

# GaN 上への二酸化チタンのエピタキシャル成長

一杉 太郎

## 1. はじめに

二酸化チタン( $\text{TiO}_2$ )は白色顔料として化粧品や食品、繊維などに古くから応用されている。また、近年光触媒効果や超親水性が注目されており、研究も非常に盛んである。しかし、研究の興味が光触媒効果に集中しており、 $\text{TiO}_2$ の電気特性を詳細に調べている研究は非常に少ない。そこで、我々の研究グループでは、この  $\text{TiO}_2$  の光・磁気・電子機能に着目して研究を進めている[1]。

近年、GaN をベースとしたエレクトロニクス(発光ダイオード、紫外光センサや高電界トランジスタ)の開発も盛んであり[2]、 $\text{TiO}_2$ とGaNを融合させたデバイスには大きな可能性が秘められている。例として、Co をドーピングした  $\text{TiO}_2$  は波長 400nm 付近で大きな磁気光学効果を示す[3,4]。したがって、発光デバイスとして用いられている GaN との融合により、新たな光デバイスや、発光素子の小型化を実現することが可能となる。また、スピントロニクスと呼ばれる、電子の電荷とスピンを用いてデバイスを作製する分野も立ち上がってきており、 $\text{TiO}_2/\text{GaN}$  系 pn 接合を用いたスピン偏極 LED の開発も期待される。

以上の背景から、本研究ではパルスレーザーデポジション(PLD)法を用いて、GaN 上に  $\text{TiO}_2$  膜の成長を試み、その構造について調べた[5]。

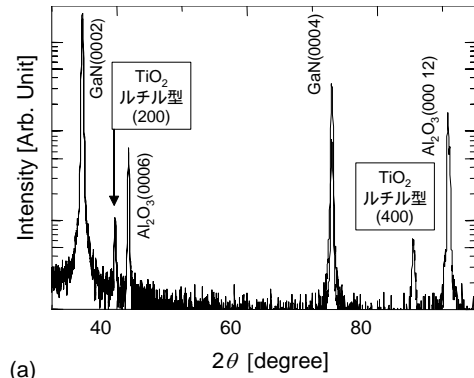
## 2. 実験手法

本研究では PLD 法により GaN(0001)基板上に、 $\text{TiO}_2$  薄膜の成長を行った。蒸着時の基板温度は 320-550、酸素分圧は  $1 \times 10^{-5}$  Torr とした。KrF エキシマーレーザー(波長 248 nm)を光源として用い、繰り返し周波数は 2 Hz、フルーエンスは  $1\text{-}2 \text{ J/cm}^2 \cdot \text{shot}$  とした。ターゲットは  $\text{TiO}_2$  粉末を加圧成形し、1200 で 12 時間焼成したものを用いた。一部、Ta をドーピングしたターゲットも用いた。成膜中は反射高速電子線回折(RHEED)により回折パターンをモニタした。

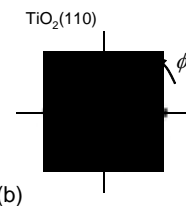
結晶構造と格子定数は X 線回折法(XRD)によって決定した。さらに、断面透過電子顕微鏡(TEM)観察を行い、結晶性の評価を行った。また、原子間力顕微鏡(AFM)により表面の平坦性を評価した。

## 3. 薄膜成長

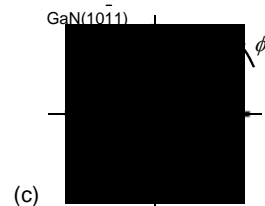
GaN 上に 550 で成長した  $\text{TiO}_2$  薄膜の X 線回折パターンを図 1(a)に示す。六方晶の GaN 上にルチル型  $\text{TiO}_2$  が(100)配向して成長することがわかった。ロッキングカーブ測定による半値幅は  $0.5^\circ$  以下であり、結晶性のよい  $\text{TiO}_2$  薄膜を成長することに成功した。さらに、ポールフィギュア測定から、面内配向していることがわかり、エピタキシャル成長していること



