

Strain-Controlled AlN Growth on SiC Substrates

(SiC 基板上への歪み制御 AlN 層の成長)

窒化ガリウム (GaN、 $E_g=3.4$ eV) 系半導体は、高効率固体照明である白色 (青色、緑色) 発光ダイオード (LED)、移動体通信基地局で用いられる高出力高電子移動度トランジスタ (HEMT) の材料であり、現代社会を支えている。次なる社会の要請として、殺菌・浄水や医療・化学分析機器等様々な応用が期待されている深紫外 LED や、高耐圧かつ高温動作可能な HEMT が求められている。これを実現するにあたり、窒化アルミニウム (AlN、 6.0 eV) および AlN に数%~40% の GaN を固溶させた高 Al 組成 AlGa_N 混晶を用いた AlN 系デバイスに注目が集まっている。しかしながら、様々な研究機関が高 Al 組成 AlGa_N を用いたデバイスの報告をしているものの、その材料物性から期待される性能は得られていない。要因の一つとして、成長した高 Al 組成 AlGa_N 層中に多数の結晶欠陥が存在することが挙げられ、結晶の高品質化が重要である。

高 Al 組成 AlGa_N の成長にあたり、格子整合する基板が存在しないため、ヘテロエピタキシャル成長する必要がある。使用できる基板のうち、AlN 基板が最も格子不整合が小さくなると予想されるが、基板作製技術が未成熟であり、非常に高価かつ小面積の基板しか入手することができない。そこで本研究では SiC 基板に着目する。SiC 基板は AlN との格子不整合が約 0.9% と小さく、大口径の高品質ウェハ (6 inch) を比較的安価で入手することが可能である。パワーデバイスへの応用研究が盛んであることから SiC 基板作製技術のさらなる進展も見込める。これまでの研究において、成長初期を工夫することで、6H-SiC(0001)基板上に低貫通転位密度の AlN 層が 700 nm 厚まで基板と格子整合して成長 (コヒーレント成長) できることが示されている。しかしながら、この AlN 層成長の再現性が悪く、さらなる成長条件の検討が必要である。また、SiC にコヒーレント成長した AlN 層上に高 Al 組成 AlGa_N 層を成長すると、バルク AlN 上の成長と比べて格子不整合が大きくなり、厚膜成長が困難となる。高品質高 Al 組成 AlGa_N 層の成長には、より AlGa_N 層の格子定数に近い格子定数に制御された AlN 層 (歪み制御 AlN 層) 上に成長するのが理想的である。

本論文は、高品質高 Al 組成 AlGa_N 成長実現に向け、AlN 単層成長の基礎検討、物性評価および歪み制御 AlN 層成長に関する研究についてまとめたものである。本論文の構成の概略を以下に示す。

第 1 章では、高 Al 組成 AlGa_N を用いた発光および電子デバイスの現状から、結晶の高品質化の必要性について述べる。高品質高 Al 組成 AlGa_N 成長に歪み制御 AlN 層が有用であることを述べた上で、実現上の問題点を挙げ、本研究の位置づけを明確にし、研究目的を述べた。

第 2 章では、本研究において扱う分子線エピタキシー (MBE) 成長装置の概要ならびに成長条件の検討について述べる。MBE による AlN 成長では Al/N 供給比の違いにより結晶性が大きく変化することが知られている。AlN 単層の高品質成長を実現する方法として、窒素プラズマ点灯直後に成長を開始する手法を提案しているが、プラズマ点灯直後数分間はプラズマの状態が刻々と変化しているため、Al/N 比もそれに依りて変化していることが予想される。点灯直後の過渡特性をプラズマ発光分光測定により定量的に評価し、成長初期における実効的な Al/N 比の検討と得られた AlN 層の結晶性への影響を調べた。プラズマ発光ピーク強度の過渡特性から、点灯直後には

Al/N 比が定常状態に比べ4割程度さらに Al-rich となっていることがわかった。定常状態に近づくまでプラズマ点灯から若干の待機時間（60秒）を設けて成長を開始すると、高品質 AlN 層が再現性良く成長できることを示した。

第3章では、AlN について歪み量に対する物性値の変化について述べる。具体的には、SiC 基板上にコヒーレント成長した AlN 層の光学特性と格子振動数について述べる。まず、高分解能 X 線回折により格子定数の測定を行い、正確な歪み量を得た。その後、低温フォトルミネセンス (PL) 測定と反射測定を行い、価電子帯頂上付近に存在する3つのバンド (A、B、C バンド) からの遷移を偏光特性から同定し、反射測定に関しては理論式によるフィッティングを行うことで全ての遷移エネルギーを求めた。先述の歪み量と近年報告された伝導帯および価電子帯変形ポテンシャルの値から計算した遷移エネルギー変化量が、今回得られた結果とわずかに異なることが判明し、AlN の弾性スティフネス定数の報告値が不正確であることが一因であると考察した。さらに、格子振動数評価のためにラマン散乱測定を行い、c 軸入射後方散乱の光学配置でラマン活性なモード全て (E_2 (low)、 E_2 (high)、 A_1 (LO)) に対して格子振動数を得た。格子振動数の変化から歪み量を導出することがしばしば行われるが、明瞭なピークを得ることができる E_2 (high) モードが最もよく用いられる。フォノン変形ポテンシャルの報告値を近年報告された弾性スティフネス定数を用いて補正することで、 E_2 (high) モードに関して歪み量と格子振動数の変化量の正確な関係を示せた。

