

Crystal growth and characterization for a nano-hetero-interface of quantum well structure formed by group III nitride semiconductors on silicon substrates

Tadashi OHACHI* and Motoi WADA

(Received April 30, 2007)

For the first year report of this project the aim of the research and results are presented. In order to grow high quality hexagonal GaN on Si substrates the production of atomic nitrogen using two discharge modes of the induction coupling (ICP) discharge was investigated. Using the two ICP discharge modes a new mode-change migration enhanced epitaxial (MC-MEE) growth method was developed. The MC-MEE uses the discharge mode change between low bright (LB) discharge (the excitation of N₂ molecules) and high bright (HB) one (the dissociation of N₂ molecules to N atoms). As an intermediate layer between Si and GaN a template 2H-AlN was formed by formation of γ phase of Al on Si and the nitridation of Si surface before the AlN template growth using MC-MEE. The sequence of the LB and HB nitrogen flux irradiation was effective to control of active nitrogen species for growth of GaN and AlN. The control of activated nitrogen flux against Ga or Al flux was found to be essential for the growth of high quality crystal of 2H-GaN and 2H-AlN epitaxial films. Growth of 2H-GaN on Si(111) was confirmed *in situ* using reflection high energy electron diffraction.

Key words: MBE, MEE, heteroepitaxy on Si, mode change of ICP discharge

キーワード: MBE, 分子線エピタキシー, 表面移動促進エピタキシー, ヘテロエピタキシー, 誘導結合高周波放電励起モード変換

シリコン上へのⅢ族窒化物系半導体ナノヘテロ界面 量子井戸構造の結晶成長と物性評価

大鉢 忠・和田 元

1. はじめに

「界面微細構造制御により発現する物性の評価研究」プロジェクト遂行の目的で界面現象研究センターが2006年4月に発足した。優れた材料物性を見出すことを目標に、材料界面の構造および界面現象を深く理解すべく、界面現象研究に取り組むことを始めた。その分担グループとしてナノ薄膜G（微細構造を制御した薄膜の物性評価）の取り組みで、我々の研究課題を「シリコン上へのⅢ族窒化物系（GaN, AlN, InNとそれらの混晶）半導体ナノヘテロ界面量子井戸構造の結晶成長と物性評価」と掲げて「異種半導体界面の結晶学的構造評価と電気・光学的

特性評価」研究の分担をしている。

第1年度の研究成果をまとめるに当たり、最初に、分子線エピタキシー（MBE）成長法に必要な活性窒素の生成と放電現象、窒化物半導体の結晶成長に必要な窒素原子生成に関する研究成果、励起窒素分子の働きと結晶成長への応用、ナノヘテロ界面構造量子井戸の結晶成長を行うに必要なSi上へのⅢ族窒化物半導体の結晶成長と界面現象との関係のべ、Ⅲ族窒化物半導体の結晶成長についてまとめる。

2. 励起窒素発生高周波放電

2.1 誘導結合高周波放電の2つのモード

Ⅲ族窒化物の構成元素である窒素を利用する

*Doshisha University, Department of Electrical Engineering
Telephone: +81-774-65-6329, Fax: +81-774-65-6811,
E-mail: tohachi@mail.doshisha.ac.jp

ために活性窒素を作り出す必要があるが、2原子分子である窒素分子が3重結合を持ちきわめて安定なところから、原子を作るため、窒素気体の放電等を用いる方法、高温法やアンモニアの熱分解法が存在し、我々は高周波(13.56MHz)放電法を利用している。放電現象は電極間気体の絶縁破壊現象として知られるが、MBE法で利用される方式は通常の電極間に起こる容量結合放電でなく、電極を用いない誘導結合(Induction coupling: ICP)の放電法であり、無電極放電と呼ばれるものの一つである。

誘導結合高周波放電の無電極放電の発見は1884年のHittorf¹⁾によると言われており、その後、無電極放電の研究が数多くある。高周波の無電極放電は他にも容量励起方式のものと放電室の多様性から様々な報告がある²⁾。我々の利用する誘導コイル内PBNるつぼ中の放電はRing放電と言われるものに近く、その特徴はコイルの高周波電流を増すと最初は弱い放電(1st stage)で分子が励起され、さらに電流が増すと分子の解離が起こって明るい放電(2nd stage)に移行することである。2段階の放電は気体分子の性質によるもので最初にMacKinnon⁵⁾が報告

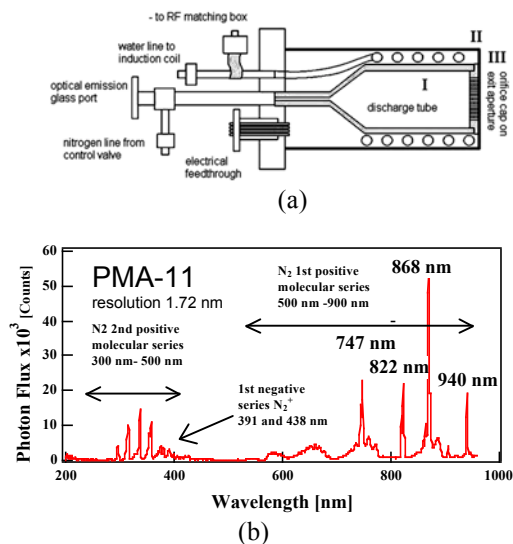


Fig. 1 (a) A schematic drawing of the RF nitrogen source. Three operation sections of I, II and III are shown; (I) production of N^* and N_2^* within a discharge tube, (II) effusion of the N^* and N_2^* through orifice holes and (III) elimination and deflection of charged particles. (b) OES of bright mode measured by Hamamatu Photonics PMA-11 spectrometer. Atomic lines are shown.

