

# In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N および Mg<sub>x</sub>Zn<sub>1-x</sub>O 薄膜の偏光 XAFS Polarized XAFS Study for In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N and Mg<sub>x</sub>Zn<sub>1-x</sub>O films

宮永崇史  
Takafumi Miyanaga

<sup>1</sup>Hirosaki University, Bunkyo 3, Hirosaki, Aomori 036-8561, Japan

\*e-mail: [takaf@cc.hirosaki-u.ac.jp](mailto:takaf@cc.hirosaki-u.ac.jp)

## はじめに

In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N を活性層に用いた高輝度青・緑色発光ダイオードや青紫色レーザーダイオードが実用化されている。これらのデバイスは貫通転位密度が高いにもかかわらず、優れた量子効率を示す。その原因は In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 活性層の In モル分率ゆらぎにあると考えられているが[1]、その局所構造には未知な部分も多い。EXAFS 法はこのような薄膜中に 2 種類以上の元素を含む系の構造研究に有力な方法である。本研究では、まず In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N(x=0.145, 0.20, 0.275)単一量子井戸(SQW)中の In 原子周辺の局所構造解析を行った。また、最近では、*c* 軸方向の分極場が引き起こす量子閉じ込めシュタルク効果が *c* 面の電子-正孔対の振動し強度を弱めることが問題となっているが、その効果の現れない非極性面 (*m*-面) に成長させた In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 薄膜の応用が進展してきている。本研究では成長面方向の違いにより、In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N の局所構造にどのような変化が現れるか、放射光の偏光を利用した XAFS 法で In 周囲の局所構造を調べた。

一方、Mg<sub>x</sub>Zn<sub>1-x</sub>O 薄膜も Mg の比率によってバンドギャップを制御できることに加え、比較的安価なことから GaN 系発光ダイオードに代わる材料として期待されている。そこで、同様に Mg-*K* 端の偏光 XAFS 解析を試みた。

## 実験および解析

(1) In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N(SQW)薄膜試料は、TF-MOCVD 法によりサファイア(0001)基板上に成長させた、厚さ 3nm の単一量子井戸構造である[2]。EXAFS の測定は、

Spring-8 の BL38B1 および BL10XU において Si(111)二結晶モノクロメーターを用いて行った。(2) *m*-面 In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 試料は MOVPE 法によって GaN 上に成長させたものである。測定は KEK PF-AR の NW10A にて Si(311)結晶を用いて行った。両者ともに In-*K*<sub>α</sub> の蛍光 X 線検出には 19 素子の Ge 半導体検出器(SSD)を用いた。(3) Mg<sub>x</sub>Zn<sub>1-x</sub>O 薄膜試料の成長には HWPSE 法[3]が用いられ、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(1120)に設けた AlN(0001)のバッファ層の上に作成された。Mg-*K* 吸収端の測定は KEK-PF の BL11A で行い、検出器には SDD を使用した。

In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N および Mg<sub>x</sub>Zn<sub>1-x</sub>O はウルツァイト構造をしており、その構造には異方性が存在するため偏光依存測定を行った。直線偏光された X 線の電場方向に対し、*c* 軸方向が平行になる方向と垂直になる方向で測定を行った。また、*m* 面の試料には同じく *c* 軸に垂直な方向に試料面内(*a*<sub>3</sub> 軸方向)と面直方向の異方性が存在する。

これらの EXAFS のデータ解析は XANADU コードを用いて行った[4]。カーブフィッティングにより構造パラメータを最適化するために次の式を用いた。

$$\chi(k) = \sum S_0^2 N^* \frac{|f(k)|}{kr^2} e^{-2r/\lambda(k)} e^{-2\sigma^2 k^2} \times \sin(2kr + 2\delta_c + \phi) \quad (1)$$

ここで  $N^*$  は有効配位数で、次のように表わされ、偏光 XAFS 解析には重要である。

$$N^* = 3 \sum \cos^2 \theta$$

ここで、 $\theta$ は電場ベクトルの方向と中心原子と配位原子の方向がなす角である。

**結果と考察** Fig.1 には  $\text{In}_{0.20}\text{Ga}_{0.80}\text{N}$  (SQW)のカーブフィッティングの結果を示す。第1ピークは In-N、第2ピークは In-Ga および In-In によるもので、両者はよく分離しているの、別々にフィッティングを行った。

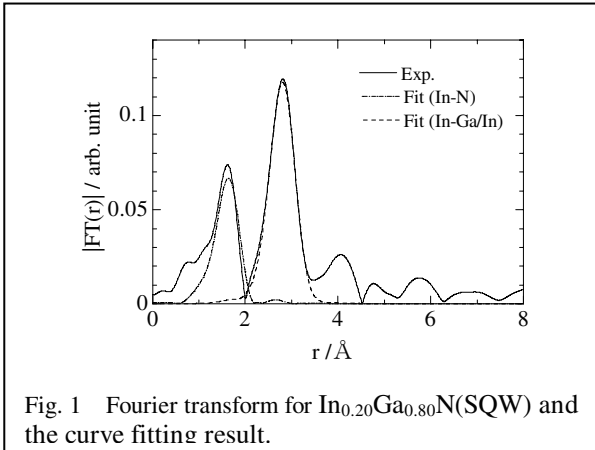


Fig. 1 Fourier transform for  $\text{In}_{0.20}\text{Ga}_{0.80}\text{N}$ (SQW) and the curve fitting result.

