

Title	強い発光を示す多結晶Ga _N 薄膜の成長と評価
Author(s)	朝日, 一
Citation	大阪大学低温センターだより. 110 P.17-P.21
Issue Date	2000-04
Text Version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/11094/10091
DOI	
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/repo/ouka/all/>

強い発光を示す多結晶 GaN 薄膜の成長と評価

産業科学研究所 朝日 一 (内線8407)

E-mail : asahi@sanken.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

GaN (窒化ガリウム) を中心とするⅢ-V族窒化物半導体は、近年、光デバイス、電子デバイスへの応用という観点から注目を集めている。特に、高輝度の青色・緑色の発光ダイオードの実現を契機として、この分野の研究人口の増加とそれに伴う青紫色半導体レーザへの研究の進展には著しいものがあり、次世代のDVD (デジタルビデオディスク) 用光源の可能性も見え始めている。ところで、光デバイス、電子デバイス用材料として広く用いられているGaAs系、InP系などのⅢ-V族半導体が立方晶系結晶 (閃亜鉛構造) であるのに対して、同じⅢ-V族半導体でもGaN系は六方晶系結晶 (ウルツ鉱構造) である。GaNには適当な基板結晶がないことから結晶格子定数が異なるサファイヤ結晶基板が広く用いられているが、我々はGaN結晶薄膜の高品質化研究の一環として、様々な面方位のサファイヤ基板上へのGaNのガスソースMBE (分子線エピタキシ) 成長を行ったところ、成長したGaNが多結晶性を示す面方位であってもフォトルミネセンス (PL) 発光強度には大きな差異がないことが観測された[1]。そこで、我々は非晶質の石英ガラス基板上にGaN薄膜を成長したところ、成長した多結晶GaNからは強いフォトルミネセンス (PL) 発光が得られることを見出した[2]。しかも、半導体としてデバイス応用上重要なn形、p形の伝導形の制御もできることを確認した[3]。これは、例えば多結晶GaAsでは半絶縁性を示し発光しなくなることと比べて、極めて異なる性質である。この結果は、多結晶半導体を用いた光デバイスの実現 (多結晶半導体フォトニクス) が可能であることを示しており、様々な展開が期待される。

2. 多結晶GaN成長

非晶質の石英ガラス基板上のGaNの成長は、Ga金属およびプラズマ励起の窒素ガスをソース原料とし、ガスソースMBE (分子線エピタキシ) 法により行った。成長手順は、まず石英基板表面を800℃で10分間熱的に清浄化を行い、その後400℃で10秒間GaN低温パッファ層を成長させ、この上に多結晶GaNを成長させた。多結晶GaNの成長温度は700-800℃、Ga分子線強度は $1-4 \times 10^{-7}$ Torr、窒素の流量を1-3SCCMであった。これらの成長条件は、サファイヤ結晶基板上への単結晶GaN成長の条件と同じである。

3. 結晶性評価

石英ガラス基板上的GaNの反射高速電子線回折(RHEED)観察によると、成長初期にはリングパターンを示すが、次第に切れたリングパターンを示した。切れたリングパターンは、 $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ および $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 方向からの単結晶GaNのRHEEDパターンを重ね、入射電子線方向を軸として回転させたものであり、また、このパターンは電子線の入射方向を変えても変化しないことから、GaNのC軸が基板面に垂直に配向した多結晶であることを示している。X線回折(XRD)測定からは、成長条件によりこのC軸配向性が大きく異なることが分かった(図1)[3]。多結晶GaNと同時にサファイヤC面基板上に成長したGaNのRHEEDパターンが(2×2)を示す成長条件下で成長した多結晶GaNは、C軸配向性が弱く、GaN(0002), GaN(0004)の回折ピークの外にGaN(10 $\bar{1}$ 1), GaN(10 $\bar{1}$ 2), GaN(10 $\bar{1}$ 3)の回折ピークも観測された(図1(a))。他方、(1×1)のRHEEDパターンを示す成長条件下で成長した多結晶GaNは、強いC軸配向性を示すことが分かった(図1(b))。原子間力顕微鏡(AFM)観察からは、前者の場合には大きさが0.1~0.3 μmの種々の形状の結晶が分布しており、後者の場合はほぼ0.2 μm×0.3 μmの均一な大きさの多結晶がほぼ均一に分布する傾向にあることがわかった(図2)[4]。なお、後者の成長条件は、Ga過剰の成長条件に対応していた。このように、成長条件とRHEED、XRD、AMFの間には良い対応関係が見られた。