しているが、電極間に起こる放電ではグロー放電からアーク放電への移行に当たるものと考えられる。1st stageの放電が起こるメカニズムはコイルに流れる高周波電流により作られる誘導高周波磁界によって出来る周方向の電界 E_θ とコイルのアース側と高圧側との電位差とにより作られる軸方向の電界 E_z とのいずれかにより電子雪崩が生じて放電開始となる³⁾。初期に励起分子が作られる1st stage放電は暗い放電モードで、Low Bright (LB)と呼ばれ、分子が解離し原子が発生する2nd stage放電モードは明るい放電でHigh Bright (HB)と呼ばれている。前者は分子励起モード、後者を分子解離モードと呼ぶことにする。前者をEモード⁶⁾後者をHモード⁷⁾と呼ぶ場合もあるが、前者で周方向の電界により放電開始する場合も有るため適当でないと考えている。

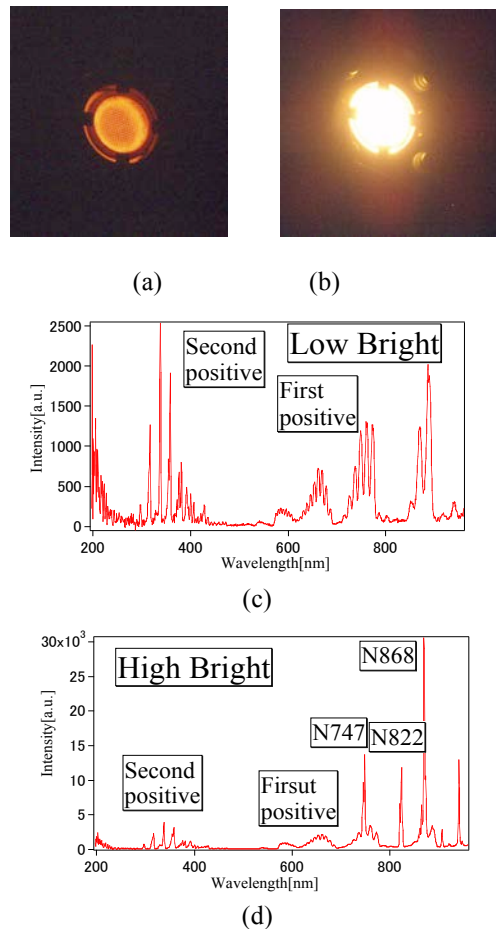


Fig. 2 (a) Orifice brightness at LB discharge mode, (b) HB mode, (c) Spectrum for LB mode and (d) for HB mode.

放電モードの観察は Fig. 1 (a)に示す窒素セルの後方の窓から分光測定により行える。用いる分光器は浜松ホトニクス製の PMA-11 で、PMA-11 は 300nm から 950nm の範囲を絶対測定ができるように校正されているが分機能は 1.72nm である。 Fig. 1 (b)に示すように高周波放電の特徴である HB 放電の測定結果で原子レベル $3s^4P \rightarrow 3p4S^0$ 遷移で生じる 742.3, 744.2, 746.8 nm トリプレットに対応する基底窒素原子の 747nm のスペクトルと、それ以外に 822, 868, 906, 949 nm の励起窒素原子 (N^*) の線スペクトルが観測されている。合わせて励起窒素分子に対する 1st と 2nd positive シリーズのバンド発光と 1st negative シリーズの分子イオンのスペクトル 391 と 438nm も示されている。 Fig. 2(a)に Fig.1(a)の III 側から放電セル出口のオリフィスを観察した分子励起モード (輝度の暗い放電 LB) の時の発光を示し、この場合の分光スペクトルは Fig. 2(c)に示されるように励起分子が主となり、原子は示されていない。その状態で圧力を減じると、 Fig.2(b)に示すように明るくなり、分子解離モード (輝度の明るい HB) の場合は Fig.2(d)に示されるようなシャープな原子スペクトルが観察される。圧力変化でなく、電力を増した場合にもこの HB モードに変化する。これらの LB と HB の二種類の放電励起モード変化を利用^{7, 8)}して、励起 N_2 分子と基底 N 原子、励起 N 原子の照射を制御することが出来る。

磁界を利用し高周波 13.56MHz で電子サイクロトロン共鳴 (ECR) を利用する RF-ECR を考案し、原子スペクトルを増加させる事を確認している⁹⁾。

2.2 窒素励起モード切換 MC-MEE 法

Ga あるいは Al の III 族原子のシャッターの開時期に同期したトリガ信号で窒素励起モードの切換を行うことを目的として、パルス状の LB 用の電力と HB 用の高周波電力制御の出来る電源を用いた。それにより、原子と励起分子の照射を交互に、かつ照射時期と照射時間を変更可能

となりモード切換マイグレーション促進エピタキシャル成長法 (MC-MEE) を行った。 Fig.3 にその制御シーケンスを示す。

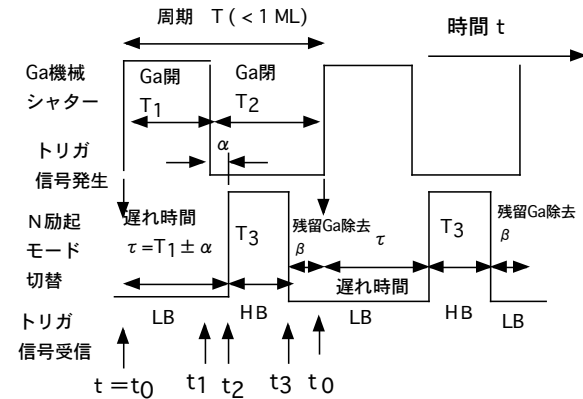


Fig. 3 Time sequence of Ga flux and N excitation modes for MC-MEE growth mode.

3. ヘテロエピタキシャル成長

3.1 界面現象としてのヘテロエピタキシー

物性が関係する物理量変数として時間、空間座標、温度が考えられ、変化に対して物性値の一次微分が不連続の場合や高次の微分が不連続に変わる場合は広い意味での相転移として認識されている。本研究センターが取り上げる界面現象は空間座標が変化する場合に不連続に変化する量に関わる現象の一つとして捉えることが出来る。多くの現象がその分類の中で議論されている。III 族窒化物半導体にはエピタキシャル成長に必要な基板結晶が得ることがきわめて難しく、適した異種基板を用いたヘテロエピタキシャル成長法が用いられる。III 族窒化物半導体薄膜ヘテロエピタキシャル結晶成長は有機金属化学気相成長法(MOCVD)や我々が取り上げる MBE が利用され、電子デバイスや光デバイス用のヘテロ界面や量子構造作製には MBE 法が適していると考えられている。それは、超高真空での一層づつの結晶成長が可能であり、かつ高純度で平坦界面が得られること、反射高速電子線回折(RHEED)を用いた成長過程のモニタが可能である事、低温成長で準安定な立方晶が得やすいことなどが理由である。

