

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月20日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656020

研究課題名（和文）ヘテロ基板上の超低転位窒化物半導体ナノエピタキシー

研究課題名（英文）Heteroepitaxy of III-nitride thin films with ultra low defect density

研究代表者

田中 悟 (TANAKA SATORU)

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号：80281640

研究成果の概要（和文）：

SiCナノ表面上のGa₂N成長初期過程をその場RHEEDと原子間力顕微鏡により観察し、SiC表面からのステップフローを確認した。通常SiC上では2H-GaNの核形成が生じるがテラス上において2H核は見られなかった。初期におけるステップフローはそのまま50nm程度の膜厚まで継続し、新しい成長モードのGaN薄膜が成長した。この膜の物性をラマン分光およびフォトルミネッセンス(PL)測定により評価した。ラマンではE₁(TO)とE₂(high)モードの間に明瞭なモードが観察され、これは新規ポリタイプの折り返しモードであると考えられた。また、PLでは2H-GaNのバンド端近傍発光（束縛励起子）エネルギーの3.46eVからレッドシフトしたエネルギー（3.33eV）に発光を観察した。これらの結果からこの新規GaN薄膜は6Hポリタイプを有していると結論された。

研究成果の概要（英文）：

In-situ RHEED and AFM at the initial growth stages indicate nucleation of 6H-GaN at the nanofacets followed by step-flow towards the vicinal direction [1-100] of the substrate. No nuclei on the terraces, generally resulting in 2H-polytype, are observed. Continuous growth under the same condition gives a ~50nm-thick GaN film to be analyzed by Raman and PL. Clear two zone-folded phonon modes are observed between E₁(TO) and E₂(high), which is indicative of the formation of 6H-polytype. The PL spectrum indicates different energy transitions from 2H-GaN: a peak at 3.33eV is shifted by -0.13eV, which also supports the formation of the 6H-polytype. This is due to the reduced bandgap in 6H-polytype, in agreement with theoretical predictions.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：エピタキシャル成長、ワイドギャップ半導体、貫通転位

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

1. 研究開始当初の背景

現状、Ⅲ族窒化物半導体薄膜は、高格子不整合ヘテロエピタキシー（以下ヘテロエピ）が不可避である。そのためにエピタキシャル薄膜中には非常に多くの欠陥が誘起される。デバイスの高機能化・高性能化に向けて、基板の開発は必須であるが、技術的に困難な点が多い。ヘテロ結晶成長によって主な欠陥である貫通転位を大幅に低減することができれば、実用基板を用いることができ、現在のプロセスのままで高品質化が達成される。しかしながら、現在のヘテロエピでは、貫通転位密度は 10^{9-10}cm^{-2} という非常に高い値を有している。そこでデバイス化にあたり、種々の転位密度減少法が提案され、実用化に至っている。その中で最も多く用いられている方法が、エピタキシャル横方向成長法(Epitaxial Lateral Overgrowth: ELO)である。この手法は有効であるが、基板全面にわたって転位を減少させることはできないことから、歩留まりやプロセス上改善の余地が多く残されている。

2. 研究の目的

Ⅲ族窒化物半導体薄膜は、ホモ基板の欠如とヘテロ格子不整合に伴い非常に多くの欠陥があり実用上問題となっている。デバイスの高機能化・高性能化に向けて、バルク基板の開発は必須であるが、技術的・経済的に困難な点が多い。ヘテロ結晶成長によって主な欠陥である貫通転位を大幅に低減することができれば、実用基板を用いることができ、また、現在のプロセスのままで高品質化が達成される。そこで本申請では、申請者が見いだした2つのユニークな表面現象による「SiC ナノ周期表面」および「SiON 超薄膜」をベースとして「ナノエピタキシー法」を提案し、窒化物薄膜の貫通転位密度の大幅な低減を計ることを目的とする。

