



## SR4000HT による AlGa<sub>N</sub> 系遠紫外 LED 成長の実証と AlGa<sub>N</sub> の Al 組成及び膜厚制御による均一性改善技術の開発

Demonstration of AlGa<sub>N</sub>-based Far-UVC LED epitaxial growth by using SR4000HT and development of technology to improve uniformity by controlling Al composition and thickness of AlGa<sub>N</sub>

吉永純也\* 池尻圭太郎\* 徳永裕樹\* 小関修一\* 定昌史\*\* 平山秀樹\*\*

YOSHINAGA Junya IKEJIRI Keitaro TOKUNAGA Hiroki KOSEKI Shuichi JO Masafumi HIRAYAMA Hideki

波長 200-230nm の遠紫外 (Far-UVC) 光は、人体に対して悪影響を及ぼすことなく、ウイルスを不活性化できることが明らかにされており、有人環境でも使用可能なウイルス不活性化技術として実用化への期待が高まっている。当社では、有機金属気相成長 (MOCVD) 装置 SR4000HT によって窒化アルミニウムガリウム (AlGa<sub>N</sub>) 系深紫外発光ダイオード (UVC LED) の 280nm 帯発光を実証しているが、それよりも短波長の発光を実証出来ていないという課題があった。本開発では、SR4000HT による AlGa<sub>N</sub> 系 Far-UVC LED のエピタキシャル成長技術開発に取り組んだ。その結果、有機金属原料の供給量の調整によって LED 構造を構成する AlGa<sub>N</sub> 層の Al 組成を線形的に制御できることを確かめた。この Al 組成の制御技術を用いて、波長 226 nm で発光する UVC LED の作製に成功した。ピーク発光波長は、ウェハ直径方向で 227.8 から 229.1 nm で分布しており、Max-Min=1.3 nm の波長均一性が得られた。また、2ゾーン分割ヒーター出力や横方向 3 層のガス流量の調整によって、AlGa<sub>N</sub> 層における基板面内の Al 組成分布や膜厚分布の制御が容易であることを確認した。これらの結果は、SR4000HT が、Far-UVC LED の光出力と発光波長に寄与する Al 組成及び膜厚のウェハ面内均一性向上に適していることを示している。

Far-UVC light with a wavelength of 200-230 nm has been shown to inactivate viruses without adversely affecting the human body, and there are high expectations for its practical application as a virus inactivation technology that can be used in a manned environment. The SR4000HT metal organic chemical vapor deposition (MOCVD) system of Taiyo Nippon Sanso Corp. has demonstrated the luminescence of aluminum gallium nitride (AlGa<sub>N</sub>)-based deep ultraviolet light-emitting diodes (UVC LEDs) in the 280-nm band, there was a problem of not being able to demonstrate the luminescence at shorter wavelengths. In this development, we worked on the epitaxial growth technology development of AlGa<sub>N</sub>-based Far-UVC LEDs using the SR4000HT. By adjusting the supply rate of metal organic, the Al composition of the AlGa<sub>N</sub> layer that constitutes the LED structure could be linearly controlled. Using this Al composition control technique, a UVC LED emitting at a wavelength of 226 nm was successfully fabricated. The peak emission wavelength was distributed between 227.8 and 229.1 nm in the wafer diameter direction, and a wavelength uniformity of Max-Min=1.3 nm was obtained. The control of the in-plane Al composition distribution and film thickness distribution in the AlGa<sub>N</sub> layer was confirmed to be easy. These results indicate that the SR4000HT is suitable for improving the in-plane wafer uniformity of Al composition and thickness, which contribute to optical output and emission wavelength.

### 1. はじめに

新型コロナウイルス感染症 (COVID-19) の原因となる重症急性呼吸器症候群コロナウイルス 2 (SARS-CoV-2) の感染拡大は、世界中で人間の健康に対する深刻な脅威になっている。SARS-CoV-2 をはじめとしたウイルスの感染症を防ぐ直接的な方法として、深紫外 (UVC)

光照射によるウイルス不活性化効果が実証されている<sup>1-3)</sup>。しかし、従来の波長 254 nm の水銀ランプや波長 260-280 nm の深紫外発光ダイオード (UVC LED) は発癌性や白内障を引き起こす可能性があるため、公共環境での普及が限られている。

