

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：17601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04515

研究課題名(和文) 中赤外波長帯シリコンフォトニクスのためのIII-V族、IV族一括成長技術の研究

研究課題名(英文) Crystal growth of group III-V and group IV for mid-infrared silicon photonics

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) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：中赤外波長帯は一酸化炭素、二酸化炭素、可燃性の炭化水素系ガス、NO_x、SO_xなどの環境ガスの吸収線があり、レーザガスセンシングに用いられる。また、光ファイバ通信、空間伝搬通信の波長域拡大としても注目されている。同じ結晶成長装置でGaAsとGeSnの一括成長を実現した。InAsおよびInAsSbの高品質化技術の検討を行い、平坦で転位の少ない良好な結晶性のInAsSbを実現し、室温で波長4ミクロン帯でのフォトルミネッセンス発光を実現した。また格子整合しないヘテロ構造の電流注入素子を作製し、室温で波長3ミクロン帯での明瞭な発光を確認した。中赤外波長帯シリコンフォトニクスの発展に有用と考えている。

研究成果の学術的意義や社会的意義

この研究はガスセンシングなどに有用な中赤外波長帯の発光・受光のための化合物半導体の結晶成長技術と、シリコン回路との融合に必要な技術検討である。シリコンなどのIV族(14族)と化合物半導体のIII-V族(13-15族)を同一の結晶成長装置内で連続して結晶成長する技術の開発を行った。また、中赤外波長帯で発光・受光する半導体素子の実現に成功した。

研究成果の概要(英文)：Mid-infrared light emitting diode (LED), laser and photodiode are strongly desired for optical gas absorption sensors. We experimentally investigated the continuous growth of group III and group VI materials in the same growth system. Also, we optimized the growth condition of InAsSb on GaAs substrate. Thermal annealing was effective to improve the emission intensity. We demonstrated the 3-micron range room temperature emission from n-GaAs/ i-InAs/ p-GaAs heterostructure. These technique is good candidate for mid-infrared silicon photonics.

研究分野：半導体デバイス工学

キーワード：半導体 結晶成長 中赤外

1. 研究開始当初の背景

中赤外波長帯は一酸化炭素、二酸化炭素、可燃性の炭化水素系ガス、NO_x、SO_xなどの環境ガスの吸収線があり、レーザガスセンシングに用いられる。また、光ファイバ通信、空間伝搬通信の波長域拡大としても注目されている。近年、中赤外波長帯の半導体レーザ、受光素子の研究が盛んになっている。今後はさらに多機能、多品種の材料集積が進むと考えられる。例えば図1のようなシリコン導波路による可変波長共振器とシリコン、SiO₂中空導波路による多重反射ガス吸収セル、III-V族半導体による半導体レーザ、受光素子の集積などが考えられる。このような機能・材料集積が実現すれば、携帯端末に入るサイズの超小型のガスセンサが実現でき、ガス漏れや一酸化炭素中毒事故を防止でき、社会のニーズに応えられる。

III-V族半導体、特に中赤外波長帯域で用いられるバンドギャップが小さいInAsやGaSbおよびその混晶材料は格子定数が0.61 nm程度と大きく、シリコン(0.543 nm)とは12%もの格子定数差を有する。そのため、直接結晶成長すると多くのミスフィット転位が発生する。その一部は貫通転位としてデバイス層まで到達し、光デバイスの非発光再結合の原因となり、効率低下、信頼性悪化をもたらす。そのため、過去には10 μmにもおよぶ非常に厚いバッファ層の導入が検討された。また別の方法として、シリコン基板とIII-V族基板のウェハ接合などの方法が行われてきた。

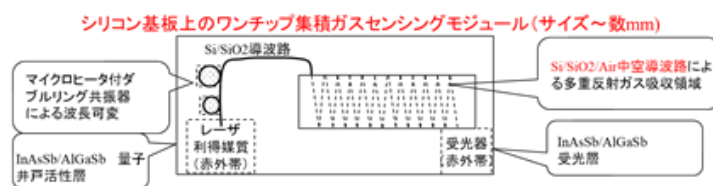


図1 シリコン、III-V族半導体集積ガスセンシングモジュール

2. 研究の目的

1で挙げた問題を解決し、シリコン基板上の中赤外光デバイスを実現するために、以下の点を研究目的とする。

- ① IV族半導体とIII-V族半導体の一括MOVPE成長時の転位形成、混晶状態の解明
- ② IV族バッファ層の格子定数の大型化
- ③ 貫通転位耐性のある中赤外発光層の実現

