

格子不整合の極めて大きい系における界面緩衝層の動的過程と制御

Dynamic Process and Control of the Buffer Layer at the Interface in a Highly-Mismatched System

(研究プロジェクト番号：JSPS-RFTF 96P00204)

プロジェクトリーダー

赤崎 勇 名城大学理工学部・教授

コアメンバー

竹田 美和 名古屋大学大学院工学研究科・教授

平松 和政 三重大学工学部・教授

天野 浩 名城大学理工学部・助教授



1. 研究目的

格子不整合の極めて大きい基板上への 族窒化物のヘテロエピタキシーに注目し、界面緩衝層の構造のみならず、界面緩衝層を介して成長する 族窒化物の成長に至るまで、その動的過程を原子スケールで捉えること、および 族窒化物間のヘテロ接合構造形成の動的過程を調べることに、

- (1) 格子不整合の大きい系での結晶成長機構の解明 (赤崎 勇)
- (2) 格子不整合の大きい系での結晶表面の原子配列の解明 (竹田美和)
- (3) ヘテロ接合成長の欠陥制御 (平松和政)
- (4) 格子不整合の大きい系での固相成長制御と応用 (天野 浩)

を行い、新領域デバイス創成に向けての学術的基盤形成を目的とした。

2. 研究成果概要

2.1 格子不整合の大きい系での結晶成長機構の解明

新たに段差を形成したサファイア、シリコンおよび 6H-炭化硅素基板上に GaN の MOVPE 成長を行い、低転位 GaN の成長に成功した。これにより、ELO 法では避けられない複数回の成長や、マスク材からの不純物の混入等の問題を解決した。更に本法を、ELO 法では極めて困難な AlGaIn 成長に適用し、GaN と同程度

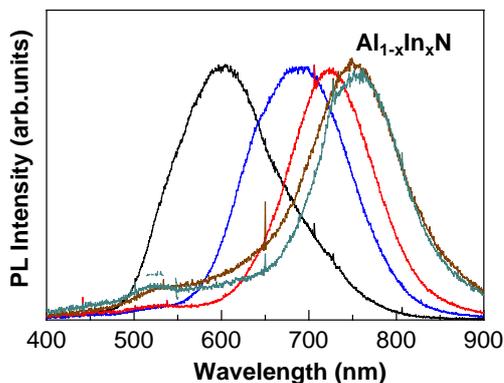


図1 AlInN からの PL スペクトル

にまで転位を低減させることに成功した。これは、短波長発光素子の高性能化の基礎となる重要な技術である。

また、従来 AlInN 混晶の成長は非常に困難であったが、GaN 上に高品質厚膜成長を実現し、様々な組成の AlInN からの PL 発光を世界ではじめて確認した。更に成長条件の最適化により、高品質 AlInN/AlGaIn ヘテロ構造および高移動度超格子構造の作製に初めて成功した。これにより、ナイトライド系ヘテロ接合構造の可能性を一段と広げ、新領域デバイス実現の道を拓いた。

2.2 格子不整合の大きい系での結晶表面の原子配列の解明

X 線 CTR 散乱法、および X 線反射率測定法により、サファイア基板の前処理により生じる基板表面層や低温堆積緩衝層のような非晶質層を含め、基板から最表面の GaInN 成長層に至るまで、全層の結晶性や各層界面の荒れなど原子レベルで評価することに成功した。一例として、低温堆積緩衝層を用いてサファイア上に MOVPE 成長させた GaN は、Ga 極性であることを明らかにした。この発見により、ピエゾ電界による GaInN 系或いは AlGaIn 系量子構造における量子閉じ込めシュタルク効果、AlGaIn

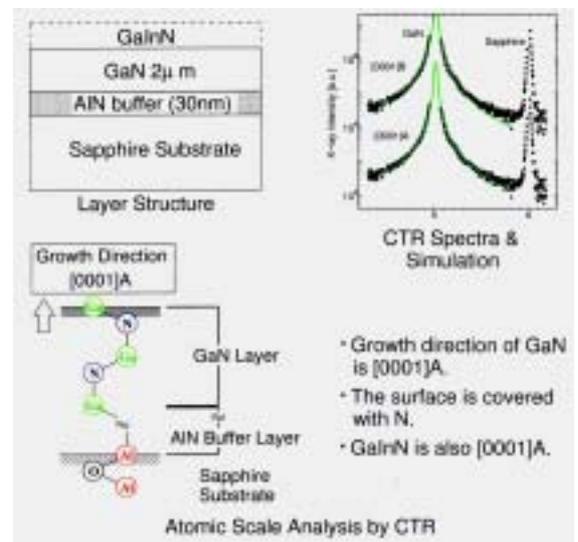


図2 X線 CTR 法による GaN の成長極性の決定

系ヘテロ構造における二次元電子ガスなどの機構が明らかになり、また、青色・緑色発光ダイオードの高効率構造設計のための最も重要な設計指針となった。

さらに、X線反射率測定法を用いることにより、回折法では明らかにすることの出来ない非晶質層の膜厚や界面の乱れに関する情報を得ることができた。

この両者の併用により、低温堆積緩衝層等を含んだ複雑な試料の全体の構造を解析し、低温堆積緩衝層の形成過程や、その上に結晶が成長する過程を解析することが可能となった。

