

平成 22 年 3 月 31 日現在

研究種目：若手研究(B)  
 研究期間：2008～2009  
 課題番号：20760010  
 研究課題名（和文）  
 P型伝導窒化インジウム結晶実現に向けた成長モード制御による高品質化  
 研究課題名（英文）  
 Improvements in crystalline quality of InN for the realization of  
 P-type doping by using a growth mode control  
 研究代表者  
 村上 尚 (MURAKAMI HISASHI)  
 東京農工大学・大学院共生科学技術研究院・助教  
 研究者番号：90401455

## 研究成果の概要（和文）：

本研究では、MOVPE法によるInNのP型伝導制御を目標として、InN結晶中に多数存在する貫通転位の低減を目下の課題として、低転位化技術の確立を目的に研究を遂行した。H20年度の研究において、InN成長初期に3次元ピラミッド成長から2次元横方向成長に移行することで転位低減効果を確認した。さらなる低転位化のため、H21年度はGaAs(111)B基板上に形成したSiO<sub>2</sub>マスクパターン上へのInN選択成長を試み、600°C以上に成長温度を増加することでSiO<sub>2</sub>上には成長せず、マスクの開口部にのみ(1011)ファセットに囲まれたピラミッド状のInN結晶を選択的に成長できることを見出した。

## 研究成果の概要（英文）：

In this research, I aim to realize the P-type doping of InN by metalorganic vapor phase epitaxy(MOVPE) through the reduction of threading dislocations in the InN crystal by controlling the growth mode and selective growth.

For fiscal 20th, Facet control of InN was performed for the improvement of crystalline quality of InN layers on GaAs (111)B by MOVPE. It was found that the crystalline quality of InN could be improved by employing a growth mode change during epitaxial growth from three-dimensional (3D) to two-dimensional (2D), indicating a reduction of dislocation density with one order of magnitude. Selective growth of InN on the round opening patterned GaAs (111)B substrate was performed for improving the crystalline quality for fiscal 21st. Selective growth of InN layer without the deposition on the SiO<sub>2</sub> mask could be possible by raising the growth temperature up to 615 °C.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2009年度	1,500,000	450,000	1,950,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：結晶成長

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物性・結晶工学

キーワード：エピタキシャル成長

### 1. 研究開始当初の背景

InN を始めとする窒化物半導体 (InN, GaN, AlN) は、そのバンドギャップが InN の 0.7eV (波長 1770nm) から GaN の 3.4eV (波長 365nm)、AlN の 6.2eV (波長 200nm) の幅広い領域をカバーすることから、それらの混晶半導体 (InGaN, InAlN, InAlGaN) を作製することにより、可視光全域を含む深紫外から近赤外域の受光・発光デバイスに大変重要な材料といえる。現在までに近紫外から緑色の発光ダイオード (LED)、レーザダイオード (LD) が実現に至っているが、純緑色から赤色、さらには赤外域の発光デバイスにおいては、その内部量子効率が著しく低く未踏の波長領域といえる。これは、InN 系窒化物結晶の成長の難しさによるところが大きいが、その要因となっているのが低い結晶分離温度、高い窒素の平衡蒸気圧と、これに伴う成長可能温度の低さである。このため、成長された InN 結晶中には多数の欠陥が含まれており、これは発光特性や諸物性に非常に大きな影響を及ぼす。この問題点を解決し、伝導型制御を行うことが InN 系光デバイスの実現において極めて重要である。

### 2. 研究の目的

このような背景のもと本申請研究では、装置に有機金属気相エピタキシー (MOVPE) 法を用い、InN 結晶の成長初期成長モード制御による転位低減を行うことを目的とした。具体的には MOVPE 法により InN 成長初期における 3 次元ファセットを有した島状成長を形成できることを利用して、3 次元ファセット成長モードから成長途中に 2 次元横方向成長モードに移行すること (温度・供給 N 原料 / In 原料比制御にて可能) で転位低減の可能性があると考えた。また、さらなる低転位化を目指すため、これまであまり報告例のなかった、InN 選択成長を用いた選択横方向成長 (ELO) 技術の導入も検討を行う。

### 3. 研究の方法

有機金属気相エピタキシー (MOVPE) 装置を用いて窒化インジウム (InN) の成長を行った。平成 20 年度の研究においては、GaAs 種結晶基板及び成長系内の水素分圧のコントロールによって極性を制御した InN の成長技術をさらに発展させ、成長温度および供給原料比のコントロールによって、(101-1) ファセットに囲まれた六角錐 InN 結晶を選択的に成長し、さらに条件を変化させて横方向成長モードによる再成長により転位の低減効果を X 線回折、走査電子顕微鏡によって評価を行った。平成 21 年度には、さらなる転位低減化を目指し、GaAs (111)B 種結晶表面に SiO<sub>2</sub> によるマ