3.2 Si 上へのヘテロエピタキシー

Ⅲ族窒化物半導体の窒化ガリウム(GaN)は準安定な閃亜鉛鉱(zincblende)型立方晶 c-GaN と熱力学的に安定なウルツ鉱(wurtzite)型六方晶 2H-GaN の2つの結晶系を有している。熱的に安定な 2H-GaN 基板は HVPE 法でフリースタANDING GaN 基板として市場に出るようになりホモエピタキシャル成長が可能となっているが、価格が破格の高値となり、現状ではあまり利用されていない。そのため、前節で述べたようにヘテロエピタキシャル法による必要がある。六方晶用基板はサファイヤや 4H-SiC, 6H-SiC 基板が用いられている。一方、準安定な c-GaN ($a=0.452\text{nm}$) の場合は六方晶の場合と異なりホモエピ基板は得られず、すべての場合に立方晶基板へのヘテロエピタキシャル成長法を必要とする。現在、立方晶の代表的な下地基板として格子定数差の大きい GaAs ($a=0.565325\text{ nm}$), Si ($a=0.5431\text{nm}$), 差の小さい 3C-SiC ($a=0.43596\text{ nm}$), c-AlN ($a=0.436\text{ nm}$), MgO ($a=0.4213\text{ nm}$) ほぼ格子整合した BP ($a=0.453\text{nm}$) などが知られている。

我々が基板に Si を選んで研究を行っているのはⅢ族窒化物半導体の基板として安価で大面積、熱伝導率が大きい、結晶性が優れているなどの特徴を持ち、六方晶用には Si(111), 立方晶用には Si(001)基板が利用できることにある。六方晶 GaN を用いる青色発光ダイオード(LED)や電力用電子デバイス等の実用化においても現状はサファイア基板が実用されているが、大口径で良質な単結晶材料基板が求められ、熱伝導性の良い所から Si 単結晶基板が注目されている。

Si 上へのヘテロエピタキシャル成長の研究は先行しており、GaAs 成長が以前に研究され基礎知識がまとめられている^{12) -14)}。Si を基板とすると約 17%の格子不整合が存在し、この大きな格子定数差のあるヘテロエピタキシャル技術は HM^2 とよばれ¹⁰⁾、基板 Si の格子定数に対し c-GaN の格子定数は小さいが、格子定数比が 4 : 5 と整数比に近くなるところから CLS (coincidence

lattice site) 格子整合によりヘテロエピタキシャル成長が可能となる。3C-SiC の場合の Si (001)への格子不整合は約 3%であり、Si 表面を 3C-SiC もしくは Si_3N_4 に変換してやると有利である。Si 上^{15,16)} または炭化膜上^{17) -20)} へ窒化物膜上²¹⁾⁻²³⁾ への GaN 系のヘテロエピタキシャル成長の報告がなされている。

本報告では、Si 基板をアセチレンで炭化した 3C-SiC をテンプレートにする場合と Si 基板を窒素原子で窒化し Si_3N_4 をテンプレートにする場合のⅢ族窒化物半導体の結晶成長法を開発する。

3.3 3C-SiC テンプレート

準安定相の c-GaN 成長には立方晶の基板が必要で、Si 表面を 3C-SiC 中間層を作製してテンプレートとすることを利用するが、立方結晶成長は六方晶結晶成長に比較し難しく、わずかな六方晶の混在が残り、良質の結晶を成長させるには研究をさらに進めなくてはならないのが現状である。Lei 等により Si (001) 基板上に直接 c-GaN の成長が始めてなされた^{24,25)}。その後 Ploog 等^{26,27)}により Si 基板を用いた研究が行われ、Si と c-GaN の中間層として Si の表面窒化による窒化物を用いる研究が進んだ^{21,28-32)}。中間層として $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ³³⁾, HfN³⁴⁾, SOI³⁵⁾ も用いられた。Si 以外の立方晶基板 GaAs³⁶⁻⁴¹⁾、サファイア^{42,43)} を用いた研究も多くなされている。シリコンカーバイト SiC はⅢ族窒化物半導体と同様ワイドバンドギャップ半導体としてよく知られ、表面炭化による 3C-SiC の研究が進み⁴⁴⁾、Si を炭化した 3C-SiC/Si を用いる研究が進められてきた^{17-23,45)}。

アセチレン C_2H_2 とジェットノズルを用いて Si 表面炭化を MBE 成長室内で行うことを考えた。炭化に必要な Si 原子は基板から供給される物では不十分なため Kセルを用いた Si 照射を利用して不足分を補い、平坦な 3C-SiC を得るため Si と C_2H_2 の交互照射を行った。

3.4 Si_3N_4 テンプレート

Si 表面を励起窒素原子で窒化をすることにより中間層としての立方晶窒化物上に c-GaN を成長させる研究^{22,23)}の延長で、窒化法の改良がなされている。

MBE 成長における窒素源として高周波(RF)放電を利用するものが主であり我々も RF 放電方式を利用し、その原子発生効率を上げる開発を行っている。Si 表面を窒化する際にも、励起窒素原子を利用するが、直接 Si 表面に励起窒素原子を照射させない方式で窒化する方式を開発し、RF 放電は 13.56MHz を用いた誘導結合放電(ICP)を利用するため、明るい放電(解離モード)以外に、輝度の弱い放電(励起モード)の二種類の放電励起が利用でき、本報告ではその特徴を利用した窒素励起モード切替マイグレーション・エンハンスメント・エピタキシー(MC-MEE)法を開発し、2H-AlN や 2H-GaN の成長実験について報告する。

3.5 AlN, GaN 成長実験方法

GaAs 用の VG. 80H MBE 装置を AlN や GaN 成長用に窒素放電セルを利用できるように排気量の小さいイオンポンプを排気量の大きい 800L/s のターボ分子ポンプに取り替え、アリオス(株) 製 IRFS-501 活性原子窒素(N*)源と電力をパルス状に印加する電源を利用した。2H-AlN

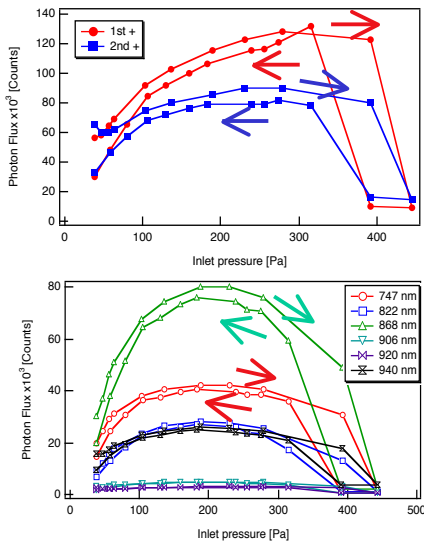


Fig. 4 OES inside pressure dependence corresponding (a) active N₂ molecules with 1st-positive series molecular N₂ transition(580 - 950 nm) and 2nd-positive series molecular N₂ transition(300 - 500 nm), (b) active atomic N