3. 研究の方法

Ⅲ族窒化物半導体「ナノエピタキシー」の以下の2つの方法を試みる。

- ① 選択マスクを用いない SiC ナノ表面上のヘテロエピタキシー（マスクレスナノ ELO）
 - ② SiON 選択マスクを用いるナノ ELO によるヘテロエピタキシー（SiON マスクナノ ELO）
- ① では周期的ナノファセット構造を有する SiC およびサファイアナノ表面構造自体が窒化物半導体結晶に与える影響、特に貫通転位の抑制効果に焦点を当てる。ナノスケールの周期的変調表面は、窒化物核形成に

おいて空間的・時間的な制御パラメータとなると考えられ、低転位化へと寄与できる可能性がある。（核発生の時空間制御）

- ② では、SiON(SiO/SiN) 超薄膜を自己形成選択マスクとして用い、いわゆる横方向エピタキシャル成長法 (ELO) と同様な（それ以上の）転位抑制効果を得ようとするものである。

方法① マスクレスナノ ELO

この方法により GaN 核発生を制御し、6H-SiC 上のステップフローにより 6H-GaN が成長初期に形成されることを報告した。ファセット部における選択 GaN 核形成を誘起させることにより、ステップフローが生じ、結果的に基板と同じ結晶構造が維持され 6H-GaN が形成されたものである。この時、Ga の表面先吸着が重要なパラメータとなっていることを示した。しかしながら、格子不整合に伴うエネルギー緩和により、 $\sim 1-2 \text{nm}$ 程度の層厚の成長後、構造遷移により 2H 構造に変化すると同時にミスフィット転位・貫通転位の発生が生じることがわかった。しかし、厚膜形成後の X 線回折による構造評価では、通常の成長薄膜に比べ(0002) ロッキングカーブ半値幅が約半分程度になっていることがわかり、低転位化の可能性はある。本計画では、この方法による低転位化の可能性を初期核発生制御という観点から更に深め、マスク法との比較から検討を行う。具体的な課題としては、

① SiC ナノ表面周期の依存性

ナノファセット周期は $5-20 \text{nm}$ で制御することができるため、吸着原子の拡散長との関係から核発生位置を制御できないか検討する。

② 4H, 6H ポリタイプ依存性

4H-SiC も同様にナノ表面が形成される。4H, 6H ではナノファセット部分の高さが異なるため（ユニットセルに対応）、核発生に影響を与える可能性がある。

③ SiC 基板傾斜方向依存性

一般的な基板は傾斜方向が $\langle 11-20 \rangle$ であるが、 $\langle 1-100 \rangle$ オフも入手可能である。この場合、ステップ端の構造が異なるため、核発生・構造緩和に影響を及ぼす可能性がある。

方法② SiON マスクナノ ELO

要素技術として SiON 超薄膜/ナノ SiC 表面作製技術は確立している。初年度はこの表面上における GaN 核発生メカニズムとその時空間位置制御を目的とする。本手法において特に初年度に重要な課題としては、

1. SiON 表面の原子レベル清浄化。
2. 初期 GaN 核発生位置・時間の制御（時空間制御）。

である。1はGaビームにより清浄化が可能であることがわかっている。 $\sqrt{3}$ 構造からのRHEED強度をモニターすることにより達成できる。2は成長パラメータやSiON清浄化に関して検討が不十分であるため、詳細な検討が必要である。ナノファセット部分に選択的に形成された細線状のGaN核の生位置制御(即ち同じタイミングで核が形成される)は、転位反応・ループ形成に非常に重要であると考えている。

4. 研究成果

「ナノエピタキシー」の2つの方法のうち②についてはSiON薄膜の形成に問題が生じ、実施することができなかったが、マスクレスELOについては以下に示すように良好な結果を得た。

