

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」

研究課題
「温度安定性に優れた光通信用
InN半導体レーザの研究」

研究終了報告書

研究期間 平成18年10月～平成24年3月

研究代表者：松岡隆志

(独)東北大学 金属材料研究所、教授

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究チームの研究課題は、バンドギャップ・エネルギーの温度安定性が高いことが期待されている InN を用いて、現在の光通信において用いられている単一縦モード発振レーザである分布帰還型 (DFB) レーザの研究である。研究開始当初のチーム構成は、「薄膜結晶成長・デバイス化技術」グループ (東北大)、「新基板結晶作製技術」グループ (早稲田大)、「回折格子作製技術」グループ (情報通信機構)、および、「ヘテロエピタキシャル成長機構の解明と結晶評価」グループ (日本電気 基礎・環境研究所) であった。各グループのミッションは、それぞれ、本研究の中心材料である InN 薄膜のエピタキシャル成長とその素子化、エピタキシャル成長において基本となる格子整合基板材料の探索と基板作製、および、DFB レーザ用回折格子の作製技術の確立である。19 年度途中で、会社都合により、日本電気 基礎・環境研究所は離脱した。InN 薄膜の物性評価を強化するために、21 年度から新たに「薄膜光学物性評価」グループ (京都工芸繊維大) を加えた。中間評価の段階で InN エピタキシャル成長に関する技術の進展が計画より遅れていたことから、本研究の最終目標であった DFB レーザの作製から $1.55\ \mu\text{m}$ で発光する LED の作製に減縮した。それに伴い、研究項目を絞るため、同じ窒化物半導体である GaN エピタキシャル薄膜に回折格子を形成できる段階に至っていた「回折格子作製技術」の研究を平成 21 年度末に中止した。

「薄膜結晶成長・デバイス化技術」グループでは、気相・固相間の窒素平衡蒸気圧に打ち勝ち、エピタキシャル成長に重要なステップ成長を促進できる加圧下でのエピタキシャル成長を行うために、20 年来の窒化物半導体のエピタキシャル成長の経験を活かして、加圧型有機金属気相成長装置を開発した。成長時に気相から供給される窒素を捕獲しやすくするために、通常窒化物半導体の世界で用いられている Ga 極性と逆の N 極性成長を採用した。一般に、N 極性成長は難しいとされているが、本グループでは Ga 極性成長以上の結晶性の N 極性 GaN 成長技術を実現できていることにより、初めてこの選択が可能となる。この結果、サファイア基板上に、表面がほぼ平坦な InN 薄膜の成長が可能となった。

「薄膜光学物性評価」グループにおいて、ラマン散乱分光法の測定とその解析を詳細に行い、加圧雰囲気中で成長することによって結晶性の向上を確認した。しかし、1~2 気圧成長の場合に対して、3 気圧成長では成長条件によっては立方晶 InN が混入しやすいことを確認した。高品質結晶を得やすい 3 気圧において、原料供給比 (V/III 比)、膜厚依存性および成長温度依存性を調べた結果、純粋な六方晶 InN は比較的高温域で成長しやすく、さらに窒素とインジウムとの原料供給比すなわち V/III 比が高いとき、成長速度が遅いとき、立方晶が混入しにくいことを明らかにした。この評価に基づいて、成長条件を吟味し、六方晶だけからなる InN 薄膜成長に成功している。

「新基板結晶作製技術」グループでは、InN に対する格子不整合が 5% 以下の新基板結晶材料として、研究開始当初、 $\beta\text{-FeSi}_2$ と REInO_3 (RE; La, Nd) を取り上げた。しかし、結晶成長上の種々の問題から、大型結晶成長の可能性を見出せなかった。これらに代えて、InN との格子不整合性 1% 以下を期待できる REBGeO_5 (RE; La, Pr) を新たに発案し、単結晶育成を実施した。LaBGeO₅ や PrBGeO₅ を選定し、直径 ~10mm および長さ ~50mm の単結晶育成に成功した。{0001} 面基板を作製、InN 薄膜成長 MOVPE における対アンモニア耐性、InN 薄膜堆積を「薄膜結晶成長・デバイス化技術」グループで検討して {001} InN 膜の成長を確認、基板としての可能性を明らかにした。

(2) 顕著な成果

1. InN薄膜のエピタキシャル成長用加圧型有機金属気相成長装置の開発と、加圧成長の有効性に関する論文。

概要: 気相・固相間の窒素平衡蒸気圧に打ち勝ち、かつ、格子不整基板上へのエピタキシャル成長時に重要な成長島のファセット成長に重要な加圧雰囲気での成長を可能にする気相成長装置の開発と、本装置による高品質InN薄膜の成長を報告した。

2. InN薄膜の成長において条件によっては六方晶型結晶構造への立方晶の混入する可能性があることを指摘する論文

概要: 純粋な六方晶 InN は比較的高温域で成長しやすく、さらに窒素とインジウムとの原料供給比すなわち V/III比が高いとき、成長速度が遅いとき、立方晶が混入しにくいことを明らかにした。

3. InNへ格子整合する基板材料として LaBGeO₅ 結晶の提案、単結晶育成技術の構築、および、InNの有機金属成長への適用性に関する論文、特許申請および育成技術指導。

概要: InNに対する格子不整合率1%以下となる上記結晶の単結晶育成技術を構築し、直径約 10mm および長さ約 50mm の単結晶育成に成功。本結晶を基板に加工し、その上にInN薄膜をエピタキシャル成長し、成長環境に対する基板の耐性と有効性を確認した。

§ 2. 研究構想

(1) 当初の研究構想

本研究の目標は、光ファイバ通信用光源として、低密度波長分割多重通信方式(CWDM)の低価格化のためにペルチェ素子による冷却を必要としない uncooled laser と、高密度波長分割多重通信方式(DWDM)の高密度化のために波長間隔の狭小化を可能にする波長に関して温度安定性に優れたレーザとを、実現することである。狙いとする具体的な素子は、現在光通信用光源として主に用いられており、単一縦モードで発振する分布帰還型(DFB:Distribute Feed Back)レーザである。現用のDFBレーザでは、発光層と導波路層の材料はInGaAsPであり、その他の層構造はInPからなっている。これに対して、本研究では、InNを中心とする窒化物半導体を用いてレーザを作製する。

InN エピタキシャル成長

本研究の目標達成のために最も重要な課題は、高品質InN薄膜を得ることである。結晶成長法には、大量生産が可能であり、組成制御が容易な有機金属気相成長法(MOVPE: Metalorganic Vapor Phase Epitaxy)を用いる。気相成長においては常に気相・固相間の平衡蒸気圧に注意をする必要がある。InNの窒素の平衡蒸気圧を、他の窒化物半導体、および、従来からあるIII-V族半導体材料におけるV族の蒸気圧と比較して図1に示す。図から明らかのように、InNの窒素平衡蒸気圧は極めて高い。気相・固相間における高い窒素平衡蒸気圧に打ち勝つために、既設の縦型の成長炉からなるMOVPE装置に横型炉に変更する。成長条件を探索するとき、成長炉内でのガス対流のない横型炉では、成長条件に科される制限が少ないため、InN成長に適すと考えられるためである。InN成長用の相図を作成し、既に得ている縦型炉での相図と比較し、高品質InN成長条件のガイドラインを得、高品質InN成長につなげる。成長においては、気相から供給される窒素を固相中に捕獲しやすい窒素極性を用いる。基板には、研究当初はサファイアを用いる。気相から供給される窒素を結晶中に取り込むために、六方晶系特有の極性を考慮する。図2に示すように、c軸方向に成長するとき、In極性では、1個の窒素原子は1個のIn原子で捕獲される。これに対して、N極性成長では、1個の窒素原子は3個のIn原子で捕獲されることになる。通常、GaNの成長においては、Ga極成長が用いられている。通常、窒素極性成長では、結晶表面が荒れ、p型も得られないとされてきた。しかし、我々は独自の技術を確認しており、N極性成長GaNにおいても、Ga極性と同等以上の結晶性と表面の平坦性を確保できており、p型も実現できている。この技術を活かし、本課題に挑戦する。

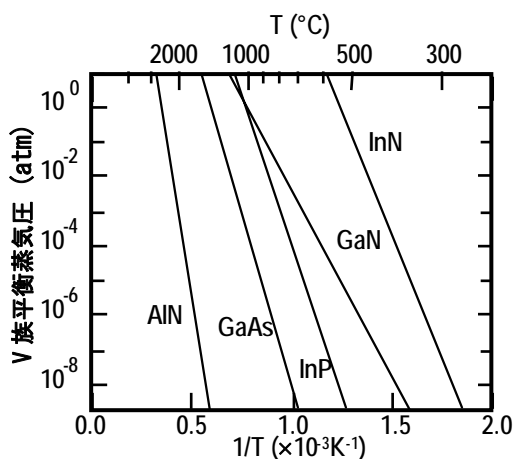


図1 III-V族半導体の気相-固相間のV族平衡蒸気圧

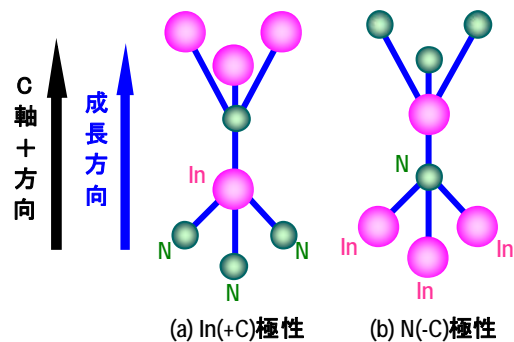


図2 InNの極性

単結晶基板作製

InN に適した基板結晶についての報告はほとんどなく、基板結晶材料の検討から始める必要がある。提案者がこれまでに経験している多くの材料から着目したのは、ペロブスカイト (GdFeO₃) 構造系材料である。多くの GdFeO₃ 構造系結晶は斜方晶系に属し、その(011)と(101)面は六方系表面格子となり、ウルツ鉱構造である InN 層の基板として構造の類似性および極性を有する点から適している。そこでこのペロブスカイト構造を有し、InN の格子定数に近い REInO₃ に着目した(RE;希土類元素)。一方、デバイス面からは導電性基板が強く望まれることから、金属性 FeSi を基板にして半導体 β -FeSi₂ のエピ成長を追求する。その{101}/(011)面格子の格子定数は 7.405 Å で InN(3.537 Å)との格子不整合率は約 4.5%であり、InN に整合する材料として期待できる。単結晶育成の可能性は、その化合物が単相で熔融・結晶化によって決められる。上記 REInO₃ は、少なくとも文献上では単相熔融系である。これまで REInO₃ (RE:La, Nd, Sm) の結晶育成の実例は見当たらない。浮遊帯熔融 (Floating Zone; FZ) 法では結晶直径としてせいぜい 5mm ϕ しか望めないため、大形結晶成長に適した熔融引上げ (チョクラルスキー Czochralski; Cz) 法に移行する。これにより 1~1.5 インチ径の単結晶を実現する。結晶育成で危惧されることは、これら化合物の融点が 1500°C 以上であることから、成長中に起こると思われる InO_x の蒸発である。そのため、育成装置はできるだけ密閉系を採用する。基板 FeSi は Cz 法で単結晶を育成し、 β -FeSi₂ は熔融塩 (フラックス) の選定により FeSi 基板上に厚膜を成長させる手法を進める。

DFBレーザに内蔵される回折格子の作製

ナノインプリント技術を用いる。結晶基板へのパタン形成において、レジストを介した転写を重点的に実施し、低価格な研究開発型装置の開発と関連する技術蓄積を目標とする。その際、大面積 (2 インチ目標)、高均質、及び再現性ある回折格子形成技術を確認することを本研究計画の主要課題とする。具体的には現行装置で行っている熱転写方式に加えて、比較的低压カ印加で転写可能な光転写方式にも適用できるよう装置改造を行う。また、デバイス化に対応するために、結晶方位と回折格子方位との合わせを数度以内の精度で可能にするアライメント機構を検討する。本計画では、光デバイスの研究開発用途を念頭にして、パタン転写時の高精度位置あわせが可能なアライニング機構を設計し、既存 DFBレーザにも適用可能な普遍的な回折格子作製技術を確認する。また、ナノインプリントと結晶成長を直接結びつけた新しい回折格子作製技術についても検討を行う。

初年度は成長装置、評価装置、プロセス装置、及び設計手法の立ち上げを中心に行い、2年度に成長技術の向上と、新材料の作製と結晶評価に関する技術の充実を図り、3年度以降にデバイス化を行う。最終的には、新しく開発する格子整合基板上に InN を発光層とする DFBレーザを作製する。

(2) 新たに追加・修正など変更した研究構想

InN エピタキシャル成長

加圧型有機金属気相成長装置を用いて InN エピタキシャル成長を行ったところ、計画通り、高品質化に大きな効果があることを確認した。結晶品質の詳細な評価のために 21 年度に新たに参加してもらった参画した「薄膜光学物性評価」グループによるラマン散乱分光法を用いた評価によって、基本結晶構造である六方晶に立方晶が混入する可能性があることを、初めて分かった。これに伴って、成長条件の詳細な吟味の必要性が生じ、この点を考慮して研究を推進した。

新基板結晶作製

研究進捗とともに、当初計画の結晶種の大形化や育成の難度が高いことが判明した。そこで、InN と格子整合する新しい結晶種の探索的育成を行った。候補として LaBGeO₅ の単結晶育成開発に着手した。なお、中間報告以降、それまで進めた 4 種の新結晶を取捨選択して、

技術移転を視野に入れて β -FeSi₂ と LaBGeO₅ の2種に集中して進展を図った。

最終目標の変更

中間評価の段階で InN エピタキシャル成長に関する技術の進展が計画より遅れたことから、本研究の最終目標であったDFBレーザの作製から1.55 μ m で発光するLEDの作製に減縮した。

チーム構成の変更

19年度: 年度途中で、会社都合により、日本電気 基礎・環境研究所が離脱。

21年度: InN 薄膜の物性評価を強化するため、新たに「薄膜光学物性評価」グループ(京都工芸繊維大)を追加。最終目標の減縮に伴い、同じ窒化物半導体であるGa_{0.5}In_{0.5}N エピタキシャル薄膜に回折格子を形成できる段階に至っていた「回折格子作製技術」の研究を中止。研究結果を活かすべく、担当者は本研究課題と同じ領域の研究課題「230-350nm 帯 InAlGa_{0.5}N 系深紫外高効率発光デバイスの研究」に移行。

§ 3 研究実施体制

(1) 「薄膜結晶成長・デバイス化技術」グループ(東北大学)

① 研究参加者 (東北大)

氏名	所属	役職	参加時期
松岡 隆志	東北大学 金属材料研究所	教授	H18.10~24.3
片山 竜二	東北大学 金属材料研究所	准教授	H21.4~24.3
劉 玉懷	東北大学 金属材料研究所	助教	H19.7~23.6
張 源涛	東北大学 金属材料研究所	産官学連携研究員	H20.8~24.3
木村 健司	東北大学 金属材料研究所	MC1~D2	H18.10~21.3
木村 健司	東北大学 金属材料研究所	D3	H21.4~22.3
木村 健司	東北大学 金属材料研究所	D4, D5	H22.4~24.3
柳沼 智子	東北大学 金属材料研究所	事務補助員	H18.10~24.3
中尾 正史	東北大学 金属材料研究所	産官学連携研究員	H18.10~19.6

② 研究項目

- InN 薄膜エピタキシャル成長技術を確立する。
- InN の物性を明らかにする。
- InN を用いて、1.55 μ m で発光するレーザダイオードを作製し、その温度安定性を明らかにする。

(2)「薄膜光学物性評価」グループ

① 研究参加者

京都工芸繊維大学:H21 年度参画

氏名	所属	役職	参加時期
播磨 弘	京都工芸繊維大学 工芸科学研究科	教授	H21.4~24.3
蓮池 紀幸	京都工芸繊維大学 工芸科学研究科	助教	H21.4~24.3
金 廷坤	京都工芸繊維大学 工芸科学研究科	D3	H21.4~24.3

日本電気(株):会社都合により H19 年度離脱

氏名	所属	役職	参加時期
五明 明子	日本電気(株) 基礎・環境研究所	主任研究員	H18.10~19.7

② 研究項目

- ・InN 薄膜の結晶構造を評価する。
- ・InN 薄膜の光学物性を評価する。
- ・素子設計に必要な屈折率や吸収係数を測定する。

(3)「新基板結晶作製技術」グループ(早稲田大学)

① 研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
中江 秀雄	早稲田大学 基幹理工・航空科学研究科	教授	H18.10~24.3
宮澤 信太郎	早稲田大学 理工学研究科	客員教授	H18.1~21.3
宮澤 信太郎	早稲田大学 各務記念材料技術研究所	客員上級 研究員	H21.4~24.3
花田 徹	早稲田大学 大学院 理工学研究科	M2	H19.4~20.3

② 研究項目

- ・InN に格子整合する基板結晶材料の探索とその単結晶育成技術を構築して InN の MOVPE 成長基板への適応を図る。

(4)「回折格子作製技術」グループ (H21 年度末に中止)

① 研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
横山 士吉	情報通信研究機構	グループリーダー	H18.10~12
益子 信郎	情報通信研究機構	研究企画部長	H19.1~22.3

田中 秀吉	情報通信研究機構	主任研究員	H19.1～H20.3
大友 明	情報通信研究機構	研究マネージャー	H19.4～H20.5
中尾 正史	情報通信研究機構	専攻研究員	H19.7～22.3

②研究項目

- DFB レーザ作製のために必要とする回折格子を、窒化物半導体や新単結晶基板上に容易に作製する技術を確立する。

§ 4 研究実施内容及び成果

4. 1 薄膜結晶成長・デバイス化技術(東北大学 松岡グループ)

(1)研究実施内容及び成果

薄膜エピタキシャル成長法として、発光ダイオードや半導体レーザーの作製に広く用いられている有機金属気相成長(MOVPE)法を採用した。気相-固相間での高い窒素平衡蒸気圧 P_N に打ち勝つために、従来から保有していた縦型反応炉で問題となるガスの熱対流を避けるため、横型反応炉に改造し、成長可能条件を示す相図を作成した。縦型反応炉に比べ、高品質成長に有利な成長温度の高温化を図ることができ、結晶性を表すX線回折線幅が一桁低減し、結晶性を改善できた。また、成長速度も20~30倍向上した。この横型反応炉の特性を活かし、より高品質成長のため、加圧下で成長できるMOVPE装置を新たに設計し、導入した。その結果、下記の成果を得た。

(a) InN の相図

気相-固相間での高い窒素平衡蒸気圧に打ち勝つ可能性を有する加圧横型MOVPE装置を用いて、加圧下でのInN成長条件の探索の基本となる相図を作成した。比較のため、減圧縦型炉と減圧横型炉のデータも、図1.1に同時に示す。なお、横軸はインジウム原料であるトリメチルインジウム(TMIn)の流量である。成長条件については、 NH_3 流量15slmを一定とし、成長圧力650Torr(減圧炉)と2400Torr(加圧炉)とで、サファイア基板上へInNを直接成長した。加圧MOVPE装置を用いることによって、減圧炉より高温での成長が可能となり、単結晶成長領域を拡大できた。

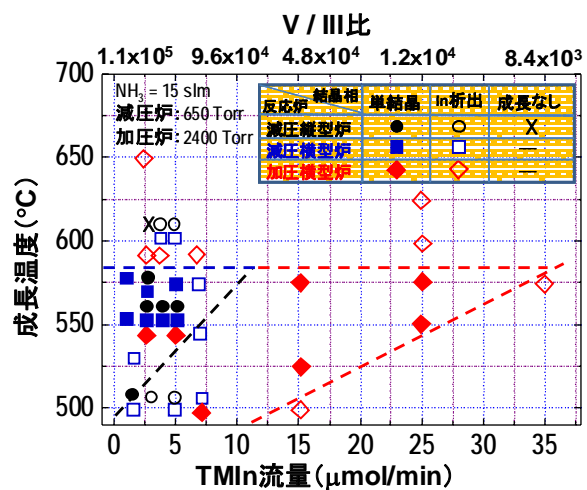


図 1.1 InN 成長の相図

(b) 緻密性の改善

圧力2400Torrおよび成長温度600°Cで成長したInN膜の表面モフォロジを、図1.2(a)に示す。減圧成長に比べ、2400Torrでの加圧成長によって、サファイア基板が全面被覆されている。また、図1.2(b)の走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて観察した断面図から分かるように、2400Torrの加圧成長InNは、緻密な構造となっている。

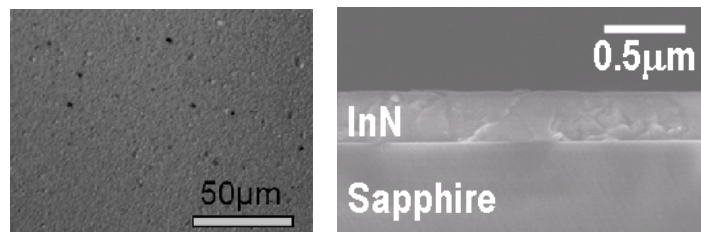


図 1.2 圧力2400Torr成長InN

(c) InN 加圧成長のメカニズム

成長における圧力効果を解明するため、InN表面モフォロジの成長炉圧力依存性を調べた。減圧650Torrでの減圧成長の条件は、減圧下での上限に近い成長温度550°CおよびV/III比25,000である。加圧成長においては、成長温度625°CとV/III比25,000の一定条件下で、成長圧力1200および1600Torrでサファイア基板上へInN膜を直接成長した。図1.3(a)に示す原子間力顕微鏡(AFM)像から、650Torrでは、成長島は基板面に斜めに傾斜した結晶面で構成されていることが分かる。1200Torr成長では、図1.3(b)から、成長島は六角形板状結晶

であり、その側壁はM面、上面はC面で形成される。成長圧力 1600Torr では、図 1.3 (c) に示すように、成長島の会合が促進され、基板全面が InN によってほぼ埋め尽くされている。以上のことからヘテロエピタキシャル成長において高品質薄膜を得るために必要な成長島の側壁を基板面に垂直な面に保つ成長モードを実現し、平坦膜を得ることに加圧成長によって初めて成功した。成長に必須であるこの側壁を基板面に垂直な低次の指数面(M面)にするには、高温かつ加圧が必要であることが分かった。