2.3 ヘテロ接合成長の欠陥制御

貫通転位の伝搬は、選択成長で形成されるファセット構造によって制御可能であることを実証した。すなわち、サファイアと GaN 界面で発生した転位は、(0001)を成長面とする場合、結晶表面まで直進するが、 $\{11\bar{2}2\}$ ファセット面から横方向成長を行う場合、転位は90度曲げられる。さらに、曲げられた転位はマスク上に形成されるポイドにより終端する。選択成長のファセット構造を成長条件により制御して横方向成長を行うことにより、10 μ m幅の無転位領域をもち、平均転位密度 10^6 - 10^7 cm⁻² の GaN 結晶の作製に成功した。

2.4 格子不整合の大きい系での固相成長制御と応用

低温堆積緩衝層の昇温での固相成長過程を、高温透過電子顕微鏡を用いて原子レベルで観察した。微結晶表面での、原子ステップを基本とした原子泳動による再配列により基板の原子配列を維持し、かつナノスケールコラム状構造を形成することによって、大きな格子不整合が緩和されることを明らかにした。

厚膜 AlGaIn は、次世代新領域デバイスに必須の結晶であるが、従来、クラックがなく、かつ高品質の結晶を作製するのは困難であった。本プロジェクトでは、低温堆積層を基板のみならず、単結晶 GaN 成長後に、もう一度低温堆積層を介することにより、クラックがなく、かつ螺旋転位の殆ど無い AlGaIn を、全組成域に互って成長することに初めて成功した。さらに、この高品質 AlGaIn を用いて、火災の紫外光のみに応答する光導電セルを試作し、漏れ電流を12桁程度低減させることに成功した。また pin フォトダイオードを試作し、室内光や太陽光の有無にかかわらず、火災センサーとして動作可能であることを実証した。

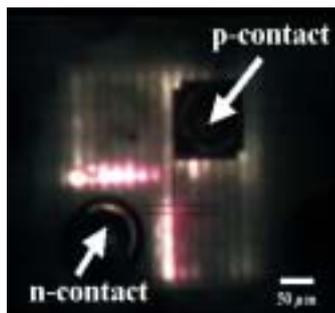


図3 試作した UV-B LED の発光パターンストラ
イプコントラストは転位密度に対応

低温堆積中間層技術と横方向成長技術の組み合わせにより、非輻射再結合準位の起源となる刃状転位密度を、 10^7 cm⁻²以下に抑えることに成功した。GaN を活性層とする紫外 LED を試作し、素子の高効率化のためには転位低減が必須であることを示した。

3. 結論

本研究により、界面緩衝層の動的過程が原子レベルで解明された。これにより、族室化物半導体やその量子構造、低次元構造の高品質化が可能となる。これは、次世代の新分野エレクトロニクスの展開に不可欠の短波長～極短波長レーザダイオード、紫外線検出器、超高周波大電力トランジスタなどの新デバイスの実用化、高性能化を可能にする。また、基板に制約されない高品質エピタキシャル成長が普遍化される。これは半導体産業を初め、種々の材料工学分野にとって革新的な技術であり、科学技術創造立国を目指す我が国にとって極めて重要な基幹技術となる。

主な発表論文

- (1) T. Takeuchi, S. Sota, M. Katsuragawa, M. Komori, H. Takeuchi, H. Amano and I. Akasaki, "Quantum-Confined Stark Effect due to Piezoelectric Fields in GaInN Strained Quantum Wells", Jpn. J. Appl. Phys., 36(1997) L382-L385.
- (2) S. Yamaguchi, M. Kariya, S. Nitta, T. Takeuchi, C. Wetzel, H. Amano and I. Akasaki, "Observation of photoluminescence from Al_{1-x}In_xN heteroepitaxial films grown by metalorganic vapor phase epitaxy", Appl. Phys. Lett., 73(1998) 830-831.
- (3) C. Wetzel, T. Takeuchi, S. Yamaguchi, H. Katoh, H. Amano and I. Akasaki, "Optical bandgap in Ga_{1-x}In_xN (0<x<0.2) on GaN by photoreflection spectroscopy", Appl. Phys. Lett., 74(1998)1994-1996
- (4) M. Tabuchi, Y. Takeda, N. Matsumoto, H. Amano and I. Akasaki, "X-ray interference and crystal truncation rod observation of GaN and GaInN layers grown on sapphire with AlN buffer layer", Jpn. J. Appl. Phys., 38 suppl., (1999) 281-284.
- (5) K. Hiramatsu, H. Matsushima, T. Shibata, Y. Kawaguchi, and N. Sawaki, "Selective area growth and epitaxial lateral overgrowth of GaN by metalorganic vapor phase epitaxy and hydride vapor phase epitaxy", Mater. Sci. & Eng., B59(1999) 104-111.
- (6) T. Kashima, R. Nakamura, M. Iwaya, H. Katoh, S. Yamaguchi, H. Amano, and I. Akasaki, "Microscopic Investigation of Al_{0.43}Ga_{0.57}N on Sapphire", Jpn. J. Appl. Phys., 38(1999)L363-365.
- (7) M. Iwaya, S. Terao, N. Hayashi, T. Kashima, H. Amano, and I. Akasaki, "Realization of crack-free and high-quality thick Al_xGa_{1-x}N for UV optoelectronics using low-temperature interlayer", Appl. Sur. Sci., 159/160(2000)405-413.
- (8) T. Detchprohm, M. Yano, S. Sano, R. Nakamura, S. Mochiduki, T. Nakamura, H. Amano and I. Akasaki, "Heteroepitaxial Lateral Overgrowth of GaN on Periodically Grooved Substrates: A New Approach for Growing Low-Dislocation-Density GaN Single Crystal", Jpn. J. Appl. Phys., 40(2001)L16-L18.