(0001) 2H-GaN (0001) には 2 インチと 3 インチの Si(111) just を用いた。Si 基板洗浄は購入基板そのままを。MBE 成長室にて基板温度 820~850 °C でサーマルクリーニング後、基板温度を 810°C の Si 7 x 7 の清浄表面へ Al 照射による表面処理を行った。その後、2H-AlN はそのままの温度で、2H-GaN は 720-750 °C で MEE 成長を行った。XRD による、PL 評価、AFM と FE-SEM による表面観察を実施した。

4. 実験結果および考察

4.1 励起窒素スペクトル圧力依存性

浜松ホトニクス の PMA-11 により分光したスペクトルの積分強度を励起分子に関する 1st positive と 2nd positive シリーズを Fig.4(a)に放電管内部圧力(ガス導入口に圧力計設置)をパラメータに示す。分子は圧力が増加し 300Pa 近くで飽和している。原子のスペクトルは Fig.4(b)に示す。200Pa で最大値をとることがわかる。

励起 N₂ 分子と原子 N 及び励起 N 原子の混合の割合は圧力による事が明らかであるが、Fig.1(a)で示した放電管外の III において如何なる割合かを知ることが今後の研究課題である。

4.2 励起モード相図

Fig. 5 は圧力を変化させた場合と電力を変化させた場合のモード変化が起こる臨界の値を示すものでモードの相図である。HB から LB への

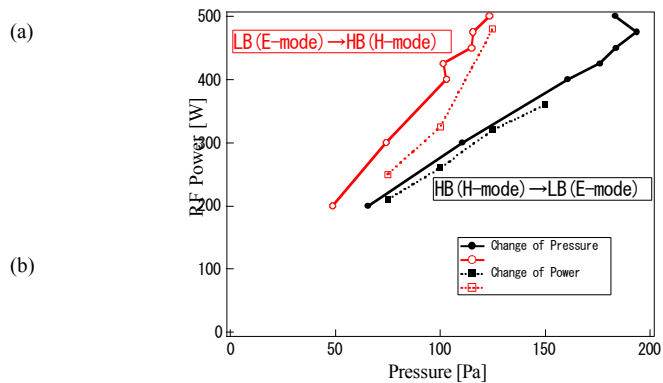


Fig. 5 Phase diagram for discharge modes. Phase borders were changed depending on nitrogen pressure change and input power change.

変化は両者差がないが、逆の LB から HB の変化の場合には差があることが分かる。

4.3 励起モード切換シーケンス

Fig.6 に HB と LB 放電時間をそれぞれ 2 秒とした場合の窒素放電の原子スペクトル(747nm)と励起原子スペクトル(822, 868nm)の時間変化を示す。特徴は圧力により過渡状態が変化していることである。また HB の時間を 2 秒より短くした場合の 80Pa の場合には定常値へ到達する前に LB となり、励起原子の平均値が減少することが分かる。LB から HB への変化には時間がかかるが、逆の HB から LB への変化の時定数は短く、相図の結果と対応している。

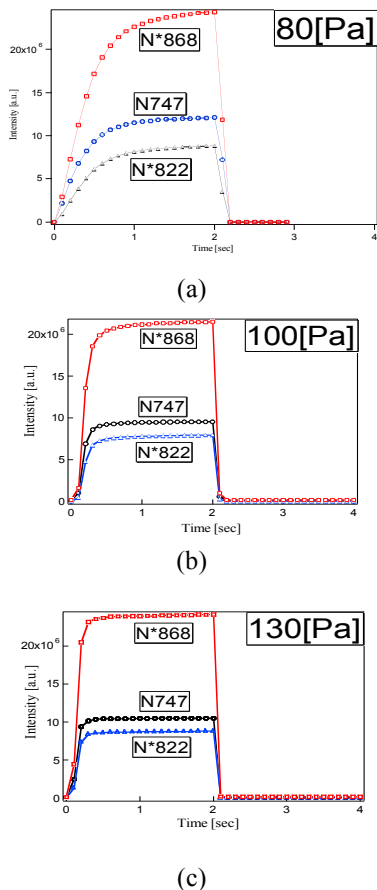


Fig. 6 Time evolution of nitrogen atom N and excited nitrogen atom N* spectrum.

4.4 励起窒素分子の働きと MC-MEE

LB においては原子は解離していないことが明らかであるため、LB での励起分子の照射の有無による基板温度 600°C 時の 2H-GaN 上の RHEED

強度の変化を調べた結果が Fig.7 である。Fig. 7(a) は LB での励起分子の照射の無の場合の RHEED スポットの輝度変化であり、Fig. 7(b) は LB での励起分子の照射した場合の RHEED スポットの輝度変化であり、輝度の戻りが短縮されることが確認されている。励起窒素分子が Ga に衝突することで、Ga が高いエネルギーを持ち Si 基板から離脱すると考えられ、等価的に基板温度が高くなったことに対応している。

Fig. 8 は Si(111) 清浄表面 7x7 表面再構成層への窒素原子照射の作用を示すものである。シャッターが閉じられた状態でも HB モード放電により

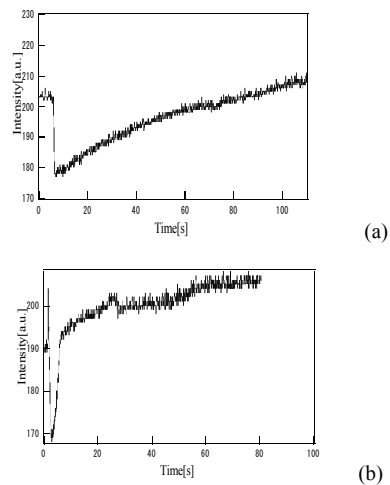
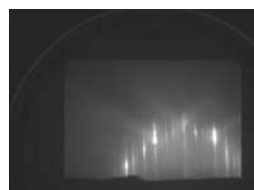


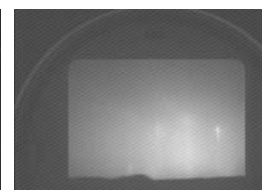
Fig. 7 RHEED intensity change for non-excited nitrogen molecules exposure (a) and exposure of N₂* nitrogen excited molecule (b).