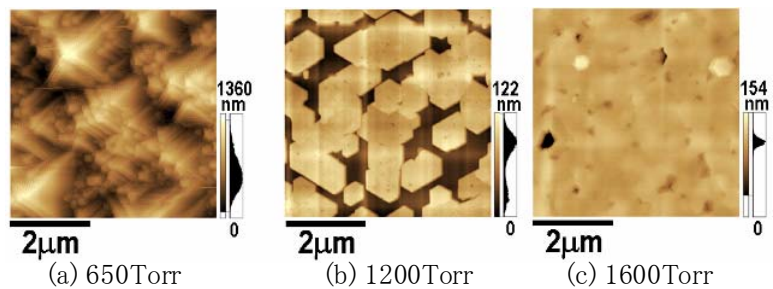


図1.3 加圧成長炉におけるInN結晶表面モフォロジの成長圧力依存性

(d) 低温バッファ層作製

ヘテロエピタキシャル成長において、高品質エピタキシャル成長には、基板とエピタキシャル成長層間の格子不整を緩和する低温成長バッファ層が有効である。しかしながら、InN の場合には、常圧での低温成長では、金属 In ドロップレットが発生してしまっていた。この問題に対して、温度 450°C および V/III 比 25,000 の条件で加圧成長することによって、金属 In ドロップレットを生じることなく成長することに成功した。図 1.4 に示す X 線回折において干渉フリンジを観察できるほど平坦な膜を得ることができた。図 1.4 の挿入図に示す AFM 像からも、平坦な表面モフォロジを確認できる。

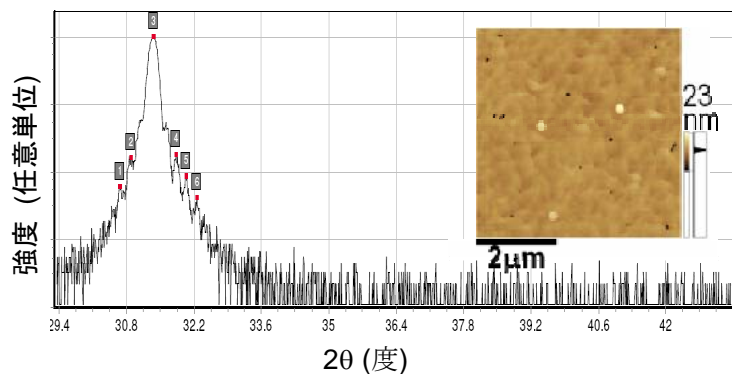


図1.4 InN低温バッファ層のX線回折プロファイル

(e) InN の相純度と成長条件の相関

ラマン散乱の測定から判明したウルツ鉱型結晶 (WZ) へのジンクブレンド型結晶 (ZB) の混入を X 線回折によっても確認するために測定した極点図を図 1.5 に示す。測定に際しては、X 線検出器の位置 2θ を WZ の (0002) 面回折に調整している。ZB (111) 回折の角度が差分 0.06° 程度とほぼ同じであることから、この 2θ で同時に検出できる。(a) は中心に単一峰を示し、WZ 単一であることが分かる。一方、(b) では (a) の信号に加えて、仰角 χ 71° に 3 回対称の信号が二組、合計 6 個の信号が出ている。この信号は、ZB (111) による。このことから、X 線回折によっても、ZB の混在を確認できた。ZB の混在を避けるため、成長条件を詳細に検討した。加圧型 MOVPE により、NH₃ 流量 8.5slm、成長圧力 1600Torr および TMIn 流量 15 μ mol/min 一定の条件で InN を成長した。成長温度は 500 ~ 575°C である。InN の X 線回折の極点図における X 線回折強度

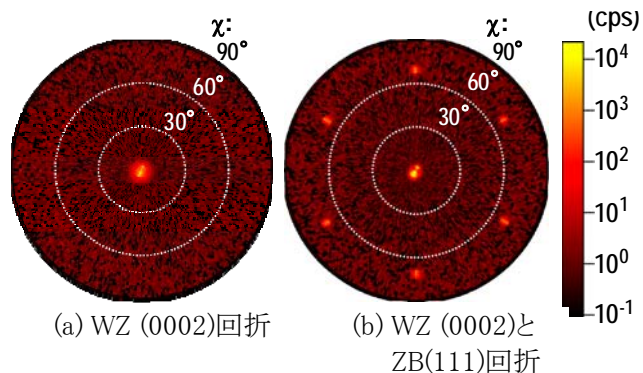


図1.5 InNのX線回折における極点図

比を相純度と定義して、図 1.6 に示す。成長温度 550°C以下では、ZB が混入しているのに対して、成長温度 575°C以上では WZ が支配的となる。このことから、WZ を得るためには、高温成長が必須であることが分かる。成長圧力 2400Torr における相図を図 1.7 に示す。成長条件は、NH₃ 流 15slm および TMI_{in} 流量 3~35μmol/min、および、成長温度 550~700°C である。TMI 供給量が少ないほど、相純度が高くなる事が分かる。また、成長温度の依存性については、成長圧力 1600Torr と同様の傾向を示した。

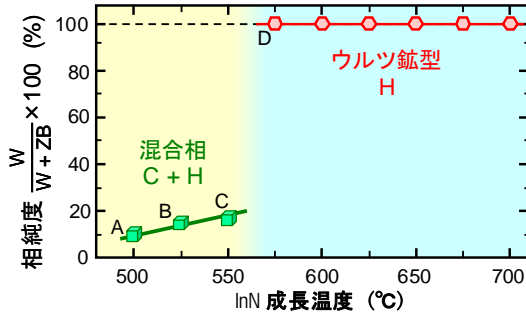


図 1.6 1600Torr 成長 InN 相純度の成長温度の依存性

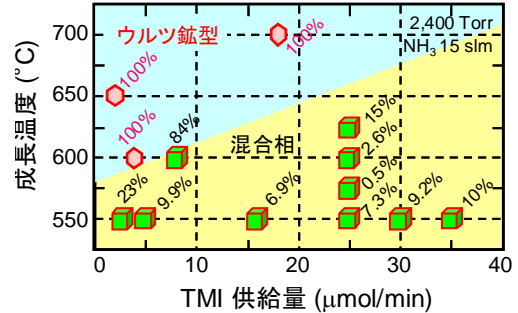
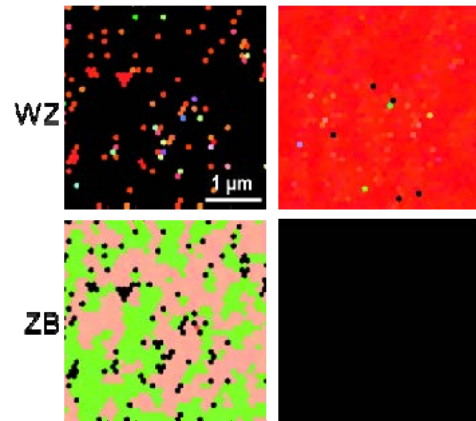


図 1.7 2400Torr 成長 InN 相純度の成長温度と TMI 供給量の依存性

電子線後方散乱 (EBSD) 法で測定した結晶表面の相分布を図 1.8 に示す。赤は、WZ を示し、黄緑とベージュは ZB を示す。黒は回折がないことを示す。500°C 成長では、ZB が主であり、600°C 成長ではほぼ 100% WZ であることが分かる。



(a)500°C (b)600°C

図 1.8 電子線後方散乱法で測定した相分布の成長温度比較

(f) InN バンドギャップ・エネルギー E_g の温度依存性

透過スペクトル測定によって測定したバンドギャップ・エネルギーの温度依存性を図 1.9 に示す。赤色はデータ点であり、バーは測定誤差を示している。青色は回帰曲線を示す。この回帰曲線には、半導体のバンドギャップの温度依存性を表す経験的な式として用いられる Vina の式を用いた。Vina の式は、

$$E_g(T) = E_g(0) - a \frac{2}{\exp\left(\frac{\theta}{T}\right) - 1} \quad (1)$$

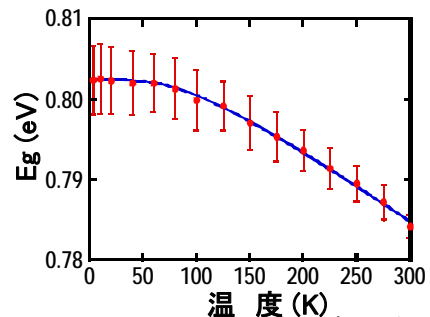


図 1.9 InN バンドギャップ・エネルギーの温度依存性と Vina の式によるフィッティング

で表わされる。 E は禁制帯幅、 T は温度、 a は電子-格子相互作用の大きさ、 θ はフォンの平均エネルギーに対応する温度である。図 1.9 の回帰直線から、InN の a と θ の値を求め

た。また、従来からある半導体材料と比較して、表1.1 に示す。本研究で得た数値は、1990年代に報告されていた多結晶 InN とバンドギャップ・エネルギーを初めとし、かなり違っている。多結晶 InN の場合には、その製法から酸素の混入が考えられる。窒化物半導体は、概して Si や従来からある化合物半導体より、バンドギャップの温度依存性が小さいことが予想される。θ は、デバイ温度にほぼ比例するパラメータであり、窒化物半導体は概して従来からある III-V 族半導体より大きい。多結晶 InN の比熱測定から求めたデバイ温度は約660 と報告されている。本研究で求めた θ から予測すると、デバイ温度は420K 程度となる。466である。本研究では酸素の混入を避けることができることから、真値に近いと思われる。各種半導体のバンドギャップの温度依存性の測定値を図 1.10 に比較して示す。やはり窒化物本研究の提案当初には品質の高くない結晶を用いて、温度依存性を評価していたが、研究の狙いとする温度安定性に優れたレーザ材料として InN が十分に期待できることを再確認した。

表 1.1 各種半導体の Vina 式の定数

物質	$E(0)$ (eV)	a (meV)	θ (K)
Si	1.17	41.2	305
GaAs	1.51	57	240
InP	1.42	35.9	209
AlN	6.25	471	725
GaN	3.51	69.2	344
多結晶 InN	1.99	43.9	466
本研究	0.80	12.6	266

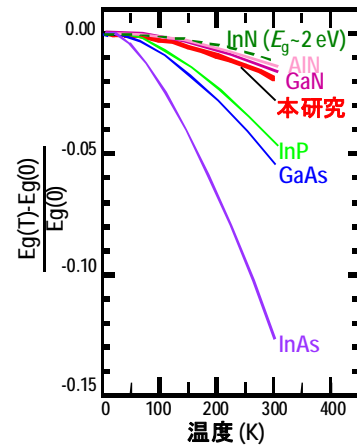


図 1.10 各種半導体における E_g のバンドギャップ・エネルギーの温度依存性

(g) InNバンドギャップの温度安定性が高い要因

約 0.65 eV のバンドギャップを有する InN は、上述したようにバンドギャップの温度依存性は小さい。本項ではその要因について述べる。図 1.11 に示すように、InN の N 空孔 (右上 3 本) と、N の O 置換 (左上 1 本) の欠陥準位は、伝導帯底 (CBM) の上にあると計算されている[1]。本図の横軸における、 k_x は a 軸方向、 k_z は c 軸方向の波数を示す。これらのドナー性欠陥の濃度が低温でもそのまま電子濃度に寄与する。さらに、InN の電子の有効質量が真空中の電子の質量の 10%程度と小さいため、Burstein-Moss シフトが顕著になると予想される。等方的なバンド分散を仮定すると、電子濃度 n に対する Fermi 波数は、 $k_F = (3\pi^2 n)^{1/3}$ で与えられ、図 1.11 のように直接光学遷移は波数 k_F で起こる。欠陥による電子濃度の増加に伴って、光吸収測定ではバンドギャップが大きく観測され、バンドギャップの温度依存性が小さく観測されると考えられている[2]。しかし、 $3.5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ という比較的低電子濃度の InN で測定した場合でも、従来の光通信用レーザ材料 InGaAsP よりバンドギャップの温度依存性が小さいことが報告されている[3]。この濃度領域では Burstein-Moss シフトの効果は十分小さいと期待される。バンドギャップの温度依存性は、フォノンによる原子の平均二乗変位 $\langle u^2 \rangle$ に比例する電子-格子相互作用と熱膨張に由来する[4]。窒化物半導体のバンドギャップ温度依存性が小さい理由として、最隣接原子間のボンドが短いために結合が強くなり、 $\langle u^2 \rangle$ が小さいことが考えられる。本研究では InN の $\langle u^2 \rangle$ の温度依存性を X 線回折で評価した。

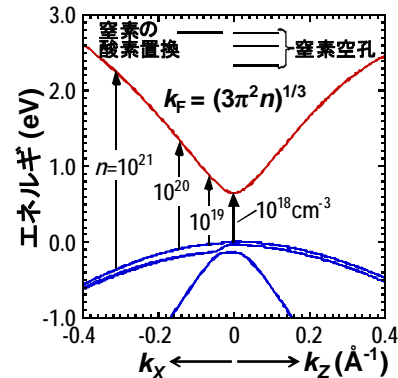


図 1.11 InN のバンド端付近の分散と N 空孔 V_N 、N の O 置換 O_N の欠陥準位。 k_x は a 軸方向、 k_z は c 軸方向の波数

測定した試料は加圧型 MOVPE 装置により c 面サファイア基板上に反応炉圧力 1600Torr および基板温度 575°C で成長した膜厚約 100nm の InN 薄膜である。成長には、金属 In が析出することなく、ウルツ鉱型構造単相からなる条件を用いた。測定には表面構造解析用の超高真空チャンバを搭載した 6 軸 X 線回折計 (SPring8, BL13XU) を用いた。入射 X 線はエネルギー 15keV、波長 0.827 Å およびビーム径 0.1mm である。クライオスタットで試料を約 60K まで冷却して、InN の 2242 と 0334 反射の X 線回折強度の温度依存性を測定した。回折強度は、 c 面に平行な動径方向と方位角方向の逆格子空間ラインスキャンのピーク面積で評価した。

測定したラインスキャンの例を図 1.12 に示す。図中、点は測定値であり、曲線は Gaussian と Lorentzian の中間的な関数と一定のバックグラウンドを用いてピークフィットした結果である。方位角方向のスキャンの FWHM を面内回転角の FWHM に換算すると 1.3° となり、 c 面内 twist をもたらず刃状貫通転位密度は $1.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ と見積もられる。動径方向のスキャンには試料の熱膨張によるピーク位置のシフトが見られる。

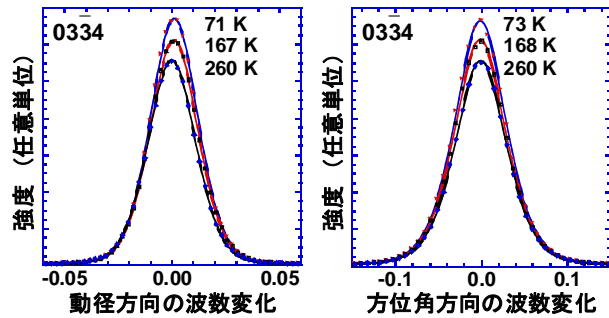


図 1.12 InN の回折強度プロファイルの温度依存性。散乱波数の単位は InN の c 面内単位逆格子

回折点の動径方向 (○) と方位角方向 (▽) スキャンのピーク面積の温度依存性を図 1.13 に示す。X 線の動力的回折効果による消衰距離に比べ、測定した InN 膜厚と図 1.12 のピーク幅から見積もった結晶の粒子サイズは十分小さい。このため、多重散乱を無視した運動学的回折強度計算が良い近似となる。各原子からの X 線の散乱振幅に Debye-Waller 因子 $\exp(-2W_\nu)$ を掛けることで、格子振動の効果を取り入れることができる。 W_ν は散乱 X 線の波数ベクトルから入射 X 線の波数ベクトルを引いた散乱ベクトル \mathbf{q} と元素 ν の原子変位 \mathbf{u}_ν の成分を用いて

$$W_\nu(\mathbf{q}) = \frac{1}{2} (q_x^2 + q_y^2) \langle u_{\nu \perp c}^2 \rangle + \frac{1}{2} q_z^2 \langle u_{\nu \parallel c}^2 \rangle$$

で与えられる。 $\langle \rangle$ は平均を表し、ウルツ鉱型構造で z 軸を c 軸方向にとったとき x, y 方向には等方的であることを用いた。III-V 族と II-VI 族化合物半導体の閃亜鉛鉱型構造 [5] とウルツ鉱型構造 [6] の $\langle u^2 \rangle$ の温度依存性は第一原理計算でフォノンの分散と原子変位を求めることによって Schowalter らによって計算されている。彼らは、質量 M_ν の原子が単一の振動数で振動する Einstein モデルと同じ形式の

$$\langle u_{\nu \xi}^2 \rangle_s = \frac{\hbar}{2M_\nu \omega_{\nu \xi}} \coth \left(\frac{\hbar \omega_{\nu \xi}}{2k_B T} \right)$$

において特性振動数 $\omega_{\nu \xi}$ の温度依存性をパラメータ $A_{\nu \xi}, B_{\nu \xi}, \sigma_{\nu \xi}$ を用いて

$$\omega_{\nu \xi} = A_{\nu \xi} \exp(-T^2 / \sigma_{\nu \xi}^2) + B_{\nu \xi}$$

のように表すことで、計算した $\langle u^2 \rangle$ の温度依存性を近似できることを示した。ここで、 \hbar は Planck 定数の $1/(2\pi)$ 、 k_B は Boltzmann 定数、 ξ は変位の方向を表し、等方的な閃亜鉛鉱型構造では区別する必要がなく、ウルツ鉱型構造では $\perp c$ と $\parallel c$ を区別する必要がある。

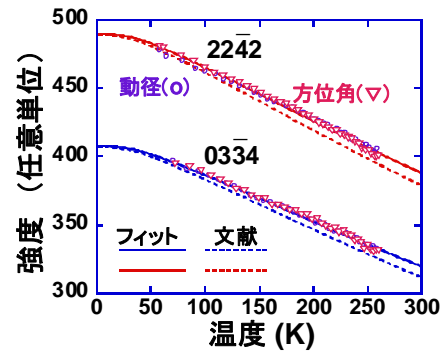


図 1.13 InN の 2242 反射と 0334 反射の動径方向 (○)、方位角方向 (▽) スキャンのピーク面積の温度依存性。破線と実線は図 1.14 の $\langle u^2 \rangle$ の温度依存性から計算した回折強度

図 1.14 の破線で示した理論計算[6]による In 原子と N 原子の $\langle u^2 \rangle$ の温度依存性を使用して、回折強度を計算した結果が図 1.13 の破線である。文献[6]において A の値は B より大きく、格子振動の Debye モデルとの比較から予想される $A = 0.15B$ の関係から大きくはずれており、 $\langle u^2 \rangle$ の温度依存性を再現できない。これらの $\langle u^2 \rangle$ の値は、同じ著者を含む別の文献[7]にも引用されているためこちらを信頼し、整合する A と B を最小二乗法で求めた。 σ には文献[6]値のまま用いた。図 1.13 と図 1.14 の実線はパラメータ B (測定温度以上では、 A と σ の影響は少ない) を最適化して測定値にフィットした結果である。このように InN について $\langle u^2 \rangle$ の温度依存性を X 線回折により評価し、理論値と数%以下の違いであることを確認した。理論計算によると、図 1.14 に示した InN の $\langle u^2 \rangle$ とその温度変化[6]は、図 1.15 に示した従来の光通信レーザー材料 ($\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ 付近の組成) のそれら[5]に比較すると小さい。 $\langle u^2 \rangle$ の温度変化が小さいほど、電子-格子相互作用によるバンドギャップの温度変化が小さいと期待されるため、真性 InN のバンドギャップ温度変化も従来材料より小さいと期待される。

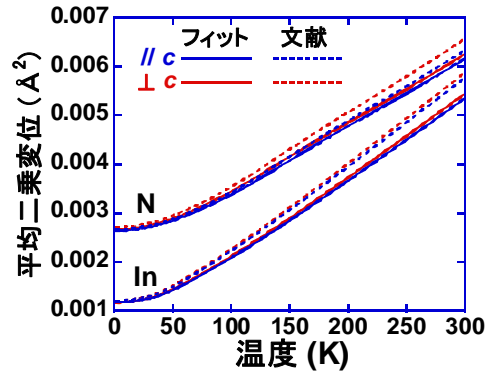


図 1.14 本研究(実線)と文献[6](破線)による In と N 原子の $\langle u^2 \rangle$ の温度依存性

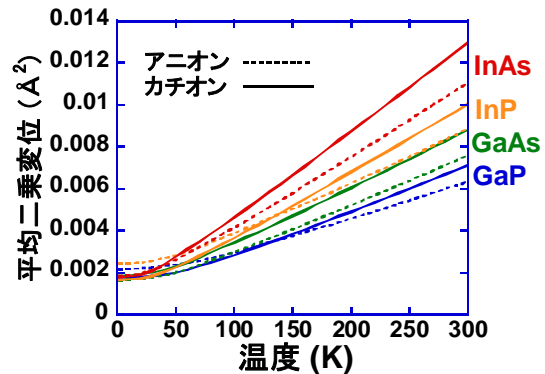


図 1.15 計算された閃亜鉛鋅型 III-V 族化合物半導体の $\langle u^2 \rangle$ の温度依存性[5]

窒化物の中では InN の格子定数が大きく結合が弱いため、図 1.16 のように InN の $\langle u^2 \rangle$ とその温度変化は、AlN や GaN よりも大きい。しかし、InN のバンドギャップの温度変化は AlN や GaN よりも小さい。その原因を調べるため、温度上昇にともなうバンドギャップ減少の主因である電子-格子相互作用の Debye-Waller 項 ΔE_{DW} を tight binding (TB) 近似で計算した。 ΔE_{DW} は原子間行列要素の原子位置についての 2 次微分による 1 次摂動である[4]。直接遷移となる GaN と InN の TB パラメータは Gürel らの値[8]を用いた。図 1.17 に GaN と InN について計算

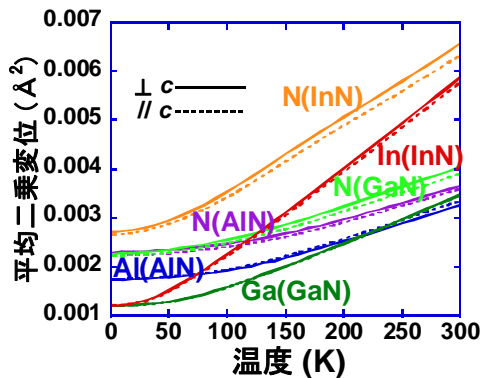


図 1.16 計算されたウルツ鉱型 III 族窒化物半導体の $\langle u^2 \rangle$ 温度依存性[6]

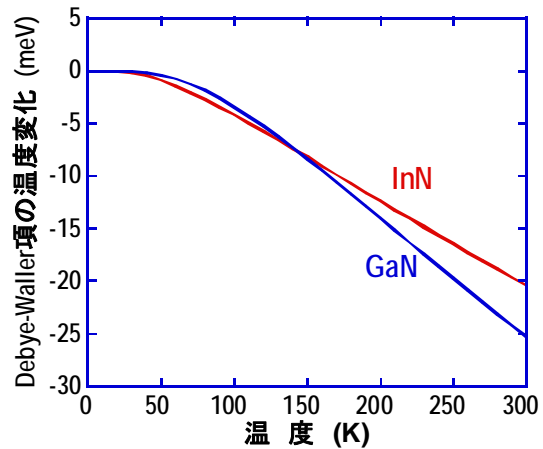


図 1.17 GaN と InN について tight binding 近似で計算された電子-格子相互作用の Debye-Waller 項 ΔE_{DW} の温度依存性

された ΔE_{DW} の温度依存性を示す。原子間距離の大きいInNの方がTB近似の原子間行列要素が小さいため、 $\langle \mu^2 \rangle$ はInNのほうがGaNより大きいですが、室温付近での dE_{DW}/dT はInNの方が小さい。さらに、温度上昇にともなうバンドギャップの減少に対する熱膨張の寄与を見積もるため、InN[9]とGaN[10]の295Kでの線熱膨張係数の測定値を用いて熱膨張項 dE_{TE}/dT をTB近似で計算し、表1.2に示す。InNとGaNの295Kでの線熱膨張係数は同程度であるが、InNの方がTB近似の原子間行列要素が小さいため、 dE_{TE}/dT についてもInNの方が小さくなっている。

表1.2 295 KでのDebye-Waller項の温度係数 dE_{DW}/dT (meV/K)、熱膨張項の温度係数 dE_{TE}/dT (meV/K)の計算値と線熱膨張係数 α ($10^{-6} K^{-1}$)の測定値

Material	dE_{DW}/dT	dE_{TE}/dT	$\alpha \perp c$	$\alpha \parallel c$
GaN	-0.109	-0.108	3.4	3.3
InN	-0.078	-0.040	3.8	2.9

文献

- [1] C. Liu and J. Li, Phys. Lett. A **375**, 1152 (2011).
- [2] J. Wu *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 201403 (2002).
- [3] J. Wu *et al.*, J. Appl. Phys. **94**, 4457 (2003).
- [4] D. Olguín *et al.*, Solid State Comm. **122**, 575 (2002).
- [5] M. Schowalter *et al.*, Acta Cryst. A**65**, 5 (2009).
- [6] M. Schowalter *et al.*, Acta Cryst. A**65**, 227 (2009).
- [7] A. Rosenauer *et al.*, Ultramicroscopy **109**, 1171 (1009).
- [8] H. H. Gürel *et al.*, Superlattices and Microstructures **40**, 588 (2006).
- [9] A. U. Sheleg and V. A. Savastenko, Vesti Akad. Nauk BSSR, Ser. Fiz. Mater. Nauk **3**, 126 (1976).
- [10] H. Iwanaga *et al.*, J. Mater. Sci. **35**, 2451 (2000).

