

学位論文題名

# Gas Source Molecular Beam Epitaxial Growth and Cathodoluminescence Characterization of InGaP and GaN Heterostructures

(インジウムガリウムリンおよび窒化ガリウムヘテロ構造の  
ガスソース分子線エピタキシャル成長とカソードルミネッセンス評価)

## 学位論文内容の要旨

20世紀の半導体デバイスの進歩は、インターネット・携帯電話の普及に見られるような世界的な高度情報化をもたらし、“ユビキタス社会”の実現が近年議論されるまでになった。その中で、シリコン大規模集積(Si-LSI)技術は、コンピュータに代表される演算処理装置や記憶装置の進歩をもたらし、一方、III-V族化合物半導体ヘテロ構造デバイスは、携帯電話・衛星通信にみられるような情報通信機器の発展をもたらした。これまでの半導体デバイスの発展の歴史を振り返ると、常に、新材料の発見・高品質化・理論に基づく物性の適正な制御によって、大きな時代の変革・発展をもたらしたデバイスが実現されてきており、将来もその試みの継続によって、新機能・高性能デバイスが実現されると考えられる。

III-V族化合物半導体ヘテロ構造デバイスは、Siデバイスに無い優れた電子輸送特性、発光・受光特性を有する。その中でこれまで多く使用されてきたGaAsヘテロ構造には、AlGaAs/GaAsヘテロ構造が最も多く用いられてきた。しかし、障壁層材料となるAlGaAsは、化学的に活性なAlを含み、結晶中に深い準位が存在することによって、デバイス動作の長期安定性・雑音特性が問題となっている。そこで、そのような欠点が無いInGaP/GaAsヘテロ構造は、AlGaAsに代わる有望なヘテロ構造材料として期待される。また、GaN系ヘテロ構造デバイスは、その大きな禁制帯幅、伝導帯バンド不連続量、高電子密度から、従来の半導体材料では実現不可能であった、高出力、高温動作、短波長発光デバイス用材料として期待される材料である。

InGaP、およびGaN系ヘテロ多層構造は、これまでに、有機金属気相エピタキシー(MOVPE)法、および、ガスソース分子線エピタキシー(GSMBE)法によって、デバイス応用可能な高品質な結晶が得られている。その中でGSMBE法は、成長のその場観察が可能であり、各種の真空ベースの評価装置との接続が容易であることから、高品質ヘテロ多層構造の、成長・特性理解に特に有望な手法である。一方、精密な結晶成長技術を用いて多層に積層されたヘテロ構造について、内部に埋め込まれた各構成層、および各界面の物性を、非接触・非破壊に評価することが可能であれば、その技術はデバイス作製に非常に有用であるが、これまでそのような方法は確立されていない。

以上述べた背景のもと本論文では、次世代の半導体デバイス材料として有望な、InGaPヘテロ構造およびGaNヘテロ構造の、良好に物性の制御された高品質結晶を得ることを目的と

し、GSMBE 法による成長、および、新しく、ヘテロ多層構造の高精度に深さ方向に分解された非接触・非破壊評価法として提案した、深さ分解カソードルミネッセンス法 (CLIS 法) による評価を用い、それらヘテロ構造の物性理解・物性制御について検討したものである。

本論文は 8 章から構成されている。以下に各章の要旨を示す。

第 1 章では、本研究の歴史的背景と目的を述べると共に各章の概要を記している。

第 2 章では、InGaP および GaN ヘテロ構造の成長を行うために用いた、ガスソース分子線エピタキシー方について概説した。まず、他の成長法との比較による特徴について述べた。その後、成長機構について述べた後、本研究用いた装置について述べた。

第 3 章では、ヘテロ構造の評価技術について述べた。ここでは、光学的評価法としての、カソードルミネッセンス(CL)法およびフォトルミネッセンス(PL)法、電気的評価法としての容量-電圧(C-V)測定法および Deep level transient spectroscopy(DLTS)法、化学的評価法として X 線光電子分光(XPS)法について、それらの原理や具体的な装置の概要が説明されている。

第 4 章では、tertiarybutylphosphine(TBP)を用いた GSMBE 法により成長した InGaP ヘテロ構造における、InGaP 層の秩序パラメータの制御、および、ヘテロ構造中に存在する深い準位の評価、除去を試みた。まず、GaAs(001)面上に TBP を用いた GSMBE 法で成長した InGaP/GaAs ヘテロ構造において、III 族原子の秩序構造形成、および、その形成度がヘテロ界面に与える影響について、初めて報告した。次に、InGaP バルク中、および InGaP/GaAs ヘテロ界面に存在する深い準位について、DLTS、PL、CL 法により評価を行った。詳細な評価から得られた深い準位の特性、および成長条件の与える影響の理解を元に成長条件を最適化することで、PL 測定において良好な量子準位からの発光が観測される InGaP/GaAs/InGaP 量子井戸構造を成長することに成功した。

