

令和元年6月19日現在

機関番号：17601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06305

研究課題名(和文) 光センシング用半導体素子の適用波長域を拡大させる新規材料と転位制御の研究

研究課題名(英文) Study on crystal growth and dislocation control for wide band optical sensing devices

研究代表者

荒井 昌和 (Arai, Masakazu)

宮崎大学・工学部・准教授

研究者番号：90522003

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：ガスのレーザガスセンシングの応用には波長2.5から5ミクロン帯の半導体レーザや高感度な受光素子が必要となる。本研究では有機金属気相成長法を用いて、InAs基板上にInAs/GaSb超格子を作製し、2.5から5ミクロンまでの明瞭なフォトルミネッセンススペクトルを確認した。また、GaSb成長時のAsの混入を様々な膜厚の試料作製とX線回折により、推定する方法を提案、実証した。GaAs基板上にInAs/バッファ層を成長する際の成長温度を調整することや、2段階に分けて成長することで平坦性が大幅に改善する方法を提案した。これにより、GaAs基板上においても中赤外波長域の発光を確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では量産性に優れた有機金属気相成長法で超格子構造を作製する際のV族材料の混入を推定し、抑制する方法を提案した。これにより、波長2.5から5ミクロン帯のレーザ、受光素子の大量生産が可能となる。高い精度で組成変化を制御できるため、超格子の歪を低減し、信頼性の高いデバイス作製が可能となる。また、高価なInAs基板ではなく、GaAs基板にも超格子を作製するためのバッファ層の高品質化も行った。これにより低価格化が可能となる。これらの技術はガス漏れや一酸化炭素中毒などを防止する小型のセンサ実現に有望と考えられる。

研究成果の概要(英文)：There are many absorption lines of gases such as carbon oxide, carbon dioxide and hydrocarbon gasses corresponding to the molecular vibration in the mid-infrared range from 2 to 5 μm in wavelength. Therefore optical gas sensing is possible using mid infrared lasers and detectors. We investigated the growth condition of InAs/GaSb type II superlattice using metalorganic vapor phase epitaxy. We tested the x-ray diffraction of various fabricated samples and determined the time constant of residual gasses in reactor. Also, we optimized growth condition of InAs buffer on GaAs substrate and realized flat virtual InAs substrate. Clear photoluminescence peak in 3 micron range was observed on GaAs substrate, successfully.

研究分野：工学

キーワード：電子デバイス

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

光ファイバ通信分野での波長帯域の開拓の観点や、近～中赤外域の環境ガスや医療用途（非侵襲血糖測定や OCT など）での光センシング用光源として、広い波長帯域をカバーする多波長集積光源や波長可変光源の需要は大きい。高効率で小型の光源としては III-V 族半導体を用いた半導体レーザーが最も有望である。しかしながら、そのカバーする波長帯域は光増幅を行う活性層の材料のバンドギャップで決まるため、単一の活性層がカバーできる波長範囲はせいぜい 100 nm であった。また、波長 2.3 μm より長波長帯では、InP 基板上では InAs 量子井戸の臨界膜厚により制限され、実用化に至っていない。GaSb 基板上においても波長 2.5 μm 以上の実現は困難であった。量子カスケードレーザーは逆に波長 4 μm 以下の作製が困難であり、2.5~4 μm 帯を範囲をフルカバーするレーザー光源は無かった。図 1 のようにこの波長帯には二酸化炭素、塩化水素、炭化水素系ガス、硫化水素などの吸収があるため、この波長帯域の開拓が大きな課題であった。これを材料開発により解決することで携帯端末に入るサイズの超小型のガス検知器などが可能となる。