(h) 残留キャリア濃度と成長温度の相関

発光デバイスへの応用に向け、残留キャリア濃度 n_e の低減は、重要な課題である。残留キャリア濃度の測定には、非破壊測定が可能であり、面内分布の測定も可能な赤外反射率測定法を用いる。測定に用いた試料は、成長圧力1600Torrおよび2400TorrにおいてV/III比25000の条件下でサファイア基板上に直接成長したInN薄膜である。成長温度を500°Cから700°Cまで変化させたときの n_e/m_e^* の変化を図1.18に示す。ここで m_e^* は電子の有効質量と静止質量の比を表し、キャリア濃度が $10^{19} \sim 10^{20} \text{cm}^{-3}$ のときには約0.1~0.15の値をとることが知られている。成長温度の高温化とともにキャリア濃度が減少している。高温では、気相から結晶表面に飛来してきたIn原子の運動エネルギーが大きく、In原子は結晶表面上を移動しやすく最も安定なサイトに吸着され、高品質結晶が成長していると考えられる。成長温度700°Cにおいて、最もキャリア濃度が低下し、 10^{19}cm^{-3} 台と見積もることができる。加圧および高温条件化でさらなる低キャリア濃度実現の可能性を示唆している。

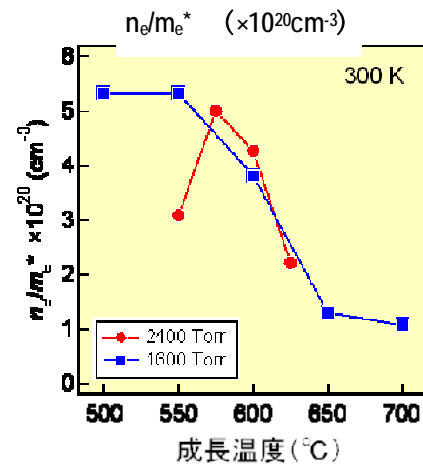


図1.18 残留キャリア(電子)濃度の成長温度依存性

(i) 加圧成長と光学特性の相関

InN薄膜のフォトルミネッセンスの成長圧力依存性を図1.19に示す。試料は、いずれも、成長温度625°Cでサファイア(0001)基板上に直接成長されており、室温で測定した。成長圧力が高いほど、発光強度が増加し、発光波長が長波長化している。これは、加圧成長により成長時の窒素脱離を抑制することで、光学特性が向上したことを示している。減圧成長では残留キャリア(電子)の源となる構造欠陥密度が高く、バンドフィリングによる効果が観測されるのに対し、加圧ではこれらの欠陥密度を低減でき、本来のInNのバンド端での発光が観測されるようになったと考えられ、加圧成長の優位性が示された。

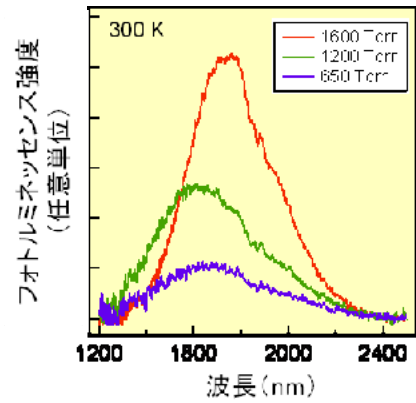


図1.19 フォトルミネッセンススペクトルの成長圧力依存性

(j) 貫通転位密度

結晶性に与える影響の大きい結晶欠陥の一つである貫通転位の面密度(TDDs)をX線回折(XRD)のロッキングカーブ測定から見積もった。圧力1600Torrおで成長したInNについて、転位と螺旋転位に分けて、その密度の成長温度依存性を図1.20に示す。図中には、ZB混在率(ZB/(ZB+WZ))、X線回折スペクトルにおける金属InとInNのスペクトルの体積比を同時に示す。刃状転位の面密度は、 $10^{11}/\text{cm}^2$ 台であり、成長温度依存性はほとんどない。一方、螺旋転位については、WZの相純度が高くなる575°C以上において、増加している。金属インジウム析出のためと考えられる。金属インジウムが析出しない成長条件を用いると、InNの高品質が可能となる。

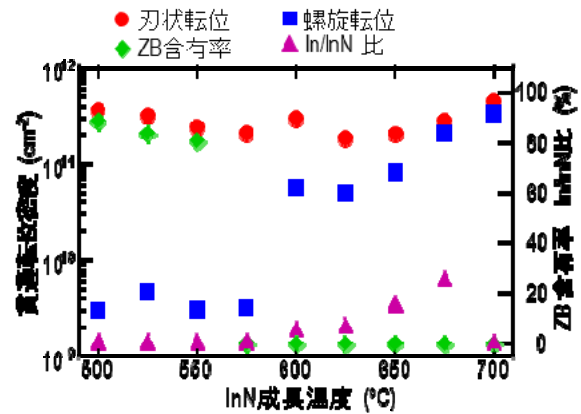


図1.20 1600Torrで成長したInNにおける貫通転位密度、ZB混在率および金属In析出量

(j) 成果の位置づけと類似テーマとの比較

(ア) 加圧成長

InNのバルク基板材料が存在しない現状では、異種基板材料上に成長する必要がある。この場合、高品質結晶を得るために、結晶の格子定数の不整合が大きな障害となる。この不整合に打ち勝って、表面が平坦で、かつ、緻密な結晶を得る技術が必須である。本研究で開発した加圧型有機金属気相成長(PR-MOVPE)法では、上記の課題をクリアできた。MOVPE法は、各種の化合物半導体素子の作製にすでに用いられていた。MOVPE法の研究経過を見ると、気相中での原料ガス間での中間反応を避けるために、接触時間を短くするための減圧成長法が研究されてきた。本研究課題での「加圧成長」は、従来のMOVPE法の概念と全く異なる。

(イ) 結晶の緻密さ

本研究で用いた有機金属気相成長法において成長されてきた InN に関する他機関からの報告では、サファイアのc面基板上に In 極性成長を行っている。得られている結晶は、図 1.21 に示す断面のように、表面には凹凸がある。また、成長時間が長くなればなるほど、界面から多孔質化が進んでいる。これに対して、本研究では、加圧成長による表面の平坦化と、窒素極性成長による緻密化を実現できている。

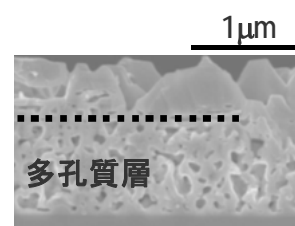


図 1.21 従来の In 極性常圧成長 InN の断面構造

(ウ) ロッキングカーブ幅

InN の結晶性を示す一つの指標として、結晶軸の揺らぎがある。各研究機関からの報告と比較して、表 1.3 に示す。本研究で得ている値は、他機関と較べて同程度以上である。

表 1.3 ロッキングカーブ幅の比較

成長法	構造	InN膜厚 (μm)	(0002)XRC FWHM(arcmin)	研究機関
MBE	InN/GaN/Sap	-2.0	5.9 (1)	千葉大
MBE	InN/LT-InN/HT-InN/Sap	-0.5	7.7 (2)	立命館大
MOVPE	InN/GaN/Sap	1.5-2.0	~30 (3)	福井大
HPCVD (100atm)	InN/GaN/Sap	-0.5	34.6 (4)	ジョージア州大
MOVPE	InN/GaN/Sap	-1.0	4.5	東北大

(エ) 立方晶の混入

窒化物半導体において、六方晶結晶への立方晶の混入の議論は、GaN でなされている。本研究課題では、ラマン散乱分光測定から、立方晶の混入が示された。これに関する報告は、今までに皆無である。X 線回折測定では、従来用いてきた結晶面の回折角が立方晶 0.06 しかないため、区別できていなかった。ラマン散乱分光測定からの指摘から、立方晶の混入に注意を払い、六方晶だけの結晶を得られるようになった。他機関での InN 研究において、立方晶に関する言及は、今のところ、一切ない。

(オ) 分子線エピタキシャル成長 (MBE) 法との比較

MBE 法による InN の研究では、InN の成長中に成長表面に生じるインジウム・ドロプレットを InN に変換する技術等が検討され、インジウム・ドロプレットのない InN 薄膜を得ることに成功している。また、残留キャリア濃度も $10^{17}/\text{cm}^3$ 台が実現できており、MOVPE 法の $10^{18}/\text{cm}^3$ 台より、低減化が進んでいる。しかしながら、成長速度が小さいことから、InN の応用は、限られた素子構造に限定されると思われる。また、工業的な応用についても、従来から MOVPE と MBE の選択議論同様に取り扱われると考えられる。つまり、InN という物質研究における先行技術として位置づけられると思われる。

(カ) InN のバンドギャップ・エネルギーの温度安定性の議論

研究代表者は、InN の研究開始直後から、光吸収やフォトルミネッセンス測定からそのバンドギャップ・エネルギーの温度安定性が優れていることを示してきた。しかし、温度安定性が高くなる理由に関する研究はなかった。バンドギャップの温度依存性は、フォノンによる原子の平均二乗変位に比例する電子-格子相互作用と熱膨張によって決定される。両観点からも、InN は従来の III-V 族半導体よりバンドギャップ・エネルギーの温度安定性が高いことを示すことができた。これによって、InN のバンドギャップ・エネルギーの温度安定性は担保されたことになる。と考える。

(キ) 伝導型制御

本研究課題では、研究開始当初の予想以上に結晶の表面の平坦化、緻密化、相純度の向上などの高品質化における基本的な項目の研究に時間を要してしまった。在留キャリア

ア濃度の低減の研究を手がけるには至っていない。残留キャリア濃度は $10^{18}/\text{cm}^3$ 台のn型である。未だ、伝導型制御の研究に取り掛かれていない。ここ数年の研究で、InNは、従来の化合物半導体であるInAsと同様に表面に電荷蓄積層が存在し、p型化が難しい材料であることが分かってきた。その中で、MBE法では、Mgを添加してp型化の試みがなされている。結晶内部では、p型になっていると言われているが、断定できる状態にはないのが、現状である。今後の研究が待たれる。

(2)研究成果の今後期待される効果

(ア) 温度安定性に優れた分布帰還型レーザの実現

本研究課題で得られた成果は、高品質 InN のエピタキシャル成長に関して将来の可能性を示す。また、バンドギャップ・エネルギーの温度安定性について担保できるデータを得ることができた。高品質エピタキシャル成長の実現のためには、格子整合基板も欠かせないが、これについても新しい単結晶材料を提案し、ある程度の大きさの結晶を成長できた。また、回折格子作製に必要な微細加工も可能であることも示せた。以上のことから、今後、さらに地道に研究を続けることによって、温度安定性に優れた InN を発光層とする分布帰還型レーザの実現への道が開けてきたと考える。

(イ) 加圧型有機金属気相成長装置

本研究課題によって開発された加圧型有機金属気相成長装置(PR-MOVPE)は、上述したようにヘテロエピタキシャル成長が要求される窒化物半導体の成長において、今後の応用が期待される。InN 研究はもちろんのこと、高 In 組成 InGaAlN の成長では大いに期待される。たとえば、緑色 LED の光出力は青色や赤色の半分程度で、この課題はグリーンギャップと呼ばれている。ここでもの問題の一つは、相分離である。本研究課題で開発した PR-MOVPE を用いると、窒素圧を印加できることから成長温度の高温化が可能となり、相分離を抑制できる可能性がある。実際、名古屋大学の天野教授のところでは、2 気圧まで印加できる MOVPE を作製し、高 In 組成 InGaN 成長の研究を開始している。

(ウ) InN 研究

気相-固相間の窒素平衡蒸気圧の高い材料である InN 研究で得られた知見であるヘテロエピタキシャル成長における結晶表面の平坦化や結晶の緻密化に関する技術は結晶成長基本であり、窒化物半導体素子の高品質化、InN 自身あるいは高 In 組成 InGaAlN を用いた新たな素子開発やその実用化に寄与できると考える。最近の素子研究として、タンデム型太陽電池(NEDO、CREST、ALCA)を上げることができる。この研究の中では、InN と高 InGaN を光吸収層として用いようとしている。

(エ) 極性成長

研究代表者は、窒化物半導体研究を開始した 1980 年代から極性の重要性を指摘している。従来の窒化物半導体成長、特に MOVPE 成長においては III 族極性しか用いられてこなかったが、本研究課題によって N 極性の効果を改めて示すことができた。窒化物半導体は六方晶であることから、結晶内に分極電界が存在する。この電界制御は、素子特性においてキーとなる。この点からも、N 極性成長は重要となって行くであろう。

4.2 薄膜光学物性評価 (京都工芸繊維大学 播磨グループ)

(1) 研究実施内容及び成果

InN 薄膜評価のため、四結晶 X 線回折装置、原子間力顕微鏡 (AFM)、およびフーリエ変換型赤外分光光度計 (FT-IR) を導入し、日常的な薄膜評価に用いている。平成 21 年度からは、京都工芸繊維大の播磨教授の参画によって、結晶学・電子物性学の観点から、ラマン散乱によるフォノン構造と構造特性の評価を行っている。加圧炉成長が従来の減圧炉成長に比べて結晶性の優れた InN 薄膜を再現性良く成長できること、加圧炉成長においては比較的低温域で、特に窒素とインジウムとの原料供給比 (V/III 比) が小さいときに、品質を向上できることを明らかにしてきた。ここでは、今までに報告してきた 2 気圧よりさらに加圧した成長試料のラマン散乱分光法による評価について述べる。

(a) 実験装置

ラマン測定はレーザをプローブに用いる非破壊、非接触の診断手法であり、事前の特別な試料調整を要しない利点をもつ。特に顕微鏡を用いれば、レーザ光は $1\ \mu\text{m}$ 程度のビーム径に絞ることができるミクロン台の空間分解分析も可能である。本実験では波長 488nm の可視レーザ光をプローブに用いて室温にて顕微ラマン測定を行った。

図 2.1 に試料表面へのレーザ集光部付近の模式図を示す。レーザ光は顕微鏡直前に置かれたシンドリカルレンズを通った後、対物レンズ (倍率 50 倍、開口比 0.8) にて集光され、試料表面で $1\ \mu\text{m} \times 60\ \mu\text{m}$ 程度の線状に集光される。ここでシンドリカルレンズを用いる理由は、直径 $1\ \mu\text{m}$ 程度に絞った場合に生じる可能性のある試料加熱や損傷を避けるためである。レーザ光は InN 成長面 (c 面) にほぼ垂直に入射し、逆向きに散乱された光を分光器に導いて分析する c 面後方散乱配置を用いている。

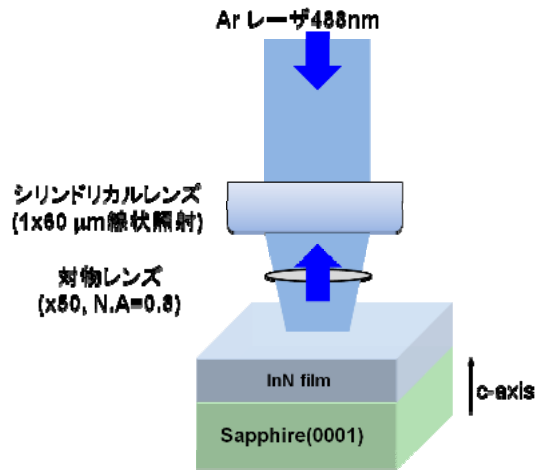


図 2.1 顕微ラマン散乱装置模式図

(b) 測定試料

評価した試料の成長条件、すなわち、成長温度 (図の縦軸) と供給原料比 (V/III 比) (横軸) を図 2.2 に示す。試料 A ~ H は本課題で開発した加圧成長炉 (1600 Torr) により、試料 a ~ h は従来の減圧成長炉 (650 Torr) により成長された InN である。なお、ここで加圧成長炉試料については、正確な成長温度校正がなされる前の数値でプロットしており、実際には 100°C 程度低い温度で成長がなされていることを注意しておく。

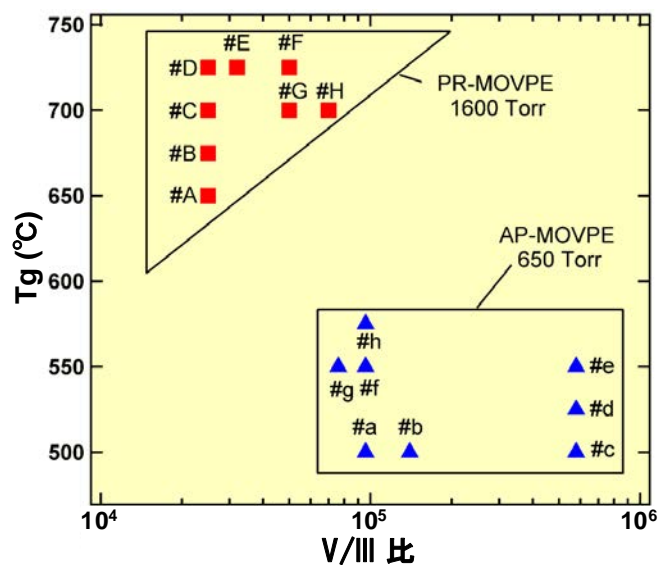


図 2.2 測定試料の成長条件

(c) 測定結果

従来の減圧成長炉(650 Torr)により成長した試料 a~h における測定結果(ラマンスペクトル)を図 2.3(a)に示す。周波数 88cm^{-1} に $E_2(\text{low})$ フォノンモードが、また 490cm^{-1} に $E_2(\text{high})$ フォノンモードが、さらに 590cm^{-1} に $A_1(\text{LO})$ フォノンモードが観察される。他に 180cm^{-1} 付近に欠陥誘起のモードが、 430cm^{-1} 付近に $L=\text{LO}$ フォノン-プラズモン結合モードが観察される。試料結晶の指針として注目するのは、これらのうち最も明瞭に観察される $E_2(\text{high})$ フォノンモードであり、これを拡大して図 2.3(b)に示す。このフォノンモードは主に窒素原子が c 面内で振動する様式で、そのピーク幅が狭いほど結晶性に優れると判断できる。また、そのピーク周波数は c 面内残留応力に敏感で、圧縮性応力なら高周波数側に、引っ張り応力なら低周波数側にシフトすることが知られている。図 2.3(b)より、図中に記された各ピーク半値幅をもとに試料の結晶性をみると、試料 a, b, c は半値幅 $6.5\sim 6.7\text{cm}^{-1}$ 程度と、その他の試料(半値幅 $9.5\sim 14\text{cm}^{-1}$)より明瞭に鋭いピーク形状を示し、試料 a~h の減圧成長試料の中ではすぐれた結晶性を示していることが分かる。

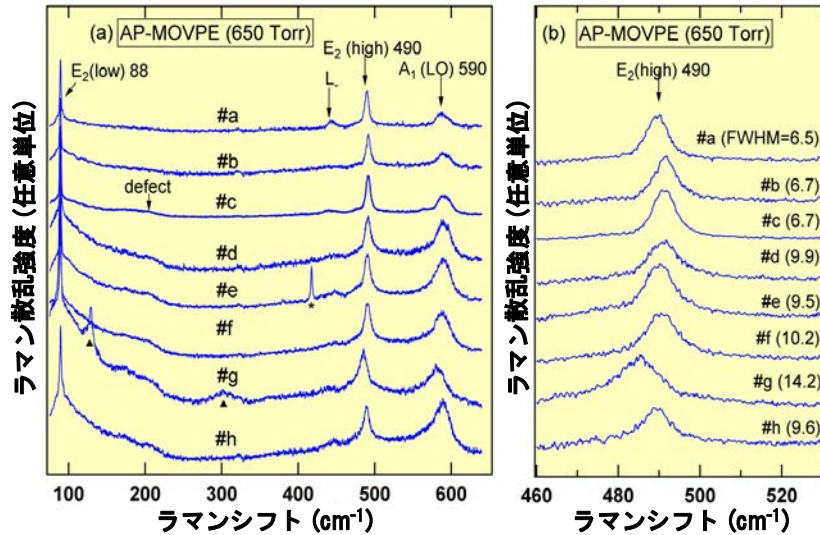


図 2.3 減圧成長 InN のラマンスペクトル

図 2.4(a)は同様に加圧成長 InNA~H について測定した結果で、図 2.4(b)に $E_2(\text{high})$ フォノンモードの拡大図を示す。図 2.4(b)を図 2.3(b)と比較してみると明らかなように、加圧成長 InN ではどのピーク形状も比較的鋭く、再現性が良い。特に試料 A と B は半値幅 $5.6\sim 6.0\text{cm}^{-1}$ 程度で、その他の試料(半値幅 $6.6\sim 8.8\text{cm}^{-1}$)より明瞭に鋭いピーク形状を示すことから、結晶性は良好であるといえる。図 2.3 と図 2.4 の結果を比較のためにまとめて図 2.5 に示す。縦軸に $E_2(\text{high})$ フォノンモードの