第 5 章では、GaN 量子細線ネットワークの作製を目指し、反応性イオンビームエッチングを用いて作製した GaN (0001)面上の AlGaIn/GaN ヘテロ構造の選択成長を試みた。まず、バルク AlGaIn の成長を行い、成長 AlGaIn 層の組成の制御性について考察した。その後、 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 、 $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ 両方向のメサストライプパターン上に AlGaIn/GaN ヘテロ構造の選択成長を行い、成長量の選択性について考察した。 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 方向の加工基板上に選択成長を行った試料に対する CL 測定から、メサ構造頂上部における細線状の発光を観測し、量子細線が作製可能であることを示した。

第 6 章では、本研究で提案した深さ分解 CL (CLIS) 法について説明した。原理、および計算機シミュレーションによる理論解析手法について説明し、それらを GaAs バルク、および単一 InGaP/GaAs ヘテロ構造に応用した。実験結果から、深さ分解評価手法として CLIS 法が有効であることを示すとともに、理論計算結果が実験結果とよい一致を示したことから、本研究で用いた計算機シミュレーションによる定量的解析手法の有効性も示した。

第 7 章では、CLIS 法を InGaP/GaAs ヘテロ構造、AlGaIn/GaN ヘテロ構造、および、3 次元交差量子細線構造に応用し、その評価を行った。InGaP/GaAs ヘテロ構造に CLIS 法を応用した結果、InGaP/GaAs 界面に局在した欠陥からの発光を明確に他の発光と分離することに成功した。AlGaIn/GaN ヘテロ構造に対して、詳細なコンピュータシミュレーションとともに発光・再結合過程の解析を行った結果、GaN バルク中に存在する深い準位からの発光であるイエロールミネッセンスの特性について、その空間的分布、荷電状態を同定した。また、GaN 単層では、室温において、表面再結合および、バルクでのエキシトンの支配的な非発光再結合が存在することを示した。最後に、3 次元的に交差した量子細線構造に対して CLIS 法を適用した結果、明確に表面側・深部それぞれの細線からの発光を分離することに成功し、CLIS 法がそのような多層・複雑な構造に対しても有効であることを示した。

第 8 章では、本論文の結論を述べている。

# 学位論文審査の要旨

主査	教授	長谷川	英機
副査	教授	福井	孝志
副査	教授	佐野	栄一
副査	助教授	橋詰	保

学位論文題名

## Gas Source Molecular Beam Epitaxial Growth and Cathodoluminescence Characterization of InGaP and GaN Heterostructures

(インジウムガリウムリンおよび窒化ガリウムヘテロ構造のガスソース分子線エピタキシャル成長とカソードルミネッセンス評価)

現在の高度情報社会は、さらに、全ての人々があらゆる局面で高品位の情報を入手・共有・交換できる「次世代ユビキタスネットワーク社会」の実現を目指し、急速な発展を示している。これに伴い、情報通信ハードウェアシステムの基幹をなす半導体電子デバイス・集積回路に対して、さらなる高性能化が求められている。ガリウムヒソ(GaAs)やインジウムリン(InP)に代表される化合物半導体の異種(ヘテロ)接合を巧みに利用したヘテロ構造デバイスは、シリコンデバイスに無い優れた電子輸送特性、発光・受光特性を有するため、これまでに新機能・高性能の電子・光デバイスを生み出し、高度情報通信システム発展の強力な牽引車となってきた。

その中心的存在は、GaAs系のAlGaAs/GaAsヘテロ構造である。しかし、障壁層材料となるAlGaAsは、化学的に活性なAlを含み、結晶中に深い準位が高密度に存在するため、デバイス動作の長期安定性・雑音特性に問題があった。そこで、この欠点を克服できるInGaP/GaAsヘテロ構造は、AlGaAs/GaAsに代わる有望なヘテロ構造材料として期待され、それを超高速電子デバイスへ応用する研究が活発に進められている。

さらに、最近、窒化ガリウム(GaN)系ヘテロ構造材料は、その大きな禁制帯幅、伝導帯バンド不連続量、高電子密度から、従来の半導体材料では実現不可能であった短波長発光デバイスや、高出力、高温動作の電子デバイス用の材料として非常に期待されるに至っている。