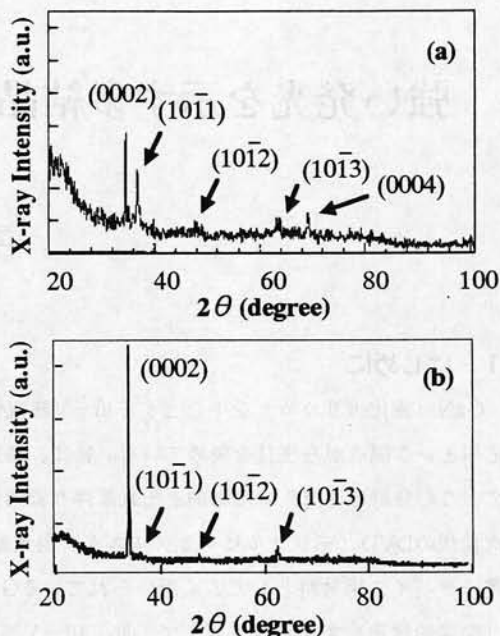


図1 成長条件の違いによるX線回折ロックングカーブの変化。

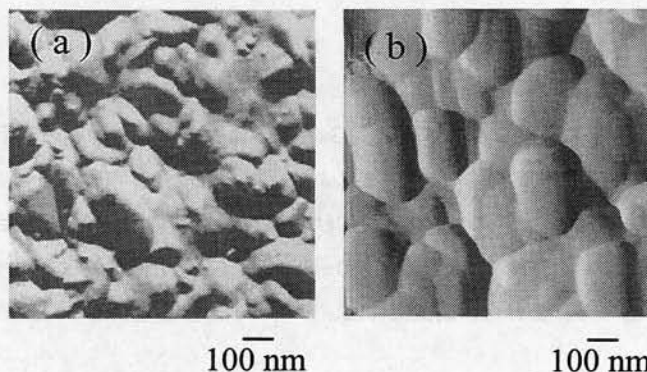


図2 多結晶GaN表面のAFM像。(a)図1(a)の多結晶GaN、(b)図1(b)の多結晶GaN。

4. 発光特性評価

これらの多結晶GaNサンプルからは、強いPL発光が観測された。PL測定には、波長325nmのHe-Cdレーザ(19mW)を励起光源として用いた。図1(a)の多結晶GaNに対するPLスペクトルを図3に示す[2]。驚くことに、ガスソースMBEによりサファイヤC面基板に成長した単結晶GaNよりも強いPL発光を示していることである。しかし、PLピークエネルギー(波長)は単結晶GaNに比べ、低エネルギー(長波長)側に約130meVほどシフトしている。更に、PLピークの半値全幅は単結晶GaNの約5~8倍と広がっている。PLピークの低エネルギーシフトは、図1(a)の多結晶GaNでは、種々の大きさで様々な方位を持った結晶が混在していることによると考えられる。すなわち、そのような状況では結晶粒はお互いに歪みを受けており、大きなポテンシャル変動が生じてエネルギーバンド構造は大きく変化を受け、発光エネルギーが大きくシフトしていると考えられる。

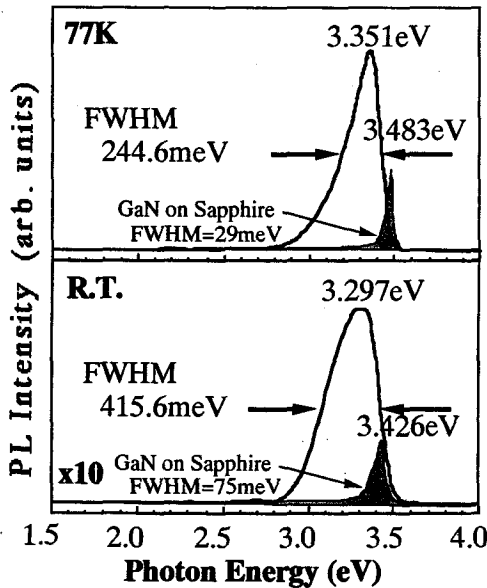


図3 サファイヤ基板上的単結晶GaNとガラス基板上的多結晶GaNのPLスペクトルの比較。

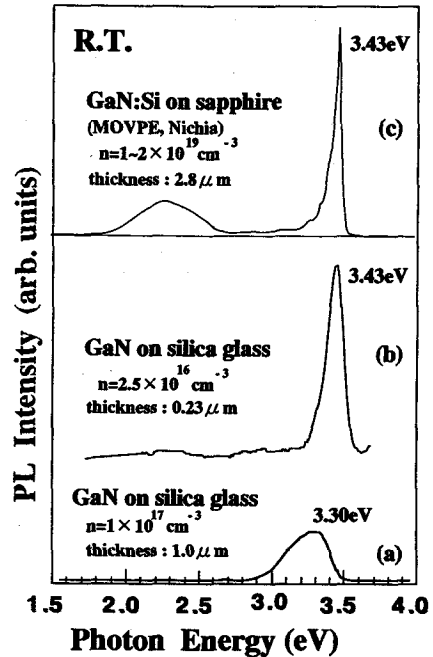


図4 300KでのPLスペクトルの比較。(a)図1(a)の多結晶GaN、(b)図1(b)の多結晶GaN、(c)サファイヤ基板にMOVPE法により日亜化学工業にて成長したSiドープ単結晶GaN。