(a)



(b)



(c)

Fig. 8 RHEED intensity change for non-excited nitrogen molecules exposure (a) and exposure of N₂* nitrogen excited molecule (b).

原子が発生すると直ちに再構成層パターンが Fig. 8(a)から Fig. 8(b)の様に変化し、原子がシャッターから漏れたことが分かる。LB モードの場合にはシャッターを開いて励起分子を5分間の照射を行っても Fig. 8(b)のパターンが継続した。シャッターを閉じたままでHBモードで原子照射を継続させて20分後には再構成層のパターンが Fig. 8(c)の様に1x1に変化した。励起分子が反応せず、原子と励起原子はシャッターを閉じた状態でも隙間から漏れによって基板に到達することが判明した。

4.5 3C-SiC/Si(111)テンプレート成長

Si(111)清浄表面の表面再構成層は7x7構造で Fig.9 に示す様な RHEED 像が得られることを

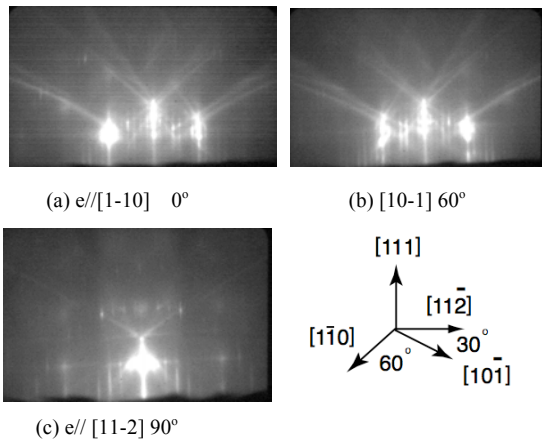


Fig.9 RHEED patterns from Si(111) clean surface.

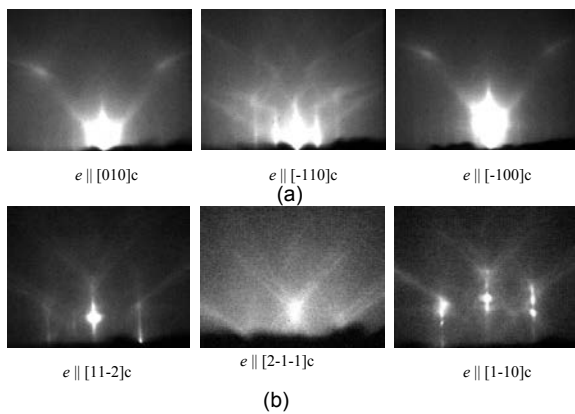


Fig.10 RHEED patterns of Si(111) during surface carbonization using a jet nozzle: (a) after 15 minutes, Si (111); (b) after 15 minutes. Kikuchi-lines are derived from the bulk crystal of Si substrate. Amorphous like diffuse patterns indicate formation of $Si_{1-x}C_x$

確認して、炭化過程へと進めた。 C_2H_2 を用いジェットノズルを用いて Si 表面炭化を MBE 成長室内で行う方式を考案した。炭化に必要な Si 原子は基板から供給される物では不十分なため Si Kセルからの Si 照射を利用して不足分を補いつ平坦な 3C-SiC を得るため、Si と C_2H_2 の交互照射を行った。¹⁵⁾ Fig.10 の RHEED パターンで示す様な 3C-SiC/Si(111)テンプレートが得られた。

4.6 3C-SiC/Si(001)テンプレート成長

Si (001) 表面に対しては Fig.11 に示すように単一原子ステップは Ga ダイマーがステップエッジに垂直で 1x2 表面再構成層を示す S_A ステップとステップエッジに平行で 2x1 表面再構成層を示す S_B ステップが存在し、この上に2元素化合物の GaN を成長させると反転位相(anti phase) の結晶が成長し、APD(Anti phase domain) と呼ばれる格子欠陥が形成される。それをのぞくため、[110]方向に4度近く傾斜させた基板を超高真空中での熱処理を行って、ステップバンチングにより Fig. 11(b)に示すようにエネルギーが最小になるように 2x1 再構成層のダブルステップ D_B を形成させ⁹⁾、単一ドメイン表面を形成

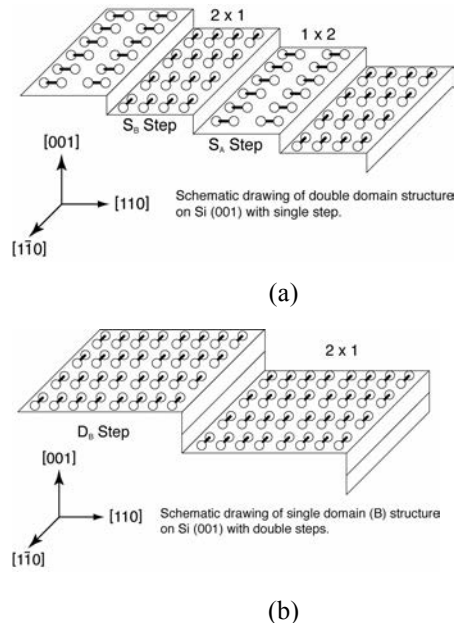


Fig. 11 (a) Schematic drawing of a vicinal face of Si(001) having double domains of 1x2: S_A and 2x1: S_B with monolayer steps; (b) a single domain surface of D_B steps of 2x2 structure.