一方、波長 220 nm 帯の遠紫外 (Far-UVC) 光は、哺乳類の皮膚に照射しても害が無く、効率的に細菌を不

\* 大陽日酸株式会社 イノベーションユニット CSE 事業部

\*\* 国立研究開発法人理化学研究所

活性化する効果が明らかにされている。これは、Far-UVC 光は、生体物質への吸収が強いため人間の皮膚や目の外層を透過できないが、マイクロメートル以下のサイズのウイルスの外膜を透過できるためである<sup>4-11)</sup>。

Far-UVC 光源としてエキシマランプを用いた波長 222 nm の紫外光照射器の実用化が進んでいるが、これまで蛍光灯や白熱電球が LED に置き換えられてきたように、消費電力、耐久性及び安全性などの観点から LED 化することが切望されている<sup>10)</sup>。

窒化ガリウム (GaN)、窒化アルミニウム (AlN) はそれぞれ 3.5 eV、6.3 eV の広禁制帯幅をもつワイドバンドギャップ半導体である。AlN と GaN の混晶である窒化アルミニウムガリウム (AlGaIn) を用いた UVC LED は、AlGaIn の Al 組成によって波長 210-320 nm の発光を自在に制御可能であることから、次世代の UVC 光源として有望である<sup>12-24)</sup>。既に、波長 228nm で 1mW を超える光出力の AlGaIn 系 Far-UVC LED が報告されており、病院の待合室などの公共空間全体に対して、有人環境でも使用可能なウイルス不活性化装置の社会実装のいち早い実現が期待されている<sup>25)</sup>。

しかしながら、そのような Far-UVC の波長域では、光出力及び外部量子効率 (EQE) が大幅に低下する<sup>26-30)</sup>。また、Far-UVC LED のエピタキシャル成長において、量産時の歩留まりの観点から、ウェハ面内の光出力と発光波長の分布の均一性を高めることが非常に重要である。

本報告では、LED 構造を構成する AlGaIn 井戸層の Al 組成を制御する技術を用いた発光波長 226 nm での EL 発光について述べるとともに、光出力と発光波長の分布の均一性に寄与する AlGaIn 井戸層の Al 組成及び膜厚のウェハ面内均一性向上技術について述べる。

## 2. SR4000HT の特長

本開発では当社製有機金属気相成長 (MOCVD) 装置 SR4000HT を用いた。本装置は、当社従来機である SR4000 をベースに UVC LED 製造用として開発された装置である。処理可能な基板の大きさ及び枚数は、2 インチ×3 枚もしくは 4 インチ×1 枚であり、研究開発、少量生産及び生産前評価試験用途に適している。

図 1 に本装置のリアクタ概略図を示す。本リアクタの主な特長は、従来機 SR4000 より 150 °C 高い 1350 °C でエピタキシャル成長が可能である。また、横方向 3 層ガスフロー、2 ゾーン分割ヒーターは SR4000 を踏襲している。

AlGaIn 系 Far-UVC LED のエピタキシャル成長では、

短波長化のために高 Al 組成化が必要である。高 Al 組成の AlGaIn との格子不整合を可能な限り小さくするために、テンプレートとして、AlN が一般的に利用される<sup>13,17)</sup>。AlN を高い結晶性で成長させるためには、Al 原子と Al フリーラジカルの表面拡散を促進するための高温環境が必要である<sup>31-38)</sup>。上述の通り、SR4000HT は、高温成長が可能であり、AlN の高品質エピタキシャル成長に適している。

一方、温度上昇に伴い、トリメチルアルミニウム (TMAI) とアンモニア (NH<sub>3</sub>) によるアダクト形成などの気相寄生前反応が発生する<sup>39-41)</sup>。この寄生反応は、原料ガスの浪費を招くだけでなく、意図しない不純物のドーピング、成長の均一性低下及び転位の発生などエピタキシャル成長に深刻な影響を与える<sup>35-38)</sup>。

この問題に対しては、III 族原料を供給するガスノズルと、V 族原料を供給するガスノズルを分離する横方向 3 層のガスフロー方式が有効である。SR4000 でも採用されているこの方式では、加熱領域に到達するまで III 族原料の TMAI と V 族原料の NH<sub>3</sub> を分けた状態で低い温度に保って供給し、寄生反応を抑制できる<sup>37)</sup>。

また、本装置の加熱ヒーターは内側と外側の 2 ゾーンで構成されており、各ヒーターの出力比率を変えサセプタの面内温度分布を制御できる。更に、上述の横方向 3 層ガスフローでは、トップ-ミドル-ボトム各ノズルは、それぞれ独立してキャリアガス流量を調整できる。これら 2 つの機能で、原料の気相反応の領域を制御することが可能である。

