

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K04955

研究課題名(和文)窒化インジウム極薄膜へのドーピング技術開発

研究課題名(英文)The doping of intentional impurities into InN ultrathin films

研究代表者

小林 篤(Kobayashi, Atsushi)

東京大学・生産技術研究所・特任准教授

研究者番号：20470114

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、研究代表者が有するInN結晶成長技術を発展させ、伝導性制御が可能なInN極薄膜の作製を目指した。伝導性が制御された極薄膜InNを電界効果トランジスタとして組み込み、その電気特性の評価からInNの基礎物性に関する理解を深め、InNが高速電子素子として実用化できるか検証した。具体的な研究成果は以下の通りである。

(1) 格子整合YSZ基板を用いたInN極薄膜の高品質化プロセスの確立、(2) AlN基板表面の平坦化技術の確立、(3) InN/AlNヘテロ界面の作製、(4) 極薄膜InN/AlNヘテロ構造のトランジスタ応用

研究成果の学術的意義や社会的意義

InNは窒化物半導体の中で最も速い電子速度と電子移動度を有しているため、高速電子素子用材料として魅力的である。しかしながら、InN薄膜の伝導性制御技術は未確立であり、InNの魅力的な電気物性を高速電子素子や超高効率太陽電池などのデバイスへ応用するためには、InN薄膜結晶成長技術のさらなる発展が必須である。本研究では、高品質なInN極薄膜を作製するプロセスを開発し、電界効果トランジスタとして動作させることに成功した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we aimed to fabricate ultra-thin InN films with controllable conductivity. The conductivity-controlled ultra-thin InN film was operated as a channel layer in a field-effect transistor. Through the comprehensive characterization of their electrical properties, we deepened our understanding of the basic properties of InN. We have achieved the following results.

(1) Establishment of a process to improve the quality of InN ultra-thin films using lattice-matched YSZ substrates, (2) Establishment of planarization technology for AlN surfaces, (3) Fabrication of InN/AlN heterointerfaces, (4) Fabrication of InN/AlN field-effect transistors

研究分野：結晶工学

キーワード：窒化物半導体

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

InN は窒化物半導体の中で最も速い電子速度 ($2 \times 10^8 \text{cm/s}$) と電子移動度 ($> 3000 \text{cm}^2/\text{Vs}$) を有しているため、高速電子素子用材料として魅力的である。一般に、MBE 法や MOCVD 法で GaN 基板上に成長させた InN は界面付近での結晶性の劣化が原因となり、転位密度が高く、残留不純物濃度も高い。そのため、高品質結晶を得るためには数 μm の厚膜を成長させる必要があるが、このアプローチは電子デバイス応用には不向きである。加えて、InN に特有の表面電子蓄積層がドーピングによる伝導性制御を困難にしている。研究代表者らは InN をデバイス応用する観点から、InN と格子整合性が高い安定化ジルコニア [$\text{Y}_2\text{O}_3(10\text{mol}\%)-\text{ZrO}_2(90\text{mol}\%):\text{YSZ}$] を基板材料として利用し、YSZ 基板上に高品質 InN 極薄膜 (厚さ 10nm 以下) が成長できることを示してきた。研究代表者らが作製した InN は、他の手法で作製した InN の電子移動度を凌駕しており、また、電界効果トランジスタとして機能することを明らかにしている [M. Oseki, K. Okubo, A. Kobayashi, J. Ohta, and H. Fujioka, Scientific Reports 4, 3951 (2014).]。一方で、InN 極薄膜の伝導性制御技術は未確立であり、InN の魅力的な電気物性を高速電子素子や超高効率太陽電池などのデバイスへ応用するためには、InN 極薄膜結晶成長技術のさらなる発展が必須である。