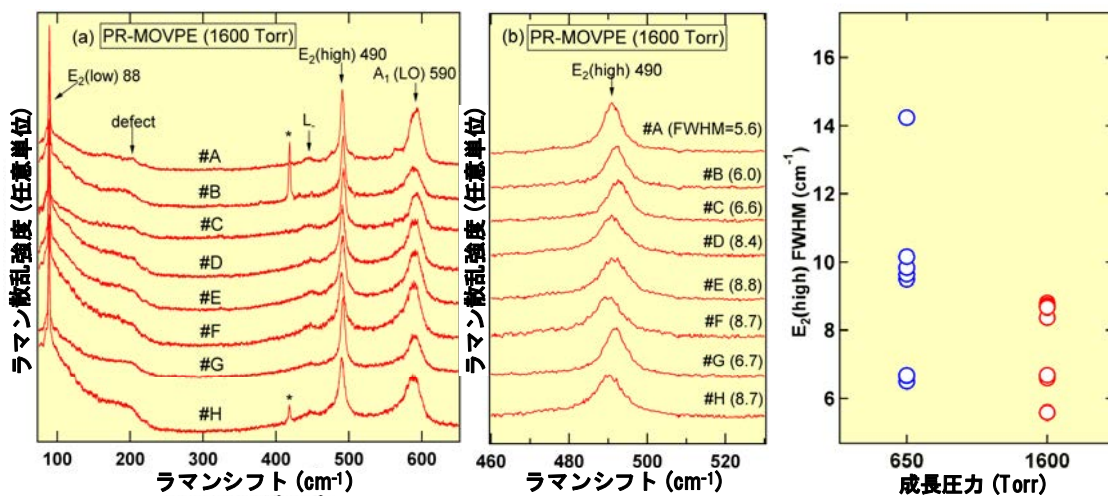


図 2.4 加圧成長 InN のラマンスペクトル

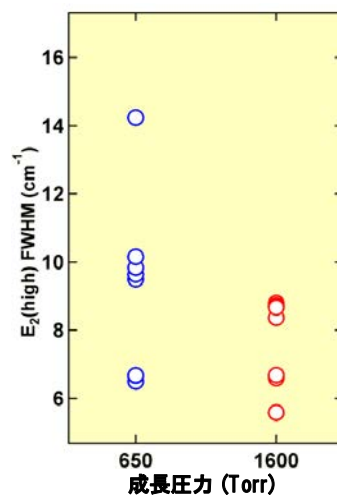


図 2.5 加圧および減圧成長 InN の比較(フォノンピーク幅)

半値幅をとり、各試料をプロットしている。これより明らかなように、減圧成長試料ではフォノン半値幅は広範囲に広がっている。これに対して、加圧成長試料では比較的小さい半値幅の領域にまとまっており、良質な試料が再現性良く成長していることがわかる。

以上の結果から、加圧成長炉の優位性は明らかである。しかし、加圧、減圧成長いずれの場合でも結晶性にバラツキが見える原因として、圧力以外の成長条件の違い(成長温度やV/III比など)が考えられるので、以下で更にこの点を検討した。

加圧成長試料 A~H について、 $E_2(\text{high})$ フォノンピーク幅の成長温度依存性を図 2.6 に示す。比較的低温で成長した試料 A、

B、C、G は他より相対的に半値幅が小さく、結晶性で勝っている。また、図 2.7 は加圧成長試料について、 $E_2(\text{high})$ フォノンピーク幅の成長時の材料供給比(V/III比)依存性を示す。比較的低いV/III比で成長した試料 A、B、C は他より相対的に半値幅が小さく、結晶性で勝っている。ただし、試料 G では、低いV/III比で成長したとは言えないが、例外的に半値幅が小さい。この原因として、他の重要因子を考える必要がある。

加圧型反応炉を用いて1~

3 気圧の範囲で成長した InN 膜試料の結晶性について、ラマン散乱分光法によるフォノンスペクトルピーク形状観察をもとに比較評価した。異なる成長ガス圧のもとで成長した InN 薄膜の代表的なラマンスペクトルを比較して示す。図 2.8(a)は $E_2(\text{high})$ フォノン信号の測定例である。成長ガス

圧が高くなるにつれ、信号ピークは鋭くなり、このことから結晶性が向上するのがわかる。図 2.8(b)は各成長ガス圧のもとで、成長温度と III/V 属原料供給比を変えて成長したの試料の同フォノンピーク半値幅の分布を示す。成長圧力の上昇につれて、半値幅は小さくなり結晶性が向上すること、半値幅の分布範囲も狭くなることから成長の再現性が向上することが、わかる。ただし、約 3 気圧(2400 Torr)のもとでは六方晶 InN(○●○)成長の許容条件範囲は狭くなり、成長条件によっては立方晶 InN(▲)が混入しやすいことが分かった。

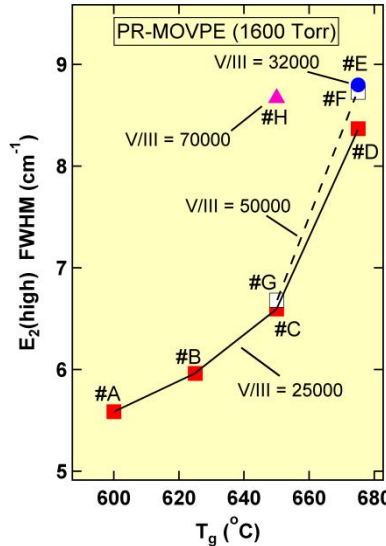


図 2.6 フォノンピーク幅の成長温度依存性

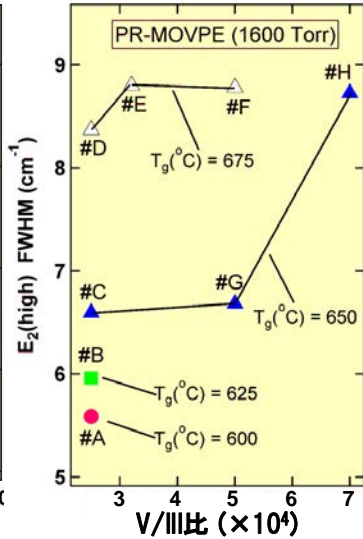
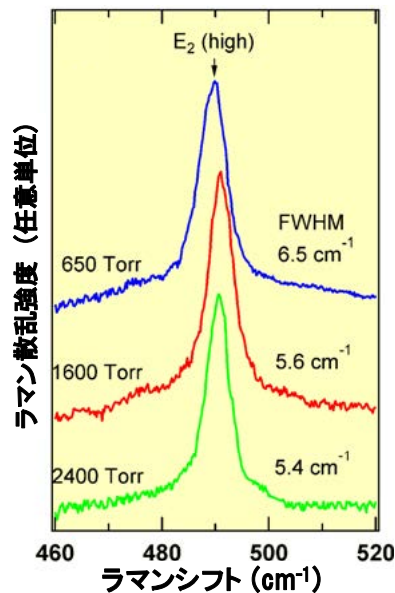
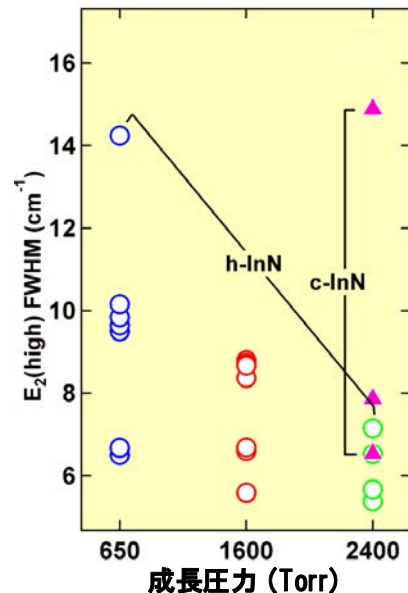


図 2.7 フォノンピーク幅の V/III 比依存性



(a)ラマンスペクトル



(b)半値全幅の圧力依存性

図 2.8 $E_2(\text{high})$ フォノンスペクトルの成長圧力依存性

容条件範囲は狭くなり、成長条件によっては立方晶 InN(▲)が混入しやすいことが分かった。

結晶性を向上できる 3 気圧での加圧成長において、最適成長条件を探るために、原料供給比 (V/III比)依存性、膜厚依存性、および成長温度依存性を、ラマン分光法によるフォノン信号形状観察をもとに詳しく検討した。成長においては、アンモニアの供給量 15slm (standard liter per minute) と成長時間 2 時間は、常に一定である。3 気圧のもとで成長した InN 膜試料の代表的なラマンスペクトルを比較して示す。観測したラマンスペクトルを図 2.9 に示す。成長時におけるアンモニアとインジウム原料の供給比 (V/III比) が試料 A から試料 E の順に小さくなっていく。試料の膜厚は試料 A から試料 E の順に厚い。図 2.10 には、各スペクトルの $E_2(\text{high})$ 信号ピーク (490cm^{-1}) の半値全幅 (FWHM) を V/III 比と膜厚に対してプロットした結果を示す。図中の破線で囲まれた領域内の試料については六方晶 InN と立方晶 InN の混在が認められる。成長温度 $600\sim 650^\circ\text{C}$ のほぼ同じ温度領域で成長したとき、試料 A のように V/III 比が高い場合には、 $E_2(\text{high})$ 信号ピークは鋭くなり、立方晶の TO フォノン (465cm^{-1}) と LO フォノン ($\sim 586\text{cm}^{-1}$) 信号ピークが消えている。このことから、この成長条件では、純粋な六方晶 InN 膜が成長することがわかる。また、図 2.8(a) から、試料 A のように V/III 比が大きい場合、膜厚は小さい。この場合、InN 薄膜の成長速度は遅くなるが、膜質は改善されることがわかる。逆に、試料 E や D で明らかのように、比較的 V/III 比が低い場合は立方晶 InN が混入しやすいことが分かった。

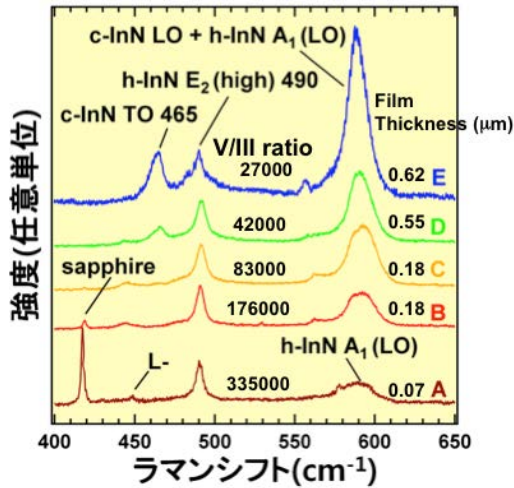
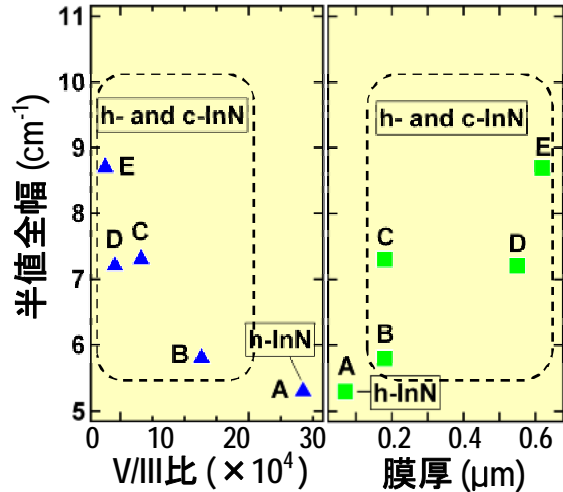


図 2.9 3 気圧成長 InN のラマンスペクトル



(a) V/III 比依存性 (b) 膜厚依存性

図 2.10 $E_2(\text{high})$ 信号ピーク (490cm^{-1}) 半値全幅 (FWHM)

ラマンスペクトルの試料成長温度依存性を図 2.11 に示す。試料 a (500°C) から試料 e (700°C) の順に成長温度が高くなる。図 2.12 は図 2.11 に示した各スペクトルの $E_2(\text{high})$ 信号ピーク (490cm^{-1}) の半値全幅 (FWHM) を成長温度に対してプロットした結果を示す。図中の破線で

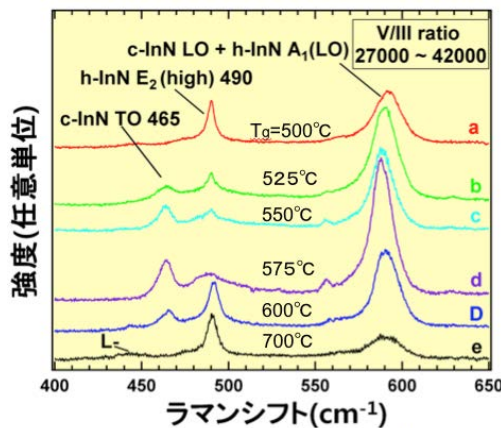


図 2.11 ラマンスペクトルの成長温度依存性

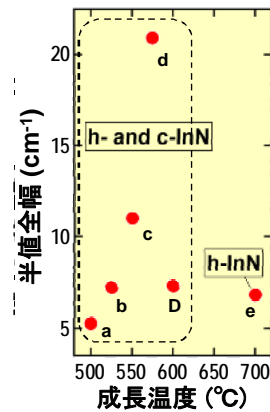


図 2.12 $E_2(\text{high})$ 信号ピーク (490cm^{-1}) 半値全幅 (FWHM) の成長温度依存性

囲まれた領域内の InN 試料については、六方晶と立方晶の混在が認められる。試料 e (700°C) のように比較的高い温度で成長すると、立方晶 InN の混在のない結晶性の良い六方晶 InN が成長する。

$E_2(\text{high})$ 信号ピーク(490 cm^{-1})半値全幅(図中の数字)を、成長温度と V/III比に対してプロットして図 2.13 に示す。成長温度が比較的高いと立方晶 InN の混在のない良質の六方晶 InN が得られることがわかる。一方、成長温度が低いと六方晶と立方晶の混在が認められる。さらに V/III比が低いと、半値全幅が増大し、結晶性が低下することがわかる。

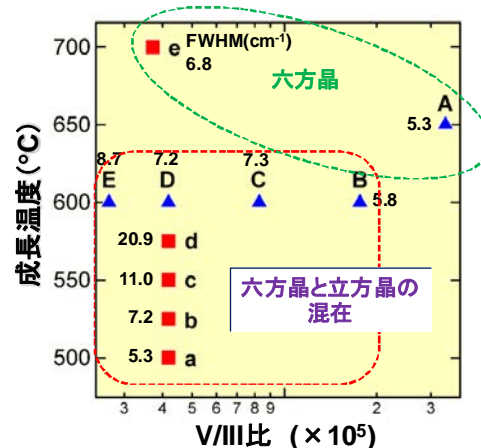


図 2.13 $E_2(\text{high})$ 信号ピーク半値全幅(図中の数字)の成長温度と V/III比依存性

(d) 成果の位置づけと類似テーマとの比較

・成果の位置づけ

本研究の後半で我々は3気圧近くの高い背圧のもとでVPE成長を試みたところ、比較的高品質の六方晶InNが得られたが、成長条件のウインドウは狭まり、条件によっては立方晶InNが混入、あるいは支配的になることがあった。我々の行ったX線回折では六方晶InN(0002)面の回折信号を観察していたが、立方晶の混入がある場合、この信号は立方晶InN(111)面と区別しにくい難点があった。一方、ラマン散乱では明瞭に六方晶と立方晶InN相の違いがフォノンスペクトルに現れるため、そのおおよその存在比も含めて評価可能である。この結果、微妙な構造異形の混入が判明し、求める六方晶InN相の成長条件が明確になった。本研究課題において得ることのできたラマン散乱分光法は、InN薄膜の高品質化に極めて有用であることを示すことができた。さらに、本研究課題で用いた顕微ラマン法が、今後開発の中心となる積層素子構造物についても評価の強い武器になることは疑いない。この意味で、本研究でその基盤となる成長InN膜の評価技術を固めた意義は大きい。

・類似テーマとの比較

もともと、数気圧やそれ以上の背圧のもとでInNのVPE成長を試みた類似研究は非常に少ない。我々の知る限りでは、例えば Diez らが論文“The characterization of InN growth under high-pressure CVD conditions” (*phys.stat.sol. (b)* **242**, pp. 2985-2994 (2005)) にて15気圧の高背圧のもとでInNのVPE成長を行ったと報告している。しかし、残念なことに、簡単なx線回折評価はされたものの、彼らが結晶性の良い六方晶InNの成長に成功したという明瞭な証拠は論文中には見当たらない。むしろ、彼らによれば原料供給比(V/III比)によっては吸収端が1.8eVから0.7eVに大きくシフトしたとされており、この事実は成長条件によって所望の六方晶InN以外の相が出現していることを示しており、明らかに詳細な追試が必要である。本研究で試みられた背圧3気圧までのVPE成長ではそのような大きな相の変化は生じておらず、試料結晶相の再現性ははるかに優れていると言える。

(2)研究成果の今後期待される効果

「ラマン散乱分光法は、試料の特別な加工もなしに単にレーザ光を試料に照射するだけで結晶格子や電子的な性質などについて各種の重要な情報が比較的容易に得られる大変便利な非破壊・非接触診断手法である。さらに我々が本研究で用いた顕微ラマン分光法では0.5 μm 程度の横方向空間分解を有する。また、深さ方向については、レーザ波長を選択することによって、InNやその関連物質に関してナノメートル台の空間分解能で観察することができる。従って、本研究でこれまで主に行ってきた単膜試料だけでなく、今後開発の中心となるレーザのような各種の積層構造物についても同様の物性評価ができることを大いに期待できる。その際に、本研究で得た単膜試

料に関する情報が解析の基礎となることは間違いない。また、ラマン散乱分光法は、X線回折のように結晶構造情報のみならず、電子物性情報を得られる点は大きな利点である。非破壊・非接触診断という点では、今後はX線回折か、ラマン散乱かというような二者択一の議論ではなくて、両者の長所で相補い合うことが必須になろう。

4.3 新基板結晶作製技術（早稲田大学 宮澤グループ）

(1) 研究実施内容及び成果

本研究では、InN 用基板結晶として、従来にない格子不整合度が5%以下の基板結晶の探索的育成を行った。図3.1に示した β -FeSi₂、LaInO₃、および、REBGeO₅(RE:La, Pr)の3種の結晶材料について、下記の(a)~(c)に示す単結晶育成技術の開発を実施した。各結晶の単結晶化については、系が異なることから、各々に適した育成法の構築を目指して育成を試行した。併せて基板への適応性を判断した。

- (a) 導電性 β -FeSi₂結晶の成長技術構築と、InN系薄膜エピタキシャル基板としての可能性を提示する。
- (b) 希土類インジウム酸化物LaInO₃単結晶合成を試行する。
- (c) REBGeO₅(RE:La, Pr)の育成技術開発と、基板への適応を図る。

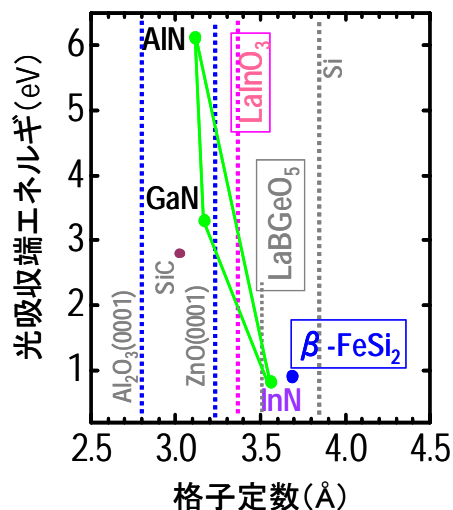


図3.1 本研究で取り上げた新基板結晶の位置付け

これらの結晶の育成に関する報告は、いままでに皆無である。そのため、各結晶に対応した結晶育成技法開拓にチャレンジすることが第一の目標となった。以下に各結晶開発の結果について述べる。

(a) 導電性 β -FeSi₂厚膜結晶の成長技術の検討と、InN系薄膜エピ基板としての可能性探求

β -FeSi₂は982°C以上でFeSiと α -FeSi₂に分解することから、この温度以下で結晶を作製する必要がある。 ϵ -FeSi結晶を合成し、それを基板とした β -FeSi₂厚膜の育成を試みた。金属工学での手法であるSi不均化反応(disproportionation reaction; $\text{NaCl} + \text{NaF} + \text{Na}_2\text{SiF}_6 + \text{Si}$)法を採用して、幾つかの面方位を持つ ϵ -FeSi単結晶基板上に、大気中で、温度850~900°Cにおいて、25~100時間、 β -FeSi₂膜を成長した。

InNエピタキシャル成長用基板に最適面方位と考えられる ϵ -FeSi(110)面方位において、熔融塩不均化反応によって成長した β -FeSi₂層は、{101}/{110}面方位を持った多結晶膜であった。この多結晶 β -FeSi₂膜はMOVPEによるInN成長時の高温NH₃雰囲気にも耐性を有することを確認した。本基板上にInN膜を約200nm成長した。InNは多結晶膜であったが、X線回折測定において、InN{0001}面の強い主ピークを認め、予想通りの方位関係で配向して成長することが分かった。このことは、 β -FeSi₂がInN用基板として有望であることを意味している。

β -FeSi₂の単結晶化を図るために成長機構を考察し、SiとNaFが反応を支配し、Na₂SiF₆が反応を促進することが分かった。膜厚と成長時間の関係を求めて、基板 ϵ -FeSiからのFeの拡散が律速となるモデルを考察し、 β -FeSi₂単結晶膜の実現は難しいと判断した。そこで、 β -FeSi₂単結晶取得の育成法開発に移行した。Gaをフラックスとする溶液成長において大気中で β -FeSi₂単結晶を育成するために、B₂O₃を酸化防止 encapsulant に用いる新たな単結晶育成法を考案した。直径1.5mm以上の β -FeSi₂単結晶を大気中で得ることができたことから、より大型結晶の成長を試みた。過飽和度を制御するフラックス成長では擬飽和域であるOstwald-Miers域(別名metastable zone width)での温度制御が鍵である。徐冷プログラムを種々検討し、図3.2に示す温