実際、この考えは、図1(b)の多結晶GaNでは、PLピークエネルギーが全くシフトしていないことから支持される(図4(b)) [3]。すなわち、図1(b)の多結晶GaNでは、結晶方位はかなり揃っており、歪みの効果はかなり少なくなっていると考えられる。そして、この時の多結晶GaNのPLピークの半値全幅は約30meVと狭くなっており、成長条件、RHEED、XRD、AMFの間には良い対応関係が見られた。図4(c)には、高輝度の青色・緑色の発光ダイオード並びに青紫色半導体レーザの作製に成功している日亜化学工業でMOVPE(有機金属気相成長)成長した単結晶GaNのPLスペクトルも、比較のため示してある。発光強度はほぼ同程度であることが分かる。

なお、これらの多結晶GaNサンプルに対して、PL発光の励起光強度依存性を調べたところ、発光強度は励起光強度に比例して増加し、スペクトルの形状も低エネルギー側の裾の部分を除いて変化は認められなかった[2]。さらに、PLピークエネルギーの測定温度依存性は、単結晶GaNのそれに沿った依存性を示した[2]。このことから、低エネルギーシフトを示す図1(a)の多結晶GaNも含めそのPL発光の起源は、励起子発光であることが確認された。

5. 電気的特性

電気的特性評価には、van der Pauw法によるホール効果測定を行った。アンドープの多結晶GaNはサファイヤ基板上単結晶GaNと同様にn形の伝導性を示した(図5)[3]。電子濃度は成長条件により、 $3 \times 10^{16} - 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ であった。n形、p形のドーパントとして、それぞれSi, Beを用いてドーピング(不純物添加)の成長実験を行ったところ、n形、p形の伝導形の制御のできる事が分かった(図5)。このように、石英ガラス基板上の多結晶GaNにおいて、n形、p形を制御して成長できること、かつ、強いPL発光が得られることは、多結晶GaN薄膜を用いて発光デバイスを作製できる可能性を示しており、低価格、大面積の発光デバイスへの応用が期待される。

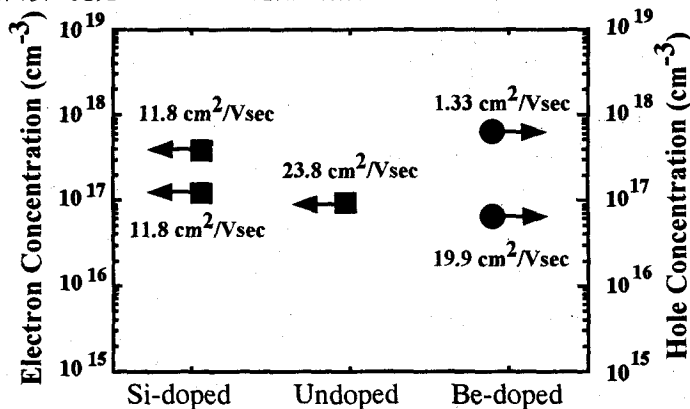


図5 ガラス基板上GaNのドーピング特性。

6. まとめ

我々は、ガスソースMBE法により非晶質の石英ガラス基板上にGaNを成長し、強い発光特性を示す多結晶GaN薄膜が得られることを見いだした。そして、不純物添加によりn形、p形の伝導形制御もできることを示した。この結果は、多結晶GaN薄膜を用いて、低価格、大面積の発光デバイスの実現が期待される。さらに、Si(シリコン)、金属、多結晶半導体、誘電体・磁性体酸化物などの各種の基板上に強い発光特性を示す多結晶GaN薄膜を成長することの可能性を示しており、それらの機能を融合した多機能・新機能の発現も期待される。実際、誘電体・磁性体ペロブスカイト酸化物薄膜の基板として広く用いられているSrTiO₃基板上に成長した多結晶GaNにおいても、強いPL発光が観測された[5]。これらは、「多結晶半導体フォトンクス」という新しい分野を切り開くものと考えられる。

参考文献

- [1] K. Iwata, H. Asahi, K. Asami, R. Kuroiwa and S. Gonda, *Jpn. J. Appl. Phys.* 36(1997)L661.
- [2] K. Iwata, H. Asahi, R. Kuroiwa, K. Asami and S. Gonda, *J. Cryst. Growth* 188(1998)98.
- [3] H. Asahi, K. Iwata, H. Tampo, R. Kuroiwa, M. Hiroki, K. Asami, S. Nakamura and S. Gonda, *J. Cryst. Growth* 201/202(1999)371.
- [4] M. Hiroki, H. Asahi, H. Tampo, K. Asami and S. Gonda, *J. Cryst. Growth*(in press).
- [5] H. Tampo, H. Asahi, M. Hiroki, K. Asami and S. Gonda, *Phys. Stat. Sol. (b)*216(1999)113.