

InN/InGaN 系結晶の基礎物性解明および結晶成長のための基板探索 ~RF-MBE 法によるサファイア R 面基板上への A 面 InN の結晶成長~

RF-MBE Growth of *a*-plane InN on *r*-plane sapphire substrates

吉田 貞史^{1*}、矢口 裕之¹、折原 操²
Sadafumi Yoshida¹, Hiroyuki Yaguchi¹, Misao Orihara²

¹ 埼玉大学大学院理工学研究科
Graduate School of Science and Engineering, Saitama University
² 埼玉大学工学部

Faculty of Engineering, Saitama University

Abstract

The improvement of the surface morphology of *a*-plane InN films grown by RF molecular beam epitaxy is reported. Using low-temperature (LT) InN buffer layers, we could successfully obtain InN films with a smooth surface. The full width at half maximum of the x-ray diffraction (11-20) rocking curve along the [0001] InN direction was 2200 arcsec for *a*-plane InN samples grown at 450°C with a LT-InN buffer layer. Thus, we could improve also the crystalline quality of *a*-plane InN films by using LT-InN buffer layers. We observed strong polarization anisotropy in the photoluminescence spectra of *a*-plane InN, which is typical of nonpolar wurtzite III-nitride films.

Key Words: InN, molecular beam epitaxy, nonpolar, photoluminescence

1. はじめに

本研究は、科学技術振興機構・戦略的創造研究推進事業の研究領域「超高速・超省電力高性能ナノデバイスシステムの創製」（研究代表者・千葉大学 吉川明彦 教授）における共同研究テーマ「InN 系窒化物ナノデバイス/ナノプロセスの分子線エピタキシ法による新展開」の一環として実施されたものである。今年度は「RF-MBE 法による GaN バッファ層を用いたサファイア R 面基板上への A 面 InN の結晶成長」「RF-MBE 法による MgO(001)基板上への立方晶 InN の結晶成長とその評価」「分光エリプソメータを用いた InGaN の光学的特性評価」などの研究を実施した。本稿では、この中から、サファイア R 面基板上への無極性 A 面 InN の結晶成長についての研究成果について報告する。

InN は、バンドギャップが 0.6-0.7 eV の直接遷移型半導体であり、InGaN とのヘテロ構造においてバンドオフセットを大きくとれること

から、温度特性に優れた光通信帯用半導体レーザへの応用が期待される材料である。しかし、InN を含む窒化物半導体は通常、六方晶構造（ウルツ鉱構造）を安定相とし、(0001) c 軸方向への成長が行われる。そのため、自発分極やピエゾ分極による強い内部電界が結晶内に発生し、電子と正孔が空間的に分離することによって発光効率が低下するという問題がある。最近、窒化物半導体を(11-20)A 面などの無極性面に垂直な方向へ成長させることで、このような内部電界を抑制できることがわかってきた。また、無極性面に垂直な方向にさせた場合、面垂直方向への発光には、面内に顕著な偏光特性が生じることが知られており、光スイッチング素子などへの応用も期待されている。このようなことから、GaN を中心として無極性面窒化物半導体の成長[1,2]が盛んに研究されているが、InN については報告が少なく[3,4]、これまで結晶性、表面平坦性の良いものは得られていなかった。

そこで、本研究では、表面平坦性と結晶性の向上を図るために、低温 InN バッファ層を用いることをポイントとして成長を行った。

* 〒338-8570 さいたま市桜区下大久保 2 5 5
電話：048-858-3470 FAX：048-858-3470
Email：yoshida@opt.ees.saitama-u.ac.jp

2. 実験

本研究ではInNの結晶成長にRF-MBE法を用いた。基板にはサファイア(10-12)R面を用いた。InおよびGa源には、それぞれ金属In、金属Gaを用い、クヌーセンセルによって供給した。N源にはN₂ガスを用い、RFプラズマセルによって原子状窒素として供給した。成長中の表面モフォロジーは反射高速電子線回折(RHEED)によって観察した。成長後の試料は、高分解能X線回折、走査電子顕微鏡(SEM)、フォトルミネッセンス(PL)、ラマン分光などによって評価した。

3. 結果および考察

3.1 低温InNバッファ層の成長温度の影響

低温InNバッファ層の成長温度を変化させることで、その上に成長するInN薄膜にどのような影響があるのかを調べた。低温InNバッファ層の堆積時間は5分とし、成長温度を250~400°Cとした。低温InNバッファ層成長後のA面InNの成長温度は500°Cに固定した。

