

非柱状単位層構造を有する層状Ⅲ族モノカルコゲナイド薄膜の MBE 成長

MBE growth of layered group-3 monochalcogenide thin films with non-prismatic monolayer structure

北陸先端大[○]米澤 隆宏, 村上 達也, 東嶺 孝一, 陳 桐民, 新田 寛和, 久瀬 雷矢,
アントワヌ フロランス, 大島 義文, 高村(山田) 由起子

JAIST[○]Takahiro Yonezawa, Tatsuya Murakami, Koichi Higashimine, Chen Tongmin, Hirokazu Nitta,
Raiya Kuze, Antoine Fleurence, Yoshifumi Oshima, Yukiko Yamada-Takamura

E-mail: s1720024@jaist.ac.jp

【背景・目的】カルコゲナイド系層状物質は組成や層数、層間積層構造、単位層構造などによって多様な物性を示すため、次世代の光・電子デバイスへの応用が期待される^[1]。カルコゲナイド系層状物質の一種である GaSe や InSe はそれぞれ約 2 eV と約 1.3 eV のバンドギャップを有する半導体層状物質で、その単位層は三角柱型の原子配置を有すると報告されてきた(図 1)^[1]。しかし最近になって、断面走査透過電子顕微鏡(STEM)観察より、Ge(111)基板上に GaSe 薄膜を分子線エピタキシー(MBE)成長した際の界面付近には報告例のない非柱状単位層(上下の Se 面が逆向き)が存在することが判明した^[2]。本研究では非柱状 GaSe 薄膜形成の成長条件や基板種依存性を調査するため、MBE 法により複数の条件で形成した GaSe/Ge(111)界面や GaSe/GaAs(111)B 界面の断面 STEM 観察を行った。また同様に InSe 薄膜内における非柱状単位層構造の存在を調査するため、MBE 法による InSe/Ge(111)B 界面および InSe/GaAs(111)B 界面の形成とその断面 STEM 観察も行った。

【実験】GaSe 薄膜および InSe 薄膜は Ga、In、Se、As セルを搭載した超高真空 MBE 装置内で Ge(111)基板や GaAs(111)B 基板の表面脱酸化を行い、それらの基板上に Ga または In と Se を同時蒸着することで作製した。薄膜評価として反射高速電子線回折(RHEED)による成長中の表面構造変化の観察や薄膜 X 線回折(薄膜 XRD)による結晶性評価、原子間力顕微鏡(AFM)による表面形態観察、STEM による断面構造観察を行った。

【結果】非柱状 GaSe 薄膜の成長条件について、基板温度 500 °C で Ge(111)基板上に GaSe 薄膜成長した場合は薄膜内部の GaSe 単位層は主に通常の三角柱状構造となっており、界面付近にのみ局所的に非柱状 GaSe 単位層が形成されていた。一方で、成長時の基板温度を 400 °C とした場合には薄膜内部の大部分の GaSe 単位層が非柱状構造を有していた。この状態は Ge(111)基板の場合だけでなく、GaAs(111)B に成長した場合にも観測された。即ち、非柱状 GaSe 相は基板種ではなく、MBE 成長条件に依存して析出し、単相成長可能な成長条件範囲が存在することが明らかとなった。次に非柱状 InSe 単位層について、成長時の基板温度を 400 °C とし、Ge(111)基板上および GaAs(111)B 基板上に InSe 薄膜を MBE 成長させた場合、薄膜内部の InSe 単位層は主に通常の三角柱状構造となっていたが、界面付近にのみ局所的に非柱状 GaSe 単位層が形成されていた。本研究では三角柱状単位層構造のみが存在すると従来考えられてきた層状Ⅲ族モノカルコゲナイドにおいても、遷移金属ダイカルコゲナイドの 1T 単位層のような非柱状単位層が存在することを明らかにした。特に非柱状 GaSe に至っては、その単相成長条件の同定に成功した。新たな GaSe 相や InSe 相の形成機構や基礎・応用物性の解明は今後大きな関心を集めると期待される。

[1] J.A. Wilson and A.D. Yoffe, *Adv. Phys.* **18**, 193 (1969).

[2] T. Yonezawa et al., *Surf. Interface Anal.* **51**, 95 (2019).

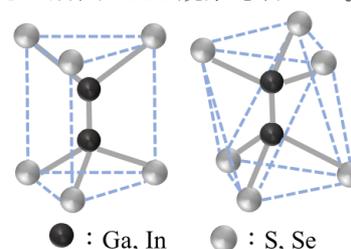


図 1 層状Ⅲ族モノカルコゲナイド単位層構造の模式図。左が三角柱状、右が非柱状。