

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24360009

研究課題名(和文)炭化珪素基板上への 族窒化物の超高品質コヒーレント成長の基礎とデバイス応用

研究課題名(英文) Coherent growth of high-quality group-III nitrides on SiC substrates and its device applications

研究代表者

須田 淳 (Suda, Jun)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：00293887

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,300,000円

研究成果の概要(和文)：SiC基板上への高Al組成窒化物半導体のコヒーレント成長の基礎を築き、デバイス応用への展開を目指して研究を行った。高Al組成AlGa_Nの成長として、組成や構造のデジタル的な制御が可能な、AlN/GaN短周期超格子に着目した。さまざまな構造・成長条件のAlN/GaN短周期超格子の臨界膜厚の解明、緩和メカニズムの解明を行い、GaNモル分率20%の規則混晶のコヒーレント成長に成功した。また、3BLのGaNを成長すると格子緩和がはじまることを明らかにした。極薄GaNの格子緩和はゆっくりと生じることを利用して、SiC基板上に圧縮、引っ張り歪みを持つAlNを成長する方法も提案した。

研究成果の概要(英文)：Coherent Growth of high-Al-content AlGa_N on SiC substrates aiming at device applications were investigated. As high-Al-content AlGa_N, AlN/GaN short-period superlattices were grown. Various kinds of AlN/GaN Superlattices were grown to assess critical composition as well as critical thickness for coherent growth on SiC substrates. Superlattices with GaN mole fraction of 20% were successfully growth coherently. On the other hand, it was found that growth of 3-bilayer-thick GaN results in lattice relaxation. The relaxation was gradual. By using this nature, strain-controlled AlN were grown on SiC substrates via ultra-thin GaN/AlN multilayer structures.

研究分野：結晶工学

キーワード：窒化アルミニウム 炭化珪素 分子線エピタキシー 結晶成長 転位

1. 研究開始当初の背景

窒化ガリウム(GaN)に代表される III 族窒化物半導体(III-N)は、青色・緑色・白色発光ダイオード、青紫色レーザーダイオードの実現により社会に大きなインパクトを与えた。GaN 系高周波パワートランジスタの開発も進み、次世代移動体通信基地局や衛星中継、レーダーなどへの応用も始まっている。さらに、GaN 系パワースイッチングデバイスや、窒化アルミニウム(AlN)と GaN の大きなバンドギャップ差(6.0eV/3.4eV)を利用したテラヘルツ～赤外域のサブバンド間遷移デバイスの研究も進められている。

高周波パワートランジスタとして開発が進められている、AlGaN/GaN 高電子移動度トランジスタ(HEMT)の作製においては、電気的絶縁性と熱伝導性に優れた炭化珪素(SiC)基板が用いられている。SiC は 4 インチ基板が標準で、来年には 6 インチ基板が販売開始される予定となっており、GaN 系高周波パワーデバイス用基板として今後も主流と考えられる。

上記 HEMT の作製においては、SiC 基板上に AlN バッファ層を介して GaN 層を成長することが標準的となっている。SiC 上の AlN 成長層は 10^{10}cm^{-2} という莫大な貫通転位を含んでいる。0.9% という格子不整合と SiC と AlN の濡れ性の悪さ(初期の三次元成長)、III-N と SiC と結晶構造の相違(共に六方晶ではあるが、III-N はウルツ鉱構造に対して SiC は 4H,6H 構造)が原因である。GaN と SiC の格子不整合は 3.5% と大きく、AlGaN/GaN HEMT を SiC 基板に対してコヒーレント成長することは不可能なので、AlN 成長層の品質を改善するよりも、GaN の成長と共に(転位を曲げたり対消滅させて)結晶性を改善するほうが得策であると考えられている。実際、GaN を数 μm 成長すると貫通転位密度は 10^9cm^{-2} 台へと低減可能であり、この GaN 層を用いて AlGaN/GaN HEMT が商品化されている。AlGaN/GaN HEMT は多数キャリアデバイスであるため、 10^9cm^{-2} という高密度の貫通転位があってもデバイスは動作するが、長期信頼性や AlGaN/GaN ヘテロ接合の特性を最大限引き出すためには、当然、貫通転位密度は少ない方がよい。