Fig. 1に、低温InNバッファ層の成長温度を変化させたときのInN薄膜の表面モフォロジーの違いをSEM観察した結果を示す。成長温度250°Cの場合には、島状に成長しているが、それ以外の温度では平坦な2次元成長が実現している。成長温度が低い場合には、供給した原子が成長表面で十分にマイグレーションできなかったものと考えられる。また、Fig. 1下図には比較のために、低温InNバッファ層を用いずに500°CでA面InNを成長した結果を示す。この場合は、3次元成長している様子が顕著であり、表面モフォロジーの改善には低温InNバッファ層を用いることが不可欠であることがわかる。

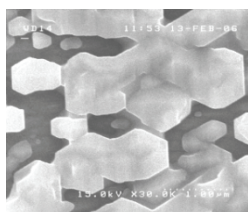
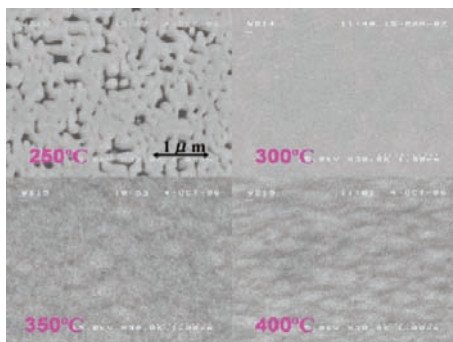


Fig. 1 低温InNバッファ層の成長温度を変化させたときのInN薄膜の表面モフォロジーの違い。下図は低温InNバッファ層を用いずに成長した場合。

これらの試料について、X線回折ロックンクカーブ測定によって結晶性を調べた。A面InNのロックンクカーブ半値幅は、成長温度300°Cで低温InNバッファ層を堆積した場合に2840 arcsecと最も狭くなった。また、成長温度を上げていくと半値幅は増加していくことがわかった。

以上の結果から、以降の実験では表面平坦性と結晶性の両方を満足する条件として、低温InNバッファ層の成長温度300°Cを採用した。

3.2 A面InNの成長条件の確立

低温InNバッファ層を300°Cで成長した後、高品質なA面InNが成長する条件を確立するために、V/III比依存性と成長温度依存性を検討した。

まず、成長温度を500°Cに固定してInフラックスを 2.5×10^{-5} ~ 3.5×10^{-5} Paと変化させてV/III比依存性を調べた。いずれの場合にも連続膜が得られたが、とくにInフラックスが 3.5×10^{-5} Paの場合にSEM観察では凹凸が確認できないほどの平坦な膜が得られた。C面InNでもInフラックスが多い場合に表面平坦性が向上する傾向があり、A面InNも同様の傾向を示すことがわかった。さらにX線回折ロックンクカーブ測定によって結晶性を調べた結果、Inフラックスが 3.0×10^{-5} Paの場合にロックンクカーブ半値幅が最も狭くなった。

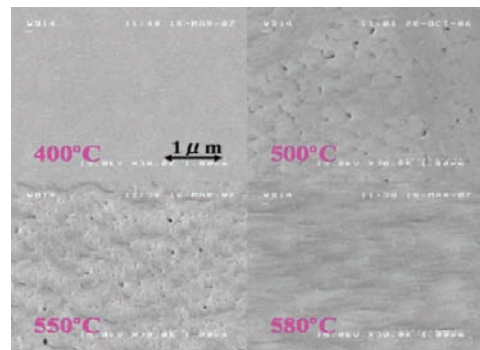


Fig. 2 A面InNの成長温度を変化させたときの表面モフォロジーの違い。

これらの結果から、表面平坦性がある程度良く、ロックンクカーブ半値幅が最も狭かったInフラックス 3.0×10^{-5} Paを用いて、成長温度を400~600°Cと変化させて、成長温度依存性を調べた。Fig. 2に成長温度を変化させることによってA面InN薄膜の表面モフォロジーにどのような影響があるかをSEM観察した結果を示す。成長温度が低いほど、表面平坦性が向上するこ

とがわかる。また、ここでは示していないが、600°Cで成長を行った場合には、InNの成長を確認することはできなかった。

これらの試料について、X線回折ロックアップカーブ測定を行い、結晶性について検討した。表面平坦性が最も良かった400°Cで成長した場合にはロックアップカーブ半値幅は3400 arcsecであった。ロックアップカーブ半値幅が最も狭くなったのは成長温度450°Cの場合で2200 arcsecであった。Fig. 2には示していないが、450°Cで成長したA面InNの表面平坦性は、400°Cの場合と比較してやや劣るものであった。このように、表面平坦性と結晶性は必ずしも両立していないが、ある程度の表面平坦性と、これまでに報告されていたものより大幅な結晶性の向上を実現することができた。

