

原子層エピタキシー法により作製した GaAs 薄膜の評価

藤田 陽¹⁾・川野 雅史²⁾・陣内 宏基²⁾・
前田 幸治³⁾・尾関 雅志⁴⁾

Growth condition of Homoepitaxial GaAs layers grown by Atomic Layer Epitaxy

Akira FUJITA, Masashi KAWANO, Hironori JINNAI,
Kouji MAEDA, Masashi OZEKI,

Abstract

Homoepitaxial GaAs layers grown on GaAs(001) by atomic layer epitaxy(ALE) technic are investigated. Growth temperatures are at 460, 500 and 540 . Carrer concentrations of films were evaluated by a hall measurement technic and the parameter of fitting from Raman spectrum assumed by coupled plasmon-LO-phonon modes. The hole concentration was a maximum value at 500 growth intensity of photoluminescence at 10K has a maximum at 500 growth film. Hull width at half maximum of the LO phonon mode in raman spectrum also showed at the minimum the temperature.The growth temperature is suitable at 500 for GaAs film by ALE.

Key ward: atomic layer epitaxy, GaAs, homoepitaxial growth, Photoluminescence, Raman scattering, Coupled Plasmon-LO-Phonon modes

1. はじめに

- 族化合物半導体の多くは直接遷移型半導体で、Si に比べ電子移動度ははるかに高いことから高速信号処理に優れており、その他発光効率が高いことや、低電圧での動作が可能といった特徴がある¹⁾。この - 族化合物半導体は、近年のインターネットの普及や携帯電話、パソコン、DVD レコーダーをはじめとする

デジタル家電や発光ダイオード(LED)などの市場の拡大により、その役割がより一層大きくなっている。

従来、化合物半導体において、結晶の原子層単位の制御手法として広く用いられているのは、分子層エピタキシー(Molecular Beam Epitaxy : MBE)法、あるいは有機金属熱分解(Metalorganic Vapor Phase Epitaxy : MOVPE)法である。これらの手法では原子層レベルの成長に、成長速度などを精密に制御することが行われてきた。さらに急峻な界面を作製するために、化合物半導体の構成元素あるいは、その原料を交互に基板の上に供給して薄膜の成長を行う原子層エピタキシー(Atomic Layer Epitaxy : ALE)法が開発された。この方法は、極めて均質で、欠陥が少ないといった特徴を有す

1) 電気電子工学専攻大学院生

2) 電気電子工学科学部生

3) 電気電子工学科准教授

4) 電気電子工学科教授

る²⁾。今回我々は、この ALE 法により作製したホモエピタキシャル GaAs 薄膜についてその作製温度と製作された膜の特性の関連を調査するために、主に光学的特性を利用し評価を行った。ホモエピタキシャル GaAs 薄膜の評価は、今後のヘテロ接合構築のため重要であり、研究の出発点だと位置づけている。

2. 実験

2.1 測定試料

測定試料はトリメチルガリウムとトリシジメチルアミノヒ素を原料として ALE 法により作製したものをを用いた²⁾。GaAs 基板上に GaAs 層を約 100, 250, 1000nm の三種類の膜厚で、それぞれの膜厚について 460, 500, 540 の成長温度で成長させた。膜厚 1000nm の試料について、ホール効果測定によりキャリア濃度は、460 で 1.30×10^{18} , 500 で 5.54×10^{18} , 540 で $2.92 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ であり、伝導型は *p* 型であった。

2.2 X線回折測定

測定には X 線回折装置として Rigaku 社製 RINT2000 を用いた。X 線源(管電圧 40kV, 管電流 200mA)として Cu の K_{α} (1.54050 Å), 光学系は多層膜ミラーによる平行光学系を用いた。

2.3 フォトルミネッセンス (PL) 測定

PL 測定は試料を 10K に冷却して行った。励起光に Ar⁺レーザー (波長 488nm) を用い、PL 光はシングルモノクロメータで分光し、検出器浜松ホトニクス社製の赤外波長対応の GaAs フォトマルチプライヤー C6544 を用いた。

2.4 ラマン測定

励起光源として Ar⁺レーザー (波長 488nm) を用いた。分光器は SPEX 社製 1877、焦点距離 60cm の Triple Spectrometer を用い、回折格子は 1800 本、検出器に EEV 社の 400×1340 背面照射型 CCD を 77K に冷却して用いた。また、波数の校正にはネオンランプを用いた。

3. 実験結果と考察

3.1 X線回折測定

GaAs(400)面で反射が最も強く、基板とホモエピタキ

シャル膜との XRD 測定によるピーク位置の差は見られなかった。このことから、基板上に GaAs 膜が基板の格子定数でエピタキシャル成長していると確認できた。(h00)面以外のピークは観測されなかった。

