

## 分子線エピタキシ法による 6H-SiC(0001)基板上への AlN/GaN 短周期超格子のコヒーレント成長

菊地 諒介† 奥村 宏典† 木本 恒暢† 須田 淳†

†京都大学工学研究科電子工学専攻 〒615-8510 京都府京都市西京区京都大学桂1番地

E-mail: kikuchi@semicon.kuee.kyoto-u.ac.jp

あらまし 本研究室ではこれまで、SiC 基板のステップ高さ制御、AlN 層成長直前の Ga 先行照射を行い、窒素プラズマ点灯と同時に成長を開始することで、成長開始直後からの AlN の layer-by-layer 成長と貫通転位密度の低減を実現した。そこで、本研究ではこの高品質 AlN 成長プロセスを応用して、SiC 基板上に AlN/GaN 短周期超格子(SPSL)構造の成長を試みた。SPSL 層中の AlN 層と GaN 層の膜厚はそれぞれ 12 bilayer (BL)、2 BL とした。AlN/GaN SPSL 層の XRC 半値幅は、(0002)面が 34.2 秒、(10-12)面が 37.9 秒と非常に優れた値であった。逆格子マッピング測定を行ったところ、AlN/GaN SPSL 層が SiC 基板に対してコヒーレントに成長していることが確認された。格子緩和していないために高品質の結晶が得られたと考えている。

キーワード AlN, GaN, 短周期超格子, 分子線エピタキシ法, コヒーレント成長

## AlN/GaN Short-Period Superlattice Coherently Grown on 6H-SiC (0001) Substrates by Molecular-Beam Epitaxy

Ryosuke KIKUCHI† Hironori OKUMURA† Tsunenobu KIMOTO† and Jun SUDA†

† Department of Electronic Science and Engineering, Kyoto University

Kyoto University Katsura, Nisikyo-ku, Kyoto, 615-8510 Japan

E-mail: kikuchi@semicon.kuee.kyoto-u.ac.jp

**Abstract** Recently, we have successfully reduced the threading dislocation density in AlN layer on SiC substrates to  $10^8$   $\text{cm}^{-2}$  by controlling the step heights of the SiC substrates, Ga pre-deposition and avoiding unintentional active-nitrogen exposure prior to AlN growth. In this study, we report the growth of AlN/GaN short-period superlattice (SPSL) on SiC by applying the high-quality AlN growth process. We demonstrate coherent growth of AlN/GaN SPSL on SiC substrates. Thicknesses of AlN and GaN in the SPSL were 12 bilayer (BL) and 2 BL, respectively. The FWHM values of main peak for the AlN/GaN SPSL were 34.2 arcsec for the (0002)  $\omega$ -scan and 37.9 arcsec for the (10-12)  $\omega$ -scan. A RSM near (1 1 -2 12) reflection of 6H-SiC clearly indicates that AlN/GaN SPSL was coherently grown on 6H-SiC. The very small FWHM values reflect coherent growth of AlN/GaN SPSL on 6H-SiC substrate.

**Keyword** AlN, GaN, Short-period superlattice, Molecular-beam epitaxy, Coherent growth

### 1. はじめに

窒化アルミニウム (AlN) および窒化ガリウム (GaN) は直接遷移型のバンド構造を有する半導体材料である。AlN と GaN はそれぞれ 6.2 eV、3.4 eV のバンドギャップを有しており、そのワイドバンドギャップ半導体の特性を活かしたデバイスに向けた研究が活発である。中でも AlN/GaN 短周期超格子 (SPSL) 構造は、深紫外 LED や大きな伝導帯のオフセット (2 eV)<sup>[1, 2]</sup> によるサブバンド遷移<sup>[3, 4]</sup> を利用したデバイスへの応用が期待されている。

このような AlN 系デバイスに適した有力な成長用基

板のひとつとして、AlN との格子不整が小さく (1%)、高品質かつ大面積のウエハが製品化されている炭化ケイ素 (SiC) 基板が挙げられる。しかし、SiC は 4H および 6H 構造、III 族窒化物はウルツ鉱構造 (2H) が安定であるため、積層不整合 (SMB) の発生が懸念される<sup>[5, 6]</sup>。そこで本研究室では、6H-SiC 基板表面のステップ高さを高温水素ガスエッチングにより、3 bilayer (BL) または 6 BL に制御することで SiC 基板上 AlN 層の SMB の抑制に成功した<sup>[7]</sup>。一方で、SiC 基板上の AlN 成長では 3 次元成長が生じやすく、ステップ高さ制御を施した SiC 基板上の AlN 層には  $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  の貫通転位が