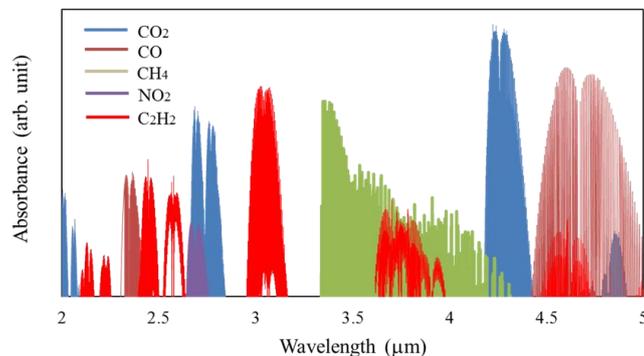


図 1 2~5 ミクロン帯に存在するガスの吸収線

2. 研究の目的

本研究ではガスや液体中の成分を光によりセンシングするための半導体レーザー光源の材料選択による制限を超えた波長帯域をカバーできる技術の確立を目指す。具体的には

- (1) 未踏波長の中赤外帯半導体レーザーに向けた長波長域拡大のための格子歪緩和成長技術の確立
- (2) 微量添加物や新構造検討による貫通転位低減、平坦化および中赤外への適用波長域の拡大

を軸に新材料・構造検討とデバイス技術により、環境ガス、医療（OCT、血糖など）応用を目指した光センシング技術の革新を目指す。

3. 研究の方法

従来の材料選択の制限を超えた波長域をカバーし、環境ガス、医療などへの光センシング用集積光源の実現を目指し、前項で掲げた 3 つの目標を達成すべく研究を行う。以下の順に検討する。

- (1) GaSb 基板上 InGaSb または InAsSb 格子歪緩和層の高品質成長検討および、InAsSb 混晶からなる量子井戸を作製し量子井戸の光学特性評価を行う。

事前の理論検討として、基板の格子定数毎に最もバンドギャップが小さい材料系の量子井戸とバンドギャップを最も大きくするクラッド層のバンドラインナップを計算し、中赤外域全般で優れた特性のレーザーを実現するための格子定数を算出する。その構造を実現するための格子定数を転位を導入した格子歪緩和層により実現する。この成長検討も平行して行う。

また、新たな試みとして、アンチモン系材料により原子番号の大きな V 族元素であるビスマスの添加も検討する。転位が発生する近傍への添加により転位発生や伝搬、平坦性改善する手法として探索する。この下地の上に中赤外の量子井戸を作製し、光学特性評価を行う。材料選択と構造決定には、シミュレーションの利用も平行して行う。このようにして、短期間に中赤外域の発光素子への足掛かりをつかむ。

- (2) デバイス領域内の貫通転位をゼロにする構造検討や新材料の微量添加による検討を行う。

格子歪緩和およびその上の量子井戸活性層の検討をそれぞれの段階において、様々な分析手法で評価しながら、成長条件を最適化を行う。図 2 のように X 線回折および逆格子マッピング、原子間力顕微鏡、透過型電子顕微鏡などの評価と材料、構造を変えて結晶成長を繰り返して、平坦で上層への貫通転位の少ない、成長条件、層構造の探索を行う。

前述の計画である程度 ($10^6(\text{cm}^{-2})$ 以下) まで貫通転位密度を下げ、さらにデバイスの使用領域内には転位が無い状態にするため、 SiO_2 などでパターンニングして、微小領域に成長する手法などを検討する。これは結晶のすべり面に沿った転位の上層への伝搬を抑える効果が期待される。結晶性の評価は平面 TEM (透過型電子顕微鏡) による上層の欠陥の観察やバッファ層上に成長した InAsSb 量子井戸からの顕微フォトルミネッセンス測定の際の暗点から転位密度の評価を行う。微小領域の形状や SiO_2 の膜厚の構造と欠陥密度の相関から構造の最適化を行う。以上のような取り組みにより、使用するデバイスの領域には貫通転位が存在しない構造提案を行う。