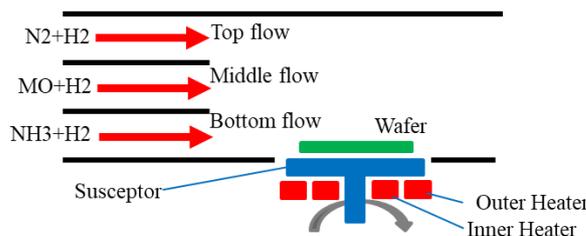


図 1 SR4000HT リアクタ概略図

## 3. 使用したテンプレート基板と材料

テンプレート基板は、SR4000HT により 2 インチの c 面 (0001) サファイア基板上に 3 μm の AlN を成長したものを用いた。AlN テンプレート基板は、結晶性の指標となっている X 線回折 (XRD) の ω スキャンによる (0002) 面及び (10-12) 面の半値全幅 (FWHM) がそれぞれおよそ 150 arcsec、350 arcsec の良好な結晶性であった。

ガリウム (Ga), アルミニウム (Al), 窒素 (N), シリコン (Si) 及びマグネシウム (Mg) の供給源として, それぞれトリメチルガリウム (TMGa), TMAI, NH<sub>3</sub>, モノシラン (SiH<sub>4</sub>) 及びビスシクロペンタジエニルマグネシウム (Cp<sub>2</sub>Mg) を使用した。キャリアガスとして, 水素ガス (H<sub>2</sub>) 及び窒素ガス (N<sub>2</sub>) を使用した。

#### 4. AlGaN 層の Al 組成制御

図 2 に AlGaN の構造を示す。AlGaN の構造は, 480 nm の AlN 層, 100 nm の AlGaN 層から成る。リアクタ圧力は 30 kPa, 成長温度は 1140 °C とした。TMAI と TMGa の和に対する TMAI の割合を TMAI 供給比と定義し, TMGa の供給量を調整することで TMAI 供給比 (TMAI/(TMAI+TMGa)) を 0.66, 0.73, 0.82 と変化させ, AlGaN 層を成長させた。何れの TMAI 供給比においても AlGaN の膜厚が一定になるように成長時間の調整を行った。XRD 2θ-ω スキャンによって, 各試料における AlGaN 層の Al 組成を測定した。

図 3 に TMAI 供給比と AlGaN の Al 組成の関係を示す。TMAI 供給比に対し, 0.81 から 0.91 といった高 Al 組成の領域において, 線形的に AlGaN の Al 組成が変化することを確認した。このことから, 高 Al 組成の場合でも, TMAI と NH<sub>3</sub> の寄生反応が抑制可能であることが分かる。これは, 加熱領域に到達するまでⅢ族原料の TMAI と V 族原料の NH<sub>3</sub> を分けた状態で低い温度に保って供給する方式を採用した効果であると考察する。

また, TMAI 供給比と比べ, AlGaN の Al 組成が高くなっているのは, 高い温度での成長によって気相で Ga が蒸発し, 固相での Ga 成分が減少したためと考えられる<sup>42)</sup>。

AlGaN 100nm
AlN regrowth 480nm
AlN template
2-inch Sapphire substrate 0.15°off 430μm

図 2 AlGaN の構造

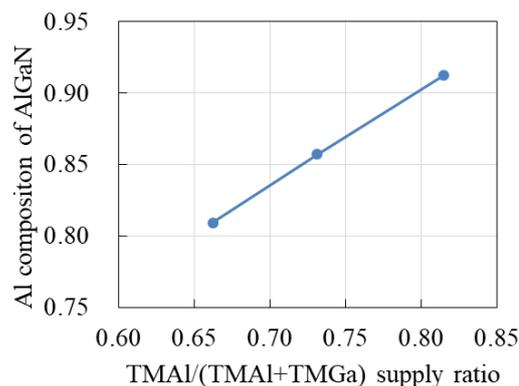


図 3 TMAI 供給比と AlGaN の Al 組成の関係

#### 5. Far-UVC LED の発光波長の制御性及び面内均一性

図 4 に本開発で採用した UVC LED の構造を示す。UVC LED の多重量子井戸 (MQW) 構造は, 3 周期の 8.8 nm の Si ドープ AlGaN 障壁 (barrier) 層と 1.7nm の AlGaN 井戸 (well) 層で構成されている。