スクパターンを施し、その上に InN の選択成長を試みた。各種パラメータ例えば、成長温度、V 族 III 族挿入比等を制御することで、選択成長が可能な成長領域の探索を行った。

### 4. 研究成果

#### (1) 成長モード制御による InN 結晶高品質化

本研究では、はじめに MOVPE 成長系内に導入する水素ガスの割合を変化させた際に、成長する InN 結晶の表面モホロジーおよび結晶性にどのような影響を及ぼすかを検討した。図 1 は、550 で InN 成長中に導入する水素ガスの割合を 0% ~ 1% の間で変化させた際の、鳥瞰 SEM 写真である。導入する水素ガスのわずかな変化で、成長する結晶の表面は劇的に変化し、水素 0% の際は比較的平坦な成長モードであったが、わずか 0.4% の水素によって、(10-12) ファセット面に囲まれた 3 次元 InN 結晶が成長することがわかった。さらに水素の量を増やすと、InN のエッチングが生じ、成長速度の低下および In 液滴の生成が確認された。比較のために、水素 0% の条件で成長温度を 500 まで下げると、図 1(a') のように、平坦な膜が形成できることが明らかとなった。

上記の結果をもとに図 1(b) の三次元 InN 島成長と図 1(a') の横方向成長モードを組み合わせることで、InN 転位密度の低減が可能ではないかと考え、成長の初期に三次元成長モード、続いて成長温度および水素分圧の制御により二次元横方向成長モードによって島を埋めることを試みた。図 2 は通常の成長プロセスで成長した InN 結晶および今回の 2 段階成長した InN 結晶の (0002) 回折及び (10-12) 回折ロッピングカーブの比較である。図より明らかのように、螺旋転位に関係する (0002) 回折半値幅、刃状転位に関係する (10-12) 回

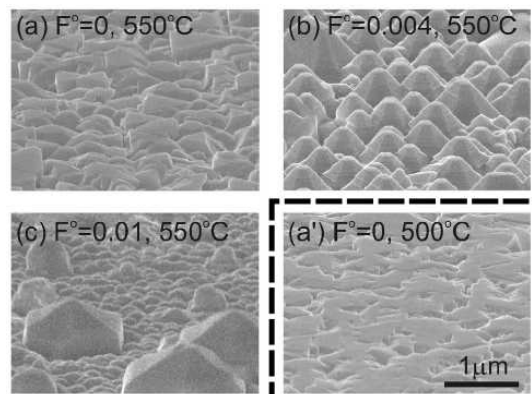


図 1. 水素分圧および成長温度による InN 表面モホロジーの変化. (a) 水素 0%、(b) 0.4%、(c) 1%、(d) 0% (成長温度 500 ).

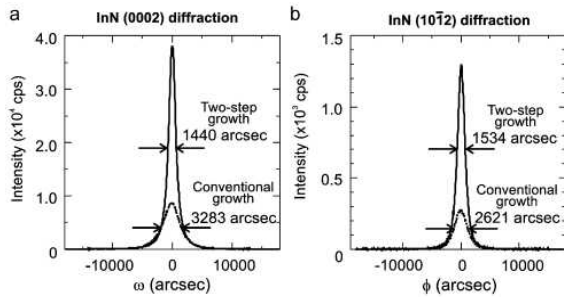


図2. 従来法および2段階成長法によって成長したInN結晶の(a) (0002)および(b) (10-12)回折X線ロックアップカーブ.

折半値幅ともに2段階成長したものの方が小さな値を示し、結晶性の向上が確認された。本方法により、X線回折半値幅から求めた転位密度が  $6.5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$  と従来の方法の半分まで低減された。

### (2) InN 選択成長の検討

InN結晶のさらなる低転位化を目指すため、GaNやAlNで実績のある選択横方向成長技術(Epitaxial Lateral Overgrowth; ELO)の検討を行った。GaAs(111)基板にSiO<sub>2</sub>マスクパターンを施し、その上にInN層を成長すると、600°C以下ではマスク上にInN多結晶が成長してしまうが、600°C以上の温度でInNを成長することでSiO<sub>2</sub>上には成長せず、マスクの開口部のみ(10-11)ファセットに囲まれたピラミッド状のInN結晶を選択的に成長できることを見出した。図3は、615°CにおいてInN選択成長の成長時間による変遷を示した、鳥瞰SEM写真である。図から明らかのように、マスクパターンの開口部のみからInN結晶が成長し、最終的には明瞭なInN六角錐結晶が形成していることがわかる。解析により、InNは(10-11)ファセット面を有した結晶形態となっており、これは、既に報告のあるGaNのELO成長と同様である。

