

ナノコラムを利用した 窒化インジウムデバイス基盤技術開発

所属： 立命館大学 理工学部

助成対象者： 荒木 努

概要

RF-MBE法を用いて成長した窒化インジウム(InN)のナノ構造を形成する手法として、窒素プラズマ照射の効果を検討した。InN結晶表面にRF-MBEチャンバー内で窒素プラズマ照射を行うことにより、nmサイズの凹凸構造を形成できることをin situによるRHEED観察および原子間力顕微鏡観察から明らかにした。プラズマ照射時の基板温度およびプラズマ照射時間が表面形状変化に及ぼす効果についても検証した。また、窒素プラズマ照射をInN表面に施すことで、ナノ構造の形成効果だけでなく、InNの熱分解を抑制する効果も見出した。本研究の成果は、InN結晶成長の高品質化およびナノ構造を利用したデバイス応用に寄与できるものと考えられる。

abstract

We investigated the effect of nitrogen plasma irradiation on InN surface grown by RF-MBE for fabrication of InN-based nanostructures. Results of in situ RHEED observation and AFM measurement confirm that three-dimensional structure of InN with nm-scale can be fabricated by the irradiation of nitrogen plasma. Dependences of substrate temperature and irradiation time on changes in InN surface morphology were also studied. In addition, it is suggested that the nitrogen plasma irradiation on InN surface is able to suppress thermal decomposition of InN. These results give us useful findings for the improvement of InN crystal quality and fabrication of InN-based devices.

研究内容

(1) 背景と目的

窒化物半導体は青・緑・白色発光ダイオード、青紫色レーザー、高周波・高出力電子デバイスなどにすでに応用され、今日のエレクトロニクス社会を支える重要な半導体材料である[1]。窒化物半導体の中において、窒化インジウム (InN) は、バンドギャップが最も小さく、高い移動度をもつことから、長波長領域光デバイス、高周波デバイス、高効率太陽電池用材料として期待されている半導体である[2]。しかしながら、格子整合する基板材料が存在しないためこれまでサファイア基板や GaN テンプレート基板上へのヘテロエピタキシャル成長によって InN 結晶成長が行われてきた。このため InN 薄膜中には高密度の貫通転位が存在している[3]。貫通転位は非発光再結合中心や残留電子の起源となる結晶欠陥としてはたらくため、InN のデバイス化を阻む大きな要因となっている。本研究ではナノコラム、ナノドットのようなナノ領域での InN 結晶高品質化とそのデバイス応用を目指し研究を実施した。本報告では、ナノレベルでの凹凸構造を作製するための InN 表面への窒素プラズマ照射の効果についてまとめる。

(2) 実験方法

InN 結晶成長は高周波で励起生成された窒素プラズマを利用する分子線エピタキシー法 (RF-MBE: Radio Frequency Molecular Beam Epitaxy) を用いて行った。GaN/サファイアテンプレート基板を RF-MBE チャンバーに投入後、サーマルクリーニングを行い、GaN バッファ層を成長した後、基板温度 435°C、In ビーム強度 1.40×10^{-6} Torr、窒素プラズマパワー 200 W、窒素流量 2.0 sccm の条件にて InN 薄膜を 60 分成長した。成長後の InN に対して、RF-MBE チャンバー内にて窒素プラズマ照射を各種条件で行い、表面に形成されるナノ構造の様子を調べた。窒素プラズマ照射中のリアルタイムでの表面形状の変化は、反射高エネルギー電子線回折 (RHEED: Reflection High Energy Electron Diffraction) にて評価した。窒素プラズマ照射後の表面形状は、原子間力顕微鏡 (AFM: Atomic Force Microscopy) を用いて評価した。

(3) 結果と考察

図 1 に窒素プラズマ照射時の基板温度を 330°C と 435°C に変化させて、60 分窒素プラズマ照射を行ったときの RHEED パターンの変化(a)および AFM 観察結果(b)を示す。窒素プラ