存在している。我々は AlN 初期成長モードの制御に着目し、AlN 成長直前の Ga 先行照射<sup>[8]</sup>と窒素プラズマ点灯と同時に成長を開始することで、成長初期からの layer-by-layer 成長の実現と SiC 基板上 AlN 層の貫通転位密度を  $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$  まで低減することに成功した<sup>[9]</sup>。さらにこの高品質 AlN 層(300 nm)は SiC 基板に対してコヒーレントに成長している。そこで本研究では高品質 AlN 成長プロセスを応用して SiC 基板上に AlN/GaN SPSL の成長を試みたので報告する。

## 2. 実験方法

AlN および GaN の成長は、Al、Ga および rf プラズマ励起活性化窒素を用いた分子線エピタキシ(rf-MBE)法により行った。基板には高温水素ガスエッチングにより基板表面のステップ高さを 3 BL に制御した 6H-SiC(0001)<sub>Si</sub> を用いた。ex-situ での化学洗浄の後、図 1 に示すように成長直前の in-situ における Ga 蒸着脱離処理により残留酸素を取り除いた<sup>[10]</sup>。成長時の基板温度は 650°C、窒素プラズマセルの高周波電力は 300 W、窒素供給量は 0.75 sccm で一定とした。本研究で成長した試料の模式図を図 2 に示す。試料 A は Ga 先行照射を行わず、窒素プラズマが安定するまで 10 分待機した後 SiC 基板上に直接 AlN/GaN SPSL 層を 40 周期成長した。試料 B、C、D は成長前に Ga を 7 秒先行照射した後、窒素プラズマ点灯と同時にやや Al 過剰条件で高品質 AlN 層を 5 nm 成長した。その後高品質 AlN 層上に AlN/GaN SPSL 層を 40 周期成長した。各試料の成長条件を表 1 に示す。高品質 AlN 成長プロセスの影響を比較するために、試料 A、B における SPSL 層中の AlN 層および GaN 層の膜厚は、それぞれ 12 BL、2 BL で統一した。さらに、試料 A、B より大きな平均 GaN モル分率を持つ SPSL 層として、SPSL 層中の GaN 層の膜厚を 3 BL に増加させた試料 C と、SPSL 層中の AlN 層の膜厚を 10 BL に減らした試料 D を作製した。また、各試料における SPSL 層成長時の III/V 比は、AlN がストイキオメトリ条件、GaN がやや Ga 過剰条件である。

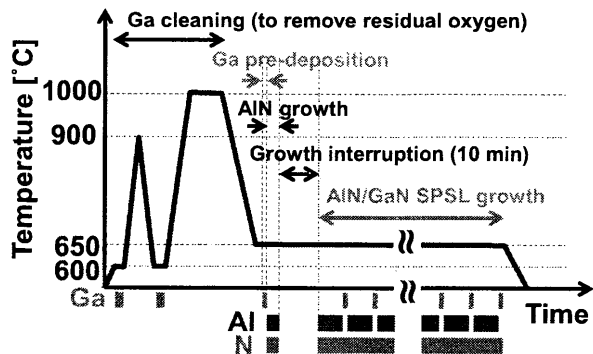


図 1 成長シーケンス

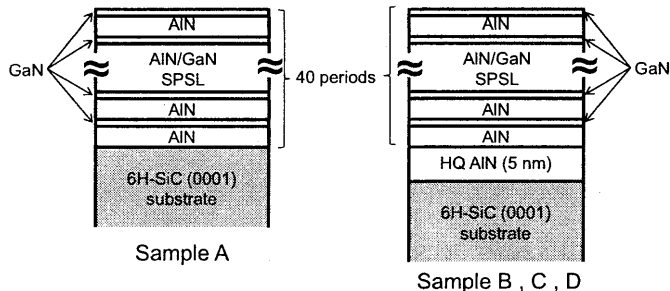


図 2 成長した試料の模式図

表 1 試料の SPSL 成長条件

Sample	HQ AlN layer	Thickness in SPSL		Average GaN mole fraction
		AlN [BL]	GaN [BL]	
A	No	12	2	0.14
B	Yes	12	2	0.14
C	Yes	12	3	0.20
D	Yes	10	2	0.17

## 3. 実験結果・考察

試料 A、B、C、D の  $2\theta$ - $\omega$  スキャン測定結果を図 3 に示す。すべての試料で AlN/GaN SPSL 層に起因する (0002) 面のメインピークと  $\pm 3$  次までのサテライトピークが明瞭に観察された。また、表 2 に示すようにサテライトピークから求めた SPSL 周期長は成長条件より予想される周期長と良く一致している。