SiC周期的ナノ表面(図1)を得た後、分子線エピタキシー法によりその表面上にGaN薄膜の形成を試みた。

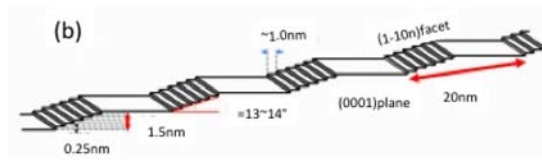
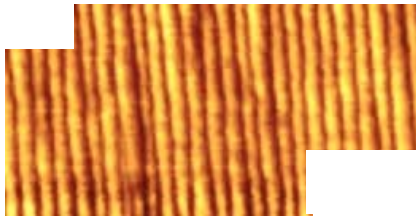


図1 SiC周期的ナノ表面の(a)AFM像および(b)表面構造モデル図

SiCの表面のGa原子による原子レベルクリーニングを実現し、成長初期のGaN核形成をナノファセット部においてのみ生じさせることがわかった。その後GaN核からの横方向成長が優先的に起こる現象を見いだした。それによって基板であるSiCのポリタイプ(4H, 6H)を引き継いだ結晶構造がGaNに誘起されることが分かった。4H, 6H-GaNという新しい結晶構造を形成することに成功した、この物性はラマン分光(図1)およびフォトルミネッセンス(図2)により確認し、それぞれ折り返しモードによる新しいフォノンモード、異なるバンド間遷移発光を観察した。成長したGaN膜の厚さが薄いためX線回折等による結晶品質(転位密度など)の評価は困難であったが、発光特性からディープレベルの発光が著しく軽減されていることやフォノン散乱などから高品質薄膜が形成されていることを示唆する結果を得た。今後数ミクロン程度の薄膜を成長し、転位密度の直接評価を実施する予定である。

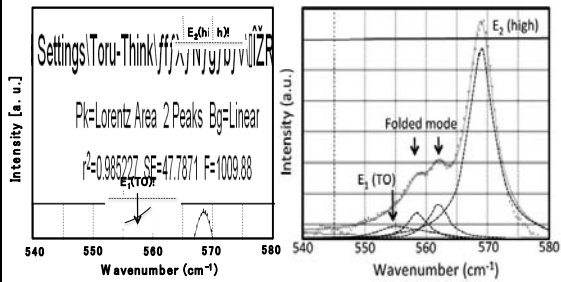


図2 2H(左)および6H-GaN(右)のラマン分光結果。6H-GaNには、2HのE1とE2モードの間に折り返しモードが観察される(研究代表者、研究分担者及び連携研究者)

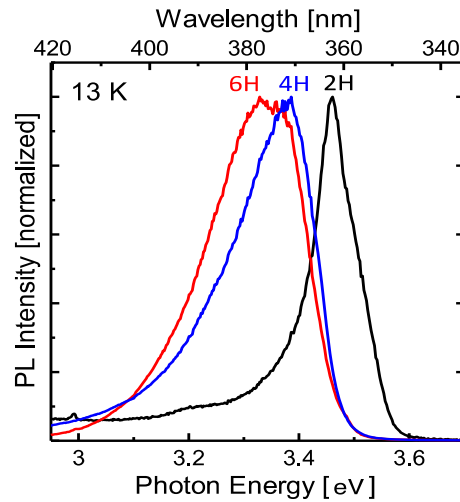


図3 2H-, 4H-, 6H-GaNのフォトルミネッセンス測定結果。2H-GaNのバンド端近傍発光より低エネルギー側に4H, 6H-GaNからの発光が観察された。

には下線)

[雑誌論文] (計 0件)

[学会発表] (計 1件)

Y. Ishiyama, M. Takaki, M. Funato, Y. Kawakami, A. Hashimoto, S. Tanaka, "New polytypes (4H, 6H) of III-nitrides grown by hetero-step-flow mode on vicinal SiC surfaces", International Workshop on III-nitride Semiconductors 2012, Sapporo, Japan.

[図書] (計 0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計 0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 悟 (TANAKA SATORU)
九州大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号：80281640

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：