MQW を構成する AlGaN 層の成長初期条件として, リアクタ圧力を 30 kPa, 成長温度を 1140°C, 内側ヒーター出力調整を 80%, 外側ヒーター/内側ヒーター比率を 95%, 横方向 3 層ガスフローのトップ (T) -ミドル (M) -ボトム (B) のキャリアガス流量条件を 25-25-25 SLM に設定した。これらの条件を固定し, UVC LED の短波長化を目的として, AlGaN 井戸層の TMAI 供給比 (TMAI/(TMAI+TMGa)) を 0.29, 0.48, 0.57, 0.62, 0.67, 0.69 とした。その他各層のリアクタ圧力, 成長温度, キャリアガス流量条件等は, UVC LED の発光が得られる条件を比較検討し設定した。

エピタキシャル成長後の基板に, ニッケル (Ni) 20 nm/金 (Au) 100 nm 蒸着後, N<sub>2</sub> 雰囲気中にて 5 分間 500°C 条件下での合金化アニール処理により, 400×400 μm<sup>2</sup> サイズの p 電極を形成した。n 電極はインジウム (In) の圧着により形成した。モノクロメーター及びシリコン (Si) 電荷結合素子 (CCD) を用いて, ウェハ直径方向 3 点で, 電流 20 mA 注入時の UVC LED からのエレクトロルミネッセンス (EL) スペクトルを測定した。

図 5 に UVC LED の EL スペクトルを示す。MQW の AlGaN 井戸層の成長時の TMAI 供給比を高くすることで 226 nm までの MQW からの短波長のバンド端発光が得られた。226 nm の EL スペクトルは, FWHM がおよそ 10nm であった。

図 6 に TMAI 供給比と UVC LED の EL ピーク波長の

関係を示す。TMAI 供給比の増加に伴い、線形的に短波長化していることを確かめた。この結果は発光波長を TMAI 供給比で容易に調整できることを示している。

図 7 に EL スペクトルの測定位置、図 8 に Far-UVC LED の 3 点の測定位置における EL スペクトルを示す。EL ピーク波長は、ウェハ直径方向で 227.8 から 229.1 nm で分布しており、Max-Min=1.3 nm の波長均一性であった。この時の AlGaIn における Al 組成面内分布は Max-Min=0.010、膜厚面内分布は(Max-Min)/Average=7.4%であった。

p-GaN 50nm
p-AlGaIn 50nm
AlGaIn or AlN EBL 10nm
AlGaIn last barrier 8.8nm
AlGaIn-MQW (3-pair) well 1.7nm
Si-doped barrier 8.8nm
Middle-AlGaIn:Si 70nm
n-AlGaIn:Si 2μm
ud-AlGaIn 300nm
AlN regrowth 480nm
AlN template
2-inch Sapphire substrate 0.15°off 430μm