することが条件とり，RHEED パターンで確認した． Fig. 12 は Si(001)面の炭化初期の RHEED パターン変化を観察したもので Si の格子定数は $a_{\text{Si}} = 0.54 \text{ nm}$ であり， その上の炭化膜 3C-SiC テンプレート 3C-SiC(001)/Si(001) の格子定数の測定

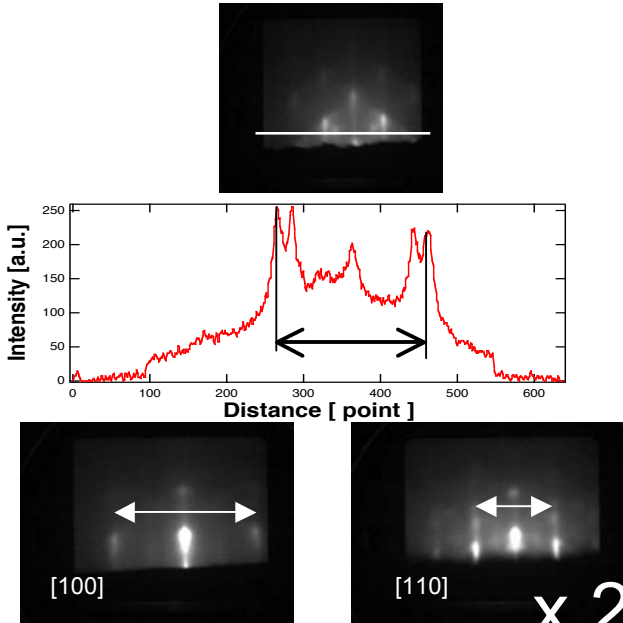


Fig. 12 Si substrate $a_{\text{Si}} = 0.54 \text{ nm}$ 3C-SiC(001)/Si(001) template $a_{3\text{C-SiC/Si}} = 0.45 \text{ nm}$ 3C-SiC(001) $a_{3\text{C-SiC}} = 0.43 \text{ nm}$: c-GaN (001) $a_{\text{c-GaN}} = 0.45 \text{ nm}$

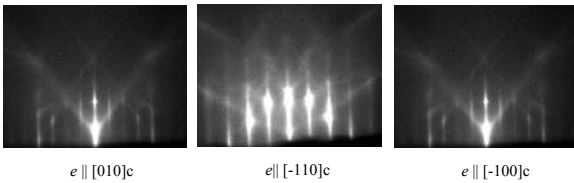


Fig. 13 RHEED patterns of Si (001) during surface carbonization using a jet nozzle after 1 minutes,

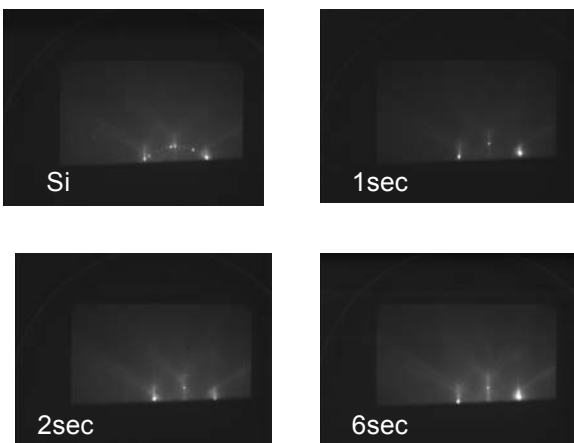


Fig. 14 RHEED patterns of Si (111) during deposition of Al. 6 sec corresponds 2.7ML of Al coverage.

結果は $a_{3\text{C-SiC/Si}} = 0.45 \text{ nm}$ であり， 3C-SiC(001) 自身の格子定数 $a_{3\text{C-SiC}} = 0.43 \text{ nm}$ より大きく立方晶 c-GaN (001) の格子定数 $a_{\text{c-GaN}} = 0.45 \text{ nm}$ に近いことが判明した． Fig. 13 は Si(001)面の炭化 1 分後の<100>方向からの RHEED パターを示している．

4.7 2H-AIN/Si(111)テンプレート成長

4.7.1 2H-AIN/ γ Al/Si(111)

2H-GaN 成長に用いる 2H-AIN テンプレート成長のために， Si(111)7x7 の表面再構成層のもとで Fig. 14 に示すように 6 秒約 2.7ML 程度の Al を照射し， γ Al を形成後 300 回の MC-MEE 法で基板を回転させ Fig.15 に示すように Al 照射 1 s 後に N 照射 1s の前に 1s(a) 後に 1 s (c) の 2 通りの条件で約 100nm の高温 AIN テンプレート層成長させた場合の FE-SEM 像を(b)と(d)に示す．

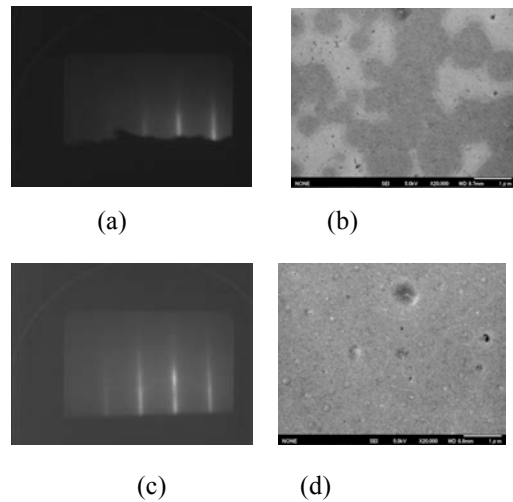


Fig. 15 After deposition of 2.7 ML Al, 300 times MC-MEE of (a) Al open for 1sec N open for 1 sec and intermission for 1sec and (c) Al open for 1sec intermission for 1sec and N open for 1 sec, (b) and (d) are corresponding EF-SEM images.

4.7.2 2H-AIN/ γ Al/ β Si₃N₄/Si(111)

Fig. 16 に示すように， Al 照射前に S i 表面を窒化し， β Si₃N₄8x8 構造を形成させ， その後 γ Al の場合と同様， 約 2ML 程度の Al を照射した RHEED 像は Fig.17 に示す．

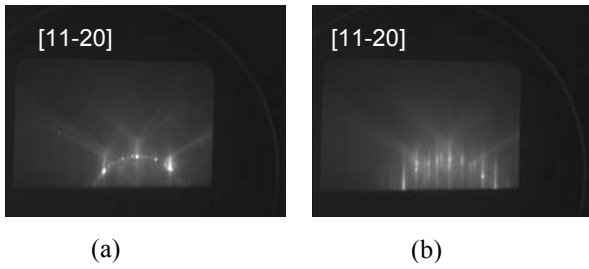


Fig. 16 RHEED patterns of (a) Si(111) 7x7 (b) β -Si₃N₄ 8x8

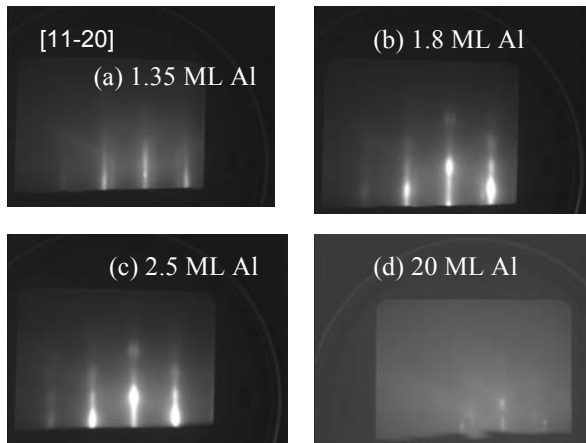


Fig. 17 RHEE patterns of Al deposition from 1.8 ML to 20 ML after nitride formation.