(a)



(b)



(c)

図 1. (a) GaN(0001)面上に成長した  $\text{TiO}_2$  薄膜の X 線回折パターン (b)  $\text{TiO}_2(110)$  回折ピークのポールフィギュア測定結果。 (c) GaN(1011)回折ピークよりのポールフィギュア測定結果。

がわかった。 $\text{TiO}_2(110)$ および  $\text{GaN}(10\bar{1}1)$ の回折ピークから得られたポールフィギュア測定結果を図 1(b), (c)に示す。この結果から、 $\text{TiO}_2\langle 010 \rangle // \text{GaN}\langle 10\bar{1}0 \rangle$ の関係がわかり、図 2 に示すような結晶方位の関係性を保ちつつ結晶成長していることが明らかになった。

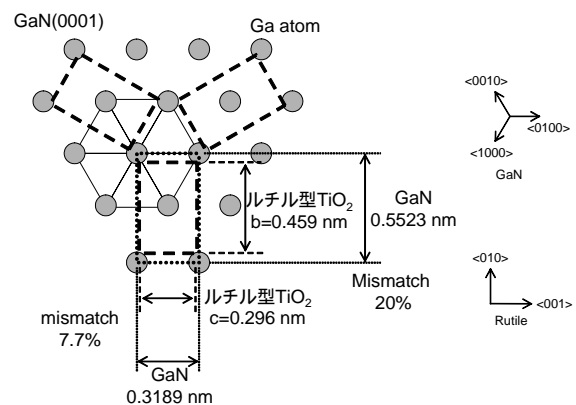


図 1. GaN(0001)面上におけるルチル型  $\text{TiO}_2$  ユニットセルの配置

### 3. レイヤーバイレイヤー成長

成膜前に GaN 表面を塩酸でエッチングした後に TiO<sub>2</sub> を成長すると、RHEED 振動を観察することができた。塩酸エッチングは表面の酸化物を除き、Ga 終端表面を出すと考えられており、成膜前にも明瞭な RHEED パターンを観測することができた(図 3(a))。TiO<sub>2</sub> 成長後においてもストリーク状の RHEED パターンが観察され(図 3(b))、TiO<sub>2</sub> 薄膜表面が非常に平坦であることが予測できる。RHEED 振動が観察されたことから(図 3(c))、GaN と TiO<sub>2</sub> の界面は急峻であることが期待され、実際に断面 TEM により、界面が急峻であることが確かめられた(図 4(a))。AFM により TiO<sub>2</sub> 表面の平坦性を測定したところ、表面凹凸の RMS 値が 0.34 nm 程度であることがわかった(図 4(b),(c))。

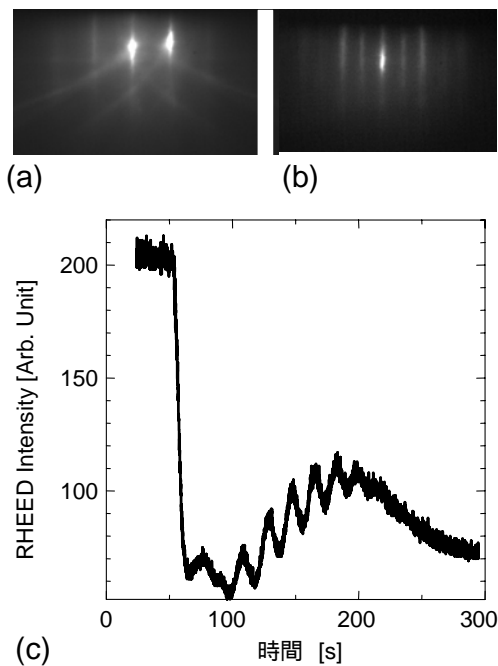


図 3 (a) 塩酸でエッチングした GaN 表面の RHEED 回折パターン。(b) 基板温度 400 で成膜した TiO<sub>2</sub> 表面の RHEED 回折パターン。(c) 成膜中に観察された RHEED 振動。