これらの材料は、精密な結晶成長技術を用いて多層に積層されたヘテロ構造をとるので、内部に埋め込まれた各構成層および各ヘテロ界面の光学的・電子的特性がデバイス特性を大きく左右する。したがって、これらを非接触・非破壊に評価することが可能であれば、実際のデバイス構造のまま、あるいはそれに近い構造で材料特性評価ができ、デバイスの研究開発にとって極めて有力となる。しかしながら、これまでそのような評価方法は確立されていない。

本論文は、以上の背景のもとに、ガスソース分子線エピタキシー(GSMBE)法を用いて、InGaPヘテロ構造およびGaNヘテロ構造を成長し、それらを本研究で提案した「深さ分解カソードルミネ

ッセンス法 (CLIS 法)」で非接触・非破壊評価することにより、これらヘテロ構造材料の物性を解明するとともに、CLIS 法の原理、解析手法と実用的有用性を確立することを試みたものである。

本論文は 8 章から構成されている。以下に各章の要旨を示す。

第 1 章では、本研究の背景と目的および各章の概要を述べている。

第 2 章では、InGaP および GaN ヘテロ構造の成長に用いたガスソース分子線エピタキシー(GSMBE)法について、他の成長法との比較、成長機構モデルについて概説し、本研究で用いた装置について説明している。

第 3 章では、半導体ヘテロ構造の評価法を概説している。本研究で主として用いた、カソードルミネッセンス(CL)法、フォトルミネッセンス(PL)法、容量-電圧(C-V)測定法、Deep level transient spectroscopy (DLTS)法、X 線光電子分光(XPS)法について、それらの原理や具体的な装置の概要が説明されている。

第 4 章では、tertiarybutylphosphine(TBP)を用いた GSMBE 法により成長した InGaP ヘテロ構造における、InGaP 層の秩序パラメータの制御、およびヘテロ構造中に存在する深い準位の評価と抑制法を検討している。TBP を用いた GSMBE 成長における III 族原子の秩序構造形成機構を初めて明らかにした。さらに、InGaP バルクおよび InGaP/GaAs ヘテロ界面に存在する深い準位を、DLTS、PL、CL 法により詳細に評価し、準位の起源や成長条件と準位生成の相関を明らかにし、その結果をもとに成長条件の最適化をはかっている。

第 5 章では、反応性イオンビームエッチングを用いて作製した GaN (0001)面加工基板上への AlGaIn/GaN ヘテロ構造の選択成長を検討している。<11-20>と<1-100>方向のメサストライプパターン上に AlGaIn/GaN ヘテロ構造の選択成長を行い、<11-20>方向の加工基板上に選択成長を行った場合、メサ構造頂上部における細線状の CL 発光が観測され、量子細線が作製可能であることを実証している。

第 6 章では、ヘテロ構造の新しい非接触・非破壊深さ分解評価手法として、「深さ分解カソードルミネッセンス法 (CLIS 法)」を提案し、その原理および計算機シミュレーションによる定量的理論解析手法を提示している。また、それを標準的 GaAs バルク結晶および InGaP/GaAs ヘテロ構造に適用し、CLIS 法が極めて有望であることを示すとともに、計算機シミュレーションによる定量的解析手法の有効性を実証している。

第 7 章では、CLIS 法を、欠陥を含む InGaP/GaAs ヘテロ構造、AlGaIn/GaN ヘテロ構造、および 3 次元交差量子細線構造に適用した結果を述べている。その結果、InGaP/GaAs ヘテロ構造界面に局在した欠陥からの発光を他の発光と明確に分離するとともに、GaN バルク中に存在する深い準位の空間的分布、荷電状態、再結合機構を同定することに成功している。さらに、3 次元的に交差した量子細線構造に対して、深さ方向に対して明瞭に分離した CL 像を得ており、CLIS 法が複雑な多層構造の評価に非常に有効であることを示している。

第 8 章では、本論文の結論を述べている。

これを要するに、本論文は、半導体ヘテロ構造の新しい非接触・非破壊評価法として「深さ分解カソードルミネッセンス法 (CLIS 法)」を提案し、それを InGaP ヘテロ構造および GaN ヘテロ構造に適用し、CLIS 法の解析手法と実用的有効性を確立・実証するとともに、新ヘテロ構造材料の物性を解明したものであり、ここで得られたヘテロ構造の物性評価と制御に関する新しい知見は、半導体工学の進歩に寄与するところ大である。

よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格ある者と認める。