3. 研究の方法

研究目的で挙げた①については、MOVPE装置にIV族とIII-V族を装着し結晶成長するだけでは両者の材料が相互にドーパントになることから、原料ガスの装置内の残留制御を精密に行う必要がある。また原子層レベルで混晶が出来た場合の電気特性の把握などはまだ十分行われていない。シミュレーションおよび実験により電気伝導特性と混晶領域の幅の相関を調べる。結晶の組成分布については透過型電子顕微鏡および組成分析技術も併用して界面の特性を調べる。

②については、これまでシリコン基板上IV族バッファ層としてはゲルマニウムが用いられてきた。III-V族に比べるとIV族のみで形成されるゲルマニウムなどは熱処理(アニール)をした際の原子の再配列が進みやすく、転位同士を終端させ、ネットワーク化させることで良好な結晶性が得られる。さらにIV族でスズ(Sn)を混ぜたGeSnをIV族バッファ層に入れることで格子定数を大きくし(図2)、その上にIII-V族の中赤外デバイスを結晶成長する。シリコン基板では酸化膜除去の時間、コストがかかるため、GaAs基板やInP基板を用いてGeSn層のSn組成を高めつつ、結晶性を高める検討を行う。GeSn層の評価はX線逆格子マッピングで緩和率、格子定数を測定する。表面の貫通転位は原子間力顕微鏡、エッチピット評価で行う。内部の欠陥は断面の透過型電子顕微鏡で行う。

③については、InAs/GaAsSb Type-II超格子やInAsSb/AlGaAsSb Type-I量子井戸など中赤外発光する活性層を検討し、貫通転位があってもその影響が限定的になるような構造の検討を行う。

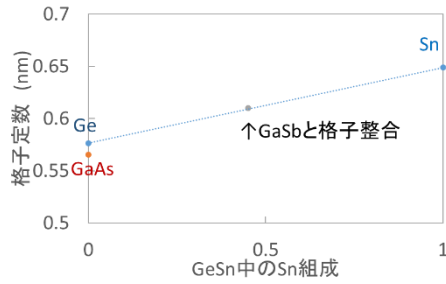


図2 GeSnのSn組成と格子定数の関係

4. 研究成果

III-V族とIV族一括成長とGeSn成長の検討

初期検討として、GeへのSn添加の検討をGaAs基板上で行った。同一のMOVPE装置を使い、図3、図4の温度、ガスシーケンスで、GaAsはトリエチルガリウム、アルシンを用いて650℃で成長し、その後400℃程度に降温し、ターシャリブチルホスフィン、テトラメチルチンを用いてGeSn成長を行った。Snを添加しないGe層のみでは原子間力顕微鏡で観察した表面粗さのRMS値は0.3nmであったが、Snを添加するとRMS値は4.3nmまで悪化した。2次イオン質量分析(SIMS)による組成評価ではSnの存在は確認できたが、組成は1%以下であった。GeSn試料の断面の透過型電子顕微鏡像を図5に示す。積層欠陥とみられる欠陥が確認され、結晶性改善への更なる検討が必要であるものの、GaAsとGeSn層の一括成長を確認した。