研究代表者は、YSZ 基板の表面清浄化技術、急峻な InN と基板を形成する技術をコアとして、InN 極薄膜の高品質化に成功してきた [A. Kobayashi, K. Okubo, J. Ohta, M. Oshima, and H. Fujioka, Phys. Status Solidi A 209, 2251 (2012).]。また、研究代表者らが開発してきたパルススパッタ法は、 500°C 以下の低温でも結晶性の高い窒化物半導体薄膜が成長可能であり、InN の高品質化に適した手法である。研究代表者らの作製する InN 極薄膜は高速電子素子として有望な選択肢と考えられるが、その基礎物性については未解明な部分があった。

2. 研究の目的

本研究では、研究代表者が有する InN 結晶成長技術を発展させ、伝導性制御が可能な InN 極薄膜の作製を目指す。伝導性が制御された極薄膜 InN を電界効果トランジスタとして組み込み、その電気特性の評価から InN の基礎物性に関する理解を深め、InN が高速電子素子として実用化できるか検証する。具体的な研究目標は以下の通りである。

- (1) InN 電界効果トランジスタ用基板の表面平坦化
- (2) 極薄膜 InN/ AlN ヘテロ構造の作製
- (3) 極薄膜 InN 電界効果トランジスタの作製と評価

3. 研究の方法

サファイアウェハ上に作製した $\text{AlN}(0001)$ 薄膜テンプレートおよびイットリア安定化ジルコニア (YSZ) (111) 基板を InN 薄膜成長用基板として使用した。InN 薄膜の成長にはパルススパッタ (PSD) 法を用いた。基板温度、In 供給量および N 供給量を制御し、InN 薄膜の成長を行った。原子間力顕微鏡 (AFM)、高分解能 X 線回折 (XRD)、斜入射 X 線回折 (GIXD) を用いて基板と薄膜の構造評価を行った。フォトリソグラフィ、ドライエッチング、真空蒸着によって電界効果トランジスタを作製し、半導体パラメータアナライザーでデバイス特性を測定した。

4. 研究成果

(1) 格子整合 YSZ 基板を用いた InN 極薄膜の高品質化

InN の極限的な物性を見極めるために、極薄膜 InN の低転位化に取り組んだ。YSZ 基板上に膜厚 5nm 以下の N 極性 InN 極薄膜が比較的高品質な状態で結晶成長可能なことが既にわかっており、本研究ではより転位密度の低い InN 極薄膜を得るために、YSZ 基板に高温アニール処理を施し、原子レベルで完全に定義された基板表面を準備した。この表面に PSD 法で InN をステップフロー成長させることで、コヒーレントな InN 極薄膜を得ることができた。また、同時に薄膜原料 (In と窒素ガス) の高純度化および成長チャンバーの清浄化をおこなうことで、InN 極薄膜の残留不純物濃度が低減し、キャリア移動度が向上することを確認した。

(2) AlN 基板表面の平坦化技術の確立

AlN の自発分極を利用した InN/AlN ヘテロ界面の空乏化を実現するために、基板となる AlN 表面を原子レベルで平坦化する技術の開発に取り組んだ。酸性溶液やアルカリ性溶液によるエッチングや真空中での加熱処理など複数の表面処理プロセスを検討した結果、AlN の表面構造を改質するためには、窒素雰囲気中での高温アニール処理が最も効果的であることが分かった。AlN の結晶性を X 線ロックン グカーブ (XRC) 測定で評価した。1700°C の高温アニール処理を施しても 0002 XRC の半値幅はほとんど変化しなかったが (95arcsec から 102arcsec に変化)、10-12 XRC はアニール後に 289arcsec から 240 arcsec に減少した。この結果は、高温アニールによって AlN 中の刃状転位が減少したことを示唆している。図 1 に、各温度でアニール処理を施した後の AlN 表面 AFM 像を示した。アニール温度の上昇にともない、AlN 表面における原子配列の再構成が促され、1700°C では、1 μm オーダーのステップフリー領域が形成されることがわかった。

