

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420332

研究課題名(和文)窒化ガリウム系共鳴トンネルダイオード作製とテラヘルツ波発振に関する研究

研究課題名(英文) Fabrication of GaN-based resonant tunneling diodes and investigation of their terahertz oscillation

研究代表者

永瀬 成範 (NAGASE, Masanori)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・主任研究員

研究者番号：80399500

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)：ワイドバンドギャップ半導体を用いた高性能なテラヘルツ波発振器の実現に向けて、窒化ガリウム系共鳴トンネルダイオード(GaN系RTD)の作製技術を確立した。GaN系RTDの高品質化、及び、数値シミュレーションの高精度化により、長年未解明であったGaN系RTDで生じる双安定性(電流電圧特性のヒステリシス現象)のメカニズムを明らかにした。また、解明したメカニズムをもとに、テラヘルツ波発振に障害となる双安定性を抑制することに成功し、GaN系RTDを用いたテラヘルツ波発振器の実現の可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：The fabrication method of GaN-based resonant tunneling diodes (GaN-based RTDs) was established to realize the high-performance terahertz oscillators utilizing wide-bandgap semiconductors. The mechanism for the bistability of GaN-based RTDs, which causes the hysteresis in the current-voltage characteristics, was clarified by realizing higher quality of GaN-based RTDs and higher precision of numerical simulations. The bistability of GaN-based RTDs, which hinders their terahertz oscillation, was successfully suppressed by the improvements based on the clarified mechanism, and the possibility of the realization of terahertz oscillators utilizing GaN-based RTDs was shown.

研究分野：半導体工学

キーワード：窒化物半導体 共鳴トンネルダイオード テラヘルツ波 双安定性

## 1. 研究開始当初の背景

未開拓周波数と呼ばれる 0.1~10 THz で発振可能なテラヘルツ波発振器は、無線通信、セキュリティ、創薬、医療などで様々な応用が期待されている。これまで、テラヘルツ波を発生するには、固体レーザーや非線形光学素子等の組み合わせを用いた比較的大きな機器を必要としてきた。しかし、近年、共鳴トンネルダイオード (RTD) の微分負性抵抗を用いることで、コンパクトなテラヘルツ波発振器が実現された。室温でコヒーレントなテラヘルツ波を発生できることや発振周波数の制御性の高さなどから、注目を集めている [M. Asada et al., JJAP 47, 4375 (2008)]。しかし、実用化に向けて、RTD テラヘルツ波発振器の更なる広帯域化や高出力化が望まれている。

この解決法の一つとして、ワイドギャップ半導体である窒化ガリウム (GaN) の優れた材料物性を用いることが有効であると考えられる。現在の RTD テラヘルツ波発振器で用いられているガリウム砒素 (GaAs) の代わりに、GaN を用いることが出来れば、バンドギャップ増大に伴う  $\Gamma$ -L バレー間散乱の抑制、高電圧印加による電子走行時間の短縮、さらには、GaAs よりも 10 倍速い高速 LO フォノン散乱によるトンネル時間の短縮などを期待できる。これらにより、RTD テラヘルツ波発振器の更なる広帯域化や高出力化を期待できる。

しかし、GaN には、多数の結晶欠陥や分極が存在するために、RTD の作製が困難であり、また、GaN 系 RTD の電流電圧特性 (I-V 特性) には、未解明な双安定性 (テラヘルツ波発振に障害となるヒステリシス現象) が観測されることが知られていた [C. T. Foxon et al., Phys. Status Solidi C 0, 2389 (2003) / S. Golka et al., APL 88, 172106 (2006)]。そのため、GaN 系 RTD をテラヘルツ波発振器に応用するためには、双安定性のメカニズムを解明し、GaN 系 RTD の作製技術を確認する必要がある。

## 2. 研究の目的

本研究では、ワイドギャップ半導体を用いた高性能なテラヘルツ波発振器の実現に向けて、GaN 系 RTD の作製技術を確認すること、及び、GaN 系 RTD からの発振現象を観測することを目的として研究を行った。以下に具体的な目標を示す。