研究代表者は、2000 年から、SiC 基板上に高品質な AlN を成長させることに取り組んできた。AlN と SiC の格子不整合は 0.9% であり、真剣に取り組めば高品質成長の可能であると考えたからである。結晶成長方法としては、制御性に優れ、成長のリアルタイム観察が可能な分子線エピタキシー(MBE)法を選んだ。研究代表者らの初期の結果(例えば Applied Physics Letters Vol. 80 (2002) pp.76-78)では、他機関の報告と同様、薄膜の AlN の結晶性は悪く、成長膜厚が増えると共に結晶性が回復するという結果となった。また、詳細な X 線回折から、AlN 膜厚 6 nm 程

度から格子緩和が始まっていることが分かった。(他機関の報告でも 6~10 nm で緩和が始まっていた。)

その後、成長前の SiC 基板の表面状態の制御、AlN 結晶成長の初期過程の観察と制御の研究に取り組み、さまざまなアイデアを導入することで段階的に結晶性を向上させ、① SiC 基板表面のステップ高さを AlN の格子定数に相当する 2 バイレイヤーの倍数に制御する (SiC と AlN の結晶構造の不一致を回避するため)、② SiC 表面を *ex-situ*, *in-situ* で二重に清浄化を行う、③ SiC 表面に適切な量の Ga を成長直前に供給して AlN 成長の二次元成長を促すサーファクタントとする、④ 上記プロセスにおいて、窒素源の窒素プラズマを点灯させず、シャッターを回り込んで飛来する極僅かの窒素も供給させない、という 4 つの重要要素を確立し、2009 年に、AlN 成長開始直後からの layer-by-layer 成長の実現と、その結果としての、SiC 基板上 AlN 薄膜としては過去に報告のない貫通転位密度 10^8cm^{-2} 台の実現、さらに、従来、数 nm 程度と考えられていた AlN のコヒーレント成長を、300nm まで拡大することに成功した。

2. 研究の目的

本研究は上記の技術を基盤として、より広く一般に SiC 基板上への高 Al 組成窒化物半導体のコヒーレント成長の基礎を築き、デバイス応用への展開を目指すものである。

高 Al 組成 AlGaN の成長として、組成や構造のデジタル的な制御が可能な、AlN/GaN 短周期超格子に着目する。短周期超格子は、その規則性から電子移動度などにおいても一般の混晶より優れている可能性も期待でき、また、光学応用としては、短周期超格子のサブバンド間遷移を利用した光デバイスへの展開も可能と期待される。

具体的には、さまざまな構造・成長条件の AlN/GaN 短周期超格子の臨界膜厚の解明、緩和メカニズムの解明を進める。さまざまな周期の AlN/GaN SPSL を様々な成長条件(Al, Ga 供給量、成長温度、供給シーケンス)で成長し、その結晶性を評価する。X 線逆格子マッピングを用いて格子緩和を正確に評価し、緩和した試料については透過電子顕微鏡(TEM)を用いて格子緩和がどのような拡張欠陥がどのように導入されるのか明らかにする。AlN の成長において Ga はサーファクタントとして働くことが分かっており、成長条件により緩和しにくい状況を実現できると考えている。

3. 研究の方法

研究代表者 2011 年に行った予備実験で当研究グループ独自の高品質 AlN 上に AlN/GaN 超格子を成長すると、Ga 組成が 15%程度までであれば厚さ 100 nm 程度までコヒーレント成長可能であることを見出した。比較実験として、SiC 基板上に通常の方法で成長した低品質な AlN 上に同様の超格子を成長したところ、この場合は、格子緩和していることを確認している。下地の AlN の転位密度の大小により緩和メカニズムが異なっており、高品質 AlN を使用することにより、過去に報告のなかったような組成、厚さでコヒーレント成長ができることを示す有望な結果である。

ただ、2011 年までの研究は予備実験に過ぎず、本格的に AlN/GaN 超格子を高 Al 組成 AlGaIn として位置づけるためには、以下の点での研究も行う必要があると考えている。

高品質 AlN や高品質 AlN/GaN 超格子をうまく成長できる成長条件がかなり限定されており、再現性が難がある。高い再現性で研究を行える状況にもっていかなければ、系統的な知見は得られない。また、AlN 上の GaN の政庁に置いては AlN 層の成長条件が Al-rich に傾くと、AlN/GaN 超格子ではなく、AlN 層しか成長できない。これは、Al-N 結合の方が Ga-N 結合より結合エネルギーが大きく、表面に Al が吸着した状態だと、Ga を供給しても Al が先に結晶化するためと解釈できる。これについても方策を見出す必要がある。