ここで、第2配位に注目すると、In-In と In-Ga の配位数から次式のように In-In 原子対の割合を求めることができる。

$$y = N_{\text{In-In}} / (N_{\text{In-In}} + N_{\text{In-Ga}}). \quad (2)$$

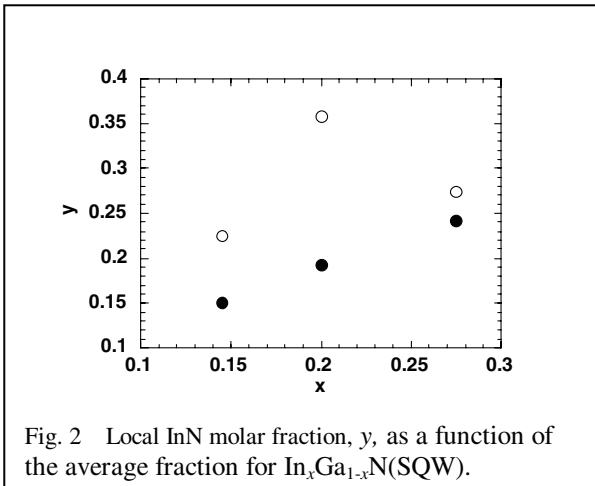


Fig. 2 Local InN molar fraction,  $y$ , as a function of the average fraction for  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ (SQW).

Fig. 2 は(2)式の  $y$  の値を In 濃度  $x$  に対してプロットしたものである。 $c$  軸垂直方向の結果 (●) では  $y$  はほぼ  $x$  と一致して、増加している。このことは In 原子がランダムに分布していることを示している。一方、 $c$  軸平行方向 (○) では

$y$  の値はどれも  $x$  の値より大きくなってきている。このことは、垂直方向においては In 原子が集まって平均より高濃度になっており、偏在していることを示している[5]。さらに、垂直方向における  $y$  の値の  $x$  依存性は発光ダイオードの外部量子効率[6]と類似した傾向が見られ、 $c$  軸方向における In 原子の偏在が発光メカニズムの鍵を握っている可能性を示唆している。

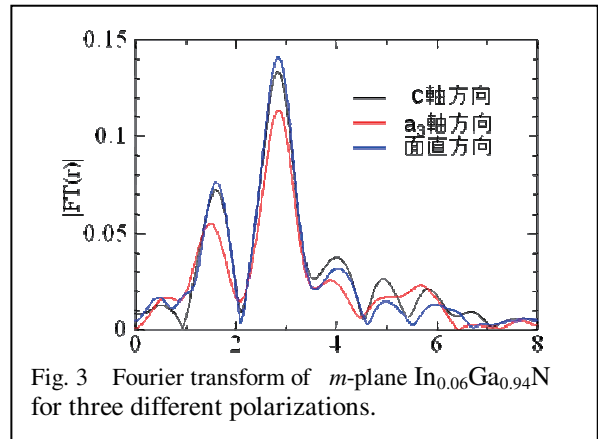


Fig. 3 Fourier transform of  $m$ -plane  $\text{In}_{0.06}\text{Ga}_{0.94}\text{N}$  for three different polarizations.

一方、Fig. 3 には  $m$ -面  $\text{In}_{0.06}\text{Ga}_{0.94}\text{N}$  に対して3つの偏光条件で測定した FT を示す。それぞれに違いがあらわれ、カーブフィッティングにより原子間距離を求めた結果、 $a_3$  軸方向の In-In 間の距離が 2.35Å となり、他の方向のもの (2.25~2.28Å)より長くなった。これは、 $\text{In}_{0.145}\text{Ga}_{0.855}\text{N}$ (SQW)で  $c$  軸方向の In-In が 2.30Å でもっとも長い結果であることと対照的である[5]。

講演では  $\text{Mg}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}$  の結果と合わせて報告する。

### References (参考文献)

- [1] S.Chichibu, T.Azuhata, T.Sota, and S.Nakamura, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 4188 (1996).
- [2] S.Nakamura, M.Senoh, N.Iwasa, S.Nagahama, T.Yamada, and T.Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2*, **34**, L1332 (1995).
- [3] S.Chichibu, T.Yoshida, T.Onuma, H.Nakanishi, *J. Appl. Phys.* **91** (2002) 874.
- [4]H.Sakane, T.Miyanaga, I.Watanabe, N.Matsubayashi, S.Ikeda, and Y.Yokoyama, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 1* **32**, 4641 (1993).

- [5] T.Miyanaga, T.Azuhata, S.Matsuda, Y.Ishikawa, S.Sasaki, T.Uruga, H.Tanida, S.F.Chichibu, T.Sota, *Phys. Rev. B*, **76**, 035314-1 (2007)
- [6] T.Mukai, M.Yamada, S.Nakamura, *Jpn. J. Appl. Phys., Part 1*, **38**, 3976 (1999).