第4章では、極薄 GaN 層を利用した歪み制御 AlN 層の成長について述べる。高品質 AlN 層成長には Al/N 比が Al-rich の条件で成長する必要があるが、このとき、過剰な Al は表面に残留する。高品質 AlN 層の上に GaN 層を成長する際、表面に残留した Al が GaN の成長を阻害することがわかっている。極薄 GaN 層を利用した歪み緩和層成長のためには、AlN/GaN 多層構造を制御性良く得ることが不可欠である。そこで、AlN 層成長時の Al/N 比の違い (Al-rich 度の違い) に着目し、AlN 層上の極薄 GaN 層の成長の可否を検討した。基板回転を行わないことで、Al/N 比の面内分布を発生させ、サンプル表面で Al ドロップレット密度が高い領域 (Al-rich) から低い領域 (slightly-Al-rich) へと連続的に変化しているサンプルを得た。カソードルミネセンス測定を行うと、slightly-Al-rich 領域からは、極薄 GaN 層による量子井戸に対応すると考えられる二つのピークが確認され slightly-Al-rich 条件であれば極薄 GaN 層の成長ができることを示した。同条件で極薄 GaN 層の膜厚を変化させた試料を成長すると、2 BL のものはコヒーレント成長できているのに対し、3 BL のものは格子緩和していた。このことから、SiC 基板上 GaN 層の臨界膜厚は 2 BL 程度であり、3-4 BL の GaN 層を成長すると格子緩和が始まると考えられる。

極薄 GaN 層の格子定数は、その緩和度に応じて SiC の格子定数 (コヒーレント成長) からバルク GaN (完全緩和) の格子定数まで変化させることができる。そこで、極薄 GaN 層を中間層として挿入し、緩和度 (膜厚) を変化させることで、その上に成長した AlN 層の歪み制御を行った。成長層に対してラマン散乱測定を行うと、Al/N 比が N-rich に近づくにつれ、上部に成長した緩和 AlN 層のピーク位置が引張歪み AlN の値に変化していく (極薄 GaN 層の膜厚が増加していく) ことがわかった。第3章で議論したフォノン変形ポテンシャルを用いて緩和 AlN 層の歪みを求めると、GaN 層の緩和度に応じて面内歪みが $-0.53 \sim +0.07\%$ の広い範囲で制御できていることがわかった。

第5章では、SiC 基板ステップ端に存在する AlN 成長層中のミスフィット転位を利用した歪み制御 AlN 層の成長について述べる。格子不整合系ヘテロエピタキシャル成長においてミスフィット転位が導入され格子緩和している際、長く伸びたミスフィット転位が周期性をもって界面に局在、配列している場合、X 線回折において横方向サテライトピークが観測され、具体的には AlAs/GaAs や PbSe/PbTe 等で報告がある。本研究では SiC と AlN のポリタイプ不整合に起因する面欠陥発生を抑制するために、SiC 基板にガスエッチングを施し、ステップ高さ制御を行っているが、その上に成長した AlN 層には SiC 基板のステップ端に沿って長く伸びた U 字型のハーフループとして刃状転位が存在している。この U 字ハーフループの底辺は AlN/SiC 界面に存在するため、局在したミスフィット転位とみなせる可能性があり、その場合、他材料系で見られた横方向サテライトピークが観測されるのではないかと考え、測定を行った。ステップ高さ制御 SiC 基板上に AlN 層を成長したサンプルに対して、AlN(0002)対称面近傍の逆格子空間マッピングを行うと、 q_x 方向（横方向、面内方向）にサテライトピークが±4 次まで観測された。ピーク間隔から求めた実空間での周期は $1.0 \mu\text{m}$ となり、原子間力顕微鏡で求めた SiC 基板表面のステップ間隔と良く一致した。このことから、 q_x 方向に観測されたサテライトピークは SiC 基板のステップ端に沿って存在するハーフループのミスフィット成分を反映する横方向サテライトピークであると結論づけた。

横方向サテライトピークの観測は、基板のステップによりミスフィット転位の導入を制御、かつ界面に局在させる可能性を示すものである。そこで、オフ角を積極的に導入することで、より歪みを緩和した AlN 層を得ることを目指した。オフ角が 0.08° および 0.25° の SiC 基板上に AlN 層を成長した。AlN(0002)対称面についてロックングカーブ測定 (q_x 方向のスキャン) を行うと、どちらも横方向サテライトピークが観測されたが、ピーク間隔が異なることがわかった。このことから、基板のステップ間隔を変化させることにより、ミスフィット転位密度が異なる AlN 層が成長できると言える。成長した AlN 層の歪みを求めると、オフ角が 0.25° の AlN 層は 0.08° の AlN 層より歪みが小さくなっていることがわかった。現状歪みの緩和度はわずかであるが、さらにオフ角を大きくすることでより緩和度の大きい AlN 層が成長できると考えられ、現在取り組んでいる。

第6章は結論であり、本研究において得られた AlN 単層の高品質成長実現および物性評価、歪み制御 AlN 層成長に関する知見をまとめた。また、今後の研究課題を提示し、考える研究指針を提案した。