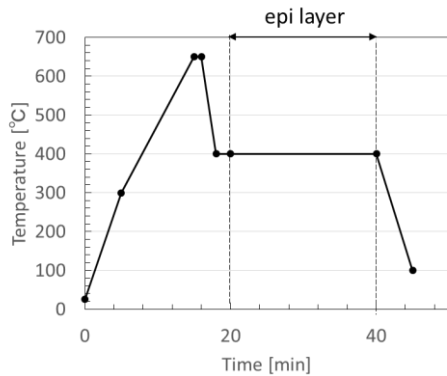


図3 Ge(Sn)成長時の温度シーケンス

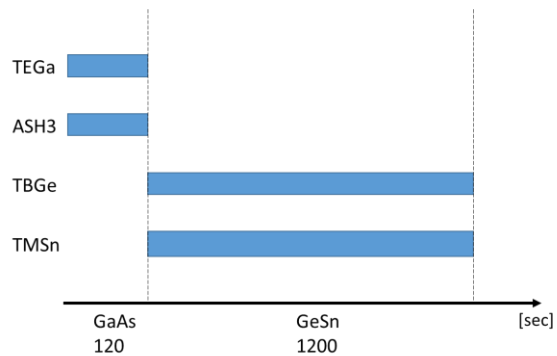


図4 Ge(Sn)成長時のガスシーケンス

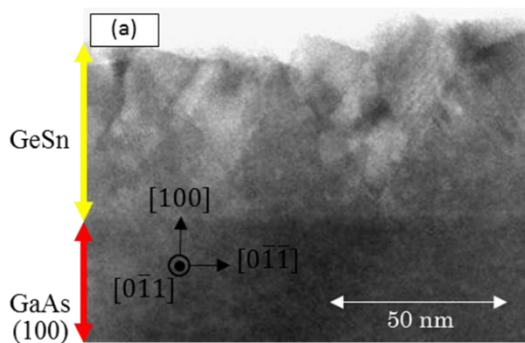
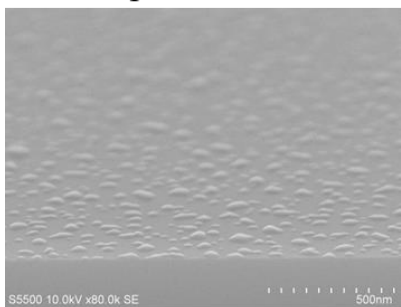


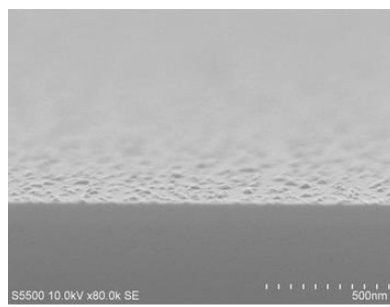
図5 GaAs基板上にGaAsと一括成長したGeSnの断面TEM像

中赤外波長域の発光・受光のためのバッファ層および超格子の成長と評価

Ge と格子定数が近い GaAs 基板上に InAs または InAsSb を成膜し、その上に超格子を結晶成長する検討を行った。GaAs 基板上に InAs 層を成長する条件の最適化を行った。GaAs 基板上に低温 InAs 層を成長し、その上に InAs 層を成長することで、大幅な結晶性の改善を確認してきたが、加えて様々なドーパントを添加し、表面ラフネスの改善効果がある材料を確認した。またその添加量の適切な範囲を明確にした。図 6 は InAs 成長初期状態の SEM 像、図 7 は Zn をドーピングした InAs 成長初期状態の SEM 像である。Zn を導入することにより、表面での拡散が抑制され、島の大型化を抑制し、表面平坦性が向上することを確認した。また、InAs に Sb を導入することで平坦性の向上を確認した。



Undoped-InAs 500 °C



Zn-InAs 500 °C

図 6 InAs 成長初期状態の SEM 像

図 7 Zn をドーピングした InAs 成長初期状態の SEM 像

Sb の添加により InAs と InSb の混晶となり Sb 組成の増加とともに格子定数は大きくなり、バンドギャップは減少する。したがって長波長領域への波長域の拡大が可能となる。しかしながら実験的検討の結果 InAs の場合に有効であった低温成長と高温成長の 2 段階成長が InAsSb では V 族の混晶比が成長温度に強く依存するため困難であることがわかった。そこで、InAsSb 層を低温で成長し、高温でアニールする検討を行った。これにより、フォトルミネッセンスの発光強度の増大を確認した (図 8)。断面透過型顕微鏡 (TEM) による観察ではこれらの成長方法において、InAsSb と GaAs との界面において転位アレイを確認し、上層の貫通転位が低いことを確認した (図 9)。発光波長は 4 – 5 ミクロン帯をカバーし、ガスセンシングに適した波長である。