また、AlN/GaN 超格子が格子緩和した場合の緩和メカニズムの解明も非常に重要である。格子緩和したものについて、TEM による詳細な評価を行い、ミスフィット転位の導入メカニズム、ミスフィット転位から派生した貫通転位の伝播について詳細に調べる。緩和メカニズムの解明は、緩和を抑制してコヒーレント成長可能な領域を拡大するヒントになる。また、逆に、制御した緩和が実現できれば、歪み制御への展開も可能になる。

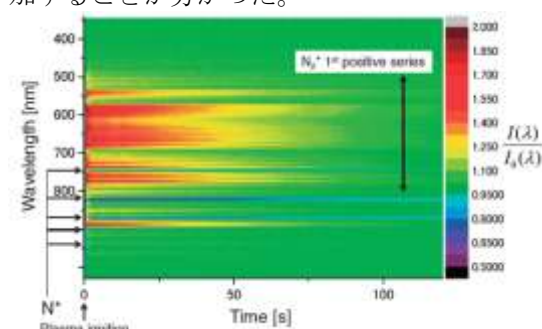
4. 研究成果

高品質 AlN 下地層成長の高再現性成長技術

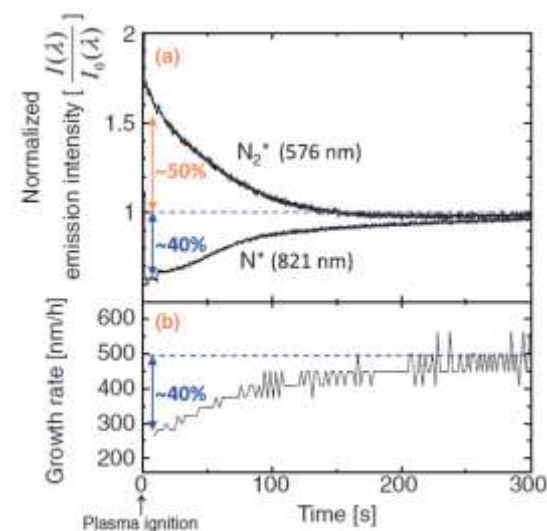
SiC 基板上への高品質 AlN の成長は非常に微妙で再現性に問題があった。表面洗浄、成長温度、V/III 比などのチューニングを行っても再現しない場合があったが、さまざまな検討の結果、rf 励起窒素プラズマ中の活性種が時間と共に大きく変化して、成長初期の V/III 比が変動することが再現性が得られない原因であることを特定した。

図にプラズマ発光分光の定常状態に対する発光強度の相対比を示す。プラズマ点灯直

後から見てみると励起窒素分子が時間と共に減少し、一方励起窒素原子が増加することが分かった。



RHEED 強度振動から成長レートを見積ると、成長開始と共に成長レートは増加することが判明し、これがちょうど、励起窒素原子の増加と量的に対応することを確認した。つまり、成長初期は、適正な V/III 比より III



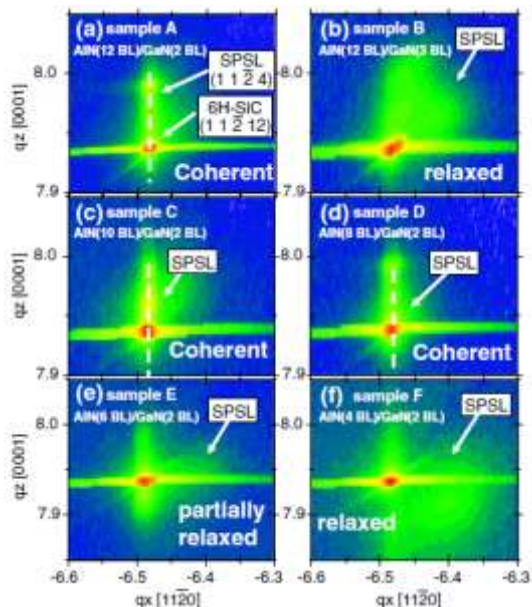
族リッチ側に大きくずれていたことが判明した。SiC 基板への励起窒素の回り込みによる間接照射を最小限に抑えつつ、適切なプラズマ点灯後の安定時間を設けることで、ほぼ確実に SiC 基板上にコヒーレント成長高品質 AlN を成長できることを明らかにした。