次に成長したInN結晶の評価をX線回折により行った。図4は615°Cで成長したInN結

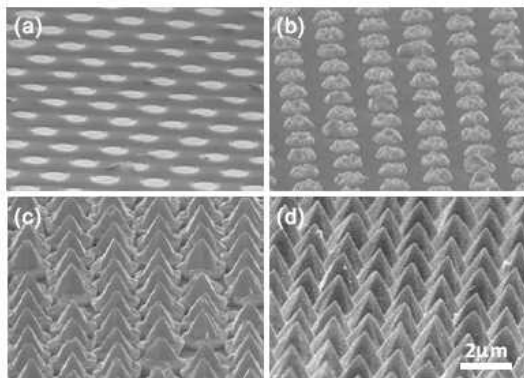


図3. GaAs(111)Bパターン基板上InN表面形態の成長時間依存性。(a)0分、(b)30分、(c)180分、(d)540分

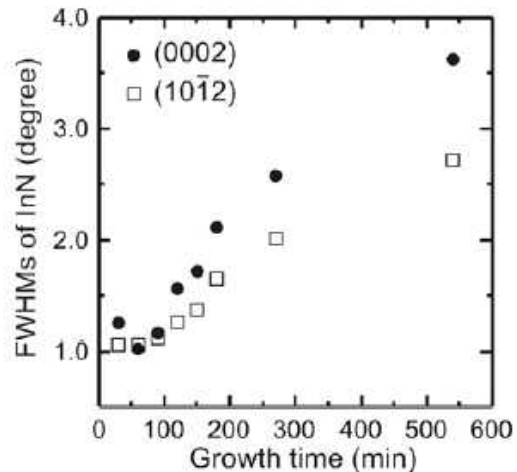


図4. GaAs(111)Bパターン基板上InN結晶の(0002)回折X線ロックアップカーブ半値幅の成長時間依存性.

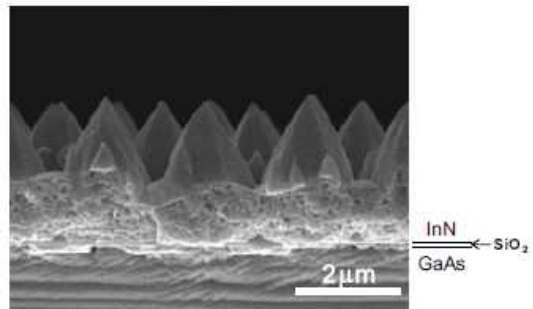


図5. GaAs(111)Bパターン基板上に540分間成長したInN結晶の界面。(分解が生じ、ポーラスな形態となっている)

晶の(0002)X線ロックアップカーブ半値幅の成長時間依存性を示している。グラフから、成長時間の増加にしたがって半値幅が増加し、つまりInNの結晶性が悪化することを示している。この原因について調べるため、走査電子顕微鏡によりGaAs基板とInNとの界面の観察を行った。図5は、540分成長したInNのGaAsとの界面写真である。界面においてInN側から分解が生じていることがわかる。これは、選択成長を実現するために比較的高温(通常は500~550°Cにて成長するところ、615°Cにて成長している)にて成長を行っているために熱分解が生じたことと、界面付近には多数の転位が集中しており、熱的に不安定になっているためと考えられる。

今後、界面でのInNの分解を抑制するために、InNよりも熱安定性を有するGa<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>N混晶を成長初期層として挿入することが考えられる。耐熱性を保ちつつ、InN横方向成長を実現し、低転位化が可能となると考えられる。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[ 雑誌論文 ] ( 計 6 件 )

Hisashi Murakami, Hyun-Chol Cho, Yoshinao Kumagai, Akinori Koukitu, Selective Growth of InN on Patterned GaAs(111)B Substrate -Influence of InN Decomposition at the Interface-, Physica Status Solidi C, 2010(印刷中)(査読有)

Yoshinao Kumagai, Hirokazu Adachi, Aya Otake, Yoshihiro Higashikawa, Rie Togashi, Hisashi Murakami, Akinori Koukitu, Temperature dependence of InN growth on (0001) sapphire substrates by atmospheric pressure hydride vapor phase epitaxy, Physica Status Solidi C, 2010(印刷中) (査読有)

Rie Togashi, Hisashi Murakami, Yoshinao Kumagai, Akinori Koukitu, Influence of substrate polarity of (0001) and (000-1)GaN surfaces on hydride vapor-phase epitaxy of InN, Journal of Crystal Growth, Vol. 312, 2009, 651-655. (査読有)