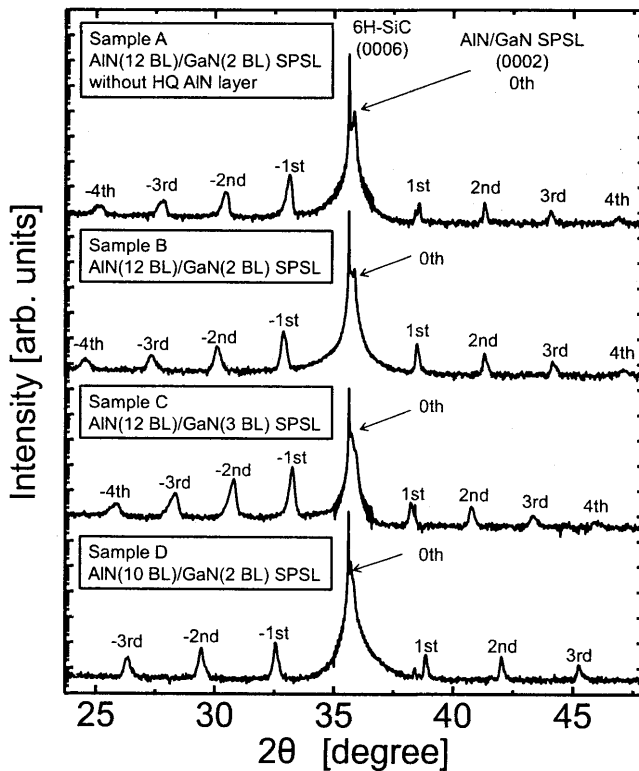


図 3 6H-SiC 基板上 AlN/GaN SPSL 層の  $2\theta$ - $\omega$  スキャン測定結果

高品質 AlN 層を用いずに一般的な方法で AlN/GaN SPSL 層を成長した試料 A の SPSL 層の XRC 半値幅は、表 2 に示すように(0002)対称面では 34.2 秒と小さい値であるものの、(10-12)非対称面では 1680 秒と非常に大きな値になっていることがわかった。ここで、試料 A の 6H-SiC(1 1 -2 12)面近傍の逆格子空間マッピング(RSM)を図 4 に示す。SPSL 層(11-24)面のピークは広がりを持っており、緩和した  $\text{Al}_{0.86}\text{Ga}_{0.14}\text{N}$  の(11-24)面のピーク位置の方向に伸びていることが分かる。したがって試料 A の SPSL 層は緩和しており、SPSL 層の(11-24)面の非常に大きな XRC 半値幅は SPSL 層の緩和を反映していると考えられる。

一方、高品質 AlN 層上に AlN/GaN SPSL 層を成長した試料 B の場合、表 2 に示すように SPSL 層の XRC 半値幅は(0002)対称面が 35.0 秒、(10-12)非対称面が 37.9 秒と試料 A と比較して非常に小さな値が得られた。これは低転位密度の AlN/GaN SPSL が得られたことを示している。試料 B の 6H-SiC(1 1 -2 12)面近傍の RSM を図 5 に示す。このように SPSL 層(11-24)面の  $q_x$  値と 6H-SiC(1 1 -2 12)面の  $q_x$  値はほぼ一致しており、SPSL 層が 6H-SiC 基板にコヒーレントに成長していることが分かる。試料 B の SPSL 層は格子緩和していないため、非常に優れた XRC 半値幅の SPSL 層が得られたと考えられる。

試料 A と B の実験結果より、6H-SiC 基板上的 AlN/GaN SPSL 層がコヒーレントに成長するか否かは SPSL 層 1 層目の AlN 層の貫通転位密度に関連付けて考えることができる。第 1 節で述べたように、高品質 AlN 層を用いずに一般的な方法で SiC 基板上に SPSL 層を直接成長した試料 A と、高品質 AlN 層上に SPSL 層を成長した試料 B の SPSL 層 1 層目の AlN 層の貫通転位密度は、それぞれ  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$  台、 $10^8 \text{ cm}^{-2}$  台であると推測される。したがって、SPSL 層 1 層目の AlN 層の貫通転位密度が小さい場合に SPSL 層は SiC 基板上にコヒーレントに成長し、高品質の結晶が得られると考えられる。