再現性向上の理由としては成長初期の V/III 比が適切になったことで、成長初期の AlN 成長核が大きく発達した 2 次元核になっていることを原子間力顕微鏡により確認している。

AlN/GaN 短周期超格子の臨界組成・膜厚

SiC 基板上の高品質 AlN 層上に成長可能な AlN/GaN 短周期超格子の組成、膜厚を明らかにするために、さまざまな周期の超格子を成長し、X 線逆格子マッピングにより格子緩和の有無を詳細に調べた。その結果、AlN 8BL/GaN 2BL (GaN モル分率 20%相当)の超格子がコヒーレント成長可能であることが明らかになった。一方、AlN 6BL/GaN 2BL

(GaN モル分率 25%相当)では格子緩和が確認され、20%と25%の間に臨界組成があることが明らかになった。また、AlN 12BL/GaN 3BL の GaN モル分率は20%ではあるが緩和していた。つまり GaN 3BL を AlN 層上に成長した時点で GaN 層自体の臨界膜厚に達することを示す結果である。



これらの結果は SiC 基板上高品質 AlN テンプレート層上への短周期超格子の作製可能範囲を示す重要な結果と言える。

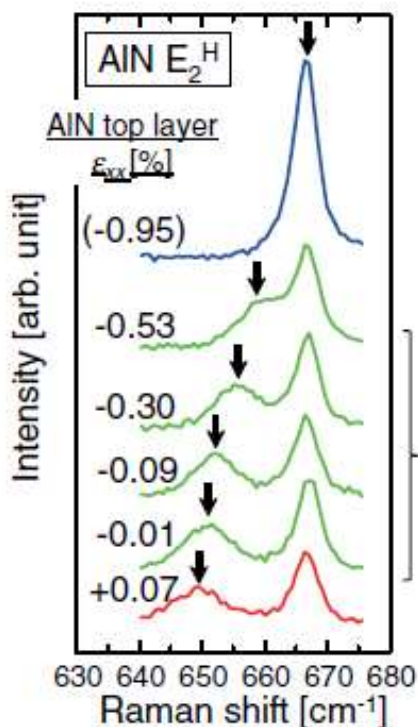
GaN モル分率が20%以下の AlN 系デバイスへの展開は大いに期待できるが、応用によってはもう少し大きな GaN モル分率の AlGaIn が必要な場合もある。格子緩和した超格子の X 線半値幅、TEM 観察による転位密度は著しく劣っていた。

AlN 上 GaN 極薄積層構造による格子緩和過程の TEM 観察による解明と AlN 歪み制御の可能性の実証

上記の通り、SiC 基板上コヒーレント成長 AlN 上への AlGaIn コヒーレント成長の範囲は限られている。これは、SiC 基板上の AlN はコヒーレント成長しているため、面内格子定数は SiC のそれと一致しており、AlN バルクに対して 0.9%、GaN に対しては 3.5%もの大きな格子不整合となっているためだと考えられる。

一方 3BL の GaN を AlN 上に成長すると格子緩和が生じ始めることが分かった。その緩和は急激ではなく、徐々に起こっていると考えられる。そこで、SiC 基板上コヒーレント成長 AlN 上に数 BL の GaN を成長することでわずかな緩和を起し、その表面の格子定数を AlN あるいはさらに AlGaIn に一致するようにして、その格子定数で AlN を成長したものを AlGaIn のテンプレートにするアプローチを検討した。

SiC 基板上に AlN をコヒーレント成長後、数 BL の極薄 GaN と AlN を交互に数層積層し、さらに AlN を厚く成長した試料を作製し、上部 AlN 層の歪みをラマン分光法により測定した。



ラマン分光には青緑色光を使用しているため、上部 AlN と下部 AlN 両方が測定できている。下部 AlN 層はすべて SiC 上にコヒーレント成長した歪み量になっていて、上部層にかかわらず SiC にコヒーレント成長していることが確認された。上部 AlN 層は、GaN 層の量に応じて格子定数が変化しており、ほぼ AlN の無歪み(-0.01%)のものや、AlN からより GaN 側に格子定数が近づいた+0.07%のものを得ることに成功した。