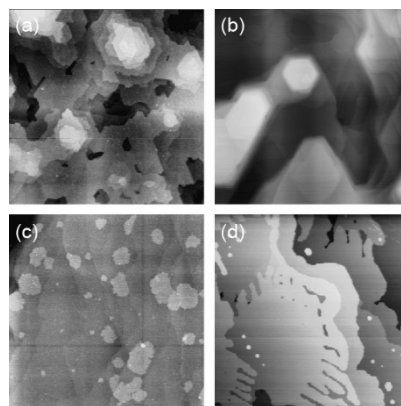


図 1 AlN テンプレート基盤表面の AFM 像 ($2 \times 2 \mu\text{m}^2$) (a) 未処理、(b) 1200°C、(c) 1600°C、(d) 1700°C アニール処理後

(3) InN/AlN ヘテロ界面の作製とバンド構造評価

原子レベルで平坦な AlN 基板の上に極薄膜 InN のエピタキシャル成長を行った。図 2 (a) は、AlN テンプレート上に 450°C で成長させた 4nm および 50nm 厚の InN 薄膜の XRD パターンである。ポイドのない連続膜が成長していると仮定し、成膜速度から膜厚を算出した。どちらの InN 薄膜も InN 0002 回折が観測され、AlN 上に c 軸配向して成長していることがわかる。図 1(b) に InN 薄膜の 0002X 線ロックン グカーブ (XRC) を示す。膜厚 4nm の InN の XRC 半値幅 ($\sim 300\text{arcsec}$) は膜厚 50nm の InN と同程度であり、PSD 法で AlN テンプレート上に高品質 InN 極薄膜が成長できることが分かった。

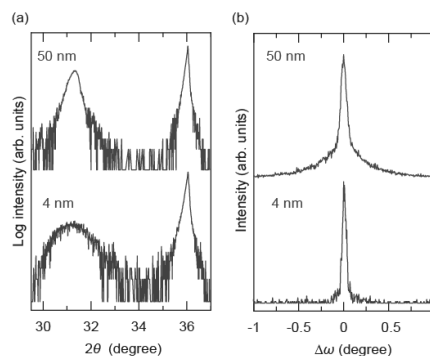


図 2 (a) InN/AlN の XRD $2\theta/\omega$ スキャン、(b) InN の 0002 ロックン グカーブ

次に、AlN 上に 450°C で成長させた極薄 InN 膜の構造特性を評価するために、GIXD 測定を行った。図 3 は、AlN 上に成長させた InN (膜厚 1~7nm)

の GIXD パターンである。成長初期段階(膜厚 1nm)では InN の結晶性が低いため、InN に関連する回折ピークは検出されなかった。膜厚 2nm の InN からは、InN1-100 回折に起因するピークが観測された。この InN の a 軸格子緩和率は 97%であった。この緩和率を考慮して、InN/AIN 界面の分極誘起電荷を見積もったところ、電荷密度は-0.064 C/m²であった。これは、InN/AIN 界面を十分に空乏化できる値である。

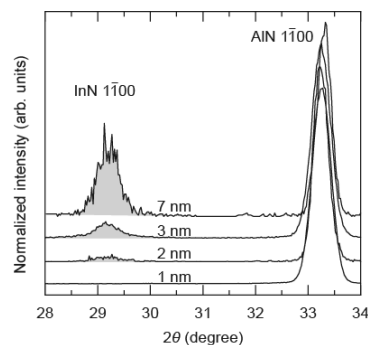


図3 InN/AIN GIXD パターン

AIN 上の InN 薄膜は膜厚が 1nm を超えると、グレインサイズが大きくなり始め、表面が荒れる傾向にあった。そこで、InN の成長温度を 440~500°C の温度範囲で変化させ、成長温度と表面形状の関係を調べた。成長温度の上昇にともない、InN の成長初期段階に形成されるグレインの高さが低くなること明らかになった。また、同時に、グレインが横方向に成長する傾向も見られた。3次元的な成長を完全に抑制することはできなかったが、成長温度 500°C で最も平坦な InN を得ることができた。

