

2011年9月

RF-MBE 法による YSZ(001)微傾斜基板上立方晶 InN の作製と評価

物質系専攻 096121 石田 崇

指導教員：尾鍋研太郎（教授）

キーワード：立方晶窒化物半導体、RF-MBE 成長、YSZ 微傾斜基板、InN、立方晶相純度、DERI

1.背景

InN は、III族窒化物半導体の中で最も小さい0.63eV のバンドギャップを持っている。それ故に、InN はバンドギャップが3.39eV の GaN との混晶 InGaN の実現により、光伝送損失が最小である1.55 μm 帯の光ファイバー通信波長用光源の材料として期待されており、小さい電子有効質量、高い絶縁破壊電圧、飽和電子速度、電子移動度を有するため、高パワー動作の FET 等の電子デバイス用の材料としても注目されている。

また、InN は安定相の六方晶系ウルツ鉱型構造(h-InN)と準安定相の立方晶系閃亜鉛型構造(c-InN)の2つの結晶構造を取ることが知られており、立方晶ではピエゾ電界が発生しないことにより、量子構造での発光による電子・正孔再結合効率が向上する。

しかし、立方晶構造が準安定相であり、また第一原理計算から c-InN と h-InN の凝集エネルギー差が約11.5meV/atom と小さく六方晶相が容易に混入してしまうことから、高相純度の c-InN の作製は困難である。このために、高品質な c-InN を作製するには、六方晶の混入を抑制するように結晶成長条件を最適化する必要がある。この六方晶の混入の抑制に関して、アニール処理を施したイットリア安定化ジルコニア(Yttria-stabilized Zirconia)微傾斜基板上に c-InN を成長させると、基板の傾斜方向に対応した特定の立方晶 InN の{111}ファセットへの六方晶 InN の顕著な混入が生じることが報告された[1]。また、新たな高品質 InN 薄膜の RF-MBE 成長手法として DERI(In Droplet Elimination by Radical-beam Irradiation)法が名西らによって提唱され、h-InN 成長への適用例が報告されている[2]。

本研究では、異なるオフ方向・オフ角度を持つ YSZ 微傾斜基板上に c-InN を成長し、c-InN への h-InN の混入形態の変化、特に4つの c-InN{111}ファセット面への h-InN の混入率の偏りについて検討した。また、YSZ(001)just 基板上に DERI 法によって c-InN を成長し、その結晶品質や表面状態についても検討した。

2.実験方法

本研究では RF-MBE 法を用いて YSZ(001)just 基板及び YSZ(001)微傾斜基板上に c-InN の結晶成長を行った。YSZ 基板は成長前に有機溶剤によって有機洗浄を施した。洗浄後に乾燥窒素を噴きつけて有機溶剤を除去した後に、準備室を介して成長室内に基板を搬入した。成長室内へ搬入した後に約800°Cで30分間、サーマルクリーニングを行い、基板表面の残留不純物を除去した。その後、成長温度まで基板温度を降温し、c-InN を60分間成長した。c-InN の成長条件は成長温度440~480°C、窒素流量1.75 sccm、RF出力300 W、Inフラックス 1.25×10^4 Paで行った。また、DERI法ではこのc-InN成長後に2.5~20分間、窒素ラジカルのみを照射する過程を加え、成長を行った。

3.結果と考察

3.1 YSZ(001)微傾斜基板上 c-InN

図1にc-InN成長中のRHEEDパターンを示す。c-InN 成長直後は立方晶を示すスポットパターンが得られたが、成長時間の経過に伴ってRHEED 像の強度が減少した。これは、In-rich 条件でc-InNを成長しているために、表面にInドロップレットが形成され、電子線がInドロップレットに散乱されてしまうためであると考えられる。

図2に[110]方向に2度傾斜したYSZ(001)微傾斜基板上のc-InNのXRD逆格子空間マッピングを示す。立方晶InNの4つの{111}ファセット面のうち、(111)面からの六方晶相の混入が顕著である。これは基板のオフ方向に対応した特定のファセット面からの混入であると考えられる。