Fig. 18 に示すように出発の β -Si₃N₄ 上の Al 被覆の量に対応して、成長する AlN の極性が制御できていることが観察される。表面のモルフォロジーも異なっており、さらに詳細に実験を行っている。Fig. 19 に基板を回転させて成長させた 2 インチウエファーの中央部 (a) と端周辺部 (b) の部分の FESEM 像を示し、N と Al の比に因る表面の粗れが観察され、Al と窒素の比が表面のモルフォロジーに反映していることが分かった。スケールは 100nm を示す。

4.8 2H-GaN ヘテロエピタキシャル成長

2H-AlN テンプレート成長後、750°C の成長温度まで基板温度を上げて MC-MEE 法 1800 回で 2H-GaN を成長させた。RHEED パターンは Fig. 20 に示すようになり、成長膜の XRD による評価により 2H-GaN(0002) のピークのみが観察され、六方晶が Si(111) 基板上にコヒーレント成長を示している事が分かり、この半値幅は 16 arcmin が得

られている。

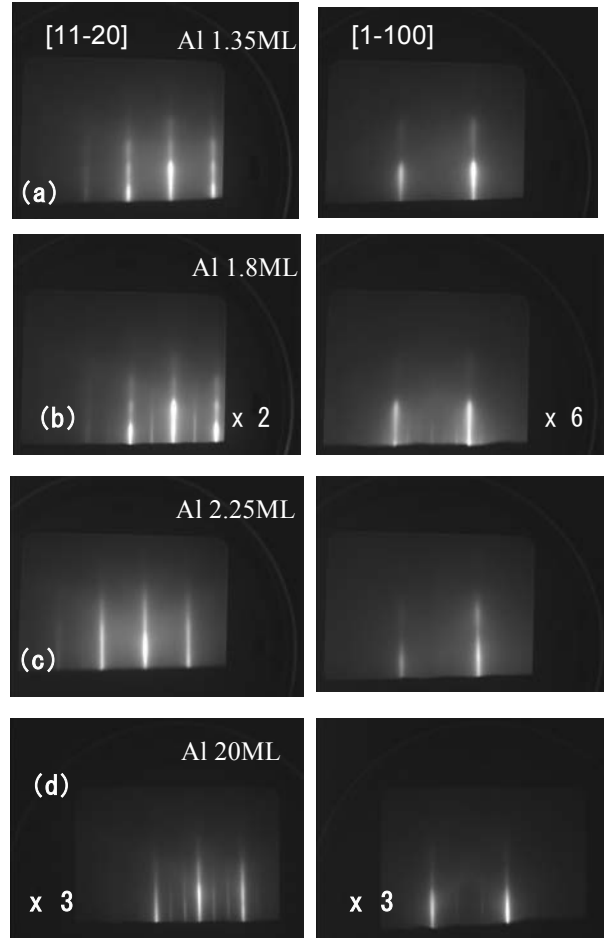


Fig. 18 RHEE patterns of AlN templates grown by 300 times MC-MEE after deposition from 1.8 ML to 20 ML Al as shown in Fig. 17. (c) shows Al polarity of 2x6 and (d) shows N polarity of 3x3 reconstruction.

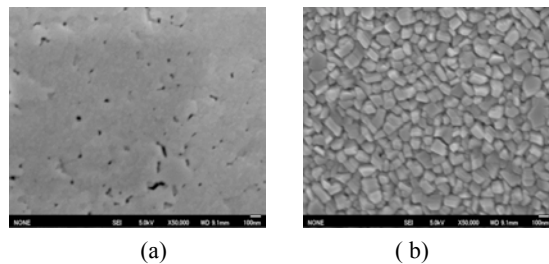


Fig. 19 FE-SEM photographs of 2H-AlN observed the center (a) and near edge (b) of a wafer. The scale shows 100 nm.

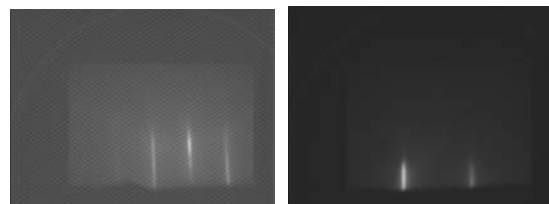


Fig. 20 RHEED patterns from 2H-GaN.

5. まとめ

目標とするナノヘテロ界面量子井戸構造の結晶成長を行うには至らず、原子状窒素生成に関した誘導結合放電の2つのモードの特徴を理解する研究が進んだ。窒素分子励起モードの弱い放電LBと窒素分子解離モードの明るい放電HBの切換により、励起分子照射と原子と励起原子及び励起分子照射の切換を可能にするMC-MEE結晶成長法を用いて2H-AINテンプレートとその上の2H-GaN成長を行った。活性窒素種として窒素原子と励起窒素原子が中心であり、励起分子の影響は少ないことが判明した。活性原子は放電管出口近くのシャッターの間隙間からも漏れることができることも判明した。2つの放電モードを安定して維持するための研究と、放電で発生する荷電粒子の効果について引き続き研究を行っていく予定である。

謝辞:本研究は文部科学省私立大学学術高度化推進事業「私立大学ハイテク・リサーチセンター整備事業」による「界面現象研究センター」プロジェクトにより行われた。電気電子材料研究室の学生諸氏、アリオス株式会社有屋田修博士、昭和電工株式会社宇田川隆、小田原道哉両博士の協力に対して心から感謝します。