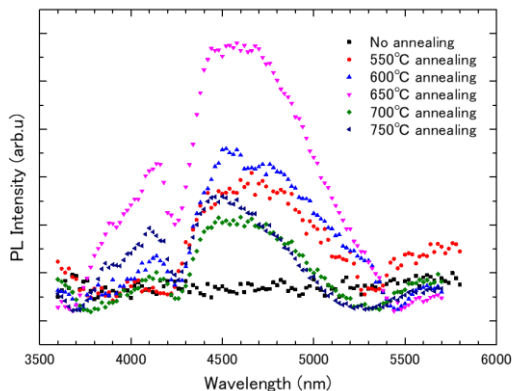


図 8 室温 PL 強度のアニール温度依存性

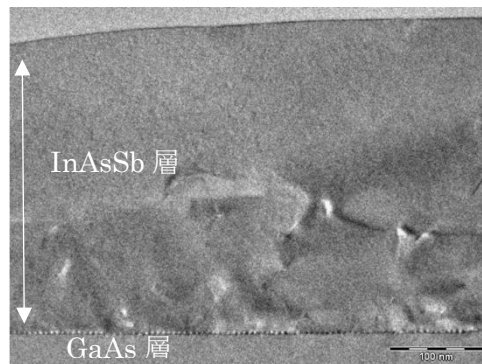


図 9 アニールした InAsSb の断面 TEM 像

また、n-GaAs 基板上に InAs 層を成長後、p-GaAs 構造を成長したヘテロ構造に電極を形成し、電流-電圧、光出力特性を調べた。InAs 基板上の InAs の p-i-n 構造よりも低い並列抵抗を確認した。これは貫通転位が少なく、またトンネリングによる漏れ電流が小さいことを示しており、発光、受光素子の効率向上が期待される。電流注入により室温で波長 3.3 μm の明瞭な発光を確認した。

以上のように、III-V 族、VI 族一括成長および、中赤外デバイスを実現した。これらの技術は中赤外波長帯シリコンフォトニクス発展に有用と考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1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 Fujisawa T., Arai M., Saitoh K.	4. 巻 27
2. 論文標題 Microscopic gain analysis of modulation-doped GeSn/SiGeSn quantum wells: epitaxial design toward high-temperature lasing	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 2457 ~ 2457
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.27.002457	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 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 2件／うち国際学会 7件）

1. 発表者名 中川翔太, 今村優希, 大濱寛士, 前田幸治, 荒井昌和
2. 発表標題 GaAs基板上InAs成長層の表面ラフネスへのZnドーブの影響調査
3. 学会等名 応用物理学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 今村優希, 中川翔太, 大濱寛士, 前田幸治, 荒井昌和
2. 発表標題 SIMS, XRD を用いた InAs/GaSb 超格子中の As 濃度推定
3. 学会等名 応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大濱寛士, 前田幸治, 荒井昌和, 藤澤剛, 今村優希, 荒井昌和
2. 発表標題 MOVPE 法で作製した InAs/GaSb 超格子の中赤外PL スペクトルの励起強度依存性
3. 学会等名 応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2020年

1 . 発表者名 Masakazu Arai ,Yuki Imamura ,Takeshi Fujisawa ,Koji Maeda
2 . 発表標題 MOVPE growth and evaluation of mid-infrared range superlattice
3 . 学会等名 Asia Pacific Society for Materials Research 2019 annual meeting (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Yuki Imamura ,Miki Shoiriki ,Tomohito Ohama ,Koji Maeda ,Masakazu Arai
2 . 発表標題 Growth and PL Measurement of Metamorphic InAs and InAs/GaSb Superlattice using MOVPE for Mid-Infrared Photonic Devices
3 . 学会等名 OptoElectronics and Communications Conference2019 (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Masakazu Arai ,Yuki Imamura ,Koji Maeda
2 . 発表標題 Optimization of gas flow sequence for mid-infrared range Sb-based superlattice using MOCVD
3 . 学会等名 EMN Meeting on Epitaxy 2019 (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Yuki Imamura ,Miki Shoiriki ,Koji Maeda ,Masakazu Arai
2 . 発表標題 Growth Temperature and Sb Flow Dependence of Surface Morphology of Metamorphic InAs(Sb)on GaAs substrate Grown by MOVPE
3 . 学会等名 Compound Semiconductor Week 2019 (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 今村優希, 大濱寛仁, 前田幸治, 荒井昌和
2. 発表標題 InAs/GaSb超格子のV族混晶化の成長中断時間による制御
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今村優希, 大濱寛士, 前田幸治, 藤澤剛, 荒井昌和
2. 発表標題 2段階バッファ層を用いたメタモルフィックInAs/GaSb超格子の作製と評価
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shota Nakagawa, Yuki Imamura, Yasushi Hirata, Koji Maeda and Masakazu Arai
2. 発表標題 Zn Doping Effect on Surface Morphology of Metamorphic InAs on GaAs Grown by MOVPE
3. 学会等名 Micro-Optics Conference 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 荒井昌和, 中川翔太, 前田幸治
2. 発表標題 GaAs/InAs/GaAsヘテロ構造の電気特性、中赤外受光感度特性評価
3. 学会等名 秋季応用物理学会学術講演会 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 平田 康史, 中川 翔太, 荒井 昌和, 前田 幸治
2. 発表標題 MOVPE法によりGaAs基板上に成長したZnドーブInAs膜のラマン分光法による評価
3. 学会等名 秋季応用物理学会学術講演会 (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

宮崎大学荒井研究室ウェブサイト https://www.cc.miyazaki-u.ac.jp/arai/index.html
--

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	前田 幸治 (Maeda Koji) (50219268)		

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