(4) 極薄膜 InN/AIN ヘテロ構造のトランジスタ応用

AIN 上に成長させた InN 極薄膜をチャンネル層とした電界効果トランジスタを作製した。図4に FET の構造と特性を示す。InN チャンネル層の膜厚は 2nm とした。ソース、ドレイン、ゲート電極は Au (50 nm) とし、ゲート絶縁膜には原子層堆積法で 200°C で成膜したアモルファス HfO₂ (25 nm) を用いた。チャンネルを 450°C で成長させた InN-FET は、電流オン/オフ比が低く、ゲート電圧を -14 V までかけても界面が空乏化しなかった。一方、チャンネルを 500°C で成長させた InN-FET では、ゲート電圧によるドレイン電流制御が可能となっており、オン/オフ比はおおよそ 100 となった。ドレイン電圧 1.0V における電流密度は 0.19mA/mm であり、YSZ 基板上に作製した InN FET よりも高密度の電流を流せることがわかった。これは、AIN 基板を用いることで界面近傍の InN の残留電子を効果的に制御できていることを示唆する結果である。

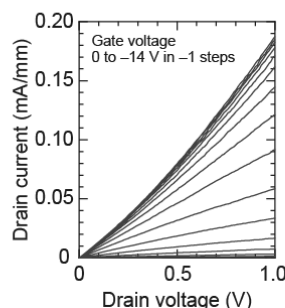
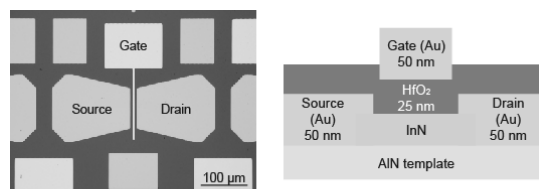


図4 極薄膜 InN/AIN 電界効果トランジスタの構造と特性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Jeong Dayeon, Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka	4. 巻 10
2. 論文標題 Growth of InN ultrathin films on AlN for the application to field-effect transistors	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 125221 ~ 125221
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0035203	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 -
1. 著者名 Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka	4. 巻 117
2. 論文標題 Autonomous growth of NbN nanostructures on atomically flat AlN surfaces	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 231601 ~ 231601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0031604	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 -
1. 著者名 Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka	4. 巻 13
2. 論文標題 Coherent epitaxial growth of superconducting NbN ultrathin films on AlN by sputtering	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 061006 ~ 061006
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ab916e	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 -
1. 著者名 Kyohei Nakamura, Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Jitsuo Ohta, Hiroshi Fujioka	4. 巻 9
2. 論文標題 AlN/InAlN thin-film transistors fabricated on glass substrates at room temperature	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 6254
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-42822-6	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 Kohei Ueno, Atsushi Kobayashi, Hiroshi Fujioka	4. 巻 9
2. 論文標題 Characteristics of unintentionally doped and lightly Si-doped GaN prepared via pulsed sputtering	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 075123 ~ 075123
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5103185	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 Masumi Sakamoto, Atsushi Kobayashi, Yoshino K. Fukai, Kohei Ueno, Yuki Tokumoto, Hiroshi Fujioka	4. 巻 126
2. 論文標題 Improving the electron mobility of polycrystalline InN grown on glass substrates using AlN crystalline orientation layers	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 075701 ~ 075701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5117307	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 -

1. 著者名 Kohei Ueno, Taiga Fudetani, Atsushi Kobayashi, Hiroshi Fujioka	4. 巻 9
2. 論文標題 Optical characteristics of highly conductive n-type GaN prepared by pulsed sputtering deposition	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 20242
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-56306-0	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 Fudetani Taiga, Ueno Kohei, Kobayashi Atsushi, Fujioka Hiroshi	4. 巻 114
2. 論文標題 Wide range doping controllability of p-type GaN films prepared via pulsed sputtering	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 032102 ~ 032102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5079673	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 -