(1) GaN 系 RTD で生じる双安定性のメカニズムを明らかにし、テラヘルツ波発振器実現に向けた GaN 系 RTD の作製技術と設計指針を確認する。

(2) 電磁界シミュレータを用いたアンテナ構造設計技術やアンテナ構造作製のためのプロセス技術を確認し、GaN 系 RTD からの発振現象の観測を目指す。

## 3. 研究の方法

### (1) GaN 系 RTD の作製技術の確認

研究代表者が所属する機関で保有する MOVPE 法による窒化物薄膜形成技術を用いることで、AlN バリア層 (2 nm) / GaN 井戸層 (2.5 nm) / AlN バリア層 (2 nm) の量子井戸構造を持つ GaN 系 RTD を作製した。作製した GaN 系 RTD の I-V 特性を測定し、その実験結果を数値シミュレーションによって説明することで、双安定性のメカニズムを解明することを検討した。特に、GaN 系 RTD で生じる双安定性が量子井戸でのサブバンド間遷移と電子蓄積効果に起因していると考えられたことから、電子分布とポアソン方程式のセルフコンシステント法を用いたバンド構造解析を行うことで、バンド構造の量子井戸内の電子濃度依存性を正確に解析できるようにした。このバンド構造に対する透過率特性を解析することで、GaN 系 RTD の量子準位や I-V 特性の量子井戸内の電子濃度依存性を正確に解析した。これらにより、GaN 系 RTD で生じる双安定性のメカニズムを解明するとともに、テラヘルツ波発振器実現に向けた GaN 系 RTD の設計指針を確認することを目指した。

### (2) テラヘルツ波発振器の作製技術の確認

GaN 系 RTD を用いたテラヘルツ波発振器の実現に向けて、アンテナ構造設計法やアンテナ構造作製技術の確認を行った。アンテナ構造の設計法としては、高速計算を可能にするモーメント法を用いた平面三次元電磁界シミュレータ (ソネット社、Sonnet Lite) を用いることを検討した。また、アンテナ構造作製技術としては、任意のレジストパターンを大面積に高速に形成できるマスクレス露光装置 (フォトリソグラフィ装置) を用いることを検討した。アンテナ構造や RTD メサ構造を作製するためのレジストパターン形成技術を確認するとともに、位置精度の高い重ね合わせ露光技術を確認することを目指した。また、ドライエッチングを用いたメサ構造形成技術や低誘電率材料でのメサ構造埋め込み技術の確認にも取り組んだ。さらに、GaN 基板を用いたホモエピタキシャル技術、及び、バリア層の低 Al 組成化により、GaN 系 RTD の高品質化を行い、GaN 系 RTD からの発振現象の観測を目指した。

## 4. 研究成果

### (1) GaN 系 RTD の作製技術の確認

#### ① 双安定性のメカニズム解明

量子井戸での電子蓄積効果と取り入れたバンド構造、量子準位、I-V 特性の数値シミュレーションにより、GaN 系 RTD で生じる双安定性を矛盾なく説明できること成功した。また、温度上昇や繰り返し測定などによって、双安定性が劣化する傾向があることが知られていたが、この現象が、サブバンド間遷移によって量子井戸内に蓄積した電子のバリア層の欠陥準位を介したリークに起因していることを、温度特性も含めた双安定性

の実験結果と数値シミュレーションとの比較から明らかにした。これらにより、GaN系RTDの双安定性が、量子井戸でのサブバンド遷移と電子蓄積効果に起因していることを明らかにした。

②新量子井戸構造を用いた双安定性の抑制

解明した双安定性のメカニズムをもとに、テラヘルツ波発振器実現のためのGaN系RTDを設計した。特有の分極を有するGaN系RTDでは、量子井戸に歪みが生じるために、第一の量子準位が低下する。そのため、第二の量子準位を介した共鳴トンネル現象が支配的となり、量子井戸サブバンド遷移が起こりやすくなっていると推測した。そこで、これまでのAlNバリア層(2 nm)/GaN井戸層(2.5 nm)/AlNバリア層(2 nm)からなる量子井戸構造に代えて、AlNバリア層(2 nm)/Al<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>N井戸層(1.5 nm)/AlNバリア(2 nm)層からなる量子井戸構造を用いたGaN系RTDを作製した。GaNよりもバンドギャップの高いAl<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>Nを井戸層に用い、また、井戸層を1.5 nmまで薄膜化することで、第一の量子準位を介した共鳴トンネル現象を実現させた。その結果、量子井戸サブバンド間遷移を抑制し、双安定性を抑制することに成功した(図1)。また、テラヘルツ波発振器実現に不可欠な微分負性抵抗(NDR)に起因する電流変化現象を観測することにも成功した。以上より、テラヘルツ波発振器実現に向けたGaN系RTDの作製技術と設計指針を確立するとともに、解明した双安定性メカニズムの妥当性を確認した。