ズマを照射する前の RHEED パターンでは、両サンプルともにストリークパターンが得られており InN が原子レベルで平坦な表面を有していることがわかる。その後、InN 表面への窒素プラズマ照射を開始し、時間が経過するにつれて、RHEED パターンがストリークパターンからスポットストリークパターンに変化していることがわかる。これは InN 表面に 3 次元的な凹凸構造が現れてきていることを示している。またこの変化は、基板温度が 435°C の方が顕著であり、高い基板温度が窒素プラズマ照射による表面ナノ構造形成に有効であることがわかった。窒素プラズマ照射前後の表面形状を AFM 観察で比較した結果においても、窒素プラズマ照射によって、RMS 値（平均自由荒さ）が約 1 nm 増加しており、ナノレベルの凹凸構造が形成されていることを確認した。また窒素プラズマ照射時の基板温度が高い方が表面形状のより大きな変化をもたらすことも AFM 観察結果より確認できた。

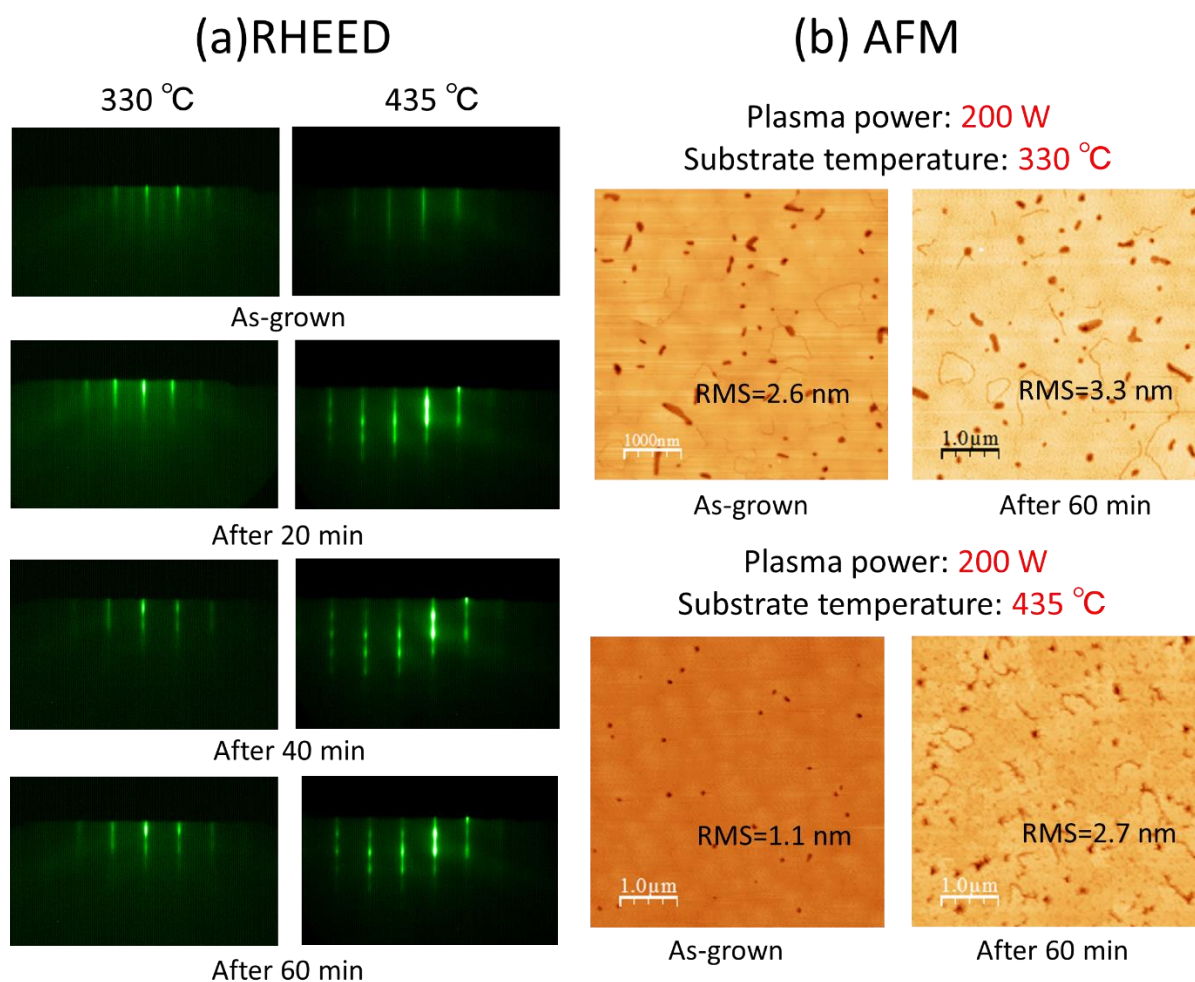


図 1 InN 表面への窒素プラズマ照射時の (a)RHEED パターン変化と (b)窒素プラズマ照射前後における AFM 観察結果

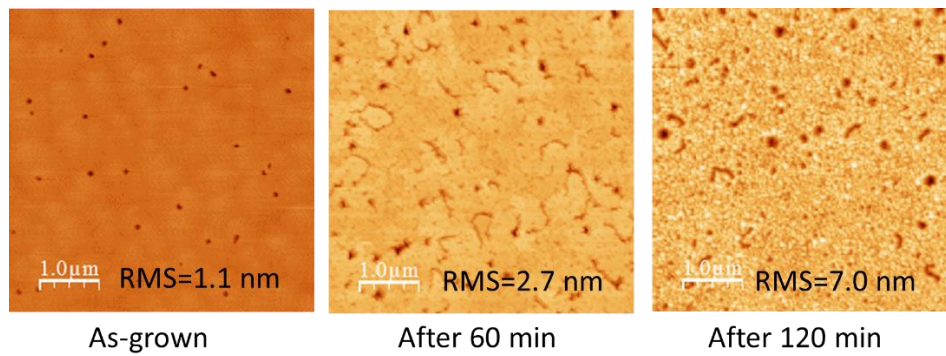


図 2 InN 表面への窒素プラズマ照射前、60 分照射後、120 分照射後の AFM 観察結果

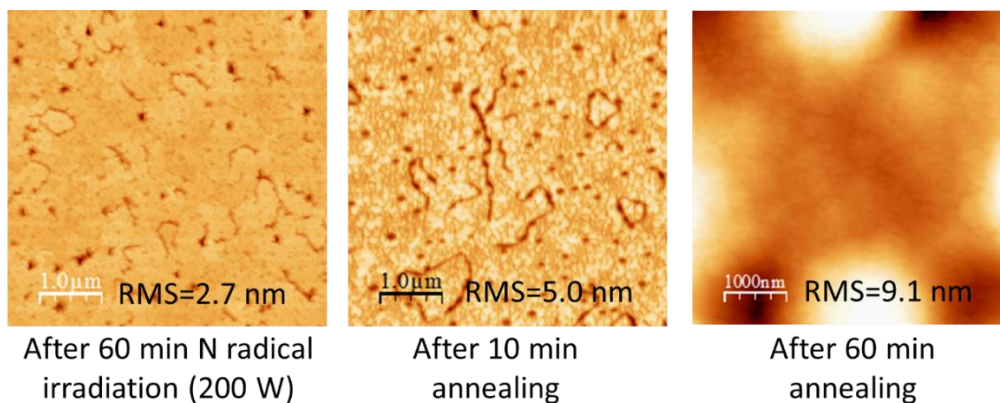


図 3 窒素プラズマ照射 60 分（左）、窒素プラズマ照射なしで熱処理のみ 10 分（中）、熱処理のみ 60 分（右）行った InN 表面の AFM 像

図 2 には、窒素プラズマ照射時間を 120 分まで行ったときの AFM 像の変化を示す。照射時間が 60 分、120 分と増加するにつれて、表面形状に凹凸構造が明瞭に現れてきている。120 分照射後の AFM 像においては、数十 nm サイズの粒状構造が高密度かつ均一に形成されている。また RMS 値も 1.1 nm から 2.7 nm、7.0 nm と大きく増加した。以上の結果から、InN 表面に窒素プラズマ照射を行うことにより、ナノレベルの凹凸構造を形成可能であることがわかった。また、窒素プラズマ照射時の基板温度を高く、また照射時間を長くすることでより大きな表面形状変化を生じさせられることがわかった。これら形成した InN ナノ構造を直接的に利用したり、または再成長用の加工テンプレート基板としてナノコラムやナノドットなどのナノ構造 InN 成長に応用したりすることも期待できる。

InN は窒素の平衡蒸気圧が高く、分解温度が低いため、400～450℃程度の比較的低温での結晶成長が行われるが、InN 表面での分解による表面構造の変化も無視できない。そこで、窒素プラズマ照射の効果をより明確に理解するため、熱処理による表面構造変化との

比較を行った。図 3 には、基板温度 435°C で窒素プラズマ照射（プラズマパワー 200 W）を 60 分行ったあとの AFM 像と、窒素プラズマを照射せずに基板温度 435°C で 10 分間および 60 分間、RF-MBE チャンバー内にて熱処理のみ行った試料の AFM 像を示す。窒素プラズマ照射を行わずに 435°C で維持した場合、わずか 10 分の処理で表面形状が大きく変化していることがわかる。RMS 値もプラズマ照射を行いながら 60 分処理したときの値 2.7 nm から 5.0 nm へと大きく増加している。さらに 60 分熱処理を行った場合には、InN の表面形状が大きく異なり、表面に存在していた nm サイズの粒状構造が消失し、代わって数 μm サイズの形状が現れている。X 線回折測定結果からは、窒素ラジカル照射を行わずに 60 分間熱処理した試料から In メタルの存在を示すピークが現れており、AFM で観察された数 μm サイズの構造は In ドロップレットと思われる。つまり、基板温度 435°C では InN の熱分解も同時に起こっており、InN 結晶表面から窒素が分解脱離して、In が表面にドロップレットとして堆積したものと考えられる。これらの結果から、窒素プラズマ照射には、表面にナノレベルの凹凸構造を形成する効果があるだけでなく、InN の熱分解を抑制する効果もあることが新たな知見としてわかった。

(4) 今後の展望

本研究においては、ナノコラム、ナノドットといった InN ナノ構造を結晶成長プロセスにおいてボトムアップ的に作製することを計画していたが、結晶成長装置の不具合によりその計画が困難な状況となったため、成長した InN 結晶表面に窒素プラズマ照射を行うことでナノ構造を作製するトップダウンのプロセスでの検討を進めた。その結果、窒素プラズマ照射を行うことで、InN 結晶表面に nm サイズの凹凸構造を形成できることを明らかにした。また基板温度やプラズマ照射時間が及ぼす効果についても検討をした。さらには窒素プラズマ照射が表面ナノ構造の形成だけでなく、InN の熱分解を抑制する効果があることも新たに見出した。これらの知見は、InN 結晶成長における本質的課題の解決やナノ構造、ヘテロ構造の作成技術にも応用展開が計られるものであり、今回得られた成果を活かして InN 結晶高品質化およびデバイス応用へ向けた研究を今後も邁進したいと考えている。

(5) 謝辞

本研究は、住友電工グループ社会貢献基金学術・研究助成を受けることにより遂行することができました。厚くお礼申し上げます。

引用文献

- [1] ワイドギャップ半導体 あけぼのから最前線へ、日本学術振興会ワイドギャップ半導体光・電子デバイス第162委員会編；赤崎勇，松波弘之編著、培風館（2013）
- [2] 名西やすし、荒木努、宮嶋孝夫、応用物理 72、565-572（2003）
- [3] T. Araki, K. Mizuo, T. Yamaguchi, Y. Saito and Y. Nanishi, *phys. stat. sol. (c)* 0, 2798-2801 (2003)

本助成に関わる成果物

[ポスター発表]

1. F. Abas, R. Fujita, S. Mouri, Y. Nanishi, and T. Araki, The 7th International Symposium on Growth of III-nitrides (2018.8)
2. H. Omatsu, F. B. Abas, R. Fujita, S. Mouri, T. Araki, and Y. Nanishi, 37th Electronic Materials Symposium (2018.10)