3.2 PL 測定

図 1 に ALE 成長 GaAs(膜厚 1000nm)の規格化した PL スペクトルを示す。10K のバンドギャップ E_g は計算により 1.519eV と求められ、*p* 型ということから、1.48~1.49eV 付近に現れる発光は炭素と同定³⁾した。PL 強度は 500, 540, 460 の順に弱くなった。このピーク位置が成長温度の減少に伴い、高エネルギー側に動いていることがわかる。これは、高濃度に含まれる炭素不純物によって、バンド端が裾を引いているためと思われる。

成長温度 460 で 1.38eV 付近にブロードピークが現れ、500 でも肩として見えている。これはドナー-アクセプターペア発光⁴⁾と考えた。低温成長のため一部の炭素がドナーとなって、DA ペアを形成したと推定する。460 ではこのような欠陥もあるので、PL 強度も弱いものと思われる。

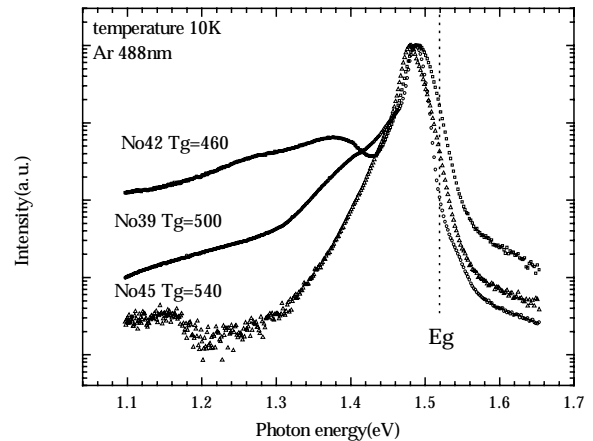


図 1 膜厚 1000nm の GaAs の 10K における PL スペクトル

3.3 ラマン散乱測定

結晶性の評価を行うためラマン散乱測定を行った。膜厚 1000nm の試料のラマン散乱測定結果を図 2 に示す。どのサンプルにおいても 291cm^{-1} 付近に GaAs LO モード、 268cm^{-1} 付近に GaAs TO モードがみられた。TO モードの励起は GaAs(001)面に対しては本来禁制のピークである。(001)面以外のファセット面((110)面な

ど)が生じた可能性があるが, XRD 測定の結果からは (001)面以外のピークは観測されていない。このことから, TO モードの位置にピークが見られたのは、キャリアとフォノンのエネルギーが結合した影響と思われる。

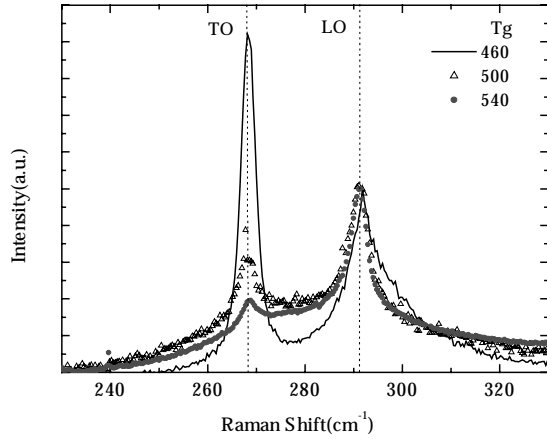


図2 1000nmの膜厚のラマン散乱測定結果

3.4 プラズモン - LOフォノン結合 (CPLP) モードの解析⁵⁾⁶⁾⁷⁾

半導体中のキャリアの集団振動(プラズマ振動)は, その振動数が格子振動数に近いために、縦波の格子振動と結合して新たな練成振動をつくる。これにより, プラズモンとLOフォノンが結合したCPLPモードが観測される。ラマン散乱測定の結果にCPLPモードの影響を考える。図3に測定値をTOモード, LOモードおよびCPLPモードでフィッティングした例を示す。フィッティングはプラズモンの減衰係数を固定し, ホール濃度, 減衰係数, ピークの半値幅, LOモード, TOモードの強度, スペクトルのベースラインを変化させることで3成分のスペクトルの和を取ることで行った。LOモードおよび, TOモードのフィッティングには Lorentzian 関数を用いた。このようにして9種の膜について求めたキャリア濃度を図4に示す。成長温度540の膜のデータはラマンスペクトルの形状よりフィッティングが難しく, ばらつきも大きくなった。