度制御によって、直径 5mm 弱の β -FeSi₂ 単結晶を取得できた。図 3.3 に示す β -FeSi₂ は、現在のところ世界最大の単結晶である。

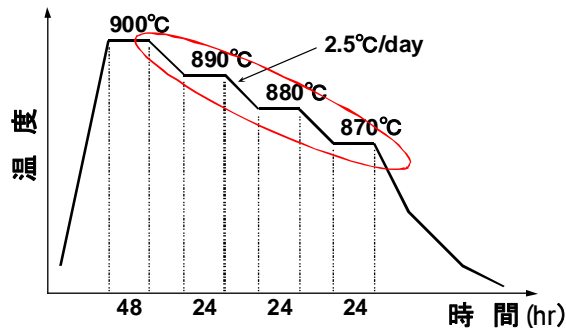


図 3.2 Ostwald-Miers 域の温度プログラム例

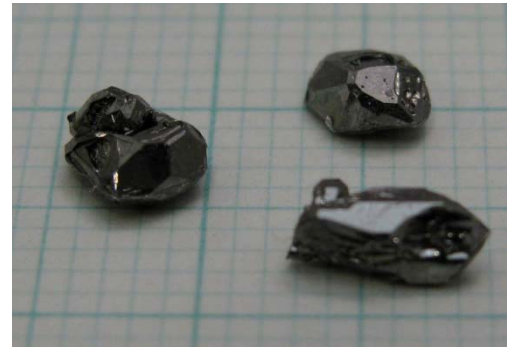


図 3.3 Ostwald-Miers 域の温度制御で得た β -FeSi₂ 大型単結晶

単結晶成長には成長領域 (growth sector) が存在することから、各 sector での Fe/Si 比の分布測定など結晶品質評価を進め、成長縞らしき周期変化を観測した。このことは、本結晶を InN エピタキシャル成長用の基板として用いる際には、格子定数の周期的変化をもたらすことになる。この評価結果から、溶液成長による β -FeSi₂ 単結晶は、基板結晶として適応性が低いと判断した。

(b) 希土類インジウム酸化物 REInO₃ (RE:La, Nd) 直径1”の単結晶育成と新基板結晶材料の探索

REInO₃ の一種である NdInO₃ については、研究開始前にすでに FZ 法で単結晶化することを確認していた。ここでは、同じ結晶型であり、InN との格子不整合性が最も小さい LaInO₃ 結晶を取り上げた。成長には、大型結晶の成長が可能である引上げ育成用に Cz 炉を導入した。REInO₃ の単結晶育成に関する報告はこれまでに皆無であるため、初めに育成の課題抽出を行った。危惧していた融液からの In の蒸発が激しく、InO_x (In₂O₃ と金属 In) が蒸発することを明らかにした。蒸発抑制のためオリジナルな手法として二重ルツボの設計や毛細管上昇ダイ (capillary die) を用いるなどの探索的実験を進めた。しかし、蒸発を完全には抑制できず、さらに Ir ルツボの損傷や炉材などとの反応が障害となり、REInO₃ 系の単結晶育成を断念した。

並行して、より InN への格子不整合率を低減するため、La(In_{1-x}Y_x)O₃ 混晶の組成と格子定数との関係を精査した。焼結体を作製し、測定して求めた格子定数を図 3.4 に示す。X が 0.5 以上で InN-GaN 二元系の In-rich 側混和域の格子定数に3%の不整合率で合致する。この混晶系は緑色発光域に合致する(Ga_{1-x}In_x)N に格子整合する。La(In_{1-x}Y_x)O₃ は、蒸発を抑制するために高圧下での育成技術、例えば GaAs や InP 育成法である LEC (Liquid Encapsulated Czochralski)法における液体封止剤 (B₂O₃) のような材料の探索等を行うことによって、基板結晶として期待できる。

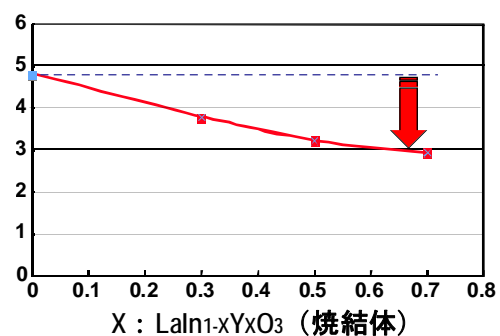


図 3.4 La(In,Y)O₃ の格子定数

(c) 新格子整合基板 REBGeO₅ (RE; La, Pr) の単結晶化の検討

研究進捗とともに、InN と格子整合する新しい結晶種の探索とその単結晶育成技術開発に着手した。格子整合基板材料として、図 3.1 に示した結晶の中の三方晶系 REBGeO₅ (RE; La, Pr) の単結晶化に着手した。REBGeO₅ (RE;La, Pr) の単結晶育成の報告については簡単な記述しかなく、

それらの論文では、育成の課題として結晶育成中に構成元素であるボロン(B)の蒸発が指摘されている。この課題については、 $\text{La}(\text{In}_{1-x}\text{Y}_x)\text{O}_3$ の育成試行で採用した「二重ルツボ法」と育成雰囲気を選択(具体的には O_2 および大気)によって殆ど抑制できることを確認した。この化合物の特性として、過冷却度が大きいことからガラス化し易いことがある。Cz 法の試行と並行して融液の過冷却を測定した結果、 LaBGeO_5 では $0.1^\circ\text{C}/\text{hr}$ でも約 50°C あることが判明した。Cz 育成における工程である母原料溶解→育成温度への冷却→種子付けの温度プロセスを検討し、直径 4~7mm、長さ約 50mm の単結晶育成条件を把握した。

本基板結晶の InN エピタキシャル成長時における NH_3 耐性を「薄膜結晶成長・デバイス化技術」グループの MOVPE 装置を用いて行い、耐性があることを確認した。さらに、同グループの加圧型 MOVPE 装置を用いて、本基板上に InN のエピタキシャル成長を試みた。その X 線回折スペクトルを図 3.5 に示す。InN の(0002)面反射が検出されたことから、InN(0001)が堆積していることを確認した。

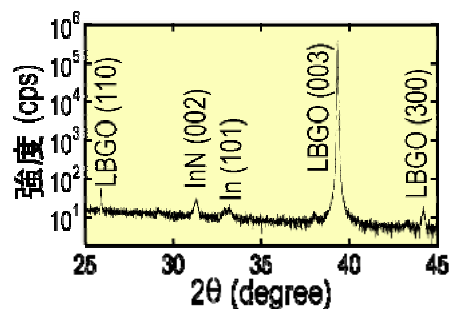
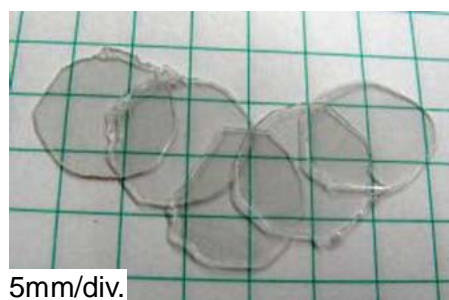


図 3.5 $\text{LaBGeO}_5(0001)$ 基板に成長した InN の X 線回折スペクトル

育成時の課題の一つに融液の大きな過冷却がある。融液の冷却速度 dT/dt と過冷却度 ΔT との関係が溶液成長で最近議論されている Nyvlt の式 ($\ln(\Delta T) = \ln(dT/dt) + B$) で表されることを、実測から融液成長で初めて検証した。本経験式を用いた結晶育成中における温度制御と、大口径化を図るために固液界面での facet 形成機構の考察とから、図 3.6(a)に示す直径 10mm、長さ 20mm の[001]軸単結晶育成に成功した。図 3.6(b)には、本結晶を切断し、研磨して作製したウェハを示す。



(a) 直径 10mm のブール



(b) 研磨加工した厚さ $350\ \mu\text{m}$ のウェハ

図 3.6 LaBGeO_5 結晶

上記の結果に加えて、従来の報告にある育成中の蒸発に関する新たな知見を得た。これまで蒸発物は B 酸化物とされていたが、連続した多数回育成で集めた蒸発物を EPMA (Electron Probe Micro Analyzer) で半定量的に調べ、Ge が主であることを確認した。実際の結晶育成では、育成後に母原料をルツボに加えて再度育成を行うので、結晶の組成ずれが危惧される。図 3.7 は同一融液から連続引上げ育成をした時の結晶の格子定数変化を示す。育成が 4回目を越えると格子定数が減少する。この減少が Ge の蒸発が原因であるとして、Ge 濃度による格子定数変化を焼結体で求め、格子定数が $7.005\ \text{\AA}$ から $6.999\ \text{\AA}$ に減少することを確認した。図 3.7 に示した結果を Ge の蒸発

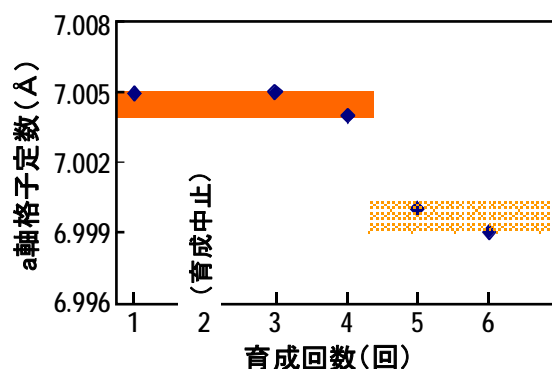


図 3.7 同一メルトから多数回育成した結晶の格子定数変化

で矛盾なく説明できる。また、図 3.7 は、InN 格子整合用基板としての格子定数の観点から、LaBGeO₅ の製造には連続して4回まで原料を利用できることは、結晶製造プロセスとして極めて有用な特徴である。

研磨加工した結晶基板を「薄膜結晶成長・デバイス化」G に提供し、MOVPE 成長炉中での NH₃ 耐性試験と InN 薄膜成長を試みた。サファイア基板上に成長する場合と同様の条件下で実施し、InN(001)膜の堆積を確認した。また、いくつか検討する材料的課題をラマン散乱分光測定で抽出した。特に、InO_x の存在等がラマン散乱分光でも検出され、MOVPE 環境下での基板表面処理を精査する必要性が示唆された。

結晶の透過特性を測定し、図 3.8 に示す。波長 190nm~3.3 μm まで透明であり、近紫外光デバイスへの応用を期待できる。LaBGeO₅ 単結晶は光非線形効果を有することからも、国内企業から結晶育成技術の技術移転依頼を受けて、現在、技術指導を行っている。

当初計画にはなかった LaBGeO₅ の進展は、成果として大きい。当初計画での基板材料は格子不整合度が 3~5%であった。しかし、本結晶材料は 1%以下であること、NH₃ 耐性が良好であること、小口径ながら単結晶育成に成功したことから、「薄膜結晶成長・デバイス化」グループと共同で基板を評価できた。本結晶の育成に関しては公表された論文がなく、結晶育成技術としても新たな一面を開くことができたと考える。

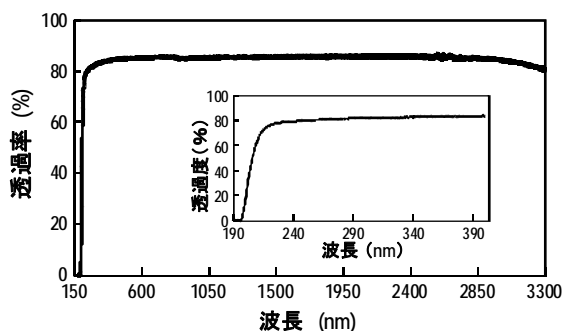


図 3.8 LaBGeO₅(001)の光透過スペクトル

(d) 大口径化への試み

本結晶育成の最大の問題点はボロン化合物固有である融液の高粘性である。粘性が高いと熱伝導度が低くなり、固液界面での過冷却度が大きくなる。その結果、増径の温度制御が難しくなる。そこで融液の粘性を決めている O-B-O 結合を壊すとされるフッ素(F)を添加した融液を合成して育成を実施した。融液組成は LaBGeO_{5-1.5x}F_{3x}として酸素に対する置換量 x(≤1.0)を種々検討した。

x≥0.2 では La₂Ge₂O₅ 他の異相が表れやすくなることが判り、単結晶は得にくい。一方、x=1.0 融液から、図 3.9 に示すように、直径10mm を越す無色透明な単結晶を数本再現性良く得ることができた。この融液の過冷却度として約30°Cが求められ、無置換溶液の140°Cに比べて格段に小さい。この結果、温度制御による増径化が図れたと考えられる。格子定数は無置換結晶と1~2×10⁻³ Å程度の違いであり、InN 用格子整合基板としても問題ない。F 置換量の最適化と諸特性の精査が残された。



図 3.9 F 置換(x=0.10)LaBGeO₅ 単結晶

(e) 成果の位置づけと類似テーマとの比較

当初計画にはなかった LaBGeO₅ の進展が大きい。当初計画での基板材料の格子不整合度が 3~5%であるが本結晶材料は 1%以下であること、NH₃ 耐性が良好であること、小口径ながら単結晶育成に成功したことから、「薄膜結晶成長・デバイス化」グループと共同で基板を評価できた。本結晶の育成に関しての公表された論文がなく、フッ素置換を含めて 10mm 径強の単結晶が得られた結晶育成技術として進歩したと考える。

(2)研究成果の今後期待される効果

InN や InGaN と格子整合する基板材料の開発研究はほとんどなされていないのが、現状である。

国際会議等での InN 関連セッションにおいても基板を議論した報告は、依然として極めて少ない。新基板を用いてデバイスレベルの高品質 InN 薄膜成長を実現することができれば、科学的にも産業的にもインパクトが大きいと考える。さらに、その他の光機能デバイスも実現できることにもなり、基板開発は極めて重要と考える。また、InN 用結晶基板として開発した LaBGeO₅ は、紫外域まで透明であり、かつ、非線形光学特性を有することから、短波長発生素子として期待できる。本研究で構築した大型結晶育成技術により、新たな光素子応用が期待される。

(2) 新たに追加・修正など変更した研究構想

当初計画に挙げた LaInO₃ の育成は InO_x の蒸発が極めて激しいことから、その単結晶育成を断念した。その代替えとして、より格子整合性に優れた REBGeO₅ (RE=La,Pr) 単結晶の探索的育成を実施し、期間後半に注力をした。当初計画に挙げなかった非極性 InN 膜用の基板材料探索を検討し、InN{0001}および{1000}面に格子不整が約 1%と小さい YBa₃B₉O₁₈ を探索して結晶合成を行うに留まった。基板用としては更なる育成法の検討が必要である。

4. 4 回折格子作製技術 (情報通信機構 中尾グループ)

本技術は、研究課題の当初目標であった分布帰還型 (DFB) レーザ作製のための回折格子作製技術である。しかしながら、中間評価時のチームとしての研究進展が計画より大幅に遅れ、研究の最終目標を DFB レーザから減縮し、本技術が不要となったため、H21 年度をもって中止した。以下にそれまでに得られた結果を示す。

(1) 研究実施内容及び成果

次世代リソグラフィと目されるインプリントリソグラフィ技術と高精度なパターン形成が可能なドライエッチング技術を用いて、DFB レーザ用回折格子作製技術を確立し、その技術を InN ベースの窒化物半導体による DFB レーザの実現に応用する。

(a) ドライエッチング技術

「薄膜結晶成長・デバイス化」グループが成長した InN 薄膜に対し、電子線描画レジストパターンをマスクとし、塩素系ドライエッチング技術を用いて、世界で初めて InN の回折格子形成に成功した (図 4.1)。明確な形状を得るには、高アスペクト比の大きなエッチングマスクが必要となる。UV インプリント用レジストをマスクとした各種基板へのドライエッチングによる回折格子形成にも成功した。

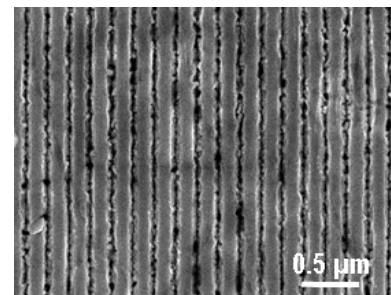


図 4.1 InN 結晶の回折格子

(b) インプリントリソグラフィ技術

エッチング耐性の大きな窒化物半導体に対して用いるアスペクト比の大きなマスクを形成できる技術として、押し型(モールド)でナノサイズパターンを形成できる UV インプリント技術を立ち上げた。GaN 基板への回折格子の作製工程は次のようになる。まず、表面に深さ 150nm、DFB レーザ発振波長 $1.55 \mu\text{m}$ に相当する周期 320nm の凹凸パターンを石英基板に形成し、モールドとする。UV レジストをスピン塗布した GaN 基板とモールドを UV インプリント装置に設置し、真空下で、モールドと基板を 1.1kN で加圧密着させ、60 秒間 UV 照射する。モールド剥離後に GaN 結晶基板上に形成された UV レジストパタンの断面(A)および表面(B)の SEM 像を図 4.2 に示す。良好なパターン転写が窺える。モールドの押し付け部分に残る厚さ数十 nm の UV レジストの残膜を 20 秒の酸素ドライエッチングで除去し、モールドの深さとほぼ同程度の厚さ 150nm の UV レジストパターンが形成される。次に、この UV レジストパターンをエッチングマスクとし、塩素系ドライエッチングを 90 秒行くと、GaN 基板に深さ 150nm の回折格子が、図 4.3 に示すように形成される。同様の工程で 3 インチ GaAs 基板への DFB レーザ用回折格子の一括形成にも成功しており、極めて均一性の良いパターン転写技術であることを確認している。用いた UV レジストは GaN に対してエッチングの選択比が 1.5 以上あり、エッチング時間を制御することにより、200nm までの任意の深さの回折格子を GaN 基板に形成できる。

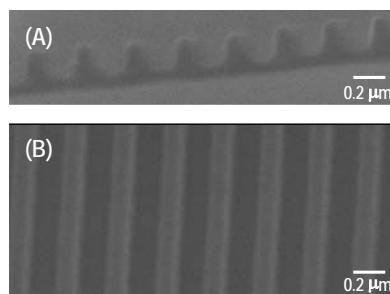


図 4.2 GaN 結晶基板上回折格子の断面(A)と表面(B)のレジストパターン(周期 320nm)

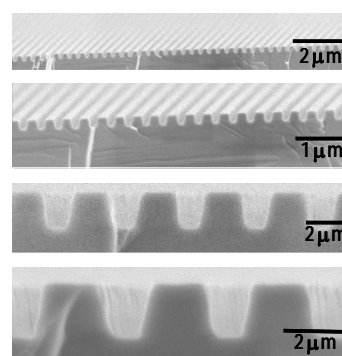


図 4.3 UV インプリットにより形成した GaN 回折格子パターン

(c) 回折格子埋め込み成長技術

UV インプリットにより GaN 基板に形成した回折格子上の InGaN/GaN 成長を薄膜成長・デバイス化グループと連携して行った。図 4.4 に深さ 100 nm、周期 320nm の回折格子の形成された GaN 基板上に InGaN 層(厚さ 250nm)と GaN 層(厚さ 850nm)をエピタキシャル成長した試料の壁開断面の SEM 鳥瞰像を示す。GaN 回折格子は、結晶成長温度で変形しないことを成長直前に確認している。この結果から、回折格子を内蔵したダブルヘテロ(DH)構造の作製に見通しが得られた。光学的な評価、さらには完全なレーザ構造の作製は今後の研究課題である。

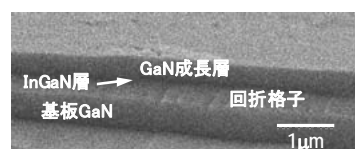


図 4.4 回折格子埋め込み成長後の鳥瞰 SEM 像

(2)研究成果の今後期待される効果

UV インプリット技術の適用範囲の拡大のために、3 インチ GaAs 基板への DFB 回折格子の一括転写を試み、図 4.5 に示すように成功している。この技術は DFB レーザ用回折格子の形成技術として、現在最も利用されている電子ビーム露光技術と比較して、スループットで 20~50 倍、コストで 1/30~1/50 となり、少なくとも 1000 倍以上効率的な技術となることを明らかにした。開発した技術の実用化の観点から国内メーカー数社からも注目されており、現在、共同研究・開発の可能性を交渉しつつある。開発した UV インプリット技術は、マスク製造を単純化できることから、高度で複雑な既存の半導体リソグラフィ技術よりも実質的に 4 桁近くエコロジな技術であることも明らかになりつつあり、極めて将来性のある技術として注目されはじめています。

窒化物半導体で構成される発光ダイオード(LED)の高効率化において、高効率化のために発光層で発生した光の素子外への引き出し効率の向上に注力されている。ここで開発した技術は、2 時の回折格子を LED の光取り出し面に形成することによって、引き出し効率を向上させることができ、期待される。

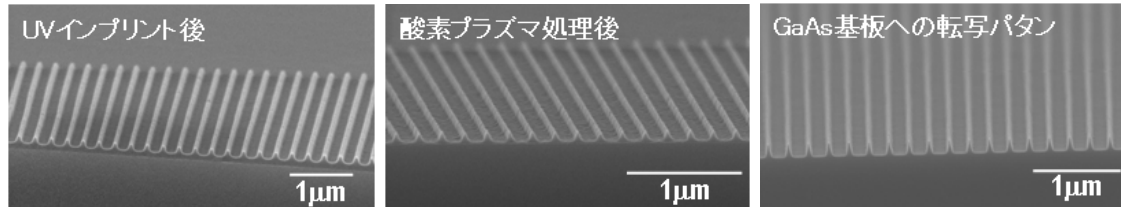


図 4.5 3 インチ GaAs 基板への DFB レーザ用回折格子の一括形成

(d) 成果の位置づけと類似テーマとの比較

窒化物半導体上への回折格子の形成技術として、電子ビーム露光(EB)装置を用いた例が2、3年前から報告されている。通常、窒化物半導体のエッチングには、通常の電子ビーム露光用フォトリソレジストを使うことができない。これに対して、インプリント技術では、厚膜のフォトリソレジストなどの有機物を用いることができ、窒化物半導体の微細加工に向いている。また、EB 装置ではウェハ面積 1cm^2 に対する露光時間は 1 時間程度必要とするのに対して、インプリント技術では 1 分程度である。窒化物半導体に対して、インプリント技術を用いた報告はなく、ここで得た成果は、窒化物半導体の微細加工に新たな道を開く。

(2)研究成果の今後期待される効果

現在、窒化物半導体の LED において、特に紫外 LED において、注入電流から光りへの変換効率を上げるために、発光層で発生した光を外部に取り出す効率、すなわち、取り出し効率の向上に注力されている。そこでは、LED の光取り出し面にテクスチャ構造などが導入されている。中でも、光の波長に対して周期 150nm 程度以下の二次の回折格子が期待されている。LED の作製にはコストをかけられないため、EB を用いることはできないため、インプリント技術は有効と考えられる。紫外 LED の製造の世界に、インプリント技術が導入されるかもしれない。もちろん、本課題の最終目標であった分布帰還型レーザ用の回折格子の作製にも有用である。