図 4 本開発で採用した UVC LED の構造

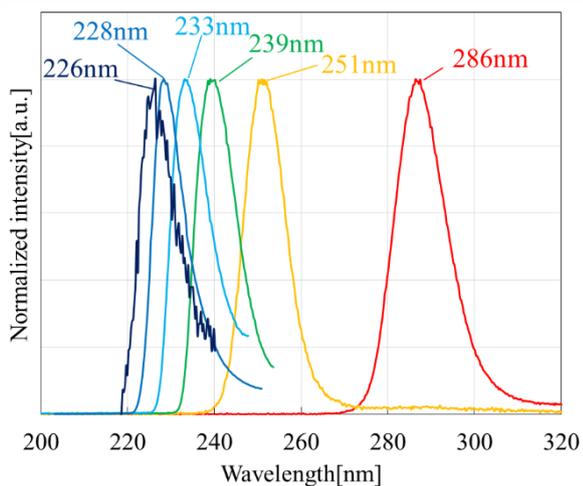


図 5 UVC LED の EL スペクトル

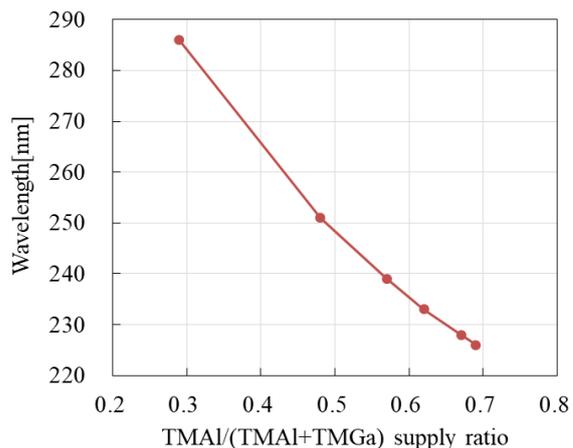


図 6 TMAI 供給比と UVC LED の EL ピーク波長の関係

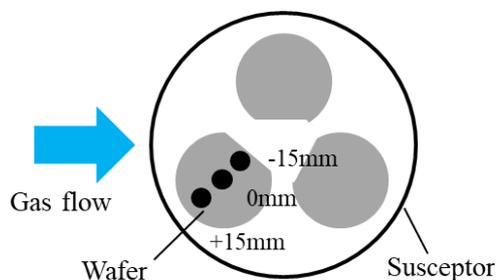


図 7 EL スペクトルの測定位置

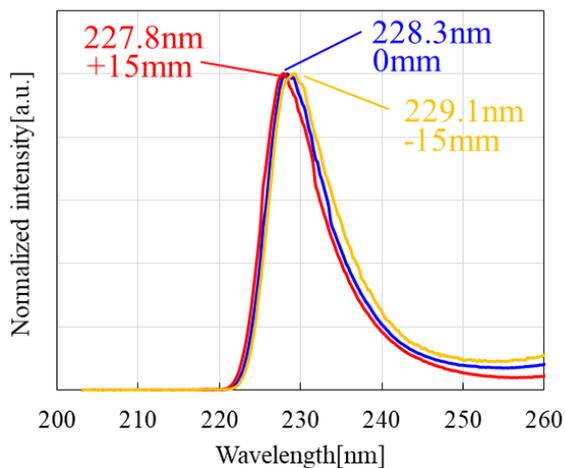


図 8 Far-UVC LED の 3 点の測定位置における EL スペクトル

## 6. AlGaIn 層の Al 組成及び膜厚の面内均一性制御

AlGaIn 層において、(1) Al 組成のヒーター出力比率依存性、(2) 膜厚のキャリアガス総流量依存性、(3) 膜厚のキャリアガス流量バランス依存性の 3 点について各種成長パラメータの影響を検討した。

前章で述べた Far-UVC LED の AlGaIn 井戸層の成長条件を基準として、図 2 に示す 480 nm の AlN 層、100 nm の AlGaIn 層から成る AlGaIn 構造を成長した。リアクタ圧力は 30 kPa、成長温度は 1140°C とした。XRD 2θ スキャンによって、各試料において、ウェハ直径方向 3 点で、AlGaIn 層の Al 組成及び膜厚を測定した。図 9 に XRD 2θ スキャン測定位置を示す。

初めに、内側ヒーター出力調整を 80% とし、外側ヒーター／内側ヒーターの出力比率を 91、93、95% と変化させ、AlGaIn 層の Al 組成に与える影響を確認した。図 10 にヒーター出力比率と AlGaIn の Al 組成の関係を示す。外側ヒーター／内側ヒーター出力比率を下げると、+20 mm の測定位置の AlGaIn 層の Al 組成が減少した。これは、外側ヒーター／内側ヒーター出力比率を下げることによって、サセプタ外側の温度が下がり、GaIn に比べ結晶成長に高温が必要な AlN が AlGaIn 層に寄与しにくくなったためと推測する。Al 組成の均一性は、内側ヒーター出力調整が 80%、外側ヒーター／内側ヒーターの出力比率が 91 の時、Max-Min=0.004 と最も小さい結果であった。

次に、キャリアガスの総流量を 75、90、105 SLM と変化させ、AlGaIn 層の膜厚に与える影響を確認した。図 11 にキャリアガス総流量と AlGaIn 層の膜厚の関係を示す。キャリアガスの総流量の増加に伴って、+20 mm の測定位置の AlGaIn 層の厚みが薄くなり、キャリアガスの総流量が 105 SLM の時 AlGaIn 層の膜厚の均一性は (Max-Min)/Average=2.7% と最も小さい結果であった。これは、キャリアガスの総流量を増やすことで、気相反応領域が移動したためと考える。

最後に、トップ-ミドル-ボトムキャリアガス流量のバランスを 25-25-25、23-26-26、21-27-27 SLM と変化させ、AlGaIn 層の膜厚に与える影響を確認した。図 12 にキャリアガスの流量バランスと AlGaIn 層の膜厚の関係を示す。トップのキャリアガス流量比を下げると、キャリアガス総流量を増やした時と同様、+20 mm の測定位置の AlGaIn 層の厚みが薄くなった。AlGaIn 層の膜厚の均一性は、トップ-ミドル-ボトムキャリアガス流量が 23-26-26 SLM の時、(Max-Min)/Average=3.0% と最も小さい結果であった。これは、トップのキャリアガス流量比