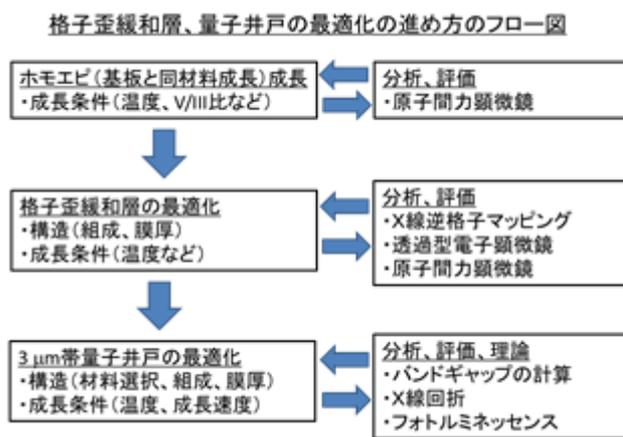


図2 中赤外帯量子井戸の最適化の進め方

4. 研究成果

有機金属気相成長法を用いて、InAs 基板上に InAs/GaSb 超格子を作製する際に GaSb 層成長時に As が混入することが X 線回折からわかった。ガス切り替え時のシーケンスは図 3 のようになるが、その際の成長中断が不十分であると、図 4 のように、次の層に前の層の V 族ガスが混入してしまう。様々な膜厚の InAs 層、GaSb 層からなる試料を作製し、残留ガスの時定数を算出し、組成を推定する方法を提案した。また、意図的に GaSb 層成長時に As の材料となるアールシンガスを微量に流すことにより、InAs 基板上超格子で完全に格子整合させる手法も提案実証した。

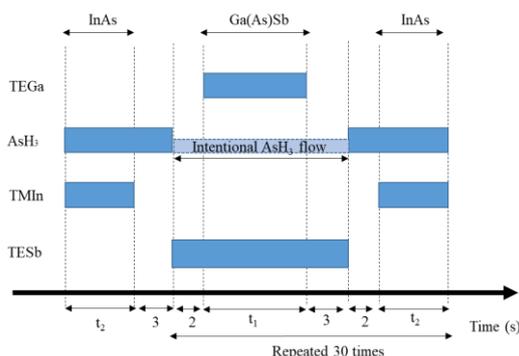


図3 超格子のガス切り替えシーケンス

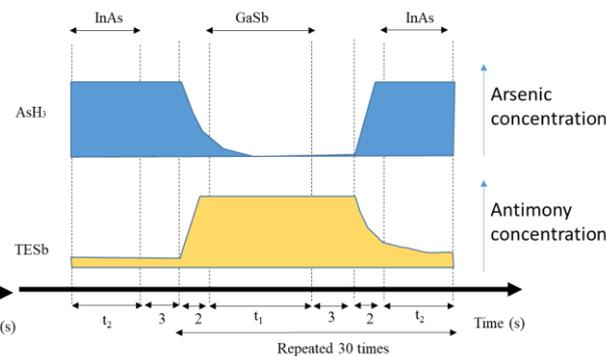


図4 V 族残留ガスのイメージ図

また、超格子の膜厚を様々に変化することで、図 5 のように、2.5 から 5 ミクロンまでの明瞭なフォトルミネッセンススペクトルを確認した。さらにデバイス化に必要なバンドギャップが大きなクラッド層の成長検討もを行い、InAs 基板上 AlGaAsSb の成長条件を最適化することで、高い結晶品質の成膜を実現した。この上に超格子構造を成長したところ、キャリア閉じ込めの効果がクラッド層により改善したため、図 6 のように室温までの発光を確認した。

次に、GaAs 基板上で仮想的な InAs 基板を作製する検討を行った。InAs バッファ層を成長する際の成長温度変えて試料を作製し、電子顕微鏡で表面や断面形状を評価した。低温ほど平坦性が高い結果であったが、低温で成長したあと、高温でその上に InAs 層を成長する 2 段階成長により平坦性が大幅に改善することを確認した。さらにこの仮想的な InAs 基板の上に前述の InAs/GaSb 超格子構造を成長することで、GaAs 基板上においても波長 3 μm 帯のフォトルミネッセンスを確認した。この手法は高価な InAs 基板を用いずに中赤外波長域の発光、受光素子を作製する手法として有望である。