表 2 各試料の  $2\theta$ - $\omega$  スキャンのサテライトピークより求めた SPSL 周期と SPSL 層の XRC 半値幅

Sample	SL period (Designed) [nm]	XRC FWHM [arcsec]	
		(0002)	(10-12)
A	3.42 (3.51)	34.2	1680
B	3.30 (3.51)	35.0	37.9
C	3.71 (3.77)	184	1390
D	2.94 (3.01)	24.1	18.7

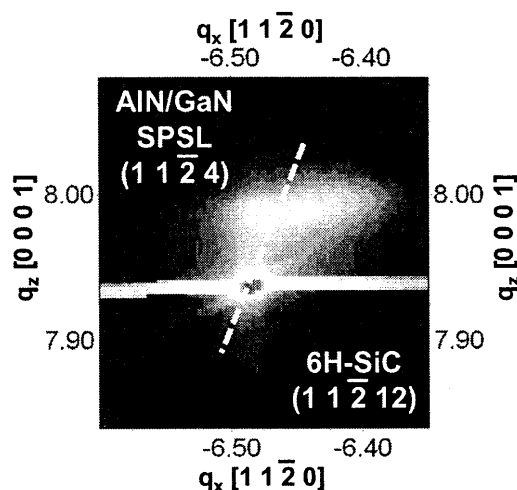


図 4 試料 A の 6H-SiC(1 1 -2 12)面近傍の RSM

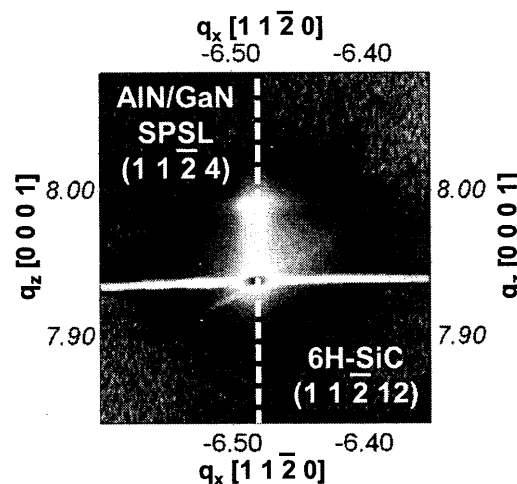


図 5 試料 B の 6H-SiC(1 1 -2 12)面近傍の RSM

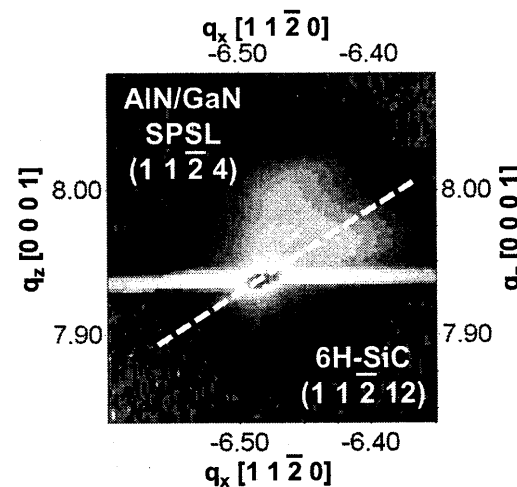


図 6 試料 C の 6H-SiC(1 1 -2 12)面近傍の RSM

これまで、AlN/GaN SPSL 層中の AlN 層と GaN 層の膜厚がそれぞれ 12 BL、2 BL の場合について述べてきた。ここで、SPSL 層中の平均 GaN モル分率を増加させることを考える。まず、SPSL 層中の GaN 層の膜厚を増加させることにより平均 GaN モル分率を増加させる場合について述べる。表 2 に示すように、高品質 AlN 層上に試料 B より厚い GaN 層(3 BL)を有する試料 C の SPSL 層の XRC 半値幅は(0002)対称面が 184 秒、(10-12)非対称面が 1390 秒と試料 B と比較して両者ともに大きくなっている。試料 C の 6H-SiC(1 1 -2 12)面近傍の RSM を図 6 に示す。試料 A と同様に SPSL 層(11-24)面のピークは広がりを持っており、緩和した  $\text{Al}_{0.80}\text{Ga}_{0.20}\text{N}$  の(11-24)面のピーク位置の方向に伸びていることが分かる。このことから、試料 C の SPSL 層は緩和していると考えられる。SPSL 層が格子緩和したことにより、試料 C の SPSL 層の XRC 半値幅は非常に大きな値になったと推察される。したがって、高品質 AlN 層上に SPSL 層を成長したとしても GaN 層が 3 BL と厚くすると格子緩和を起こすことが明らかとなった。SiC に対して AlN の格子不整合は 1.0%であるが、GaN の格子不整合は 3.5%と大きいため、3 BL の GaN 層は厚すぎて緩和してしまうと考えられる。