参考文献

- 1) W. Hittorf, *Ann. Physik*, **21** 90-139 (1884).
- 2) D. Francis and A. von Engel, *Phil. Trans. Royal Soc. London, Ser A* **246** 143-160 (1953).
- 3) K. Chandrakar and A. von Engel, *Prod. Royal. Soc. London, Ser A* **284** 442-454 (1965).
- 4) K. Chandrakar, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **11** 1809-1813 (1978).
- 5) K. A. MacKinnon, *Phil. Mag. Ser. 7* **8** 605-616 (1929).
- 6) J. Amorim, H.S. Maciel, and J.P. Sudano, *J. Vac. Sci. Technol.* **B9**, 362-365 (1991).
- 7) U. Kortshagen, N.D. Gibson and J.E. Lawter, *J. Phys. D* **29** 1224-1236 (1996).
- 8) 片山, 鶴沢, 中村, 小牧, 尾鍋, 第66回応用物理学学会学術講演会講演予稿集 (2005年秋 徳島大学) 8a-X-6.
- 9) T. Ohachi, T. Kikuchi, A. Somintac, S. Yamaguchi, T. Yasuda, and M. Wada, *phys. stat. sol. (c)* **(3)** 1404-1407 (2006).
- 10) 西永頌, 電子情報通信学会誌 **72**, 997 (1989).
- 12] 日本結晶成長学会誌 **1** 3巻4号は格子定数差の大きい基板へのヘテロエピタキシ, HM²小特集号として8件の論文が掲載
- 13) 応用物理 **37**巻11号; 討論の広場 - Si 基板上へのシングルドメイン GaAs 膜の成長機構

- 14) S. Naritsuka, Y. Matsunaga, and T. Nishinaga, *J. Res. Inst. Meijyo Univ.* **2** 1-8 (2003).
- 15) 梅野正義, 神保孝志, 江川孝志, 応用物理 **72(3)** 273-283 (2003).
- 16) T. Lei, K.F. Ludwig, and T.D. Moustakas, *J. Appl. Phys.* **74** 4430-4437 (1993).
- 17) A. Yamada, T. Maruyama, and K. Akimoto, *J. Cryst. Growth*, **189/190** 401-405 (1998).
- 18) Y. Hiroshima and M. Tamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37** L630 - L632 (1998).
- 19) D. Wang, Y. Hiroshima, M. Tamura, M. Ichikawa, and S. Yoshida, *Appl. Phys. Lett.* **76** 1683-1685 (2000).
- 20) D. Wang, Y. Hiroshima, M. Tamura, M. Ichikawa, and S. Yoshida, *J. Cryst. Growth*, **220** 204-208 (2000).
- 21) I. Yodo, H. Ando, D. Nosei, Y. Harada, and M. Tamura, *J. Cryst. Growth*, **239** 1104-1109 (2002).
- 22) T. Kikuchi, K. Miyauchi, M. Wada, and T. Ohachi, *J. Cryst. Growth*, **275/1-2** e1215- e1221 (2005).
- 23) T. Ohachi, T. Kikuchi, K. Miyauchi, Y. Ito, R. Takagi, M. Hogiri, K. Fujita, O. Ariyada, M. Wada, *J. Cryst. Growth*, **275/1-2** e1197- e1202 (2005).
- 24) T. Lei, M. Fanciulli, R. J. Molnar, T.D. Moustakas, R.J. Graham, and J. Scanlon, *Appl. Phys. Lett.* **59** 944 (1991).
- 25) T. Lei, T.D. Moustakas, R.J. Graham, Y. He, and S.J. Berkowitz, *J. Appl. Phys.* **71** 4933 (1992).
- 26) K. H. Ploog, O. Brandt, H. Yang, and A. Trampert, *Thin Solid Films* **306** 231 (1997).
- 27) K. H. Ploog, O. Brandt, H. Yang, B. Yang, and A. Trampert, *J. Vac. Sci. Tech.* **B16** 2229 (1998).
- 28) T. Yodo, H. Ando, H. Tsuchiya, D. Nosei, M. Shimeno, and Y. Harada, *J. Crystal Growth* **227/228** 431 (2001).
- 29) M. Tamura, M. Lopez and T. Yodo, *Superficies y Vacio* **13** 80 (2001).
- 30) T. Yodo, H. Ando, D. Nosei, Y. Harada, and M. Tamura, *J. Crystal Growth* **237/239** 1104 (2002).
- 31) S-E. Park, S-M, Lim, C-R. Lee, C S. Kim and O. Byung-sung, *J. Crystal Growth* **249** 487 (2003).
- 32) T. Ohachi, T. Kikuchi, Y. Ito, R. Takagi, M. Hogiri, K. Miyauchi, M. Wada Y. Ohnishi, and K. Fijita, *phys. stat. sol. (c)* **0(7)** 2589(2003).
- 33) L. Wang, X Liu, Y. Zan, J. Wang, D. Wang, D. Lu, and Z. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **72** 109 (1998).
- 34) R. Armitage, Q. Yang, H. Feick, J. Gebauer, E. R. Webber, S. Shinkai and K. Sasaki, *Appl. Phys. Lett.* **81** 1450 (2002).
- 35) Z. Yang, F. Guarin, I. W. Tao, W. I. Wang and S. S. Iyer, *J. Vac. Sci. Tech.* **B13** 789 (1995).
- 36) H. Okumura, S. Misawa and S. Yoshida, *Appl. Phys. Lett.* **59** 1058 (1991).
- 37) H. Okumura, K. Ohta, G. Feuillet, K. Balkrishnan, S. Chichibu, H. Hamaguchi, P. Hacker and S. Yoshida, *J. Crystal Growth* **178** 113 (1997).
- 38) H. Okumura, H. Hamaguchi, T. Koizumi, K. Balakrishnan, Y. Ishida, M. Arita, S. Chichibu, H. Nakanishi, T. Nagatomo, and S. Yoshida, *J. Crystal Growth* **189/190** 390 (1998).
- 39) O. Brandt, in Ed. B. Gill, in "Group III Nitride Semiconductor Compounds - Physics and Applications-", Clarendon Press, Oxford, pp. 417-459 (1998).
- 40) H. Yang, O. Brandt, M. Wassermeier, J. Behrend, H.P. Schonher, and K.H. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **68** 244 (1996).
- 41) R. Kimura, et. al., *J. Crystal Growth* **189/190** 406 (1998).
- 42) T. Kurobe, Y. Sekiguchi, J. Suda, M. Yoshimoto, and H. Matsunami, *Appl. Phys. Lett.* **73** 2305 (1998).
- 43) J. Suda, T. Kuroda, and H. Matsunami, *J. Crystal Growth* **201-202** 437 (1999).
- 44) T. Hatayama, Y. Tarui, T. Yoshinobu, T. Fuyuki, and H. Matsunami, *J. Crystal Growth* **136** 333 (1994).
- 45) H. Liu, A.C. Frenkel, J. G. Kim, and R. M. Park, *J. Appl. Phys.* **74** 6124 (1993).