SiC 基板上に GaN を直接成長すると、急速に緩和して GaN の面内格子定数になってしまう。高品質 AlN を下地にすることで徐々に制御した格子緩和が可能であることを示す結果が得られた。これは、将来の歪み制御層として有望と言える。

AlN/GaN 短周期超格子のデバイスへの応用

残念ながらもろんでいた AlGaIn HEMT やサブバンド間遷移光学デバイスへの応用への展開には至らなかった。AlN/GaN 超格子と AlN を積層した疑似 AlGaIn/AlN ヘテロ構造を作製しホール効果測定を試みたが、SiC 基板のリーク電流との切り分けが困難で、二次元電子ガスの測定は実現できなかった。オーミック電極の形成など、電子デバイス応用上の検討を進めるための周辺技術の研究も平行して行う必要があると考えられる。

一方、SiC 基板上の Si ドープ n 型 AlN/GaN 短周期超格子を電子エミッタとして用いた、AlGaIn/SiC ヘテロ接合バイポーラトランジスタの試作、動作検証には成功し、AlN/GaN 超格子は、窒化物/SiC の異族ヘテロ構造デバイス応用の点で可能性があることは示すことができている。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 8 件)

- ① Mitsuaki Kaneko, Tsunenobu Kimoto and Jun Suda
Strain control in AlN top layer by inserting an ultrathin GaN interlayer on an AlN template coherently grown on SiC(0001) by PAMBE
PHYSICA STATUS SOLIDI B (online: FEB 2016).
DOI: 10.1002/pssb.201552649
- ② Mitsuaki Kaneko, Tsunenobu Kimoto and Jun Suda
Strong impact of the initial III/V ratio on the crystalline quality of an AlN layer grown by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy
APPLIED PHYSICS EXPRESS, Vol.9, No.2, 025502 (FEB 2016).
- ③ Hironori Okumura, Tsunenobu Kimoto and Jun Suda
Formation mechanism of threading-dislocation array in AlN layers grown on 6H-SiC (0001) substrates with 3-bilayer-high surface steps
APPLIED PHYSICS LETTERS, Vol.105, No.7, 071603 (AUG 2014).
- ④ Hiroki Miyake, Tsunenobu Kimoto and Jun Suda
AlGaIn/SiC Heterojunction Bipolar Transistors Featuring AlN/GaN Short-Period Superlattice Emitter
IEEE TRANSACTIONS ON ELECTRON DEVICES, Vol.60, No.9, 2768-2775 (SEP 2013).
- ⑤ Mitsuaki Kaneko, Ryosuke Kikuchi, Ryosuke, Hironori Okumura, Tsunenobu Kimoto and Jun Suda
Coherent Growth of AlN/GaN Short-Period Superlattice with Average GaN Mole Fraction of up to 20% on 6H-SiC(0001) Substrates by Plasma-Assisted Molecular-Beam Epitaxy
JAPANESE JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, Vol.52, No.8, UNSP 08JE21 (AUG 2013).
- ⑥ Hironori Okumura, Tsunenobu Kimoto and Jun Suda

Over-700-nm Critical Thickness of AlN Grown on 6H-SiC(0001) by Molecular Beam Epitaxy
APPLIED PHYSICS EXPRESS, Vol.5, No.10, 105502 (OCT 2012).

- ⑦ Ryosuke Kikuchi, Hironori Okumura, Mitsuaki Kaneko, Tsunenobu Kimoto and Jun Suda
AlN/GaN Short-Period Superlattice Coherently Grown on 6H-SiC(0001) Substrates by Molecular Beam Epitaxy
APPLIED PHYSICS EXPRESS, Vol.5, No.5, 051002 (MAY 2012).
- ⑧ Mitsuaki Kaneko, Hironori Okumura, Ryota Ishii, Mitsuru Funato, Yoichi Kawakami, Tsunenobu Kimoto and Jun Suda
Optical Properties of Highly Strained AlN Coherently Grown on 6H-SiC(0001)
APPLIED PHYSICS EXPRESS, Vol.6, No.6, 062604 (JUN 2013).

[学会発表] (計 12 件)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

[その他]

研究室ホームページ

<http://semicon.kuee.kyoto-u.ac.jp/>

6. 研究組織

- (1)研究代表者
須田 淳 (SUDA, Jun)
京都大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号 00293887
- (2)研究分担者
なし
- (3)連携研究者
なし