試料 C とは反対に SPSL 層中の AlN 層の膜厚を 10 BL に減らすことで SPSL 層の平均 GaN モル分率を増加させる場合を考える。表 2 に示すように試料 D の SPSL 層の XRC 半値幅は(0002)対称面が 24.1 秒、(10-12)非対称面が 18.7 秒と非常に優れた値が得られた。試料 D の 6H-SiC(1 1 -2 12)面近傍の RSM を図 7 に示す。このように、試料 D の SPSL 層(11-24)面の  $q_x$  値と 6H-SiC(1 1 -2 12)面の  $q_x$  値はほぼ一致しており、試料 D の SPSL 層は SiC 基板にコヒーレントに成長していることが分かる。したがって、AlN/GaN SPSL 層の平均 GaN モル分率を増加させる場合、SPSL 層中の AlN 層膜厚を減らすことが効果的であることがわかった。

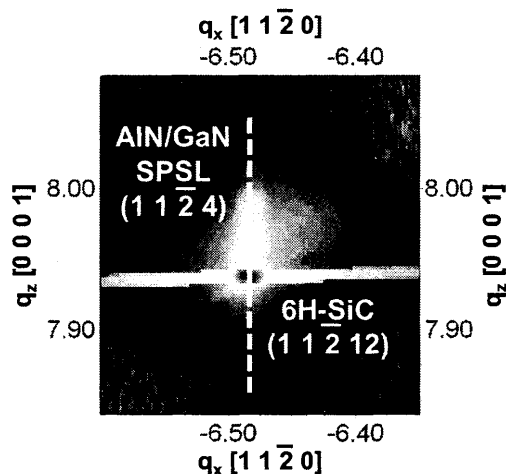


図 7 試料 D の 6H-SiC(1 1 -2 12)面近傍の RSM

#### 4. まとめ

6H-SiC 基板の上に薄い高品質 AlN 層(5 nm)成長した後 AlN/GaN SPSL 層を成長することで、SPSL 層が SiC 基板にコヒーレントに成長することを明らかにした。高品質 AlN 層を用いずに SiC 基板の上に直接 SPSL 層を成長すると SPSL 層は格子緩和を起こすことから、SPSL 層が SiC 基板にコヒーレントに成長するためには SPSL 層 1 層目の貫通転位密度が小さいことが重要であると考えられる。さらに、SPSL 層の平均 GaN モル分率を増やす場合、SPSL 層中の GaN 層の膜厚を 1 BL 増やして 3 BL にすることで SPSL 層が緩和することがわかった。反対に SPSL 層中の AlN 層を 2 BL 減らして 10 BL にした場合の SPSL 層は緩和しなかった。したがって、SPSL 層中の GaN モル分率をさらに増やすためには、SPSL 層中の AlN 層の膜厚を減らすことが効果的であると考えられる。

#### 文 献

- [1] G. Martin, A. Botchkarev, A. Rockett, and H. Morkoc: *Appl. Phys. Lett.* **68** (1996) 2541.
- [2] M. Tchernycheva, L. Nevou, L. Doyennette, F. H. Julien, E. Warde, F. Guillot, E. Monroy, E. Bellet-Amalric, T. Remmele, and M. Albrecht: *Phys. Rev. B* **73** (2006) 125347.
- [3] N. Iizuka, K. Kaneko, and N. Suzuki: *Appl. Phys. Lett.* **81** (2002) 1803.
- [4] K. Kishino, A. Kikuchi, H. Kanazawa, and T. Tachibana: *Appl. Phys. Lett.* **81** (2002) 1234.
- [5] B. N. Sverdlov, G. A. Martin, H. Morkoc, and D. J. Smith: *Appl. Phys. Lett.* **67** (1995) 2063.
- [6] H. Okumura, M. Horita, T. Kimoto, and J. Suda: *Phys. Status Solidi A* **206** (2009) 1187.
- [7] H. Okumura, M. Horita, J. Suda, and T. Kimoto: *Appl. Surf. Sci.* **254** (2008) 7858.
- [8] H. Okumura, T. Kimoto, and J. Suda: *Phys. Status Solidi C* **7** (2010) 2094.
- [9] H. Okumura, T. Kimoto, and J. Suda: *Appl. Phys. Express* **4** (2011) 025502.
- [10] N. Onojima, J. Suda, and H. Matsunami: *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003) L445.