R. Togashi, T. Kamoshita, H. Adachi, H. Murakami, Y. Kumagai, A. Koukitu, Investigation of polarity dependent InN{0001} decomposition in N<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>, Physica Status Solidi C, Vol. 6, 2009, S372-S375. (査読有)

H. Murakami, H.-C. Cho, Y. Kumagai, A. Koukitu, Improvements in the crystalline quality of MOVPE-InN layers by facet controlling with hydrogen partial pressure, Journal of Crystal Growth, Vol. 310, 2008, 4954-4958. (査読有)

H. Murakami, K. Eriguchi, J. Torii, H.-C. Cho, Y. Kumagai, A. Koukitu, Influence of hydrogen input partial pressure on the polarity of InN on GaAs (111)A grown by metalorganic vapor phase epitaxy, Journal of Crystal Growth, Vol. 310, 2008, 1602-1606. (査読有)

[ 学会発表 ] ( 計 10 件 )

大竹斐, 足立裕和, 富樫理恵, 村上尚, 熊谷義直, 瀧本明伯, ハイドライド気相成長法による sapphire(0001)基板上 InN 成長の成長温度依存性, 応用物理学会結晶工学分科会 2009 年年末講演会, 2009 年 12 月 11 日, 学習院創立百周年記念会館 (東京都)

大竹斐, 足立裕和, 富樫理恵, 村上尚, 熊谷義直, 瀧本明伯, HVPE 法を用いた sapphire (0001)基板上 InN 成長における成長温度の影響, 第 39 回結晶成長国内会議 (NCCG-39), 2009 年 11 月 13 日, 名古屋大学(愛知県)

Yoshinao Kumagai, Hirokazu Adachi, Aya

Otake, Yoshihiro Higashikawa, Rie Togashi, Hisashi Murakami, Akinori Koukitu, Temperature dependence of InN growth on (0001) sapphire substrates by atmospheric pressure hydride vapor phase epitaxy, 8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8), 2009 年 10 月 20 日, International Convention Center Jeju (韓国)

Hisashi Murakami, Hyun Chol Cho, Yoshinao Kumagai, Akinori Koukitu, Selective Growth of InN on Patterned GaAs(111)B Substrate -Influence of InN Decomposition at the Interface-, 8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8), 2009 年 10 月 19 日, International Convention Center Jeju (韓国)

足立裕和, 大竹斐, 富樫理恵, 村上尚, 熊谷義直, 瀧本明伯, sapphire (0001)基板上 InN HVPE 成長における成長温度依存性, 第 70 回応用物理学会学術講演会, 2009 年 9 月 10 日, 富山大学(富山県)

H.-C. Cho, H. Murakami, Y. Kumagai, A. Koukitu, Two step growth of InN layer on SiO<sub>2</sub> patterned GaAs(111)B, 28th Electronic Materials Symposium (EMS-27), 2009 年 7 月 8 日, ラフォーレ琵琶湖(滋賀県)

趙賢哲, 村上尚, 熊谷義直, 瀧本明伯, 成長モード制御による MOVPE-InN の高品質化の検討, 第 1 回窒化物半導体結晶成長講演会, 2009 年 5 月 15 日, 東京農工大学(東京都)

R. Togashi, H. Adachi, T. Kamoshita, H. Murakami, Y. Kumagai, A. Koukitu, Investigation of Polarity Dependent InN{0001} Decomposition in N<sub>2</sub> and H<sub>2</sub> Ambient, International Workshop on Nitride Semiconductors 2008, 2008 年 10 月 9 日, Montreux, Switzerland

H. Murakami, H.-C. Cho, Y. Kumagai, A. Koukitu, Facet formation of InN for the growth of high quality InN layers on GaAs (111)B surfaces by MOVPE, 27th Electronic Materials Symposium (EMS-27), 2008 年 7 月 10 日, ラフォーレ修善寺(静岡)

H. Murakami, H.-C. Cho, Y. Kumagai, A. Koukitu, Improvements in crystalline quality of MOVPE-InN layers by facet controlling with hydrogen partial pressure, 14th International Conference on MetalOrganic Vapor Phase Epitaxy, 2008 年 6 月 4 日, Metz, France

[ 図書 ] ( 計 0 件 )

[ 産業財産権 ]

出願状況 ( 計 0 件 )

取得状況 ( 計 0 件 )

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

村上 尚 ( MURAKAMI HISASHI )

東京農工大学・大学院共生科学技術研究  
院・助教

研究者番号 : 90401455

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし