

半極性 GaN バルク基板上への
InGaN 量子構造の成長と偏光物性

上田雅也

2009 年

abstract

This thesis is about the crystal growth of InGaN quantum structures on semipolar GaN bulk substrate and investigation of the polarization properties. The contents of this thesis are divided into seven chapters, as follows;

Chapter 1: Preface,

Chapter 2: $\{11\bar{2}2\}$ GaN homoepitaxy,

Chapter 3: Growth of $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW,

Chapter 4: Application of $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW for LED,

Chapter 5: Optical Polarization anisotropy in $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW,

Chapter 6: Fabrication of $\{11\bar{2}2\}$ InGaN QD,

Chapter 7: Conclusion.

Light emitters based on nitride semiconductors typically consist of c -oriented quantum wells (QWs), where the quantum confinement stark effect is caused by piezoelectric and spontaneous polarizations, which lower the optical transition probability. To circumvent this issue, several groups have tried to fabricate InGaN/GaN and GaN/AlGaIn QWs on nonpolar planes such as $\{1\bar{1}00\}$ (m plane), and $\{11\bar{2}0\}$ (a plane). However, the layers contain numerous nonradiative recombination centers because it is difficult to grow perfect high quality crystals in nonpolar directions.

Alternatively, there is an increasing interest in semipolar planes, which are tilted with respect to the c plane, because a reduced or even negligible electric field is theoretically expected. We have found that the $\{11\bar{2}2\}$ plane is promising for low internal electric fields when these planes naturally appear as microfacets through the regrowth process on c -oriented GaN templates. This structure is being developed as a multicolor emitter. However, planar, semipolar nitride layers and devices grown on foreign substrates suffer from a high density of threading dislocations and rough surfaces, which has led us to believe that, if high quality GaN substrates were available, device performances would be

drastically improved.

The purposes of this study are,

- (1) Achieve high quality III-Nitride quantum structures on $\{11\bar{2}2\}$ GaN bulk substrate and analyze the basic solid state properties to verify the availability of semipolar planes.
- (2) Elucidate the optical polarization in $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW.
- (3) Fabricate $\{11\bar{2}2\}$ InGaN Quantum dots to achieve more high efficiency light emitter and verify the availability of $\{11\bar{2}2\}$ InGaN QDs.

In chapter 2: the growth condition of $\{11\bar{2}2\}$ GaN homoepitaxy was optimized. As a result, the optimized V/III ratio was 3000, and the best growth temperature was 75 °C less than that best for (0001). The best root mean square (RMS) of surface roughness was ~ 0.16 nm, which is comparable to the lattice spacing of (11 $\bar{2}$ 2) GaN. The homoepitaxial layer has good optical property judging from the the PL intensity of the free excitons which was higher than that of the donor bound excitons.

In chapter 3, $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW was grown on the high quality GaN homoepitaxial layer, and the formation of the multiple quantum well (MQW) was verified by X-ray diffraction (XRD). Moreover, also the strain in the $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW was analysed by XRD reciprocal space mapping. The photoluminescence from QWs was observed, and the radiative lifetime of (11 $\bar{2}$ 2) InGaN/GaN QW was two orders of magnitude shorter than that of (0001), which suggested that the internal electric fields were reduced in $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW compared to (0001).

In chapter 4, the application of the $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW to the LED. Using the $\{11\bar{2}2\}$ GaN bulk substrate, the practical output power and external quantum efficiency were successfully achieved. Furthermore, the internal electric fields in $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW was estimated by PL under reverse bias.

In chapter 5, the optical polarization in $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW was analyzed. All the reports about the polarization properties of (In)GaN said that the emission from (In)GaN was polarized perpendicular to the c axis. On the other hand, in this study, the polarization switching phenomena in the $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QWs were observed for the first time, that is, the emission from the QW is polarized parallel to the c axis for the samples with In composition higher than $\sim 30\%$. We attributed the phenomena to the shear strain which is non-zero in the semipolar plane.

In chapter 6, at first, after growth parameters optimization, InGaN Quantum dots (QDs) on (0001) GaN/ c sapphire substrate were grown. The target is to fabricate InGaN/GaN

QD with monolayer (ML) fluctuation. The crystal growth of $(11\bar{2}2)$ InGaN QDs by MOVPE was demonstrated, and the shape of ML-fluctuation $\{11\bar{2}2\}$ InGaN QD was observed by atomic force microscope.

The PL and time-resolved PL decay time was measured and it was found that the lifetime was about 100 ps, which is much lower than that of the polar InGaN/GaN QD. This result suggests that the internal electric fields are also reduced in all direction in $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QD.

目次

abstract	i
目次	iv
第 1 章 序論	1
1.1 はじめに	1
1.2 窒化物半導体研究の現状	3
1.3 非極性面の研究	5
1.4 本研究の目的と意義	6
1.5 本学位論文の構成	8
参考文献	11
第 2 章 $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板上 GaN の成長と物性評価	15
2.1 はじめに	15
2.2 $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板の諸特性	15
2.3 $\{11\bar{2}2\}$ GaN ホモエピタキシー	20
2.4 まとめ	31
参考文献	33
第 3 章 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の作製と基本特性	35
3.1 はじめに	35
3.2 成長条件	35
3.3 構造評価	42
3.4 光学的特性評価	48
3.5 電子線ホログラフィによる内部電界評価	51
3.6 まとめ	53

参考文献	55
第 4 章 {11 $\bar{2}2$ } InGaN/GaN QW 発光ダイオードの作製と評価	57
4.1 はじめに	57
4.2 サンプル構造	57
4.3 LED の特性	58
4.4 内部電界の評価	68
4.5 まとめ	73
参考文献	75
第 5 章 {11 $\bar{2}2$ }InGaN/GaN QW の偏光特性	77
5.1 はじめに	77
5.2 サンプル構造および測定系	78
5.3 偏光ルミネッセンス	82
5.4 $k \cdot p$ アプローチによる解析	92
参考文献	99
第 6 章 {11 $\bar{2}2$ }InGaN 量子ドットの作製と物性評価	101
6.1 はじめに	101
6.2 量子ドット	101
6.3 (0001) InGaN 量子ドット	104
6.4 {11 $\bar{2}2$ } InGaN 量子ドット	113
6.5 まとめ	121
参考文献	123
第 7 章 結論	125
7.1 はじめに	125
7.2 本研究で得られた成果	125
7.3 今後の展望	127
謝辞	129
業績一覧	133

第 1 章

序論

1.1 はじめに

本研究で用いる III 族窒化物半導体は, In, Ga, Al の組成を変化させることで発光エネルギーを約 0.6 eV から約 6 eV まで変化させることができ, 赤外から深紫外までをカバーできる材料として古くから期待されてきた [1–11]. InN, GaN, AlN のバンド構造は六方晶では直接遷移型の半導体である. GaN, InN など III 族原子と V 族原子の結合はイオン結合性が強く, 室温常圧ではウルツァイト構造が最安定相である (図 1.1). 原子間結合距離 [12] とバンド

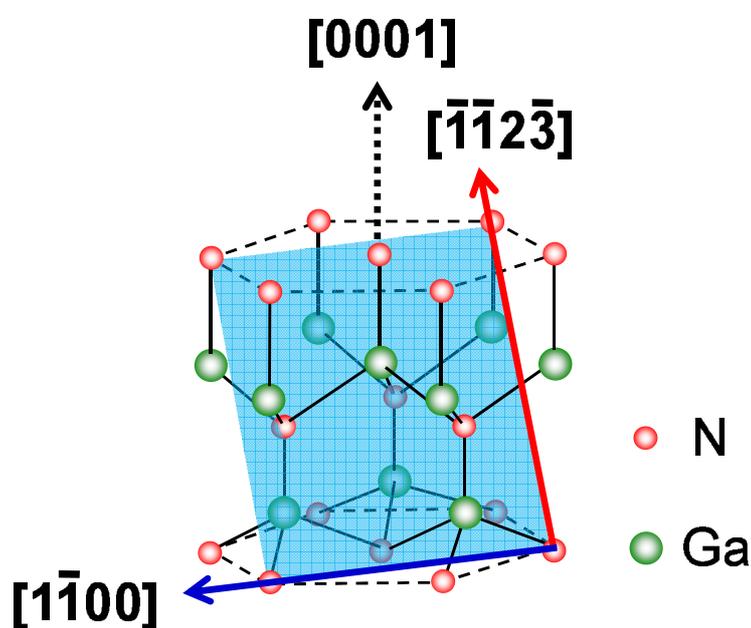


図 1.1 GaN の結晶構造 (ウルツァイト構造) と $\{11\bar{2}2\}$ 及びその面内での重要な方位. 白丸は Ga を, 黒丸は N をあらわす.

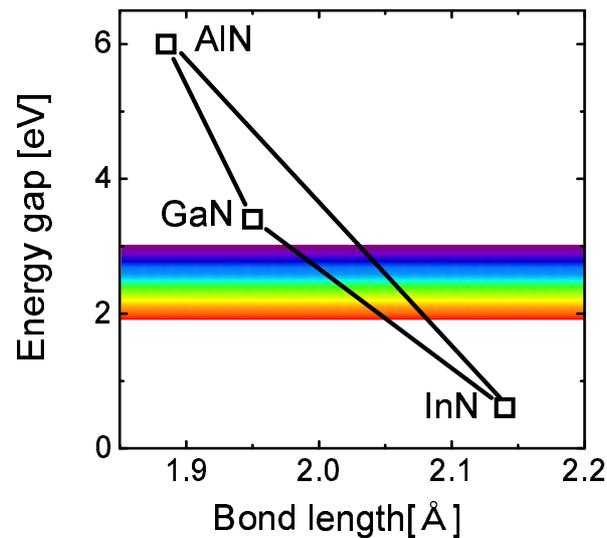


図 1.2 III 族窒化物半導体 (InN, GaN, AlN) のバンドギャップと結合距離の関係

ギャップ [4–8] の関係を図 1.2 に示す．この図からわかるように，III 族原子と V 族原子の N との結合距離は，InN，GaN，AlN の順に短く，それに伴いエネルギーバンドギャップも InN，GaN，AlN の順に大きくなり，赤外から深紫外の波長域までカバーしている．InN と GaN の混晶である InGaN が，本研究で扱う材料である．

1900 年前半から III 族窒化物半導体の合成 (AlN [1], GaN [2])，1969 年に Maruska, Tietjen らによるハイドライド気相成長法による GaN 薄膜の成長が報告された [3]．1971 年には，有機金属気相成長法によりサファイア (Al_2O_3) や MgAl_2O_4 基板上への GaN の成長が報告されたが，当時のこの GaN は *n* 型の電気伝導性を示し，キャリア密度が $10^{19}/\text{cm}^3$ 台と高い残留ドナー不純物密度を有していた．

そのような中，1986 年に Akasaki, Amano らによって，AlN の緩衝層を成長後 GaN を成長することで，緩衝層なしの成長に比べて，飛躍的に結晶性が向上することが見出された [13]．これにより，残留ドナー密度が著しく低減し *p* 型伝導性 GaN への下地が整った [13,14]．その後 1989 年には，同グループより高品質 GaN に Mg をドーピング後低速電子線を照射することにより GaN が *p* 型伝導を示すことと，さらに *pn* 接合による青色/紫外 LED が実現され，その I-V 特性が報告された [15]．

1991 年，日亜化学の Nakamura は GaN 緩衝層を用いることによっても高品質 GaN を成長できることを見出した [16]．その後，1992 年，Nakamura らは Mg ドーピングされた GaN の熱アニールにより *p* 型伝導が実現できることを報告した [17]．

III 族窒化物半導体を用いたダブルヘテロ (異種材料の接合) 構造紫外および青色発光ダイオード (Light emitting diode: LED) が 1993 年に実現され [18,19]，その後も窒化物半導体の結晶成長技術の発展によって，紫外から赤色 LED [20,21]，紫外 [22] から青色レーザダイ

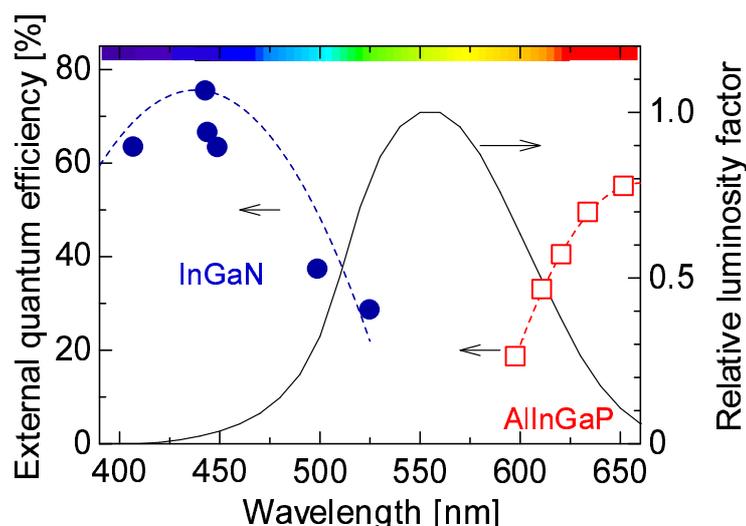


図 1.3 外部量子効率と発光波長の関係 [27, 28, 31]

オード (Laser diode; LD) [23–26] が実現されてきた。

省エネルギー，長寿命といった利点を活かして青色 LED は，それを励起光源とする YAG 蛍光体の黄色発光を組み合わせた白色 LED [27]，LED ディスプレイ等へ，レーザダイオードとしては Blu-ray Disc のピックアップ用光源等に幅広く応用され欠かすことのできない材料である。

1.2 窒化物半導体研究の現状

現在達成されている外部量子効率と発光波長の間を図 1.3 に示す。現在実現されている (0001)InGaN 系量子井戸 (QW) LED のうち，青色領域では内部量子効率 (Internal quantum efficiency; IQE, η_{int}) は 90% 台近く以上に達しているといわれており [27]，外部量子効率 (External quantum efficiency; EQE, η_{ext}) では，75.5% という非常に高い値が報告されている [28]。しかし，In 組成が増加するにつれて効率が下がり，緑色領域では $\eta_{\text{ext}} = 28.6\%$ とその半分以下の効率しか得られていない [28]。

また，他材料系 (AlGaInP 系) を含めて考えると，赤色領域で 90-100% 程度が達成されている [29, 30]。また，外部量子効率においては発光波長 650nm において $\eta_{\text{ext}} = 55\%$ が達成されているが波長が短くなるにつれて緑色領域の内部量子効率はそれらに比べて低い [31]。図 1.3 においてみられる，緑色領域における量子効率の低下傾向はグリーンギャップと呼ばれている。

InGaN 系 QW で長波長域ほど η_{int} が低下する要因を排除すれば，緑色などの長波長域での効率が向上すると考えられる。その要因は以下のような事項が挙げられる。

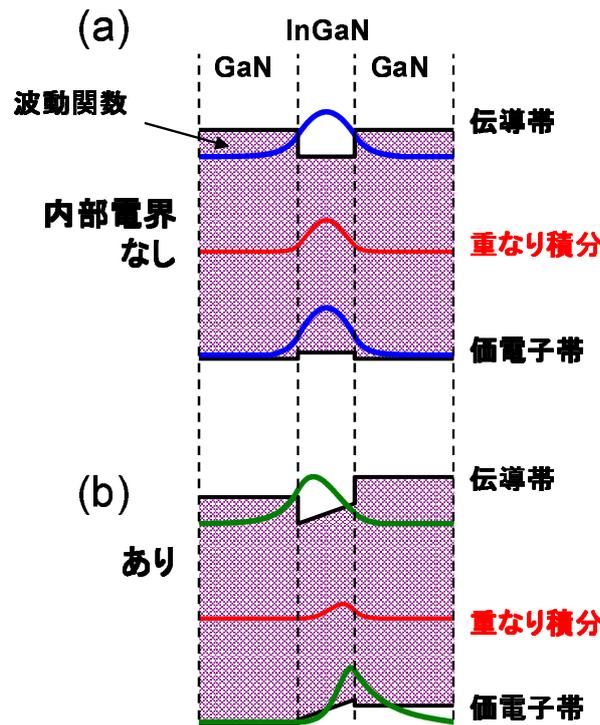


図 1.4 量子井戸における電子と正孔の波動関数とそれらの重なり積分の概略図．内部電界が (a) 存在する場合，(b) 存在しない場合とした．

- (1) InGaN / GaN QW の格子不整合によるピエゾ分極由来の内部電界，
- (2) GaN/InGaN 界面でのミスフィット転位発生などによる結晶性の悪化，

(1) により QW 内でキャリアである電子と正孔を空間的に分離するため，輻射再結合確率が低下する．しかも In 組成が大きいほど（長波長域ほど），格子不整合が増加し，内部電界が増加して電子と正孔が空間的に分離して輻射再結合確率の低下が顕著になる．図 1.4 に，InGaN/GaN QW 内に内部電界が存在する場合と存在しない場合の電子と正孔の波動関数とそれらの重なり積分の値を示している．

また，(2) においては，InN と GaN の格子定数差は約 10% であり，GaN の上に InGaN がコヒーレントに成長しようとするとき，格子不整合により刃状転位が発生して歪エネルギーを小さくしようとする [32]．これは In 組成が大きくなるほど格子不整合も増大するため，ミスフィット転位の発生が顕著になる．また，*c* 面サファイア上 GaN の成長で ELO などの工夫をしない場合，貫通転位密度は 10^8 - $10^{10}/\text{cm}^2$ 程度存在するため [33, 34]，その上の InGaN QW にも転位が受け継がれて QW の結晶性の悪化につながる．また，これら転位は InGaN 中で非輻射中心になることが文献 [35] で報告されており，転位の低減は発光効率を向上させるためにはそれらの低減が必要である．また，熱力学的にも高 In 組成 InGaN の成長が難しいことが以下のように示されている．InN 結晶の成長については，InN 成長の相図において In ドロツ

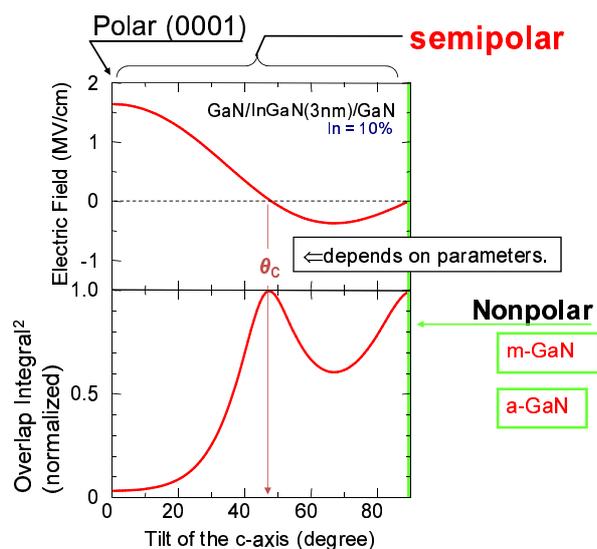


図 1.5 InGaN(3 nm)/GaN QW(In 組成 10%) の内部電界の結晶面の c 軸からの傾き依存性

プレットの析出および組成不安定領域（一定の気相供給組成に対して組成の異なる複数個の混晶が生ずる）が大きく、成長可能な領域が狭いことが理論的に報告された [36, 37]。これは、高 In 組成の InGaN を成長しようとする混晶の組成制御が困難になり組成不均一の混晶を生じることになる。また、次節でも述べるように、本研究開始当初の他研究機関における非極性面の成長はヘテロエピタキシー（異種基板上への結晶成長）であったので、新たな結晶面での成長は非常に難しかったのが現状である。

本研究では、(1) を解決するために、つまり内部電界の低減をはかるために、半極性面を積極的に利用する。また、(2) を解決するために、後の章で述べるように転位密度が非常に低い GaN バルク基板を用いる。これは、高効率 InGaN LED 実現の鍵になり、特に長波長域での改善が見込まれる。そこで、まず次節では半極性面の研究について纏める。

1.3 非極性面の研究

極性面 (0001) と 90 度をなす無極性面と、それらの間の角度をなす特定の半極性面においては内部電界がないことが理論的に示唆されている [38, 39]。図 1.5 に文献 [39] で使用されているパラメータを用いて計算された InGaN(3 nm)/GaN QW (In 組成 10%) の成長方向にかかる内部電界と電子と正孔の波動関数の重なり積分の二乗値をある結晶面法線と c 軸との傾きの関数としてプロットした。これによると、極性面 (0001) では内部電界が最大値を取り、 c 軸が傾くにつれて減少してゆき、ある角度で 0 を横切り、さらに角度を増すと極小を迎える。また、90° である無極性面では 0 になる。極性と無極性面の間のある半極性面において 0 を横切る点が存在する（その角度は使用する物性値に依存する）。内部電界が低減すると電子と正孔

の分離が少なくなり、電子と正孔の重なり積分 F は増加する。輻射再結合確率は F^2 に比例するので内部電界の低減された面では高い発光効率が期待される [40]。

実験面では、半極性面の成長は名城大学の Akasaki, Amano らの研究グループから 2000 年に提案された [41]。そこでは GaN マイクロファセット上に $(1\bar{1}01)$ InGaN/GaN QW が形成されたものの、QW 内の積層欠陥が原因で発光は非常に弱いものであった。

そのような中、2004 年に本研究グループの Nishizuka らにより (0001) , $\{11\bar{2}2\}$, $\{11\bar{2}0\}$ ファセットから構成される GaN 微細構造上へ作製した $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW からの高効率発光を観測した [42]。また、低温時間分解フォトルミネッセンス (PL) による PL 減衰寿命を測定し約 0.38 ns と同じ発光波長の (0001) InGaN/GaN QW の発光減衰寿命である 1.43 ns に比べて格段に速くなっていることを見出した。さらに、 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の優位性を示す結果としてやはり本研究グループより、GaN マイクロファセット上の $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の内部量子効率は緑色領域が最も高く、約 50% であることが報告されている [43]。

しかし、プレーナ構造の方がマイクロファセット構造よりも作製が容易であるため、実用上はプレーナ構造が魅力的である。そこで、2005 年にアメリカのカリフォルニア大学の研究グループは (0001) および (110) スピネル (MgAl_2O_4) 基板上へそれぞれ半極性 $(10\bar{1}\bar{1})$ および $(10\bar{1}3)$ GaN テンプレートをハイドライド気相成長 (HVPE) で成長したのちに、有機金属気相成長 (MOVPE) により InGaN/GaN QW の作製に成功した [44]。しかし、ヘテロエピタキシーの条件を最適化することは非常に困難であり、結晶性が非常に悪く外部量子効率は最大で 0.41% と低い値であった。また同グループから m 面サファイア基板上への $\{11\bar{2}2\}$, $(10\bar{1}3)$ 面 GaN 成長の報告があったがそれぞれ表面粗さの二乗平均 (以後二乗平均粗さと表記) = 8.4, 6.5 nm であり、貫通転位密度は 2×10^{10} , $9 \times 10^8/\text{cm}^2$, X 線回折 (X-ray diffraction: XRD) ω スキャンの半値全幅 (FWHM) は 1500, 1300 arcsec と表面モホロジー、結晶性ともに良いとは言えなかった。そのため、半極性面の純粋な物性評価ができず、デバイスの性能も実用レベルには達していなかった。

したがって、如何に半極性 GaN の結晶性を向上させ、さらにその上に成長する InGaN/GaN QW 活性層の結晶性を向上させるかが課題となっている。そこで、本研究では低転位密度の $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ GaN バルク基板を用いて GaN, および InGaN/GaN QW を作製することで、結晶性が向上するのではないかと考えた。

1.4 本研究の目的と意義

本研究では、半極性面 GaN バルク基板を用いて窒化物量子構造を成長し、基礎物性とくに偏光特性を明らかにすることで、半極性面の有用性を示す。とくに、半極性面上での高品質 (In)GaN 結晶成長についての詳細を調べ、 (0001) 上での成長との違いを比較する。また、半

極性面では，第 5 章で述べるように，その面内の原子配列の対称性の低さから発光に偏光特性が期待される．特に偏光特性が明らかにされていない半極性面 InGa_{0.5}N/GaN QW において，詳細に偏光特性を評価する．さらに， $\{11\bar{2}2\}$ InGa_{0.5}N/GaN QW よりもさらに高効率な発光構造として期待される $\{11\bar{2}2\}$ InGa_{0.5}N/GaN 量子ドット (Quantum dot: QD) の作製を行い，半極性面で InGa_{0.5}N/GaN QD を利用することの有用性を示す．

1.5 本学位論文の構成

本学位論文は、本章を含めて全7章立てとなっている。各章のタイトルは以下のようになっている。

第1章: 序論

第2章: $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板上 GaN の成長と物性評価

第3章: $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の作製と基本特性

第4章: $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW 発光ダイオードの作製と評価

第5章: $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の偏光特性

第6章: $\{11\bar{2}2\}$ InGaN 量子ドットの作製と物性評価

第7章: 結論

以下に、各章の概要と特筆すべき点を述べる。

第2章: $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板上 GaN の成長と物性評価

$\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板自体の特性とともに、MOVPE を用いて GaN のホモエピタキシーを行った結果を述べる。従来はヘテロエピタキシーによって、半極性面 InGaN/GaN QW などが実現されてきた。しかし、貫通転位、積層欠陥などの抑制がむずかしく、結晶性が悪くなり実用レベルに届いていなかった。そのため、半極性面上 InGaN QW に固有の特性を評価することが困難であり、実際、報告もなされていなかった。そのような中、本研究では基板として貫通転位密度が非常に低い $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板を用いてホモエピタキシーを行った。成長条件の最適化を行い、原子レベルで平坦な $\{11\bar{2}2\}$ GaN ホモエピタキシャル膜の作製を試み、また得られた膜の光学的特性を評価した。

第3章: $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の作製と基本特性

前章で最適化された $\{11\bar{2}2\}$ GaN 上の InGaN/GaN QW の成長条件の最適化について述べる。また、作製した試料の構造解析、表面構造には原子間力顕微鏡 (Atomic force microscope: AFM) を用いた評価、XRD による $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN 多重量子井戸 (Multiple quantum well: MQW) の構造評価について述べる。また、XRD 逆格子マッピングにより、 $\{11\bar{2}2\}$ GaN 上にコヒーレントに成長した InGaN/GaN QW の構造を明らかにし、その結果より歪を初めて定式化するなど、 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の詳細な解析を行った。さらに、 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW のフォトルミネッセンス (Photoluminescence: PL) 測定および時間分解 (Time-resolved: TR) PL による光学的特性評価において、発光減衰寿命を測定し、(0001) の

場合と比較することにより，内部電界が低減されているかどうかを議論する．

第 4 章: $\{11\bar{2}2\}$ InGa_N/Ga_N QW 発光ダイオードの作製と評価

本章では，第 3 章において議論される $\{11\bar{2}2\}$ InGa_N Ga_N QW を活性層に用いた LED 応用とその基礎特性について纏める．電流-電圧 および電流-発光特性より，外部量子効率，出力，発光スペクトルの FWHM などをのべ，(0001) LED との比較を行い，半極性面を用いた利点を議論する．また，この LED の逆バイアス下での PL によって内部電界の値も見積もり，(0001) InGa_N/Ga_N QW に比べて内部電界を評価した．

第 5 章: $\{11\bar{2}2\}$ InGa_N/Ga_N QW の偏光特性

本研究で注目するのは InGa_N/Ga_N 歪 QW であり，バンド構造に影響を与えるのは，QW にかかる歪及び量子効果である．本研究では作製したサンプルの偏光特性を詳細に解析した結果，以下のことを見出した，

- (1) バルクに比べて大きな偏光度，
- (2) 偏光方向のスイッチ現象．

これらは半極性面上光デバイスを作製する際に偏光を利用したデバイスへの応用に有利である．また (2) は物理的に重要であるだけでなく，緑色等の長波長のレーザ構造作製に大きなメリットがあり，本研究の特色ある結果であると言える．

本研究では，発光に寄与する各価電子帯遷移の偏光成分を詳細に解析して偏光回転のメカニズムを見出し，さらに，偏光が回転する原因を $k \cdot p$ 摂動法によるアプローチで解析，考察をする．

第 6 章: $\{11\bar{2}2\}$ InGa_N 量子ドットの作製と物性評価

(0001) 面 QW では成長方向に，無極性面 QW では面内方向に内部電界が最大値を取る．一方，全方位で内部電界を考えた場合，その合計が最小値を取る面方位が極性面と無極性面の間にある半極性面である．そこで，更なる高効率化を狙うために，本章では半極性 $\{11\bar{2}2\}$ InGa_N 量子ドットを提案する．作製方法は MOVPE により，ボトムアップの手法である Stranski-Krastanov(SK) モード量子ドット，もしくは成長初期の分子層 (monolayer: ML) 揺らぎを利用した量子ドットを考えた．実験面では実際に量子ドットを作製し，内部電界が低減しているかどうかを確かめて，半極性面 InGa_N/Ga_N QD の有用性を示す．

参考文献

- [1] F. Fichter, and W. Bernoulli, *Zeitschrift Fur Anorganische Chemie* **54**, 322-327 (1907).
- [2] J. V. Lirmann, and H. S. Schdanov, *Acta Physicochimica URSS* **6**, 306-306 (1937).
- [3] H. P. Maruska, and J. J. Tietjen, *Applied Physics Letters* **15**, 327-329 (1969).
- [4] J. I. Pankove, H. P. Maruska, and J. E. Berkeyheiser, *Applied Physics Letters* **17**, 197-199 (1970).
- [5] J. I. Pankove, H. P. Maruska, and J. E. Berkeyheiser, *Solid State Communications* **8**, 1051-1053 (1970).
- [6] J. Li, K. B. Nam, M. L. Nakarmi, J. Y. Lin, and H. C. Jiang, *Applied Physics Letters* **83**, 5163-5165 (2003).
- [7] F. Bechstedt, and J. Furthmüller *Journal of Crystal Growth* **246**, 315-319 (2002).
- [8] Y. Ishitani, K. Xu, S. B. Che, H. Masuyama, W. Terashima, M. Yoshitani, N. Hashimoto, K. Akasaka, T. Ohkubo, and A. Yoshikawa, *Physica Status Solidi(b)* **241**, 2849-2853 (2004).
- [9] Y. Taniyasu, M. Kasu, and T. Makimoto, *Nature* **441**, 325-328 (2006).
- [10] F. A. Ponce, and D. P. Bour, *Nature* **386**, 351-359 (1997).
- [11] I. Akasaki, and H. Amano, *Japanese Journal of Applied Physics* **36**, 5393-5408 (1997).
- [12] S. Sakai, Y. Ueda, and Y. Terauchi, *Japanese Journal of Applied Physics* **32**, 4413-4417 (1993).
- [13] H. Amano, N. Sawaki, and I. Akasaki, *Applied Physics Letters* **48**, 353-355 (1986).
- [14] I. Akasaki, H. Amano, Y. Koide, K. Hiramatsu, and N. Sawaki, *Journal of Crystal Growth* **98**, 209-219 (1989).
- [15] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, and I. Akasaki, *Japanese Journal of Applied Physics* **28**, L2112-L2114 (1989).
- [16] S Nakamura, *Japanese Journal of Applied Physics* **30**, L1705-L1707 (1991).
- [17] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh, and N. Iwasa, *Japanese Journal of Applied Physics* **31**, L139-L142 (1992).

- [18] S. Nakamura, M. Senoh, and T. Mukai, *Applied Physics Letters* **62**, 2390-2392 (1993).
- [19] S. Nakamura, M. Senoh, and T. Mukai, *Japanese Journal of Applied Physics* **32**, L8-L11 (1993).
- [20] S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, and S. Nagahama, *Japanese Journal of Applied Physics* **34**, L797-L799 (1995).
- [21] T. Mukai, M. Yamada, and S. Nakamura, *Japanese Journal of Applied Physics* **38**, 3976-3981 (1999).
- [22] I. Akasaki, S. Sota, H. Sakai, T. Tanaka, M. Koike, and H. Amano, *Electronics Letters* **32**, 1105-1106 (1996).
- [23] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto, *Japanese Journal of Applied Physics* **35**, L217-L220 (1996).
- [24] K. Itaya, M. Onomura, J. Nishio, L. Sugiura, S. Saito, M. Suzuki, J. Rennie, S. Nunoue, M. Yamamoto, H. Fujimoto, Y. Kokubun, Yasuo Ohba, G. Hatakoshi, and M. Ishikawa, *Japanese Journal of Applied Physics* **35**, L1315-L1317 (1996).
- [25] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto, *Applied Physics Letters* **68**, 2105-2107 (1996).
- [26] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Matsushita, and T. Mukai, *Applied Physics Letters* **76**, 22-24 (2000).
- [27] Y. Narukawa, J. Narita, T. Sakamoto, K. Deguchi, T. Yamada, and T. Mukai, *Japanese Journal of Applied Physics* **45**, L1084-L1086 (2006).
- [28] Y. Narukawa, M. Sano, T. Sakamoto, T. Yamada, and T. Mukai, *Physica Status Solidi(a)* **205**, 1081-1085 (2008).
- [29] N. F. Gardner, H. C. Chui, E. I. Chen, M. R. Krames, J.-W. Huang, F. A. Kish, S. A. Stockman, C. P. Kocot, T. S. Tan, and N. Moll, *Applied Physics Letters* **74**, 2230-2232 (1999).
- [30] Th. Gessmann, and E. F. Schubert, *Journal of Applied Physics* **95**, 2203-2216 (2004).
- [31] M. R. Krames, M. Ochiai-Holcomb, G. E. Höfler, C. Carter-Coman, E. I. Chen, I.-H. Tan, P. Grillot, N. F. Gardner, H. C. Chui, J.-W. Huang, S. A. Stockman, F. A. Kish, M. G. Craford, T. S. Tan, C. P. Kocot, M. Hueschen, J. Posselt, B. Loh, G. Sasser, and D. Collins, *Applied Physics Letters* **75**, 2365-2367 (1999).
- [32] J. Mei, R. Liu, F. A. Ponce, H. Omiya and T. Mukai, *Applied Physics Letters* **90**, 171922 (2007).^{*1}

^{*1} 論文番号がある論文 (最近の APL など) は , ページの代わりに論文番号を記します .

-
- [33] Y. Chen, T. Takeuchi, H. Amano, I. Akasaki, N. Yamada, Y. Kaneko, and S. Y. Wang, *Applied Physics Letters* **72**, 710-712 (1998).
- [34] J. C. Brooksby, J. Mei, and F. A. Ponce, *Applied Physics Letters* **90**, 231901 (2007).
- [35] T. Sugahara, M. Hao, T. Wang, D. Nakagawa, Y. Naoi, K. Nishino, and S. Sakai, *Japanese Journal of Applied Physics* **37**, L1195-L1198 (1998).
- [36] A. Koukitu, T. Taki, N Takahashi, and H Seki, *Journal of crystal growth* **197**, 99-105 (1999).
- [37] A. Koukitu and H. Seki, *The Japanese association for crystal growth* **25**, 81-98 (1998).
- [38] S. H. Park, S. L. Chuang, *Physical Review B* **59**, 4725-4737 (1999).
- [39] T. Takeuchi, H. Amano, and I. Akasaki, *Japanese Journal of Applied Physics* **39**, 413-416 (2000).
- [40] M. Sugawara, *Physical Review B* **51**, 10743-10754 (1995).
- [41] T. Takeuchi, S. Lester, D. Basile, G. Girolami, R. Twist, F. Mertz, M. Wong, R. Shneider, H. Amano, and I. Akasaki, *Proc. Int. Workshop on Nitride Semiconductors IPAP conference series* **1**, 137-140 (2000).
- [42] K. Nishizuka, M. Funato, Y. Kawakami, Sg. Fujita, Y. Narukawa, and T. Mukai, *Applied Physics Letters* **85**, 3122-3124 (2004).
- [43] Y. Kawakami, K. Nishizuka, D. Yamada, A. Kaneta, M. Funato, Y. Narukawa, and T. Mukai, *Applied Physics Letters* **90**, 261912 (2007).
- [44] A. Chakraborty, T. J. Baker, B. A. Haskell, F. Wu, J. S. Speck, S. P. Denbaars, S. Nakamura, and U. K. Mishra, *Japanese Journal of Applied Physics* **44**, L945-L947 (2005).
- [45] Y. Narukawa, I. Niki, K. Iuno, M. Yamada, Y. Murazaki, and T. Mukai, *Japanese Journal of Applied Physics* **41**, L371-L373 (2002).

第 2 章

{11 $\bar{2}2$ } GaN バルク基板上 GaN の成長と物性評価

2.1 はじめに

{11 $\bar{2}2$ } GaN バルク基板自体の特性とともに, MOVPE を用いて GaN のホモエピタキシャル成長を行った結果を述べる. 従来はヘテロエピタキシーによって, 半極性面 InGaN/GaN QW などが実現されてきた. その結果, 貫通転位などの欠陥の抑制が難しく, 結晶性が低いため実用レベルに届いていなかった. そのため, 純粋な半極性面上の特性評価の報告はされていなかった. 本研究では, 基板として {11 $\bar{2}2$ } GaN バルク基板を用いたホモエピタキシーを行い, 原子レベルで平坦なエピタキシャル膜を作製することに成功したので, それらについて纏める.

2.2 {11 $\bar{2}2$ } GaN バルク基板の諸特性

2.2.1 基板作製方法

結晶使用した基板は, ハイドライド気相成長 (HVPE) により C 面サファイア上へ C 軸配向の GaN 厚膜を成長して, レーザリフトオフにより GaN をサファイア基板から剥離したのち, {11 $\bar{2}2$ } 面が露出するようにカットし, 化学物理研磨法 (Chemical mechanical polishing: CMP) で表面を平坦化したものである. 典型的な {11 $\bar{2}2$ } GaN バルク基板の写真を図 2.1 に示す. サイズは, 平均で縦 5 mm, 横 15 mm 程度と非常に小さく高価である.

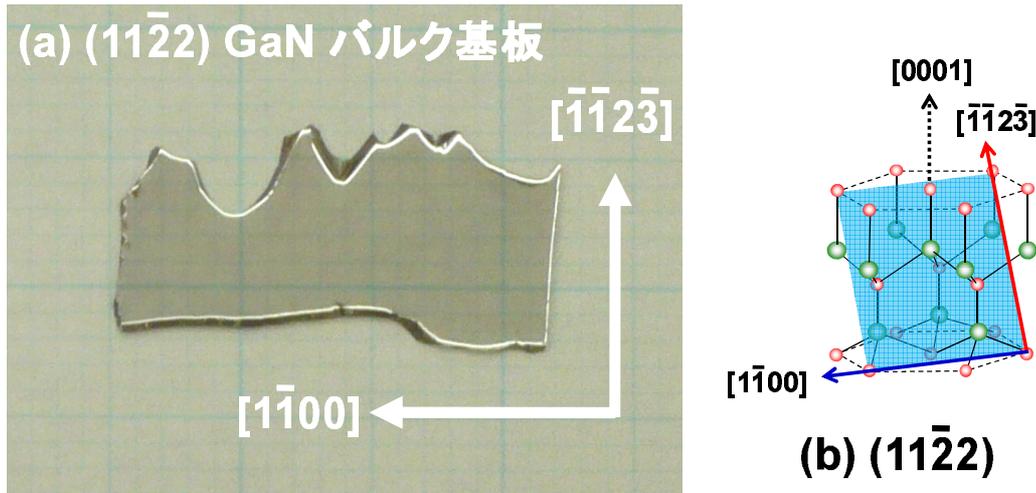


図 2.1 (a) $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板, (b) $(11\bar{2}2)$ の定義. 写真は $(11\bar{2}2)$ 側から撮影した.

2.2.2 表面形状

典型的な $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板の表面を AFM で観察した結果を図 2.2 に示す. CMP 処理しているが, 表面はドット状の形状を有し, 二乗平均粗さは $(11\bar{2}2)$ で 1.09 nm, $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ で 0.55 nm であった. また, ロット間でばらつきがあり測定した範囲では, $(11\bar{2}2)$ で 0.72 - 2.65 nm, $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ で 0.33 - 0.55 nm であった. これらの結果より, $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板表面は QW 等のナノサイズの構造を作製するには表面が粗いことがわかる.

2.2.3 転位密度

面揺らぎの評価: XRD ω スキャン

$(11\bar{2}2)$ GaN バルク基板の面揺らぎと転位密度を見積もる為に XRD ω スキャンを測定した. X 線モノクロメータは, Ge(220) 回折を用い, Cu- $K_{\alpha 1}$ (波長 $\lambda = 1.540562 \text{ \AA}$) のみを取り出し, サンプルを含めて 3 結晶配置で測定を行った. 前もって, (0006) サファイアの XRD ω スキャンを測定することにより, FWHM は 10.8 arcsec までは分解できることを確認している. また, サンプルは, X 線の入射面と劈開面である $\{1\bar{1}00\}$ が垂直になるように配置した.

ここで, X 線回折 FWHM は回折結晶の回折角 ω_M , 分光器の波長分散 $\delta\theta_\lambda$, サンプル自体の回折幅 ω_S を用いて以下の様に表示する [1],

$$\text{XRD FWHM} = \sqrt{\omega_M^2 + (\delta\theta_\lambda)^2 + \omega_S^2}. \quad (2.1)$$

ここで, $\delta\theta_\lambda$ は,

$$\delta\theta_\lambda = \frac{\delta\lambda}{\lambda} (\tan \theta_M - \tan \theta_S). \quad (2.2)$$

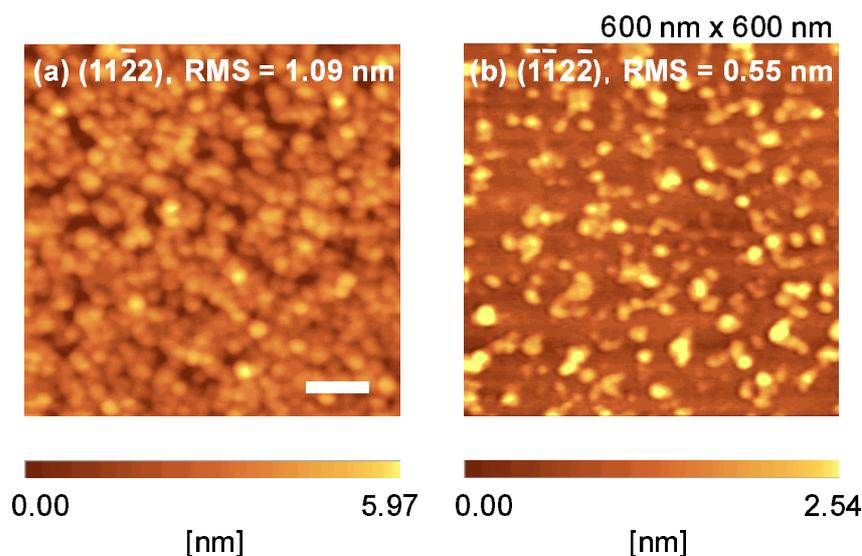


図 2.2 $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板の AFM 像．スケールバーは 100 nm を表し，二乗平均粗さを RMS として図中に示す．

θ_M , θ_S はそれぞれモノクロメータおよび試料結晶の回折角である．まずは $\{11\bar{2}2\}$ の揺らぎを評価するため対称反射^{*1}の XRD ω スキャンを行った．測定結果を図 2.3 に示す．得られた $\{11\bar{2}2\}$ の XRD スペクトルは単峰性であり，FWHM は 36 arcsec であった．同様に，X 線入射面に対して $\{1\bar{1}00\}$ が平行配置で測定した結果，FWHM は 40 arcsec であった．よって， $\{11\bar{2}2\}$ において，劈開面が X 線入射方向に対して，平行と垂直の配置の XRD ω スキャン測定結果はほぼ変わらず， $[1\bar{1}00]$ および $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向の面の揺らぎは同程度であることがわかった．同様に (0002) と $\{11\bar{2}0\}$ の非対称反射 XRD ω スキャンを測定した結果，FWHM はそれぞれ 22, 36 arcsec であった．以上の結果と式 (2.1) の関係から表 2.1 の様な結果になった．すなわち， $(11\bar{2}2)$ の回折幅 (面揺らぎ) は 31.0 arcsec, ($=1.50 \times 10^{-4}$ rad) (X 線入射面 $\parallel [1\bar{1}00]$: 26.3 arcsec ($=1.27 \times 10^{-4}$ rad)), (0002) で 15.6 arcsec ($=7.57 \times 10^{-5}$ rad), $\{11\bar{2}0\}$ で 32.1 arcsec ($=1.56 \times 10^{-4}$ rad) となった．

刃状転位

基板自体は $[0001]$ 配向で成長したものであり，転位の生じ方には，らせん転位，刃状転位，およびそれらの混合転位が存在する．結晶粒界 (刃状転位成分) が存在するようなモザイク結晶では，結晶自体のツイスト成分から刃状転位密度を見積もることができる [2, 3]．刃状転位が結晶全体に任意に存在すると仮定すると，刃状転位密度は次のような関係で導かれる [3]，

^{*1} 結晶の表面と回折格子面が平行な場合を対称反射，平行ではない場合を非対称反射．

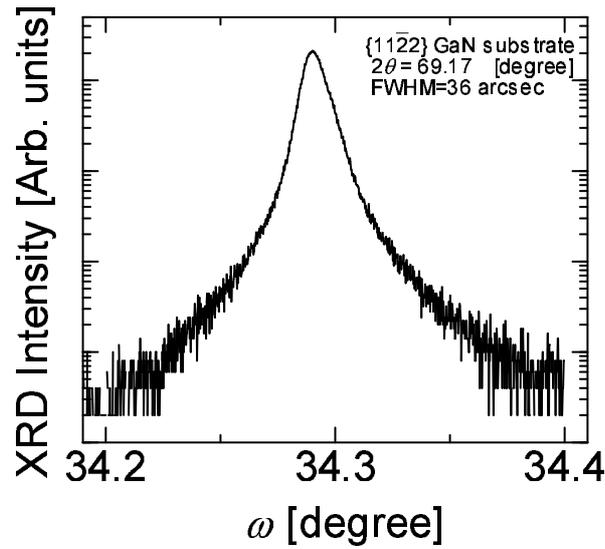


図 2.3 $\{11\bar{2}2\}$ GaN 基板の XRD ω スキャン測定結果. $[1\bar{1}00]$ 劈開面が X 線入射に対して垂直の配置.

表 2.1 $\{11\bar{2}2\}$ GaN 基板の XRD ω スキャンから求めた各面の回折幅.

測定面	サンプルの回折幅 [arcsec]
$\{11\bar{2}2\}$	26.3 (X 線入射面 $\parallel \{1\bar{1}00\}$) 31.0 (X 線入射面 $\perp \{1\bar{1}00\}$)
(0002)	15.6
$\{11\bar{2}0\}$	32.1

$$N_{\text{edge}}^{\text{rand}} = \frac{\beta^2}{4.35 \times b_{\text{edge}}^2}. \quad (2.3)$$

ただし, β はツイスト角 [rad], b_{edge} は刃状転位のバーガスベクトルである. $[0001]$ 配向で成長する GaN の場合, 貫通転位 (転位線) が $[0001]$ に平行な刃状転位のバーガスベクトルは $b_{\text{edge}} = \frac{1}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$ なのでその絶対値は a 軸長と一致し, $|b_{\text{edge}}| = 3.189 \text{ \AA}$ である. 六方晶におけるミラー指数は $(hkil)$ の様に表すが, 刃状転位成分は h または k が 0 ではない面のみを歪ませる [3,4]. ((0001) は歪まない). つまり, c 面成長 GaN において対称反射のロックイングカーブ測定には, 刃状転位成分は反映されないといえる.

したがって, $(11\bar{2}0)$ の回折幅と表 2.2 に示す値と式 (2.3) を用いて (0001) 面内の刃状転位密度は $5.5 \times 10^6 / \text{cm}^2$ と見積もられた. この密度を $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ 面内に投影して換算すると $2.9 \times 10^6 / \text{cm}^2$ となった.

表 2.2 X 線回折による解析で用いたパラメータ

$\omega_M(\text{Ge}(220))$	12.4 arcsec	
θ_M	22.65° (0.395 rad)	
$\Delta\lambda/\lambda$	3.8×10^{-4}	
θ_S	(11 $\bar{2}2$)	34.55° (0.6030 rad)
	(0002)	34.55° (0.6030 rad)

表 2.3 転位密度の見積もり

転位成分	転位密度 [$/\text{cm}^2$]	
	(0001) 面内	(11 $\bar{2}2$) 面への変換
刃状転位	5.6×10^6	2.9×10^6
らせん転位	4.6×10^5	2.4×10^5

らせん転位

貫通転位 (転位線) が [0001] に平行であるらせん転位のバーガースベクトルは, [0001] 配向に成長する GaN の場合, b_{edge} であり, その絶対値は c 軸長と一致し, $|b_{\text{edge}}| = 5.185 \text{ \AA}$ である [3, 4]. この刃状転位は (hkl) のうち l が 0 ではないあらゆる面を歪ませる (例えば, (0001) や (11 $\bar{2}2$) は歪むが, [0001] に平行な面である (11 $\bar{2}0$) は歪まない).

したがって, らせん転位は (0002) の揺らぎ (ツイスト成分) に反映されていると考えられ, これらの値を用いて, 刃状転位の場合と同様にして c 面内においてらせん転位密度を見積もると $4.9 \times 10^5 / \text{cm}^2$, この密度を ($\bar{1}\bar{1}2\bar{2}$) 面内に投影して換算すると $2.7 \times 10^6 / \text{cm}^2$ と見積もられた. これらの見積もりを表 2.3 にまとめる.

通常, c 面サファイア上 GaN は 横方向成長 (Epitaxial lateral overgrowth: ELO) などの工夫をしない場合, 貫通転位密度は $10^8 - 10^{10} / \text{cm}^2$ 程度存在するといわれている [5, 6]. したがって, 本研究において用いる GaN バルク基板は, 従来の c 面サファイア基板上 GaN の転位密度から 4 桁程度転位密度が低減していることが分かる.

2.2.4 キャリヤ密度

次に, {11 $\bar{2}2$ } GaN バルク基板のキャリヤ密度を調べるために, Hall 測定を行った. その結果, 伝導性は n 型で, キャリヤ密度が $3 \times 10^{17} / \text{cm}^3$, 移動度が $453 \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ であった. 本研究で用いた MOVPE 装置により作製されたサファイア上 GaN のキャリヤ密度は $1 \times 10^{17} / \text{cm}^3$

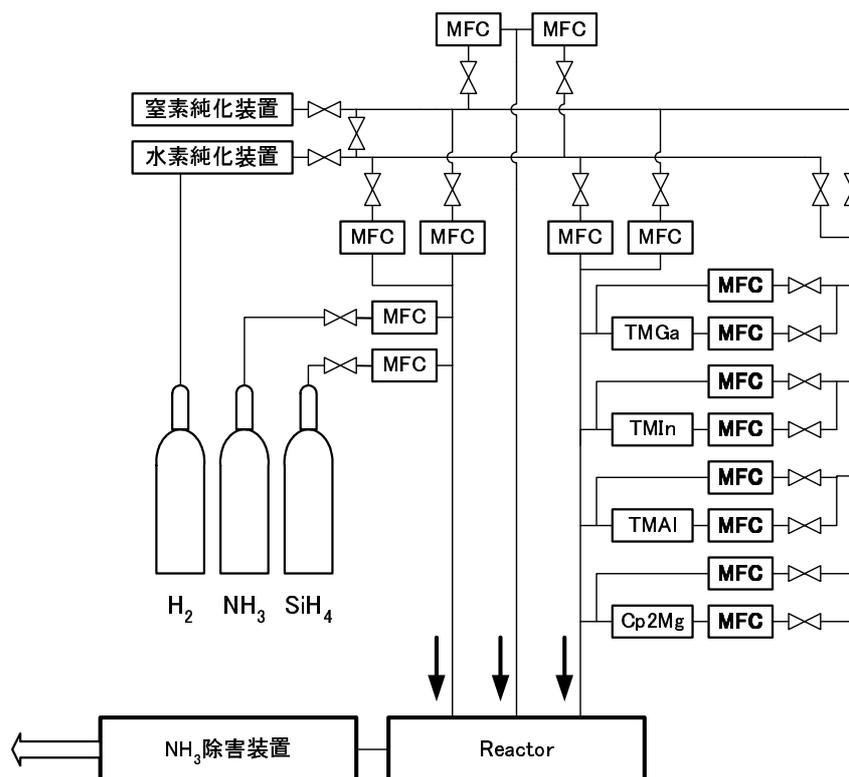


図 2.4 本研究で使用した有機金属気相成長の装置概略図。

程度であり，この値よりもバルク基板のキャリア密度は 3 倍程度大きい．これは，基板の HVPE 成長において，リアクタ材料などの影響を受けているものと考えられる．

以上より，結晶性は非常によいが，表面のラフネスが大きくドット状の表面モロロジーを有するので，InGaN 量子構造を直接成長するには適さない．従って，この基板上へ有機金属気相成長法により GaN のホモエピタキシーによる表面の平坦化を試みた．

2.3 $\{11\bar{2}2\}$ GaN ホモエピタキシー

2.3.1 成長装置および成長の準備

本研究では成長法として有機金属気相成長法を用いた．成長装置の概略図を図 2.4 に示した．この成長装置は成長時に成長面が鉛直下向きに配置される 2 インチ基板にカスタマイズされた構造である．そのため， $\{11\bar{2}2\}$ バルク基板に成長するときのように，2 インチよりも小さい基板を用いる際は，モリブデン製のサンプルホルダに AlN をベースにしたセラミック接着剤で基板を固定してリアクタにセットした．

原料は，III 族原料にトリメチルガリウム (trimethylgallium: TMG)，V 族原料にアンモニア (NH_3) を用いた．また，キャリアガスは水素 (H_2) および窒素 (N_2) を用いた．III 族原料

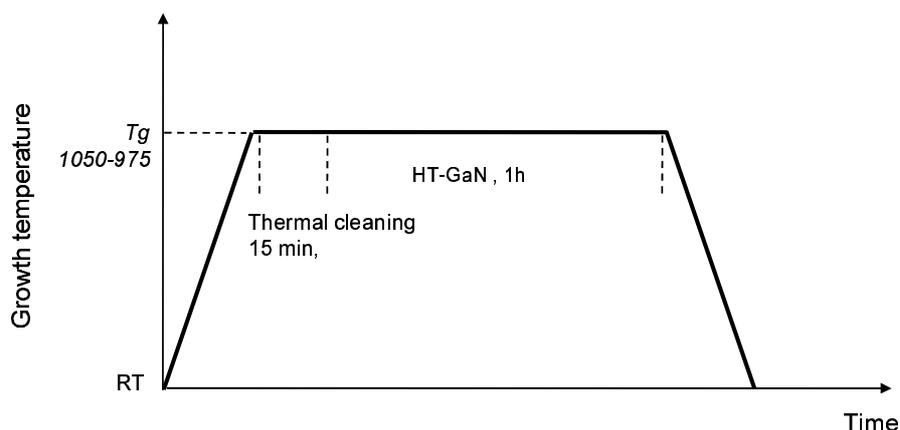


図 2.5 {11 $\bar{2}2$ }GaN ホモエピタキシーの成長手順 .

容器にキャリアガスである H_2 を通してバブリングし，さらに原料容器から出たところで，押し出し用のキャリアガスを合流させて配管内のキャリアガスの速度を大きくし，バルブ操作に俊敏に追従する .

III 族原料と V 族原料のモル流量比 (V/III) は，TMG を $69.3 \mu\text{mol}/\text{min}$ に固定して NH_3 を $3.0 - 4.7 \text{ slm}$ ($134 - 210 \mu\text{mol}/\text{min}$) だけ流すことで， $V/III = 2000, 3000$ と変化させた .

{11 $\bar{2}2$ } 基板は必要なサイズに劈開した後，アセトン，メタノール，純水の順で各 2 分間，超音波洗浄を行った . その後，モリブデンホルダに AlN ベースのセラミックス接着剤で貼り付けて室温で 1 時間だけ自然乾燥後，ホットプレートを用いて 130°C で 2 時間乾燥させたのちリアクタへ搬送した . (0001) と {11 $\bar{2}2$ } それぞれでの GaN ホモエピタキシーを比較するために，2 インチサファイア上にあらかじめ最適条件で GaN を約 $3\mu\text{m}$ だけ MOVPE で成長させたテンプレートを同時に貼り付けて，同時成長を行った .

2.3.2 (0001) 最適条件での成長

{11 $\bar{2}2$ } GaN バルク基板上ホモエピタキシーの成長温度依存性を調べた . (11 $\bar{2}2$) GaN の面間隔が 0.136 nm であるので，ホモエピタキシー後のエピ膜表面の二乗平均粗さが面間隔に匹敵する程度の原子レベルで平坦な表面を得ることを目標とした .

成長手順の概略を図 2.5 に示した . 成長条件は， $V/III = 2000$ (モル流量では $[TMGa] = 69.3 \mu\text{mol}/\text{min}$, $[NH_3] = 134 \text{ mmol}/\text{min}$)，成長炉圧力 300 Torr において，成長温度で 15 分間サーマルクリーニングを行い，その後，GaN を 1 時間だけ緩衝層なしで直接基板上へ反応させた . 上記の条件を用いた場合の c 面の最適温度は 1050°C である . まずはこの c 面最適温度で {11 $\bar{2}2$ } 基板上へのホモエピタキシーを試みた . 結果を図 2.6(a) に示す . 表面はドット状の表面形状をしており，二乗平均粗さは 1.70 nm (スキャン範囲は $600 \text{ nm} \times 600 \text{ nm}$)

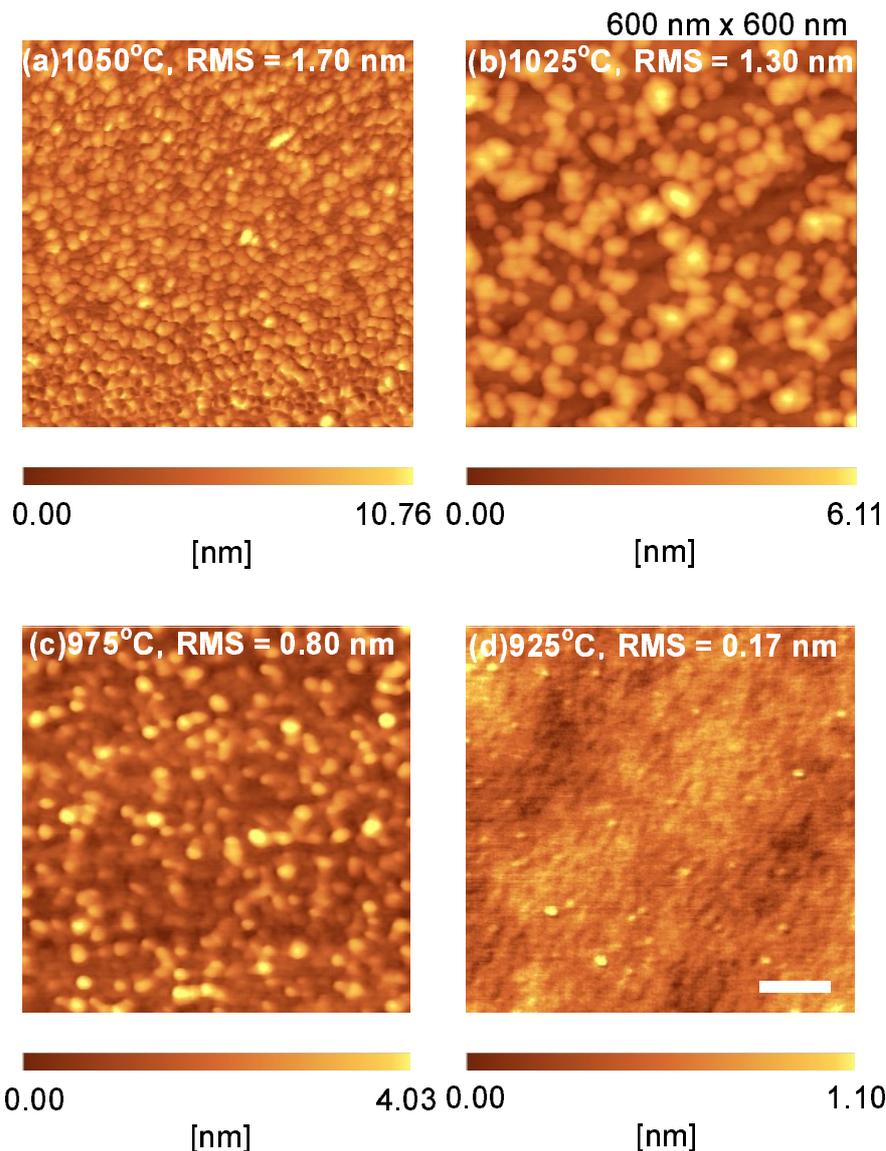


図 2.6 $V/III=2000$ での $\{11\bar{2}2\}$ 上 GaN のホモエピタキシャル膜の表面 AFM 像の成長温度依存性．成長温度は (a)1050°C , (b) 1025°C , (c)975°C , (d)925°C . スケールバーは 100 nm を表す.

であり，基板のそれ (2.65 nm) からは改善しているもののまだ QW を成長するには荒い．

ここで，(0001)GaN 上へ SiO_2 マスクによりストライプを形成し，GaN のファセット構造を作製した報告である文献 [7]，またファセットを形成させたのちに別の成長条件で横方向成長させることで貫通転位密度を制御するファセット制御・選択横方向成長 (Facet-controlled epitaxial lateral overgrowth: FACELO) の報告である文献 [8] によると，(0001) の成長温度よりも低温で $\{11\bar{2}2\}$ ファセットが成長形として形成される．これより，まず成長温度を下げる方向を試みた．

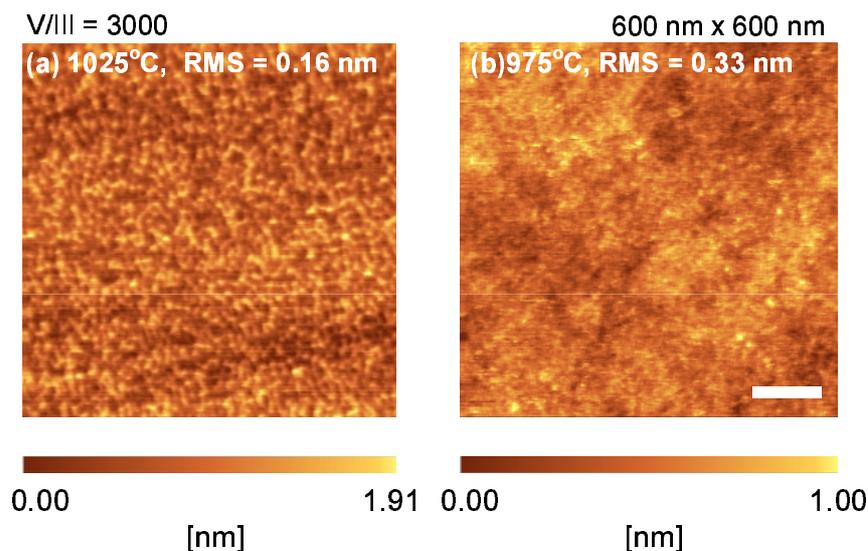


図 2.7 V/III=3000 での $(11\bar{2}2)$ 上 GaN のホモエピタキシャル膜の表面 AFM 像の成長温度依存性 . (a)1025°C , (c)975 °C . スケールバーは 100 nm を表す .

成長温度 (T_g) を 1025, 975, 925°C と変化させたときの GaN ホモエピタキシャル膜の表面 AFM 像を図 2.6(b) – (d) に示す . 温度を下げるに従って表面 RMS ラフネスは , 1.30, 0.80, 0.17 nm と小さくなり , 表面形状はドット状の形状からフラットな表面を有するようになった . $\{11\bar{2}2\}$ の面間隔は 0.136 nm であるので , $T_g = 925^\circ\text{C}$ ではほぼ原子レベルで平坦な表面形状が得られた .

同様に , V/III = 3000 においても成長温度 1025 および 975°C で $(11\bar{2}2)$ 上に成長を行った . 結果を図 2.7 に示す . 1025°C 成長サンプルの表面はドット状のモホロジーを有し , 二乗平均粗さは 0.33 nm , 一方 , 975°C では , 表面のドット状のモホロジーではなく , ほぼフラットであり , 二乗平均粗さは 0.16 nm と , $\{11\bar{2}2\}$ 面間隔と同程度であり原子レベルで平坦である . 以上の結果より , V/III = 2000, $T_g = 925^\circ\text{C}$, V/III = 3000, $T_g = 975^\circ\text{C}$ の表面形状が比較的良好であるといえる .

2.3.3 $(11\bar{2}2)$ と $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$

$\{11\bar{2}2\}$ GaN は , $[0001]$ 配向で成長した Ga 極性 (0001) GaN を (0001) に対して $[1\bar{1}00]$ を回転軸として 58° だけ傾けてカットした場合に $[0001]$ 方向から見える面が $(11\bar{2}2)$, $[000\bar{1}]$ 方向から見える面が $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ である . $\{0001\}$ では , ボンドの性質から Ga 極性 , N 極性で化学的な性質が異なる [9–11] .

そこで , $(11\bar{2}2)$ と $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ で成長特性が異なるか調べた . 成長条件は V/III = 3000, $T_g = 975^\circ\text{C}$ で両面を同時に成長した . 成長後の AFM による観察結果を図 2.8 に示す . 二乗平均

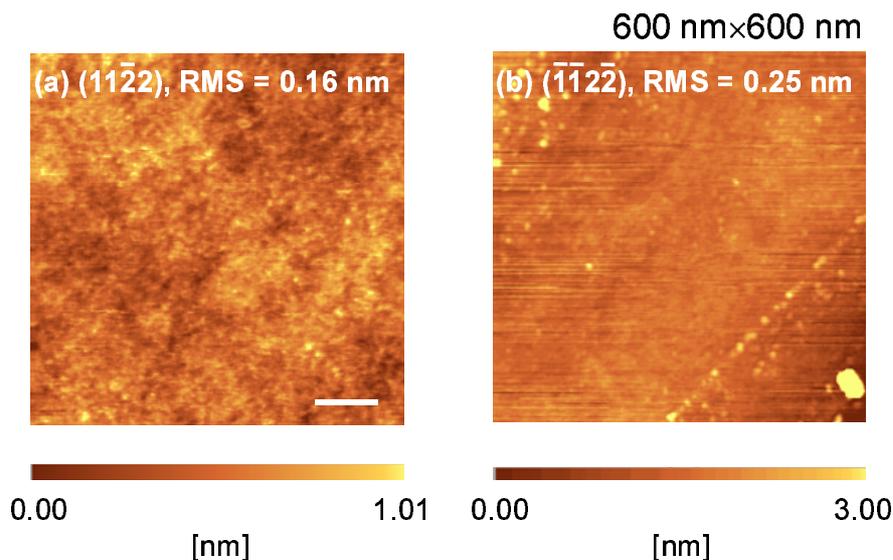


図 2.8 ホモエピタキシャル GaN 表面 AFM 像の $\{11\bar{2}2\}$ 基板面方位依存性 . (a) $(11\bar{2}2)$, (b) $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$. スケールバーは 100 nm を表す .

粗さは , $(11\bar{2}2)$ で 0.16 nm, $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ で 0.25 nm で , 共に原子レベルで平坦である . 従って , 本実験の範囲においてホモエピタキシャル膜の平坦性の面では , $\{11\bar{2}2\}$ の基板の面方位による違いはほとんどないと考えられる .

2.3.4 広範囲での表面モロロジー

今まではサブミクロンの範囲での表面形状を見てきたが , 実用上 LED 等のデバイスに加工した際に表面形状の均一さも重要である . 従って , 本節では AFM による表面観察で原子レベルで平坦な表面構造を有するサンプルにおいて , LED 構造で用いられる程度より広範囲な領域での表面形状をノマルスキー微分干渉顕微鏡で観察した . 表面観察結果を図 2.9 に示す . 観察範囲は $220 \mu\text{m} \times 360 \mu\text{m}$ である . 図中の (a) は $V/\text{III} = 2000$, $T_g = 925^\circ\text{C}$ で $(11\bar{2}2)$ を , (b) は $V/\text{III} = 3000$, $T_g = 975^\circ\text{C}$ で $\{11\bar{2}2\}$ を , (c) は (b) と同成長条件で $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ を示す .

(a) は表面にくぼみもしくは凸部 (ヒロック) とみられる欠陥が多数確認された . 一方 , (b) ではほぼ欠陥のないフラットな表面が確認でき , (c) においては欠陥と考えられるものは確認できるが (a) に比べると非常に少ない . 以上より , $\{11\bar{2}2\}$ に最適な成長条件は , $V/\text{III} = 3000$, $T_g = 975^\circ\text{C}$ ($(0001)\text{GaN}$ の最適温度 1050°C よりも 75°C だけ低温) と判断した . また , 広範囲の表面観察結果からも , 本実験の範囲では $\{11\bar{2}2\}$ の面方位による成長表面の違いはほとんどないと考えられる .

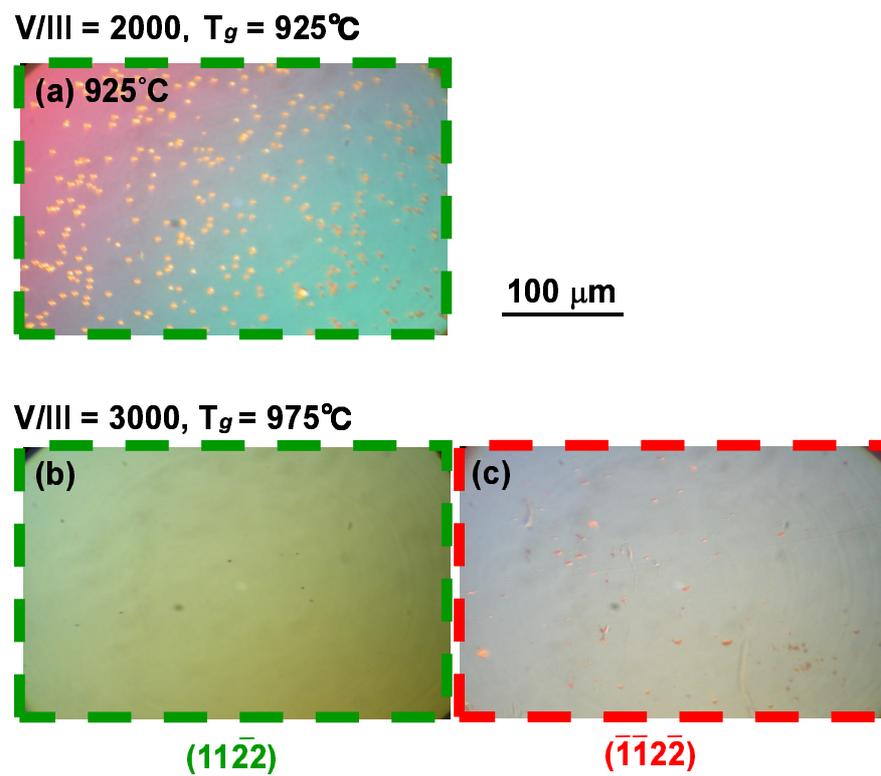


図 2.9 $\{11\bar{2}2\}$ ホモエピタキシャル GaN 膜のノマルスキー微分干渉顕微鏡像 . (a) $V/III = 2000, T_g = 925^\circ\text{C}$ で ($11\bar{2}2$) , (b) $V/III = 3000, T_g = 975^\circ\text{C}$ で $\{11\bar{2}2\}$, (c) (b) と同成長条件で ($\bar{1}12\bar{2}$) を示す .

2.3.5 成長速度

成長メカニズムを考察するために、本節では膜厚について評価を行う。膜厚の測定にはサンプルを劈開して断面を走査型電子顕微鏡 (Scanning electron microscope: SEM) にて観察した。また、SEM 観察において基板と GaN エピタキシャル層の界面を鮮明にする手段として、GaN を成長する前に、AlN を 0.8 nm 分だけ成長した。まず、AlN 層を挿入するかどうかで膜厚が異なるかどうかを調べた。AlN 層を挿入した場合の断面 SEM 観察結果の例を図 2.10 に示す。

図 2.10 (a) の破線で囲んだ部分をサンプル表面から内部方向へ明度をプロットしたものが、図 2.10(b) である。サンプルの組成によって 2 次電子の放出度合が異なり、ディテクタでカウントされるサンプルからの 2 次電子数に応じて画像処理を行うことで SEM 画像が得られる。従って、GaN エピタキシャル膜と GaN 基板の間の AlN 層で 2 次電子放出数が異なるため、GaN 基板とエピタキシャル層の間にはっきりとしたコントラストが見られる。この図からエピタキシャル層は約 $2.1 \mu\text{m}$ であることがわかる。

$T_g = 975^\circ\text{C}$ において、 $(11\bar{2}2)$ 、 (0001) 、 $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ の 3 パターンで AlN 層を成長したものとしていないものでそれぞれ膜厚を確認した。AlN 層あり、なしの順に、 (0001) で $2.4, 2.6 \mu\text{m}$ 、 $(11\bar{2}2)$ で $2.1, 2.1 \mu\text{m}$ 、 $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ で $2.1, 2.5 \mu\text{m}$ であり成長速度は AlN の有無に対してほぼ同程度の値をとっている (最大 15% の誤差)。

そこで、本節では SEM での膜厚確認の信頼性を考えて AlN 層を挿入した場合と AlN 膜なしのサンプルの膜厚のデータをすべて同等に取り入れた。

$V/\text{III} = 3000$ 、 $T_g = 950, 975, 1025, 1050^\circ\text{C}$ 成長の $\{11\bar{2}2\}$ ホモエピタキシーのサンプルと、 $T_g = 940, 965, 975, 1050^\circ\text{C}$ で成長した (0001) GaN 上へのホモエピタキシーサンプルの膜厚を横軸を $1/T_g$ としたアレニウスプロットを図 2.11 に示す。まず、図 2.11 より、

- (1) 約 975°C よりも低温では (0001) の成長速度が一番速い、
- (2) 低温から $975\text{-}1000^\circ\text{C}$ 付近までは、 $\{11\bar{2}2\}$ の成長速度は (0001) よりも急激に増加している、
- (3) $975\text{-}1000^\circ\text{C}$ 付近で $\{11\bar{2}2\}$ の成長速度は (0001) に匹敵するようになる、

ことがわかる。つまり、約 975°C 以下の領域では、 $\{11\bar{2}2\}$ は表面反応律速領域である一方、 (0001) では拡散律速領域である。これは低温では $\{11\bar{2}2\}$ の反応速度が (0001) に比べて低いことになる。

この理由は、成長最表面で未結合手 (Danglingbond: DB) を出す原子とその密度が関わっていると考えられる [12]。 $\{11\bar{2}2\}$ は終端する原子の可能性として、N と Ga の両方の可能性がある。 $(11\bar{2}2)$ が N で終端すると DB は N から 3 本表面から出た状態であるのに対し、

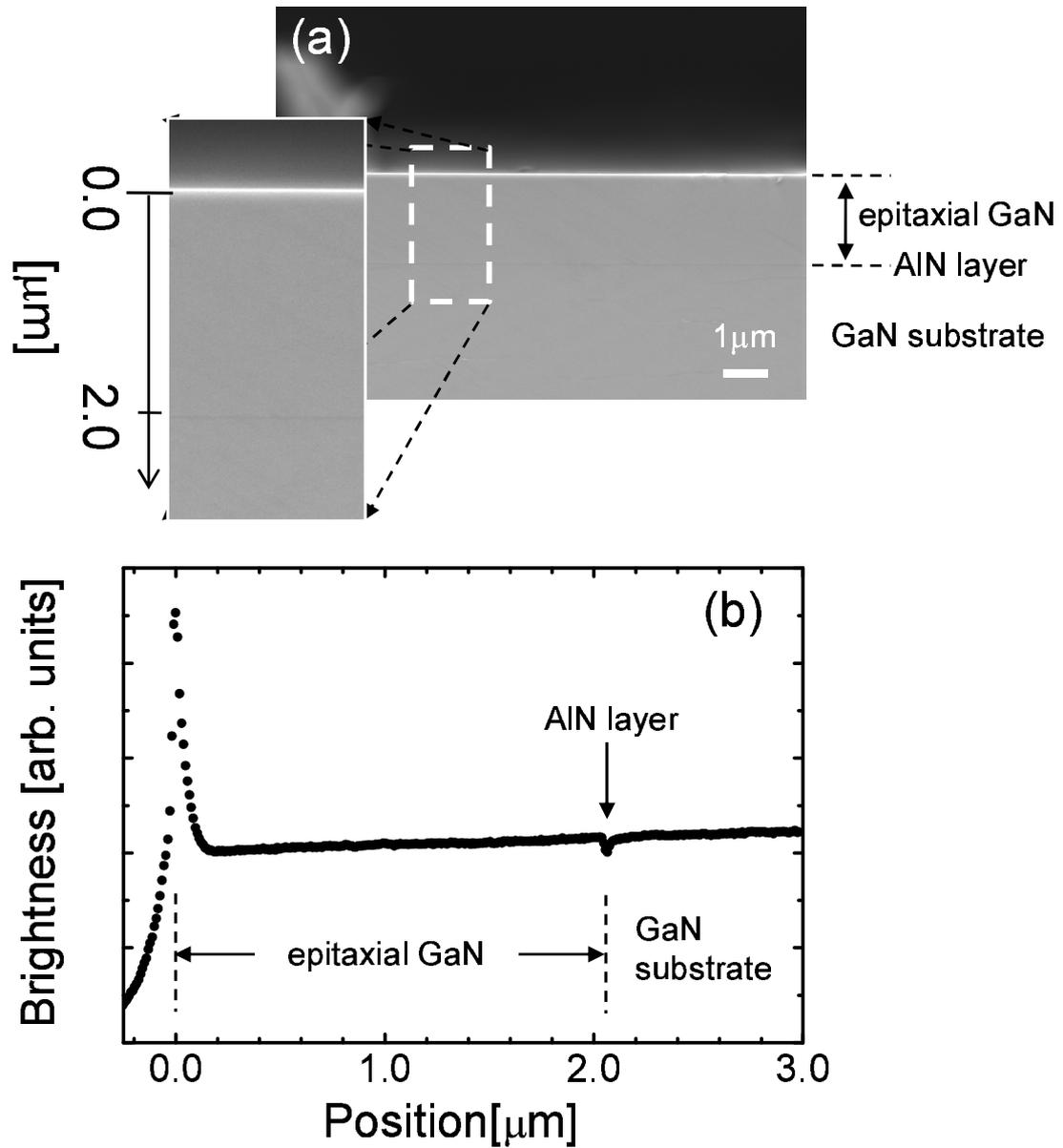


図 2.10 (a) SEM による断面測定結果, (b) 明度の場所依存性. SEM 像の明度値を図 (a) の破線で囲んだ部分において表面方向から 1 ピクセルずつ水平方向へ平均した値. サンプル最表面を原点としてある.

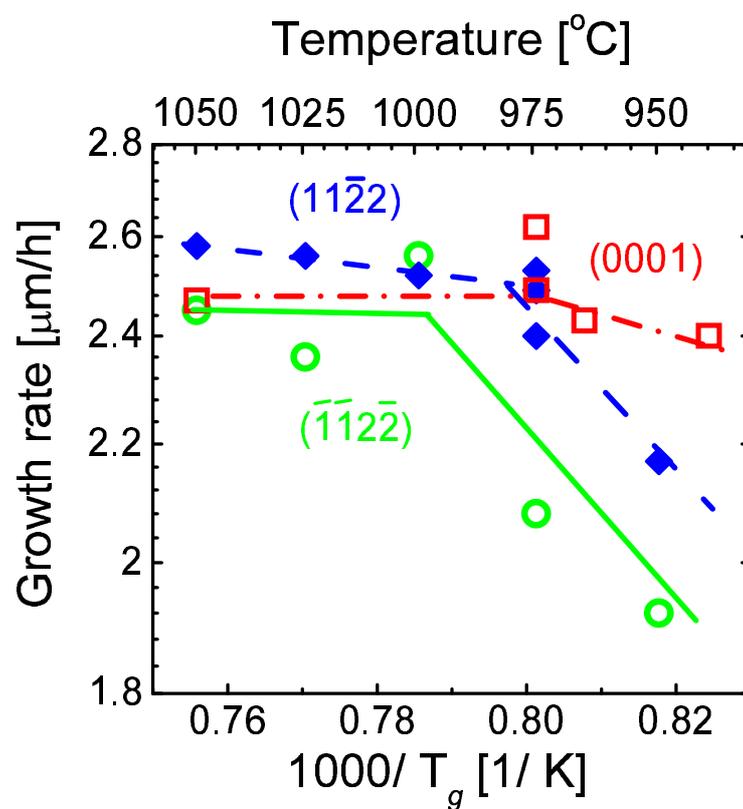


図 2.11 成長速度と成長温度の関係

($\bar{1}\bar{1}2\bar{2}$) では N からは 1 本の DB が出ており DB 密度差は 3 倍異なる。N に Ga が結合する際に、NH₃ の濃度に敏感なのは (11 $\bar{2}2$) の方だと考えられる。文献 [13] では、非極性面上のファセット構造の選択成長において、成長するファセット構造の平衡形 (非常に成長速度を落として疑似的に熱平衡としている) を、表面エネルギーの観点からウルフの作図を行い議論している。本研究では、非熱平衡と考えられるため成長形を考えるべきであるが、各面の成長速度も平衡形での議論と類似するところがある [14]。

成長表面を微視的にみると、成長表面に {11 $\bar{2}2$ } と (0001) の微小なファセットが存在するときに、低温では {11 $\bar{2}2$ } の成長速度は (0001) よりも小さいので、(0001) が成長とともになくなっていく、{11 $\bar{2}2$ } が支配的になると考えられる。また、高温では、{11 $\bar{2}2$ } の成長速度が (0001) に匹敵するようになり、さらに {1 $\bar{1}00$ } の成長速度も大きくなっていくために (0001) が支配的になる。(0001) の成長温度での横方向成長技術 [8] でもあるように (0001) が最終的に安定に露出することと一致していると考えられる。また、{11 $\bar{2}2$ } 成長には (0001) に比べて高い V/III が必要な理由について述べる。NH₃ は熱平衡状態では 300°C で十分分解されると言われているが、NH₃ 分解触媒が存在しない結晶成長等の場合、分解速度が成長条件や装置に依存するといわれている [15, 16]。本実験では NH₃ の分解は約 300-500°C 付近から始まり 1000°C 付近でもまだ完全に分解されないと考えられる。従って、成長温度を下げると、NH₃ の分解が少なくなるので NH₃ 流量を上げなければならず V/III の増加がみられるといえる [17]。

以上より、最適化を行った結果を纏める。

- {11 $\bar{2}2$ } では V/III = 3000, 975°C, で原子レベルで平坦な表面が得られた。
- (11 $\bar{2}2$) と ($\bar{1}\bar{1}2\bar{2}$) の違いはほとんど見受けられなかった。
- この最適化された成長条件での表面 AFM 像による二乗平均粗さは 0.16 nm であり、{11 $\bar{2}2$ } の面間隔 (0.136 nm) を考えると原子レベルで平坦であると言える。
- GaN マイクロファセット構造の成長で、低温の場合に {11 $\bar{2}2$ } ファセットが安定面として形成されやすいが、それと一致する結果である。[7, 8]

2.3.6 光学的特性

{11 $\bar{2}2$ }GaN ホモエピタキシャル膜の光学的特性を評価した。また、得られた膜の PL および反射スペクトルを低温 (10 K) で測定することで光学的特性を評価した。また、反射測定に関しては光の電界方向が [1 $\bar{1}00$] ([0001] に垂直) と [$\bar{1}\bar{1}23$] の場合の 2 通りに関して測定を行った。

励起には He-Cd レーザ (325 nm) を用い、励起パワー密度を 1.27 W/cm² とした。PL においては、サンプルに対して約 45 度入射でサンプル表面に垂直方向からシグナルを検出、反

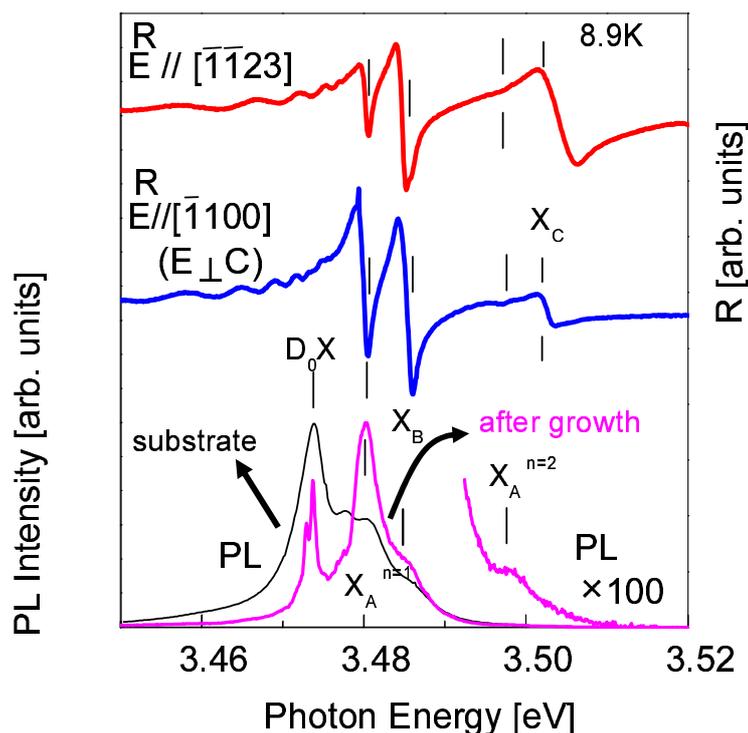


図 2.12 $(11\bar{2}2)$ GaN ホモエピタキシャル膜の PL および反射測定結果 .

射測定においてはサンプルに励起光をほぼ垂直にレーザを入射したのち、後方反射の配置でシグナルを検出した。シグナル検出には、受光側に設置した 1 m 分光器で分光し、光電子増倍管で受光した。波長分解能は約 0.08 nm である*2。

結果を図 2.12 に示す。まず図の上半分の反射スペクトルを見ると A, B, C の各励起子の基底状態による遷移が、それぞれ 3.4802, 3.4848, 3.4977 eV に明瞭に観察された (図面上ではそれぞれ $X_A^{n=1}$, $X_B^{n=1}$, $X_C^{n=1}$ と表示)。これらの値は GaN バルク結晶における報告値 ([18, 19]) とほぼ一致しており、ホモエピタキシャル膜はほぼ無歪みであると考えられる。また、3.4977 eV の弱いシグナル ($X_A^{n=2}$) は、A 励起子の $n = 2$ の状態によるものと考えられる。二つの偏光方向のスペクトルを比較すると A 励起子のシグナルは $[1\bar{1}00]$ 方向で強く $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向で弱いことがわかる。また、 $X_C^{n=1}$ はこれと逆の傾向を示している。これは $(11\bar{2}2)$ 面内の原子配列の異方性により説明できると考えられる (第 5 章で述べる)。

*2 本測定の分解能について。本実験で用いた 1 m 分光器の分解能を導くと、1m 分光器の逆分散は 1200 gr/mm (ブレイズ波長 = 500 nm) のグレーティングのときに 8\AA である。スリットは 10 μm を用いたので、このときの波長分解能は、

$$\Delta\lambda = D \text{ nm/mm} \times \text{slitwidth mm} = 0.8 \times 10 \times 10^{-3} (10 \mu\text{m}) = 0.008\text{nm} = 0.08 \text{\AA} \quad (2.4)$$

よって、350 nm 近傍では、350.000 nm で 3.5424000 eV, 350.008 nm では 3.5423190 eV であり、エネルギー分解能は 0.08 meV となる。

次に、図 2.12 の下半分の PL 測定結果をみると自由 A 励起子発光 ($X_A^{n=1}$) が支配的であり、その他には $X_A^{n=2}$, $X_B^{n=1}$ の自由励起子発光と中性ドナー束縛励起子 (D_0, X) 発光が観察された。 $X_A^{n=1}$ の強度が (D_0, X) よりも強いことから、ホモエピタキシャル膜中のドナー不純物が少ないことがわかる。 (D_0, X) は、3.4738 eV と 3.4729 eV の 2 本の鋭い発光からなり、これらの強度比は成長条件に依存することから、膜中に複数のドナー種が含まれているものと考えられる。また、ローレンツ分布を仮定して (D_0, X) からの発光スペクトルをフィットすると、FWHM は 0.6 meV と求められた。この (D_0, X) の FWHM が報告されている高品質な GaN バルク結晶と同程度であり [18, 19], $X_A^{n=1}$ が支配的であることも考慮すると、ホモエピタキシャル膜は優れた光学的特性を有することがわかった。光学異方性については、後の第 5 章において詳細に議論する。

2.4 まとめ

本章では $\{11\bar{2}2\}$ 基板上へのホモエピタキシーに関して議論した。そして以下の結果を得た。 $\{11\bar{2}2\}$ GaN の成長条件の最適化の結果、成長炉圧力 300 Torr において、 $V/III = 3000$, 成長温度は (0001) での最適温度よりも約 75 度低温で表面の二乗平均粗さは 0.16 nm と原子レベルで平坦なホモエピタキシャル膜を実現できた。また、低温での PL 測定により、自由励起子発光が支配的であることが分かり、光学的にも非常にすぐれた特性を示している。

参考文献

- [1] B. D. Cullity, *Elements of X-ray Diffraction* (Addison-Wesley, Massachusetts, 1956).
- [2] C. G. Dunn, and E. F. Koch, *Acta Metallurgica* **5**, 548-554 (1957).
- [3] R. Chierchia, T. Böttcher, Heinke, S. Einfeldt, S. Figge, and D. Hommel, *Journal of Applied Physics* **93**, 8918-8925 (2003).
- [4] B. Heying, X. H. Wu, S. Keller, Y. Li, D. Kopolnek, B. P. Keller, S. P. Denbaars, and J. S. Speck, *Applied Physics Letters* **68**, 643-645 (1996).
- [5] Y. Chen, T. Takeuchi, H. Amano, I. Akasaki, N. Yamada, Y. Kaneko, and S. Y. Wang, *Applied Physics Letters* **72**, 710-712 (1998).
- [6] J. C. Brooksby, J. Mei, and F. A. Ponce, *Applied Physics Letters* **90**, 231901 (2007).
- [7] H. Marchand, J. P. Ibbetson, P.T. Fini, S. Keller, S.P. DenBaars, J.S. Speck, and U.K. Mishra, *Journal of Crystal Growth* **195**, 328-332 (1998).
- [8] K. Hiramatsu, K. Nishiyama, M. Onishi, H. Mizutani, M. Narukawa, A. Motogaito, H. Miyake, Y. Iyechika, and T. Maeda, *Journal of Crystal Growth* **221**, 316-326 (2000).
- [9] J. L. Rouviere, J. L. Weyher, M. Seelmann-Eggebert, and S. Porowski, *Applied Physics Letters* **73**, 668-670 (1998).
- [10] D. Li, M. Sumiya, K. Yoshimura, Y. Suzuki, Y. Fukuda, and S. Fuke, *Physica Status Solidi (a)* **180**, 357-362 (2000).
- [11] D. Li, M. Sumiya, S. Fuke, D. Yang, D. Que, Y. Suzuki, and Y. Fukuda, *Applied Physics Letters* **90**, 4219-4222 (2001).
- [12] K. Hiramatsu, K. Nishiyama, A. Motogaito, H. Miyake, Y. Iyechika, and T. Maeda, *Physica Status Solidi (a)* **176**, 535-543 (1999).
- [13] A. Hirai, E. C. Young, S. Nakamura, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *International Workshop on Nitride semiconductors* **2008**, Th2c-E-6, (2008).
- [14] 大川 章哉 著 , 結晶成長 , (裳華房 , 1977)
- [15] V. S. Ban, *Journal of Electrochemical Society* **119**, 761-765 (1972).

-
- [16] A. Koukitsu, T. Taki, N. Takahashi, and H. Seki, *Journal of Crystal Growth* **197**, 99-105 (1999).
- [17] A. Koukitsu, N. Takahashi, and H. Seki, *Japanese Journal of Applied Physics* **36**, L1136-L1138 (1997).
- [18] K. Torii, T. Deguchi, T. Sota, K. Suzuki, S. Chichibu, and S. Nakamura, *Physical Review B* **60**, 4723-4730 (1999).
- [19] B. J. Skromme, K. C. Palle, C. D. Poweleit, H. Yamane, M. Aoki, and F. J. DiSalvo, *Applied Physics Letters* **81**, 3765-3767 (2002).

第 3 章

{11 $\bar{2}2$ }InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW の作製と基本特性

3.1 はじめに

第 1 章で述べたように, {11 $\bar{2}2$ }InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW を活性層とする発光構造は従来の (0001) に比べて内部電界が低減していることが示唆されているが, 現在までは優れた結晶性を有する InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW の報告がなかった. 本章では, 原子レベルで平坦化された {11 $\bar{2}2$ } Ga \bar{N} 上に MOVPE で InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW 構造の成長条件の最適化および特性評価を行ったので以下に纏める.

3.2 成長条件

成長方法は下地のホモエピタキシーと同様 MOVPE を用いて, 図 3.1 に示す成長手順のように, ホモエピタキシャル Ga \bar{N} 成長後, キャリヤガスを H $_2$ から N $_2$ に切り替え, InGa \bar{N} の成長温度である $T_g = 800^\circ\text{C}$ 程度まで温度を下げた. その後 10 分間アニールしたのち, InGa \bar{N} 量子構造の成長を行った. InGa \bar{N} の成長においては, $[\text{TMGa}] = 12.9 \mu\text{mol}/\text{min}$, $[\text{TMIIn}] = 19.4 \mu\text{mol}/\text{min}$ ($[\text{TMIIn}]/[\text{TMGa}] = 0.6$), $[\text{NH}_3] = 65.5\text{-}268 \text{ mmol}/\text{min}$ で V/III = 3000-8295 の条件を用い, 成長炉の圧力は 300Torr とした. InGa \bar{N} 成長後はアンモニアを流しながら降温し, 500 度でアンモニアを OFF した. 作製した構造の概略を図 3.2 に示した.

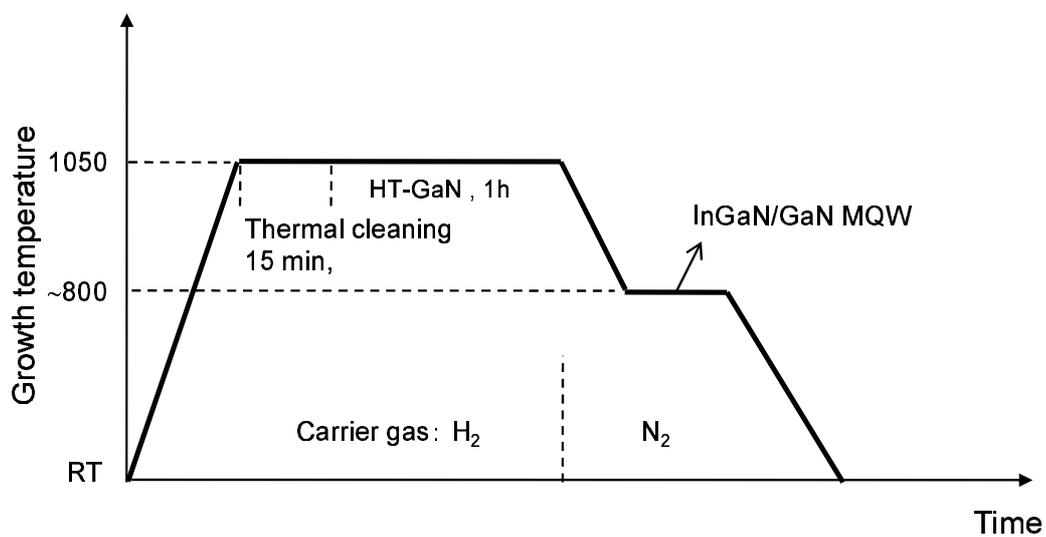


図 3.1 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW 成長手順 .

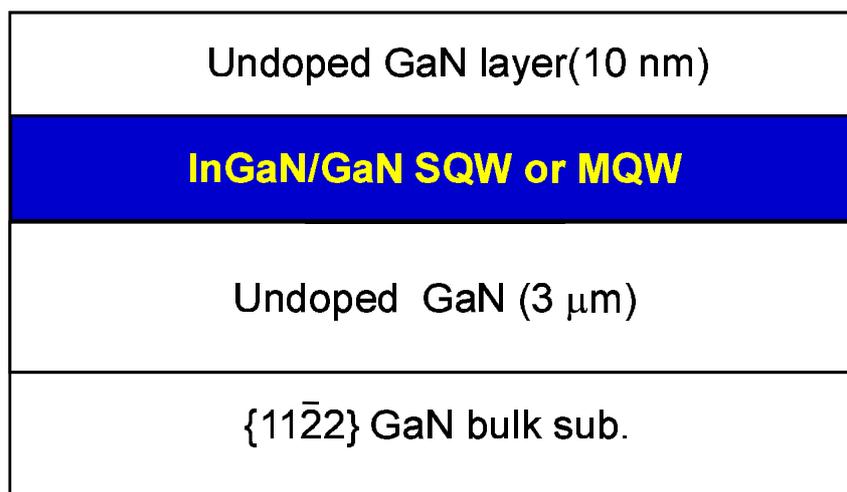


図 3.2 InGaN の成長構造 .

3.2.1 V/III 依存性

まずは, V/III 依存性を調べるために, $T_g = 800^\circ\text{C}$ において, (11 $\bar{2}$ 2) 基板上へ 10 周期の InGa $\bar{\text{N}}$ /Ga $\bar{\text{N}}$ 多重量子井戸 (Multiple quantum well: MQW) を作製した. ただし, V/III = 5500 で, (0001) 上での構造が InGa $\bar{\text{N}}$ (3 nm)/Ga $\bar{\text{N}}$ (10 nm) となる III 族原料流量 [TMGa] = 12.9 $\mu\text{mol}/\text{min}$, [TMIn] = 19.4 $\mu\text{mol}/\text{min}$ ([TMIn]/[TMGa] = 0.6) を用い, アンモニア流量を変化させることで V/III を 3000, 4000, 5500, 8295 とした. 作製した試料の表面 AFM 像を図 3.3 に示す. 測定範囲は 600 nm \times 600 nm である. この測定範囲での二乗平均粗さ,

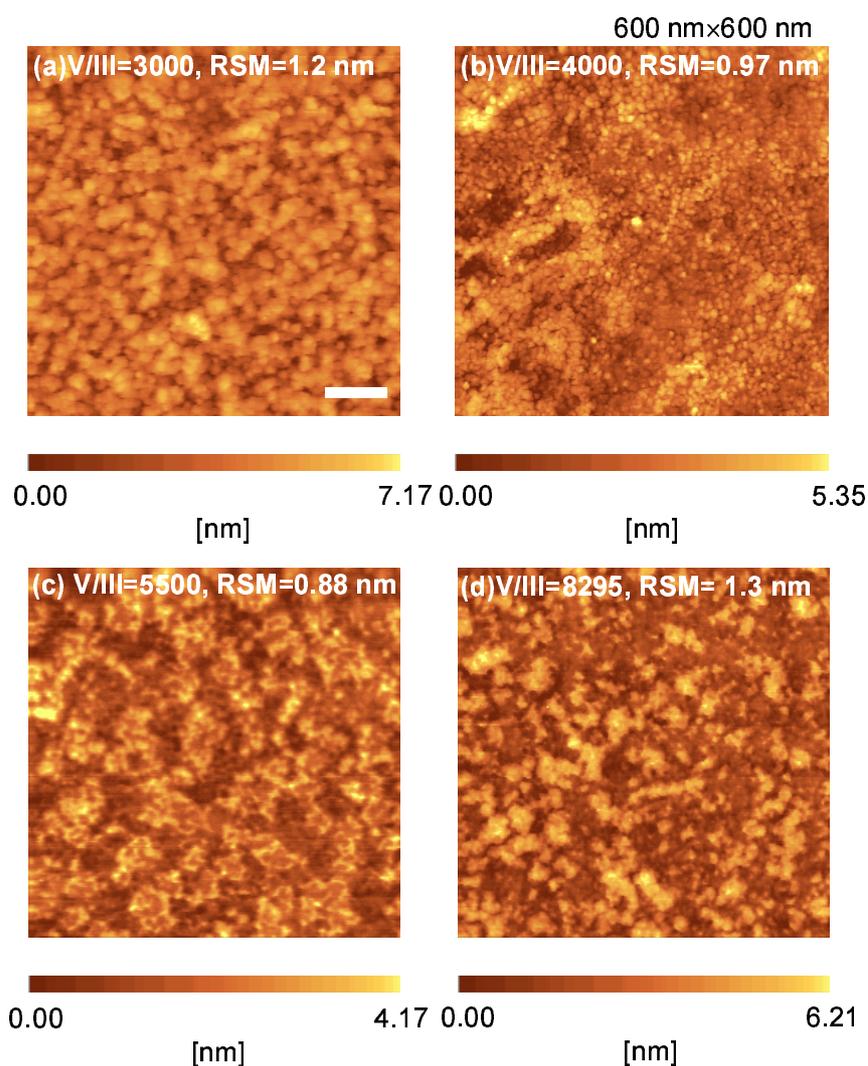


図 3.3 10 周期 InGa $\bar{\text{N}}$ /Ga $\bar{\text{N}}$ MQW の表面 AFM 像の V/III 依存性. 観察領域は 600 nm \times 600 nm で, スケールバーは 100 nm を表す.

MQW の長周期, In 組成見積もりを表 3.1 に示す. ただし, In 組成の見積もり方法は以下の

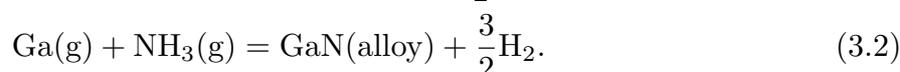
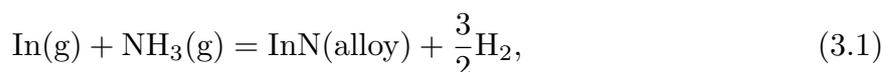
ようである．ここで，In 組成を求めるためにあらかじめ，ある In 組成での内部電界を求めておき，ある In 組成とある InGa_N / Ga_N QW の膜厚を設定した時にポテンシャルのプロファイルが決まる．そのポテンシャルプロファイルに対して，シュレディンガー方程式を近似的に解き，ある井戸層から十分離れた点で固有関数（波動関数）がゼロという初期値のもとある適当な固有値（量子井戸におけるエネルギー準位）を与えて，数値的に解いたとき，井戸層から十分離れた点で固有関数がゼロに近づけばその固有値が求める量子エネルギー準位となる．

後の節で述べるように XRD $2\theta/\omega$ スキャンを行い，InGa_N/Ga_N MQW の周期構造に起因するサテライトピークの間隔より周期構造の長周期を求める．InGa_N や Ga_N の膜厚を変化させて成長速度を見積もる．そして次に，室温での PL ピーク位置と膜厚から In 組成を逆算した．

表 3.1 二乗平均粗さ，MQW 長周期，In 組成の V/III 依存性

V/III	3000	4000	5000	8295
二乗平均粗さ [nm](600 nm 四方)	1.2	0.97	0.80	1.3
MQW 規格化長周期 [nm]	21.9	18.3	14.0	8.6
In 組成見積もり [%]	18	16	10	8

二乗平均粗さはすべて同程度であり，以降の成長では，これらの中で比較的二乗平均粗さが小さい V/III = 4000, 5500 を主に用いた．また，長周期は V/III = 8295 では 8.6 nm で V/III が小さい程大きくなり，V/III = 3000 では 21.9 nm となっている．ここで V/III が小さい方が In 組成が小さくなっている．この原因を以下のような熱力学的計算の文献を参考に述べる．InGa_N 混晶の生成反応は，以下のものである [1–5]，



ただし，InN(alloy), GaN(alloy) は In_xGa_{1-x}N 混晶中の 2 元化合物を表す．反応炉内の水素分圧が大きいほど，In の析出量が小さくなるのが，文献 [1], [2], [3] において示されている．NH₃ は熱平衡状態では 300°C で十分分解されると言われているが，結晶成長等の触媒がない状況では NH₃ の分解速度は遅く，成長条件や装置に依存するとされる [6]．供給される NH₃ 分圧が増加すると H₂ 分圧も増加し，反応式 (3.1), (3.2) は左へ進む [4, 5]．このとき，平衡定数の関係から，H₂ 分圧が増加することにより，InGa_N 混晶中の InN の分解反応が，GaN の分解よりもおこり易くなる．その結果，V/III が増えるほど In 組成が減少すると考えられる．

3.2.2 成長速度

V/III = 4000 において，成長速度を見積もるために $T_g = 850^\circ\text{C}$ で，InGaN/GaN MQW 構造の InGaN 膜厚を変化させた一連のサンプルの XRD $2\theta/\omega$ スキャンにより InGaN/GaN MQW の長周期の変化を測定することで InGaN および GaN の膜厚を見積もった．XRD $2\theta/\omega$ スキャン測定結果を図 3.4 に示す．各サンプルともに $2\theta = 69.10^\circ$ に GaN からのピークが確認でき，InGaN/GaN MQW の周期構造に起因するサテライトピークも明瞭に確認できる．このサテライトピークの角度 (2θ) とピークの次数を用いて， $\sin \theta - n$ の関係をプロットするとその傾きは $a = \frac{\lambda}{2L}$ となるので長周期 L が求まる．ここで λ は $\text{Cu K}\alpha_1 = 1.540562 \text{ \AA}$ である．そして， L と InGaN 成長時間との関係を図 3.5 にプロットした．また，図 3.5 中の点線はこれらのプロットの 1 次式 ($y = ax + b$) で最少二乗フィットした結果である．ここで，直線の傾き a は InGaN の成長速度を， y 切片の b は GaN 障壁層の厚さをよく表すと考えられる．フィットの結果より InGaN 成長速度は 0.21 nm/s ，GaN 障壁層成長速度は $14.4 \text{ nm}/100\text{s}$ より 0.14 nm/s と見積もられた．

同様に V/III = 5500 においては， $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ 上で用いて同様の実験を行った．InGaN 成長時間を 6, 12, 18 s とし，GaN の成長時間を 100 s とした．ただし， $T_g = 810^\circ\text{C}$ とした．また，同じく L と InGaN 成長時間の関係を図 3.6(a) に示す．InGaN 成長速度は 0.138 nm/s ，GaN 障壁層の成長速度は 0.12 nm/s となった．さらに，同成長条件で InGaN 成長時間を 6, 18, 24s とし， $T_g = 785^\circ\text{C}$ とした時の L と InGaN 成長時間の関係を図 3.6(b) に示す．InGaN 成長速度は 0.17 nm/s ，GaN 障壁層は 0.11 nm/s となった．

GaN の生成反応にとっては 850°C 付近以下の温度は表面反応律速の領域であり，成長温度 T_g が下がると GaN の成長速度は下がる [7]．しかし，InN にとっては寄生付着・脱理律速領域と考えられるので温度が下がるほど InN の生成は促進される．これは成長温度を 810°C から 785°C に下げることによって GaN の成長速度は下がっていることからもうかがえる．しかし InGaN の成長速度は逆の傾向を示している．つまり，温度を下げると GaN は成長しにくくなるが，InGaN 中の In 組成はより入りやすくなり，結果的に InGaN 膜厚が増加しているものと考えられる．以下では，5 周期の InGaN/GaN MQW を V/III = 5500，成長温度 850°C ， 810°C で作製したサンプルについて記す．

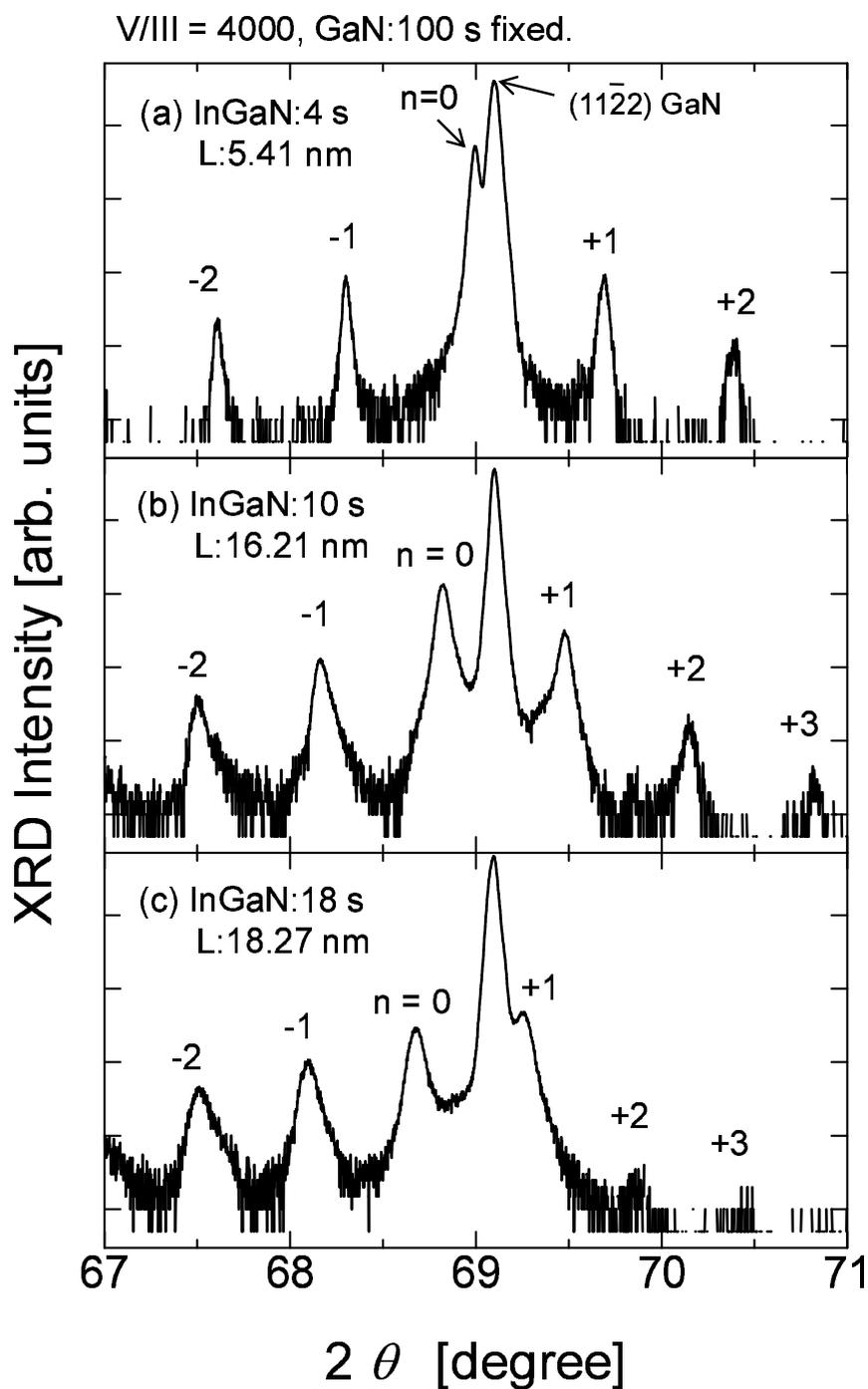


図 3.4 V/III = 4000, $T_g = 850^\circ\text{C}$ 成長 InGaN/GaN QMW の XRD $2\theta/\omega$ スキャン. 成長時間を GaN=100 s, InGaN を (a) 4 s, (b) 10 s, (c) 18s と設定. L は MQW の長周期を表す.

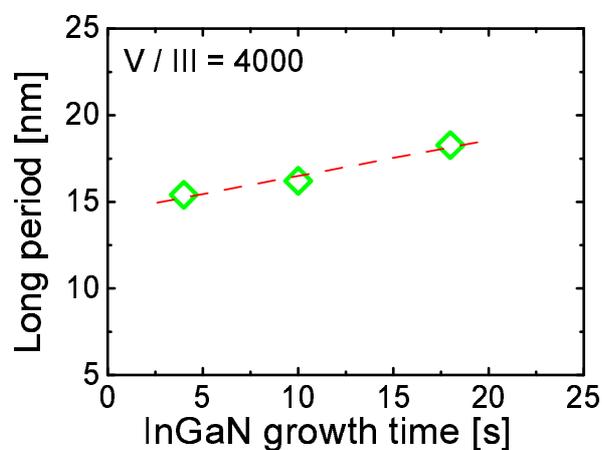


図 3.5 $V/III=4000, T_g = 850^\circ\text{C}$ 成長 $(11\bar{2}2)$ InGaN/GaN MQW の長周期 L と InGaN 成長時間の関係. 点線は線形最少二乗フィット結果である.

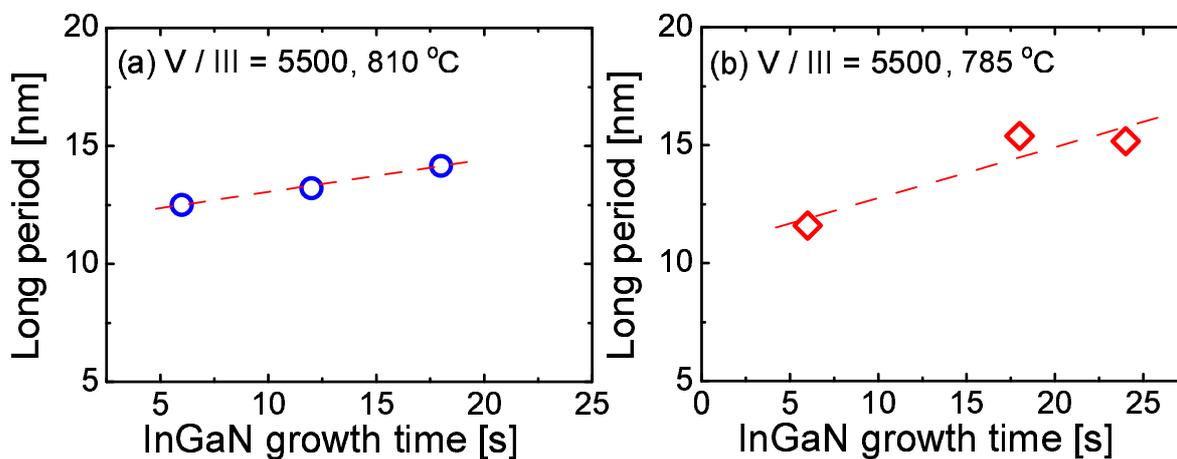


図 3.6 $V/III=5500, (\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ 面 InGaN/GaN MQW の長周期 L と InGaN 成長時間の関係 (a) $T_g = 810^\circ\text{C}$, (b) $T_g = 785^\circ\text{C}$. 点線は線形最少二乗フィット結果である.

3.3 構造評価

3.3.1 逆格子マッピング

測定条件

$\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN MQW がコヒーレントに成長しているかなどの構造評価を行うために XRD 逆格子マッピング (Reciprocal space mapping: RSM) 測定を行った。サンプルについては、5 周期の $(11\bar{2}2)$ InGaN(3.4 nm)/GaN(11.3 nm) MQW で PL 発光ピークエネルギーから見積もった In 組成は 17% である。

逆格子空間は、長さの逆の次元を持つ逆格子ベクトルで表される空間であり、実空間の周期性が反映されている。原点と (hkl) の逆格子点を結ぶ逆格子ベクトル K_{hkl} は (hkl) と直交し、そのベクトルの長さは (hkl) の面間隔の逆数である。したがって、ある結晶面の逆格子点を評価するとその面の傾きや面間隔が評価できる。また、あるエピタキシャル膜が基板に対してコヒーレントに成長しているかどうかの評価できる。XRD 測定において実空間上で $2\theta/\omega$ スキャンを行うと逆格子空間では原点から放射状に、実空間で ω スキャンを行うと逆格子空間ではある格子点を原点周りにスキャンすることに対応する。本測定でも Cu-K $_{\alpha 1}$ ($\lambda = 1.540562 \text{ \AA}$) 線を測定に用いた。

本研究では逆格子空間上で $[1\bar{1}00]$ を q_x 軸、 $[\bar{1}\bar{1}23]$ を q_y 軸方向、 $(11\bar{2}2)$ に垂直上向きの方角を q_z 軸とおいた。 $(11\bar{2}2)$ GaN とその上に成長したエピタキシャル膜 A なす角は、 A の逆格子点と原点を結ぶ直線と q_z 軸がなす角に対応する。測定点は以下の点で RSM 空間マッピング測定を行った。

- (1) $(11\bar{2}2)$: q_y が 0 のときの q_x - q_z 平面内
- (2) $(02\bar{2}2)$: q_y - q_z 平面内で q_y が負の範囲
- (3) $(11\bar{2}2)$: q_x が 0 のときの q_y - q_z 平面内
- (4) $(11\bar{2}4)$: q_y - q_z 平面内で q_y が負の範囲
- (5) $(22\bar{4}0)$: q_y - q_z 平面内で q_y が正の範囲

$\{11\bar{2}2\}$ は $[1\bar{1}00]$ 方向と、 $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向で原子配列に異方性があるので、 q_y - q_z 平面内では q_y が正と負で原子配列は非対称であり、測定条件 (4) と (5) を測定した。また、 $[1\bar{1}00]$ 方向の配列は $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向に対称であるので q_x - q_z 平面内で q_x が正と負の領域で対象であるので、 q_x が負の領域の測定条件 (2) のみを行った。

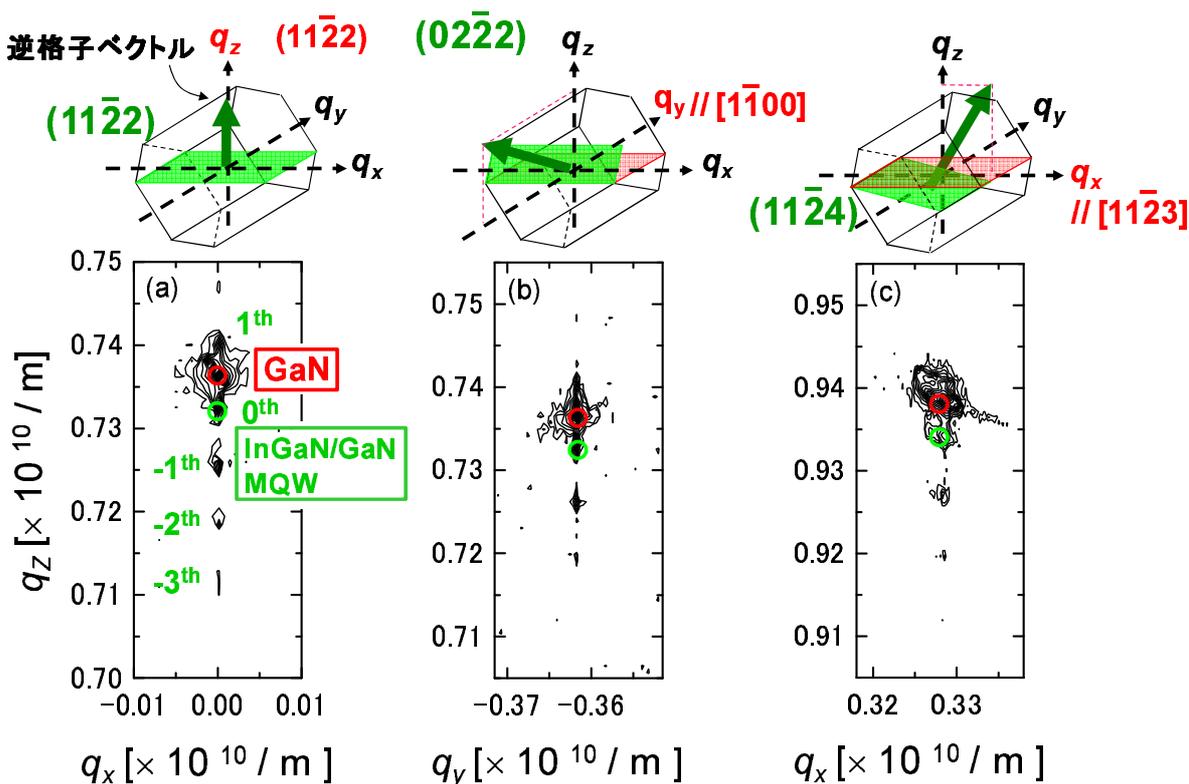


図 3.7 (11 $\bar{2}2$) InGaN/GaN MQW の RSM 測定結果 (a) q_x - q_z 平面内 (11 $\bar{2}2$) 面近傍, (b) q_y - q_z 平面内 (02 $\bar{2}2$) 面近傍, (c) q_x - q_z 平面内 (11 $\bar{2}4$) 面近傍

測定結果

測定条件 (1) で行った逆格子マッピング測定結果を図 3.7(a) に示す。(11 $\bar{2}2$) GaN のピークと (11 $\bar{2}2$) InGaN/GaN MQW のサテライトピークが確認できる。InGaN/GaN MQW に起因する $n = 0$ 次のピークは InGaN QW と GaN 障壁層 1 周期分の膜厚に In 組成を平均化した InGaN 結晶の格子点を観察していると近似できる。よって、GaN のピークと InGaN/GaN MQW の $n = 0$ 次のピークが q_z 軸に平行に整列していることから (11 $\bar{2}2$)GaN と (11 $\bar{2}2$)InGaN は平行の関係にあると言える。また、これは q_y - q_z 平面内でも同様の関係があった。

次に測定条件 (2) で測定を行った。(02 $\bar{2}2$) は $[\bar{1}123]$ 方向から結晶を見た場合に (11 $\bar{2}2$) 面を反時計回りに 26.19° だけ回転させた面である。測定結果を図 3.7 (b) に示す。(02 $\bar{2}2$)GaN のピークと InGaN/GaN MQW の周期構造に起因するサテライトピークが確認できた。(02 $\bar{2}2$)GaN のピークと InGaN/GaN MQW に起因するサテライトピークが q_z 軸に平行に整列している。

また、測定条件 (4), (5) でも同様に (測定条件 (4) の結果を図 3.7(c) に示す。)GaN のピーク

表 3.2 GaN, MQW 内で仮定した平均 In 組成 InGaN の各面間隔および $(11\bar{2}2)$ GaN とのなす角度. 括弧内は理論値を示す.

測定面	GaN		InGaN		各面がなす角 [°]
	面間隔 [Å]	$(11\bar{2}2)$ となす角 [°]	面間隔 [Å]	$(11\bar{2}2)$ となす角 [°]	
$(11\bar{2}2)$					
(q_x - q_z 平面内)	1.358	0	1.364	0	0
$(02\bar{2}2)$	1.218	26.18	1.223	26.29	0.11
$(11\bar{2}2)$					
(q_y - q_z 平面内)	1.358	0	1.365	0	0
$(11\bar{2}4)$	1.005	19.29	1.01	19.38	0.09
$(22\bar{4}0)$	0.797	31.59	0.799	31.70	0.11

クと MQW の $n = 0$ 次のピーク位置が q_z 軸に平行に整列していた.

以上の結果より各測定条件における GaN および $n = 0$ 次ピーク位置から求まる平均 In 組成 InGaN 結晶の測定面間隔, およびその InGaN 結晶面が $(11\bar{2}2)$ 面となす角を表 3.2 に示す.

表 3.2 より $(02\bar{2}2)$ と $(11\bar{2}2)$ のなす角について, GaN の 26.18 度に比べて平均 In 組成の InGaN 結晶は, $[\bar{1}\bar{1}23]$ を回転軸に 0.11 度だけ大きい角度をなしている. 同様に, $(11\bar{2}4)$ ($(22\bar{4}0)$) と $(11\bar{2}2)$ のなす角について, GaN の 19.29 度 (31.59 度) に比べて $[1\bar{1}00]$ を回転軸に 0.09 度 (0.11 度) だけ大きい角度をなしている.

3.3.2 成長様式と歪

$\{11\bar{2}2\}$ 基板とエピタキシャル層の面間隔を d_{sub} および d_{epi} , また $(11\bar{2}2)$ とのなす角をそれぞれ θ_{sub} , θ_{epi} とおく. 上記の結果より, GaN と MQW 内で平均化された In 組成をもつ InGaN 結晶の逆格子点は q_z 軸に平行に整列していたので, 図 3.8(a) に示したように, GaN, InGaN の q_x (および q_y) 軸上の座標が等しいことを表している.

これを式で表すと次のようになる,

$$\frac{\sin\theta_{\text{sub}}}{d_{\text{sub}}} = \frac{\sin\theta_{\text{epi}}}{d_{\text{epi}}}. \quad (3.3)$$

これは, これは長さの逆の次元をもっているが, 式 (3.3) の両辺の逆数を取ることで以下のよ

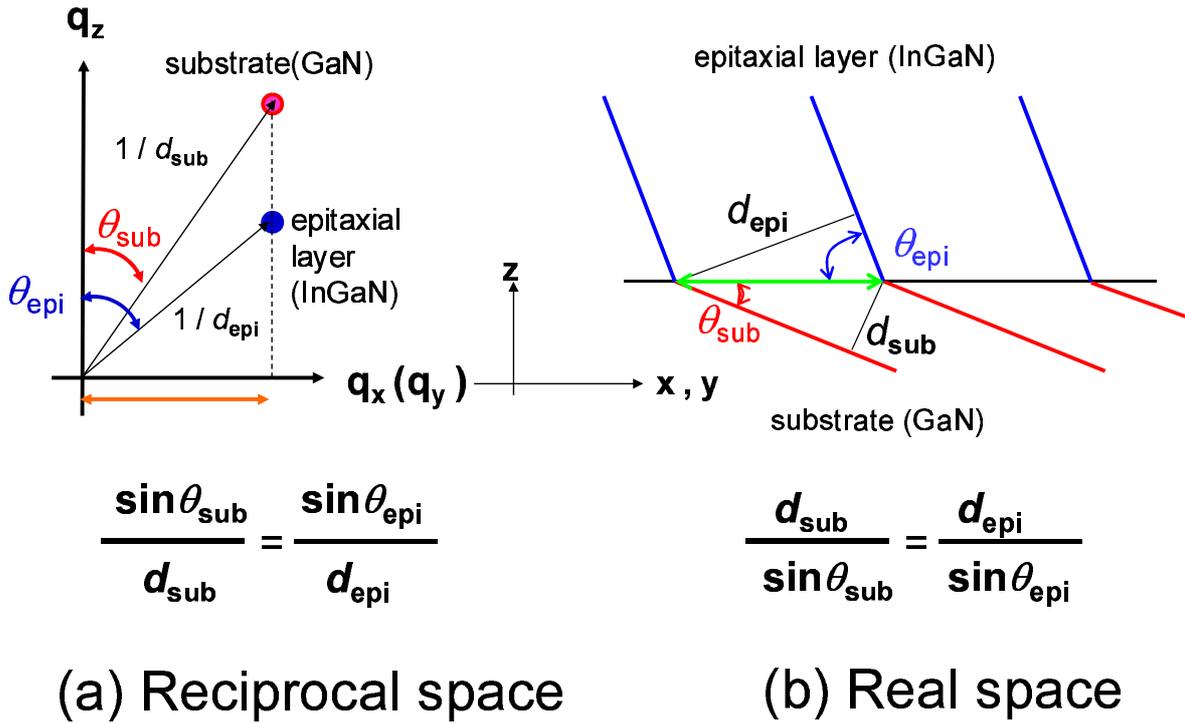


図 3.8 RSM 測定結果より導かれるコヒーレント成長の定義。

うな実空間での式 (長さの次元) となる,

$$\frac{d_{\text{sub}}}{\sin \theta_{\text{sub}}} = \frac{d_{\text{epi}}}{\sin \theta_{\text{epi}}}. \quad (3.4)$$

式 (3.4) を図で表すと式 (3.8)(b) のようになり, 基板の面間隔に合わせてエピタキシャル膜が成長するような描像となる。換言すると注目している面と成長界面との交点の間隔とエピタキシャル層と成長界面との交点の間隔が等しいことになる。これは単純にはコヒーレント成長を意味する。これまで結晶面方位に依存したエピタキシャル層の歪みの理論解析が報告されているが, その中の一つに Park らによる計算仮定がある [8]。それは, 基板層とエピタキシャル層の結晶面の基本並進ベクトルを界面へ射影したものが等しいという仮定で計算されており次式となる,

$$d_{\text{sub}} \sin \theta_{\text{sub}} = d_{\text{epi}} \sin \theta_{\text{epi}}. \quad (3.5)$$

しかし, この式は式 (3.3) と逆数の関係にはなく実験事実とは一致しない。逆にこれを図で表すと以下のようになり, 明らかにコヒーレント成長の実験事実とは一致しない。式 (3.5) は, 極性面である (0001) や無極性面の (11 $\bar{2}$ 0) 等では適用できてきたが, 半極性面での成長ではこの式は適用できないことがわかる。

この結果を用いて, 半極性面上エピタキシーにおける歪の表式が以下のように定式化され

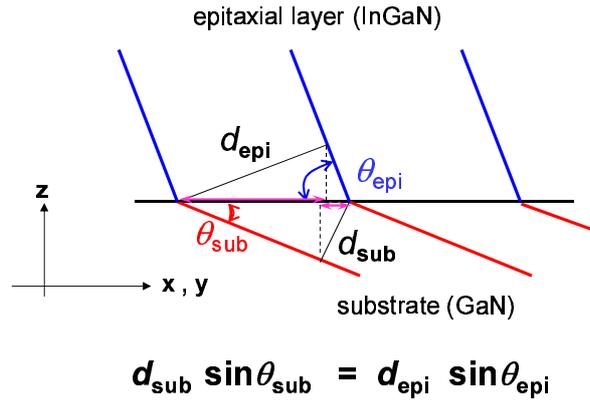


図 3.9 Park の計算モデル

た．ただし， ϵ_{xz} は歪エネルギーが最少となる条件での表式を示した，

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{xx}^{(0)} + \frac{1 + \epsilon_{xx}^{(0)}}{1 + \epsilon_{zz}^{(0)}} \epsilon_{xz} \frac{\sin\theta}{\cos\theta}, \quad (3.6)$$

$$\epsilon_{yy} = \epsilon_{xx}^{(0)}, \quad (3.7)$$

$$\epsilon_{zz} = \epsilon_{zz}^{(0)} + \frac{1 + \epsilon_{zz}^{(0)}}{1 + \epsilon_{xx}^{(0)}} \epsilon_{xz} \frac{\cos\theta}{\sin\theta}, \quad (3.8)$$

$$\epsilon_{xy} = \epsilon_{yz} = 0, \quad (3.9)$$

$$\epsilon_{xz} = -\frac{A}{B}. \quad (3.10)$$

ただし， A, B はそれぞれ以下の式で表される，

$$A = \left[\left\{ (c_{11} + c_{12}) \epsilon_{xx}^{(0)} + c_{13} \epsilon_{zz}^{(0)} \right\} \left(1 + \epsilon_{xx}^{(0)} \right)^2 \sin^2\theta + \left(2c_{13} \epsilon_{xx}^{(0)} + c_{33} \epsilon_{zz}^{(0)} \right) \left(1 + \epsilon_{zz}^{(0)} \right)^2 \cos^2\theta \right] \\ \times \left(1 + \epsilon_{xx}^{(0)} \right) \left(1 + \epsilon_{zz}^{(0)} \right) \sin\theta \cos\theta, \quad (3.11)$$

$$B = c_{11} \left(1 + \epsilon_{xx}^{(0)} \right)^4 \sin^4\theta + 2(c_{13} + 2c_{44}) \left(1 + \epsilon_{xx}^{(0)} \right)^2 \left(1 + \epsilon_{zz}^{(0)} \right)^2 \sin^2\theta \cos^2\theta \\ + c_{33} \left(1 + \epsilon_{zz}^{(0)} \right)^4 \cos^4\theta. \quad (3.12)$$

また，基板と成長層を添え字でそれぞれ s, e で表して $\epsilon_{xx}^{(0)} = (a_s - a_e)/a_e$ ， $\epsilon_{zz}^{(0)} = (c_s - c_e)/c_e$ ，である．これらの歪の表式は第 5 章における偏光特性の解析で使用する．

以上の議論より RSM マッピング測定結果から次の二つの結論が導かれる． $(11\bar{2}2)$ GaN 上 InGaN の成長において，

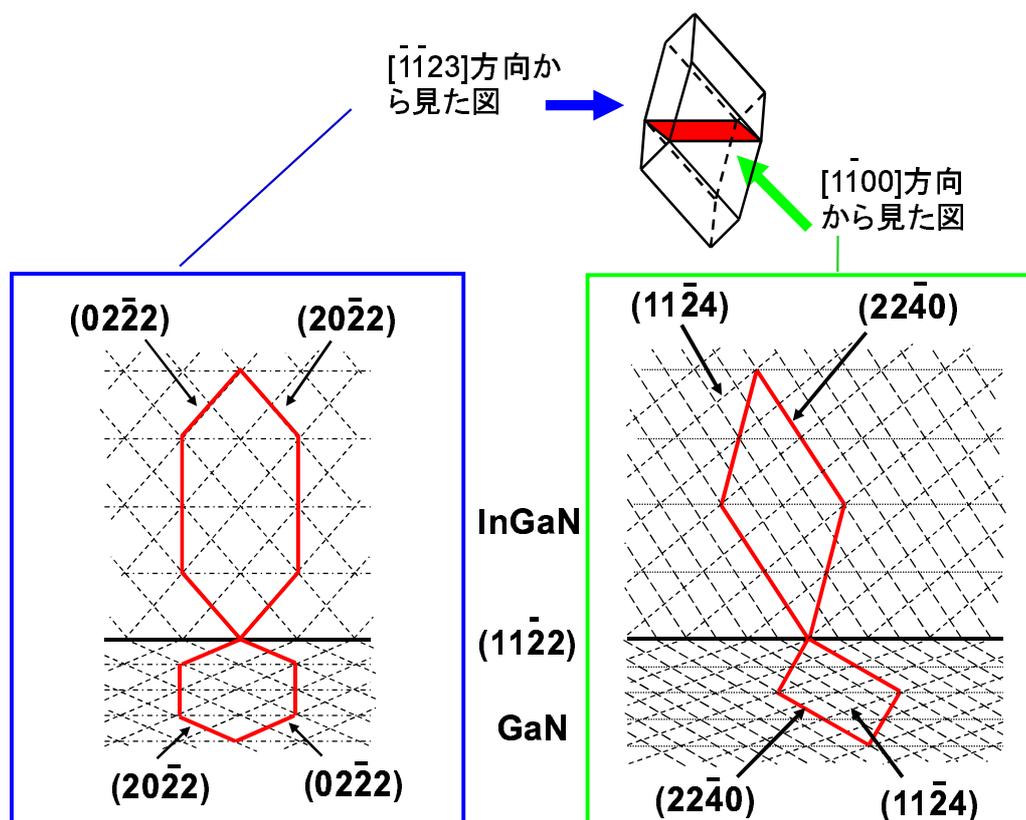


図 3.10 RSM 測定から導かれた (11 $\bar{2}$)GaN にコヒーレントに成長した InGaN と GaN の面関係と結晶系の概略図 .

- (11 $\bar{2}$)GaN と (11 $\bar{2}$)InGaN が平行
- GaN と InGaN の面が成長界面において連続

これを図 3.10 に概略的に表した . つまり , (11 $\bar{2}$)GaN 上にコヒーレントに成長した InGaN は厳密には六方晶ではなく斜めに歪んだ結晶系をなしていることがわかる .

3.4 光学的特性評価

3.4.1 量子井戸からの発光

作製した5周期の $(11\bar{2}2)$ InGaN/GaN MQW の光学的特性を評価した。本節では、800, 850°C, $V/III = 5500$, 成長炉圧力 300 Torr で $(11\bar{2}2)$ GaN 上へ作製した InGaN/GaN MQW について議論する。

まずは、低温 PL 測定を行った。励起光にはチタンサファイアレーザ (80 MHz) の第2次高調波 (Second harmonics generation: SHG) で 380 nm に設定して InGaN のみを選択励起した。励起密度は 12.5 nJ/cm^2 である。サンプルは He を冷媒とするクライオスタット内に固定して約 10 K まで冷却して測定を行った。PL スペクトルを図 3.11 に示す。

800°C 成長では 2.9 eV (428 nm) 付近に、850°C 成長では 3.2 eV (387 nm) 付近に明瞭なピークが確認できた。両サンプルとも XRD の測定結果より各層の膜厚は、InGaN ~ 3.4 nm, GaN ~ 11 nm と見積もられた。また、In 組成は 800°C 成長では 17%, 850°C 成長では 9% と

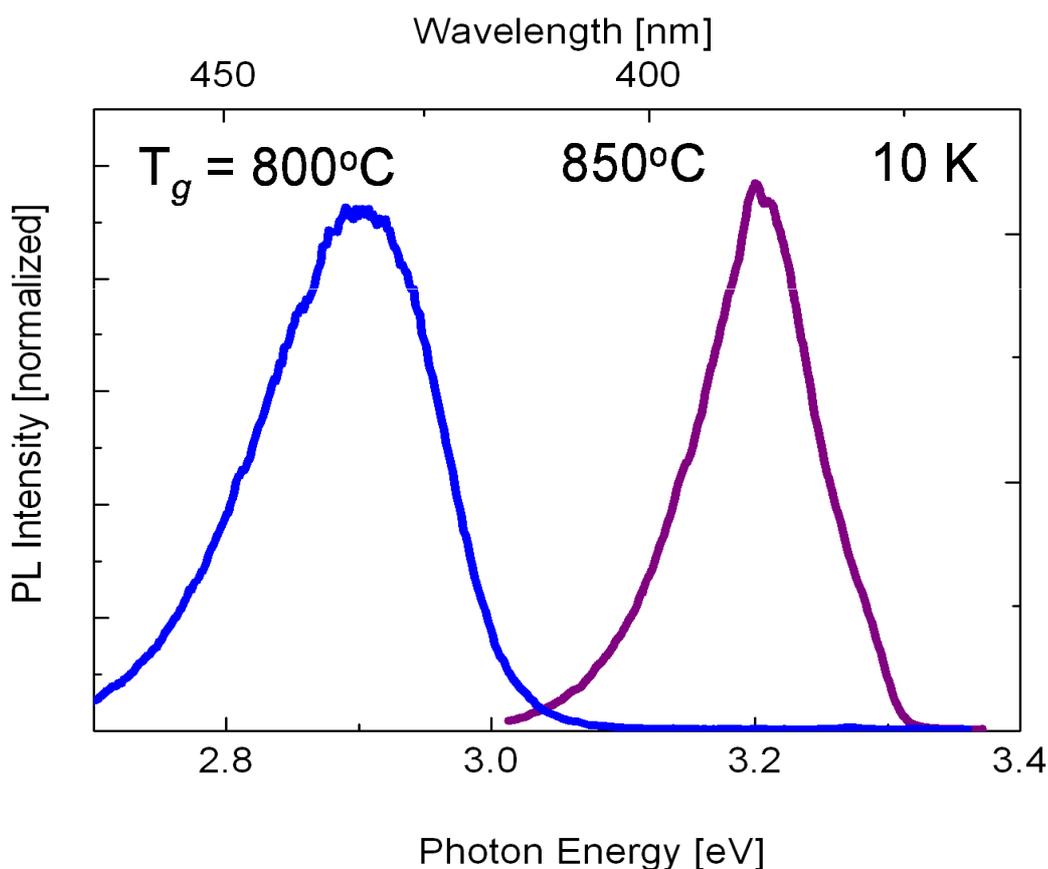


図 3.11 $(11\bar{2}2)$ InGaN / GaN MQW の PL スペクトル。

見積もられた． $\{11\bar{2}2\}$ 上 InGaN の成長でも成長温度を調整することで InGaN QW の In 組成を調整してバンドギャップを変化させることができた．

3.4.2 輻射再結合寿命

800°C で成長した 5 周期 (11 $\bar{2}2$) InGaN/GaN MQW の輻射再結合過程を調べるために、時間分解 PL を行った．測定温度は非輻射再結合過程が無視できると考えられる低温 (~ 10 K) で行った．励起光はチタンサファイアレーザ (760 nm, 80 MHz) の SHG(380 nm) を用いて、励起密度を 470 nJ/cm² として InGaN を選択弱励起し、シグナルの検出にはストリークカメラを用いた．測定したサンプルは In 組成が約 17% と見積もられるサンプルで中心波長は 428 nm、発光スペクトルの半値幅は 157 meV であった．発光ピーク付近 (428 nm) での TRPL 減衰曲線を図 3.12(a) に示す．ピーク波長付近で測定した発光減衰曲の片対数プロットは、直線ではなく複数の時定数が存在すると考えられる．時定数を 2 つと仮定して指数関数でフィットしたところ、46 ps, 142 ps という時定数が得られた．また、ここでほぼ同じ波長で発光し、ほぼ同じ構造を有する (0001) InGaN/GaN QW においては 4.43 ns, 25.1 ns が得られた．(11 $\bar{2}2$) の場合は (0001) に比べて 2 桁程度輻射再結合寿命が短くなっていると言える．これは、(11 $\bar{2}2$) InGaN/GaN QW の方が (0001) InGaN/GaN QW よりも内部電界が低減しており、輻射再結合確率が高くなっていることを示唆していると考えられる．

内部電界が存在しない時の電子と正孔の重なり積分値を 1 として、内部電界が (In 組成 20% 付近で) 2MV/cm 程度存在するときの重なり積分値は 0.004% と数 % 程度と計算される．量子ディスクにおける輻射再結合確率 (輻射再結合寿命の逆数) は重なり積分の二乗と局在半径の二乗に比例する [9]．局在の度合が同程度だとすると、輻射再結合寿命も (0001) の 4% 程度になる．本研究室からの計算の報告でも、In 組成が 20% で、(11 $\bar{2}2$) の QW の輻射寿命は、(0001) 面から 1 桁程度速くなるとされている [10]．輻射寿命にはさまざまな要因が関わってくると考えられるが、本実験で得られた TRPL の結果は、 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW では (0001) 面に比べて内部電界が低減していることを示唆すると考えられる．

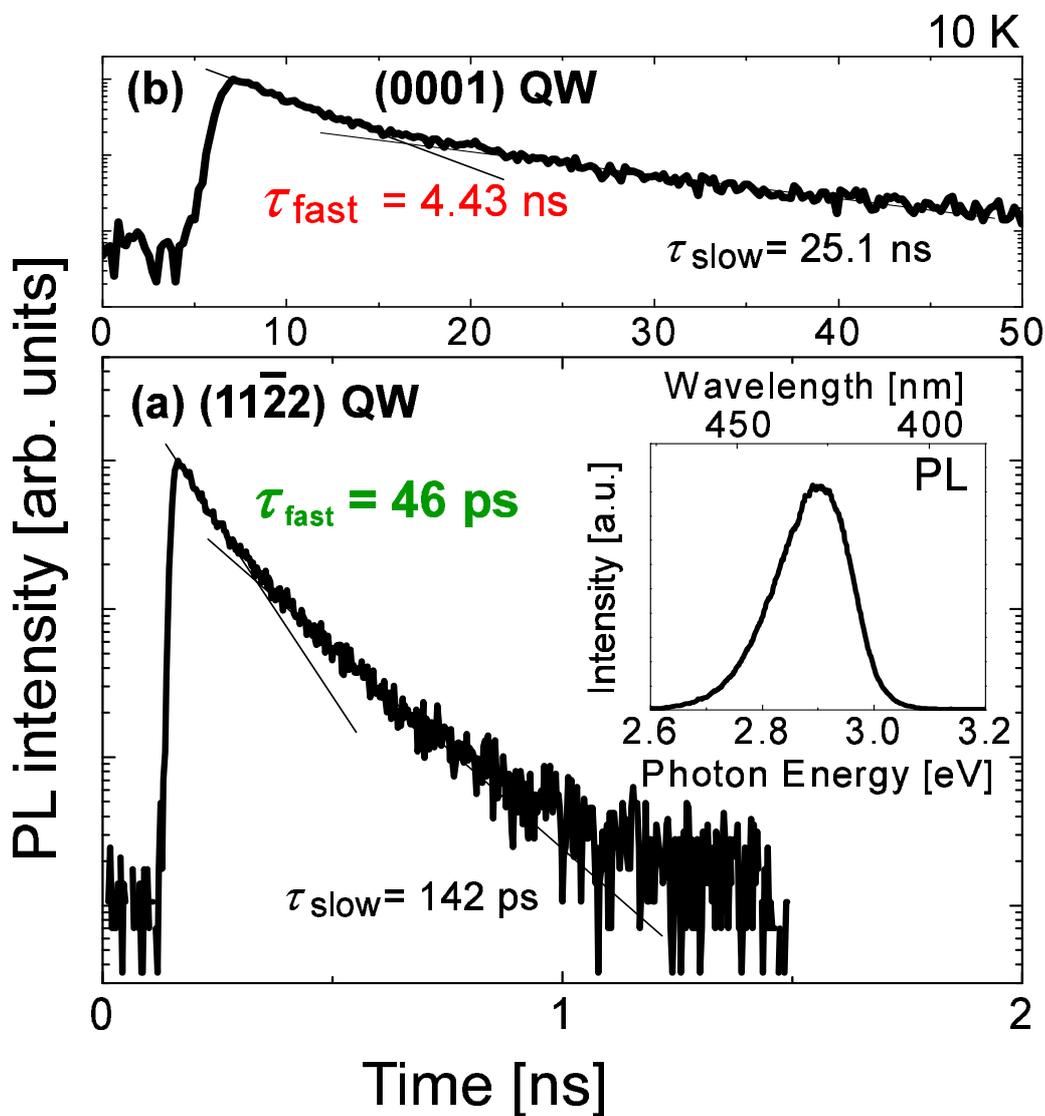


図 3.12 $(11\bar{2}2)$ InGaN/GaN MQW の TRPL 減衰曲線 (a) $(11\bar{2}2)$, (b) (0001) (ほぼ同じ波長で発光).

3.5 電子線ホログラフィによる内部電界評価

本節では，GCOE 若手研究者派遣プログラムで，米国アリゾナ州，Tempe のアリゾナ州立大学物理学科フェルナンド・ポンセ (Fernando Ponce) 教授の研究室へ 1 週間派遣された際に行った研究について纏める．本研究で作製した $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW 内では (0001) に比べて内部電界が低減されているかどうかを実験で調べるのが目的である．現地では，博士課程学生の Zhihao Wu 氏と Alec Ficher 氏に実験を共同で行って頂いた．

3.5.1 原理

まず，簡単な原理図を図 3.13(a) に示す．電界放出型電子線源を有する透過型電子顕微鏡 (Transmission electron microscope: TEM) において，電子源より干涉性の高い電子線を引出し，サンプルを透過する物体波とサンプルを通過しない参照光をつくる．それらを，平行平板の電極の中央に Si など由来の細線を張り，細線にプラス，平板をアースとする (これを電子線バイプリズムと呼ぶ) と，電子線はプラス電位の細線の方へ曲げられる．この偏向角度は細線からの距離には寄らないので，互いに傾いた 2 光束の電子線となる．これは 2 光束ホログラフィーであり，干涉縞が結像される．サンプルを通過する電子線は，サンプル内のポテンシャルに影響を受けて，そのポテンシャルの高さに依存する位相シフトを受ける．それと，参照光との位相差をコントラストとして観察すると，サンプル内のポテンシャルプロファイルが

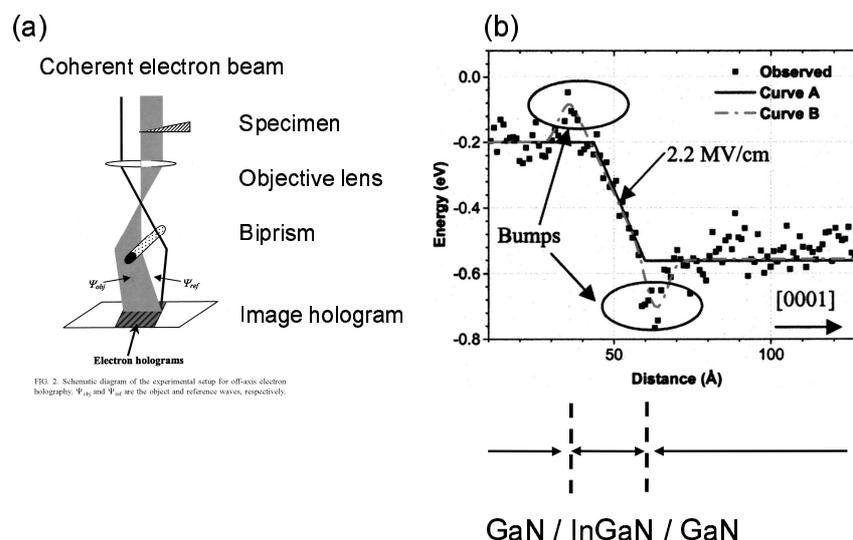
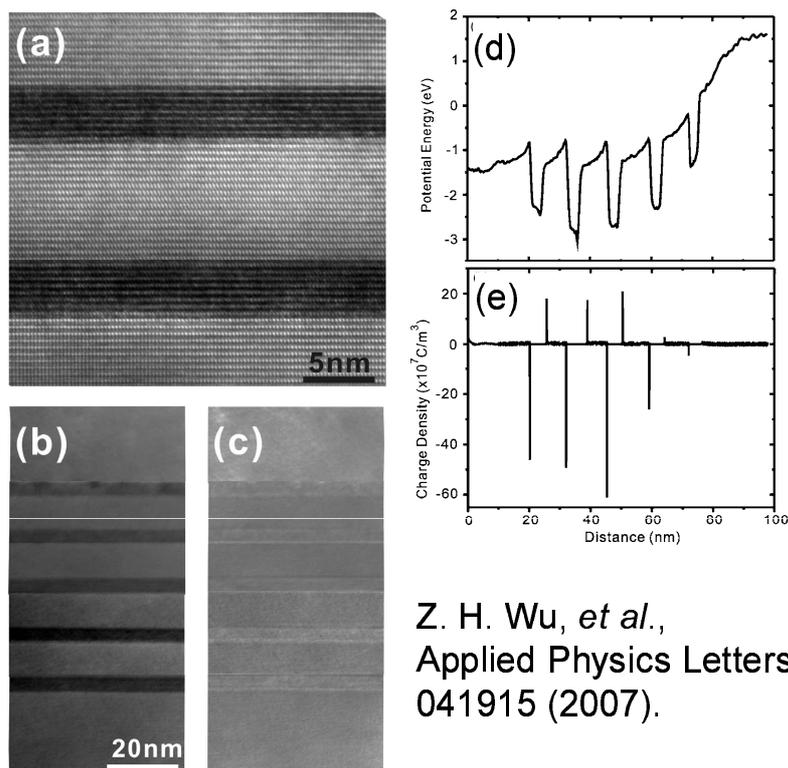


図 3.13 (a) 電子線ホログラフィーの原理図 (b)(0001)InGaN/GaN QW のポテンシャルプロファイル [11] .



Z. H. Wu, *et al.*,
Applied Physics Letters, **91**,
 041915 (2007).

図 3.14 (a) 高分解能 TEM 像 ($\langle 11\bar{2}0 \rangle$ に沿った投影) (b) ホログラム位相像, (c) 強度像 (電子ビーム加速電圧 200keV) [12].

観測できる。(0001) InGaN/GaN QW のポテンシャルプロファイルを図 3.13(b) に示す。これから (0001)InGaN QW 両端にポテンシャル差が存在し, QW には約 2.2 MV/cm の電界がかかっていることがわかる。

また, 図 3.14 は (0001) InGaN LED の断面プロファイルであり, (a) は高分解能 TEM 像, (b) は電子線ホログラフィ位相マッピング像, (c) は強度マッピング像である。(d) は (b) より得られたポテンシャルプロファイルである [12]。活性層付近とその中に位置する QW のポテンシャルプロファイルが明らかになっている。

3.5.2 ポテンシャルプロファイル

今回測定したのは, 10 周期の $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ InGaN/GaN QW で In 組成は 23%, InGaN=2.48 nm と見積もられているサンプルである。まず, この TEM の電子線ホログラフィー, 位相マッピングを図 3.15 に示す。さらにこの位相コントラストを QW を横切るようにして, ポテンシャルプロファイルを作成すると図 3.16 のようになった。距離の分解能はサブナノメートルである。これを見ると QW の両端のポテンシャル差はほぼ検出限界以下 (電界にすると 0.2 MV/cm 以下) である。従って, $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW 内の内部電界はほぼないということになる。

第 4 章においても，内部電界の見積もりについて述べる．

InGaN/GaN MQW

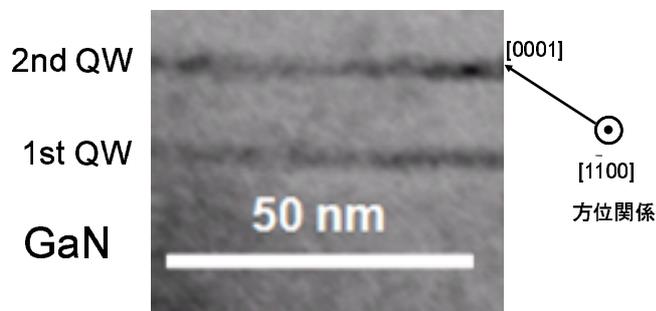


図 3.15 $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ InGaN/GaN QW の断面電子線ホログラフィの位相マッピング像．

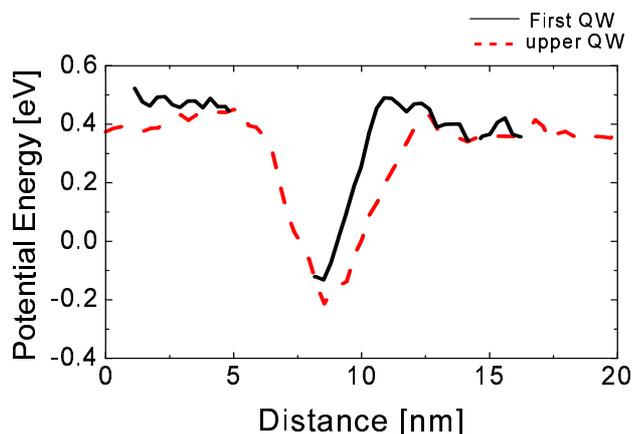


図 3.16 (a) $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ InGaN/GaN QW のポテンシャルプロファイル測定結果．

3.6 まとめ

本章では $\{11\bar{2}2\}$ GaN 上への InGaN の成長について纏めた．成長条件による InGaN/GaN QW の特性の違いを議論した．また，逆格子空間マッピング測定により $\{11\bar{2}2\}$ GaN 上へ InGaN がコヒーレントに成長した場合の InGaN 結晶構造を解析した結果， $\{11\bar{2}2\}$ GaN と $\{11\bar{2}2\}$ InGaN は平行の関係にあり，GaN と InGaN の面は界面において連続であることがわかり，その結果より歪も定式化された．また，光学的特性評価により，InGaN/GaN MQW からの明確な発光を確認し，さらに時間分解 PL 測定により $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW では (0001) に比べて輻射減衰寿命が 2 桁速く，内部電界が低減していることを確認できた．

参考文献

- [1] A. Koukitsu, N. Takahashi, T. Taka, and H. Seki, *Japanese Journal of Applied Physics* **35**, L673-L675 (1996).
- [2] A. Koukitsu, N. Takahashi, T. Taka, and H. Seki, *Journal of Crystal Growth* **170**, 306-311 (1997).
- [3] E. L. Piner, M. K. Behbehani, N. A. El-Masry, F. G. McIntosh, J. C. Roberts, K. S. Boutros, and S. M. Bedair, *Applied Physics Letters* **70**, 461-463 (1997).
- [4] A. Koukitsu, N. Takahashi, and H. Seki, *Japanese Journal of Applied Physics* **36**, L1136-L1138 (1997).
- [5] A. Koukitsu, T. Taki, N. Takahashi, and H. Seki, *Journal of Crystal Growth* **197**, 99-105 (1999).
- [6] V. S. Ban, *Journal of Electrochemical Society* **119**, 761-765 (1972).
- [7] C. H. Chen, H. Liu, D. Steigerwald, W. Imler, C. P. Kuo, M. G. Ludowise, S. Lester and J. Amano, *Journal of Electronic Materials* **25**, 1004-1008 (1996).
- [8] S. H. Park, and S. L. Chuang, *Physical Review B* **59**, 4725-4737 (1999).
- [9] M. Sugawara, *Physical Review B* **51**, 10743-10754 (1995).
- [10] M. Funato, and Y. Kawakami, *Journal of Applied Physics* **103**, 093501 (2002).
- [11] J. Cai, and F. A. Ponce, *Journal of Applied Physics* **91**, 9856-9862 (2002).
- [12] Z. H. Wu, A. M. Ficher, F. A. Ponce, W. Lee, J. H. Ryou, J. Limb, D. Yoo, and R. D. Dupuis, *Applied Physics Letters* **91**, 041915 (2007).

第 4 章

{11 $\bar{2}2$ } InGaN/GaN QW 発光ダイオードの作製と評価

4.1 はじめに

本章では低転位密度の GaN バルク基板上 {11 $\bar{2}2$ }InGaN/GaN 活性層の LED 応用に関する研究を纏める．第 2 章で述べたようにホモエピタキシーによって原子レベルで平坦な {11 $\bar{2}2$ }GaN 膜を実現し，またその結晶性も非常に優れたものであった．第 3 章示したようにその優れた結晶性をもつ GaN 上への InGaN QW の作製も成功し，内部電界の低減を確かめることができた．そのように有望な {11 $\bar{2}2$ }InGaN QW を LED に応用した．

4.2 サンプル構造

前章で最適化した成長条件を基にした活性層をもつ発光ダイオード構造を作製した．作製した構造は図 4.1 に示す概略図の通りである．すなわち，{11 $\bar{2}2$ } GaN 基板側から順にアンドープ GaN (1.5 μm), n 型 GaN:Si (4.5 μm), アンドープ GaN (25 nm), InGaN (3 nm), アンドープ GaN (25 nm), p 型 AlGaIn:Mg (10 nm), p 型 GaN:Mg (150 nm) である．期待されるキャリア密度は n 型で $5 \times 10^{18}/\text{cm}^2$, p 型で $4 \times 10^{17}/\text{cm}^2$ である．

デバイス設計としては，活性層周辺を物性評価に特化した設計にした構造にしている．つまり，障壁層が 25 nm と厚く設定されており，量子井戸になるべく均一に電界がかかるようにしてある．また，量子井戸を単一にすることで，MQW に比べて QW 間の特性ばらつきが抑制でき，純粋な InGaN QW の物性を評価できると考えられる．

エピ構造を作製した後，反応性イオンエッチング (Reactive ion etching: RIE) により $320\mu\text{m} \times 320\mu\text{m}$ のメサ構造を作製した．その後，従来の LED 構造と同じように表面より n 型および p 型電極を施した．ちなみに，基板の面方位については，発光色が琥珀色の LED は

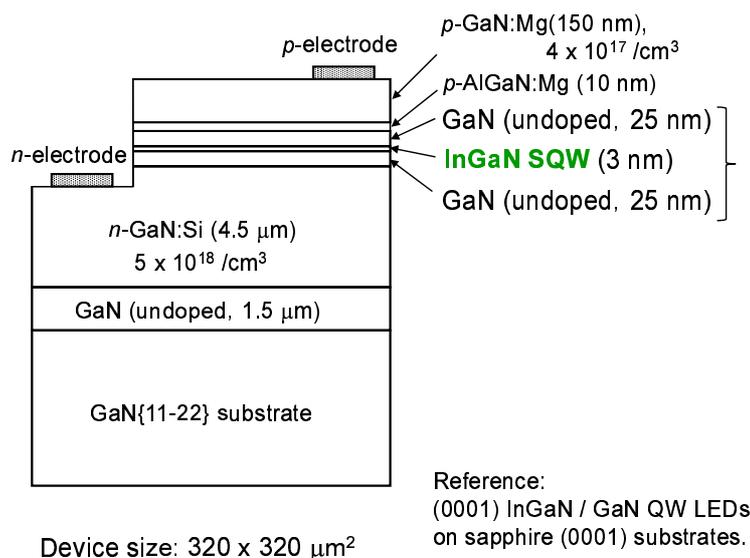


図 4.1 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW LED デバイス構造 .

($11\bar{2}2$) 上, その他は ($\bar{1}\bar{1}2\bar{2}$) 上への成長である. しかし, 第 2 および 3 章において, ($11\bar{2}2$) と ($\bar{1}\bar{1}2\bar{2}$) の表面形状などの特性については, 面方位による大きな違いは明確にみられなかった. 本章のエレクトロルミネッセンス (Electroluminescence: EL) 測定はすべて室温のもと, 青, 青緑, 緑, 琥珀および赤色 LED に対して測定を行った. 発熱の効果を抑えるために I-V 特性はすべてのサンプルに対してパルス幅 10 ms, Duty 比 = 10% のパルス駆動 (ほぼ直流と近似できる), EL 発光観察などは直流で測定を行った (ただし発光スペクトルの電流依存性のグラフにおいては, 青色のみ直流を用いた).

4.3 LED の特性

4.3.1 電流特性

I-V, I-L 特性

まず, 作製された LED の電流電圧 (I-V) 特性, 電流発光 (I-L) 特性を測定した. 測定結果を図 4.2 および図 4.3 に示す. 全てのサンプルの電流-電圧 (I-V) 特性 (図 4.2) において明瞭な整流性が確認された. 20 mA での駆動電圧は青, 緑, 琥珀および赤色の順に 3.4, 3.8, 3.0, 3.7eV であった. また, 図 4.2 の右側の写真に LED の発光の様子を示すとおり, 緑色 LED においても蛍光灯の光の下で明るく発光していることがわかる.

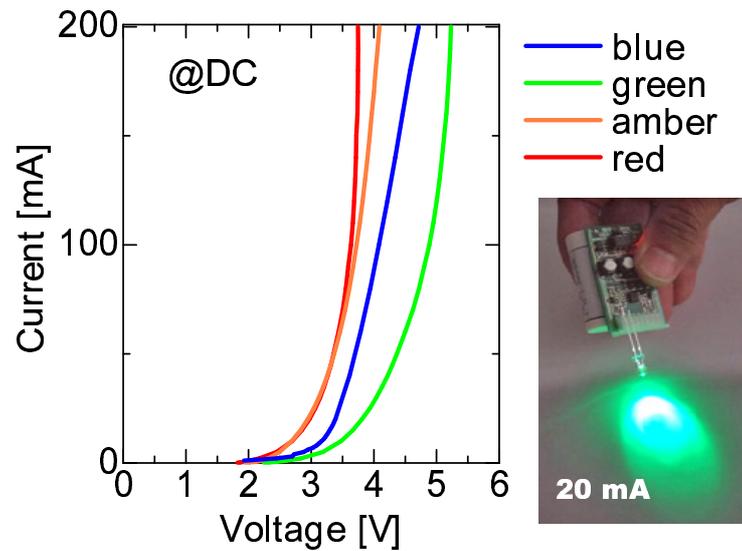


図 4.2 $\{11\bar{2}\}$ LED I-V 特性および $\{11\bar{2}\}$ LED の発光の様子 (右写真) .

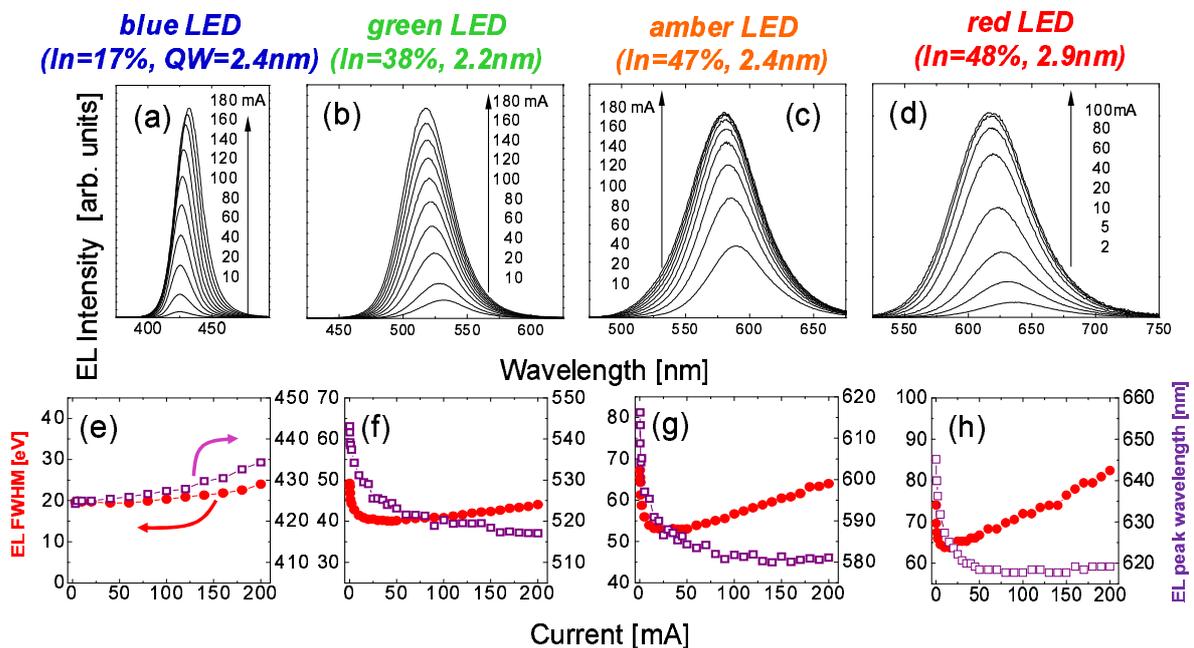


図 4.3 $\{11\bar{2}\}$ InGaN/GaN QW LED の電流-発光特性および EL 半値幅とピーク波長の注入電流依存性．青色のみ直流，緑・琥珀・赤色 LED はパルス (10 Hz, Duty=10%) 駆動 .

EL ピーク波長と半値幅の電流依存性

また、図 4.3 に示すとおり、EL の FWHM は青、緑、琥珀、赤色の順で大きくなっている。各図の上部に発光ピークと活性層膜厚を用いて見積もられた In 組成を示しているが、これらとの関係は、In 組成の増加に伴いポテンシャルの揺らぎが大きくなっているのが反映されていると考えられる。緑、琥珀、赤色の LED においては、EL のピーク位置は低電流から 25 mA 程度までは急激にブルーシフトし、またその後緩やかにブルーシフトしている。低電流域での急激なブルーシフトをする領域は、In 組成揺らぎにより、In 組成が局所的にポテンシャルが低い部分の状態密度をキャリアが埋めていくため、擬フェルミレベルは急激に上昇する。一方、緩やかなブルーシフトは、In 組成不均一によるポテンシャル揺らぎの部分の状態密度が充満したのち、 \sqrt{E} に比例した状態密度の部分埋め込みのため、裾準位の部分よりも擬フェルミレベルの上昇は緩やかである。

ここで、EL の FWHM とピーク波長の注入電流依存性について議論する。まず EL の FWHM が注入電流の増加に伴って減少する領域を I、さらに電流を増加させるとともに FWHM が増大していく領域を II とする。InGaN におけるキャリアの輻射再結合過程は、In 組成の局所的な揺らぎが存在して、ポテンシャルが揺らぎ、ポテンシャルの低い部分へキャリアが局在する。その局在の裾準位の状態密度が指数関数で表されると近似する報告がされている [1, 2]。仮に局在による裾準位の状態密度が $g(E) = A \exp(-E/E_0)$ で近似できるとした時に、注入電流を増加させて擬フェルミ準位を上昇させて言った場合のキャリア分布を考えると、その分布が発光スペクトルに反映されると考えられる。しかし、簡単な仮定でキャリアのエネルギー分散の FWHM を考えたとき擬フェルミ準位が裾準位内にはいる間は、擬フェルミ準位が上昇しても FWHM に変化がなかった。従って、本研究で作製した $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW LED のポテンシャルプロファイルの裾は、指数関数よりも急激に立ち上がる関数で仮定しないと実現できないと考えられる。

4.3.2 $\{11\bar{2}2\}$ LED EL の様子

$\{11\bar{2}2\}$ LED 駆動時における EL の様子

$\{11\bar{2}2\}$ LED の発光の様子を総合倍率 500 倍の光学顕微鏡を用いて観察した。作製した LED はエポキシ樹脂で封じられているため、観察前にエポキシ樹脂を樹脂溶解剤で溶かして LED 素子を露出させて観察を行った。観察の際は、直流電流源を用いた。観察結果を図 4.5 に示す。

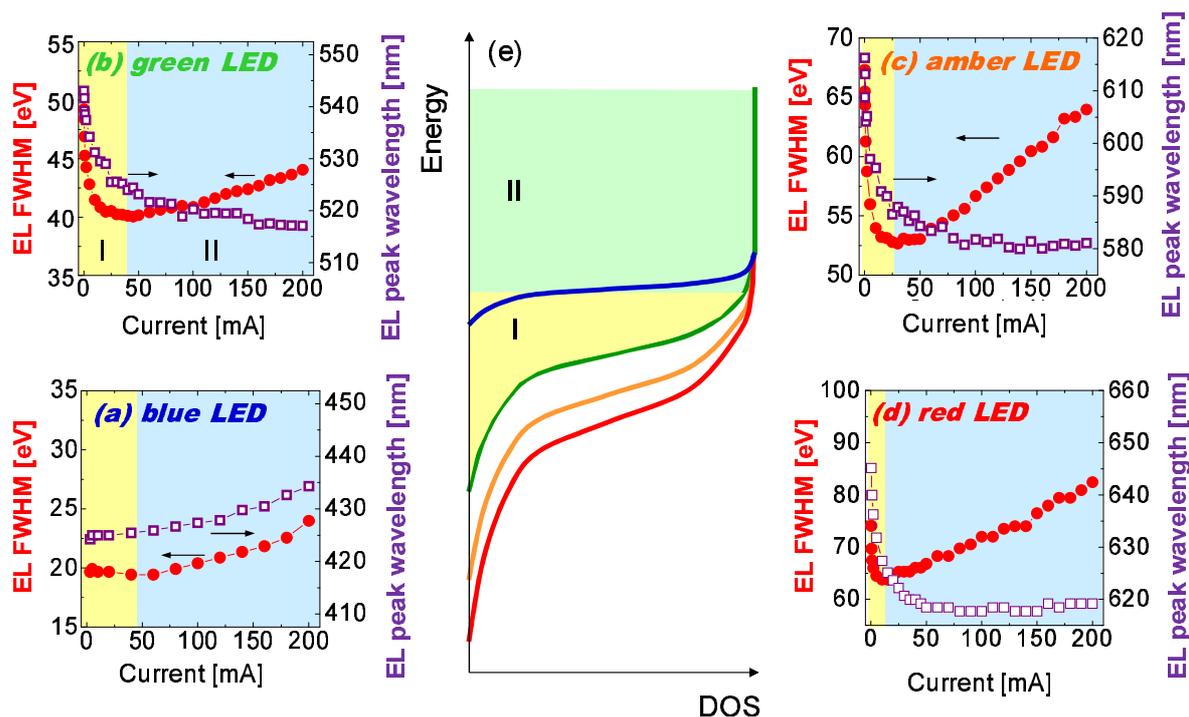


図 4.4 LED EL FWHM とピーク波長の注入電流依存の考察 .

{11 $\bar{2}2$ }LED の EL 時の空間分布 ~ (0001)LED との比較

緑色 (11 $\bar{2}2$)LED の EL 時の表面光学顕微鏡像の注入電流依存性を図 4.6 (e)-(h) に、ほぼ同構造で緑色発光 (0001)LED の表面光学顕微鏡像を図 4.6 (a)-(d) に示す．この実験での LED 駆動は直流を用い、測定は室温で行った．図 4.6 より 50 μA 駆動時において (0001) と {11 $\bar{2}2$ } で表面顕微鏡像に顕著な差が見られた．すなわち、(0001) においては、サブミクロンから数 μm 程度の直径をもつ明点とそれに比べて暗い領域の二つが観測された．一方、{11 $\bar{2}2$ } においては (0001) の場合の様な明度のムラがほとんどなく、明度はほぼ均一な空間分布を示している．また、注入電流を増加すると、(0001) においては明点の密度が増えていき、暗い領域の割合が減少していくが、{11 $\bar{2}2$ } においては均一のまま全体的に明るさが増していることがわかる．

ここで、この発光の空間分布が面方位によって異なる理由について考察する．Kaneta らは (0001)InGa N SQW の発光を近接場光学顕微鏡 (Scanning near-field optical microscopy: SNOM) によって観測し、In 組成の不均一によるポテンシャル揺らぎの中で数 10 nm オーダーで PL 強度分布があり、それを輻射中心および非輻射中心にキャリアが捕獲されることによると説明している [3, 4]．(0001) で確認した数 μm オーダーの大きさの明点は、QW 面内におけるキャリアの拡散距離 (ポテンシャルが低い部分がキャリアを捕獲する範囲の半径) の

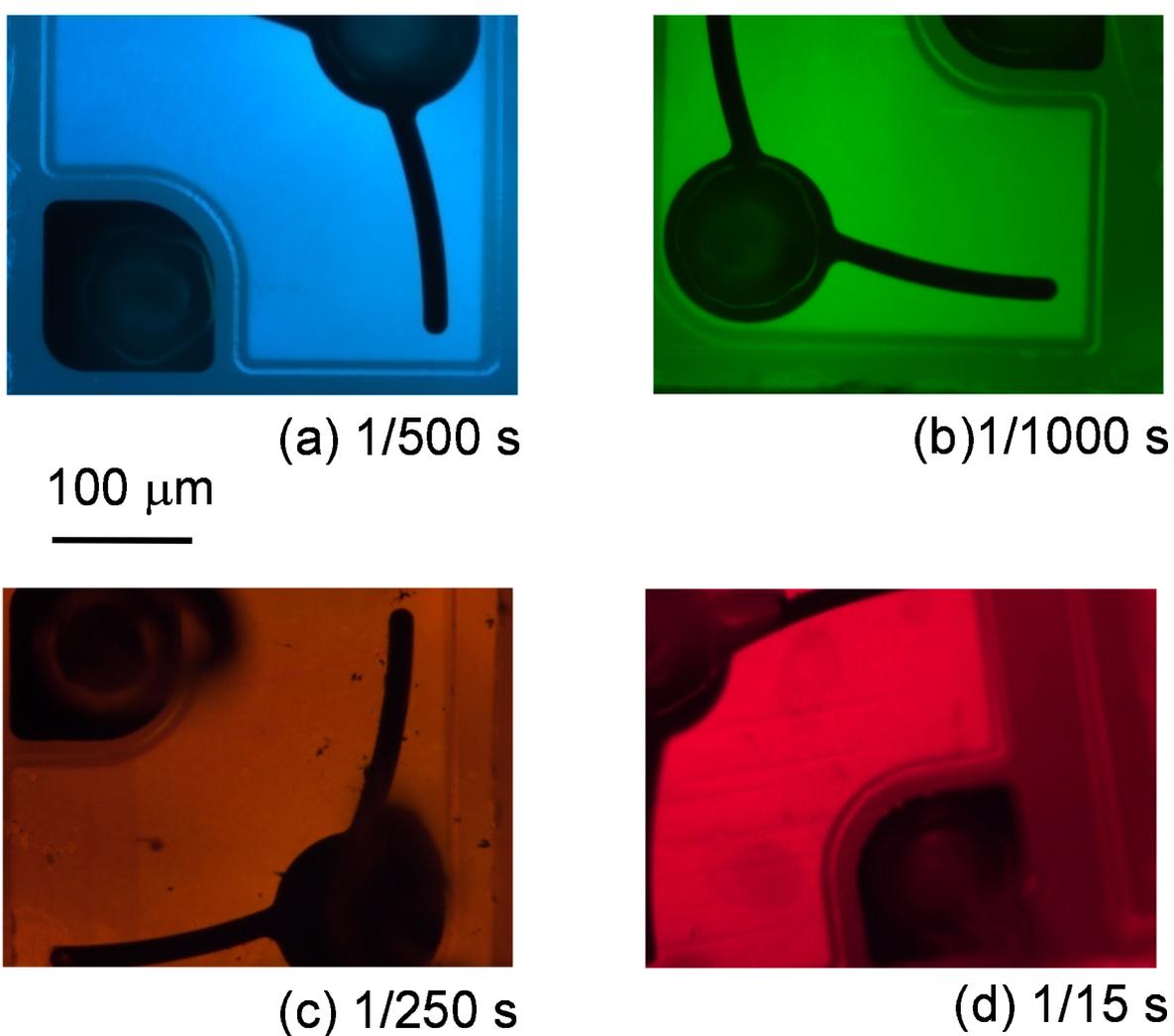


図 4.5 $\{11\bar{2}2\}$ LED EL 時の光学顕微鏡観察像．(a) 青緑，(b) 緑，(c) 琥珀，(d) 赤色 LED ですべて室温において直流 5mA 駆動時の様子と，撮影時の露光時間を示す．

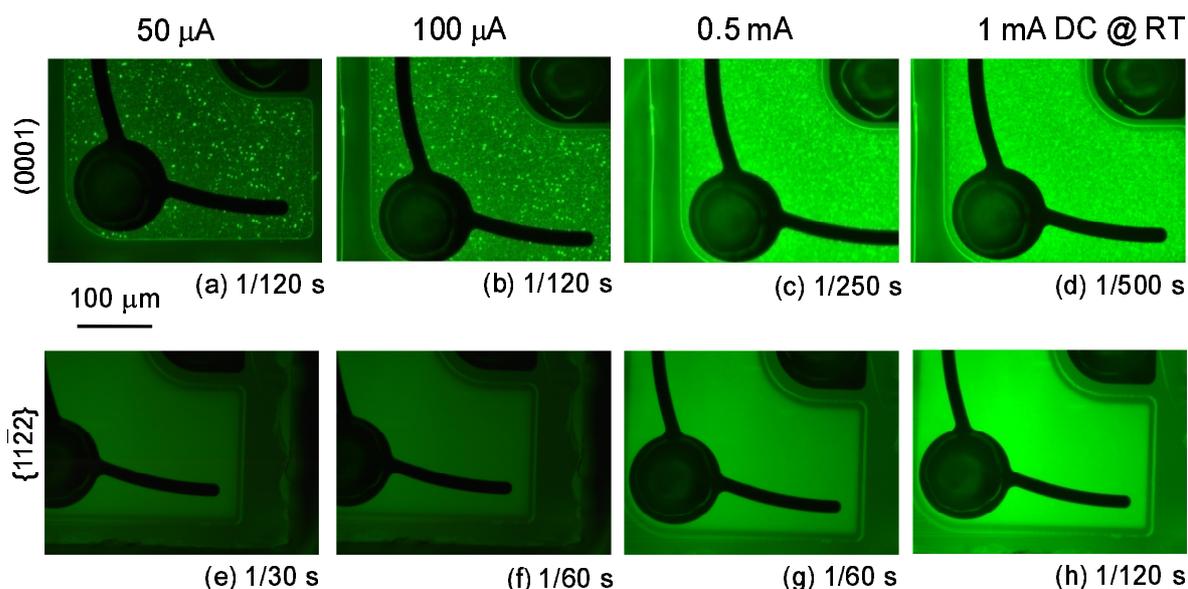


図 4.6 LED EL の表面顕微鏡像の (0001) 面と $\{11\bar{2}2\}$ 面の比較 . (a)-(d) (0001) 緑色 LED, (e)-(h) ($\bar{1}\bar{1}2\bar{2}$) 緑色 LED .

オーダーよりも大きいことになる．一方，第 3 章で確認したように，(0001) に比べて内部電界が低減されている $\{11\bar{2}2\}$ では，キャリアの拡散距離が短くなっているはずである．しかし，これは SNOM のプローブの開口 (約 100 nm 程度以下) 程度の分解能で観測される現象であり，光学顕微鏡程度の分解能ではキャリアの拡散距離の違いは観測できない．

ここで，本研究室で作製した青，緑色発光 InGa_N MQW の表面 SEM, およびカソードルミネッセンス (Cathodoluminescence: CL) マッピング観察により，InGa_N QW は 500 nm 程度のグレインで形成され，複数個のグレインで一つの明点を形成していると考えられる．従って，光学顕微鏡での分解能程度の分解能において，EL 空間分布の違いが生じる可能性の一つとして考えられる理由は，(0001) 面 (In)Ga_N はグレインで形成され，グレイン間で In 組成や結晶性が異なっており，発光強度のムラが観測されたと考えられる．一方で，発光波長 530 nm の (0001) および $\{11\bar{2}2\}$ LED の発光半値幅を比較すると，それぞれ約 150 meV, 200 meV であり，ポテンシャル揺らぎは (11 $\bar{2}2$) の方が大きかった．同じ In 組成で比べると， $\{11\bar{2}2\}$ では (0001) に比べて内部電界が低減されていることから，内部電界による QW のエネルギーバンドの傾きがほぼなくなり，実効的な遷移エネルギーが (0001) に比べて高いと考えられる．そのため，同じ発光波長の場合，内部電界が低減された $\{11\bar{2}2\}$ の方が (0001) よりも多く In 組成が必要である．また，In 組成が増えるにつれて，In 組成揺らぎが大きくなり，ポテンシャル揺らぎの増大につながる．従って，発光半値幅の違いは主に In 組成の違いに由来していると考えられる．発光半値幅はけた違いに異なることはなく，マクロスコピックな発光を観測する範囲内で In 組成揺らぎは同程度である．見方を変えると，マクロスコピックで

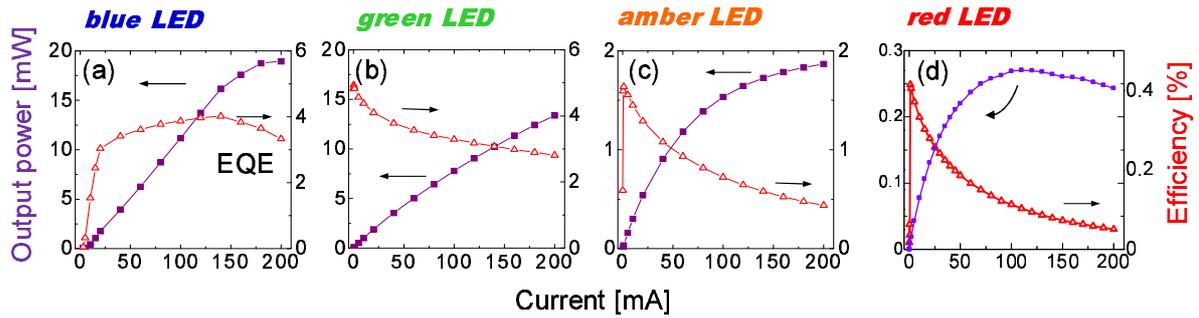


図 4.7 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW LED の出力と外部量子効率の駆動電流の関係。

観測した場合の発光半値幅は，(0001) で見えている一つの明点群からの発光半値幅に等しいと考えられる。

以上より，本実験から導かれることは，(0001) と $\{11\bar{2}2\}$ の成長様式が異なる可能性があると考えられる。(0001) では，上述のようにグレインが形成され，そのグレイン間でも In 組成が異なっている。グレインとグレインの間には刃状転位が存在する。しかし， $\{11\bar{2}2\}$ ではこのようなグレインが観測されないことから以下のような可能性がある。すなわち，一つ目は六方晶 (In)GaN の転位のすべり面は (0001) であり，(0001) においては，一度刃状転位が発生すると [0001] 方向へ転位線が延びる。一方， $\{11\bar{2}2\}$ では刃状転位 (転位線は [0001] に平行) が発生したとしても，(0001) 面ですべり，それが仮に表面へ抜けると 1 原子層のステップが発生する。(11 $\bar{2}2$) ホモエピタキシーにおける転位の導入のされ方などは透過型電子顕微鏡による観察等によって解明が必要である。

4.3.3 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW LED の出力および外部量子効率

出力および外部量子効率

本節では LED の出力および外部量子効率について述べる。図 4.7 に示した通り，出力 (P_{out}) は 20mA 駆動時で青色，緑色，琥珀，赤色の順に，1.76, 1.91, 0.54, 0.13 mW となった。また， η_{ext} はそれぞれ 3.0, 4.1, 1.3, 0.28% であった。それまでに報告されていたヘテロエピタキシーによる半極性 LED の報告値は，(10 $\bar{1}3$) 青色 LED で $P_{\text{out}} = 1.53\text{mW}$ (250 mA)， $\eta_{\text{ext}} = 0.41\%$ (最大値 50mA) [5]，また，(10 $\bar{1}3$) 緑色 LED で $P_{\text{out}} = 264\mu\text{W}$ ， $\eta_{\text{ext}} = 0.0052\%$ (最大値 120 mA) [6] であった。これらの値と比較すると η_{ext} は 2 桁以上特性が向上した。低転位密度の GaN 基板を用いたホモエピタキシーにより，InGaN/GaN LED の結晶性が過去に報告されてきたヘテロエピタキシーによる半極性面 LED に比べて格段に向上し，ほぼ実用レベルの出力および外部量子効率の実現できた。また，今までの報告 ([5, 6] など) では，転位密度が多く InGaN 活性層固有の特性を調べるのが困難であり，実際それらの報告はなかった。しかし，本研究においては，実用レベルの半極性 LED が実現でき，半

表 4.1 {11 $\bar{2}2$ } InGaN / GaN QW LED の出力と外部量子効率

駆動電流		blue	green	amber	red
20mA	出力 [mW]	1.76	1.91	0.54	0.13
	η_{ext} [%]	3.0	4.1	1.3	0.28
200mA	出力 [mW]	19.0	13.4	1.9	0.51
	η_{ext} [%]	3.3	2.8	0.44	0.05

極性面 InGaN/GaN QW LED 特有の物性を評価する下地が整ったといえる。

(0001)InGaN/GaN QW LED との比較

{11 $\bar{2}2$ } 緑色 LED の注入電流依存性を図 4.8 に示す。(0001) では注入電流を増加させてゆくと、低電流時の 20% 付近から約 4.5% まで 8 割以上減少している。一方、{11 $\bar{2}2$ } LED の方は低電流時の 4.8% から 2.8% と 4 割程度の減少幅になっており、(0001) に比べて {11 $\bar{2}2$ } は注入電流増加に伴う η_{ext} の減少が少なくなっている。

20mA 駆動時の η_{ext} は、青色 LED で 3.0%、緑色で 4.1%、琥珀色で 1.3%、赤色で 0.28% を示した。それまで報告されていた半極性青色 LED の 0.41%、緑色 LED の 0.052% と比べても飛躍的に効率が伸びており、実用レベルに達した。これは、貫通転位密度が非常に低い GaN バルク基板を用いた上に、成長条件を最適化した結果ホモエピタキシャル GaN とその上の InGaN QW の結晶性が飛躍的に向上した結果だと考えられる。

p-i-n 接合空乏層付近のバンド構造

ここで、本節では前節よりもさらに詳しく *i* 層に QW が存在するような *p-i-n* 接合付近のバンド構造を見積もることで、これらの原因を探る。まず、*p-i-n* 接合部分の構造の概略図と電荷分布を、図 4.9 に示す。図 4.9(b) に示すような電荷分布を仮定し、ポアソン方程式を解くことで空間電荷によるポテンシャルプロファイルを予測した。ここでは 1 次元構造を考え、空間電荷密度を $\rho(x)$ 、ある点 x での電位を $V(x)$ 、試料の比誘電率を ϵ_s 、誘電率を ϵ_0 とすると、ポアソン方程式は、

$$\frac{d^2V(x)}{dx^2} = -\frac{\rho(x)}{\epsilon_s\epsilon_0}, \quad (4.1)$$

となる。

境界条件を

- (1) 空乏層の *p* 型端での $\frac{dV(x)}{dx} = 0$, $V(x) = 0$,

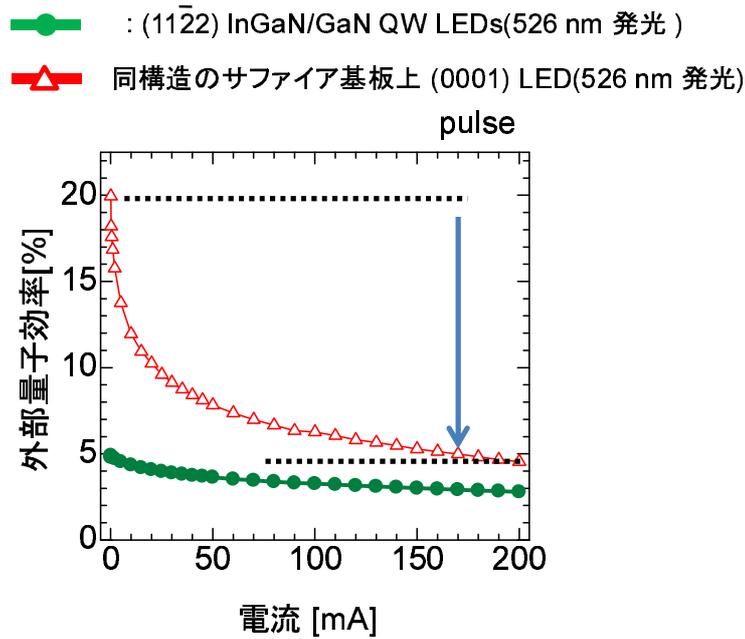


図 4.8 $(1\bar{1}\bar{2}2)$ InGaN/GaN QW LED と同発光波長で同構造の (0001) InGaN/GaN QW LED の外部量子効率の電流依存性比較 .

- (2) n 型端での $\frac{dV(x)}{dx} = 0$, $V(x) = V_{bi} - V_{ext}$,
 (3) 各界面で p 層と i 層界面および i 層と n 層界面で $V(x)$ が連続 (ただし, i 層と InGaN 層の界面では電束密度保存)

の条件で式 (4.1) を解いた . ここで, V_{bi} , V_{ext} はそれぞれビルトインポテンシャルおよび印加電圧である . ここで, ドナー密度, およびアクセプタ密度は以下のように見積もった . まず n 型半導体内でのドナー密度について考える . ドナー密度が低くフェルミレベルが伝導帯から離れているときは, $n \sim N_c \exp\{-(E_c - E_f)/k_B T\}$ とボルツマン分布で近似できるが, 仮にドナー密度が高く室温付近でフェルミレベルが縮退している状態では, この近似ではよく表すことが出来ない . したがって, ドナー密度が未知であるので実際のフェルミ分布で考えると電子密度は,

$$n = N_c \int_0^\infty \frac{E^{1/2}}{\exp\left(-\frac{E + E_c - E_f}{k_B T}\right) + 1} dE, \quad (4.2)$$

となる . ここで, $N_c = 2(2\pi m_n k_B T / h^2)^{3/2}$, m_n は n 型半導体における電子の有効質量である .

しかし, これは数値積分の方法によって解くことができるが, 解析的に解くために以下の近

表 4.2 計算に使用したパラメータ

ビルトインポテンシャル [eV]	3.318
N_a [$/m^3$]	1.38×10^{24}
N_d [$/m^3$]	1.98×10^{26}

似を用いることができ [7] ,

$$n = \frac{N_c}{\frac{1}{4} + \exp\left(-\frac{E_f - E_c}{k_B T}\right)}, \quad (4.3)$$

とできる .

ただし, $T = 300$ K, $E_c = 3.40$ eV とすると, $N_c = 5.86 \times 10^{25} /m^3$ であり, 期待されるキャリア密度である $n = 5 \times 10^{18} /cm^2$ が式 (4.3) と等しいとしてフェルミレベルを求めると, $E_f = 3.45$ eV となった .

次に, n 型半導体内では電荷の中性条件は, (自由電子密度) + (イオン化アクセプタ密度) = (自由正孔密度) + (イオン化ドナー密度) のうち, イオン化アクセプタと, 自由正孔の項を無視し, N_d をドナー密度とすると, 期待される電子密度はイオン化ドナー密度と等しいとできるので,

$$n = N_d \left[1 - \frac{1}{1 + \frac{1}{2} \exp\left(\frac{E_d - E_f}{k_B T}\right)} \right], \quad (4.4)$$

より N_d を求めると, $1.98 \times 10^{26} /m^3$ となった .

同様に, p 型半導体内でのアクセプタ密度は, $N_a = 1.38 \times 10^{24} /m^3$ となった . これらの結果を表 4.2 に纏めた .

また, GaN/InGaN QW にかかる内部電界を支える分極電荷が QW の両端に存在すると考えられる . [0001] 方向を電界の正の向きとする . (0001) InGaN/GaN QW は Ga 極性を考えると, また電界の方向は基板表面から基板内部, つまり [000 $\bar{1}$] であり, 負の方向である . In 組成 23% のときに QW にかかる歪から計算した内部電界は $F = -2.3$ MV/cm であるが, 3 nm 幅の QW の両側に幅 0.25 nm で, ある電荷密度 N_s が存在するときにポアソン方程式より求まる電界が -2.3 MV/cm に一致する電荷密度を求めると $N_s = 5.5 \times 10^{26} /m^3$ となり, この値を計算に用いた . この値は, 例えば文献 [8], のように InGaN/GaN 界面のシートキャリア密度が, In 組成 20-30% 程度では $1-4 \times 10^{17} /m^2$ であるという報告から考えると, 0.25 nm に存在するキャリア密度に換算すると $10^{26} /m^3$ のオーダーであり妥当と考えられる .

計算により求めた p - i - n 接合のエネルギーバンド構造を図 4.10 に示す . 図 4.10 の (a), (b) からわかることは, (11 $\bar{2}$ 2) InGaN/GaN LED のように QW に内部電界が (ほとんど) 存在しない場合, n 型および p 型側から注入されたキャリアは, QW の両端のポテンシャルエネ

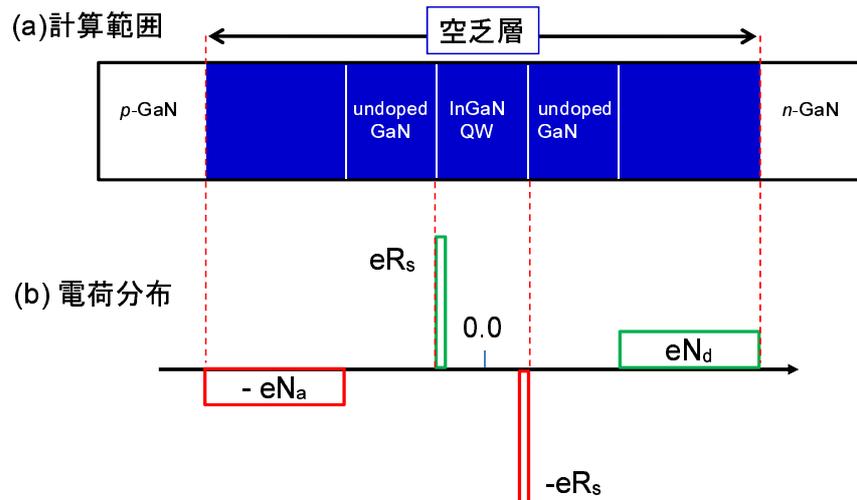


図 4.9 ポアソン方程式による解析条件。(a) 構造概略図，(b) 電荷分布。

ルギーを比べると p 型半導体側の方が n 型半導体側よりも高くなり，キャリアが p 型半導体側に拡散しにくい構造になっている．一方，(0001) InGaN/GaN LED のように QW に，大きな内部電界が p 型から n 型半導体の方向に存在する場合，QW の両側のポテンシャルエネルギーは n 型の方が高くなっており，しかも，QW の内部電界により p 型半導体側へ加速されると考えられる．したがって，電子が n 型半導体側から注入された時に， p 型半導体側へ抜けやすといえる．この障壁の低さは，注入電流が大きくなり，QW 内の状態密度が埋まっていくほど電子のオーバーフローに繋がると考えられる．この差は (11 $\bar{2}2$) InGaN/GaN QW のを利用した発光デバイスへの応用に，非常に有利な点であると考えられる．

4.4 内部電界の評価

4.4.1 評価方法と理論的検討

節で述べたように本研究で作製した $\{11\bar{2}2\}$ LED は p - i - n 接合ダイオードであり， i 層の中央に挿入された QW には均一に電界がかかるように工夫している．この LED において逆バイアスを印加して PL を測定することでそのバイアスとピーク位置のシフトから内部電界を評価できる．

前節では，QW の両端に分極に起因するキャリアの存在を仮定して内部電界を定めた．一方，本節では QW にかかっている内部電界を求めるために以下のように仮定する．QW には拡散電位に起因する電界 F_{bi} と内部電界 F_{int} ががかかっており，それらの和が実効的に QW にかかっている内部電界である．また，電荷分布は図 4.11 井戸に内部電界がかかっていない時， p - n 接合の両端の導電帯のポテンシャルエネルギー差は， eV_d である．一方，井戸に内部電界

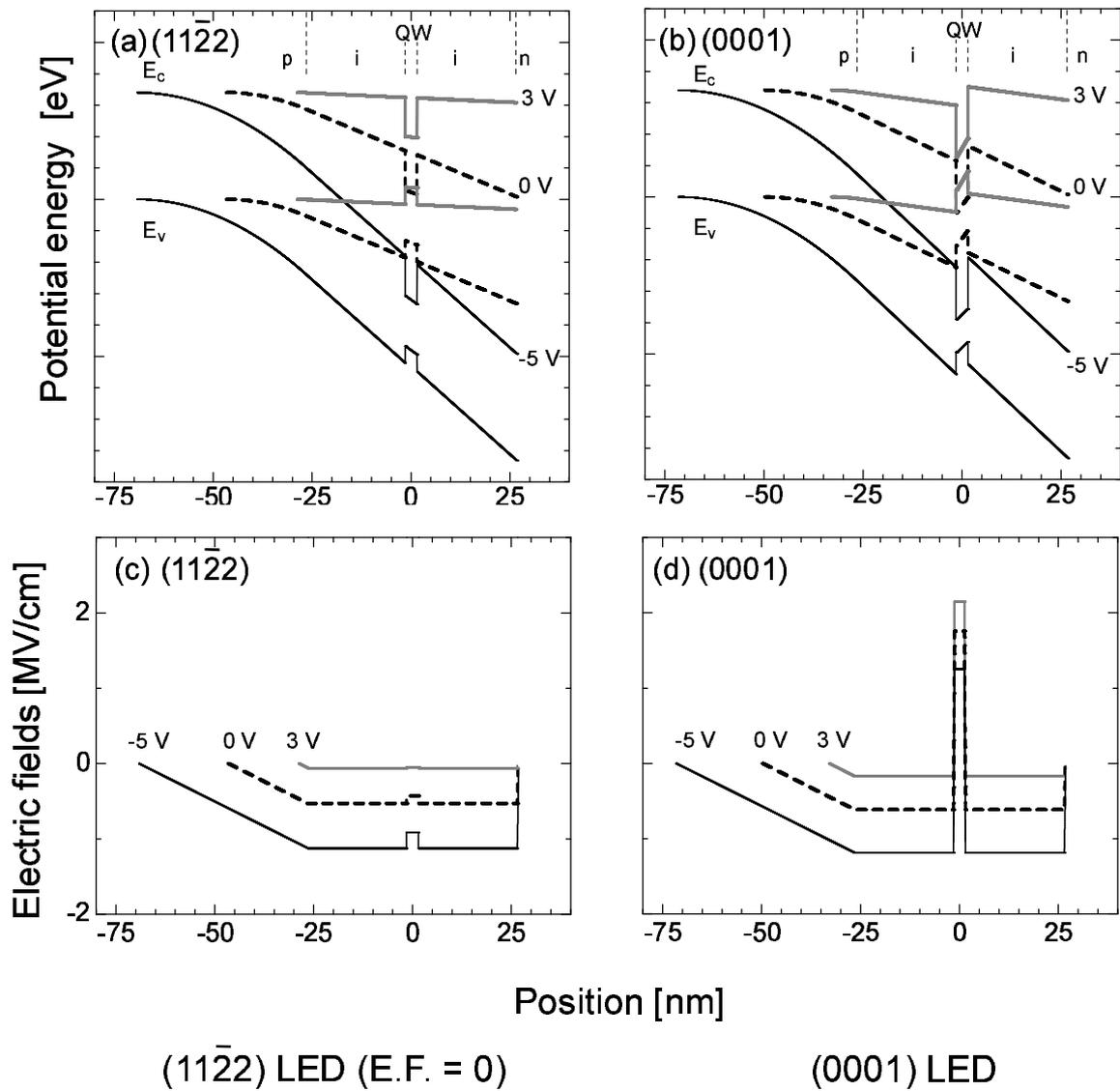


図 4.10 p - i - n 接合のエネルギーバンド構造. (a)(11 $\bar{2}2$), (b) (0001). また, (c), (d) はそれぞれ (11 $\bar{2}2$) と (0001) の電界を示す. GaN/InGaN のエネルギーバンドオフセットは, $\Delta E_C/\Delta E_V = 7/3$ とした.

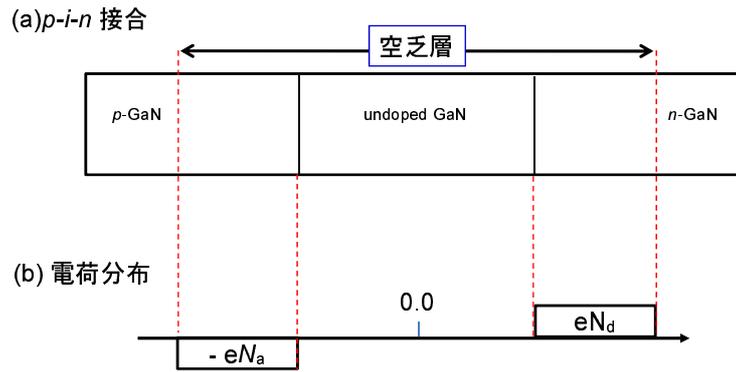


図 4.11 逆バイアス PL による内部電界解析での (a) $p-i-n$ 接合の概略図および (b) 電荷分布 .

がかかっている場合, QW 数, QW 幅を N_w , L_w として $eN_w F_{\text{int}} L_w$ が QW にかかるが, その分を $p-n$ 接合に外部からそれと同じ分だけ印加電圧がかかったと考えて, $e(V_d - N_w F_{\text{int}} L_w)$ と考えると井戸にかかる電界は拡散電位に起因する電界 F_{bi} のみを考えることができる .

式 (4.1) を前節同様, 境界条件を $\frac{dV(x)}{dx} = 0$

- (1) 空乏層の p 型端での $\frac{dV(x)}{dx} = 0$, $V(x) = 0$,
- (2) n 型端での $\frac{dV(x)}{dx} = 0$, $V(x) = V_d - V_{\text{ext}} - N_w F_{\text{int}} L_w$,
- (3) 各界面で $V(x)$ が連続 .

として, ポアソン方程式を解くと, 空乏層幅 d_d , 拡散電位に起因する電界 F_{bi} が以下のようになる .

$$d_d = -d_u + \sqrt{d_u^2 + 2 \left(\frac{N_a + N_d}{N_a N_d} \right) \frac{(V_d - V_{\text{ext}}) \epsilon_0 \epsilon}{e}}, \quad (4.5)$$

$$F_{\text{bi}} = \frac{V_d - V_{\text{ext}} - N_w F_{\text{int}} L_w}{d_u + d_d/2}. \quad (4.6)$$

従って, 量子井戸にかかる電界 F_{QW} は,

$$F_{\text{QW}} = \frac{V_d - V_{\text{ext}} - N_w F_{\text{int}} L_w}{d_u + d_d/2} + F_{\text{int}}, \quad (4.7)$$

となる . 量子井戸の発光遷移エネルギーは, 井戸内に電界が存在する場合はポテンシャルが井戸内で一定ではないため, 数値的に解く必要がある [9] . 以下ではビルトインポテンシャルがかかっていないに QW にかかる内部電界 (ピエゾ分極 + 自発分極に起因する電界) を見積もる為に, 上記で導いた $p-i-n$ 接合内の QW にかかる電界の理論式を用いて逆バイアス PL での発光遷移エネルギーの印加電圧依存性の実験値をフィッティングを行った . パラメータは In 組成, QW 幅, QW に内在する内部電界である .

4.4.2 内部電界の見積もり

{11 $\bar{2}2$ } LED にバイアスを印加して PL を測定した．PL スペクトルのみの変化を評価する為に，順方向バイアスにおいては，試料の EL が生じる電圧未満まで印加した．また，逆方向バイアス時においては，PL 強度が次第に弱くなっていくが，スペクトルが確認出来る電圧まで印加した．励起には，He-Cd レーザの 325 nm を用い，励起密度を 255 W/cm² とした．(11 $\bar{2}2$) 青色および緑色 LED，($\bar{1}\bar{1}2\bar{2}$) 琥珀色 LED において測定を行った．各 LED における印加電圧と PL スペクトルの関係の一例を図 4.12 に示す [10]．図 4.12 のように，各 LED と

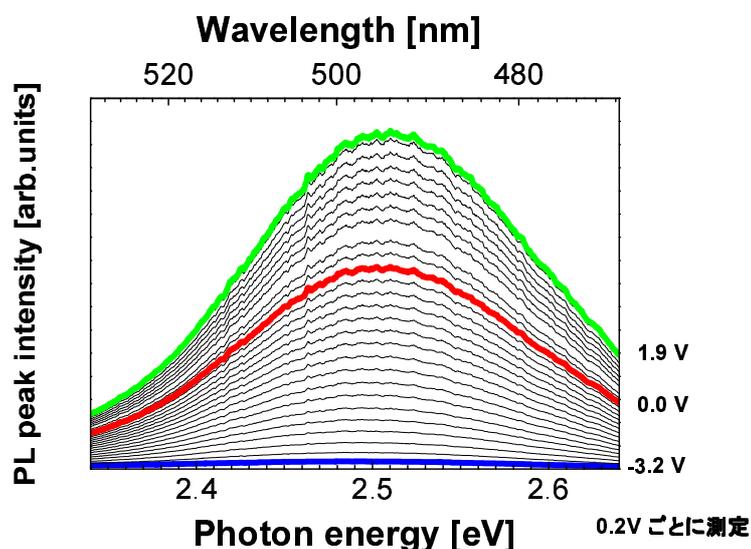


図 4.12 逆バイアス PL 測定結果の一例 [10]．青緑色発光 (11 $\bar{2}2$)InGaN/GaN LED.

もに印加電圧を下げゆくと，スペクトル強度が減少していった．また，各スペクトルをガウシアンカーブを仮定してフィットして求めたピーク位置 (発光遷移エネルギー) との印加電圧依存性の一例を図 4.13 に示す．図 4.13 (a) は緑色発光 (11 $\bar{2}2$) InGaN/GaN QW LED，(b) はほぼ (a) と同じ構造で同じ波長程度で緑色発光する (0001) InGaN/GaN QW LED の結果である．図 4.10 で求めたバンド構造とともに考えると，(11 $\bar{2}2$) では (0001) に比べて内部電界が低減されているので，バイアスなしの状態から逆バイアスを印加していった場合に発光遷移エネルギーはレッドシフトする．一方，(0001) では逆バイアスを印加していった場合，発光遷移エネルギーはブルーシフトすると予測できるが，図 4.13 の結果と符合する．

そして，図 4.13 の実線は上記の方法でフィッティングした結果を示す．*n* 型から *p* 型へ向かう方向を電界の正の向きとして，内部電界は緑色発光 (11 $\bar{2}2$) InGaN/GaN QW LED で -0.1 MV/cm，緑色発光 (0001)InGaN/GaN QW LED で -1.88 MV/cm という結果になった．その他のサンプルのフィッティング結果を表 4.3 に示す．内部電界について，表 4.3 から (11 $\bar{2}2$)

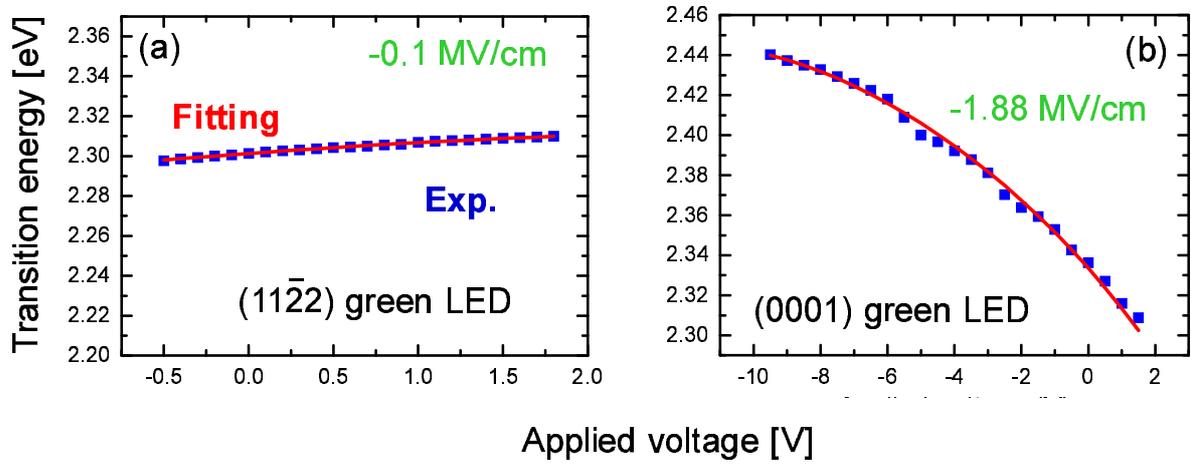


図 4.13 $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ InGaN/GaN QW LED の逆バイアス印加 PL の発光遷移エネルギーの印加電圧依存性 . (a) 緑色発光 $(11\bar{2}2)$ InGaN/GaN QW LED, (b) 緑色発光 (0001) InGaN/GaN QW LED. 正方形のプロットは実験値を, 実線はフィッティング結果を表す .

表 4.3 逆バイアス PL フィッティング結果

フィッティング結果				
sample		井戸幅 [nm]	組成 [%]	電界 [MV/cm]
$(11\bar{2}2)$	blue	2.0	33	-0.18
	green	2.5	37	-0.06
	amber	2.1	50	-0.26
$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	amber	2.1	50	0.43
(0001)	purple	3.0	14	-0.89
	green	3.0	31	-1.87

と $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ で内部電界が反対方向に働いているという点はそれぞれの面で極性が反転しているということを示唆している。

4.5 まとめ

今回作製された $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN LED の出力や外部量子効率、作製以前の報告に比べて 2 桁程度向上しており、転位密度が低い $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板を用いたホモエピタキシーによって結晶性が向上したことによる効果が確認できた。また、逆バイアス PL により内部電界の値が求められ、 (0001) に比べて $\{11\bar{2}2\}$ では内部電界が 1 桁程度低減していることが示唆された。以上より、 $\{11\bar{2}2\}$ は LED 応用において有用であると考えられる。

参考文献

- [1] C. Gourdon, and P. Lavallard, *Physica Status Solidi (b)* **153**, 641 (1989).
- [2] T. Onuma, S. F. Chichibu, T. Aoyama, K. Nakajima, P. Ahmet, T. Azuhata, T. Chikyow, T. Sota, S. Nagahama, and T. Mukai, *Japanese Journal of Applied Physics* **42**, 7276-7283 (2003).
- [3] A. Kaneta, K. Okamoto, Y. Kawakami, Sg. Fujita, G. Marutsuki, Y. Narukawa, and T. Mukai, *Applied Physics Letters*, **81** 4353-4355 (2005).
- [4] A. Kaneta, M. Funato, and Y. Kawakami *Physical Review B*, **78** 123517 (2008).
- [5] A. Chakraborty, T. J. Baker, B. A. Haskell, F. WU, J. S. Speck, S. P. Denbaars, S. Nakamura, and U. K. Mishra, *Japanese Journal of Applied Physics* **44**, L945-L947 (2005).
- [6] R. Sharma, P. M. Pattison, H. Masui, R. M. Farrell, T. J. Baker, B. A. Haskel, F. Wu, J. S. Speck, S. P. Denbaars, and S. Nakamura, *Applied Physics Letters*, **87** 231110 (2005).
- [7] W. Ehrenberg, *Proceedings of Physical Society A* **63**, 75-76 (1950).
- [8] O. Ambacher, R. Dimitrov, M. Stutzmann, B. E. Foutz, M. J. Murphy, J. A. Smart, J. R. Shealy, N. G. Weimann, K. Chu, M. Chumbes, B. Green, A. J. Sierakowski, W. J. Schaff, and L. F. Eastman, *Physica Status Solidi (b)* **216**, 381-389 (1999).
- [9] 川口 佳伸, 京都大学修士論文 (2003).
- [10] 井上 大輔, 京都大学学士論文 (2006).

第 5 章

{11 $\bar{2}2$ } InGaN/GaN QW の偏光特性

5.1 はじめに

(0001) (In)GaN の A バンド遷移は $E \perp [0001]$ (c 軸) に強く偏光している．そのため， c 軸に沿った方向から発光を観測するとランダム偏光が観測され， c 軸に垂直な方向から発光を観測するとほぼ直線偏光が観測される．{11 $\bar{2}2$ } 等の半極性面はこれらの中に位置するため，偏光特性もランダム偏光と直線偏光の中間的な偏光特性を示す．半極性面である {11 $\bar{2}2$ } は (0001) に比べて原子配列の面内対称性が低いため，バンド構造にも異方性が存在し，バンド間遷移には光学異方性が存在する．{11 $\bar{2}2$ } GaN バルク結晶の価電子帯トップの A バンドの偏光度は 0.56, B バンドはほぼ無偏光であると実験的，理論的にも示されている [1](図 5.1)．(In)GaN 系の偏光特性 (光学異方性) に関する研究の報告を簡単に振り返ると，今までに，極

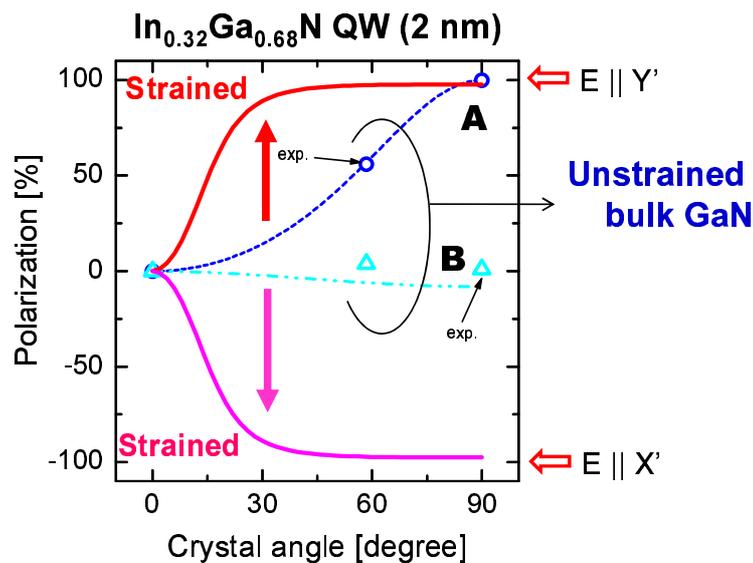


図 5.1 $k \cdot p$ 摂動法に基づく (In)GaN 偏光度の結晶角度依存性 [1] .

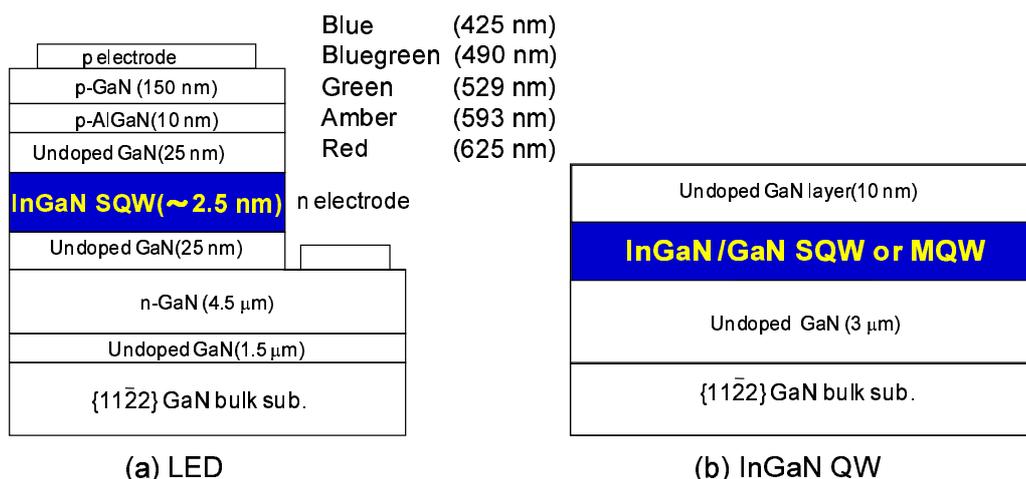


図 5.2 測定サンプルの構造 .

性面 [2] , 無極性面 [3–5] , 半極性面の GaN バルク結晶 [6] , または無極性面 InGaN / GaN QW [7, 8] の偏光特性に関する報告があった . また , 半極性面 InGaN QW においては , ヘテロエピタキシーによる $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の偏光特性に関する報告があった [9] . 本研究を進める間も無極性面 InGaN/GaN QW [10, 11] , や半極性面の報告 [11, 12] があり , また理論面では [13, 14] などの報告があり , 非極性面の偏光特性に関する研究は現在盛んにおこなわれている . しかし , 特筆すべきことは , これらの報告での (In)GaN の偏光は , すべて c 軸に垂直に偏光していた .

そのような中 , 本研究では半極性 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の偏光特性を詳細に測定し , バルクに比べて大きな偏光度と偏光スイッチ現象を見出した . 以下に実験方法 , 結果 , 考察などを纏める .

5.2 サンプル構造および測定系

5.2.1 サンプル構造

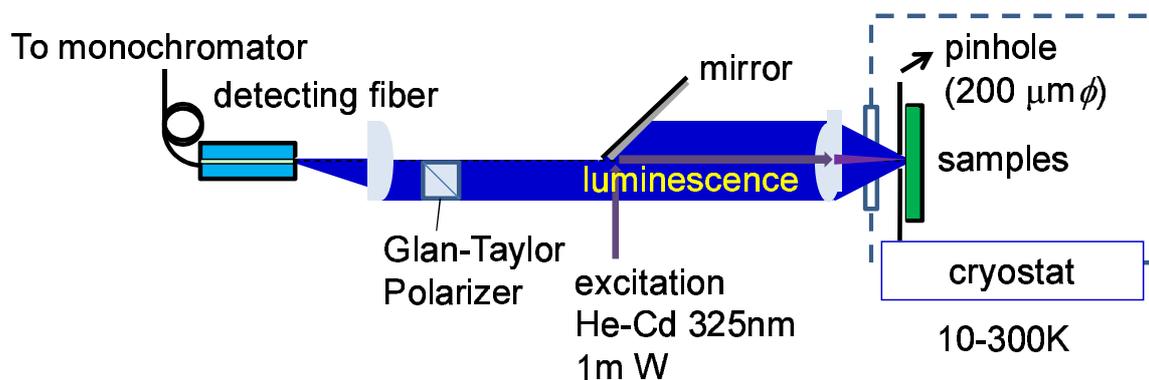
前章までに述べた $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN SQW および MQW と $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN SQW を活性層とする LED を測定した . $\{11\bar{2}2\}$ LED については , 青 (425 nm) , 青緑 (490 nm) , 緑 (529 nm) , 琥珀 (593 nm) , 赤色 (625 nm) 発光を有する LED を測定した (括弧内はおよその発光波長を示す) .

また , 偏光特性を測定した全サンプルの In 組成 , InGaIn 膜厚 , ピーク差 ($E_{[1\bar{1}23]} - E_{[1\bar{1}00]}$) , の特性を表 5.1 に示す .

表 5.1 偏光特性を測定した全サンプルの In 組成, InGaN 膜厚, 基板面方位, ピークエネルギー差 ($[\bar{1}\bar{1}23]$ - $[1\bar{1}00]$).

	In 組成	InGaN 膜厚 [nm]	$(11\bar{2}2) / (\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	ピーク差 [eV]
InGaN QW	18	0.8	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	0.068
	13	1.1	$(11\bar{2}2)$	0.002
	4	1.1	$(11\bar{2}2)$	0.006
	29	1.0	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	0.033
	25	1.5	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	0.038
	19	1.7	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	0.045
	17	2.1	$(11\bar{2}2)$	0.005
	23	2.5	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	0.064
	18	3.0	$(11\bar{2}2)$	0.011
	29	3.0	$(11\bar{2}2)$	0.001
	15	3.0	$(11\bar{2}2)$	0.000
	9	3.4	$(11\bar{2}2)$	0.039
	17	3.4	$(11\bar{2}2)$	0.055
	10	3.4	$(11\bar{2}2)$	0.018
	16	3.7	$(11\bar{2}2)$	0.023
	14	6.0	$(11\bar{2}2)$	0.000
	14	7.4	$(11\bar{2}2)$	0.031
	12	10.0	$(11\bar{2}2)$	0.000
	21	5.1	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	0.026
	19	4.1	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	0.011
22	2.0	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	0.014	
19	4.0	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	0.021	
35	2.0	$(11\bar{2}2)$	-0.023	
31	3.0	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	-0.003	
LED	17	2.4	$(11\bar{2}2)$	0.016
	30	2.4	$(11\bar{2}2)$	-0.032
	38	2.2	$(11\bar{2}2)$	-0.031
	47	2.4	$(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$	-0.026
	48	2.9	$(11\bar{2}2)$	-0.057

(a) PL



(b) EL

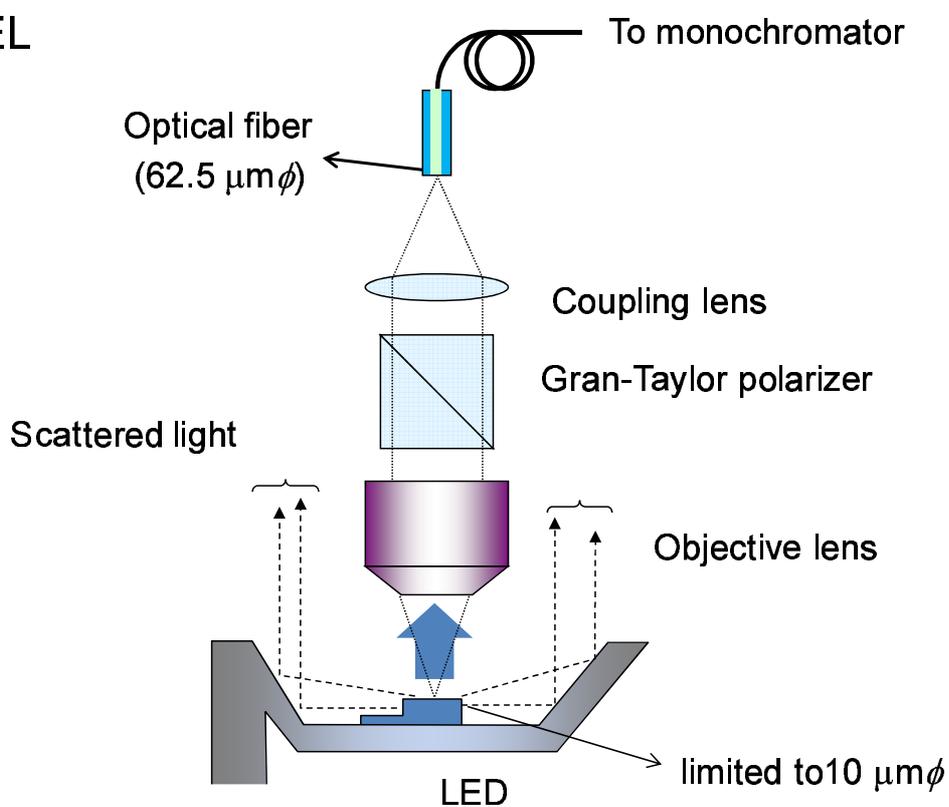


図 5.3 偏光特性測定系 (a)PL, (b) EL.

5.2.2 測定系

$\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW における偏光特性は PL, $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW LED の偏光特性は EL および PL で測定を行った。

活性層からの発光がサンプル裏面や端面，LED の台座等で散乱され，QW からの直接のシグナルと同時に検出されると測定されるべき純粋な偏光特性が測定できないので，本研究では偏光特性の測定においては散乱光の抑制を心がけた．

散乱光の検出を抑制するために，PL においてはマクロスコピックな測定系において，サンプル上に 100 - 200 μm のピンホールを置き，さらにサンプルの裏面，端面を透過した光がサンプル台座などで散乱されないように，裏面と端面を黒塗りした．励起光は He-Cd レーザの 325 nm を用いた．励起光はサンプルに垂直に入射し，サンプルを励起する．サンプルの発光は，直径 5 cm のレンズでコリメートされ，光学軸に垂直に設置されたグランテイラー偏光子を通過したあと，レンズで直径 200 μm のバンドルファイバに集光される．ファイバの他端から出射した光は分光器 (25 cm または 50 cm) で分光されマルチチャンネル CCD で検出した．

EL においては，顕微鏡を用いて観察領域を制限した．具体的な設計としては，サンプル表面から垂直方向に出た光は，焦点距離 3.7 mm，40 倍，N. A. = 0.6 の対物レンズを通り平行光となった後，光学軸に垂直に設置したグランテイラー偏光子を通過し，その後，受光側に設けられたモードフィールド径 62.5 μm のマルチモードファイバーに焦点距離 25 mm のカップリングレンズを用いて集光され，ファイバーを通過した光は分光器 (50 cm) で分光されマルチチャンネル CCD で検出される．このファイバーをピンホールとして用いサンプルにおける観察領域を面内方向に約 10 μm ，光学軸方向に約 14 μm に制限した．

測定温度は，PL においては He を冷媒とするクライオスタットを用いて温度を調節し，EL においては室温で測定した．励起パワー密度あるいは注入電流密度は，PL においては He-Cd レーザ (325nm), 12.7W/cm²，EL では 0.5 A/cm² の低キャリア密度においておこなった．こうすることで， Γ 点近傍の偏光特性を見ることができると考えた．偏光スペクトルは PL, EL のどちらの系においても，グランテイラー偏光子を回転させることで測定した．測定系の偏光特性は予めランダム偏光を呈するはずの (0001) InGa_N / Ga_N QW サンプルにおいて確かめた．その結果，系の偏光特性はマクロスコピック PL，顕微 EL 測定系ともにほぼなかった．また，それぞれの系で測定された偏光特性は互いに一致していることを強調したい．

5.2.3 方位の定義

{11 $\bar{2}2$ } 面において光学的に重要な方向は [1 $\bar{1}00$] (\perp [0001]) とそれに垂直な [$\bar{1}\bar{1}23$] である．結晶構造とともにそれらの軸を図 5.4 に示す．(0001) において [11 $\bar{2}0$] 方向を X 軸，[$\bar{1}100$] 方向を Y 軸，[0001](成長方向) を Z 軸とおく．{11 $\bar{2}2$ } 等の半極性面は [1 $\bar{1}00$] 軸を回転軸として面が回転することによってできる．そこで，半極性面での軸を新たに [$\bar{1}100$] 方向を Y'，成長方向 (面に垂直) を Z'，X 軸を Y' を回転軸として半極性面に平行になるように設置した軸を X' (X', Y', Z' は互いに直交) とする．

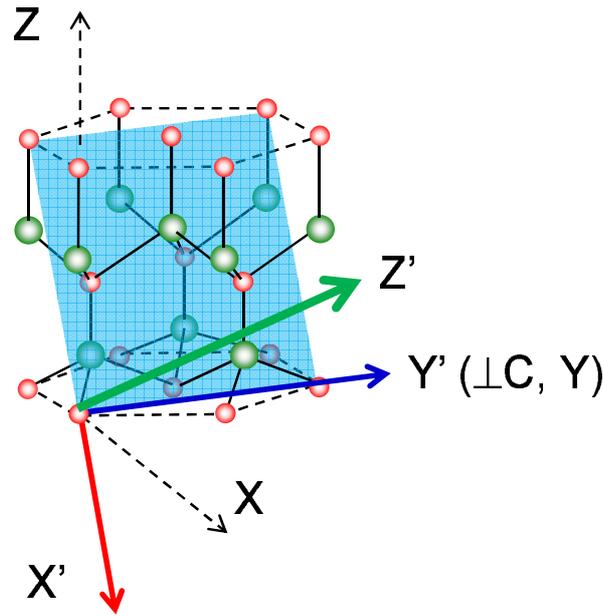


図 5.4 (0001) 面と $\{11\bar{2}2\}$ での軸の定義 .

5.3 偏光ルミネッセンス

5.3.1 PL 強度の偏光子角度依存性

まずは, PL の系において, InGaN(3.4 nm)/GaN QW (In = 17%) の偏光特性を測定した. 結果を図 5.5 に示す. $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW, $\{11\bar{2}2\}$ GaN ホモエピタキシャル膜ともに偏光子の角度を回転させると電界ベクトルが $\mathbf{E} \parallel [1\bar{1}00]$ のときにスペクトル強度が最大, $\mathbf{E} \parallel [\bar{1}\bar{1}23]$ のときに最小と, 同じ傾向を示した. しかし, $\mathbf{E} \parallel [1\bar{1}00]$ でのスペクトル強度を 1 とすると $\mathbf{E} \parallel [\bar{1}\bar{1}23]$ での強度比が GaN では 0.37 であるのに対し, $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW ではより強度が弱く, 0.18 であった. ここで, 偏光度を以下のように定義する,

$$\rho = \frac{I_{[1\bar{1}00]} - I_{[\bar{1}\bar{1}23]}}{I_{[1\bar{1}00]} + I_{[\bar{1}\bar{1}23]}}. \quad (5.1)$$

$I_{[1\bar{1}00]}, I_{[\bar{1}\bar{1}23]}$ はそれぞれ $\mathbf{E} \parallel [1\bar{1}00], \mathbf{E} \parallel [\bar{1}\bar{1}23]$ でのスペクトル強度である.

この結果から GaN バルク結晶の $\rho = 0.46$ に比べて, $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の $\rho = 0.69$ となり, QW の方が偏光度が増大した. 以下では, $\mathbf{E} \parallel [1\bar{1}00]$ と $\mathbf{E} \parallel [\bar{1}\bar{1}23]$ での偏光ルミネッセンススペクトルのみを取り上げ, 詳細に議論してゆく.

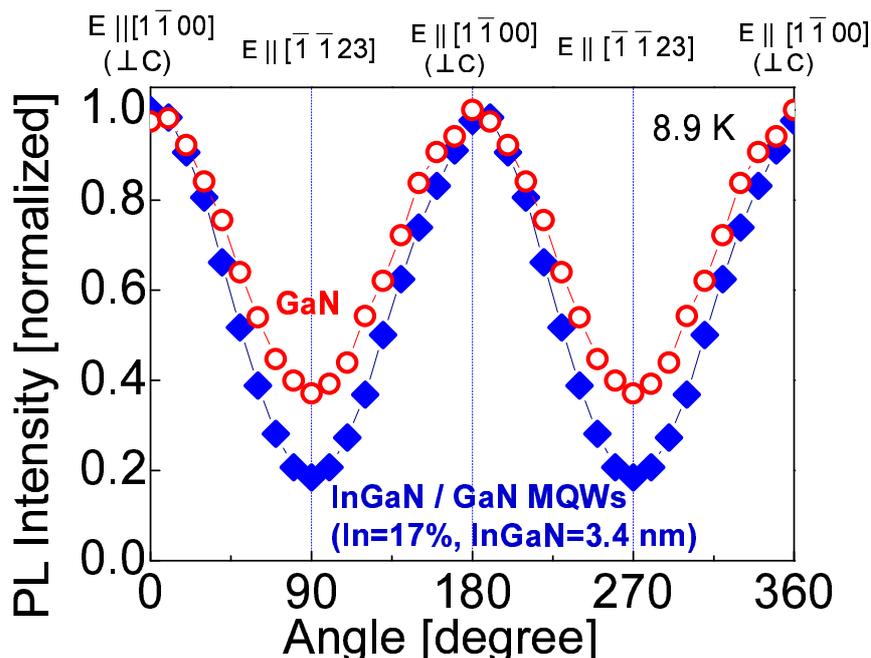


図 5.5 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW (青色菱形) および GaN A 励起子 (赤色丸印) の偏光スペクトル強度の偏光子角度依存性。

5.3.2 $\{11\bar{2}2\}$ LED における偏光反転

次に $\{11\bar{2}2\}$ LED の典型的な偏光 EL スペクトルをプロットした。

これら LED の膜厚は約 2.5 nm である。In = 17% の青色 LED は $[1\bar{1}00]$ 方向の発光の方が $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向よりも強く観測され、 $[1\bar{1}00]$ 方向の偏光が観測された。一方、より In 組成が大きい、青緑色よりも長波長 LED の EL は $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向の発光が $[1\bar{1}00]$ 方向の発光よりも大きくなっており、 $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向に強く偏光している。つまり、青色と青緑色の間で偏光方向が 90 度反転していることがわかった。

5.3.3 偏光方向の In 組成および膜厚依存性

測定した全サンプルの偏光方向の In 組成と膜厚依存性を図 5.7 にプロットした。青色は $[1\bar{1}00]$ 方向の発光の方が $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向よりも強い場合を示し、赤色は逆の傾向を示す。また、実線は (0001) InGaIn/GaN の臨界膜厚の計算値である。参考として、本研究で一時的に (0001) での値を採用した理由は、 $\{11\bar{2}2\}$ InGaIn/GaN での歪の緩和過程が未だ明らかにされていないためである。In 組成 = 30% を境に偏光方向が反転していることがわかる。また、本実験条件の範囲では、偏光方向は InGaIn 膜厚に依存していないと考えられる。

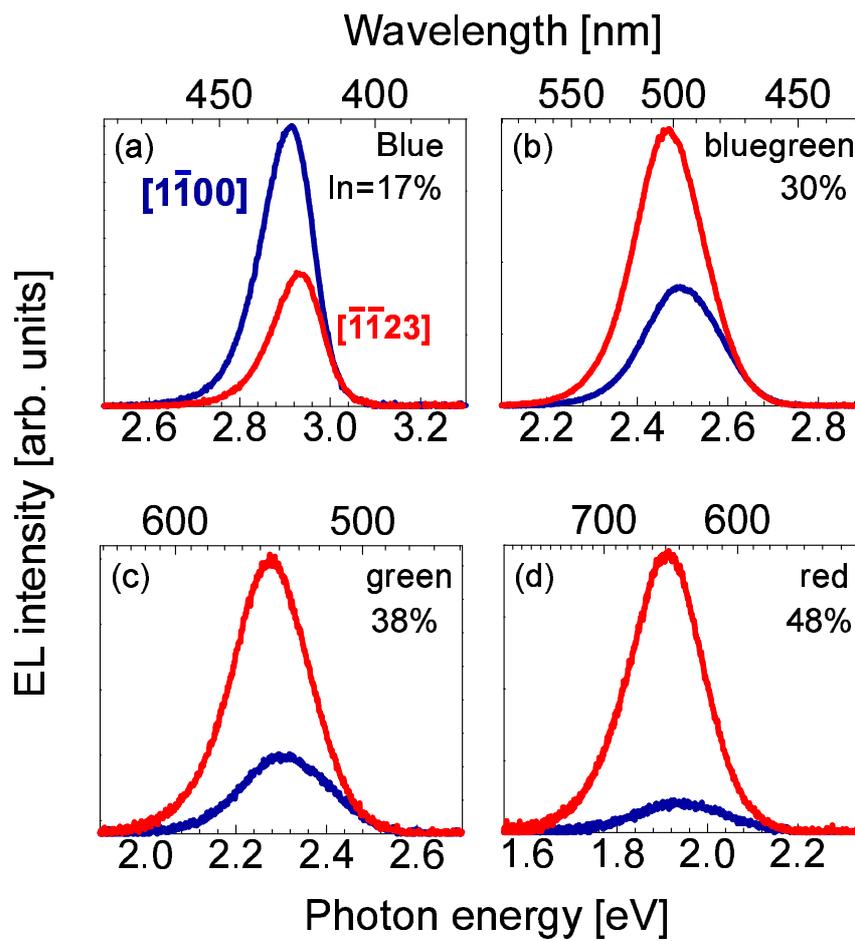
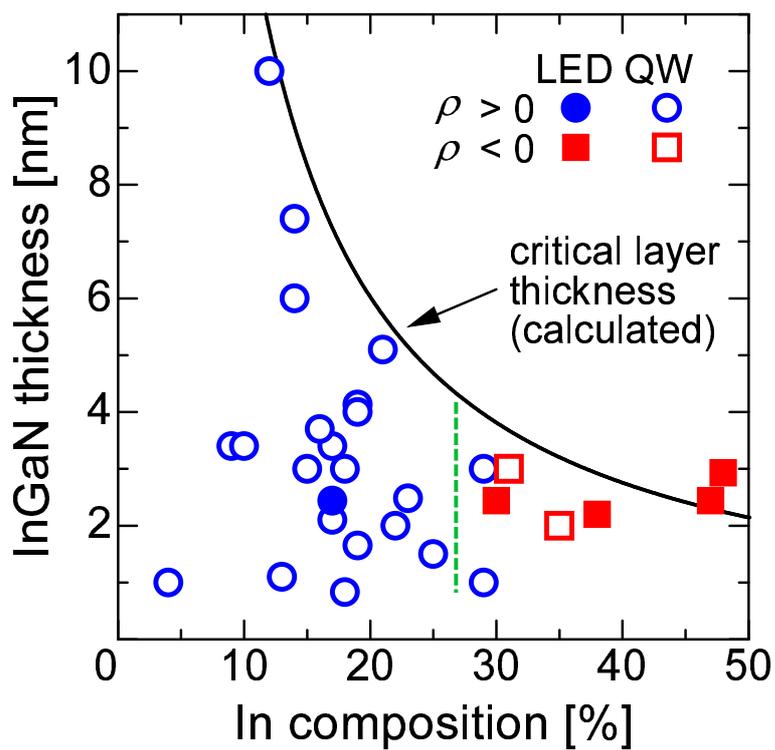


図 5.6 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN / GaN QW LED の偏光 EL スペクトル . (0.5 mA DC , 室温)



$$I_{[1\bar{1}00]} > I_{[\bar{1}\bar{1}23]} \leftarrow \text{---} \text{---} \text{---} \rightarrow I_{[1\bar{1}00]} < I_{[\bar{1}\bar{1}23]}$$

図 5.7 $\{11\bar{2}\}$ InGaN / GaN QW 偏光方向の In 組成および InGaN 膜厚依存性.

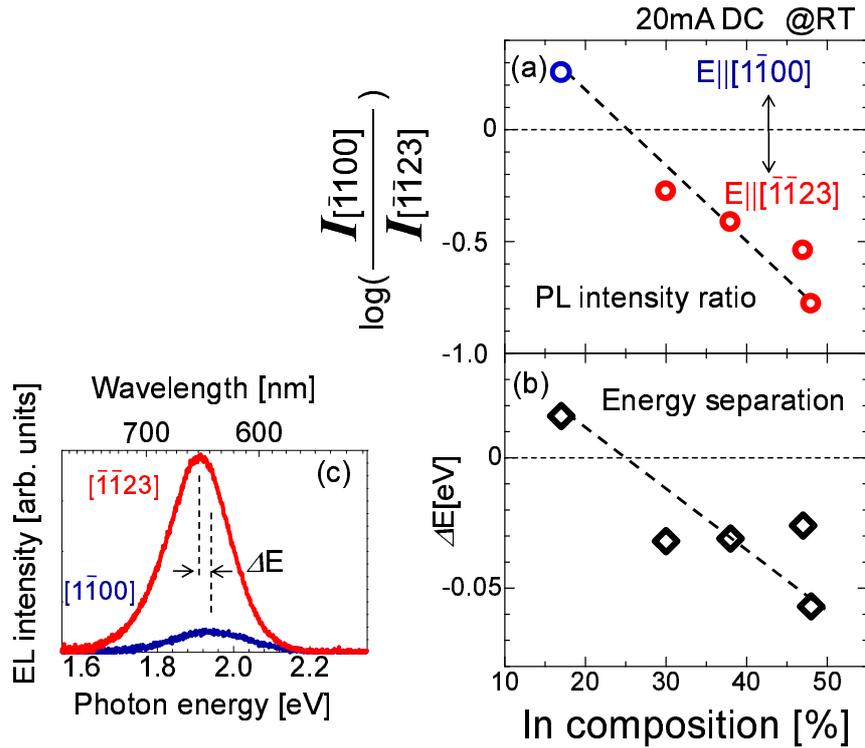


図 5.8 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN / GaN QW 偏光方向の In 組成および InGaN 膜厚依存性 .

より詳しくスペクトルを観察する．以下の議論では全体的なスペクトルは A バンドと B バンドの両成分を考慮しなくてはならないことを示す． $\{11\bar{2}2\}$ LED における EL の $[1\bar{1}00]$ と $[1\bar{1}23]$ 方向のスペクトルの強度比を In 組成の関数として図 5.8(a) に対数プロットした．青色 LED と青緑色 LED の間で強度比の対数符号は正から負に変化している．これは青色と青緑色 LED の間で EL スペクトルの偏光方向が $[1\bar{1}00]$ 方向から $[1\bar{1}23]$ 方向へ切り替わっていることを意味する．さらに， $[1\bar{1}00]$ 方向のスペクトルのピークエネルギーから $[1\bar{1}23]$ 方向のピークエネルギーを差し引いた値を ΔE とし (図 5.8(c) に定義の図を示す)，青色から赤色 LED までの ΔE を In 組成の関数として図 5.8(b) にプロットしたところ，青色と青緑色のプロット間で正から負に転じていた．これは強いスペクトルのピークの方が弱いスペクトルのピーク位置よりも常に低エネルギー側に位置することを意味する．以上の考察から全体的な偏光特性は A バンドと B バンドの両偏光成分を考える必要があると言える．また，価電子帯構造を変化させる要因としては，量子効果と歪の効果が考えられる．(InN という材料自体の物性が未だよく解明されていない．この影響は現段階ではとりあえず議論せず，後述する．)

以下では量子効果の偏光度への影響を探るために，In 組成を固定して InGaN 膜厚を変化させた一連のサンプルにおいて偏光特性を評価した．また，歪の効果偏光度への影響を考察するために，InGaN 膜厚を固定して，In 組成を変化させた一連のサンプルにおいて偏光特性を評価した．

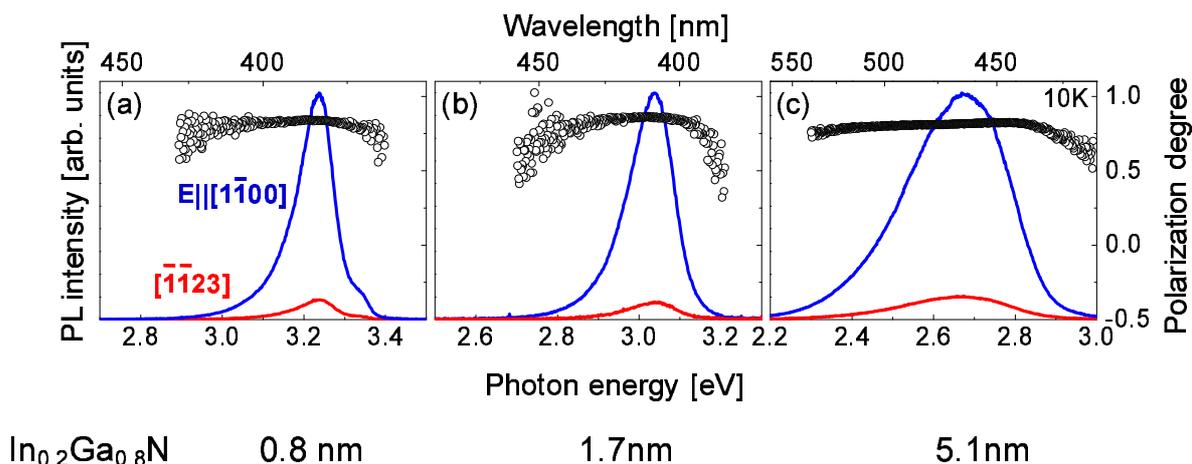


図 5.9 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN / GaN QW 低温 (10K) 偏光 PL スペクトルおよび各エネルギーでの偏光度. $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ 膜厚は, (a) 0.8 nm, (b) 1.7 nm, (c) 5.1 nm .

5.3.4 低温偏光 PL による A バンドのみの偏光特性の解析

本節では, 低温で測定することにより B バンドへの熱エネルギーによるキャリアの分布を抑制し, A バンド遷移のみを観測する目的で行った. 測定結果を図 5.9 に示す. すべてのサンプルにおいて $[1\bar{1}00]$ 方向のスペクトル強度の方が $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向よりも強く, 各エネルギーでの偏光度 (ρ) はピーク付近でエネルギー依存性がなく, $\rho \sim 0.8$ で一定である. また, すべての膜厚においても同様に $\rho \sim 0.8$ となっていた. 以上の結果より量子効果と In 組成の不均一広がりは A バンドの偏光特性にほとんど影響しないと考えられる. それでは, A, B 両バンドの偏光特性を見積もるにはどうすればよいただろうか. 以下では, B バンド遷移も検出するために室温にて偏光特性を測定した.

5.3.5 $(11\bar{2}2)$ InGaN/GaN LED 偏光特性の注入電流依存性

つぎに, $\{11\bar{2}2\}$ LED の偏光特性の注入電流依存性を議論する. ここで示すのは, 緑色発光 ($\bar{1}\bar{1}2\bar{2}$)LED である. 注入電流を 0.5, 20, 40 mA のときの偏光 EL スペクトルを図 5.10 に示した. 図 5.10(a) で $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向と $[1\bar{1}00]$ 方向のスペクトルのピーク位置の関係を見ると, 必ず $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向のスペクトルの方が $[1\bar{1}00]$ 方向よりも低エネルギー側に存在し, 注入電流を増してもピーク差はほとんど広がらず $[1\bar{1}00]$ 方向の強度が大きくなっている. この結果より, 図 5.10(a), (b), (c) の各図の下側に模式的なエネルギーバンド図と各バンド遷移の強度を矢印で表した. 注入電流が増加するに従って, A バンドだけではなく, B バンドにもキャリアが分布していった結果, $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向のスペクトル強度に対する $[1\bar{1}00]$ 方向のスペクトル強度が次第

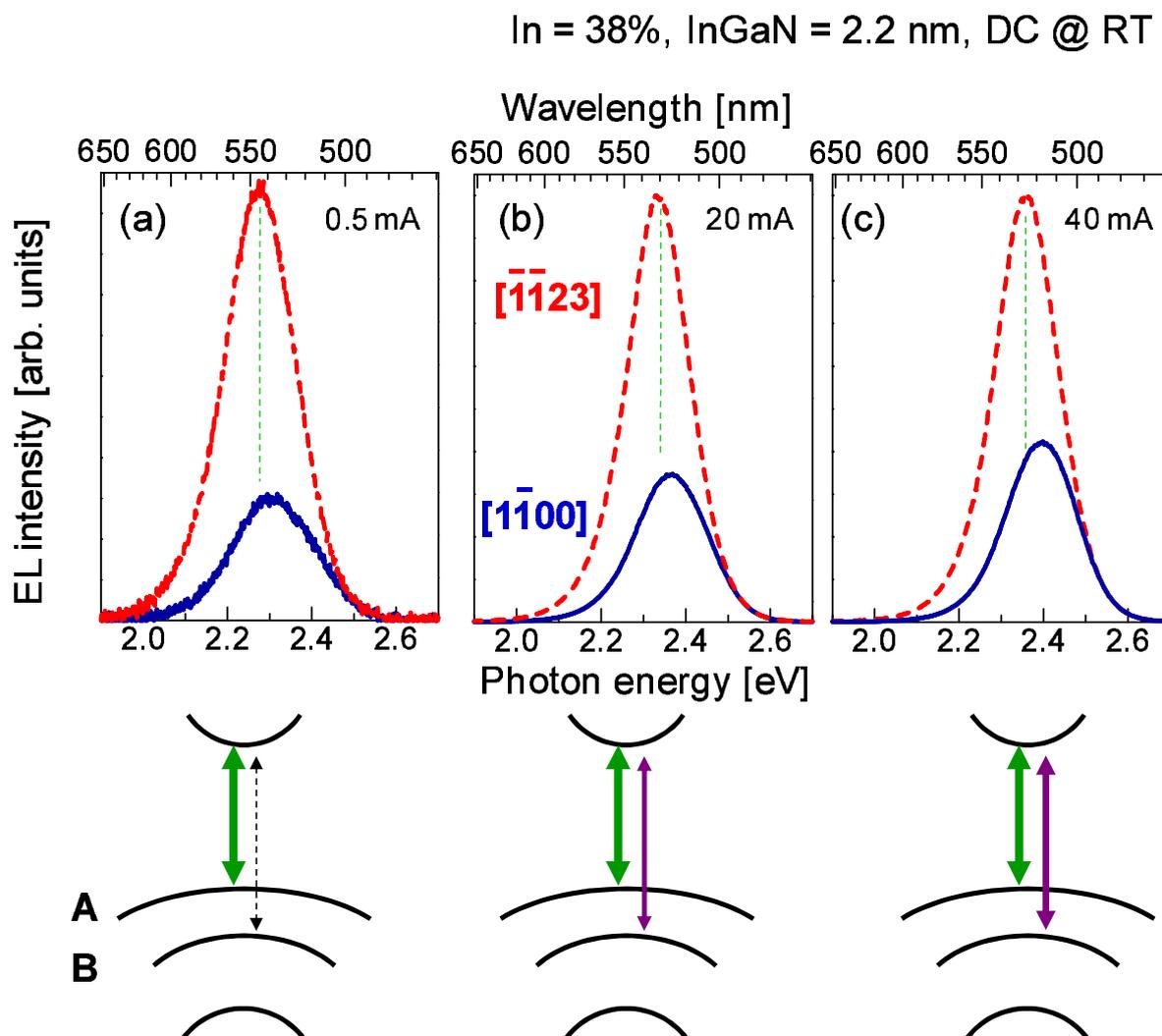


図 5.10 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN / GaN LED の偏光スペクトルの注入電流依存性 . (a) 0.5 mA DC, (b) 20 mA DC, (c) 40 mA DC, 各図の下にはバンドの模式図と遷移の強度を矢印で表した .

に大きくなっているものと考えられる .

5.3.6 各バンドの偏光度への分離

室温における PL の典型的な偏光スペクトルを図 5.11(a) に示した . このスペクトルは $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向へ偏光しているサンプルの偏光ルミネッセンススペクトルであり , 本節ではこのサンプルを利用して波形の分離方法を説明する . $[\bar{1}\bar{1}00]$, $[\bar{1}\bar{1}23]$ それぞれの偏光スペクトルは A, B バンド両成分を含むので , A, B バンド遷移の発光はガウシアン分布をしていると仮定して各方向のスペクトルを 2 つのガウシアンカーブでフィッティングした . フィッティング時のパ

ラメータは、1つのガウシアンカーブで積分値 A 、標準偏差 Σ 、ピーク位置 X_c の3つあり、これらが1つの方向について A, B バンドの分が必要であり、さらに $[1\bar{1}00]$ と $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向の合計 12 個ある。そのうち、偏光方向が代わってもピーク位置と標準偏差は両方向で同じであるはずなので、変数は 8 個に減る。

まず、強度が強い $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向のスペクトルは A バンドの偏光特性が支配的に含まれていると考えられるので、A バンド遷移のピーク位置と半値幅を $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向のスペクトルをから読み取った。それを初期値として $[\bar{1}\bar{1}23]$ スペクトルを 2 つのガウシアンカーブでフィッティングした。その結果をもって、次は、 $[1\bar{1}00]$ 方向のスペクトルを 2 つのガウシアンカーブでフィッティングした。このときに、 $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向のフィッティングから $[1\bar{1}00]$ 方向のフィッティングに移るときに、A, B バンド偏光成分のスペクトルピーク位置と半値幅は 2 つの方向で同じとして強度フィッティングを行った。順番に各方向で 2 つのガウシアンカーブでフィッティングし、パラメータが収束するまで繰り返した。以上より、A, B バンドにそれぞれ 2 つのガウシアンカーブが生成され、それらの積分値を使って式 (5.1) より各バンドの偏光度を見積もった。これらの結果より偏光スペクトルを A, B バンドの成分に分解することで各バンドにおける偏光特性を議論した。B バンド遷移成分は A バンド成分に比べて強度が弱く、 ΔE が大きいサンプルでは 20% 程度の不確かさが存在する。ここで、偏光度の符号は、+ は $[1\bar{1}00]$ 、- は $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向に偏光していることを意味している。

5.3.7 量子効果の偏光度への影響

In 組成約 20% のサンプルで、膜厚が 0.83, 1.64, 2.48, 4.13 nm のサンプルにおいて室温偏光 PL 測定を行い、A, B バンドの偏光度を上記の方法で見積もった。その結果、A バンドは $[1\bar{1}00]$ 方向に偏光しており、 ρ_A は 0.78-0.84 の範囲にあり、ほぼ膜厚に対して一定であった。この結果は、低温偏光 PL の図 (5.9) の結果と一致している。また、B バンド偏光度は $\rho_B \sim -1$ で膜厚に対してほぼ一定であった。これらの結果から量子閉じ込め効果は A, B 両バンドの偏光特性にほとんど影響していないことが見出された。

5.3.8 歪の偏光度への影響

膜厚約 2.5nm として、In 組成が異なるサンプルの偏光度を同様に調べた。結果を図 5.13 に示す。In 組成約 30% よりも低い領域では、A バンドの偏光は $[1\bar{1}00]$ 方向に偏光しており、B バンドの偏光は GaN のゼロから In 組成が増加するにつれて急激に -1 に近づいており、 $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向に偏光している。しかし、In 組成 30% 付近で各バンドの偏光方向が急激に反転し、In 組成が 30% よりも多くなると、A バンドは $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向へ偏光し $\rho_A \sim -0.8$ 、B バンドは $[1\bar{1}00]$ 方向へ偏光し $\rho_B \sim +1$ の偏光度となった。つまり、In 組成が増えたと歪が増加していき、

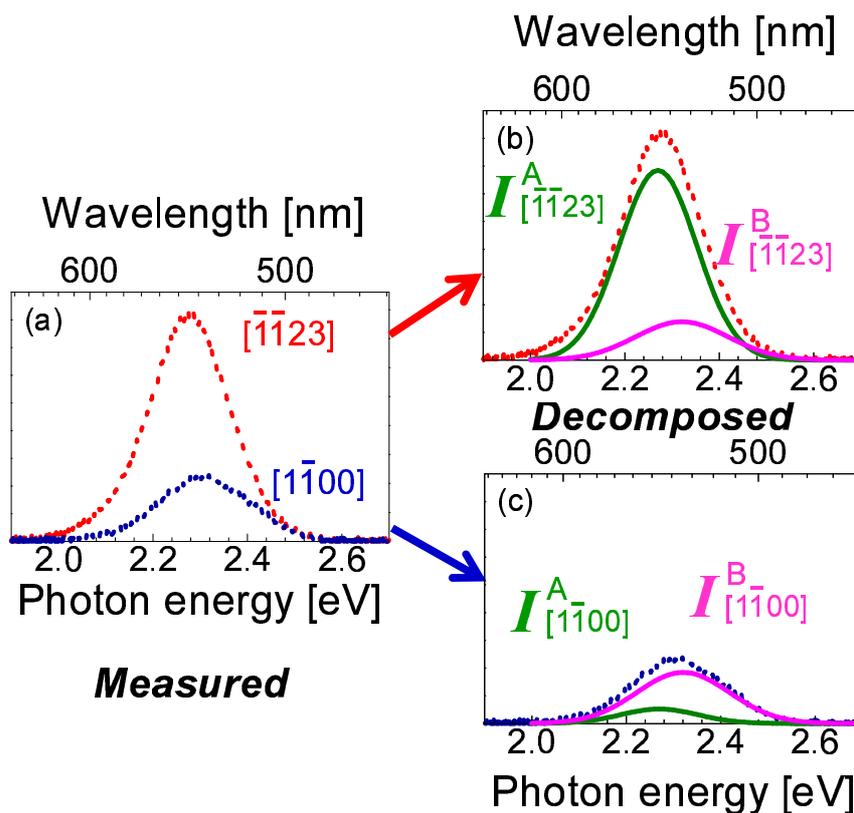


図 5.11 偏光スペクトルからの A, B バンド成分への分解.

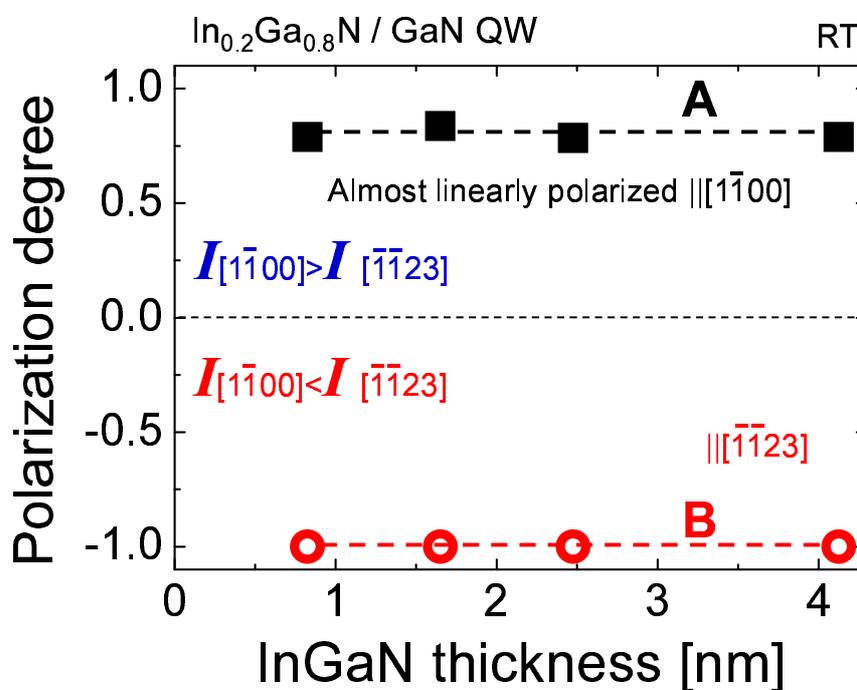


図 5.12 A, B バンド偏光度の InGaN 膜厚依存性 (量子閉じ込め効果の偏光度への影響).

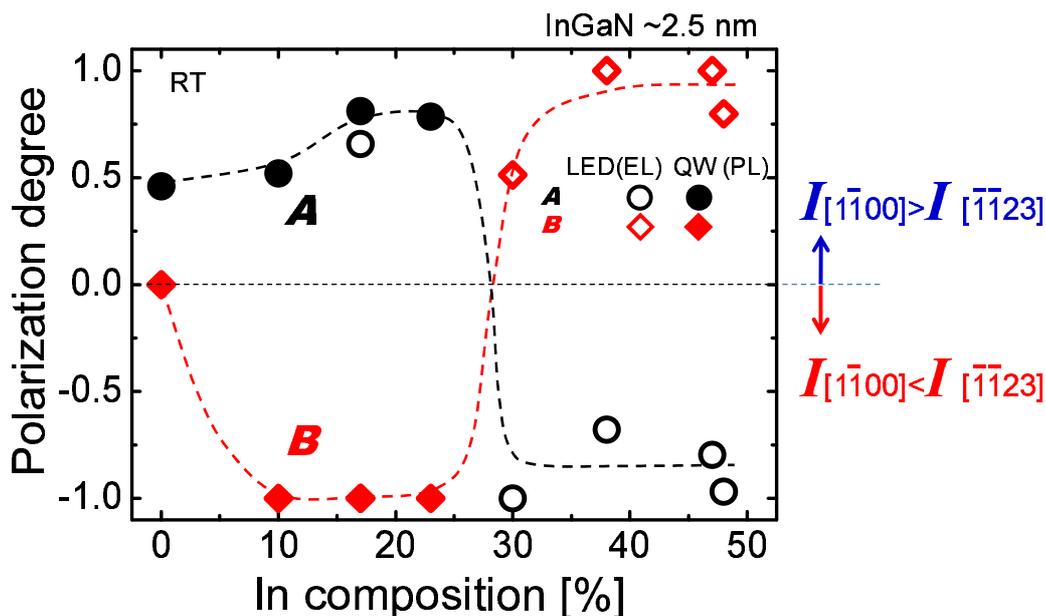


図 5.13 A, B バンド偏光度の In 組成依存性 (歪の偏光度への影響) .

In 組成 30% において A バンドと B バンドの偏光度が反転 (スイッチ) していることが見出された。本解析から, InGaN/GaN QW においては歪がエネルギーバンド構造に与える影響が大きいことがわかった。

5.3.9 バンド構造の考察

以上の結果から, $\{11\bar{2}2\}$ InGaN /GaN QW において偏光のスイッチング現象が起こる原因を探る。まずは, 第 5.3.7, 5.3.8 節からわかるように $\{11\bar{2}2\}$ GaN にコヒーレント成長した InGaN QW の In 組成が増加すると QW が歪むことで, 偏光する方向が反転していることが示唆された。この様子を図 5.14 に示す。図 5.14(a) は無歪の (In)GaN のバンド構造の概略図 (Γ 点の極近傍) である。支配的な発光は A バンドからの発光であるが, それは $|X\rangle$, $|Y\rangle$, の線形結合で表される。一方, InGaN が歪んだときは, 図 5.14(b) に In 組成が低い場合のバンド図を示した通り, 支配的な遷移は $|Y'\rangle$ になり, $|X'\rangle$ は 2 番目となる。そして, In 組成が約 30% を超えると $|X'\rangle$ が $|Y'\rangle$ を追い抜き, $|X'\rangle$ が一番上の状態となると考えられる。その結果, 全体的な発光は $[\bar{1}\bar{1}23]$ に偏光した発光が得られる。ここまでで, 偏光が反転するのは, 価電子帯の順番が入れ替わっていることが原因であることがわかった。

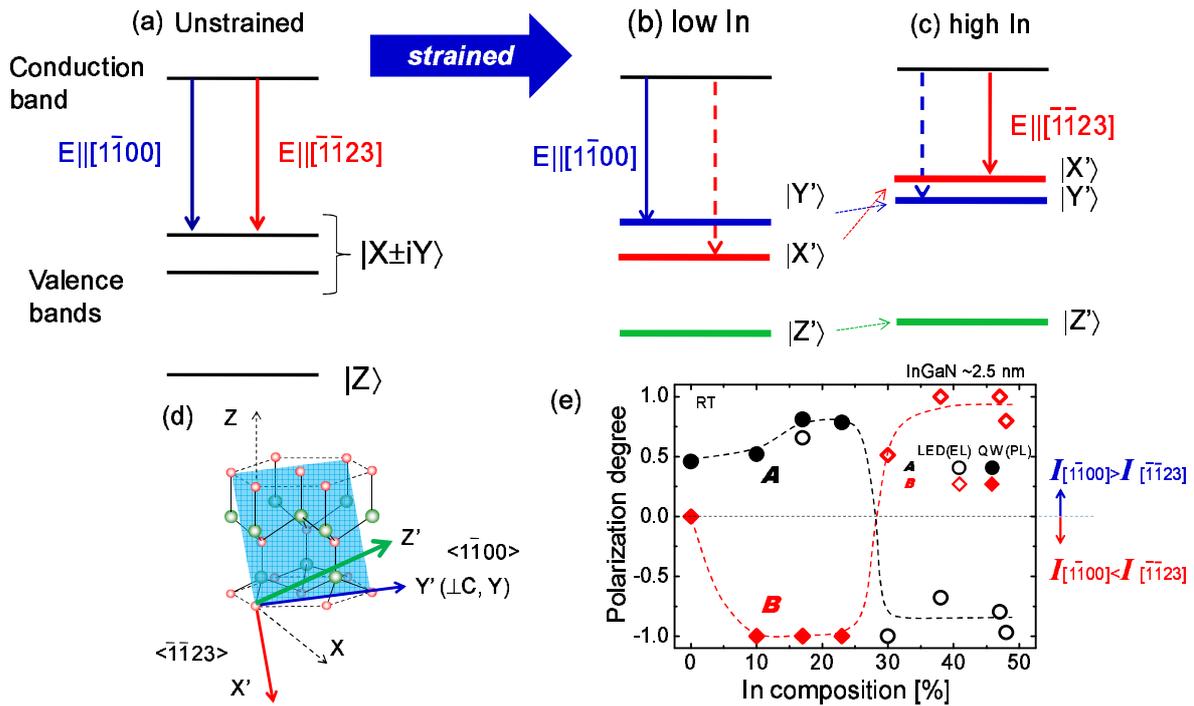


図 5.14 偏光反転 (スイッチング) 時のバンド構造の変化 . (a) 無歪 InGaN, (b) In 組成が低いとき ($\text{In} < \sim 30\%$), (c) In 組成が高いとき ($\text{In} > \sim 30\%$) .

5.4 $k \cdot p$ アプローチによる解析

本節では, In 組成によって価電子帯の順番が入れ替わる原因について $k \cdot p$ 摂動法による求めた解析式を用いて探る .

実験結果の $[1\bar{1}00]$ から $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向のピークエネルギー差 ΔE を, In 組成に対してプロットした . この図は以上の議論から膜厚の情報は無視している . ΔE の分布を見ると In 組成が大きくなるにつれて一度大きくなり $\text{In} = 20\%$ 付近で最大値をとり, 減少傾向に移る . $\text{In} = 30\%$ 付近で ΔE は負の領域へ移る .

5.4.1 ΔE の解析

このデータを用いて以下のように解析する . 上記のように量子閉じ込めは偏光特性に強い影響を持っていないので, 簡単のため, 量子効果を無視し, 歪んだ InGaN 厚膜に $k \cdot p$ 摂動法を適用し, 解析を行った . InGaN バルク結晶の価電子帯ハミルトニアンを Δ_{so} を無視することで対角化し 3 つの価電子帯を表す解析式が文献 [14] によって報告されている . そのうち, 発光に主に寄与する 2 つのバンドのエネルギー解析式を用いて, $E_{X'}$, $E_{Y'}$ は以下のように表せ

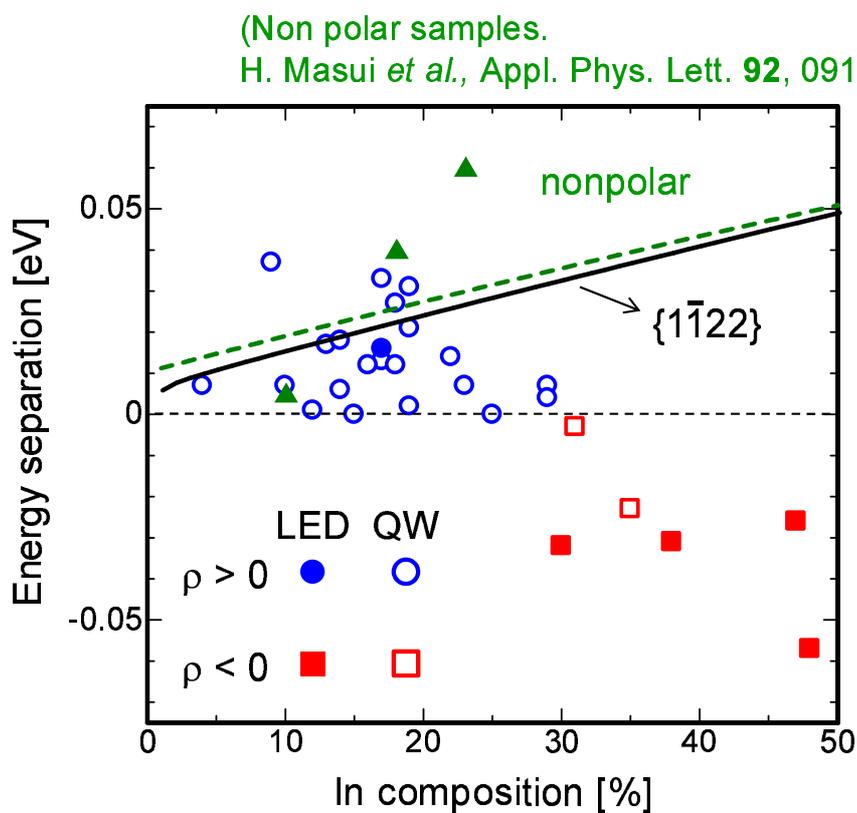


図 5.15 ΔE と In 組成の関係．無極性面のデータは文献 [11] より抜粋．

る [14] .

$$E_{X'} = \Delta_{cr} + D_1\epsilon_{zz} + D_2(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) + D_3\epsilon_{zz} + D_4(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) - D_5(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) \quad (5.2)$$

$$E_{Y'} = \frac{1}{2} [\delta_{cr} + 2\{D_1\epsilon_{zz} + D_2(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy})\}] + D_3\epsilon_{zz} + D_4(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) + D_5(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) \\ + \sqrt{(\delta_{cr} + D_3\epsilon_{zz} + D_4(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) + D_5(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}))^2 + 8(D_6\epsilon_{xz})^2} \quad (5.3)$$

ただし, $D_i (i=1, 2, \dots, 6)$ は変形ポテンシャルを表す. これから $\Delta E = E_{X'} - E_{Y'}$ が式 (5.2) および (5.3) を用いて表せる. 現在一番信頼されていると考えられる物性定数 [15] と第3章で明らかにした歪の表式 (3.6), (3.7), (3.8), (3.9), (3.10) を用い, ΔE を計算したところ 図 5.15 の実線のようになり, 実験値を再現出来なかった. また, 無極性面の場合も調べるため, $\{1\bar{1}00\}$ InGaN/GaN QW のデータを文献 [11] の値を参考にしてプロットした. すなわち, In 組成 10, 18, 23% で $\Delta E = 5, 40, 60$ meV と読み取れた. 無極性面の場合の ΔE の計算値も同様にプロットしたところ, 図 5.15 の点線で示すようになり, 無極性面でも計算値は実験値を再現することができなかった.

ここで, 文献 [15] では, InN の変形ポテンシャルが未だ不明のため GaN のそれらと同じ値で代用している. 本研究では, この実験値と理論値との誤差は InN の物性定数の不確かさに起因すると考え, InN の変形ポテンシャルをフィッティングパラメータとして ΔE の実験値をフィットした. ここで, InGaN の物性値 (変形ポテンシャルも含む) は GaN と InN の物性値の線形補間した値と仮定して用いた. そのフィッティングの結果を図 5.16 の実線に示す. ただし, フィッティングの束縛条件は, $D_3 = -2D_4$ とし, D_5, D_6 の3変数とした時によりフィッティング結果が得られた. この束縛条件をはずしたり, quasi-cubic 近似をすべて用いるとよいフィットは得られなかった. ちなみに, この $D_3 = -2D_4$ という条件は, Gil らが GaN において実験的にも示している [3]. また, そのフィッティングで得られた InN の変形ポテンシャルを表 5.4.1 に示す. また別の cubic 近似の表式を使って $D_2 - D_1 = D_3 = 0.10$ eV が示唆される.

表 5.2 InN 変形ポテンシャルのフィッティング結果

	$D_4 = -D_3 / 2$ [eV]	D_5 [eV]	D_6 [eV]
InN (フィット結果)	-0.05	-3.5	-8.8
GaN [15]	-4.1	-4.0	-5.5

この値を用いて無極性面の場合でも計算を行った結果を図 5.16 の点線で示した. 無極性面

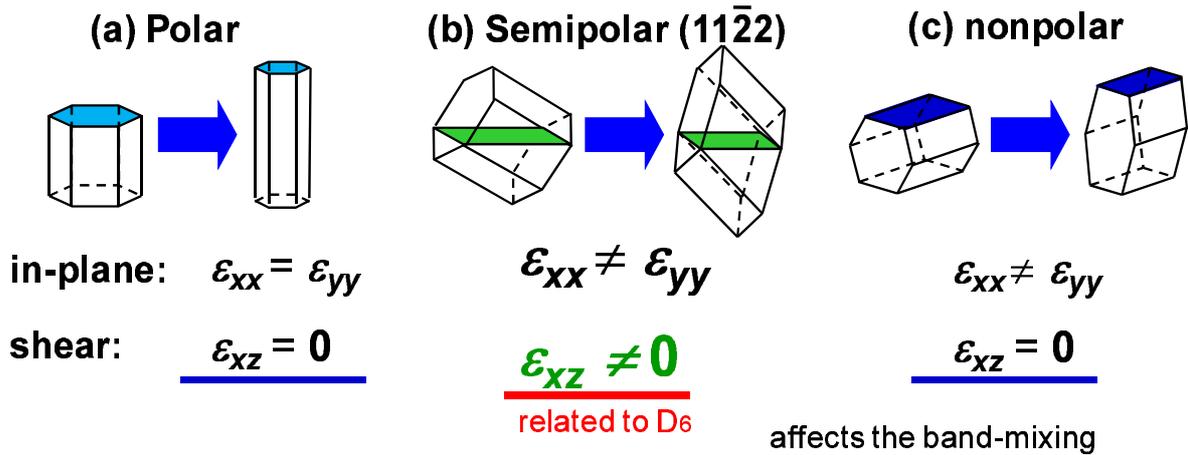


図 5.17 極性面，半極性面，無極性面の歪の比較．

の場合も計算値が実験値をよく再現できた．従って，この偏光スイッチング現象は半極性面に特有の現象であると考えられる．

5.4.2 偏光反転現象の駆動力

次に，半極性面で偏光反転を起こす駆動力を考える． ΔE の表式の中で半極性面だけゼロではない値を持つ項が存在する．図 5.17 に極性面，半極性面，無極性面での歪の比較を示す．まず極性面では面内の歪は等方的であるので $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$ が成り立つ．しかし，半極性面と無極性面では面内の歪は非等方的であるので $\epsilon_{xx} \neq \epsilon_{yy}$ であり，式 (5.2)，(5.3) のなかで D_5 を通して寄与してくる．しかしこれは半極性面と無極性面の両方で効いてくる．極性面および無極性面でなくなり，半極性面のみ 0 ではない値を持つ歪は， ϵ_{xz} である．この ϵ_{xz} は D_6 を通して寄与してきて， ϵ_{xz} が大きくなるほど ΔE を負の方向へ導く．その結果，トップと 2 番目の価電子帯の順番が入れ替わり，偏光反転現象を生じさせるものと考えられる．以上より偏光反転現象に重要な物性値はせん断歪であり， D_6 を通して偏光を回転する方向へ導いているものであることが見出された．

5.4.3 他の材料系との比較

Si での変形ポテンシャルの値を調査すると，文献 [16] によると $D_3 = 5.8$ eV という値が報告されている．また，InAs, GaAs では同様にせん断歪に対する変形ポテンシャルとして $d = -3.32$ eV, -3.1 eV という値があり，価電子帯極小点での変形ポテンシャル $a_v = 0.66$ eV, 0.7 eV という値がある [18]．本研究で得られた InN の値で $D_4 = -0.05$ eV という値が小さいのは InN のバンドギャップなどの物性値は未だ不確定な部分があり，また，InN 中の In に

とって第二近接原子である In-In 間の金属結合が非常に強く普通の第一近接原子のみを考えたバンド計算は成り立たないという報告からも妥当性があると考えられる [17].

参考文献

- [1] K. Kojima, M. Funato, Y. Kawakami, S. Masui, S. Nagahama, and T. Mukai, *Applied Physics Letters* **91**, 251107 (2007).
- [2] B. Gil, F. Hamdani, and H. Morkoç, *Physical Review B* **54**, 7678-7681 (1996).
- [3] b. Gil and A. Alemu, *Physical Review B* **56**, 12446-12543 (1997).
- [4] K. Domen, K. Horino, A. Kuramata, and T. Tanahashi, *Applied Physics Letters* **71**, 1996-1998 (1997).
- [5] S. Ghosh, P. Waltreit, O. Brandt, H. T. Grahn, and K. H. Ploog, *Physical Review B* **65**, 075202 (2002).
- [6] K. Kojima, M. Ueda, M. Funato, and Y. KawaKami, *Physica Status Solidi (b)* **244**, 1853-1856 (2007).
- [7] Y. J. Sun, O. Brandt, M. Ramsteiner, H. T. Grahn, and K. H. Ploog, *Applied Physics Letters* **82**, 3850-3852 (2003).
- [8] H. Masui, A. Chakraborty, B. A. Haskell, U. K. Mishra, J. S. Speck, S. Nakamura, and S. P. Denbaars, *Japanese Journal of Applied Physics* **44**, L1329-L1332 (2005).
- [9] H. Masui, T. J. Baker, M. Iza, H. Zhong, S. Nakamura, and S. P. Denbaars, *Journal of Applied Physics* **100**, 113109 (2006).
- [10] K. Okamoto, H. Ohta, D. Nakagawa, M. Sonobe, J. Ichihara, and H. Takasu, *Japanese Journal of Applied Physics* **45**, L1197-L1199 (2006).
- [11] H. Masui, H. Yamada, K. Iso, S. Nakamura, and S. P. Denbaars, *Applied Physics Letters* **92**, 091105 (2008).
- [12] M. Feneberg, F. Lipski, R. Sauer, K. Thonke, P. Brücker, B. Neubert, T. Wunderer, and F. Sholz, *Journal of Applied Physics* **101**, 053530 (2007).
- [13] A. A. Yamaguchi, *Japanese Journal of Applied Physics* **46**, L789-L791 (2007).
- [14] K. Kojima, H. Kamon, M. Funato, and Y. Kawakami, *Physica Status Solidi (c)* **5**, 3038-3041 (2008).
- [15] I. Vurgaftman and J. R. Meyer, *Journal of Applied Physics* **94**, 3675-3691 (2003).

-
- [16] U. Schmid, N. E. Christensen, and M. Cardona, *Solid State Communications* **75**, 39-43 (1990).
- [17] 小幡 輝明, 白石賢二, 押山淳, 第 55 回応用物理学関係連合講演会 講演予稿集 28p-B-5 (2008 年 日本大学).
- [18] C. Pryor, *Physical Review B* **57**, 7190-7195 (1998).

第 6 章

{11 $\bar{2}2$ }InGa \bar{N} 量子ドットの作製と物性評価

6.1 はじめに

第 6 章で纏める内容は前章までの偏光特性解明に続行した研究である。本章では、{11 $\bar{2}2$ }InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW よりもより高効率の構造を目指して、全方位的に内部電界が低減していると示唆されている {11 $\bar{2}2$ }InGa \bar{N} 量子ドット (Quantum dot: QD) の作製を試みた。まずは、成長条件を探るために (0001)InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QD の作製に取り組んだ。

6.2 量子ドット

6.2.1 量子ドットの研究

本節では、これまでの量子ドットの研究の始まりから窒化物半導体の量子ドットの作製の報告までの歴史について簡単に纏める。

量子ドット (量子箱; Quantum box) は 1980 年代に初めて提案された [1–3]。ダブルヘテロ構造よりもキャリアの自由度が 1 次元下がり 2 次元である構造、それは InGa \bar{N} を用いた LED においても従来使われている QW である。QW 内では電子の振る舞いが 2D であるため、電子の状態密度が変化し、QW レーザはダブルヘテロレーザに比べて閾値電流の温度依存性が少ない。さらに閉じ込めの次元が上がり 1D, 0D 構造となると電子の自由度が下がり、さらに温度特性がなくなり、理想的には 0D 構造では温度特性がない [3]。また、キャリアの自由度が少なくなるほど、キャリアの状態密度が変化する。状態密度のエネルギー依存性は、バルクでは $E^{\frac{1}{2}}$ に比例するのに対し、QW では階段状になり、量子細線では、2 次元に閉じ込めによる量子準位エネルギーに等しい時に無限大に発散し、 $E^{-\frac{1}{2}}$ に比例して減少する。また、量子

ドットでは、状態密度は量子準位の部分のみでデルタ関数となる。

このような量子ドットは、InAs, GaAs, それらの混晶 [4–6], また、ZnSe [7], CdSe [8], およびそれらの混晶 [9] など様々な材料で研究されており、非常に面白い量子構造である。

また、文献 [10] にて本研究で用いる ML 揺らぎを利用した量子ドットの報告がある。井戸幅が極めて薄い GaAs QW の界面における ML 揺らぎにより自然に QD 領域が形成され、それら QD からのディスクリートな発光を、サンプル表面に Al の微小な開口を施して、実効的な観察領域を制限し、顕微 PL にて観察することで QD からの非常にシャープな発光を観測している。

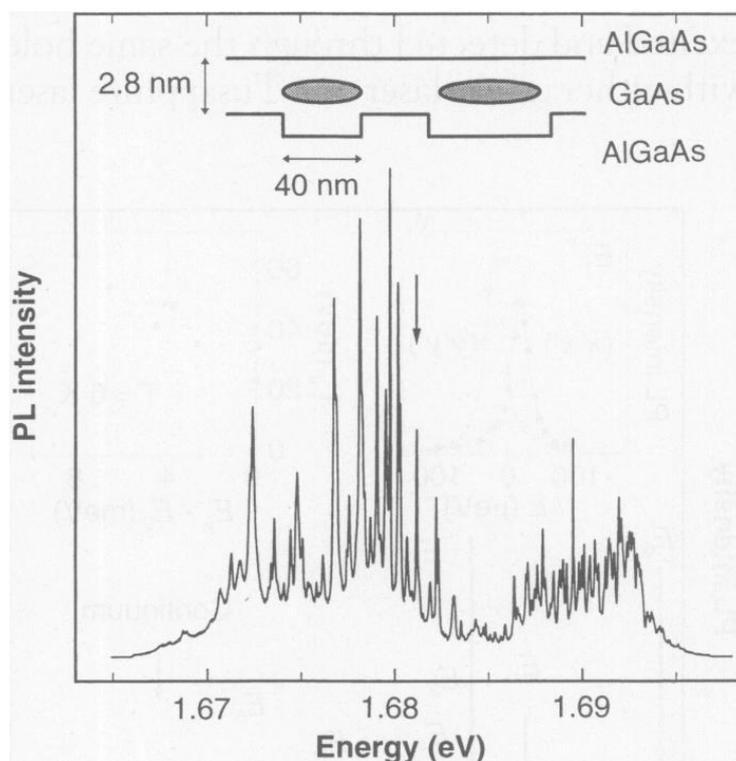


図 6.1 ML 揺らぎに起因する GaAs QD の顕微 PL 測定結果 [10]. サンプル表面に Al の微小開口を施して観察領域を制限することでディスクリートな発光を観測している。

6.2.2 窒化物半導体量子ドット

量子ドットの作製手法

過去の (0001)InGaN 量子ドットの報告を簡単に纏める。Si 等をサーファクタントとして用いて表面エネルギーを変化させてドットを形成する [11, 12], Stranski-Krastanow (SK) ドット [13–18] がある。GaAs 上の InAs のように格子不整合が 7% 程度で濡れ層 (Wetting layer; WL) 成長後、歪を開放する仮定で 3 次元的な構造を形成する SK モードの成長をするとされ

るが、またそれ以外にも選択成長を利用したもの [19] などがある。しかし、ML 揺らぎを積極的に利用した窒化物量子ドットの報告は現在のところない。

極性面量子ドット

InGaN の量子ドットについて、文献 [20] においては、SK モードによると考えられる QD からの、文献 [21] においては、InGaN 薄膜の N_2 アニールにより形成される QD からと考えられる鋭い発光の顕微 PL による観測の報告がある。これらは、(0001) InGaN QD であり、文献 [21–23] によると 2.7–3.1 eV での発光エネルギーの低温 TPRL 減衰寿命は数 ns のオーダーであり、同程度のエネルギーで発光する (0001) InGaN/GaN QW の減衰寿命の数 ns とほぼ同じである。(0001) InGaN QD においても QW と同様に成長方向の内部電界の影響が輻射再結合確率の低下に影響していると考えられる。

非極性面量子ドット

また、無極性面においては、 $(11\bar{2}0)$ GaN/AlN QD は $(11\bar{2}0)$ 6H-SiC 上に AlN 緩衝層を用いて作製されており [24, 25]、文献 [25] においては低温での TRPL の減衰寿命は約 300 ps と報告されている。この値は無極性面では内部電界が成長方向にはないことを示唆している。しかし、[24] において以下のような現象が述べられている。通常、励起子のボーア半径よりもドットのサイズが大きいくらい、振動子強度が増加し、TRPL の減衰寿命は減少してゆくはずである。しかし、無極性 GaN/AlN ドットでは面内のサイズが大きくなるほど TRPL の減衰寿命が増加していった。この原因として、無極性面では成長方向には内部電界がないとされているが、面内には内部電界が存在しているために、面内で電子と正孔が分離されているためとの記述がある。これは無極性面の InGaN/GaN QD においても次節で述べるように同様である。また、半極性面上の窒化物半導体 QD の報告は現在のところない。

6.2.3 半極性面 InGaN/GaN QD の利点

まず量子ドットであることの利点としては、0D 構造であり、QW よりもキャリアの自由度が下がっており、キャリアが非輻射中心へ拡散する頻度が QW に比べて格段に下がっており内部量子効率の向上が期待できる。

しかし、上記の利点に加えて、ドットへの内部電界の影響も考えると半極性面上のドットの利点が浮き彫りになる。図 6.2 に、InGaN/GaN QW のピエゾ分極 $P_{X'}$ と $P_{Z'}$ の (0001) からの結晶角度依存性と、それらの二乗和のプロットを示す。 $(11\bar{2}2)$ InGaN/GaN QW では (0001) に比べて内部電界が低減している。無極性面 QW においてはピエゾ電界は成長方向にはないが、面内には最大値を取ることがわかる。また、 $P_{X'}$ と $P_{Z'}$ の二乗和をみると、結晶角度 60 度弱のところでも最小値を示している。極性面、半極性面、無極性面 InGaN/GaN QW

での内部電界の方向と大きさの概略図を示した。極性面では成長方向に、無極性面では成長面内方向にピエゾ電界が最大であるのに対して、半極性面においてはピエゾ電界が全方位的に低減している。したがって、InGaN/GaN 量子ドットにおいては、半極性面においては全方位的に内部電界が低減し、面内のキャリアの空間的分離が一番少ないと考えられる。従って、半極性面の InGaN/GaN QD でも、全方位的に内部電界が低減していると考えられる。

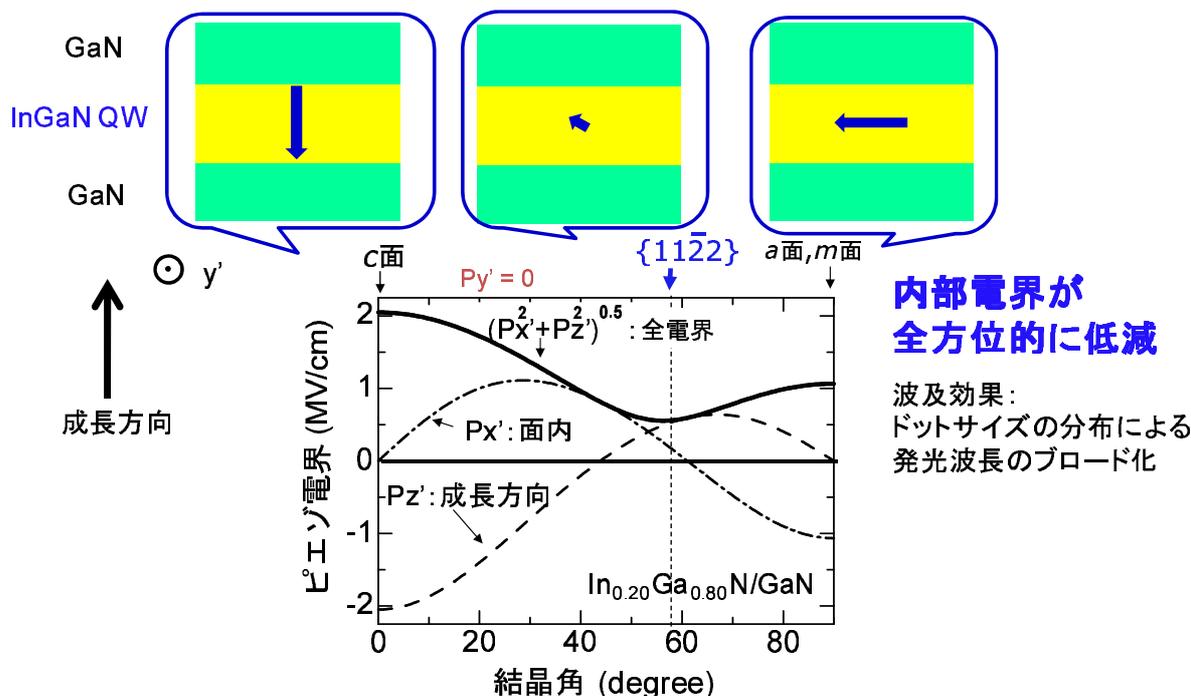


図 6.2 ピエゾ分極 ($P_{X'}$, $P_{Z'}$) の結晶角度依存性.

6.3 (0001) InGaN 量子ドット

6.3.1 成長指針

まずは InGaN QD の成長条件を探る為に、(0001) サファイア基板上に成長した (0001) GaN 上へ InGaN QD の成長を試みる。成長の指針としては、成長後のトップダウンプロセスが不要な自己形成プロセスを試みた。InGaN QD の報告を調べると、東京大学においては、 $V/III = 2000$ 、大気圧下で成長温度約 700°C [18]、ソウル国立大学においては $V/III > 10000$ 、成長温度 $640\text{--}730^{\circ}\text{C}$ 、反応炉圧力 300 Torr で InGaN QD が形成したという報告がある [26]。本研究室での InGaN/GaN QW の成長では $V/III = 5500$ 付近を主に用いていることを考えると、InGaN/GaN QD の成長の糸口として、原料比等の成長条件はそのまま、成長温度を最適化すればよいと考えられる。

6.3.2 (0001)InGaN QD の成長

成長条件

InGaN の成長温度を、3 nm 厚の InGaN QW の In 組成と成長温度の関係を外挿し、50-70% となる温度域で成長を行った。C 面サファイア上に低温バッファ層を作製した後に、V/III = 2000 として $T_g = 1050^\circ\text{C}$ で高温 GaN を成長した。そして、 $T_g = 650$ および 690°C 付近まで温度を下げて、III 族原料流量 [TMGa] = $12.9 \mu\text{mol}/\text{min}$, [TMIn] = $19.4 \mu\text{mol}/\text{min}$ ([TMIn]/[TMGa] = 0.6) V/III = 5500 として InGaN QD の成長を行った。また、成長炉内圧力は 300Torr とした。その後引き続き GaN キャップ層 2 nm を成長したサンプルを光学測定用に、GaN キャップ層を成長しないサンプルを表面形状測定用として用いた。ちなみに、成長膜厚は 800°C 付近の成長温度で InGaN QW を作製したときの成長速度からの見積もりで、3 s で $0.5 \text{ nm}(\sim 2\text{ML}^*)$, 6 s で $1.0 \text{ nm}(\sim 4 \text{ ML})$ である。以後、 800°C 付近の QW の成長における膜厚が $n \text{ ML}$ 分になるだけの原料を供給することを、「 $n \text{ ML}$ だけ成長した」と表記する。

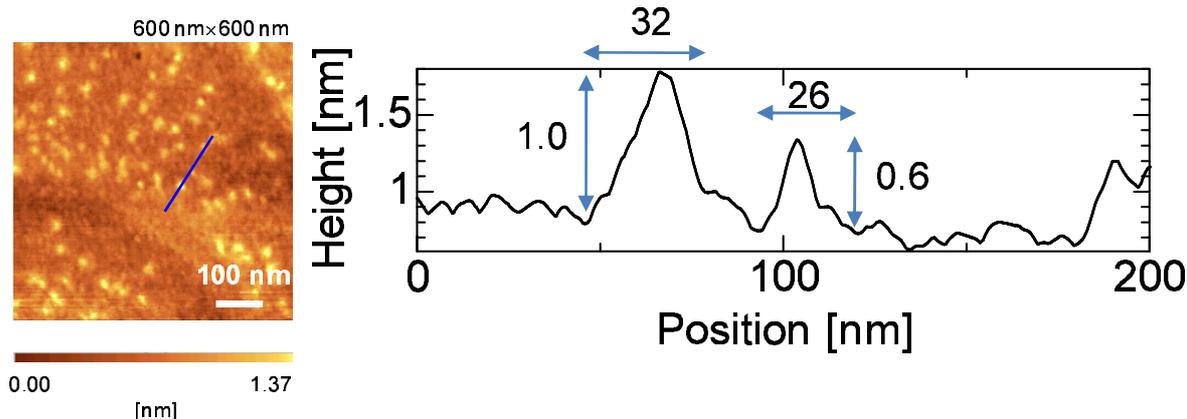
表面解析

GaN キャップ層なしのサンプル表面 AFM 像を図 6.3 に示す。表面にはドット状の構造が確認できる。高温 GaN 膜の表面はステップテラス構造を示すので、これらは InGaN を供給したことにより生じたものと考えられる。図 6.3 に示す各 AFM 像の断面高さプロファイルより、InGaN 2 ML(3 s 成長) ではドットの直径は約 20-30 nm、高さが 0.5 nm 程度、密度は $3.1 \times 10^{10}/\text{cm}^2$, InGaN 4 ML(6 s 成長) では、直径 20-50 nm、高さが 0.5-4.0 nm 程度、密度は $5.9 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ の分布を示し、成長時間の増加とともにドットの直径、高さ、密度が増していることがわかる。また、文献 [27] によると、このサイズは、励起子が横方向にも閉じ込めを感じ始め、不確定性原理によって k 空間で広がり輻射再結合に寄与する励起子の数が減って輻射減衰寿命が短くなるサイズであることが分かる。

次に、表面に InGaN がどのように成長しているかを調べるために、InGaN 4 ML のサンプルについて原子間力顕微鏡の摩擦力観察モード (Friction force microscopy; FFM) での観察を行った。結果を示す前に FFM の原理を簡単に説明する。簡単な原理と量子ドットを測定時に想定される FFM の変位を図 6.4 に示す。図 6.4 に示すとおりレーザをカンチレバーの裏面で反射させて、4 分割フォトダイオードでシグナルを検出する。AFM のトポグラフ (高低差像) はカンチレバーのたわみ方向の変位を上下のフォトダイオードの受光量の差によって発生する変位電圧を検出しているのに対し、FFM ではカンチレバーのねじれ方向の変位を左右の

*1 [0001] 配向成長の GaN で 1 ML 分は 2.593 \AA 。

(a) InGaN 2 ML (supplied for 3s)



(b) InGaN 4 ML (supplied for 6 s)

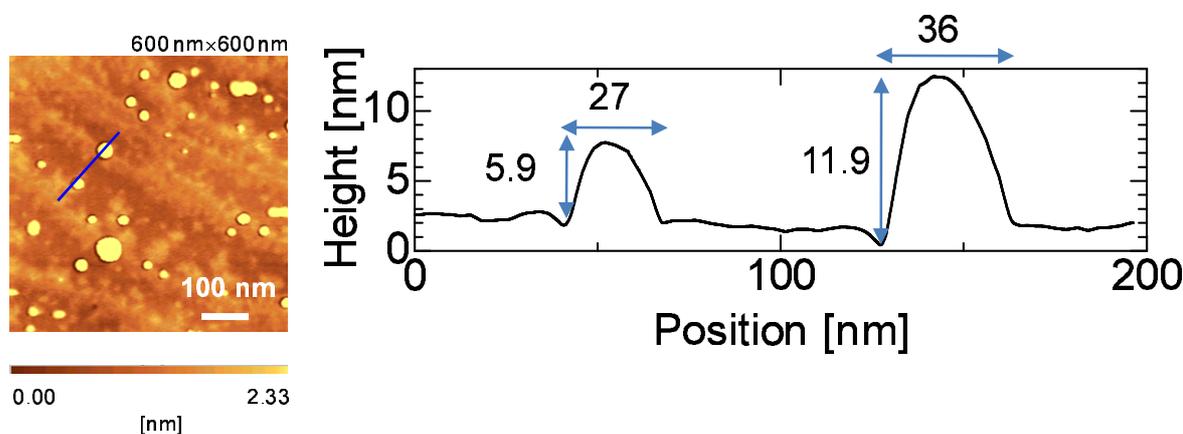


図 6.3 (0001) InGaN QD の表面 AFM 測定結果 ($T_g = 650^\circ\text{C}$) . InGaN 成長膜厚 (a) 2 ML, (b) 4 ML , およびそれらの断面高さプロファイル .

フォトダイオードの受光量の差をによって発生する変位電圧を検出している．従って，カンチレバーが同じ平坦な物質上を走査する間は，FFM 像のコントラストはなく，摩擦力が異なる物質が同じ高さにある場合にその境界を横切ると FFM 像にコントラストが現れる．また，同じ物質内でも，フラットな平面内を走査中に凸または凹部分に差し掛かるとそこでもねじれ方向の変位が検出される (図 6.4 (b)). 仮に凸部が InGaN QD で，QD 以外の部分は GaN が露出している場合は，ドットの頂上付近の摩擦力がフラットな平面部分の摩擦力とは異なる値であるはずである．(しかし変位量の絶対値は不明である．) それを踏まえた上で，結果を図 6.5 に結果を示す．図 6.5 中の (a) はトポグラフ，(b) には FFM 像を示しており，これらは同時測定されたものであり，測定範囲は $600\text{ nm} \times 600\text{ nm}$ と等しい．図 (a) より，フラットな平面にドット状の形状が確認でき，図 (b) でそれらと同じ個所を見るとサイズが大ききドットの

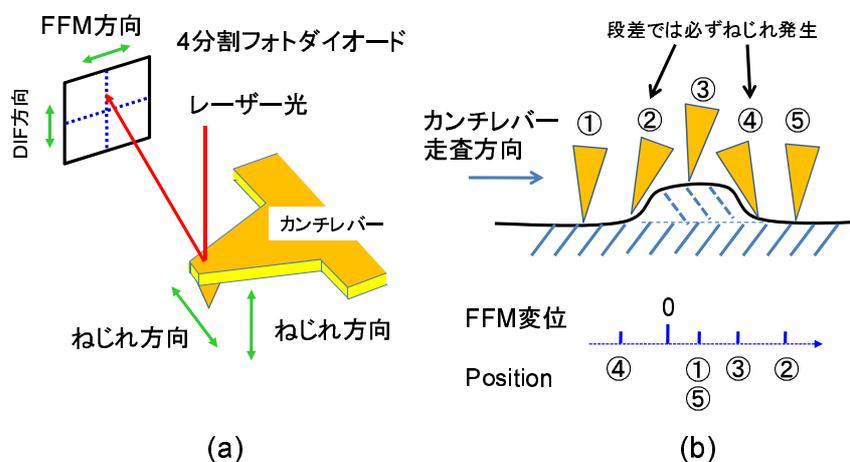


図 6.4 FFM の原理図 (a) システムの構成 , (b) 量子ドットを測定時に想定される FFM 変位の例 .

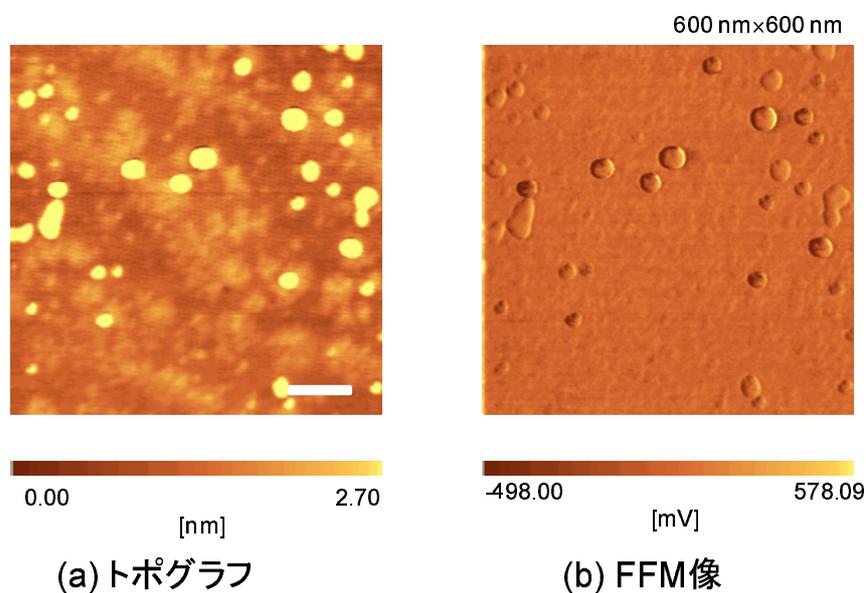


図 6.5 $T_g = 650^\circ\text{C}$ で成長した (0001) InGaN(4 ML)/GaN QD の FFM 測定結果. (a) トポグラフィ , (b) FFM 像 . スケールバーは 1 μm を表す .

左右は段差による FFM 変位であるが，ドットの中央部を見ると，平面の部分とのコントラストはほとんどない．従って，平面部分の最表面と凸部（量子ドット）の材料は同じである可能性がある．ここで，コントラストを比較するだけではトポグラフと FFM 像の関係がをより明確にするために TOPO シグナルと FFM シグナルの相関を考える．

ここで，2 つの関数を $h(t)$, $x(t)$ とすると，それらの相互相関関数 $C(t)$ は，

$$C(t) = \int_{-\infty}^{\infty} h(t)x(t+\tau)dt. \quad (6.1)$$

となる．実際は，サンプリング間隔ごとに次数 τ を一つずつずらし，二つの関数の積を，それらの関数の存在範囲で積分する． $C(t)$ の τ 依存性において， $\tau = 0$ のときの $C(t)$ の値が大きいほど，二つの関数 $h(t)$, $x(t)$ が相関している（似たシグナルである）ということになる．そこで，TOPO(高低差)シグナルと FFM シグナル，および TOPO シグナルの微分と FFM シグナルの相互相関関数を考える．これらのシグナルの相関については，FFM シグナルと TOPO シグナルの微分の相関が大きい場合は，高さの変化が大きいことを意味する．また，FFM シグナルと TOPO シグナルの相関が大きい場合は，サンプルの高さによって摩擦力が異なることを意味すると考えられる．

図 6.6 (a), (b) の測定ライン上の AFM の TOPO シグナルと FFM シグナルのラインプロファイル図 6.6(c) に示す．また，それらの TOPO シグナルの微分と FFM シグナル，および TOPO シグナルと FFM シグナルの相互相関関数の τ 依存性を図 6.7 に示す．これより $\tau = 0$ 付近での値は TOPO の微分と FFM シグナルの相関関数は鋭いピークになっており，それ以外の強度の弱いシグナルはノイズレベルだと考えられる．また，TOPO シグナルと FFM シグナルの相関関数は全範囲で考えるとノイズレベル以下である．従って，(0001) InGaN を 4 ML だけ成長したサンプルの表面は，高さの変化があり，かつ摩擦力の高さ依存性はほぼないことがわかる．言い換えると，一面 InGaN で被覆されていて，凹凸が存在するといえる．

以上の議論より本実験で得られた (0001) InGaN 量子ドットの成長様式は，GaN の表面を InGaN が覆ってゆき膜状に成長する途中でドットが生成していると考えられる．

6.3.3 光学的特性

PL 特性

第 6.3.2 節で作製した (0001)InGaN/GaN 量子ドットの光学的特性を評価した． $T_g = 650^\circ\text{C}$, 690°C で成長したサンプルで，InGaN を 2 および 4 ML だけ成長し，その後続いて GaN のキャップ層 (~ 2 nm) を施したサンプルである．評価はマクロスコピックな系の PL で，励起光源は He-Cd レーザーの 325 nm を用い，励起パワー密度を 12.7 W/cm² とした．測定は 10 K で行い，4 ML 成長のサンプルは室温 (300 K) でも測定した．図 6.8 (a) に $T_g = 650^\circ\text{C}$, (b) に $T_g = 690^\circ\text{C}$ で成長したサンプルの PL 測定結果を示す．まずは，

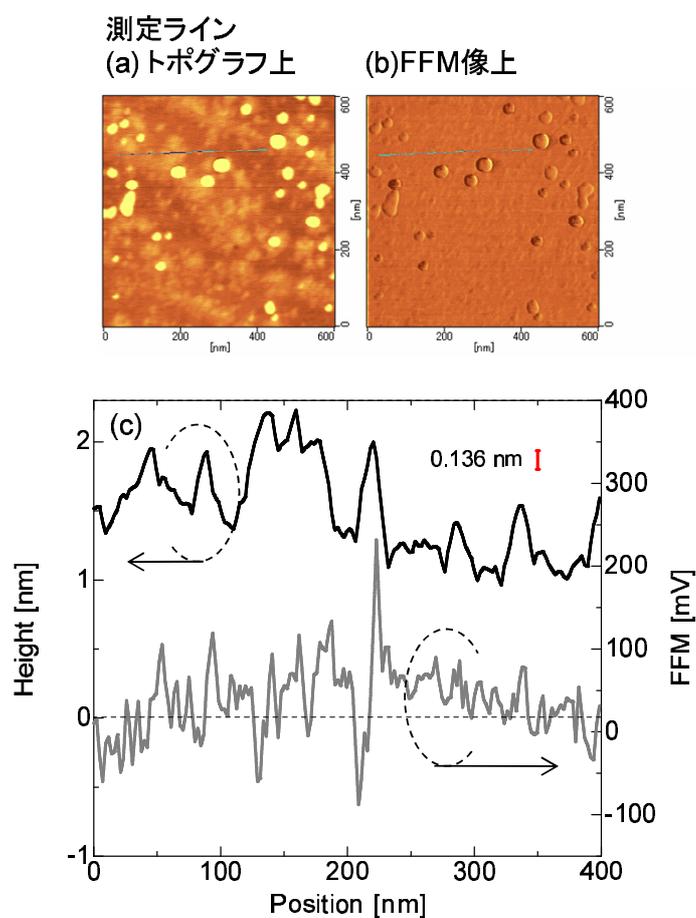


図 6.6 $T_g = 650^\circ\text{C}$ で成長した (0001) InGaN(4 ML)/GaN QD の AFM ラインプロファイル, (a) トポグラフ上, (b) FFM 像上での測定ライン, (c) (a) および (b) のラインプロファイル.

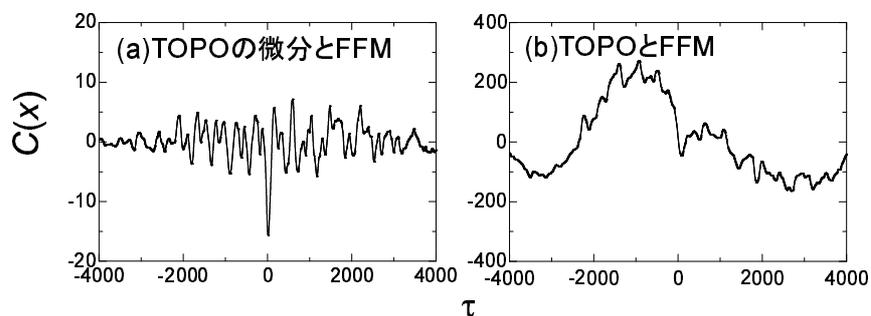


図 6.7 (0001) InGaN QD の AFM トポグラフシグナルと FFM シグナルの相互相関関数の τ 依存性. (a) TOPO の微分と FFM シグナル, (b) TOPO と FFM シグナル.

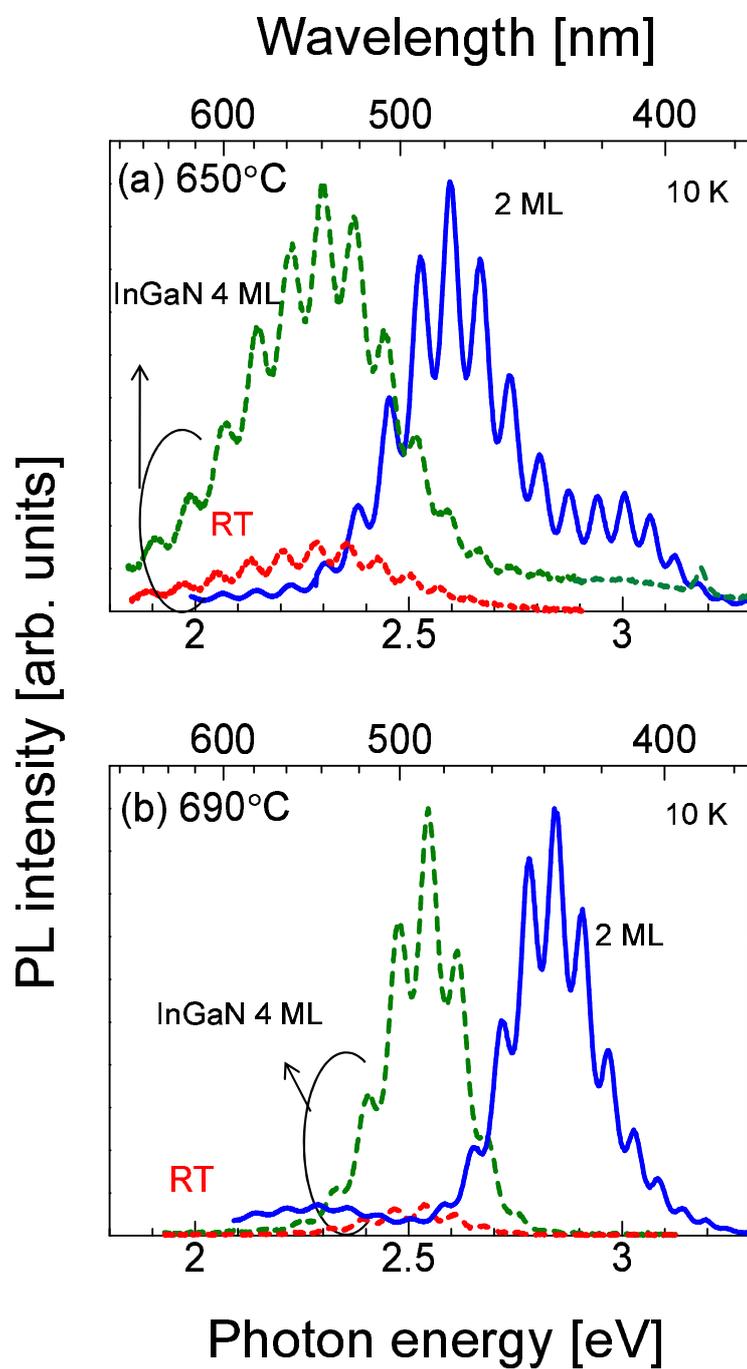


図 6.8 (0001) InGaN QD の PL , 成長温度 (a) 650°C , (b) 690°C .

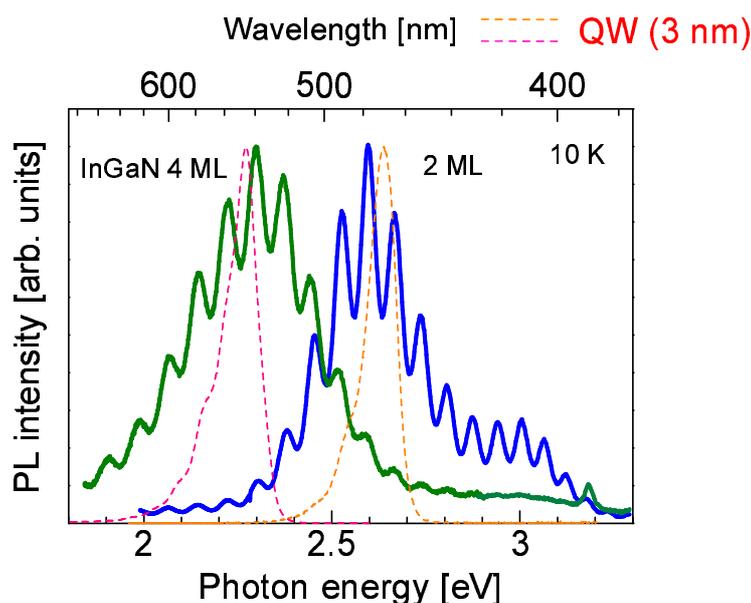


図 6.9 (0001) InGaN QD との同発光波長の QW の PL FWHM の比較 .

$T_g = 650^\circ\text{C}$ 成長の結果 (図 6.8 (a)) を見ると, InGaN 4 ML では 2.3 eV 付近に, 2 ML では 2.6 eV 付近に非常にブロードなピークが確認できた. 成長時間が短い方が短波長側にピークがあり, 量子ドットのサイズがより小さくなることによって量子効果が顕著になり量子順位が高エネルギー側へシフトしたことに由来すると考えられる.

また, 4 ML 成長のサンプルにおいて低温 (10 K) に対する室温 (300 K) の PL スペクトルの積分強度比を計算すると 19% となった. 同じ成長炉で作製した同程度の発光波長の InGaN QW サンプルでは 1% 以下であり, QD にしたことでキャリアの 3 次元的な閉じ込めが QW よりも顕著になり非輻射中心へのキャリアの拡散が抑制されたものと考えられる. 成長方向に内部電界が存在する (0001) InGaN QD でもこれだけ改善されたことを考えると (11 $\bar{2}2$) ではより改善される可能性がある. 図 6.8(b) より $T_g = 690^\circ\text{C}$ では PL ピーク位置は, InGaN 4 ML で 2.5 eV 付近に, 2 ML では 2.6 eV 付近とドットの体積による量子効果の変化が確認でき, また低温 (10 K) に対する室温の PL 強度比は 9% であり同様の傾向を示した.

PL FWHM

つぎに, PL の FWHM について考察する. (0001) InGaN/GaN QD の発光波長とほぼ同じ波長で発光する (0001) InGaN QW の PL スペクトルを比較する. 比較対象は $T_g \sim 770$ および 730°C で成長した 3 周期の (0001) InGaN(~ 3 nm)/GaN(~ 10 nm) QW である. PL スペクトルの比較を図 6.9 に, またそれぞれのサンプルの FWHM を表 6.1 に示した. 図 6.9 および表 6.1 より, QD の方が QW よりも FWHM が 3-4 倍程度広くなっており, 同発光波長の

表 6.1 同発光波長の QD と QW の PL FWHM 比較 (10K)

サンプル構造	PL FWHM [meV]	
	InGaN	
	4 ML	2 ML
(0001) InGaN QD	450	310
ほぼ同発光波長		
(0001) InGaN QW(3 nm)	103	90

表 6.2 計算に使用した物性値

	GaN	InN
Effective mass [28] ($/m_0$) $m_{e(C\parallel)}$	0.19	0.11
$m_{e(C\perp)}$	0.17	0.10
$m_{HH(C\parallel)}$	1.76	1.56
$m_{HH(C\perp)}$	1.69	1.68
Energy gap [eV] [29]	3.5	0.69
Bowing parameter [eV] [30]	2.3	

QD と QW を比較した場合においては，QD の方が In 組成が QW に比べて大きく，InGaN の非混和性のために，QD の方が QW よりも In 組成揺らぎが大きくなると考えられる．さらに，これらの QD のサイズはキャリアが 3 次的に閉じ込めを感じ始めるサイズでもあるが，QD のサイズにはばらつきがあるため，サイズ揺らぎによる量子準位のばらつきが発光波長の揺らぎに影響していると考えられる．

そこで，サイズの不均一が PL の FWHM にどれほど影響し得るかを簡単に見積もる．以下はドットのサイズ揺らぎでどれほど発光がブロードになり得るかを計算した．以下では，有効質量近似でドットのサイズによる量子効果のみを考慮して計算する．また内部電界は考えていない．QD を縦および横 = W ，高さ = H の直方体と仮定する．[0001] に垂直な方向と [0001] に平行な方向の電子と正孔の有効質量はそれぞれ表 6.2 に示した．In 組成 50% において， W (直方体の縦)， H 横(直方体の高さ) がそれぞれ 20-30 nm，1.5-4.0 nm とばらついた場合の HH の量子準位の基底準位を計算した．その結果，発光エネルギーは 1.6 eV(775 nm) から 2.70 eV (459 nm) まで分布した．実際には W ， H の揺らぎはより大きい可能性があり，In 組成揺らぎに加えて，サイズ揺らぎも PL スペクトルに大きく効いていることがわかる．以上の結果から (0001) InGaN QD を形成することができ，それらの発光を確認することがで

きた．

6.4 {11 $\bar{2}2$ } InGaN 量子ドット

6.4.1 成長方針

(0001)InGaN/GaN QD の作製に成功したので，次に {11 $\bar{2}2$ }GaN バルク基板上ホモエピタキシャル GaN へ直接 InGaN QD の形成を試みた．ここで，本研究室の井上らにより {11 $\bar{2}2$ }GaN 基板上へ厚膜 InGaN を成長した際に，(11 $\bar{2}2$) 上は (0001) 上に比べて臨界膜厚が厚いことが明らかになった [32]．その結果より，自己形成量子ドットの成長手法としてエピタキシャル膜の歪緩和を利用する SK モード成長は難しいと考え，本節ではエピタキシャル膜の ML 揺らぎを利用した QD の作製を決断した．また，この利点は，数分子層であり歪の緩和がなく良好な結晶性が得られると期待される．

6.4.2 ML 揺らぎにより形成される量子ドット

成長条件

本節では，数分子層成長後に形成されるドットを目指して InGaN QD の成長を行った．面方位は (1 $\bar{1}2\bar{2}$) を用いた．V/III = 5500 とし，(0001) InGaN/GaN 量子ドットの作製で成長膜厚を 2-4 ML として量子ドットを形成出来た．(11 $\bar{2}2$) でも比較的高温 (800°C 付近) での成長実験から導かれた InGaN/GaN QW の成長速度を適用して，約 0.8 nm にすることで，{11 $\bar{2}2$ } GaN の面間隔 (0.136 nm) の約 5 層分の膜厚程度で条件を探った*²．

表面解析

まず結晶性がよいことが期待される比較的高温の 840°C において InGaN のみを 0.8 nm 成長したサンプルの表面 AFM 観察結果のトポグラフを図 6.10(a) に示す．二乗平均粗さは 0.13 nm と GaN 成長後の原子レベルでの平坦さを保持している．一方，図 6.10(b) に FFM 像を示した．これらの測定領域内でのラインプロファイルの一例を図 6.6 に示す．まず，図 6.6(c) において，高さプロファイルには明確な 1ML 揺らぎが確認された．高さプロファイルに太い直線で描いたラインが，1ML で揺らぐ表面プロファイルの概略を示した．一方で，FFM シグナルの方は，測定範囲内ではほぼノイズレベル以上のシグナルは観測されていないと考えられる．

トポグラフと FFM の相関を調べるために，上述した様に，TOPO シグナルの微分と FFM

*² {11 $\bar{2}2$ } (In)GaN の結晶構造を断面から見ると 1 ML は面間隔 (GaN の場合，0.136 Å) と等しくなるが，(0001)InGaN/GaN の場合と紛らわしくなるため本章では単に膜厚を用い，必要な場合のみ ML 表記とする．

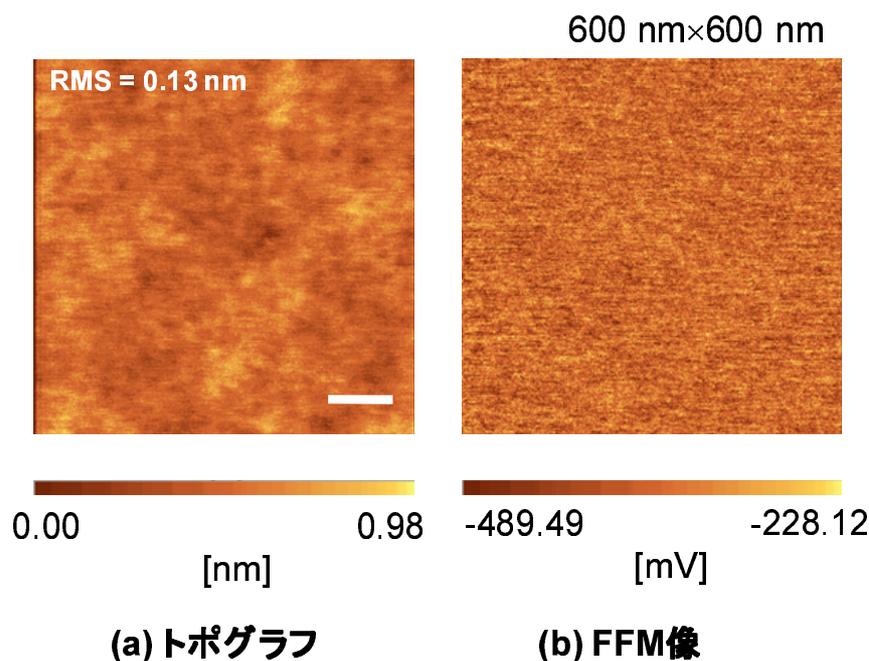


図 6.10 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN QD の成長表面 AFM 像．条件は $T_g = 840^\circ\text{C}$, $V/\text{III} = 5500$, InGaN 0.8 nm 成長したサンプルの AFM 測定結果．(a) トポグラフ, (b) FFM 像．スケールバーは 100 nm を表し, 二乗平均粗さを RMS として示した．

シグナル, TOPO シグナルと FFM シグナルのそれぞれの相関を評価した．図 6.12 の (a)-(c) において, $\tau = 0$ のときの相関関数の絶対値が大きい (a) と (c) はサンプル表面の凹凸が激しく, (b) では凹凸が緩いと考えられる．また, 図 6.12 の (d)-(f) においては, $\tau = 0$ のときの相関関数の絶対値はノイズレベルに入っており全てにおいてほぼ相関は少なく, 高さや摩擦力の相関が少ないといえ, 一面を同じ材料が覆っていると考えられる．

また, サンプルの二乗平均粗さが 0.13 nm となっていることを考えると, 本節で作製したサンプルは GaN 上にまずは InGaN が一面に成長したのち, $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ の面間隔程度の揺らぎが存在しているものと考えられる．

発光特性

つぎに, この様なドットからの発光を確認する光学実験を行った．発光強度をかせぐために活性層の体積を増やす目的で, InGaN 層と GaN のスペーサ層を 5 周期積層させる構造を作製した．また, 発光波長が可視域に入るように, 成長温度を調整し, $T_g = 750^\circ\text{C}$ で, InGaN 0.8 nm 供給後 GaN のスペーサ層を約 10 nm 程度成長して 5 周期の積層構造を作製した．このサンプルを室温において, 励起光に He-Cd レーザ (325 nm) を用い, 励起パワー密度を 12.7 W/cm^2 として PL 測定を行った．PL スペクトルを図 6.13 に示した．InGaN からの発光ピークエネルギーは $T_g = 750^\circ\text{C}$ で, InGaN 0.8 nm では約 3.06 eV に確認された．また, よ

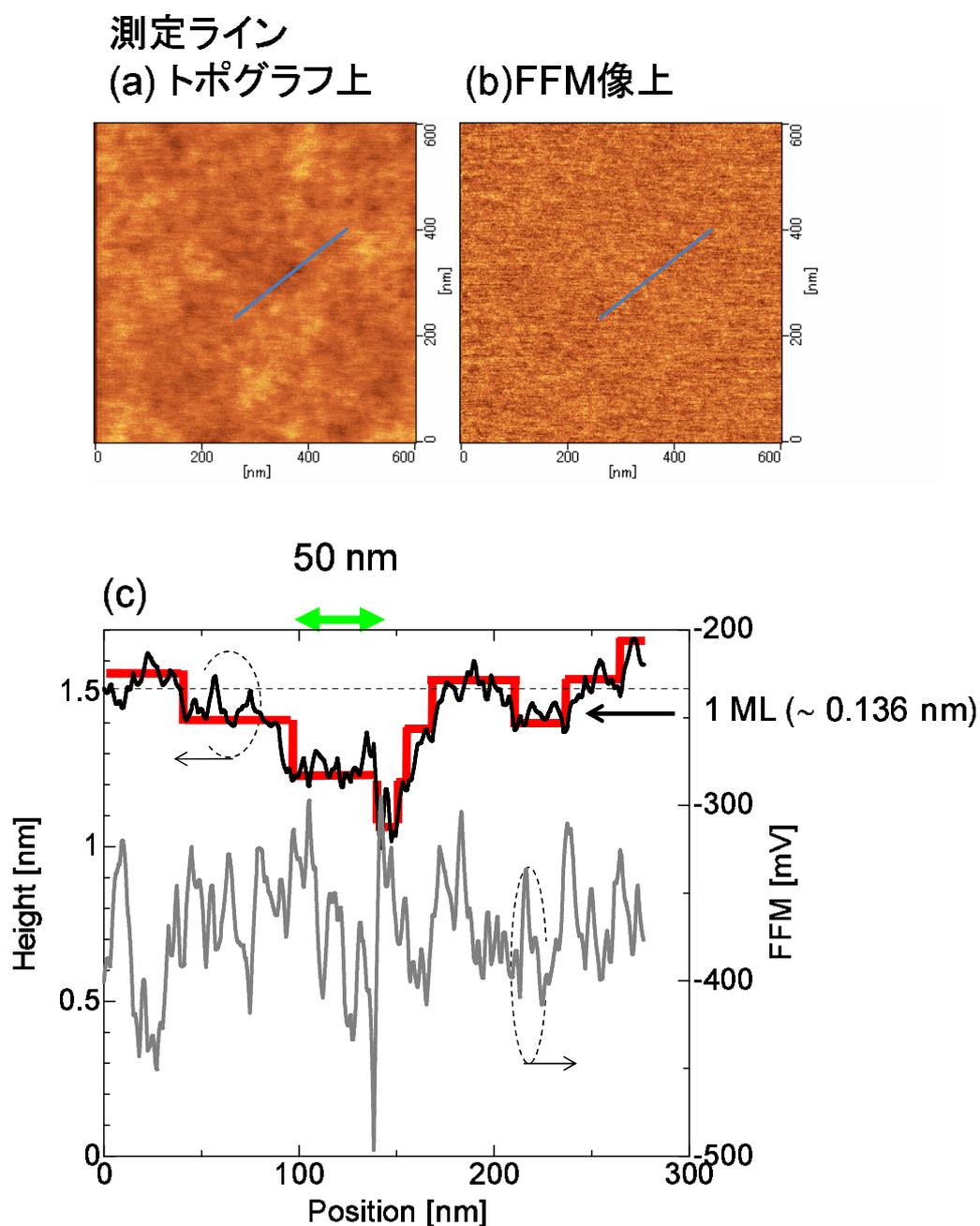


図 6.11 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN QD の成長表面 AFM 像．成長条件は $T_g = 840^\circ\text{C}$, $V/\text{III} = 5500$, InGaN 0.8 nm 成長サンプルの AFM 測定結果と AFM ラインプロファイルの測定ライン (a) トポグラフ上, (b) FFM 像上, また (c) それぞれのラインプロファイル. 高さプロファイル上の太い直線は, 1ML で揺らぐ表面形状の概略を表す.

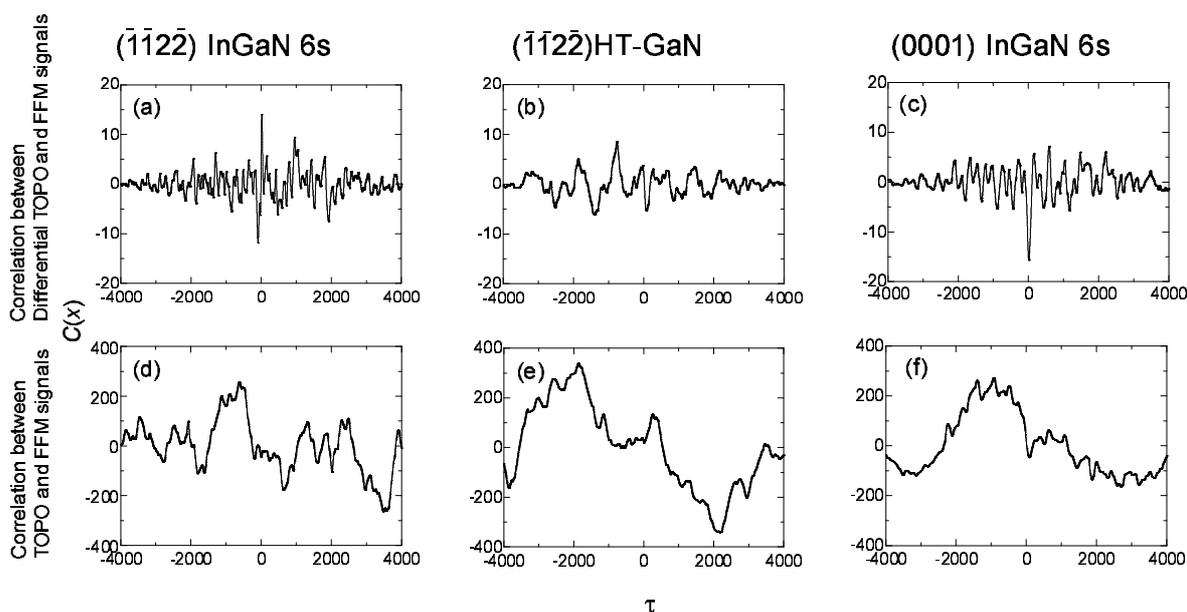


図 6.12 TOPO の微分と FFM シグナルの相関関数ならびに TOPO シグナルと FFM シグナルの相関関数の τ 依存性の順にそれぞれ (a), (d) $(\bar{1}\bar{1}\bar{2}\bar{2})$ InGaN 0.8 nm 供給, (b), (e) $(\bar{1}\bar{1}\bar{2}\bar{2})$ GaN(最適条件), (c), (f) (0001) InGaN 4 ML 供給 (図 6.7) .

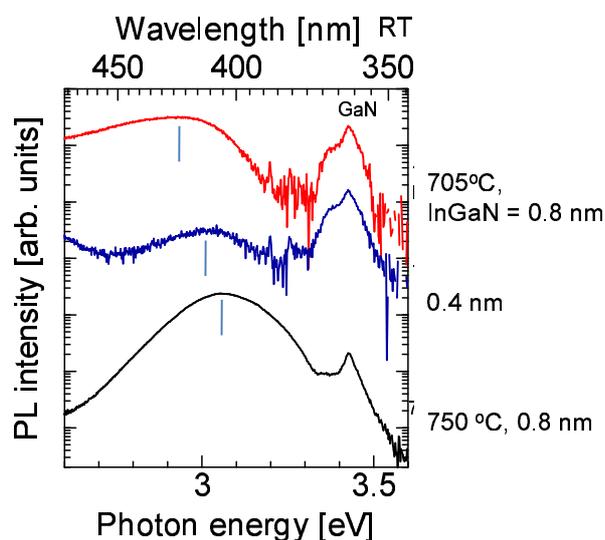


図 6.13 $(\bar{1}\bar{1}\bar{2}\bar{2})$ $T_g = 750^\circ\text{C}$ で, 0.8 nm 成長 InGaN, および $T_g = 705^\circ\text{C}$, 0.4 および 0.8 nm 成長 InGaN の室温 PL 測定結果 .

り長波長の発光を得るために、成長温度を $T_g = 705^\circ\text{C}$ において、InGaN 0.4 および 0.8 nm で同様に作製した。室温における PL 測定結果を同様に 6.13 に示す。 $T_g = 705^\circ\text{C}$ InGaN 0.8 nm では約 3.02 eV に、InGaN 0.4 nm で約 2.93 eV に確認できた。

ここで、InGaN 0.8 nm の発光波長から、In 組成を求めると $T_g = 750^\circ\text{C}$ で約 26%、 $T_g = 705^\circ\text{C}$ で約 33% と見積もられた。ここで、 $T_g = 705^\circ\text{C}$ で、膜厚を 0.8 nm から 0.4 nm へ変化させたときに、QW で考えると理論値は 3.23 eV になる。しかし、実験では 2.93 eV であり、膜厚を半減させたことによって量子効果が顕著になることにより期待されるブルーシフト量が少なくなっている。つまり、QW で考えると実験と一致しないということになる。また、成長時間と膜厚の関係を検討すると成長初期の段階では成長速度が低く、成長時間を長くするにつれて徐々に成長速度は増加し、ある膜厚以上では成長速度は成長時間にほぼ比例するようになると考えられる。このことから、 $T_g = 705^\circ\text{C}$ 付近の温度での膜厚の見積もりは過大である可能性がある。

また、この考察通りだとすると、InGaN 0.4 nm 分では、キャリアが横方向にも閉じ込められて量子効果がすでに顕著であり量子ドットの物性を示しているのではないかと考えた。

従って、より量子効果を顕著にするために、膜厚を減らす事を考えた。

InGaN 数分子層の成長と構造評価

本節では、さらに膜厚を薄く、面間隔 1-2 層分の供給を目的として ($\bar{1}\bar{1}2\bar{2}$)InGaN 面間隔 2 層分程度の設定で成長を行った。2 層程度の供給を行うために、InGaN 供給時間を 2 s 程度に縮める。また、In 組成が低いと InGaN の発光が GaN の発光ピークに隠れる可能性がある。従って、波長を揃えるために成長温度を調整し、成長温度を、705 - 750°C と変化させた。

$T_g = 725^\circ\text{C}$ で成長したサンプルの構造評価のために、XRD $2\theta/\omega$ スキャンを行った。XRD $2\theta/\omega$ スキャン測定結果を図 6.14 に示す。 $2\theta = 69.10^\circ$ に GaN からの回折ピークが、また矢印で示した箇所に InGaN/GaN 周期構造に起因すると考えられるサテライトピークが確認できた。このサテライトピークの間隔から見積もった周期構造の長周期 L は 7.87 nm となった。成長時の原料供給量は、850-900°C 付近で MQW を成長した場合に GaN が 11.63 nm、InGaN が 0.28 nm になる設定である。この GaN と InGaN の膜厚比が 725°C においても保たれると仮定すると InGaN と GaN の膜厚は、それぞれ 0.18、7.69 nm と見積もられる。{112̄2} GaN の面間隔は 0.136 nm (= 1 ML) であることを考えると、およそ 1.3 ML であると考えられる。このサンプルの InGaN は ML 単位で揺らいでいる GaN 基板上へ成長するため ML レベルの段差が InGaN に自然に発生することが ML レベルで揺らいでいる原因の一つと考えられる。

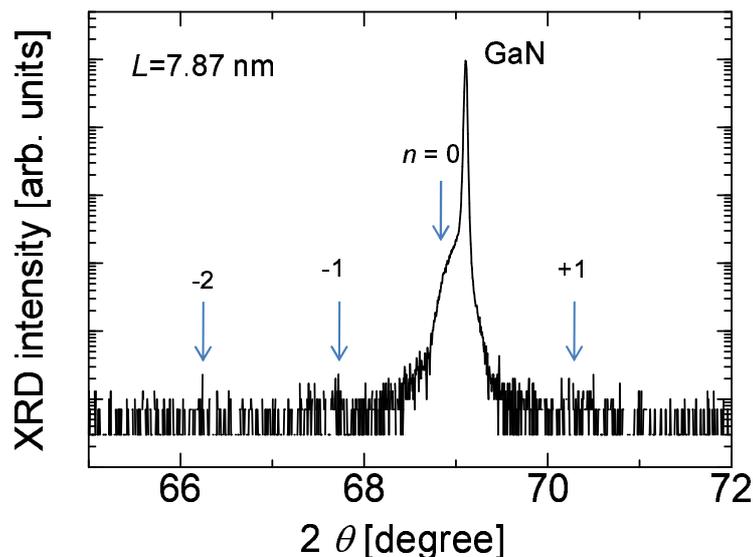


図 6.14 $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2}) T_g = 725^\circ\text{C}$ InGaN 1.3 ML , 5 周期積層サンプルの $2\theta/\omega$ スキャン測定結果 .

光学的特性

それらのサンプルについて 13 K で PL 測定を行った . 励起光に He-Cd レーザ (325 nm) を用い , 励起パワー密度を 12.7 W/cm^2 とした . 得られた PL スペクトルを図 6.15 に示す . PL

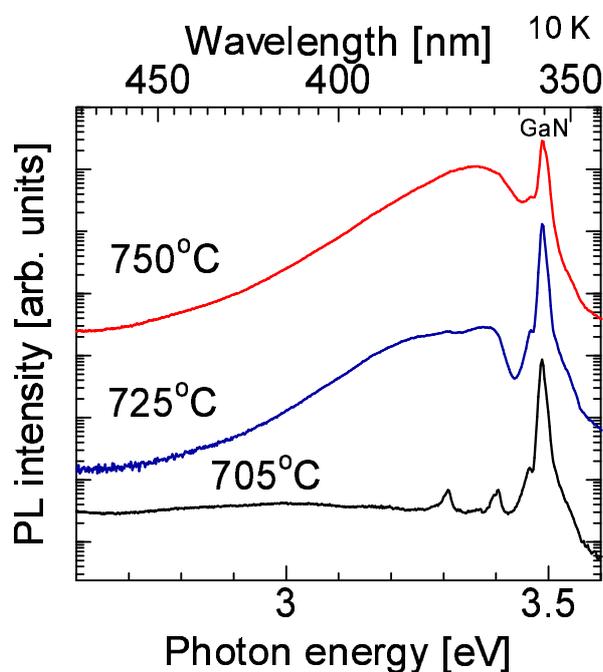


図 6.15 $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ InGaN 0.18 nm , $T_g = 705, 725, 750^\circ\text{C}$ PL 測定結果 (10 K) .

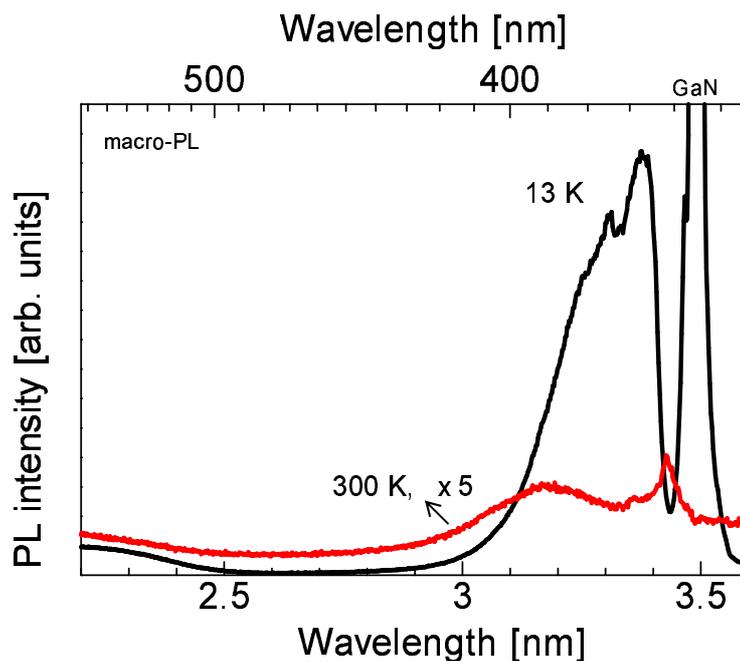


図 6.16 $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ $T_g = 725^\circ\text{C}$ InGaN 0.18 nm , 5 周期積層サンプルの低温および 300 K でのマクロ PL 測定結果 .

ピークエネルギーは $T_g = 750^\circ\text{C}$ では 3.36 eV に , $T_g = 725^\circ\text{C}$ では , 2.3-から 3.4eV にかけてブロードなスペクトルを呈した . また , $T_g = 705^\circ\text{C}$ では 2.6-3.2 eV 付近に非常にブロードな発光スペクトルを観測した . また , 室温での PL では $T_g = 750, 725^\circ\text{C}$ の順に 3.28, 3.15eV に FWHM が非常に大きい発光を得た .

室温での $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})\text{GaN}$ 上へ $T_g = 725^\circ\text{C}$ InGaN 0.18 nm(成長時間 2 s) のサンプルのマクロスコピック PL スペクトルを比較した結果を図 6.16 に示した . 低温で 3.37 eV, 300 K で 3.02 eV に明瞭なピークが確認出来る . 膜厚を約 0.3 nm として In 組成を見積もると In 組成は 55% となる . また , 低温と室温での InGaN からの発光のピーク強度比は RT/LT = 5% であり , In 組成 55% にもかかわらず高い値だと考えられる . また , 同様に 750°C 成長では In 組成 26-27% と見積もられた . $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ 上へ $T_g = 725^\circ\text{C}$ で InGaN を 1 s だけ成長し , GaN のスペーサによって 20 周期の周期構造を作製したサンプルからは InGaN からの発光は観測することができなかった . したがって , InGaN 成長 1 s では InGaN がほとんど成長していない可能性があり , これは XRD による測定結果から見積もられた膜厚が , 設定の 0.28 nm よりも小さく 0.18 nm であったことと符合する .

顕微 PL

次に , 励起する領域を制限して , 励起するドットの総数を減らして観測することでドットからのディスクリートな発光を期待して顕微 PL 測定を 4.2 K で行った . 励起には , チタンサ

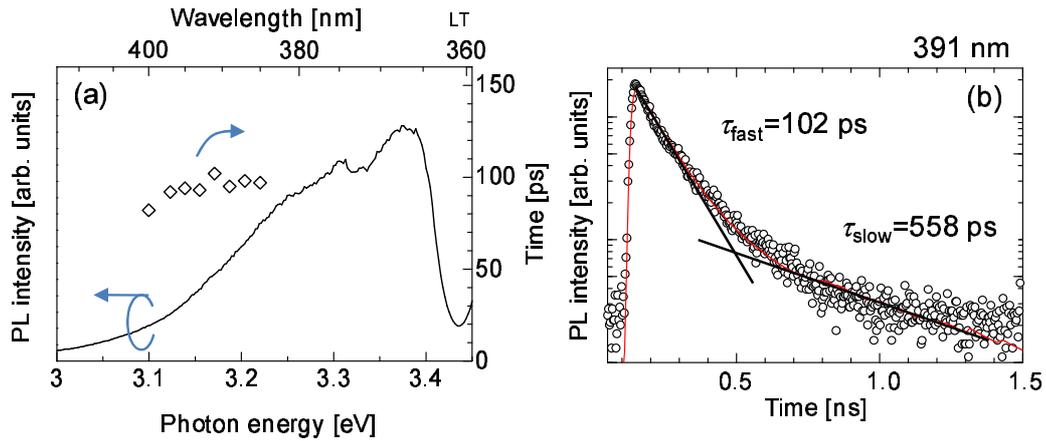


図 6.17 $\{11\bar{2}2\}$ GaN 上へ $T_g = 725^\circ\text{C}$ InGaN 供給 0.13 nm, 5 周期積層サンプルの低温顕微 PL 測定結果. (a) 時間積分発光スペクトルと PL 減衰寿命における発光エネルギー依存性, (b) 391 nm での PL 減衰曲線.

ファイアレーザ (720 nm, 80 MHz) の SHG (360 nm) を用いた. また, レーザの影響を省くために 385 nm で透過率が 50% である Low pass filter を受光側に設け, 40 倍の対物レンズを用いてレーザスポット直径を約 700 nm に絞った. サンプル上での励起パワー密度は $73.7 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ とした. 測定スペクトルはフィルタの影響があったのでマクロ PL でのスペクトルと共に解析可能であった波長での PL 減衰寿命を見積もり, 図 6.17(a) に示す.

直径 700 nm の励起スポットでも量子ドットからのシャープなスペクトルが観測されなかったことから, 量子ドットの分布が非常に密接になっていると考えられる. これは, すでに第 4 章で考察した LED 表面の発光強度の面内分布の違いからも言えると考えている. また, 391 nm での PL 減衰曲線を図 6.17(b) に示す. PL 減衰曲線は 2 つの指数関数を仮定するとフィットでき, それぞれの寿命は, $\tau_{\text{fast}} = 102 \text{ ps}$, $\tau_{\text{slow}} = 558 \text{ ps}$ でよいフィットを得た. また, TRPL 減衰寿命の発光エネルギー依存性を図 6.17(a) にプロットした. これを見るとほぼエネルギー依存性がなく, 高エネルギー側ほど寿命が長くなっている.

考察

τ_{fast} の値は極性面はもとより無極性面の (In)GaN QD の PL 減衰寿命よりも短くなっている. 例えば, 極性面では InGaN/GaN QD の 2.7 ns [21], 947ps-1.8 ns [22], 1.23 ns [23], 無極性 GaN/AlN QD の約 300 ps [25] よりも短く, 半極性 InGaN/GaN QD では全方向的に内部電界が低減されていることを示唆していると考えられる. 文献 [24] においては, 横方向のサイズが大きくなるほど再結合寿命が長くなっており, 無極性面でも面内に大きな内部電界が存在することを示唆している.

In 組成の不均一がある InGaN の TRPL 減衰寿命の発光エネルギー依存性は低エネルギー側程寿命が長くなる傾向にある一方, $(\bar{1}\bar{1}2\bar{2})$ InGaN/GaN QD では低温での TRPL 寿命の発光エネルギー依存性はほとんどなく, むしろ高エネルギーほど寿命が長くなっている. これは, ポテンシャル揺らぎではなく一つのドットとして機能している可能性を示唆するデータであると考えられる.

6.5 まとめ

本章では全方位的に内部電界の低減が示唆されている $\{11\bar{2}2\}$ InGaN QD の作製した結果を纏めた. まずは, (0001) 上において MOVPE による自己形成手法により InGaN QD を作製した. PL スペクトルは成長時間同発光波長の QW に比べて非常にブロードであり, それは QD のサイズ揺らぎに起因していると考えられる. また, $\{11\bar{2}2\}$ InGaN QD については, 数 ML 成長後に自然にできる ML 揺らぎを利用した量子ドットを作製し, AFM の FFM モードの解析結果から InGaN 膜上にまた単分子層付近での分子層揺らぎを利用した量子ドットを作製を目指し, 作製したサンプルの発光を確認できた. また, 輻射再結合寿命は約 100 ps であり, 極性面や無極性面上の窒化物のドットよりも早く, 半極性面 InGaN/GaN の有用性を示すことができたと考えている.

参考文献

- [1] A. Sasaki, *Superlattices and Microstructures* **31**, 159-169 (2002).
- [2] A. Sasaki, *応用物理* **65**, 1149-1152 (1996).
- [3] Y. Arakawa and H. Sakaki, *Applied Physics Letters* **40**, 939-941 (2003).
- [4] Y. Nabetani, T. Shishikawa, S. Noda, and A. Sasaki, *Journal of Applied Physics* **76**, 347-349 (1994).
- [5] J. Oshinowo, M. Nishioka, S. Ishicia, and Y. Arakawa *Applied Physics Letters* **65**, 1421-1423 (1994).
- [6] R. Nötzel, J. Temmyo, and T. Tamamura, *Science* **369**, 131-133 (1994).
- [7] T. Tawara, S. Tanaka, H. Kumano, and I. Suemune, *Applied Physics Letters* **75**, 235-237 (1999).
- [8] M. Arita, A. Avramescu, K. Uesugi, I Suemune, T. Nukai, H. Machida, and N. Shimoyama, *Japanese Journal of Applied Physics* **36**, 4097-4101 (1997).
- [9] B. P. Zhang, T. Yasuda, Y. Segawa, H. Yaguchi, and K. Onabe, *Applied Physics Letters* **70**, 2413-2415 (1997).
- [10] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park, *Science* **273**, 87-89 (1996).
- [11] S. Tanaka, S. Iwai, and Yoshinobu Aoyagi, *Applied Physics Letters* **69**, 4096-4098 (1996).
- [12] S. Tanaka, H. Hirayama, Y. Aoyagi, Y. Narukawa, Y. Kawakami, S. Fujita, and Shigeo Fujita, *Applied Physics Letters* **71**, 1299-1301 (1996).
- [13] S. Guha, A. Madhukar, and K. C. Rajukumar, *Applied Physics Letters* **57**, 2110-2112 (1990).
- [14] C. W. Snyder, B. G. Orr, D. Kessler, and L. M.Sander, *Physical Review Letters* **57**, 3032-3035 (1991).
- [15] C. W. Snyder, J. F. Mansfield, and B. G. Orr, *Physical Review B* **46**, 2110-2112 (1990).

- [16] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars, and P. M. Petroff, *Applied Physics Letters* **63**, 3203-3205 (1993).
- [17] J. Oshinowo, M. Nishioka, S. Ishida, and Y. Arakawa, *Applied Physics Letters* **65**, 1421-1423 (1994).
- [18] K. Tachibana, T. Someya, and Y. Arakawa, *Applied Physics Letters* **74**, 383-385 (1999).
- [19] K. Tachibana, T. Someya, S. Ishida, and T. Arakawa, *Applied Physics Letters* **76**, 3212-3214 (2000).
- [20] O Moriwaki, T. Someya, K. Tachibana, S. Ishida, and Yasuhiko Arakawa, *Applied Physics Letters* **76**, 2361-2363 (2000).
- [21] R. A. Oliver, G. Andrew, D. Briggs, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, S. Yasin, J. H. Rice, J. D. Smith, and R. A. Taylor, *Applied Physics Letters* **83**, 755-757 (2003).
- [22] A. F. Jarjour, A. M. Green, T. J. Parker, R. A. Taylor, R. A. Oliver, G. A. D. Briggs, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, R. W. Martin, and I. M. Watson, *Physica E* **32**, 119-122 (2006).
- [23] M. Winkelkemper, M. Dworzak, T. P. Bartel, A. Strittmatter, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Physica Status Solidi (b)* **245**, 2766-2770 (2008).
- [24] S. Founta, F. Rol, E. Bellet-Amalric, J. Bleuse, B. Daudin, B. Gayral, H. Mariette, and C. Moisson, *Applied Physics Letters* **86**, 171901 (2005).
- [25] F. Rol, S. Founta, H. Mariette, B. Daudin, L. S. Dang, J. Bleuse, D. Peyrade, J.-M. Gerard, and B. Gayral, *Physical Review B* **75**, 125306 (1990).
- [26] H. J. Kim, H. Na, S. -Y. Kwon, H. -C. Seo, H. J. Kim, Y. Shin, K. -H. Lee, D. H. Kim, H. J. Oh, S. Yoon, C. Sone, Y. Park, E. Yoon, *Journal of Crystal Growth* **269**, 95-99 (2004).
- [27] M. Funato and Y. Kawakami, *Journal of Applied Physics* **103**, 093501 (2008).
- [28] Y. C. Yeo, T. C. Chong, and M. F. Li, *Journal of Applied Physics* **83**, 1429-1436 (1998).
- [29] J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. Ager III, E. E. Haller, H. Lu, and W. J. Schaff, *Physica Status Solidi (b)* **240**, 412-416 (2003).
- [30] Y. Nanishi, Y. Saito, and T. Yamaguchi, *Japanese Journal of Applied Physics* **42**, 2549-2559 (2003).
- [31] A. Kurtenbach, K. Eberl, and T. Shitara, *Applied Physics Letters* **66**, 361-363 (1995).
- [32] 井上 大輔, 京都大学修士論文 (2009).

第 7 章

結論

7.1 はじめに

本研究では，内部電界が低減されていると示唆されていながら，結晶成長の問題により実用レベルに達していなかった半極性 InGaN/GaN QW を低転位密度の $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板を用いたホモエピタキシーにより，実用レベルの $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW および LED を実現した．また，半極性面 InGaN/GaN 歪 QW における偏光特性を見出した．さらに，全方位的に内部電界が低減していると考えられている $\{11\bar{2}2\}$ 面上への量子ドットの作製を試みた．

次節以降，各章での内容をまとめ，今後の検討課題や，展開などを述べる．

7.2 本研究で得られた成果

$\{11\bar{2}2\}$ GaN ホモエピタキシー

本章では $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板上へのホモエピタキシーに関する研究について纏めた．まず，バルク基板の基礎特性を評価し，従来の (0001) GaN/*c*- plane sapphire 基板に比べて低転位密度であることを確認した．しかし，基板表面はドット状の形状であり，量子構造を作製するには表面の粗さが大きいため，平坦化すべくホモエピタキシーを行った． $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板上への GaN 層の成長条件を最適化した結果，(0001) に比べて低温，高 V/III において，原子レベルで平坦な成長表面を実現し，実用上使用するサイズでピット等がほとんどないこと，および低温 PL の結果，自由励起子発光が支配的でありドナー不純物が非常に少ないことなど光学的特性が優れていることがわかった．

$\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN QW の作製

第 2 章で実現した原子レベルで平坦な GaN 膜上への InGaN / GaN QW の成長を行った．また，XRD 測定により QW からの明瞭なサテライトピークを確認でき， $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN

MQW において完全性の高い MQW が実現した。また，PL によって，QW からの強い発光を確認，TRPL により (0001) 面 InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW よりも 2 桁速い輻射再結合寿命を観測した。この結果は，(0001) に比べて内部電界が低減していることを示唆する結果である。

また，海外研究機関との共同研究によって行われた電子線ホログラフィー技術を利用して $\{11\bar{2}2\}$ InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW のポテンシャルプロファイルを測定し，(0001) に比べて内部電界が格段に低減しており，観測限界以下の内部電界しか存在しないことを確認した。

$\{11\bar{2}2\}$ InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW の LED 応用

第3章で実現した $\{11\bar{2}2\}$ InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW を LED へ応用することで，それまでの報告では $\{11\bar{2}2\}$ LED の外部量子効率が 0.1% にも満たなかったが本研究では緑色 LED で $\eta_{\text{ext}} = 4.1\%$ と実用レベルの効率を実現した。また，逆バイアス PL による内部電界の見積もりを行い，やはり (0001) に比べて内部電界が 1 桁程度低減していることを見出した。また QW にかかる内部電界が低減しているために，LED の外部量子効率の注入電流依存性が (0001) に比べて電流増加に対する η_{ext} の低下が低減されていると考えられる。

半極性面の偏光特性の解明

本研究では，従来のランダム偏光を発する (0001) InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW よりも傾いた半極性 $\{11\bar{2}2\}$ InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW での強い偏光特性と偏光反転現象を見出した。そしてこれは，半極性面において「せん断歪」が 0 ではなくなり，価電子帯の順番を入れ替える作用をしていることがわかった。また，2 つの価電子帯遷移のエネルギー差を解析することにより In \bar{N} の変形ポテンシャルの値を見積もった。本結果は，今まであまり明らかにされていない In \bar{N} の物性値を展望するきっかけとなるものであり意味があると考えられる。さらに，本結果によれば InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW の In 組成が大きい領域，たとえば緑色領域でレーザを作製した際に $\{1\bar{1}00\}$ をへき開することで容易に共振器ミラーを作製することができ，産業応用上も非常に意味があるといえる。

$\{11\bar{2}2\}$ InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QD の作製

本章では，全方位的に内部電界が低減されていると予測される $\{11\bar{2}2\}$ InGa \bar{N} QD の作製を試みた。まず，第一段階として成長条件を最適化することで (0001) 上で InGa \bar{N} QD を作製することに成功した。また，(0001) InGa \bar{N} QD から，QD のサイズと In 組成揺らぎによると考えられる非常にブロードな PL スペクトルを観測した。

次に， $\{11\bar{2}2\}$ Ga \bar{N} ホモエピタキシャル膜上への InGa \bar{N} QD の作製を試みた。本研究では，界面での ML 揺らぎを利用した QD の作製を目指した。その結果，AFM および FFM モードによる解析で InGa \bar{N} 表面が ML レベルで揺らいでいることがわかった。また，1-2 ML の InGa \bar{N} を作製して量子効果を顕著にさせた ML 揺らぎの起因するドットからの発光

を確認し、時間分解 PL 測定により約 100 ps の PL 減衰寿命を確認した。これは、極性面の InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QD の数 ns や無極性面 Ga \bar{N} QD の 300 ps よりも早く、半極性面での全方位的な内部電界の低減を示唆する結果であると考えている。

また、波及効果として、ML 揺らぎで自然に形成する QD を用いることで、QD サイズと組成が大きく揺らぐことが期待でき、高効率だけではなく多波長発光素子への応用も期待できる。逆に、QD のサイズ、さらには位置を制御できれば、QD レーザや量子計算などへ応用ができるかもしれない。

7.3 今後の展望

本研究では $\{11\bar{2}2\}$ InGa \bar{N} /Ga \bar{N} の有用性を示してきたが、今後期待されることを考えると、

- (1) InGa \bar{N} /Ga \bar{N} QW の内部量子効率
- (2) デバイス構造 (本研究では p, n 電極を両方表面から取っている)
- (3) 光取り出し効率

などが考えられる。(1) は成長条件の最適化が必要であり、おそらく長い時間をかけなければならない。しかし、成長条件や LED 構造については最適条件が (0001) Ga \bar{N} とは大幅に異なる可能性もあり今後の発展が重要であると考えている。(しかし (0001) の開発の歴史に比べ非常に短期間の条件だしにもかかわらず、 $\{11\bar{2}2\}$ LED の η_{ext} は 4% を超えたものもあり、 $\{11\bar{2}2\}$ は結晶成長の面からも有望であるといえる。)

さらに、(2) であるが、今回は従来のサファイア上 (0001) InGa \bar{N} LED と比較するため、導電性基板にもかかわらず、電極を両方表面から取っており、また、デバイス構造も (0001) の従来構造のままである。(11 $\bar{2}2$) Ga \bar{N} 基板を使う以上、 n 電極を基板側から取るなどより最適な構造にすると現状以上に外部量子効率などのデバイス特性が格段に向上するものと期待できる。また、これは (3) についても言えることである。

また、デバイスの性能が向上すれば、より小さなチップでも光量を稼ぐことができるようになり、たとえば医療用マイクロカプセルなどへ容易に搭載されて、人々の病を治療することになるかもしれない。

本研究が、窒化物半導体の光デバイス性能向上への一役を担い、全世界的なエネルギー問題の解決の一助となることを切に願う。また、今後私が行ういかなる研究も地球、世界、そして人の為に役立てていくことを誓いつつ本論文の結びとする。

謝辞

本研究は、筆者が2005年10月から2009年3月の博士後期課程在籍の間に非常に多くの方々に支えられて、進めてきた研究を纏めたものであります。その方々の支えがなければ今日ここに学位論文を纏めるに至ることが出来ませんでした。ここに深く感謝の気持ちを表します。

京都大学大学院工学研究科電子工学専攻 川上養一教授のご指導のもとで、研究を進めることができ、本研究を学位論文として纏めることができました。本研究を進めるにあたり、川上養一教授には自分の意見で研究を進めることが出来る場を与えてくださり、学術的で的確な助言を多数賜りました。私が会社を辞めて博士課程へ進学したいと申し出た時も、研究について熱意をもって語ってくださり、研究室への配属を快諾して下さいました。また、いつも笑顔で励ましてくださり本研究を進めていくことができました。特に、国外、国内会議での発表の際にはとても心強く、自信を持って発表することが出来ました。ここに心より感謝申し上げます。

京都大学大学院工学研究科 藤田静雄教授、京都大学大学院工学研究科電子工学専攻 木本恒暢教授には、在学期間中、副指導教員としてご指導頂き、さらに予備検討や公聴会での審査など学位論文を纏めるにあたり格別のご指導を賜りました。

藤田静雄教授には、私が学部4回生で京都大学大学院工学研究科電子工学専攻藤田研究室に配属されて以来修士課程卒業まで直属の指導教員として格別のご指導を賜りました。また、私がぜひ博士課程へ進学したいと相談させて頂いた際には親身になって話を聞いてくださり、進学を決意を固くすることができました。また、博士課程在学中も副指導教員として、研究の独自性を大切にしつつ、物理に対する緻密な視点によるご助言など格別なご指導を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。

木本恒暢教授には、私が修士在学中にも修士論文の内見をして頂き、格別のご指導を賜りました。また、博士課程在学中には副指導教員として、長時間にわたりご議論をして頂きました。木本教授から賜りましたご助言は、普段光デバイスを目指して研究している私にとって非常に有意義であり、本研究を滞りなく進めることができました。ここに深く感謝を申し上げます。

京都大学大学院工学研究科電子工学専攻の船戸充准教授には直属の指導教員として格別のご

指導を賜りました。船戸准教授の妥協を許さない研究に対する姿勢を拝見させていただきつつ、常にその姿勢を見習って研究を進めてまいりました。また、常日頃から船戸准教授からの確なご助言を賜ることができ、本研究を精力的に進めることができました。船戸准教授からのご指導がなければ、本研究は進めることができませんでした。ここに深く感謝を申し上げます。

京都大学大学院工学研究科電子工学専攻 野田進教授には、博士課程進学時以来、いつも声をかけて気にかけてくださいました。ここに深く感謝申し上げます。

京都大学大学院工学研究科電子工学専攻 須田淳准教授、野田啓助教、富士田誠之助教をはじめとする教員の先生方には本研究に対しても、学問に関しても格別なご指導を賜りました。心より感謝申し上げます。

京都大学大学院工学研究科電気工学専攻の引原隆士教授、佐藤宣夫助教をはじめとする教員の先生方には本学で研究生生活を送る上で、様々なご指導を賜りました。心より感謝申し上げます。

日亜化学工業株式会社の向井孝志氏、成川幸男氏には、本研究を進めるにあたり非常に厚いご支援をいただきました。学会発表などの際には、私が書いた資料に目を通して下さり、適格なご指導を賜りました。また、発光ダイオードの作製の際にはお忙しい中、非常に厚いご支援を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。

日亜化学工業株式会社の大前邦途氏、榊篤史氏には研究に対して的確なご助言を頂きました。私が不勉強な部分に対して丁寧にご指導を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。

日亜化学工業株式会社の小杉卓生氏、高橋正良氏には本研究において発光ダイオードの作製において非常に厚いご支援を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。

京都大学大学院工学研究科特命准教授ならびに独立行政法人 科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業「物質と光作用」領域 さきがけ研究者の岡本晃一先生には普段の研究において、いつも適格なご助言を賜ることができました。ここに深く感謝を申し上げます。

日本学術振興会特別研究員の金田昭男氏には、光学実験のみならず普段の実験全般において格別のご指導を賜りました。私が発光ダイオードの発光特性や偏光特性等の光学測定において1週間泊まり込みで実験を遂行した時も金田氏は実験系などに不備がないかどうかを常に気にしてくださり、格別のご支援を賜りました。金田氏の後輩への配慮は筆舌に尽くしがたい程きめ細かであり、時間とともに先輩になってゆく私のよき先輩像として見習ってきました。ここに、謹んで感謝申し上げます。

2008年3月に川上研究室において博士課程を修了された現野田研究室の小島一信助教には、本研究を進める上で、いつも理論面からの的を射た指摘や議論を賜りました。小島氏は、何事においても精力的に遂行され、博士課程進学時や在学中においても研究面も精神面も多大なサポートを賜りました。ここに深く感謝の意を表します。

GCOE 研究員のリチャード・バルドウ氏には、光学実験、量子構造などに関する学術的な

ご指導だけではなく、普段の生活においても国際的な考え方をするきっかけを賜りました。深く感謝申し上げます。

川上研究室博士課程のライアン ガニパン バナル氏、金 潤碩氏、姜 恩貞氏には普段の研究生活において格別のご支援を賜りました。ここに感謝の意を表します。ライアン氏は、化学のバックグラウンドならではの考え方に基づく考えをするきっかけを与えてくださいました。また、同じ結晶成長屋として、日々の努力を惜しまない姿勢を共有できたことは、本研究を進める上でとても励みになりました。ここに深く感謝申し上げます。金氏には、一度社会に出られ、博士課程に戻られたという、私と似たような履歴をお持ちであり、その社会経験はとても参考になりました。姜氏が博士課程に進学されてから間もないですが、同じく会社で働いた経験をお持ちであって、その考え方はとても参考になりました。

川上研究室修士課程に在学されている井上大輔氏、西村活人氏、石井良太氏、橋本恒明氏、藤本毅氏、渡邊圭二氏、渡辺充氏には普段より研究室のメンバーとして、お世話になりました。井上氏は、同じ研究テーマを持つ研究メンバーとして、また同じ MOVPE4 号機メンバーとして、装置の維持、結晶成長などの実験を意欲的に推進していただきました。井上氏の研究への協力は多大なものでありました。ここに深く感謝申し上げます。渡辺充氏は成長装置に関する維持や実験など多大な協力を頂き、また同じ 4 号機メンバーとして精力的に研究を推進してくださいました。ここに深く感謝申し上げます。

川上研究室学部 4 回生の伊東恭佑氏、大音隆男氏、橋谷享氏、李晨氏、西中淳一氏には、様々な議論をさせていただきました。深く感謝いたします。

川上研究室秘書の寺井美紀氏には、日常の研究を進める上で多大なるご支援を賜りました。特に国際学会などの出張の際は手続きが不慣れな私をサポートしてくださいました。ここに、謹んで感謝申し上げます。

横浜市立大学のルジェロ・ミケレット准教授には、本研究に対し、光学測定ノウハウなど、格別のご指導を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。

元川上研究室博士研究員の西塚幸司氏、黒田剛正氏には、本研究において多大なるご支援を賜りました。光学実験においてもよく相談に乗ってくださり、また、普段の研究の進め方においても格別のご指導を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。

故藤田茂夫研究室、川上研究室に私が在籍している間に、お世話になったすべての方々に感謝の意を表します。元川上研究室修士課程の宇治田信二氏、河野福司氏、小谷晃央氏、朱雲飛氏、鈴木翔氏、畑田芳隆氏、山田大輔氏、梁世英氏、金井聡庸氏、近藤剛氏、加門宏章氏、林敬太氏、蘇嵐氏には研究に対して深い議論を賜りました。また、元研究室秘書の西山幸子氏は在学中研究室の雰囲気をもよくして頂き研究がうまく進むように気配りをして下さいました。心より感謝申し上げます。

元藤田研究室博士課程の川原村敏幸氏には、本研究に対して、化学的な視点から様々な助言を賜りました。川原村氏の意欲的な研究姿勢は常日頃から見習わなければならないと感じてお

ります。ここに深く感謝申し上げます。

藤田研究室博士課程の西中浩之氏，大島孝仁氏，鎌田雄大氏には，研究に対する様々な議論を賜りました。また同じ博士課程に身をおくものとして様々な面から支えていただきました。ここに深く感謝いたします。

藤田研究室修士課程の騎馬啓嗣氏，池之上卓己氏，奥野剛也氏，金子健太郎氏，亀山直季氏には，研究生活においての様々な議論を頂きました。本当にありがとうございました。

京都知的クラスタ本部 京都環境ナノクラスターの亀谷圭介氏，藤田研究室博士研究員香取重尊氏には，研究に対するサポートや実験室でお会いしたときも，気にかけてくださいました。深く感謝申し上げます。

元藤田研究室博士研究員の前島圭剛氏，森山匠氏，山雄健史氏，丸山則彦氏には修士時代から博士課程まであらゆる有益な助言を賜りました。誠に有難うございました。

元藤田研究室修士課程の篠原大輔氏，堀口嵩浩氏，坂井俊氏，山下裕泰氏には，研究会などにおいて色々と議論して頂きました。誠に有難うございました。

また，京都大学大学院工学研究科電子工学専攻，電気工学専攻の方々，野田研究室の黒坂剛孝氏，21世紀COEプログラムで共に学生セミナーなどを企画した吉岡裕典氏，木村真之氏をはじめ，皆様にはたいへんお世話になりました。心より感謝申し上げます。

アメリカ合衆国アリゾナ州立大学フェルナンド・ポンセ教授，アレック・フィッシャー氏，ジーハオ・ウー氏には，GCOE若手研究員海外派遣プログラムにおいてポンセ先生の研究室に1週間派遣された時に，多大なるサポートを頂きました。ポンセ教授の研究室で行った実験は本研究の意義を再確認できる結果となりました。ここに深く感謝申し上げます。

紙面の都合でご芳名を載せることができませんでしたが，本研究分野の関係者の皆様には，国内学会，国際学会などで深い議論をして頂き，またいつも会場などで声をかけてくださり誠に有難うございました。ここに心より感謝申し上げます。

故藤田茂夫教授には，私が学部4回生で研究室に配属されてから，修士課程の途中まで，指導教官として格別のご指導を賜りました。故藤田茂夫教授の学生への思いやりのあるご指導は，学部4回生の私にとってとても温かく感じられたと同時に，先生の研究への熱い姿勢，つまり研究は世の中の人々の幸せのためである，という信念は研究者としての座右の銘として今日でも念頭に置いて研究を進めております。また，修士課程を卒業し会社で働いていた中で，ある道を究めるべく学位取得を諦めきれなかった中，「藤田茂夫先生を偲ぶ会」に参加し，色々と考えた末，博士課程へ進学することにしました。博士課程進学への決断をすることになった一番のきっかけはやはり「偲ぶ会」で故藤田茂夫教授の研究人生を拝見したことでした。ご冥福をお祈りすると同時に，深く感謝申し上げます。

最後に，会社を辞めて博士課程へ進学したいという私の進学への後押しをし，研究生生活を支えてくれた父，母，弟ら家族に心より感謝します。

業績一覧

学術論文

- (1) Masaya Ueda, Mitsuru Funato, Kazunobu Kojima, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, Takashi Mukai,
 "Polarization switching phenomena in semipolar In_xGa_{1-x}N/GaN quantum well active layers"
Physical Review B **78**, 233303 (2008).
- (2) Masaya Ueda, Keita Hayashi, Takeshi Kondou, Mitsuru Funato, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai
 "Mechanisms of metalorganic vapor phase epitaxy of InGa_N quantum wells on GaN microfacet structures"
Physica Status Solidi (c) **4**, 2826-2829 (2007).
- (3) Masaya Ueda, Takeshi Kondou, Keita Hayashi, Mitsuru Funato, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa and Takashi Mukai
 "Additive color mixture of emission from InGa_N/GaN quantum wells on structure-controlled GaN microfacets"
Applied Physics Letters **90**, 171907 (2007).^{*1}
- (4) Masaya Ueda, Kazunobu Kojima, Mitsuru Funato, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai
 "Epitaxial growth and optical properties of semipolar {11 $\bar{2}$ 2} GaN and InGa_N/GaN quantum wells on GaN bulk substrates"
Applied Physics Letters **89**, 211907 (2006).
- (5) Mitsuru Funato, Masaya Ueda, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, Takao Kosugi, Masayoshi Takahashi, and Takashi Mukai
 "Blue, green, and amber InGa_N/GaN light-emitting diodes on semipolar (11 $\bar{2}$ 2)

^{*1} 論文番号がある論文 (最近の APL など) は, ページの代わりに論文番号を記します .

GaN bulk substrates”

Japanese Journal of Applied Physics **45**, L659-L662 (2006). *Express Letter*

関連論文

- (1) Mitsuru Funato, Keita Hayashi, Masaya Ueda, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai
”Emission color tunable light-emitting diodes composed of InGaN multifacet quantum wells”
Applied Physics Letters **93**, 021126 (2008).
- (2) Mitsuru Funato, Takeshi Kondou, Keita Hayashi, Shotaro Nishiura, Masaya Ueda, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai
”Monolithic polychromatic light-emitting diodes based on InGaN microfacet quantum wells toward tailor-made solid-state lighting”
Applied Physics Express **1**, 011106 (2008).
- (3) Kazunobu Kojima, Masaya Ueda, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami
”Photoluminescence and optical reflectance investigation of semipolar and nonpolar GaN”
Physica Status Solidi (b) **244**, 1853 -1856 (2007).

国際会議

Invited presentation

- (1) Masaya Ueda, Mitsuru Funato, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai,
”Polarization anisotropy in semipolar InGaN/GaN quantum well active layers”
International Workshop on Nitride Semiconductors 2008, WS5-Opto 1: Materials and physics, Optical characterization II, Th5-E1, Montreux, Switzerland, October 6-10, 2008
- (2) Mitsuru Funato, Masaya Ueda, Koji Nishizuka, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai,
”Toward the achievement of tailor-made solid-state lighting with a phosphor-less technology based on InGaN/GaN quantum wells”

TMS 2007, 136th Annual Meeting & Exhibition Wide Band-Gap Semiconductor Nanostructures: Session III, Florida, USA, February 25-March 1, 2007

- (3) Yoichi Kawakami, Masaya Ueda, Mitsuru Funato, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai,
"Light emitting devices based on semipolar-oriented InGaN / GaN quantum wells"
The 14th International Display Workshops, LAD2-1, Sapporo, Japan, December 7, 2007
- (4) Mitsuru Funato, Masaya Ueda, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, Takao Kosugi, Masayoshi Takahashi, and Takashi Mukai,
"InGaN/GaN light-emitting diodes on semipolar $\{11\bar{2}2\}$ GaN bulk crystals",
International Workshop on Nitride Semiconductor 2006, LEDs (2), WeOD3-1, Kyoto International Conference Hall, Kyoto, Japan, October 22-27, 2006

Oral presentations

- (1) Masaya Ueda, Mitsuru Funato, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai
"Strong polarization effects in InGaN/GaN light emitting diodes grown on semipolar $\{11\bar{2}2\}$ GaN bulk substrates"
7th International conference of Nitride Semiconductors, Session U:Optical Characterization of LEDs, U2, MGM Grand Hotel, Las Vegas, Nevada, USA, September 16-21, 2007
- (2) Mitsuru Funato, Takeshi Kondou, Keita Hayashi, Masaya Ueda, Yoichi Kawakami Yukio Narukawa, and Takashi Mukai,
"InGaN/GaN multi-facet light emitting diodes toward tailor-made solid-state lighting without phosphors"
7th International conference of Nitride Semiconductors, V3, MGM Grand Hotel, Las Vegas, Nevada, USA, September 16-21, 2007
- (3) Kazunobu Kojima, Masaya Ueda, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami
"Optical reflectance investigation of semipolar and nonpolar GaN"
International Workshop on Nitride Semiconductor 2006, WeOP2-4, Kyoto International Conference Hall, Kyoto, Japan, October 22-27, 2006

Poster presentation

- (1) Masaya Ueda, Keita Hayashi, Takeshi Kondou, Mitsuru Funato, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai,
 "Various additive color emission from InGaN quantum wells on structure-controlled GaN microfacets"
 International Workshop on Nitride Semiconductor 2006, TuP2-34, Kyoto International Conference Hall, Kyoto, Japan, October 22-27, 2006

国内会議

招待講演

- (1) 上田雅也, 船戸 充, 川上養一, 成川幸男, 向井孝志
 "半極性 $\{11\bar{2}2\}$ GaN バルク基板上 InGaN/GaN 量子井戸活性層の偏光特性"
 2007 年秋季 第 68 回応用物理学学会学術講演会 6p-ZS-1, 北海道工大, 2007 年 9 月 4 - 8 日「講演奨励賞受賞記念講演」
- (2) 船戸 充, 上田雅也, 川上養一, 成川幸男, 小杉卓生, 高橋正良, 向井孝志
 "Blue, green, and amber InGaN/GaN light-emitting diodes on semipolar $\{11\bar{2}2\}$ GaN bulk substrates"
 2007 年秋季 第 68 回応用物理学学会学術講演会, 7a-ZR-1, 北海道工大, 2007 年 9 月 4 - 8 日「JJAP 論文賞受賞記念講演」
- (3) Mitsuru Funato, Masaya Ueda, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, and Takashi Mukai
 "Developments of semipolar $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN quantum wells and light emitting diodes" 26th Electronic Materials Symposium, SP3
 ラフォーレ琵琶湖 (滋賀), 2007 年 7 月 4-6 日

口頭講演

- (1) 上田雅也, 金田昭男, 船戸 充, 川上養一
 "半極性 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN 量子井戸における発光の空間分布"
 第 56 回応用物理学関係連合講演会, 30p-ZJ-10, 筑波大学, 2009 年 3 月 30 - 4 月 2 日
- (2) 上田雅也, 船戸 充, 川上養一, 成川幸男, 向井孝志

- ”半極性 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN 量子井戸における偏光ルミネッセンスの温度特性”
2008 年秋季 第 69 回応用物理学学会学術講演会, 3a-CA-9, 中部大学, 2008 年 9 月 2 - 5 日
- (3) 上田雅也, 船戸 充, 川上養一, 成川幸男, 向井孝志
”半極性 $\{11\bar{2}2\}$ InGaN/GaN 量子井戸における光学異方性の回転”
2008 年春季 第 55 回応用物理学関係連合講演会, 29a-B-8, 日本大学, 2008 年 3 月 27-29 日
- (4) 井上大輔, 上田雅也, 船戸 充, 成川幸男, 向井孝志, 川上養一
”半極性 $(11\bar{2}2)$ GaN バルク基板上 InGaN/GaN 量子井戸の歪み解析”
2008 年春季 第 55 回応用物理学関係連合講演会, 29a-B-7, 日本大学, 2008 年 3 月 27-29 日
- (5) 川上養一, 船戸 充, 金田昭男, 上田雅也, 小島一信, 成川幸男, 向井孝志
”高 In 組成 InGaN の輻射・非輻射再結合過程の解明と制御”
2007 年秋季 第 68 回応用物理学学会学術講演会, 5p-ZR-5, 北海道工大, 2007 年 9 月 4 - 8 日
- (6) **Masaya Ueda**, Daisuke Inoue, Mitsuru Funato, Y. Narukawa, Takashi Mukai, and Yoichi Kawakami
”Polarization properties of InGaN/GaN light emitting diodes on $\{11\bar{2}2\}$ GaN bulk substrates” 26th electronic Materials Symposium, E10,
ラフォーレ琵琶湖 (滋賀), 2007 年 7 月 4-6 日
- (7) 上田雅也, 船戸充, 川上養一, 成川幸男, 向井孝志
”半極性 $(11\bar{2}2)$ GaN バルク基板上 InGaN/GaN 発光ダイオードの偏光特性”,
2007 年春季 第 54 回応用物理学関係連合講演会, 29a-ZM-12, 青山学院大, 2007 年 3 月 27- 30 日 (講演奨励賞 受賞)
- (8) 上田雅也, 小島一信, 船戸充, 川上養一, 成川幸男, 向井孝志
”半極性 GaN 基板上への InGaN/GaN 量子井戸構造の作製と光学特性評価”
電子情報通信学会・レーザ・量子エレクトロニクス研究会 2006-10-06 09:55, 京都大,
2006 年 10 月
- (9) 上田雅也, 小島一信, 船戸充, 川上養一, 成川幸男, 向井孝志
”GaN $\{11\bar{2}2\}$ 基板上への GaN のホモエピタキシャル成長”,
2006 年秋季 第 67 回応用物理学学会学術講演会, 30p-C-11, 立命館大, 2006 年 8 月 29 日-
9 月 1 日
- (10) **Masaya Ueda**, Takeshi Kondou, Keita Hayashi, Mitsuru Funato, Yukio Narukawa, Takashi Mukai, and Y. Kawakami
”Color synthesis based on multi-wavelengths emission from InGaN/GaN quantum

wells formed on GaN microfacet structures”

25th electronic Materials Symposium, B11, 2006年7月5-7日, ホテルサンバレー富士見 (伊豆の国)

- (11) 上田雅也, 近藤剛, 林敬太, 船戸充, 成川幸男, 向井孝志, 川上養一
 ”GaN 微細構造上 InGaN 量子構造の成長機構”,
 2006年春季第53回応用物理学関係連合講演会, 26a-ZF-6, 武蔵工業大, 2006年3月22 - 26日

関連発表

- (1) 林敬太, 上田雅也, 船戸充, 成川幸男, 向井孝志, 川上養一
 ”白色および波長可変 InGaN/GaN マイクロファセット発光ダイオードの作製”
 2008年春季第55回応用物理学関係連合講演会, 30p-B-2, 日本大学, 2008年3月27-29日
- (2) 林敬太, 近藤剛, 上田雅也, 船戸充, 川上養一, 成川幸男, 向井孝志
 ”InGaN/GaN マイクロファセット多波長発光ダイオードの作製と評価”
 2007年秋季第68回応用物理学学会学術講演会, 7a-ZR-2, 北海道工大, 2007年9月4-8日
- (3) 近藤剛, 上田雅也, 林敬太, 船戸充, 成川幸男, 向井孝志, 川上養一
 ”多色発光 InGaN/GaN 微細ファセット量子井戸の光学特性評価”
 2006年秋季第67回応用物理学学会学術講演会, 30p-C-18, 立命館大, 2006年8月29日-9月1日
- (4) 近藤剛, 上田雅也, 林敬太, 船戸充, 成川幸男, 向井孝志, 川上養一
 ”InGaN/GaN 微細ファセット量子井戸による多色発光”
 2006年春季第53回応用物理学関係連合講演会, 25a-ZL-11, 武蔵工業大, 2006年3月22 - 26日

賞

- (1) 第22回(2007年春季)応用物理学学会 講演奨励賞
上田雅也, 船戸充, 川上養一, 成川幸男, 向井孝志
 ”半極性(11 $\bar{2}$ 2) GaN バルク基板上 InGaN/GaN 発光ダイオードの偏光特性”
 2007年春季第54回応用物理学関係連合講演会, 29a-ZM-12, 青山学院大, 2007年3月27-30日

(2) 第 29 回応用物理学会 JJAP 論文賞

Mitsuru Funato, Masaya Ueda, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, Takao Kosugi, Masayoshi Takahashi, and Takashi Mukai

”Blue, green, and amber InGaN/GaN light-emitting diodes on semipolar $\{11\bar{2}2\}$ GaN bulk substrates”

Japanese Journal of Applied Physics **45**, 26, L659-L662 (2006). *Express Letter*