を下げることで、気相反応領域が移動したためと考える。

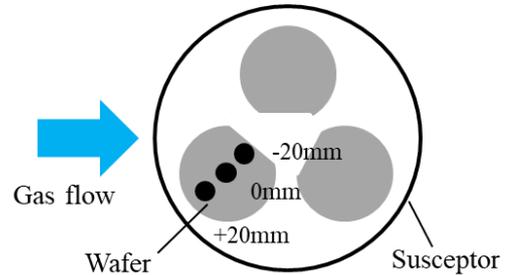


図 9 XRD 2θ スキャン測定位置

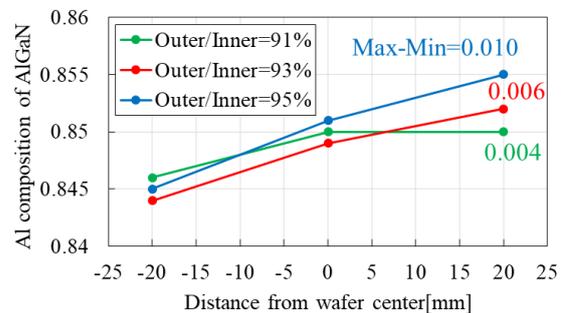


図 10 ヒーター出力比率と AlGaIn 層の Al 組成の関係

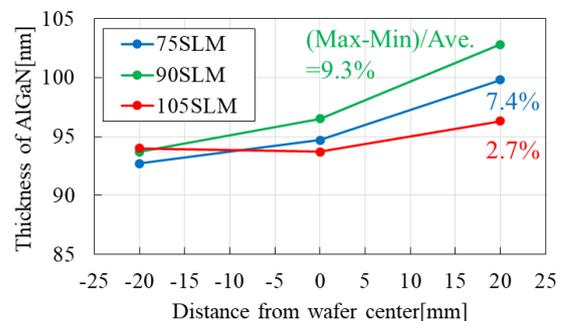


図 11 キャリアガス総流量と AlGaIn 層の膜厚の関係

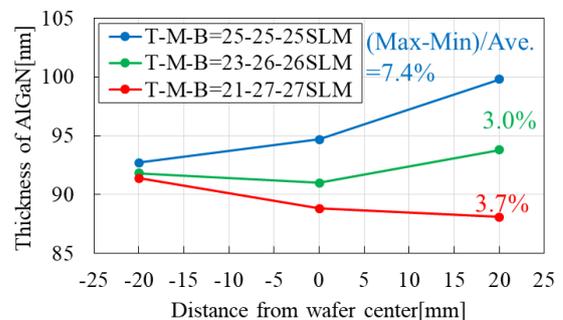


図 12 キャリアガスの流量バランスと AlGaIn 層の膜厚の関係

## 7. まとめ

当社製 MOCVD 装置 SR4000HT において TMAI と TMGa の供給比  $TMAI/(TMAI+TMGa)$  に対し、0.81 から 0.91 とした高 Al 組成の領域において、線形的に AlGaIn 層の Al 組成が変化することを確認した。この結果から、高 Al 組成の場合でも、TMAI と  $NH_3$  の寄生反応が抑制可能であることが分かる。

AlGaIn 層の Al 組成の増加に応じて UVC LED の波長は短波化するため、この高 Al 組成の AlGaIn 層の実現により、EL ピーク波長を 220nm 帯まで短波化することができた。この結果は、TMAI 等の供給量の調整で、EL 発光波長を容易に調整できることを示している。

EL ピーク波長は、ウェハ直径方向で 227.8 から 229.1 nm で分布しており、 $Max-Min=1.3$  nm の波長均一性が得られた。この時の MQW の AlGaIn 井戸層における Al 組成面内分布は  $Max-Min=0.010$ 、膜厚面内分布は  $(Max-Min)/Average=7.4\%$  であった。

最後に、AlGaIn 井戸層の成長条件において、2 ゾーン分割ヒーターの出力調整によって、AlGaIn 層の基板面内 Al 組成分布を制御できる事確かめた。基板面内 Al 組成の分布の最小値は  $Max-Min=0.004$  であった。

