 298, 207- 210 (2007).
- (8) "Series resistance of n-Si/AlGa_xN/GaN structure grown by MOVPE," Y.Honda, S.Kato, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, phys. stat. sol. (c) 査読有, 4, 2740-2743 (2007)
- (9) "p-type conduction in a C-doped (1-101)GaN grown on a 7-degree-off oriented(001)Si substrate by selective MOVPE," T.Hikosaka, N.Koide, Y.Honda, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, phys. stat.sol. (c) 査読有,3, 1425-1428 (2006).
- (10) "Growth and optical properties of InGa_xN/GaN quantum well on a (1-101) facet," T.Narita, Y.Honda, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, phys. stat. sol. 査読有, 2, 2349-2352 (2005).
- (11) "Optical and electrical properties of (1-101)GaN grown on a 7° off-axis (001)Si substrate," T.Hikosaka, T.Narita, Y.Honda, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, Appl. Phys. Lett. 査読有, 84, 4717-4719 (2004).
- [学会発表] (計 76 件)
- (1)"Selective MOVPE of III-nitrides and device fabrication on an Si substrate," N.Sawaki, (Invited)," N.Sawaki, POEM2008, Wuhan, Nov.24-27, OEDI-4-24 (2008).
- (2)"Compound semiconductors- The crystal growth and creation of new functions-(Plenary)," N.Sawaki, EMS-27, Izu, July 9-11, 1-2 (2008).
- (3)"Growth and properties of semi-polar GaN on a patterned silicon substrate (Invited)," N.Sawaki, T.Hikosaka, N.Koide, Y.Honda, and Yamaguchi, ISGN-2, Izu, July,7-9. I-Tu-2, (2008).
- (4) 「加工シリコン基板上への半極性 GaN の選択成長と物性」彦坂年輝、谷川智之、本田善央、山口雅史、澤木宣彦、JSPS-162 研究会、川口屋リバーサイドホテル, Dec.10 (2007)
- (5) 「窒化物半導体材料とデバイスの将来展

- 望(プレナリー)」澤木宣彦, SiC および関連ワイドギャップ半導体研究会, 愛知県女性総合センター, Nov.29-30, I-3 (2007)
- (6)"Energy relaxation process of photo-generated carriers in Mg doped (0001)GaN and (1-101)GaN," J.Saida, E.H.Kim, T.Hikosaka, Y.Honda, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, ICNS-7, Las Vegas, Sept.16-21. WP102 (2007).
- (7)"Time-resolved spectroscopy in an undoped GaN (1-101)," E.H.Kim, T.Hikosaka, Y.Honda, M.Yamaguchi, and N.Sawaki, HCIS-15 Tokyo, July 23-27, MoP6 (2007).
- (8) 「超高压 STEM-EBIC による GaN/Si 界面の電気的特性の解析」青山健太郎, 田中成泰, 市橋幹雄, 本田善央, 澤木宣彦, 第 54 回応用物理学関係連合講演会, 青山学院大学, March 27-30, 30p-SH-3 (2007).
- (9)"Acceptor Level due to Carbon in a (1-101)AlGa_xN," N.Sawaki, N.Koide, T.Hikosaka, Y.Honda, and M.Yamaguchi, 28th ICPS, Wien July 24-28, FrM2h.17 (2006).

[産業財産権]

- 出願状況 (計 1 件)
- 名称: 窒化物半導体構造およびその製造方法
 発明者: 澤木宣彦、本田善央、彦坂年輝、谷川智之
 権利者: 国立大学法人名古屋大学
 種類: 特許権
 番号: 特許公開 2008-305977
 出願年月日: 平成 19 年 6 月 7 日
 国内外の別: 国内

6. 研究組織

- (1)研究代表者
澤木 宣彦 (SAWAKI NOBUHIKO)
 名古屋大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号: 70023330
- (2)研究分担者
山口 雅史 (YAMAGUCHI MASAHITO)
 名古屋大学・大学院工学研究科・准教授
 研究者番号: 20273261
田中 成泰 (TANAKA SHIGEYASU)
 名古屋大学・エコトピア科学研究所・准教授
 研究者番号: 70217032
本田 善央 (HONDA YOSHIO)
 名古屋大学・大学院工学研究科・助教
 研究者番号: 60362274