図3に各ファセット面への六方晶相の混入比率と基板のオフ角度との関係を示す。オフ角度の増加に伴い、(111)ファセット面からの六方晶相の混入率が増加し、他のファセット面への混入率が減少している。これは基板のオフ角度の増加によって、六方晶相の特定のファセット面上の形成がより幾何学的に容易であり安定化するためであると考えられる。

図4に[100]方向に傾斜したYSZ(001)微傾斜基板上に成長したc-InNの各ファセット面への六方晶相の混入比率と基板のオフ角度との関係を示す。オフ角度の増加に伴い、(111)面と(1-11)面からの六方晶相の混入率が増加し、他のファセット面への混入率が減少している。これは基板のオフ方向の(100)方向が(110)方向と(1-10)方向の重ね合わせであるためだと考えられる。

これらのc-InN成長は、アニール処理を施していないYSZ(001)微傾斜基板に行ったが、傾斜角度の大きい基板では、基板のオフ方向に対応した特定のファセット面からの六方晶の混入が顕著になってしまうために立方晶相純度は下がってしまったが、やや傾斜の小さい基板上へのc-InNの成長条件の最適化及び基板のアニール処理を行えば、結晶の高品質化を実現することは可能であると考えられる。

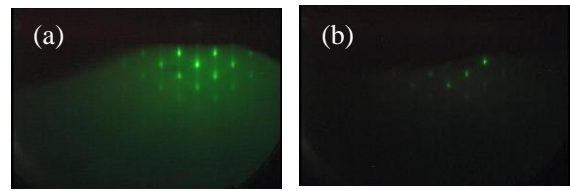


図1 c-InNのRHEEDパターン (a) 成長開始直後 (b) 成長開始30分後

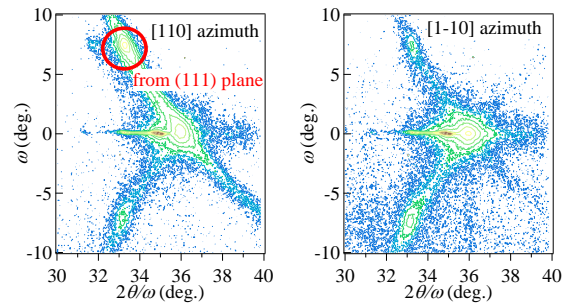


図2 YSZ(001)-[110]方向へ2度オフ基板上的c-InNのXRD逆格子空間マッピング

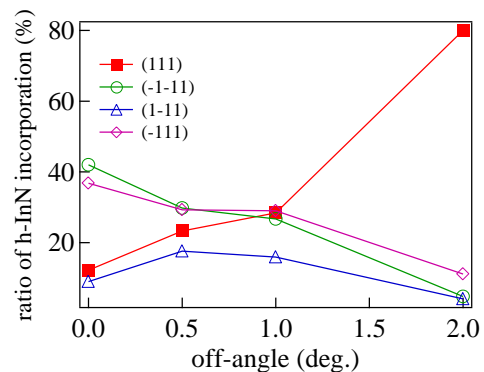


図3 {111}ファセット面からのh-InNの混入比率のYSZ基板のオフ角度依存性

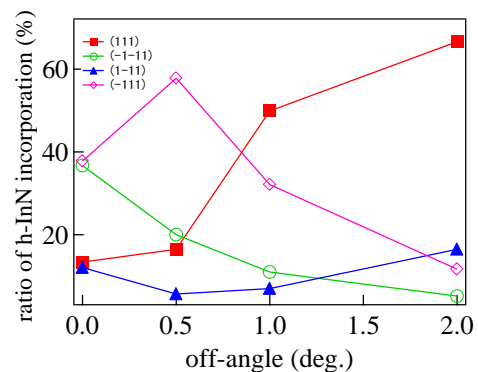


図4 [100]方向へ傾斜したYSZ(001)微傾斜基板上c-InNの{111}ファセット面からのh-InNの混入比率のYSZ基板のオフ角度依存性

3.2 DERI 法による YSZ(001)基板上 c-InN

図5に c-InN 成長中の RHEED パターンを示す。DERI 法実施直前の RHEED 像に比べ、DERI 法実施後の RHEED 像の強度が強くなっている。これは、窒素ラジカルの照射によって、電子線の散乱の原因となる In ドロップレットが除去されたことを示している。