§ 5 成果発表等

(1)原著論文発表 (国内(和文)誌 0 件、国際(欧文)誌 18 件)

1. T. Matsuoka, "New Possibility of MOVPE-Growth in GaN and InN, - Polarization in GaN and Nitrogen-Incorporation in InN -", *Proceeding of SPIE, "Gallium Nitride Materials and Devices II"*, **6473**, pp.1-12 (2007), **invited paper**.
2. T. Kimura and T. Matsuoka, "Calculation of Phase Separation in Wurtzite $\text{In}_{1-x-y-z}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{B}_z\text{N}$ ", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46**(24), pp. L574-L576 (2007).
3. K. Nakashima and T. Matsuoka, "A Simple Method for Analyzing Peak Broadening due to Tilt and Twist Distributions in X-ray Diffraction Measurements of Materials of Arbitrary Type", *J. Appl. Crystallography*, **41**, pp. 191-197 (2008).
4. M. Nakao, T. Shimada, M. Wakaba, N. Motegi, A. Gomyo, S. Mizuno, and T. Matsuoka, "1.5- μm emission of Slightly Oxidized InN Crystals Grown by MOVPE", *phys. stat. sol. (c)*, **5**(9), pp. 3063-3065 (2008).
5. T. Matsuoka, "Mysterious Material InN in Nitride Semiconductors, What's the Bandgap Energy and its Application?", *Proceeding of 2007 IEEE International Conference on Indium Phosphide and Related Mat. (IPRM)*, pp. 372-375 (2008), **invited paper**.
6. T. Matsuoka, "Progress in MOVPE-Growth of GaN to InN", *Proc. SPIE*, **6900**, pp. 69000S-1- 69000S-6 (2008).
7. M. Nakao, T. Kimura, Y. H. Liu, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "Grating Fabrication on Nitrides Grown by MOVPE for DFB Lasers", *phys. stat. sol. (c)*, **6**(S2), pp. S893-S896 (2009).
8. Y. H. Liu, T. Kimura, T. Shimada, M. Hirata, M. Wakaba, M. Nakao, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "MOVPE Growth of InN: A Comparison between a Horizontal and a Vertical Reactor", *phys. stat. sol. (c)*, **6**(52), pp. 5381-5384 (2009).
9. S. Shingubara, S. Maruo, T. Yamashita, M. Nakao, and T. Shimizu, "Reduction of Pitch of Nanohole Array by Self-organizing Anodic Oxidation after Nanoimprinting", *Microelectronic Engineering*, **87**, pp. 1451-1454 (2010).
10. Y. T. Zhang, Y. H. Liu, T. Kimura, M. Hirata, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Effect of Growth Temperature on Structure Properties of InN Grown by Pressurized-Reactor Metalorganic Vapor Phase Epitaxy", *phys. stat. sol. (c)*, **8**(2), pp. 482-484 (2011).
11. T. Hanada, T. Shimada, S. Y. Ji, K. Hobo, Y. H. Liu, and T. Matsuoka, "Strain Relaxation Mechanism of InGaN Thin Film Grown on m-GaN", *phys. stat. sol. (c)*, **8**(2), pp. 444-446 (2011).
12. T. Matsuoka, "New Possibility of MOVPE-Growth in GaN and InN, - Polarization in GaN and Nitrogen-Incorporation in InN -", *Proc. SPIE, "Gallium Nitride Materials and Devices II"*, 6900-26 (2010).

13. S. Miyazawa, S. Ichikawa, Y. H. Liu, S. Y. Ji, T. Matsuoka, and H. Nakae, "Novel Substrate LaBGeO₅ Lattice-matching to InN", *phys. stat. sol. (a)*, **208**, pp. 1195-1198 (2011).
14. T. Matsuoka, Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, K. Prasertsuk, and R. Katayama, "Paving the Way to High-quality Indium Nitride -The Effects of Pressurized Reactor -", *Proc. SPIE*, **7945**, pp. 7945-1-7945-5 (2011).
15. T. Kimura, K. Prasertsuk, Y. Zhang, Y. Liu, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Phase Diagram on Phase Purity of InN Grown by Pressurized-Reactor MOVPE", *phys. stat. sol. (c)*, **9**(3-4), pp. 654-657 (2012).
16. K. Prasertsuk, Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, T. Iwabuchi, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Relationship between Residual Carrier Density and Phase Purity in InN Grown by Pressurized-Reactor MOVPE", *phys. stat. sol. (c)*, **9**(3-4), pp. 681-684 (2012).
17. J. G. Kim, Y. Kamei, A. Kimura, N. Hasuike, H. Harima, K. Kisoda, Y. H. Liu, and T. Matsuoka, "Raman-scattering Characterization of InN Films Grown by Pressurized Metalorganic Vapor Phase Epitaxy", *phys. stat. sol. (b)*, **249**, pp. 779-783 (2012).

(2) その他の著作物(総説、書籍など)

1. 中尾正史, "インプリントリソグラフィのフォトニクスへの応用～総論", 月刊OPTRONICS, No.338, pp. 80-82 (2010).
2. 中尾正史, 水野潤, "UV インプリントによる各種基板上への回折格子形成技術", 月刊OPTRONICS, No.338, pp. 93-99 (2010).

(3) 国際学会発表及び主要な国内学会発表

① 招待講演 (国内会議 8 件、国際会議 15 件)

(国内)

1. 松岡隆志, "窒化物半導体の開発経緯とInN研究", 次世代ナノ技術に関する専門委員会(第II期)第一回研究会 材料デバイスサマーミーティング, "InN 系材料の現状と将来" (2006.6.30).
2. 松岡隆志, "InN および In-rich InGaN の問題点と新しい応用", 次世代ナノ技術に関する専門委員会(第III期)第一回研究会 材料デバイスサマーミーティング, "InN 系材料の現状と将来" 第二段 (東京, 2008.6.27).
3. 劉玉懷, 木村健司, 松岡隆志, "InN の MOVPE 成長における横型炉と縦型炉の比較", 次世代ナノ技術に関する専門委員会(第III期)第一回研究会 材料デバイスサマーミーティング, "InN 系材料の現状と将来" 第二段 (東京, 2008.6.27).
4. 松岡隆志, 宇佐美德隆, "窒化物次世代太陽電池", 第 69 回応用物理学関係連合講演会予稿集, シンポジウム "再生可能サイクルへ向けたエネルギーデバイスの現状" (4p-ZA-5) (名古屋, 2008).
5. 松岡隆志, "デバイス側からみたナイトライド用基板結晶", 結晶成長学会 バルク結晶分

科会 (東北大学, 2010.6.18).

6. 松岡隆志, 木村健司, 劉玉懷, 張源涛, 片山竜二, "InN 成長における加圧型有機金属気相成長法の可能性", 東北大学多元物質科学研究所 窒化物ナノ・エレクトロニクス材料研究センター講演会 "GaN 系プラネットコンシヤスデバイス・材料の現状" (東北大学, 2010.11.4-5).
7. 松岡隆志, 劉玉懷, 木村健司, 片山竜二, "窒化物半導体研究のトレンド:InN", 第 120 回東北大学金属材料研究所講演会 (2010.11.24-25).
8. 松岡隆志, 劉玉懷, 木村健司, 片山竜二, "ワイドバンドギャップ半導体単結晶薄膜の加圧成長と成長制御技術", 応用物理学会結晶工学分科会, 7 (学習院大学, 2011.4.21).

(国際)

1. T. Matsuoka, "Progress in Nitride Semiconductors from GaN to InN -What is Bandgap Energy of InN?-", *2006 International Electron Devices and Materials Symposia (IEDMS)*, IC003 (Tainan, Taiwan, Dec. 7-8, 2006).
2. T. Matsuoka, "New Possibility of MOVPE-Growth in GaN and InN, - Polarization in GaN and Nitrogen-Incorporation in InN -", *The International Society for Optical Engineering, Opto- electronics 2007, GaN Materials and Devices II (OE07)*, 6473-1 (San Jose, USA, Jan. 20-25, 2007).
3. T. Matsuoka, "Mysterious Material InN in Nitride Semiconductors, - What's the Bandgap Energy and its Application?", *19th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM 2007)*, WeA2-1 (Matsue, Japan, May 14-18, 2007).
4. T. Matsuoka, "Mysterious Material InN in Nitride Semiconductors, - What's the bandgap energy and its application?", *2nd Polish-Japanese-German Crystal Growth Meeting (PJG- CGM2)*, L(8) (Zakopane, Poland, May 24-25, 2007).
5. T. Matsuoka, "Mysterious Material InN in Nitride Semiconductors, - What's the Bandgap Energy and its Application?", *8th International Balkan Workshop on Applied Physics* (Constanta, Romania, July 5-7, 2007), **plenary lecture**.
6. T. Matsuoka, "Progress in MOVPE Growth of GaN to InN", *4th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology (CGCT-4)*, Z-24AM1-II-3A-1K (Sendai, Japan, May 21-24, 2008), **keynote lecture**.
7. T. Matsuoka, "Review on InGaAlN Research and Its Future Prospects", *Harvard and Tohoku May Exchange Meeting* (Commonwealth, USA, May 6-7, 2009).
8. T. Matsuoka, "New Trends of Nitride Semiconductors", *2009 International Symposium Opto- mechatronic Technol. (ISOT)*, (Istanbul, Turkey, Sept. 21-23), **plenary lecture**.
9. Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, M. Hirata, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Extended Growth Windows for Single Crystalline InN Grown by Pressurized-Reactor Metalorganic Vapor Phase Epitaxy", *37th International Symposium on Compound Semiconductors*, FrD1-2 (Takamatsu, Japan, May 31-June 4, 2010).

10. T. Matsuoka and Y. H. Liu, "Nitride Semiconductors: Planet Conscious Materials", *International Conference on Emerging Technology in Renewable Energy (ICETRE-2010)* (Chennai, India, Aug. 18-21, 2010).
11. T. Matsuoka, Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, K. Prasertsuk, and R. Katayama, "Paving the Way to High-quality InN- Effects of Pressurized Reactor in MOVPE-", *International Conference on Nano and Information Technology of Semiconductors* (Dongguk University in Seoul, Korea, Dec. 9-10, 2010).
12. T. Matsuoka, "Progress and Current Status in Nitride Semiconductors from GaN to InN", *Wide bandgap Semiconductors nanostructures*, 1 (Crystal Growth Centre of Anna University in Chennai, INDIA, Jan. 10-11, 2011).
13. T. Matsuoka, "Progress in MOVPE-Growth in GaN and InN", *The International Society for Optical Engineering, Optoelectronics 2010, Quantum Sensing and Nanophotonic Devices V*, 6900-26 (San Jose, USA, Jan. 20-23, 2011).
14. T. Matsuoka, "Recent Progress in Growth of InN and its Applications", *International Conference on LED and Solid State Lightings* (LED2011) (Seoul, Korea, April 11-12, 2011).
15. T. Matsuoka, Y. H. Liu, T. Kimura, and R. Katayama, "Possibility of Pressurized-Reactor MOVPE for Nitride Semiconductors", *5th International Conference on LED and Solid State Lighting* (Conference Center, COEX, Seoul, Korea, June 30-July 1, 2011).

② 口頭発表 (国内会議 34 件、国際会議 35 件)
(国内)

1. 花田徹、上野孝介、宮澤信太郎、中江秀雄、“溶融塩法による β -FeSi₂ 膜の作製と評価”、第 68 回応用物理学会秋季講演会 (北海道大学 2007.9.4-8)。
2. J. G. Kim, Y. Kamei, H. Yamamoto, N. Hasuike, K. Kisoda, H. Harima, Y. H. Liu, and T. Matsuoka, "Raman Scattering Characterization of MOVPE-InN Films-Comparison between High-pressure and Low-pressure Growth", 第 56 回応用物理学関係関連合講演会 31a-ZJ-02 (筑波, 2009.3.30-4.2)。
3. 片山竜二, "窒化物半導体ヘテロ構造の電場変調分光", 窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用キックオフミーティング (東北大学, 2009.7.31)。
4. 劉玉懷, "MOVPE による InN 結晶の成長と評価", 窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用キックオフミーティング (東北大学, 2009.7.31)。
5. 花田貴, 松岡隆志, "InGaN の歪エネルギーと相分離", 窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用キックオフミーティング (東北大学, 2009.7.31)。
6. 劉玉懷, 張源涛, 木村健司, 平田雅貴, 紀世陽, 松岡隆志, "加圧有機金属気相成長法による InN の c 面成長促進のメカニズム", 第 70 回応用物理学会学術講演会 10p-E-6 (富山, 2009.9.8-11)。

7. 張源涛, 劉玉懷, 木村健司, 平田雅貴, 大田由一, 紀世陽, 松岡隆志, "Effect of growth temperature on InN films grown by pressurized MOVPE", 第70回応用物理学会学術講演会 10p-E-5 (富山, 2009.9.8-11).
8. 紀世陽, 保浦健二, 劉玉懷, ベンガーダーチャラム サレッシュクマール, 張源涛, 木村健司, 松岡隆志, "MOVPE 法による ZnO 基板上に InGaN エピタキシ膜の成長", 第70回応用物理学会学術講演会 11a-E-2 (富山, 2009.9.8-11).
9. 市川智, 金森俊樹, 宮澤信太郎, 中江秀雄, "強誘電体 REBGeO₅(RE:La,Pr)単結晶の Cz 成長", 第39回結晶成長国内会議 (名古屋大学, 2009.11.22-24).
10. 松岡隆志, "温度安定性に優れた光通信用 InN 半導体レーザの研究", JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第2回公開シンポジウム (日本科学未来館, 2009.11.27).
11. 中島紀伊知, 松岡隆志, "Twist 分布に起因したX線回折ピーク拡がりの指数依存性解析法:受光系開口角の影響(3)", 第70回応用物理学会学術講演会講演会 20p-TW-6 (東海大学, 2010.3.17 -20).
12. 片山竜二, "極性ワイドギャップ半導体による極性反転ヘテロ構造の素子応用", 第2回窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用 (東北大学, 2009.12.22-23).
13. 平田雅貴, 劉玉懷, 張源涛, 木村健司, K. Prasertsuk, 片山竜二, 松岡隆志, "加圧 MOVPE 成長 InN の FT-IR によるキャリア密度評価", 第2回窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用 (東北大学, 2009.12.22-23).
14. 花田貴, "m 面 GaN 基板上での InGaN 薄膜の歪緩和", 第2回窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用 (東北大学, 2009.12.22-23).
15. 花田貴, 島田貴章, 若葉昌布, 紀世陽, 保浦健二, 木村健司, 劉玉懷, 松岡隆志, "m 面 GaN 基板上での InGaN 薄膜の歪緩和", 第70回応用物理学会学術講演会講演会 17p-TB-7 (東海大学, 2010.3.17 -20).
16. 紀世陽, 保浦健二, 劉玉懷, ベンガーダーチャラム サレッシュクマール, 張源涛, 進藤裕文, 片山竜二, 松岡隆志, "MOVPE 法による GaN テンプレート上への InGaN エピタキシャル成長", 第70回応用物理学会学術講演会講演会 17p-TB-9 (東海大学, 2010.3.17 -20).
17. 劉玉懷, 木村健司, 張源涛, 平田雅貴, 紀世陽, 片山竜二, 松岡隆志, "InN の MOVPE 成長における相図に関する圧力依存性", 第70回応用物理学会学術講演会講演会 17a-TC-9 (東海大学, 2010.3.17 -20).
18. V. Suresh Kumar, S. Y. Ji, K. Hobo, Y. H. Liu, H. Shindo, M. Wakaba, T. Matsuoka, "InGaN の MOVPE 成長における V/III 比の依存性", 第70回応用物理学会学術講演会講演会 17p-TB-10 (東海大学, 2010.3.17 -20).
19. 市川智, 金森俊樹, 宮澤信太郎, 中江秀雄, 紀世陽, 劉玉懷, 松岡隆志, "InN 薄膜成長用基板結晶 LaBGeO₅の単結晶育成", 第57回応用物理学会春期講演会 17a-TC-11

(東海大学 2010.3.17-20).

20. Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, M. Hirata, T. Iwabuchi, K. Prasertsuk, T. Hanada, R. Katayama, and T. Matsuoka, "加圧 MOVPE 成長 InN のバンドギャップエネルギーの温度依存性", 第 71 回応用物理学会学術講演会, 14p-NJ-18 (長崎大学, 2010.9.14-17).
21. 木村健司, 劉玉懷, 張源濤, K. Prasertsuk, 金延坤, 蓮池紀之, 播磨弘, 片山竜二, 松岡隆志, "加圧 MOVPE 成長 InN の相純度の成長温度依存性", 第 71 回応用物理学会学術講演会講演会 14p-NJ-17 (長崎大学, 2010.9.14-17).
22. 亀井靖人, 金廷坤, 蓮池紀幸, 木曾田賢治, 播磨弘, 劉玉懷, 松岡隆志: "加圧 MOVPE 成長 InN の相純度の成長温度依存性", 第 71 回応用物理学会学術講演会 14p-NJ-17 (長崎, 2010.9.14-17).
23. 木村健司, "加圧 MOVPE 成長の InN の相純度の成長温度依存性", 第 3 回窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用 (東北大学, 2010.10.25-26).
24. 松岡隆志, 播磨弘, 宮澤信太郎, "温度安定性に優れた光通信用 InN 半導体レーザの研究" ~最近の進捗~, JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第 3 回公開シンポジウム (日本科学未来館, 2010.11.26).
25. 劉玉懷, 木村健司, 張源濤, K. Prasertsuk, 岩渕拓也, 花田貴, 片山竜二, 松岡隆志, "窒化インジウム薄膜高品質化への道", JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第 3 回公開シンポジウム (日本科学未来館, 2010.11.26).
26. 正直花奈子, 花田貴, 島田貴章, 劉玉懷, 片山竜二, 松岡隆志, "m 面 GaN 基板上 InGaN 薄膜 In 濃度の基板傾斜角依存性", 第 4 回窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用 (東北大学, 2011.1.17-18).
27. J. H. Choi, R. Katayama, T. Hanada, Y. H. Liu, and T. Matsuoka, "Comparisons of Optical Properties between Polar and Non-polar InGaN/GaN Multiple-quantum-well Light-emitting-diodes", 第 4 回窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用 (東北大学, 2011.1.17-18).
28. 金廷坤, 亀井靖人, 木村篤人, 蓮池紀幸, 木曾田賢治, 播磨弘, 劉玉懷, 松岡隆志, "ラマン散乱による PR-MOVPE 成長 InN 膜質評価(II)", 第 58 回応用物理学関係関連合講演会 25a-BY-8 (神奈川, 2011.3.24-27).
29. 岩渕拓也, 劉玉懷, 木村健司, 張源濤, K. Prasertsuk, 片山竜二, 松岡隆志, "加圧型 MOVPE 法による InN の転位密度における相純度の影響", 第 121 回東北大学金属材料研究所講演会 P-77 (2011.5.24-25).
30. 正直花奈子, 花田貴, 島田貴章, 劉玉懷, 片山竜二, 松岡隆志, "m 面 GaN 基板上 InGaN 薄膜の In 濃度の基板傾斜角依存性", 第 121 回東北大学金属材料研究所講演会 P-82 (2011.5.24-25).
31. 花田貴, 劉玉懷, 張源濤, 木村健司, K. Prasertsuk, 片山竜二, 松岡隆志, "InN の X 線回折強度の温度因子の測定とバンドギャップ温度依存性に関する考察", 第 5 回窒化物

半導体の高品質結晶成長とその素子応用 (東北大学, 2011.8.8-9).

32. 正直花奈子, 花田貴, 島田貴章, 劉玉懷, 片山竜二, 松岡隆志, "MOVPE 成長 InGaN/m-GaN におけるチルトドメインとIn濃度", 第72回応用物理学会学術講演会講演会 31p-ZE-14 (山形大学, 2011.8.29 -9.2).
33. 岩渕拓也, 平田雅貴, 木村健司, 劉玉懷, 張源涛, プラスラットスック キャットイウト, 片山竜二, 松岡隆志, "加圧型 MOVPE 成長 InN の転位密度と相純度の成長圧力依存性", 第72回応用物理学会学術講演会講演会 30a-ZE-10 (山形大学, 2011.8.29 -9.2).
34. 岩渕拓也, 松村博史, 木村健司, 張源涛, キャットイウト プラスラットスック, 劉玉懷, 片山竜二, 松岡隆志, "加圧型 MOVPE 成長 InN 薄膜における準安定相混在のEBSDによる評価", 第59回応用物理学会関係連合講演会予稿集, 17a-B10-8 (早稲田大学, 2012年3月15日-18日).