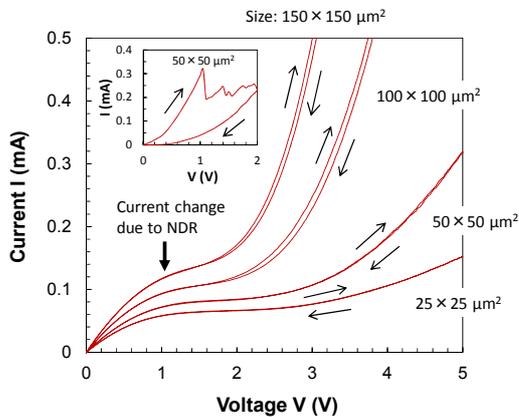


図1 GaN系RTDで生じる双安定性の抑制とNDRによる電流変化現象の観測。挿入図には、テラヘルツ波発振に障害となる双安定性現象を示している。

(2) テラヘルツ波発振器の作製技術の確立

①アンテナ構造設計・作製技術の確立

研究開発当初に予定していた有限差分時間領域(FDTD)法を用いた電磁界シミュレータの代わりに、モーメント法を用いた平面三次元電磁界シミュレータ(ソネット社、Sonnet Lite)を使用することで、アンテナの

アドミタンス特性の高速計算を可能にした。シミュレータにより算出したアンテナのアドミタンス特性に、RTDの等価回路モデルから算出したRTDのアドミタンス特性を加算することで、テラヘルツ波発振器の設計を行った。図2に示すようなパッチアンテナを用いたテラヘルツ波発振器に対して、アドミタンス特性のパッチアンテナ長(L)、RTDメサ直径( $\phi$ )、RTDメサ埋め込み材料の比誘電率( $\epsilon_r$ )、及び、RTDメサ中心とアンテナ中心との位置ずれ量(x)の依存性を計算することで、テラヘルツ帯で発振可能なアンテナ構造を見出した(図3)。また、この発振周波数のアンテナ構造依存性は、FDTD法や有限要素法等による電磁界シミュレータを用いた先行研究の結果[Y. Koyama et al., APEX 6, 064102 (2013)]と差異がなかったことから、モーメント法による平面三次元電磁界シミュレータを用いたアンテナ構造設計法も有効な手段であることを確認した。

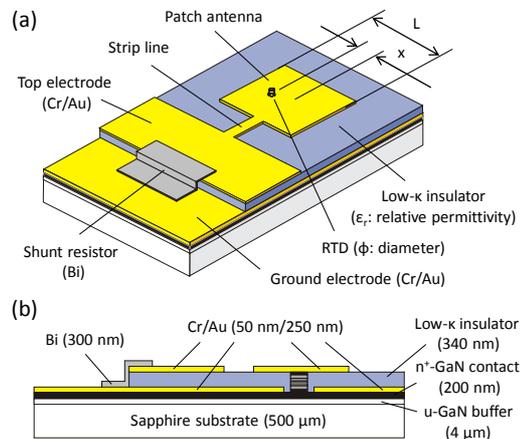


図2 GaN系RTDを用いたテラヘルツ波発振器 (a)全体図と(b)断面図。

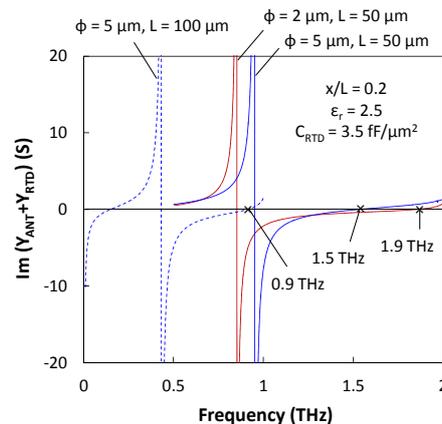


図3 電磁界シミュレータを用いて解析した発振周波数のアンテナ構造依存性。

また、この発振器を実現するための微細加工技術を確立した。大面積で高速な露光を可能にするマスクレス露光装置(フォトリソグ

ラフィー装置)を用いて、数 $\mu\text{m}$ ~数百 $\mu\text{m}$ 角のレジストパターンを歩留り良く形成する技術を確認するとともに、位置精度の高い重ね合わせ露光技術を確認した。また、ドライエッチングを用いた微細メサ構造作製技術や低誘電率材料によるメサ構造埋め込み技術を確認することで、RTD テラヘルツ波発振器実現に向けたアンテナ作製技術を確認した。