キャリアガス総流量や横方向 3 層ガスフローのガス流量バランスを調整することで、AlGaIn 層の基板面内膜厚分布を制御できる事確かめた。基板面内膜厚分布の最小値は  $(Max-Min)/Average=2.7\%$  であった。

これらの結果は、2 ゾーン分割ヒーター及び横型 3 層ガスノズルを有する SR4000HT が、AlGaIn 層における基板面内の Al 組成分布や膜厚分布の制御が容易であり、Far-UVC LED の製造における均一性改善に適していることを示している。

## 参考文献

- 1) Y. Gerchman, H. Mamane, N. Friedman, and M. Mandelboim, *J. Photochem. Photobiol. B.* 212, 112044(2020).
- 2) A. Gidari, S. Sabbatini, S. Bastianelli, S. Pierucci, C. Busti, D. Bartolini, A. M. Stabile, C. Monari, F. Galli, M. Rende, G. Cruciani, and D. Francisci, *Viruses.*, 13(3), 408(2021).
- 3) H. Shimoda, J. Matsuda, T. Iwasaki, and D. Hayasaka, *J. Photochem. Photobiol.* 7, 100050(2021).
- 4) N. Yamano, M. Kunisada, S. Kaidzu, K. Sugihara, A. Nishiaki-Sawada, H. Ohashi, A. Yoshioka, T. Igarashi, A. Ohira, M. Tanito, and C. Nishigori, *Photochem. Photobiol.* 96(4), 853(2020).
- 5) M. Buonanno, D. Welch, I. Shuryak, and D. J. Brenner, *Sci. Rep.* 10(1), 10285(2020).
- 6) K. Narita, K. Asano, K. Naito, H. Ohashi, M. Sasaki, Y. Morimoto, T. Igarashi, and A. Nakane, *J. Hosp. Infect.* 105(3), 459(2020).
- 7) W. Taylor, E. Camilleri, D. L. Craft, G. Korza, M. R. Granados, J. Peterson, R. Szczepaniak, S. K. Weller, R. Moeller, T. Douki, W. W. K. Mok, and P. Setlow, *Appl. Environ. Microbiol.* 86(8), e03039-19(2020).
- 8) D. Welch, M. Buonanno, V. Grilji, I. Shuryak, C. Crickmore, A. W. Bigelow, G. Randers-Pehrson, G. W. Johnson, and D. J. Brenner, *Sci. Rep.* 8(1), 2752(2018).
- 9) H. Kitagawa, T. Nomura, T. Nazmul, K. Omori, N. Shigemoto, T. Sakaguchi, and H. Ohge, *Am. J. Infect. Control* 49(3), 299(2021).
- 10) T. Fukui, T. Niikura, T. Oda, Y. Kumabe, H. Ohashi, M. Sasaki, T. Igarashi, M. Kunisada, N. Yamano, K. Oe, T. Matsumoto, T. Matsushita, S. Hayashi, C. Nishigori, and R. Kuroda, *PLoS One* 15, e0235948(2020).
- 11) S. Kaidzu, K. Sugihara, M. Sasaki, A. Nishiaki, T. Igarashi, and M. Tanito, *Free Radical Res.* 53(6), 611(2019).
- 12) H. Hirayama, *J. Appl. Phys.* 97, 091101(2005).
- 13) H. Hirayama, S. Fujikawa, N. Noguchi, J. Norimatsu, T. Takano, K. Tsubaki, and N. Kamata, *Phys. Status Solidi A* 206, 6, 1176-1182(2009).
- 14) H. Hirayama, T. Yatabe, N. Noguchi, T. Ohashi, and N. Kamata, *Appl. Phys. Lett.* 91, 071901 (2007).
- 15) H. Hirayama, N. Noguchi, T. Yatabe, and N. Kamata, *Appl. Phys. Express* 1, 051101 (2008).
- 16) H. Hirayama, Y. Enomoto, A. Kinoshita, A. Hirata, and Y. Aoyagi, *Appl. Phys. Lett.* 80, 37 (2002).
- 17) M. Jo, N. Maeda, and H. Hirayama, *Appl. Phys. Express* 9, 012102(2016).
- 18) Y. Kashima, N. Maeda, E. Matsuura, M. Jo, T. Iwai, T. Morita, M. Kokubo, T. Tashiro, R. Kamimura, Y. Osada, *Appl. Phys. Express* 11, 012101(2018).
- 19) C. Pernot, M. Kim, S. Fukahori, T. Inazu, T. Fujita, Y. Nagasawa, A. Hirano, M. Ippommatsu, M. Iwaya, and S. Kamiyama, *Appl. Phys. Express* 3(6), 061004(2010).