(国際)

1. T. Matsuoka and H. Okamoto, "Possibility of InN in Applications for Optical Communications Systems", *3rd International Indium Nitride Workshop* (Ilhabela, Brazil, Nov. 12-16, 2006).
2. T. Hanada, K. Ueno, M. Nakao, S. Miyazawa, and H. Nakae, "Growth of β -FeSi₂ Films on ϵ -FeSi Substrates from Molten Salt by the Disproportionation Process", *15th International Conference on Crystal Growth (ICCG-15)* (Salt Lake City, USA, Aug. 12-17, 2007).
3. N. Motegi, M. Nakao, and T. Matsuoka, "MOVPE Growth Mechanism of High Quality N-Polar GaN on C-Plane Sapphire", *7th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-7)*, X-7 (Las Vegas, USA, Sept. 16-21, 2007).
4. T. Kimura and T. Matsuoka, "Band Gap of Miscible InGaAlBN for Use in Optical Communications Systems", *7th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-7)*, WP96 (Las Vegas, USA, Sept. 16-21, 2007).
5. M. Nakao, T. Shimada, M. Wakaba, N. Motegi, A. Gomyo, S. Mizuno, and T. Matsuoka, "Anomalous Temperature Dependence of Photoluminescence for InN Grown by MOVPE", *7th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-7)*, WP3 (Las Vegas, USA, Sept. 16-21, 2007).
6. M. Nakao, T. Shimada, M. Wakaba, N. Motegi, A. Gomyo, S. Mizuno, and T. Matsuoka, "1.5- μ m Emission of Slightly Oxidized InN Crystals Grown by MOVPE", *34th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS'34)*, ThC-P31 (Kyoto, Japan, Oct. 15-18, 2007).
7. S. Singubara, T. Yamashita, K. Maruo, M. Nakao, and T. Shimizu, "Reduction of Nanohole Pitch from that of Pre-imprinted one in AAO by Adjusting Anodic Voltage", *Materials Research Society, Spring Meeting*, I10-38 (San Francisco, USA, Mar. 24-28, 2008).
8. Y. H. Liu, T. Kimura, T. Shimada, M. Hirata, M. Wakaba, M. Nakao, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "MOVPE Growth of InN: A Comparison between a Horizontal and

- a Vertical Reactor", *5th International Workshop on Nitrides (IWN 2008)*, Mo2a-P7 (Montreux, Switzerland, Oct. 5-10, 2008).
9. M. Nakao, T. Kimura, Y. H. Liu, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "Grating Fabrication on Nitrides Grown by MOVPE for DFB Lasers", *5th International Workshop on Nitrides (IWN 2008)*, Tu6-P29 (Montreux, Switzerland, Oct. 5-10, 2008).
 10. M. Nakao, S. Ishizuka, S. Kataza, S. Shoji, S. Mashiko, and J. Mizuno, "Batch Fabrication of First-Order Grating for DFB Lasers on 3-inch GaAs Substrates by using UV-Imprint and Chlorine-ICP-RIE Techniques", *IEEE Nanotechnology Materials and Devices Conference 2008 (NMDC2008)*, TuA II-3 (Kyoto, Japan, Oct. 20-22, 2008).
 11. S. Ishizuka, M. Nakao, S. Kataza, H. Shinohara, S. Mashiko, J. Mizuno, and S. Shoji, "Batch Transfer Large-Area Gratings for DFB Lasers Fabricated on GaAs Substrates using Ultraviolet Nano-Imprint Lithography", *21st International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2008)*, 30C-11-6 (Fukuoka, Japan, Oct. 27-30, 2008).
 12. S. Maruo, T. Yamashita, M. Nakao, T. Shimjizu, and S. Shingubara, "Realizing $1/\sqrt{3}$ Pitch of the Alumina Nano-hole Array by Self-organizing Anodic Oxidation after Nano-imprinting", *21st International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2008)*, 29D-9-130 (Fukuoka, Japan, Oct. 27-30, 2008).
 13. S. Penna, A. Reale, G. M. Tosi Beleffi, S. Shinada, M. Nakao, N. Wada, A. L. J. Teixeira, and P. S. B. Andre, "Hybrid Organic Active Waveguide for C-band Applications", COST MP0702 Annual Meeting at IEEE ICTON 2009 (Azzores, Portugal. June 28-July 3, 2009).
 14. S. Penna, A. Reale, G. M. Tosi Beleffi, S. Shinada, M. Nakao, N. Wada, A. L. J. Teixeira, and P. S. B. Andre, "Optoelectronic Materials and Components Characterization for Organic Inorganic Laser Assembly", *IEEE OECC 2009* (Hong Kong, China. July 13-17, 2009).
 15. Y. H. Liu and T. Matsuoka, "Perspective in Growth of High-quality InN by Pressurized MOVPE", *6th International Workshop on Bulk Nitride Semiconductors 9-4* (Galindia, Poland, Aug. 23-28, 2009).
 16. Y. H. Liu, S. Y. Ji, K. Hobo, T. Kimura, M. Hirata, Y. T. Zhang, T. Shimada, and T. Matsuoka, "Effects of Substrate Misorientation on InGaN Grown on M-plane GaN", *8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8)*, II6 (Jeju, Korea, Oct. 18-23, 2009).
 17. S. Y. Ji, K. Hobo, Y. H. Liu, Y. T. Zhang, V. Suresh Kumar, and T. Matsuoka, "MOVPE Growth of GaN on Novel Substrate ZnO", *8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8)*, MP33 (Jeju, Korea, Oct. 18-23, 2009).
 18. Y. H. Liu, Y. T. Zhang, T. Kimura, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "Growth of InN by Pressurized Reactor MOVPE: Morphology Evolution", *8th International*

- Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8)*, ThP23 (Jeju, Korea, Oct. 18-23, 2009).
19. S. Ishizuka, M. Nakao, J. Mizuno, and S. Shoji, "Fabrication of a Grating on Composite Semiconductors using UV Nanoimprint Lithography", *International Conference of Photopolymer Science and Technology (ICPST-26)*, A7 (Chiba, Japan, June 30-July 3, 2009).
 20. Y. H. Liu, and T. Matsuoka, "Perspective in Growth of High-quality InN by Pressurized MOVPE", *6th International Workshop on Bulk Nitride Semiconductors* 9-4 (Galindia, Poland, Aug. 23-28, 2009).
 21. Y. H. Liu, Y. T. Zhang, T. Kimura, M. Hirata, M. Nakao, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "Challenges, Strategies, and Future Perspectives in MOVPE Growth of InN", *2009 Asian Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors* II-1 (Sendai, Japan, Sept. 4-5, 2009).
 22. T. Kimura, Y. H. Liu, M. Hirata, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "The Way to the Growth of High Quality InN", *2009 Asian Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors* II-2 (Sendai, Japan, Sept. 4-5, 2009).
 23. S. Y. Ji, Y. H. Liu, V. Suresh Kumar, and T. Matsuoka, "MOVPE Growth of Gallium Nitride Layer on ZnO Substrate", *2009 Asian Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors* III-3 (Sendai, Japan, Sept. 4-5, 2009).
 24. Y. H. Liu, S. Y. Ji, K. Hobo, T. Kimura, M. Hirata, Y. T. Zhang, T. Shimada, and T. Matsuoka, "Effects of Substrate Misorientation on InGaN Grown on M-plane GaN", *8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8)*, II6 (Jeju, Korea, Oct. 18-23, 2009).
 25. M. Hirata, Y. H. Liu, Y. T. Zhang, T. Kimura, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Evaluation of Carrier Density of Pressurized-MOVPE Grown InN by using FTIR Spectroscopy", *2009 Asian Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors in Korea*, SI-1 (Gwangju, Korea, Oct. 23-24, 2009).
 26. Y. H. Liu, Y. T. Zhang, T. Kimura, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "The Mechanism of InN Growth by MOVPE", *2009 Asian Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors in Korea*, SIII-4 (Gwangju, Korea, Oct. 23-24, 2009).
 27. S. Y. Ji, Y. H. Liu, V. Suresh Kumar, Y. T. Zhang, T. Kimura, and T. Matsuoka, "MOVPE Growth of InGaAlN Layer for High Brightness LEDs", *26th 2009 Asian Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors in Korea*, SIV-1 (Gwangju, Korea, Oct. 23-24, 2009).
 28. T. Kimura and T. Matsuoka, "Band Gap of Miscible InGaAlBN as a Novel Materials for Optical Communications System", *2009 Asian Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors in Korea*, SIV-2 (Gwangju, Korea, Oct. 23-24, 2009).
 29. G. Beleffi, S. Penna, H. Baghdasaryan, N. Wada, S. Shinada, M. Nakao, and P.

Andr , "Towards the implementation of an Organic Inorganic Laser for Next Generation Optical Applications", *CLEO/QELS: 2010* (San Jose, California, May 16-21, 2010) .

30. M. Nakao, M. Yamaguchi, and S. Yabu, "Imprint-Mold-Cleaning by Vacuum Ultraviolet Light", *International Conference on Nanophotonics 2010* (Tsukuba, May 30-June 3, 2010).
31. K. Shojiki, T. Hanada, T. Shimada, Y. H. Liu, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Tilted Domain and Indium Content of MOVPE-grown InGaN Layer on m-plane GaN Substrate", *2011 International Conference on Solid State Devices and Mat. (SSDM 2011)*, M-1-2 (Nagoya, Japan, Sept. 28-30, 2011).
32. T. Iwabuchi, Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Effect of Phase Purity on Dislocation Density of PR-MOVPE-Grown InN", *2011 International Conference on Solid State Devices and Mat. (SSDM 2011)*, M-1-3 (Nagoya, Japan, Sept. 28-30, 2011).
33. T. Matsuoka, T. Kimura, K. Prasertsuk, Y. T. Zhang, T. Iwabuchi, and R. Katayama, "Recent progress in InN research", *1st IMR & KMU Joint Workshop*, 1 (Busan, Korea, Feb. 20, 2012).
34. T. Iwabuchi, Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Effect of Phase Purity on Dislocation Density of PR-MOVPE-Grown InN", *1st IMR & KMU Joint Workshop*, 8 (Busan, Korea, Feb. 20, 2012).
35. K. Shojiki, T. Hanada, T. Shimada, Y. H. Liu, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Tilted Domain and Indium Content of MOVPE-grown InGaN Layer on m-plane GaN Substrate", *1st IMR & KMU Joint Workshop*, 10 (Busan, Korea, Feb. 20, 2012).

③ ポスター発表 (国内会議 25 件、国際会議 23 件)

(国内)

1. 花田徹, 上野孝介, 宮澤信太郎, 中江秀雄, "溶融塩不均化反応法による β -FeSi₂膜の作成", 第54回応用物理学会春季連合講演会, 29a-P6-21 (青山学院大学2007.3.27-30).
2. 市川智, 金森俊樹, 宮澤信太郎, 中江秀夫, "強誘電体 REBGeO₅(RE:La,Pr)単結晶のCz成長", 第39回結晶成長国内会議, 13PS23 (名古屋大学, 2009.11.22-24).
3. 松岡隆志, "温度安定性に優れた光通信用 InN 半導体レーザの研究", *JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第2回公開シンポジウム* (日本科学未来館, 2009.11.27).
4. 劉玉懷, 木村健司, 張源涛, 片山竜二, 松岡隆志, "加圧有機金属気相成長法による高品質窒化インジウム膜の作製", *JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第2回公開シンポジウム* (日本科学未来館, 2009.11.27).
5. 金廷坤, 播磨弘, "ラマン散乱による MOVPE 成長 InN 薄膜の評価—加圧成長炉及び低圧成長炉比較", *JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第2回公開シン*

- ポジウム (日本科学未来館, 2009.11.27).
6. 宮澤信太郎, “新基板結晶作製技術”, *JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第2回公開シンポジウム* (日本科学未来館, 2009.11.27).
 7. 中尾正史, “回折格子作製技術”, *JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第2回公開シンポジウム* (日本科学未来館, 2009.11.27).
 8. 宮澤信太郎, “新基板結晶作製技術”, *JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第2回公開シンポジウム* (日本科学未来館, 2009.11.27).
 9. 花田貴, 島田貴章, 紀世陽, 保浦健二, 劉玉懷, 松岡隆志, “m 面 GaN 基板上での InGaN 薄膜の歪緩和機構”, *第 119 回東北大学金属材料研究所講演会* (65) (2010.5.27-28).
 10. キャットアウト プラスラットブック, 劉玉懷, 木村健司, 張源涛, 紀世陽, 片山竜二, 松岡隆志, “窒化インジウム薄膜の加圧エピタキシャル成長”, *第3回東北大学光学科学技術フォーラム*, D-1 (東北大学, 2010.6.16).
 11. 藤井直人, 福原裕次郎, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 片山竜二, 劉玉懷, 松岡隆志, “GaN 極性反転構造の構造・光学特性”, *第3回東北大学光学科学技術フォーラム*, D-2 (東北大学, 2010.6.16).
 12. R. Katayama, N. Fujii, Y. Fukuhara, K. Onabe, Y. H. Liu, and T. Matsuoka, “ピエゾ力およびケルビン力顕微鏡を用いた N 極性 GaN テンプレート上周期的極性反転 GaN の微視的評価”, Th2-3, *第29回電子材料シンポジウム* (ラフォーレ修善寺, 2010.7.14-16).
 13. 岩渕拓也, 木村健司, 劉玉懷, 張源涛, キャットアウト プラスラットブック, 片山竜二, 松岡隆志, “窒化インジウムの MOVPE 成長における相純度の成長圧力依存性”, *東北大学多元物質科学研究所 窒化物ナノ・エレクトロニクス材料研究センター講演会 “GaN 系プラネットコンシヤスデバイス・材料の現状”*, P-13 (東北大学, 2010.11.4-5).
 14. 進藤裕文, 紀世陽, ベンガーダーチャラム サレッシュクマール, 正直花奈子, 劉玉懷, 片山竜二, 松岡隆志, “MOVPE 法 InGaN 薄膜成長における基板微傾斜の In 組成への寄与”, *東北大学多元物質科学研究所 窒化物ナノ・エレクトロニクス材料研究センター講演会 “GaN 系プラネットコンシヤスデバイス・材料の現状”*, P-15 (東北大学, 2010.11.4-5).
 15. 正直花奈子, 紀世陽, ベンガーダーチャラム サレッシュクマール, 進藤裕, 劉玉懷, 片山 竜二, 松岡 隆志, “MOVPE 成長における InGaN 薄膜の構造・光学特性の V/III 比依存性”, *東北大学多元物質科学研究所 窒化物ナノ・エレクトロニクス材料研究センター講演会 “GaN 系プラネットコンシヤスデバイス・材料の現状”*, P-16 (東北大学, 2010.11.4-5).
 16. 藤井直人, 福原裕次郎, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 片山竜二, 劉玉懷, 松岡隆志, “周期的格子極性反転 GaN ヘテロ構造の光学特性”, *東北大学多元物質科学研究所 窒化物ナノ・エレクトロニクスセンター講演会 “GaN 系プラネットコンシヤスデバイス・材料の現状”*, P-18 (東北大学, 2010.11.4-5).
 17. キャットアウト プラスラットブック, 劉玉懷, 木村健司, 張源涛, 平田雅貴, 片山竜二, 松岡 隆志, “加圧 MOVPE 成長 InN のバンドギャップ・エネルギーの温度依存性”, *東北大学*

多元物質科学研究所 窒化物ナノ・エレクトロニクス材料研究センター講演会 "GaN 系プラネットコンシヤスデバイス・材料の現状", P-23 (東北大学, 2010.11.4-5).

18. 正直花奈子, 紀世陽, ベンガーダーチャラム サレッシュクマール, 進藤裕文, 劉玉懷, 片山竜二, 松岡隆志, "MOVPE 成長における InGaN 薄膜品質の原料供給 V/III 比依存性", 第 120 回東北大学金属材料研究所講演会, P-90 (2010.11.24-25).
19. 岩渕拓也, 木村健司, 劉玉懷, 張源涛, キャッティウット プラスラットブック, 片山竜二, 松岡隆志, "窒化インジウムの MOVPE 成長における相純度の成長圧力依存性", 第 120 回東北大学金属材料研究所講演会, P-89 (2010.11.24-25).
20. 藤井直人, 福原裕次郎, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 片山竜二, 劉玉懷, 松岡隆志, "周期的格子極性反転 GaN ヘテロ構造の光学特性", 第 120 回東北大学金属材料研究所講演会, P-88 (2010.11.24-25).
21. 松岡隆志, 播磨弘, 宮澤信太郎, "温度安定性に優れた光通信用 InN 半導体レーザの研究～最近の進捗～", JST-CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」第 3 回公開シンポジウム (日本科学未来館, 2010.11.26).
22. 宮澤信太郎, 中江, "格子整合基板結晶の育成と評価", H22 年 JST-CREST 公開シンポジウム (未来科学館, 2010.11.26).
23. J. H. Choi, Y. H. Liu, R. Katayama, T. Hanada, and T. Matsuoka, "Comparison of Optical Properties between Polar and Non-polar InGaN/GaN Multi-quantum-well Light-emitting diodes", *Kinken-Wakate 2010, 7th Materials Science School for Young Scientists "Challenge of radiation for advanced materials science"* (Sendai, 12.2-3, 2010).
24. T. Kimura, Y. H. Liu, R. Katayama, Y. T. Zhang, K. Prasertsuk, J. G. Kim, N. Hasuike, H. Harima, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Growth Temperature Dependence of Phase Purity in InN Grown by Pressurized MOVPE", *Kinken-Wakate 2010, 7th materials Science School for Young Scientists "Challenge of radiation for advanced materials science"* (Sendai, Dec. 2-3, 2010).
25. 市川智, 宮澤信太郎, 中江秀雄, "LaBGeO₅ 単結晶育成における F 置換の効果", 第 59 回応用物理学会学術講演会, 17p-DP6-1 (早稲田大学 2012.3.15-18).

(国際)

1. S. Penna, A. Reale, G. M. Tosi Beleffi, S. Shinada, M. Nakao, N. Wada, A. L. J. Teixeira, and P. S. B. Andre, "Optoelectronic Materials and Components Characterization for Organic Inorganic Laser Assembly", *IEEE OECC 2009* (Hong Kong, China. July 13-17, 2009).
2. S. Penna, A. Reale, G. M. Tosi Beleffi, S. Shinada, M. Nakao, N. Wada, A. L. J. Teixeira, and P. S. B. Andre, "Hybrid Organic Active Waveguide for C-band Applications", *COST MP0702 Annual Meeting at IEEE ICTON 2009* (Azzores, Portugal. June 28-July 3, 2009).
3. Y. H. Liu, T. Kimura, T. Shimada, M. Hirata, M. Wakaba, M. Nakao, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "MOVPE Growth of InN: A Comparison between a Horizontal and

- a Vertical Reactor", *5th International Workshop on Nitrides (IWN 2008)*, Mo2a-P7 (Montreux, Switzerland, Oct. 5-10, 2008).
4. M. Nakao, T. Kimura, Y. H. Liu, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "Grating Fabrication on Nitrides Grown by MOVPE for DFB Lasers", *5th International Workshop on Nitrides (IWN 2008)*, Tu6-P29 (Montreux, Switzerland, Oct. 5-10, 2008).
 5. S. Y. Ji, K. Hobo, Y. H. Liu, Y. T. Zhang, V. Suresh Kumar, and T. Matsuoka, "MOVPE Growth of GaN on Novel Substrate ZnO", *8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8)*, MP33 (Jeju, Korea, Oct. 18-23, 2009).
 6. Y. H. Liu, Y. T. Zhang, T. Kimura, S. Y. Ji, and T. Matsuoka, "Growth of InN by Pressurized Reactor MOVPE: Morphology Evolution", *8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8)*, ThP23 (Jeju, Korea, Oct. 18-23, 2009).
 7. Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, M. Hirata, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Growth of InN by Pressurized-Reactor Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (1) ~The Growth Mechanisms~", *6th International Symposium on Medical, Bio- and Nano-Electronics* (Sendai, February 24-25, 2010).
 8. T. Kimura, Y. H. Liu, Y. T. Zhang, M. Hirata, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Growth of InN by Pressurized-Reactor Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (2) ~Towards the Dense Films under High-Temperature Growth~", *6th International Symposium on Medical, Bio- and Nano-Electronics* (Sendai, February 24-25, 2010).
 9. Y. T. Zhang, Y. H. Liu, T. Kimura, M. Hirata, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Growth of InN by Pressurized-Reactor Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (3) ~Temperature Dependence on Structure Properties~", *6th International Symposium on Medical, Bio- and Nano-Electronics* (Sendai, February 24-25, 2010).
 10. M. Hirata, Y. H. Liu, Y. T. Zhang, T. Kimura, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Growth of InN by Pressurized-Reactor Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (4) ~Optical and Electrical Properties~", *6th International Symposium on Medical, Bio- and Nano-Electronics* (Sendai, February 24-25, 2010).
 11. S. Y. Ji, V. Suresh Kumar, Y. H. Liu, Y. T. Zhang, T. Kimura, K. Hobo, and T. Matsuoka, "Progresses in GaN Growth on ZnO Substrate", *6th International Symposium on Medical, Bio- and Nano-Electronics* (Sendai, February 24-25, 2010).
 12. V. Suresh Kumar, S. Y. Ji, K. Hobo, Y. H. Liu, H. Shindo, and T. Matsuoka, "Influence of V/III Ratio on Surface Morphologies and Optical Properties of MOVPE-grown InGaN Epitaxial Layers", *6th International Symposium on Medical, Bio- and Nano-Electronics* (Sendai, February 24-25, 2010).
 13. S. Miyazawa, S. Ichikawa, Y. H. Liu, S. Y. Ji, T. Matsuoka, and H. Nakae, "Novel Substrate LaBGeO₅ Lattice-matching to InN", *International Symposium Gallium Nitride (ISGN-3)*, TuP-16 (Montpellier, July 4-8, 2010).

14. T. Matsuoka, S. Miyazawa, S. Ichikawa, Y. H. Liu, T. Hanada, and R. Katayama, "Possibility of Novel Substrate LaBGeO₅ Lattice-Matching to InN", *International Symposium Gallium Nitride (ISGN-3)*, TuP-17 (Montpellier, July 4-8, 2010).
15. T. Kimura, Y. H. Liu, Y. T. Zhang, M. Hirata, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "The Electrical Properties of InN Grown by Pressurized-Reactor Metalorganic Vapor Phase Epitaxy", *37th International Symposium on Compound Semiconductors*, FrP69 (Takamatsu, Japan, May 31-June 4, 2010).
16. Y. T. Zhang, Y. H. Liu, T. Kimura, M. Hirata, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Effect of Growth Temperature on Structure Properties of InN Grown by Pressurized-Reactor Metalorganic Vapor Phase Epitaxy", *37th International Symposium on Compound Semiconductors*, FrP68 (Takamatsu, Japan, May 31-June 4, 2010).
17. T. Hanada, T. Shimada, S. Y. Ji, K. Hobo, Y. H. Liu, and T. Matsuoka, "Strain relaxation mechanism of InGa_{0.5}N Thin Film Grown on m-GaN", *37th International Symposium on Compound Semiconductors*, FrP71 (Takamatsu, Japan, May 31-June 4, 2010).
18. Y. H. Liu, T. Kimura, Y. Zhang, K. Prasertsuk, T. Hanada, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Temperature Dependence of Bandgap Energy of InN Grown by Pressurized-Reactor MOVPE", *6th International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2010)*, CP1.28 (Tampa, USA, Sept.17-25, 2010).
19. T. Kimura, Y. Liu, Y. Zhang, K. Prasertsuk, J. G. Kim, N. Hasuike, H. Harima, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Growth Temperature Dependence of Phase Purity in InN Grown by Pressurized MOVPE", *6th International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2010)*, AP1.49 (Tampa, USA, Sept.17-25, 2010).
20. Y. T. Zhang, Y. H. Liu, T. Kimura, M. Hirata, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Step-Flow Growth of InN by Pressurized-Reactor Metalorganic Vapor Phase Epitaxy", *6th International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2010)*, AP1.21 (Tampa, USA, Sept.17-25, 2010).
21. T. Kimura, K. Prasertsuk, Y. T. Zhang, Y. H. Liu, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Phase Diagram on Phase Purity of InN grown Pressurized-Reactor MOVPE", *9th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-9)*, PD3.17 (Glasgow, UK, July 10-15, 2011).
22. T. Hanada, Y. H. Liu, Y. T. Zhang, H. Tajiri, O. Sakata, T. Kimura, K. Prasertsuk, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Temperature-Dependent Static Correlation Functions of Vibrational Atomic Displacements for InN Film Measured by X-ray Diffraction", *9th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-9)*, PD3.31 (Glasgow, UK, July 10-15, 2011).
23. K. Prasertsuk, Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, T. Iwabuchi, R. Katayama, and T. Matsuoka, "Relationship between Residual Carrier Density and Phase Purity in InN Grown by Pressurized-Reactor MOVPE", *9th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-9)*, PD3.36 (Glasgow, UK, July 10-15, 2011).