#### ②ホモエピタキシャル技術による高品質化

新量子井戸構造を用いることで双安定性の抑制には成功したものの、テラヘルツ波発振に必要な高 PV 比 (ピーク電流とバレー電流の比) の微分負性抵抗を得るまでには至っていない。この原因としては、サファイア基板と GaN 系 RTD の格子定数差によって生じる貫通転位等によって引き起こされる量子井戸構造の不均一性が考えられた。そこで、近年に普及が進んでいる GaN 基板を用いたホモエピタキシャル技術を用いた貫通転位の抑制を行った。また、結晶温度中に発生しやすいバリア層の結晶欠陥を低減するために、バリア層の低 Al 組成化も行った (これに伴い、先の設計指針に従って、量子井戸構造も変更した)。図 4 には、ホモエピタキシャル技術により作製した GaN 系 RTD の HAADF-STEM 像を示している。ホモエピタキシャル技術とバリア層の低 Al 組成化により、GaN 系 RTD の結晶欠陥を大幅に低減することに成功した。また、微分負性抵抗による電流変化現象の観測にも成功した。しかし、テラヘルツ波発振に必要な高 PV 比を得るまでには至らず、更なる GaN 系 RTD の高品質化が必要であることがわかった。大面積成長などに優位性を持つ MOVPE 成長では、ヘテロ界面の平坦性が十分ではなく、ヘテロ界面の平坦性に優れた MBE 成長も視野に入れた取り組みが必要であることが示唆された。今後は、これらの指針をもとに、所属機関の研究テーマとして継続し、GaN 系 RTD の更なる高品質化を行うことで、テラヘルツ波発振器の実現へと繋げていくことを予定している。

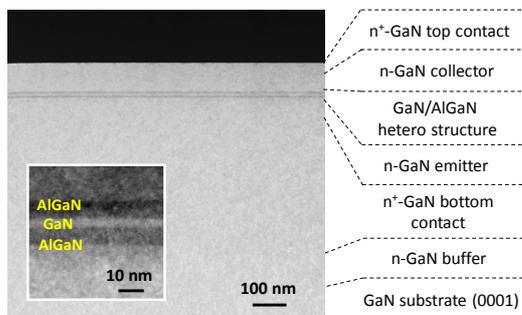


図 4 ホモエピタキシャル技術と低 Al 組成化による GaN 系 RTD の高品質化。挿入図は、GaN/AlGaIn ヘテロ界面の拡大図。

#### (3) その他

本研究課題の最終目標とは異なるが、GaN 系 RTD で生じる双安定性のメカニズムの解明は、GaN 系 RTD の双安定性を用いた新デバイスの創出にも繋がった。量子井戸サブバンド間遷移に起因する双安定性を用いることで、ピコ秒オーダーの超高速不揮発メモリを実現できることがわかった。超不揮発性且つ超高速という特長を活かすことで、次世代の省エネルギー技術をして期待されているノーマリーオフコンピューティング技術などの CPU 用の LI キャッシュへ応用することを検討している。

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① M. Nagase, T. Takahashi, and M. Shimizu, "Resistance switching memory operation using the bistability in current-voltage characteristics of GaN/AlN resonant tunneling diodes", *Japanese Journal of Applied Physics*, vol.55, pp.1003011-1003014, 2016. (査読有)  
DOI:10.7567/JJAP.55.100301
- ② M. Nagase, T. Takahashi, and M. Shimizu, "Investigating the bistability characteristics of GaN/AlN resonant tunneling diodes for ultrafast nonvolatile memory", *Japanese Journal of Applied Physics*, vol.54, no. 3, pp.0342011-0342018, 2015. (査読有)  
DOI: 10.7567/JJAP.54.034201
- ③ M. Nagase and T. Tokizaki "Bistability characteristics of GaN/AlN resonant tunneling diodes Caused by Intersubband Transition and Electron Accumulation in Quantum Well", *IEEE Transactions on Electron Devices*, vol. 61, no. 5, pp1321-1326, 2014. (査読有)  
DOI: 10.1109/TED.2014.2310473

[学会発表] (計 5 件)

- ① 永瀬成範、高橋言緒、清水三聡, 「不揮発メモリ応用へ向けた GaN/AlN 共鳴トンネルダイオードの双安定性の評価」, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 2017/3/16, パシフィコ横浜 (神奈川県横浜市)
- ② 永瀬成範、高橋言緒、清水三聡, 「GaN/AlN 共鳴トンネルダイオードで生じる双安定性の評価」, 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 2016/9/14, 名古屋国際会議場 (愛知県名古屋市)
- ③ M. Nagase, "GaN-Based Resonant Tunneling Diodes and Their Application to THz Sources", *The EMN Meeting on Terahertz 2016 (Invited)*, 2016/5/17, San Sebastian, Spain.
- ④ 永瀬成範、高橋言緒、清水三聡, 「GaN/AlN 共鳴トンネルダイオードで生じる双安定

性の劣化メカニズム」, 第 62 回応用物理学  
会春季学術講演会, 2015/3/13, 東海大学  
(神奈川県平塚市)

- ⑤ M. Nagase, T. Takahashi, M. Shimizu,  
“Temperature dependence of current  
–voltage characteristics of GaN/AlN  
resonant tunneling diodes”, The 41st  
International Symposium on Compound  
Semiconductors, 2014/5/12, Montpellier,  
France.

[その他]

<https://unit.aist.go.jp/esprit/opsd/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

永瀬 成範 (NAGASE, Masanori)

産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・  
主任研究員

研究者番号：80399500