### 3. まとめと今後の展望

パルスレーザーデポジション法により、GaN(0001)表面上にルチル型 TiO<sub>2</sub>(100)をエピタキシャル成長することに成功した。さらに、レイヤーバイレイヤー成長にも成功し、非常に平坦な表面を得ることができたため、高品質なデバイス作製が期待される。今後、GaN 上に透明強磁性体 Co ドープ TiO<sub>2</sub> を形成し、スピンエレクトロニクスデバイスの検証をしていきたい。そして、本研究により得られたヘテロエピタキシャル界面の機能を探求する予定である。

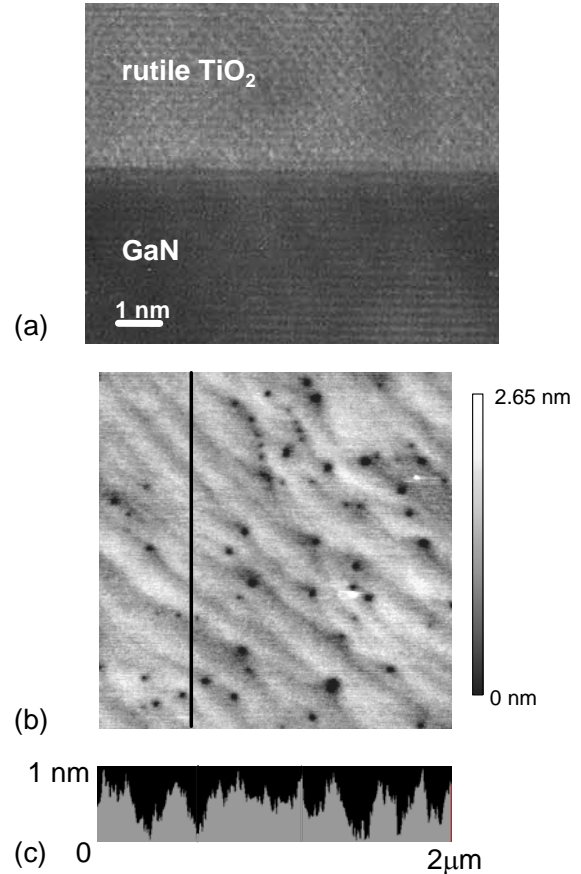


図 3 (a) ルチル型 TiO<sub>2</sub>/GaN 界面の断面 TEM 像。(b) 成長した TiO<sub>2</sub> 表面の AFM 像。(c) (b) の黒線部の断面図。

### 【参考文献】

1. Y. Furubayashi, T. Hitosugi, Y. Yamamoto, K. Inaba, G. Kinoda, Y. Hirose, T. Shimada and T. Hasegawa, *Appl. Phys. Lett.* 86, 252101, (2005).
2. M. Asif Khan, M. Shatalov, H. P. Maruska, H. M. Wang and E. Kuokstis, *Jpn. J. Appl. Phys.* 44, 7191 (2005).
3. Y. Matsumoto, M. Murakami, T. Shono, T. Hasegawa, T. Fukumura, M. Kawasaki, P. Ahmet, T. Chikyow, S. Koshihara and H. Koinuma, *Science* 291, 534 (2001).
4. G. Kinoda, T. Hitosugi, Y. Yamamoto, Y. Furubayashi, K. Inaba, Y. Hirose, T. Shimada and T. Hasegawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 45, L387 (2006).
5. Taro Hitosugi, Yasushi Hirose, Junpei Kasai, Yutaka Furubayashi, Makoto Ohtani, Kazuhisa Inaba, Kiyomi Nakajima, Toyohiro Chikyow, Toshihiro Shimada and Tetsuya Hasegawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 44, L1503 (2005).