(4)知財出願

① 国内出願 (1 件)

1. 特願2009-257879 「半導体薄膜成長用基板材料とその製造方法」
(出願日:平成21年11月11日), 宮澤信太郎, 中江秀雄, 市川智, 金森俊樹

② 海外出願 (0 件)

③ その他の知的財産権
該当なし

(5)受賞・報道等

① 受賞

1. Jung-Hun Choi (博士1年)
Kinken-Wakate 2010 Best Poster Award
"Comparison of Optical Properties between Polar and Non-polar InGaN/GaN
Multi- quantum-well light-emitting-diodes"
2010年12月3日

② マスコミ(新聞・TV等)報道

1. 松岡隆志, ミヤギテレビ「かっぺいのいったりきたり」, 2007 年 12 月 23 日.
2. 松岡隆志, 朝日新聞(九州版)「先端電子材料 研究最前線」, 2008 年 3 月 28 日.
3. 松岡隆志, ガスレビュー「窒化物半導体が拓く新しい半導体の世界とは」, 増刊号 ガ
ストロン 2008 年春季号, No.27, pp.36-39.
4. 松岡隆志, 東日本放送(KHB)「東北大学の新世紀」(トラストネットワークの村上氏)
KHB 2008 年 9 月 8 日; BS アサヒ 2008 年 9 月 13 日.
5. 松岡隆志 他, 河北新報「楽しい理科の話 前編」, 2009 年 7 月 25 日.
6. 河北新報朝刊, 「楽しい理科のはなし 2010 不思議の箱を開けよう 後編」, 2010 年 8
月 7 日(土).
7. 河北新報朝刊, 「楽しい理科のはなし 2010 “不思議の箱を開けよう” 楽しい理科実験
教室」, 2010 年 9 月 25 日(土)

(6)成果展開事例

① 実用化に向けての展開

② 社会還元的な展開活動

- (ア) 得られた InN に関する成果について、下記の展示・講演会に出展し、観客200名を集めた。
- ・PV Japan 2010 (2010.6.30-7.2, パシフィコ横浜)
 - ・<今後の予定 PV Japan 2011 (2011.12.5-7, 幕張メッセ)>
- (イ) 発展途上国において、得られた成果について下記の講演を行った。特に、インドでは、結晶

成長センター内で、水の殺菌を目的とした紫外 LED 作製のための研究当初から、結晶成長装置としての有機金属気相成長装置や評価装置の選定、東北大学での技術の指導を行った。

- T. Matsuoka and Y. H. Liu, "Nitride Semiconductors: Planet Conscious Materials", *International Conference on Emerging Technology in Renewable Energy (ICETRE-2010)* (Chennai, India, Aug. 18-21, 2010).
- T. Matsuoka, Y. H. Liu, T. Kimura, Y. T. Zhang, K. Prasertsuk, and R. Katayama, "Paving the Way to High-quality InN- Effects of Pressurized Reactor in MOVPE-", *International Conference on Nano and Information Technology of Semiconductors* (Dongguk University in Seoul, Korea, Dec. 9-10, 2010).
- T. Matsuoka, "Progress and Current Status in Nitride Semiconductors from GaN to InN", *Wide bandgap Semiconductors nanostructures*, 1 (Crystal Growth Centre of Anna University in Chennai, INDIA, Jan. 10-11, 2011).

§ 6 研究期間中の主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2006. 11.28-29	第1回 チームミーティング	東北大学 金属材料研 究所 本多記念館	10	具体的研究計画の打ち合わせ
2007.2.4	第2回 チームミーティング	早稲田大学 理工学部 60号館 2階202室	5	経過と次年度計画
2008.3.17	第3回 チームミーティング	早稲田大学	6	<ul style="list-style-type: none"> ・研究の現状紹介 ・今後の進め方 ・成果のとりまとめ
2008. 6.4-25	主催 第1回みやぎ県民大学 地球にやさしいエネルギー とエコ材料～太陽電池から 水素まで～	東北大学 金属材料研 究所	21	<ul style="list-style-type: none"> ・持続可能な社会の実現に 向けたクリーンエネルギー開 発の現状理解 ・物理学の理解とその応用 ・半導体と光との関係の理解 講師：松岡、折茂、宇佐見 (東北大教員)
2008.6.27	主催 次世代ナノ技術に関する 専門委員会 H20 年度 第 一回研究会 “材料デバイスサマーミー ティング” 「InN 系材料の現状と将 来」第二段	機械振興会 館	約 60	InN を中心とする窒化物半 導体について最近の話題提 供とディスカッション 松岡(東北大) 山本(福井大) 石谷(千葉大) 劉(東北大) 熊谷(東京農工大) 上村(上智大) 藤井(東北大)

2008.7.30	第 79 回金研夏季講習会	クリエイション・コア 東大阪南館	60	松岡, "青色発光ダイオードで知られる窒化物半導体とその応用"
2008.11.16-17	第 4 回 拡大チームミーティング	東北大学 金属材料研究所	16	本 CREST チーム員、福井大研究グループ
2009.4.17	日本総研技術価値創造戦略グループセミナー, 「夢を語り実現する研究者になるための若手研究者セミナー ～一流の研究を知り、実践するためにすべきこと～」	東京	40	松岡隆志, "自ら拘った GaN による青色発光を一旦諦めざるを得なかった思い"
2009.6.29	主催 出前授業	仙台市立松陵小学校	35	松岡隆志 他, "不思議の箱を開けよう ～光通信の不思議～"
2009.7.29-8.26	主催 第 2 回みやぎ県民大学地球にやさしいエネルギーとエコ材料 ～太陽電池から水素まで～	東北大学 金属材料研究所	34	・持続可能な社会の実現に向けたクリーンエネルギー開発の現状理解 ・物理学の理解とその応用 ・半導体と光との関係の理解 講師: 松岡、折茂、宇佐見 (東北大教員)
2009.8.7	福島県立いわき高等学校体験学習と見学	東北大学 金属材料研究所	20	窒化物半導体の研究現場の紹介と窒化物半導体 LED を用いた実習
2009.8.31	第 5 回 チームミーティング	東北大学 金属材料研究所 4 号館	16	・研究の現状紹介 ・今後の進め方 ・成果のとりまとめ 本 CREST チーム員
2009.9.4-5	2009 Asian Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors	松島 大観荘	15	JSPT Asian Core Program Session-6 日韓のワイドギャップ半導体関係者の交流を図る目的としての成果発表
2009.9.20	出前授業「理科を好きになる ～不思議の箱を開けよう～」総括イベント	東京エレクトロンホール宮城	200	松岡隆志 他, "不思議の箱を開けよう ～光通信の不思議～"
2009.10.23-24	主催 2009 Asian Core Workshop on Wide Bandgap Semiconductors	Commodore Hotel, Gwangju, Korea	22	JSPT Asian Core Program Session-6 日韓のワイドギャップ半導体関係者の交流を図る目的としての成果発表
2009.12.22-23	主催 金属材料研究所 研究部共同研究 重点研究課題 “窒化物半導体の高品質結晶成長と	東北大学 金属材料研究所 4 号館	15	全国共同利用施設である東北大金属材料研究所の共同研究の重点課題として採択された課題について、メンバーから研究の現状、今後

	その素子応用” 第2回ミーティング			の進め方、および、共同研究テーマについて、経過報告と今後についてのディスカッション
2010.6.22	主催 出前授業	宮城県黒川郡大和町立吉田小学校	40	松岡隆志 他, “不思議の箱を開けよう ～光通信の不思議～”
2010.6.30-7.2	PV Japan 2010	パシフィコ横浜	200	展示と講演
2010.7.23	主催 夏休み大学探検 2010	東北大学金属材料研究所	10	窒化物半導体の研究現場の紹介と窒化物半導体 LED を用いた実習 “発光ダイオードでネームプレートを作ってみよう”
2010.7.27-8.17	主催 第3回みやぎ県民大学地球にやさしいエネルギーとエコ材料 ～太陽電池から水素まで～	東北大学金属材料研究所	49	・持続可能な社会の実現に向けたクリーンエネルギー開発の現状理解 ・物理学の理解とその応用 ・半導体と光との関係の理解 講師: 松岡、折茂、宇佐見 (東北大教員)
2010.7.29	第81回金研夏期講習会	東北大学金属材料研究所	60	松岡, “青色発光ダイオードで知られる窒化物半導体とその応用”
2010.8.2	仙台第三高等学校理数科研修会(スーパーサイエンスハイスクール1年生)	東北大学金属材料研究所	80	金属材料研究所の概要説明
2010.9.6	第6回 チームミーティング	東北大学金属材料研究所 4号館	16	・研究の現状紹介 ・成果のとりまとめ ・今後の進め方 本 CREST チーム員
2010.10.18	東北大学イノベーションフェア 2010 in 仙台	仙台国際センター	150	松岡, 研究紹介
2010.10.25-26	主催 金属材料研究所研究部共同研究 重点研究課題 “窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用” 第3回ミーティング	東北大学金属材料研究所 4号館	30	全国共同利用施設である東北大金属材料研究所の共同研究の重点課題として採択された課題について、メンバーから研究の現状、今後の進め方、および、共同研究テーマについて、経過報告と今後についてのディスカッション
2010.11.25	平成 22 年度福島県立福島高校スーパーサイエンスハイスクール事業	福島県立福島高校	60	松岡, 実験講座, “半導体光素子による社会貢献 ～青色発光から光通信まで～”

2010.12.1	JST イノベーションフォーラム 2010 in みやぎ	仙台	100	松岡, "MOVPE 法による ZnO 基板上の「緑色発光用 InGaN」高温成長技術"
2011.1.17-18	主催 金属材料研究所 研究部共同研究重点研究 課題 "窒化物半導体の高 品質結晶成長とその素子 応用", 第 4 回ミーティング	東北大学 金属材料研 究所 4 号館	30	全国共同利用施設である東 北大金属材料研究所の共 同研究の重点課題として採 択された課題について、研 究経過および成果報告
2011.7.21	主催 出前授業	仙台市東宮 城野小学校	34	松岡隆志 他, "不思議の箱 を開けよう ~光通信の不思議 ~"
2011.7.28	実行委員長 第 82 回金研夏期講習会	トヨタテクノ ミュージアム 産業技術記 念館	104	講義"青色発光ダイオードで 知られる窒化物半導体とそ の応用"
2011.8.8-9	主催 金属材料研究所 研究部共同研究重点研究 課題 "窒化物半導体の高 品質結晶成長とその素子 応用", 第 5 回ミーティング	東北大学 金属材料研 究所 4 号館	30	全国共同利用施設である東 北大金属材料研究所の共 同研究の重点課題として採 択された課題について、研 究経過および成果報告
2011.8.23-26	主催 第4回みやぎ県民大学 地球にやさしいエネルギー とエコ材料 ~太陽電池か ら水素まで~	東北大学 金属材料研 究所	40	・持続可能な社会の実現に 向けたクリーンエネルギー開 発の現状理解 ・物理学の理解とその応用 ・半導体と光との関係の理解 講師: 松岡、折茂、宇佐見 (東北大教員)
2011.11.19-20	サイエンス・アゴラ	日本科学未 来館 1 階		松岡 他 ・ポスタ, "光通信用半導体 レーザを目指した窒化物半 導体の研究", ・ポスタ, "震災を超えて次世 代へ" ・デモ実験"波長多重通信",
2011.12.5-7	PV Japan 2011	幕張メッセ		松岡 ポスタ, "窒化物半導 体の太陽電池への応用"
2012.3.29	日本基礎化学教育学会	東北大学 金属材料研 究所	16	松岡, "青色 LED で知られ ている窒化物半導体に関す る座学と実験装置見学", 東 京の高校生の見学

§ 7 結び

(a) 研究の目標等から見た達成度

計画当初の目標は、InN に格子整合基板を新たな材料で作製し、その上に高品質 InN を発光層と

する分布帰還型レーザを作製することであった。しかしながら、実際には、InN 結晶品質は、計画時点での品質と比較して遙かに高品質を実現できたものの、計画より進展が遅れたため、中間評価後に目標をレーザ実現の可能性を示す LED の作製と、光励起によるレーザ発振とした。この新たな目標に向けて研究を進め、いよいよというときに東日本大地震の直撃を受け、本課題の中で最も重要と位置づけている「薄膜結晶成長技術」の研究が約半年滞ってしまった。

以上のことから、報告書を執筆している現状では、個々の技術の研究に留まってしまっている。

(b) 得られた成果の意義等の自己評価

薄膜結晶成長・デバイス化技術

・加圧型有機金属気相成長装置

InN エピタキシャル成長時の成長島のファセット制御と、高品質化のための成長温度の高温化のために、気相-固相間の窒素平衡蒸気圧に打ち勝つために、20 年余りの有機金属気相成長と窒化物半導体の研究を基にして、加圧下で成長できる有機金属気相成長装置を独自に開発した。この結果、表面が平坦で、緻密な InN 薄膜の成長に成功した。この点は、本研究課題の中で最も大きな成果と考える。この技術は、すでに外部の組織で追従が始まっており、今後の窒化物半導体の世界で大きな道具となるであろう。

・六方晶へ立方晶の混入のない単相 InN 成長

今までの六方晶 InN の成長において、立方晶の混入は全く触れられていなかった。結晶評価に用いる X 線回折において、測定に用いていた結晶面ではその区別が困難であったためである。ラマン散乱分光法によって、初めて明らかにすることができた。現在では、六方晶単相の InN 薄膜成長を実現できている。相純度は結晶の高品質化においては基本であり、大きな成果と考える。

・バンドギャップ・エネルギー E_g の温度安定性の根拠

本研究課題の採択前から、現在ほど高品質ではない InN 薄膜の光学吸収測定から、 E_g の温度安定性が高いことを示していた。しかし、その根拠は不明であった。 E_g の温度依存性を決定する因子として、格子の熱膨張と、電子-フォノン相互作用がある。電子-フォノン相互作用については、フォノンによる原子の平均二乗変位を Spring-8 で厳密に測定し、温度安定性が高くなることを示した。今後の InN 研究に弾みを付ける結果である。

新基板結晶作製技術

・期間中に新たに取り組んだ基板結晶材料の探索的育成の中で中止を余儀なくした材料もあったが、新結晶の育成とその技術移転(指導)も実施でき、達成度としては80~85%と考える。今後の研究展開として、(1) β -FeSi₂ は本研究で開発した手法による厚膜作製とその熱電変換素子への展開、(2) LaBGeO₅ は大口径育成と光機能の付与、が上げられよう。

・得られた成果は、未踏である InN エピタキシャル膜実現に向けた基板材料の提示を含め、近年産学で努力をしなくなった材料探索を試行した点である。この視点からは100%の成果と自己評価する。論文などの成果発表は多くはないが、成果の対外発表は終了期にならざるを得ないのは材料研究の宿命でもあろう。

(c) 今後の研究の展開

InN の高品質化については、現在の路線で条件を詰めて行くことによって実現できると思われる。22 年度末購入予定であった「分光薄膜反射率・表面温度測定装置」については、地震のために導入が遅れ、今年度 10 月に導入が終了した。本装置は、薄膜結晶成長姿態のその場観察を可能にする。本装置を用いて、効率的に成長条件の最適化を図ることができると考える。現在、本研究課題の目標となっている LED の作製と光励起によるレーザ発振に、勢力を集中して努力していきたい。

ラマン散乱分光法が、薄膜構造の評価に十分耐えることを確認できたことから、今後も活用していきたい。

格子整合基板 LaBGeO₅については、本課題研究期間中、高品質化と数枚の基板作製に向けて継続して研究を続ける。

最終的には、LaBGeO₅基板上へLED構造を積層し、窒化物半導体の高品質化を図り、LEDの作製と光励起によるレーザ発振を実現したいと考えている。

(d) 研究代表者としてのプロジェクト運営

・人材

装置開発、実験装置の管理、故障修理、改造を効率よく進めるためには、十分なスタッフを確保する必要がある。しかし、企業で長年研究を進めてきた者から見ると、大学では人材の確保が難しいと感じた。つまり、パーマネント職員について言えば、課題に合わせて人材の移動を全くすることができない。また、研究支援者(PD)を新たに雇用するにしても、優秀な人材は組織に確保されている場合が多く、その流動性がないように思われる。結局、学生を教育し、研究者として育てなければ仕事が進まないことになる。昨今の学生は、我々の学生時代と異なり、マインドの力強さに欠け、これまた難しい。博士後期課程の学生が人材としては最も有望であるが、進学率が低いのが現状である。このような状況の中で、研究機関の後半にRA費用として 200万円支給されたことは学生にとっても大きな励みとなり、ありがたかった。プロジェクトを運営するに当たり、一番大きな問題は人材の確保であった。

・研究費の使い方

研究費に関しては、5年間半の長期にわたり予算を組むことができること、および、かなりの高額装置も購入できるほど十分な額であったことは、プロジェクトを運営する上で、大いに助かった。特に、研究推進途上で新たに必要となった装置を購入できるように追加予算を頂けたことはありがたかった。予算の繰り越しが可能であったことも、企業では当然のことであるが、予算を執行しやすかった。特に、プロジェクトの後半には、新年度になってからの繰り越しの申告が可能となり、研究の進展に合わせての予算の執行がしやすかった。

・若手研究者の育成

大学での大型プロジェクトの推進に当たっては、准教授、助教、PD、および、学生まで、組織だった研究の進め方の経験がないため、組織での研究の進め方を指導する必要がある。また、この研究テーマについては、助教の一部や PD についてもかなり指導する必要がある。プロジェクトを進めるに当たって、実験であれば、道具・ガス・薬品の使用法、電気回路の設計・修理・改造、真空装置の取り扱い、データシート・修理報告書・取扱説明書などのファイリングなどの研究する上で必須の基本的スキルの指導が管理必要である。個別に指導する方法もあるが、大学でのカリキュラムの一環として、学生実験などでできっちりと指導しておく必要があると思う。

(e) 戦略的創造研究推進事業に対する意見・要望

企業に較べて少ない研究費で運営されている大学の研究において、一気に大きな研究を進めるためには、戦略的創造研究推進事業のような大型プロジェクトは必須である。プロジェクト終了後も、プロジェクトで購入した設備を使用させて頂けることは、次の大型プロジェクトのアイデア創出の観点から、大変ありがたい。プロジェクトに参画した若手研究者や学生には、研究計画に合わせた装置の選定や購入手続きなども、今後の研究者としての人生において大変役立つ経験となることは間違いがない。若いときから国際会議に参加できることも、若い研究者にとって有用である。以上の観点から、ご採択頂いたことに感謝する次第である。戦略的創造研究推進事業を今後も是非継続して頂きたい。要望としては、領域の設定時に広く世間から要望を集めることをお願いしたい。

(f) メンバーの集合写真、実験室や作製した主な研究設備のスナップ写真

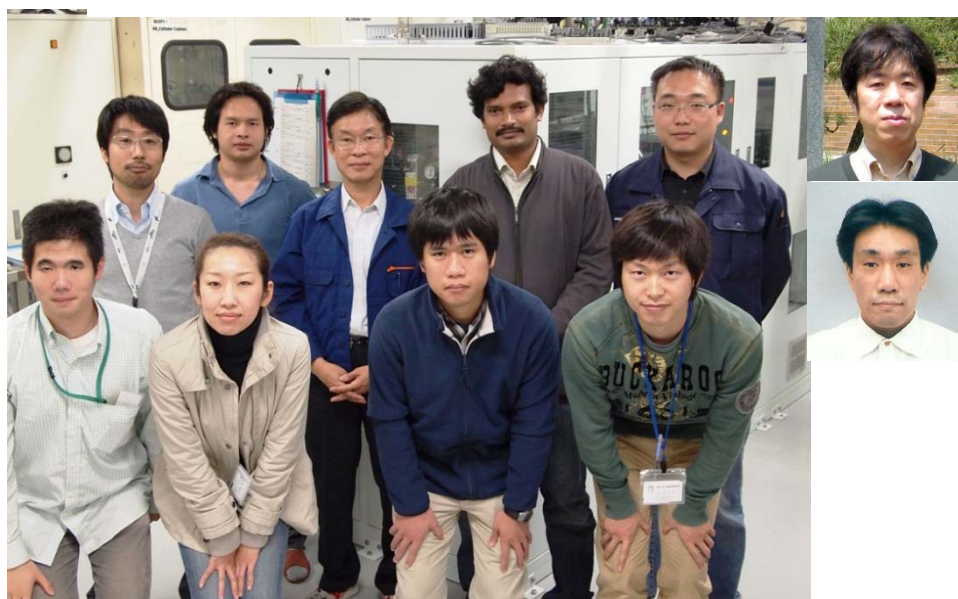
「薄膜結晶成長・デバイス化技術」グループ（東北大学 金属材料研究所 松岡研究室）



(a) 装置本体

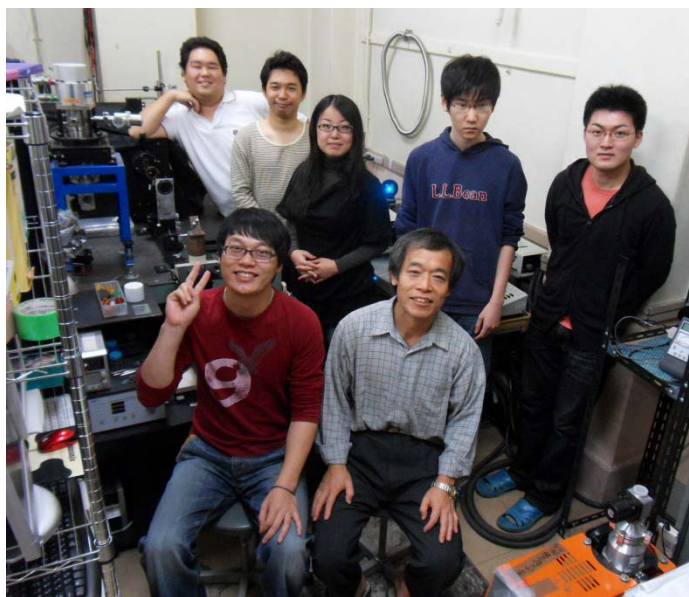
(b) 制御系

開発した加圧型有機金属気相成長装置



開発した結晶成長装置前での研究代表者（後列左から3人目）と研究室員

「薄膜光学物性評価」グループ (京都工芸繊維大 工芸科学研究科 播磨研究室)



ラマン散乱分光室における播磨教授と研究室員

「新基板結晶作製技術」グループ (早稲田大学 基幹理工・航空科学研究科 中江研究室)



REInO₃ および LaBGeO₅ 単結晶育成に用いた高周波誘導加熱引き上げ炉と、結晶育成中の宮澤教授と学生



FeSi₂ 結晶育成炉および結晶育成用母原料焼結炉