また、図6に DERI 法実施したサンプルと実施していない c-InN の微分干渉顕微鏡像を示す。DERI 法を実施しなかった像では金属光沢のある In ドロップレットが観察されたが、DERI 法を実施した c-InN では HCl を用いて In ドロップレットを除去した場合と似た In ドロップレットの跡が観察された。

図7に異なる時間だけ DERI 法を実施した c-InN の XRD $2\theta/\omega$ スキャンの結果を示す。DERI 法を最も長く実施した c-InN において c-InN(002)ピークが最も強く、DERI 法を最も短い時間だけ実施した c-InN では In(110)ピークが最も強い。よって、DERI 法により、c-InN 表面の In ドロップレットが c-InN として固相中に取り込まれたと考えられる。

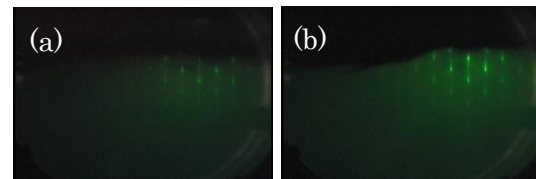


図5 DERI 法実施前後の RHEED 像
(a)DERI 法実施前 (b)DERI 法実施後

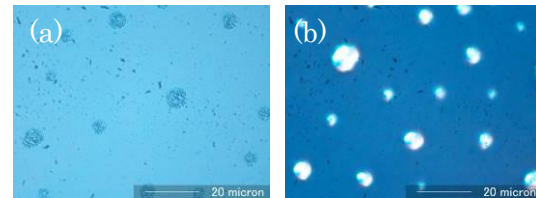


図6 c-InN の微分干渉顕微鏡像
(a)DERI 法無し (b)DERI 法有り

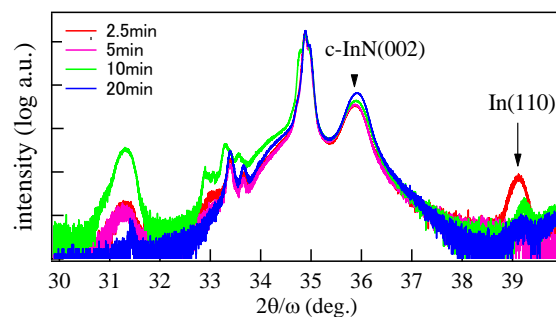


図7 DERI 法を用いた c-InN の $2\theta/\omega$ スキャンプロファイル

4. 結論

RF-MBE 法により YSZ(001)微傾斜基板上に InN の成長を行い、基板のオフ角度の方向に依存した特定の c-InN{111}ファセット面からの h-InN の混入が多い傾向にあった。また、基板のオフ角度が増加するに従い、h-InN の混入の偏りも顕著となった。微傾斜基板上への c-InN 成長においては、just 基板上への c-InN の成長条件とは別に成長条件の最適化を行うことにより、立方晶相純度向上が期待できる。

また、DERI 法を用いた c-InN 成長では、In-rich 条件での成長を RHEED 像の強度をその場観察することによって確認し、その後、窒素ラジカルのみを照射することによって RHEED 像の強度の回復を観察した。また、c-InN の微分干渉顕微鏡像によって、In ドロップレットが DERI 法によって除去されたことが視覚的にも確認でき、 $2\theta/\omega$ スキャンプロファイルの結果より、In ドロップレットが c-InN として固相中に取り込まれたことが確認できた。

【参考文献】

- [1] T. Nakamura, T. Kataoka, R. Katayama, T. Yamamoto, K. Onabe, *phys. stat. sol. (c)* **5**, 1712 (2008).
- [2] T. Yamaguchi and Y. Nanishi, *Appl. Phys. Express* **2**, 051001 (2009).

【学会発表】

春季第58回応用物理学関係連合講演会、秋季第72回応用物理学関係連合講演会、Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors(APWS-2011)、第30回電子材料シンポジウム(EMS-30)