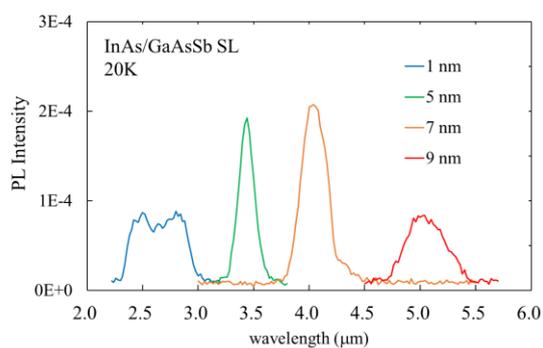


図5 超格子の周期厚を変えた試料のフォトルミネッセンススペクトル

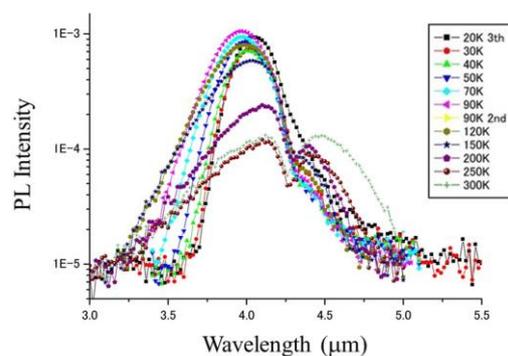


図6 AlGaAsSb クラッド上に作製した超格子の室温までの発光スペクトル

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 2 件)

(1) GaAsSb layer thickness dependence of arsenic incorporation on InAs/GaAsSb superlattice on InAs substrate grown by metalorganic vapor phase epitaxy for mid-infrared device, M. Arai, K. Takahashi, Y. Yamagata, Y. Inoue, R. Wakaki, and K. Maeda, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 57, 08PD05, 2018. (査読有)

(2) 中赤外発光受光素子用 III-V(Sb)系材料の結晶成長と評価, 荒井昌和, 高橋翔, 井上祐貴, 藤原由生, 吉元圭太, 山形勇也, 西岡賢祐, 前田幸治, レーザー研究, 第45巻12号, 2017年. (査読有)

〔学会発表〕 (計 6 件)

(1) Layer Thickness Dependence of Lattice Mismatch and Emission Wavelength on MOVPE Grown InAs/GaAsSb Superlattice for Mid-infrared Photonic Devices, Masakazu Arai, Yuya Yamagata, Ryosuke Wakaki, Koji Maeda, 23rd Micro Optics Conference (MOC2018), G-3, Taipei, (2018.10). (査読有)

(2) Metalorganic Precursors Dependence of Impurity Concentration in AlGaAsSb and Optical Characteristics of InAs / GaAsSb Superlattice, Kakeru Takahashi, Yuya Yamagata, Yuki Fujiwara, Yuki Inoue, Ryosuke Wakaki, Koji Maeda, and Masakazu Arai, 19th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (ICMOVPE-XIX), P1-32, Nara, (2018.6). (査読有)

(3) Emission Spectrum Evaluation of 0.8 - 1.1 μm Range Chirped Multiple Quantum Wells for Optical Sensing Masaya Kamikado, Yuga Imamura and Masakazu Arai, 22nd Microoptics Conference (MOC2017), P-85, Tokyo, (2017.11). (査読有)

(4) MOVPE Growth of Lattice Matched InAs/GaAsSb Superlattice on InAs Substrate for Mid-Infrared Sensing Devices Kakeru Takahashi, Yuki Fujiwara, Yuya Yamagata, Keita Yoshimoto, Yuki Inoue, Ryosuke Wakaki, Koji Maeda, Masakazu Arai, 22nd Microoptics Conference (MOC2017), P-83, Tokyo, (2017.11). (査読有)

(5) Wavelength Range Extension by Chirped and Nitrogen Incorporated InGaAs(N) Quantum Wells for Super Luminescent Diode, Yuga Imamura, Keita Yoshimoto, Masakazu Arai, 2017 CLEO Pacific Rim Conference, P3-113, Singapore, (2017.7). (査読有)

(6) Design and Growth of Metamorphic Sb-based materials on GaAs substrate for Mid-Infrared Photonic Devices, Keita Yoshimoto, Yuya Yamagata, Yuga Imamura and Masakazu Arai, 2017 CLEO Pacific Rim Conference, P3-112, Singapore, (2017.7). (査読有)

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<https://www.cc.miyazaki-u.ac.jp/arai/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：前田幸治

ローマ字氏名： Koji Maeda

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。