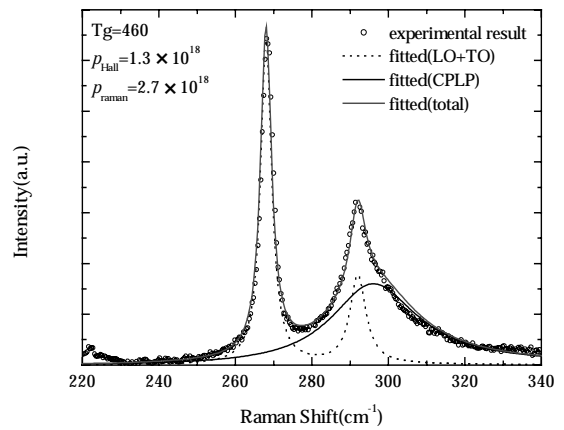


図3 ラマンスペクトルのCPLPモードフィッティング例

ホール効果測定により求めた1000nm厚のサンプル3種の, キャリア濃度の成長温度依存性も同時に図4で示す。これより, どちらの方法で求めた結果も成長温度500でキャリア濃度が最大となつたと判断した。

次に、フィッティングにより求めたそれぞれのLOモードの半値幅の成長温度依存性を図5に示す。LOモードの半値幅はエピタキシャル膜の結晶格子が基板の格子からどの程度ばらついて傾いて成長しているかという結晶性の指標となる。成長温度が500の場合、LOモードの半値幅が最も小さくなっており、エピタキシャル膜の結晶性が良いことがわかる。

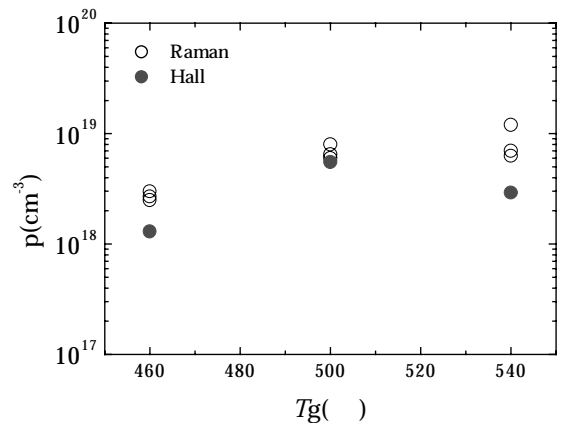


図4 Hall効果測定結果、及びラマンスペクトルのCPLPモードのフィッティングにより決定したホール濃度の成長温度依存性

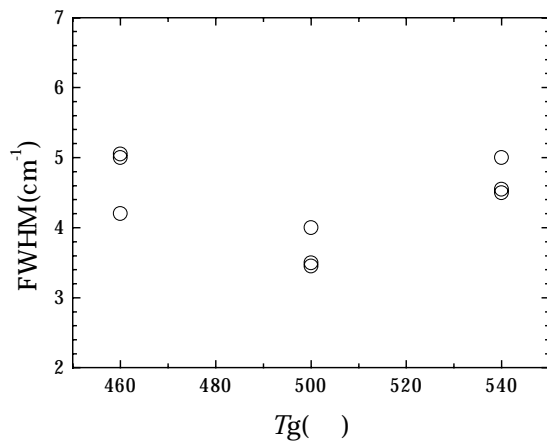


図5 LOモードの半値幅の成長温度依存性

薄膜中のキャリア濃度は成長温度 500 の場合にホール効果測定より最大を示し、結晶性も最もよかった。これらのことより3つの成長温度の中では、500 が最も欠陥などを含まない成長条件であることが明らかになった。ALE 成長では、低温では原料の炭素が膜中に残り易く、高温すぎると As の蒸発が始まると言われている。今回の作製条件では 460 と 540 成長でそれぞれの要因で結晶性が低下し、キャリアが減少したものと考えられる。

5. まとめ

今回の研究により、ALE 成長によるホモエピタキシャル GaAs 薄膜は、460、500、540 の成長温度の中では 500 が最適であると思われる。しかし、ノンドープの場合、一般的に良質の結晶はキャリア濃度が小さくなるにも関わらず、今回のサンプルの成長条件ではキャリア濃度が高くなった。キャリア濃度低減のため、成長条件について更なる検討が必要であると考ええる。

参考文献

- 1) 生駒 俊明, 河東田 隆, 長谷川 文夫 : ガリウムヒ素 (丸善株式会社 : 1988).
- 2) M.Ozeki, T.Haraguchi, A.Fujita : J.Crystal Growth **298**, (2007) 90-93.
- 3) E.W.Williams : Phys.Rev.**168**,3 (1972).

4) R.K.Willardson, Albert C.Beer : Semiconductors and Semimetals (ACADEMIC PRESS : 1972).

5) 濱口 宏夫, 平川 暁子 : ラマン分光法 (学会出版センター : 1994).

6) R.Fukasawa, S.Perkowitz : Phys.Rev.B50,14119 (1994)

7) 播磨 弘 : 分光研究第 **49** 巻 5 号 (2000) 223.