1. 著者名 Sakurai Yuya, Ueno Kohei, Kobayashi Atsushi, Ohta Jitsuo, Miyake Hideto, Fujioka Hiroshi	4. 巻 6
2. 論文標題 Growth of Si-doped AlN on sapphire (0001) via pulsed sputtering	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 111103 ~ 111103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5051555	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 Kihira Shunya, Kobayashi Atsushi, Ueno Kohei, Fujioka Hiroshi	4. 巻 22
2. 論文標題 Reduction of Twin Boundary in NbN Films Grown on Annealed AlN	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 1720 ~ 1723
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.cgd.1c01287	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19件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 小林篤, 上野耕平, 藤岡洋
2. 発表標題 AlN上にコヒーレント成長したNbN極薄膜の超伝導特性
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 ジョンダヨン, 小林篤, 上野耕平, 藤岡洋
2. 発表標題 Growth of ultrathin InN films on Al-polar AlN and its application to field-effect transistors
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka
2. 発表標題 Epitaxial growth of NbN superconductors on AlN by sputtering
3. 学会等名 The 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology (CGCT-8) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 紀平俊矢, 小林篤, 上野耕平, 藤岡洋
2. 発表標題 表面処理を施したAlN上に成長させたNbNの結晶方位解析
3. 学会等名 第68回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小林篤, 上野耕平, 藤岡洋
2. 発表標題 AlN原子ステップを利用したNbNナノ構造の自己組織化
3. 学会等名 第68回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka
2. 発表標題 Superconducting NbN/AlN Nanostructures Prepared by Sputtering
3. 学会等名 ISPlasma2021/IC-PLANTS2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小林篤、上野耕平、藤岡洋
2. 発表標題 スパッタ法によるAlN上へのNbN極薄膜エピタキシャル成長
3. 学会等名 第67回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小林篤、中野はるか、上野耕平、藤岡洋
2. 発表標題 族結晶配向層を用いたガラス基板上への窒化物半導体成長
3. 学会等名 第80回 応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Dayeon Jeong, Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka
2. 発表標題 Basic characteristics of ultrathin InN layers prepared by sputtering on various AlN templates
3. 学会等名 第80回 応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Dayeon Jeong, Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka
2. 発表標題 Basic characteristics of ultra-thin InN grown on AlN
3. 学会等名 日本結晶成長学会ナノエピ分科会 第11回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中野はるか、小林篤、上野耕平、藤岡洋
2. 発表標題 ガラス基板上に形成した窒化物結晶成長用配向制御層の評価
3. 学会等名 日本結晶成長学会ナノエピ分科会 第11回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Dayeon Jeong, Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka
2. 発表標題 Field-effect transistors of ultrathin InN grown on AlN
3. 学会等名 第67回 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 坂本 真澄、小林 篤、上野 耕平、藤岡 洋
2. 発表標題 AlN系バッファ層上に成長した多結晶InNの特性
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Dayeon Jeong, Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka
2. 発表標題 Characteristics of ultra-thin InN films grown on AlN
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masumi Sakamoto, Atsushi Kobayashi, Kohei Ueno, and Hiroshi Fujioka
2. 発表標題 InN transistors prepared on glass substrates with AlN buffer layers
3. 学会等名 International Workshop on Nitride Semiconductors 2018 (IWN 2018), Kanazawa (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小林篤, 坂本真澄, 中村享平, ライ・ケーシン, 伊藤剛輝, 上野耕平, 藤岡洋
2. 発表標題 高移動度薄膜トランジスタ作製に向けた非晶質基板上へのInN結晶成長
3. 学会等名 日本学術振興会 ワイドギャップ半導体光・電子デバイス 第162委員会 第110回研究会・特別公開シンポジウム, 東京大学
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 坂本真澄, 小林篤, 上野耕平, 藤岡洋
2. 発表標題 ガラス基板上に成長させたc軸配向InN薄膜の電気特性
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小林篤, 上野耕平, 藤岡洋
2. 発表標題 InN系窒化物半導体のパルススパッタリング成長とFET応用
3. 学会等名 第10回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 坂本真澄, 小林篤, 上野耕平, 藤岡洋
2. 発表標題 バッファー層挿入によるガラス基板上多結晶InNの電気特性の改善
3. 学会等名 第10回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------