- 20) M. Shatalov, W. Sun, A. Lunev, X. Hu, A. Dobrinsky, Y. Bilenko, J. Yang, M. Shur, R. Gaska, and C. Moe, *Appl. Phys. Express* 5(8), 082101(2012).
- 21) J. Grandusky, J. Chen, S. R. Gibb, M. C. Mendrick, C. G. Moe, L. Rodak, G. A. Garrett, M. Wraback, and L. J. Schowalter, *Appl. Phys. Express* 6, 032101(2013).
- 22) A. Fujioka, T. Misaki, T. Murayama, Y. Narukawa, and T. Mukai, *Appl. Phys. Express* 3(4), 041001(2010).
- 23) T. Kinoshita, T. Obata, T. Nagashima, H. Yanagi, B. Moody, S. Mita, S. Inoue, Y. Kumagai, A. Koukitu, and Z. Sitar, *Appl. Phys. Express* 6(9), 092103(2013).
- 24) N. Lobo-Ploch, F. Mehnke, L. Sulmoni, H. K. Cho, M. Guttmann, J. Glaab, K. Hilbrich, T. Wernicke, S. Einfedt, and M. Kneissl, *Appl. Phys. Lett.* 117, 111102(2020).
- 25) M. Jo, Y. Itokazu, and H. Hirayama, *Appl. Phys. Lett.* 120, 211105(2022).
- 26) A. Yoshikawa, R. Hasegawa, T. Morishita, K. Nagase, S. Yamada, J. Grandusky, J. Mann, A. Miller, and L. J. Schowalter, *Appl. Phys. Express* 13, 022001(2020).
- 27) R. G. Banal, M. Funato, and Y. Kawakami, *Phys. Rev. B* 79(12), 121308 (2009).
- 28) C. Reich, M. Guttmann, M. Feneberg, T. Wernicke, F. Mehnke, C. Kuhn, J. Rass, M. Lapeyrade, S. Einfedt, A. Knauer, V. Kueller, M. Weyers, R. Goldhahn, and M. Kneissl, *Appl. Phys. Lett.* 107(14), 142101(2015).
- 29) S.-H. Park and Jong-In Shim, *Appl. Phys. Lett.* 102(22), 221109(2013).
- 30) M. Guttmann, F. Mehnke, B. Belde, F. Wolf, C. Reich, L. Sulmoni, T. Wernicke, and M. Kneissl, *JJAP* 58, SCCB20(2019).
- 31) K. Nagamatsu, S. Tsuda, T. Miyagawa, R. Aono, H. Hirayama, Y. Takashima, and Y. Naoi, *scientific reports.* 12, 7662(2022).
- 32) K. Tsujisawa, S. Kishino, Y. H. Liu, H. Miyake, K. Hiramatsu, T. Shibata, and M. Tanaka., *solid state physics*, 4(7), 2252-2255(2007).
- 33) M. E. Coltrin, J. R. Creighton, and C. C. Mitchell, *J. Cryst. Growth* 287(2), 566-571(2006).
- 34) J. An, L. Feng, and J. Zheng, *Sci Rep.*, 11(1), 8877(2021).
- 35) J. An, X. Dai, Q. Zhang, R. Guo, and L. Feng, *ACS Omega* 5(20), 11792-11798 (2020).
- 36) H. Zhang, R. Zuo, T. Zhong, and L. Zhang, *J. Phys. Chem. A* 124, 2961-2971(2020).
- 37) K. Matsumoto and A. Tachibana, *J. Cryst. Growth* 272, 360-369 (2004).
- 38) T. G. Mihopoulos, V. Gupta, and K. F. Jensen, *J. Cryst. Growth* 195, 733-739 (1998).
- 39) J. Leitner, J. Stejskal, and Z. Sofer, *phys. Stat. sol. c* 0(1), 133-136(2002).
- 40) D. G. Zhao, J. J. Zhu, D. S. Jiang, H. Yang, J. W. Liang, X. Y. Li, and H. M. Gong, *J. Cryst. Growth* 289(1), 72-75(2006).
- 41) K. Pu, X. Dai, D. Miao, S. Wu, T. Zhao, Y. Hao, *J. Cryst. Growth* 478, 42-46(2017).
- 42) A. Bchetnia, I. Kemis, A. Toure, W. Fathallah, T. Boufaden, and B. E. Jani, *Semicond. Sci. Technol.* 23, 125025(2008).