3.3 A面InNの評価

A面InNの発光特性を評価するためにPL測定を行った。励起光にはDPSSレーザー(532 nm)を、発光の検出にはInSbフォトディテクターを用いた。

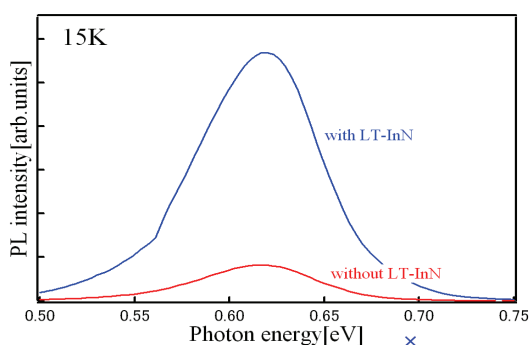


Fig. 3 A面InNからのPLスペクトル。

Fig. 3に、A面InNから得られたPLスペクトルを示す。比較のために、低温InNバッファ層を用いずに成長したA面InNからのPLスペクトルも示してある。このように低温InNバッファ層を用いた効果は発光特性にも顕著に現れ、発光強度が低温InNバッファ層を用いなかった場合と比較して10倍程度大きくなっていることがわかる。また発光ピークはいずれの場合においても0.63 eVにあることがわかる。C面に成長したInNから得られた発光ピークは0.68 eV付近にあり、それと比較してA面InNからの発光は低エネルギー側へシフトしている。このシフトの原因としては、ポリタイプの混在の影響、フランツ・ケルディッシュ効果、不純物

発光などが考えられる。原因について検討するために、ラマン分光測定や、PLの励起強度依存性、温度依存性について調べた。まず、ラマン分光測定の結果からはポリタイプに起因するピークは観測されなかったことから、ポリタイプの混在の影響は考えなくてもよいことがわかる。次に、励起強度を増加させるとPLピークが高エネルギー側へ大きくシフトすることから、単純な不純物準位発光ではないことがわかる。さらに、温度を上げていくと低エネルギー側の発光が次第に弱くなっていく。実験的に得られたPLの励起強度依存性と温度依存性についてはフランツ・ケルディッシュ効果あるいはドナー・アクセプター対発光によるものとして説明が可能であるが、どちらが妥当であるかはさらに検討が必要である。

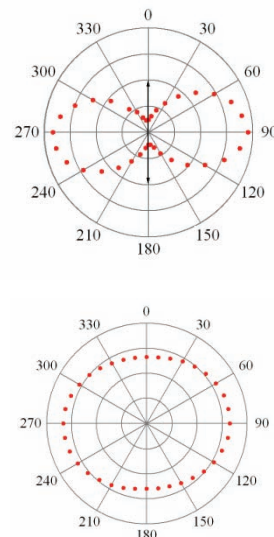


Fig. 4 A面InN (上) およびC面InN (下) からのPL偏光特性

Fig. 4にA面InNとC面InNのPL偏光特性を示す。面内異方性のないC面InNからは顕著な偏光特性は見られないのに対して、A面InNからは2回対称の明瞭な偏光特性が見られた。PL強度はc軸方向に垂直な偏光成分の方が平行な偏光成分よりも大きくなった。この結果はBhattacharyya等[5]によって報告されている実験結果と一致している。ただし、我々が得た偏光度は72%であり、彼らの報告した65%よりも大きな値となった。この原因としては、低温InNバッファ層を用いることで、結晶内の歪みの様子が異なったことが考えられる。

4. 結論

低温InNバッファ層を用いることで、A面InNの表面平坦性および結晶性を向上させることができた。また成長温度は表面平坦性に大きく影響し、比較的低温で成長することによって表面平坦性の良い膜を得ることができた。A面InNのPLピークエネルギーはC面InNの場合と比較して低エネルギー側の0.63 eVであった。またPLでは無極性面特有の明瞭な偏光特性が観測され、その偏光度は72%と大きなものであった。

参考文献

- [1] A. Chitnis, C. Chen, V. Adivarahan, M. Shatalov, E. Kuokstis, V. Mandavilli, J. Yang and M. A. Khan, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3663 (2004).
- [2] A. Chakraborty, B. A. Haskell, S. Keller, J. S. Speck, S. P. DenBaars, S. Nakamura and U. K. Mishra, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 5143 (2004).
- [3] H. Lu, W. J. Schaff, L. F. Eastman, J. Wu, W. Walukiewicz, V. Cimalla and O. Ambacher, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1136 (2003).
- [4] G. Shikata, S. Hirano, T. Inoue, M. Orihara, Y. Hijikata, H. Yaguchi and S. Yoshida, *J. Cryst. Growth* **301-302**, 517 (2007).
- [5] J. Bhattacharyya, S. Ghosh, M. R. Gokhale, B. M. Arora, H. Lu and W. J. Schaff, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 151910 (2006).