

窒化物半導体の結晶成長過程に関する運動論的・熱力学的考察

稲富, 悠也

<https://doi.org/10.15017/4060173>

出版情報 : Kyushu University, 2019, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :

氏 名 : 稲富 悠也

論 文 名 : 窒化物半導体の結晶成長過程に関する運動論的・熱力学的考察

区 分 : 甲

論 文 内 容 の 要 旨

窒化物半導体（窒化ガリウム：GaN、窒化アルミニウム：AlN、窒化インジウム：InN）は発光デバイス、電子デバイス用の材料として優れた物性を有している。窒化物半導体を用いた青色発光デバイスや横型高電子移動度トランジスタ（High Electron Mobility Transistor：HEMT）は既に実用化されており、現在では深紫外発光デバイスや縦型パワーデバイスの実用化に向けた研究が精力的に行われている。窒化物半導体デバイスの開発をさらに進めるうえで、性能と信頼性面から高品質な結晶は必須となる。

結晶成長技術を向上させるため、結晶成長機構を理論的に理解することは必要不可欠である。結晶成長機構の理論研究では「結晶や表面の自由エネルギーを定量的に評価する」熱力学的なアプローチと「単純化したモデルによって非平衡現象を記述する」運動論的なアプローチが存在する。熱力学的アプローチでは静的な問題しか扱えない一方、運動論的なアプローチでは定量的な評価が難しく実験との直接比較が困難であるという問題がある。そのため結晶成長機構の包括的な理解のためには両方の視点からの議論が必要である。本研究では運動論的、熱力学的な視点から窒化物半導体結晶成長における諸問題を理論アプローチによって解決する。

本論文は全4章から構成される。以下に各章ごとの概要をまとめる。

第1章 序論

窒化物半導体のデバイス応用の現状と課題、代表的な窒化物半導体の成長方法についてまとめた。

第2章 GaN・AlN 極性面における表面吸着原子の安定性解析

GaN、AlN は光・電子デバイスに用いられる機能性材料であるが、通常利用されるのは結晶の(0001)面に堆積させて薄膜結晶である。(000-1)面に堆積させた薄膜結晶を利用する場合にはデバイス構造や成長条件の許容範囲（ウィンドウ）も異なり、(0001)面には無いメリットの存在も認められている。しかし、長年の研究報告やノウハウの蓄積がある(0001)面成長と比べて(000-1)面成長は依然として多くの課題を抱えておりデバイス応用は十分に進んでいない。

本研究課題では成長中の結晶表面における吸着原子密度を解析する熱力学的な手法を提案し、有機金属気相成長（Metalorganic Vapor Phase Epitaxy：MOVPE）における GaN と AlN の極性表面の解析に適用した。各結晶面の成長様式を特徴付け、成長指針を作成した。この新規手法は従来窒化物半導体の理論研究で用いられる最安定な表面構造を予測する手法を改良したものである。解析結果は以下の通りである。典型的な MOVPE の成長条件を仮定すると、GaN、AlN の(0001)面では N が吸着した構造が支配的であり、表面 N 密度は約 0.25 atom/(1×1)である。それに対して Ga

と Al の密度は低く、GaN(0001)上の Ga 密度は 10^{-4} atom/(1×1)のオーダーであり、AlN(0001)上の Al 密度は 10^{-7} atom/(1×1)のオーダーである。それに対して GaN(000-1)上では H が吸着した構造が支配的であり、Ga、N 密度はそれぞれ 10^{-12} 、 10^{-11} atom/(1×1)のオーダーと非常に低い。実験的にも GaN(000-1)は核生成頻度が非常に低いことが知られており、その原因は非常に低い Ga と N 密度であると結論付けられる。核生成頻度を増加させるためには水素分圧をできるだけ低くすることが有効である。一方、AlN(000-1)においては Al が 1 atom/(1×1)の密度で吸着し、その上に 0.25 atom/(1×1)の N が吸着した構造が支配的であり Al、N 密度ともに非常に高いことがわかった。実験的にも AlN(000-1)では三次元的な荒れた表面になりやすいことが知られており、その原因は高い Al と N 密度であると結論付けられる。Al と N 密度を低下させるためには高い成長温度、高い水素分圧、低い Al 分圧、低い NH₃ 分圧が有効であることが示された。

第 3 章 窒化物半導体におけるステップバンチングの原因解明

デバイス品質の結晶を成長させるうえで、表面を原子レベルで平坦に保つことは重要である。ステップバンチングが発生すると原子ステップが束となりマクロステップを形成し、表面の平坦性が失われてしまう。現在までにステップバンチングに関して多くの実験、理論研究が行われているものの、はっきりとした原因は明らかでない。

本研究課題ではステップバンチングの発生モデルとして、ステップ引力・斥力相互作用と ESB (Ehrlich Schwoebel Barrier) 効果を複合させた運動論的モデルを提案し、安定性相図を作成した。提案モデルによると、ステップバンチングは成長速度が低いとき、オフ角が大きいとき（比較的低いオフ角においては）、成長温度が高いとき、吸着原子の拡散障壁が小さいときに発生しやすい。これらの結果は窒化物半導体における実験傾向と一致していた。本章では窒化物半導体の研究領域において受け入れられている「Inverse ESB 効果によってバンチングが発生し、吸着原子の拡散距離がテラス幅よりも小さいとバンチングは抑制される」というモデルについて KMC (Kinetic Monte Carlo) シミュレーションを用いて検証も行った。吸着原子の拡散距離には「脱離するまでの拡散距離 x_{diff} 」と「二次元核の平均発生間隔 L_{nuc} 」の 2 つの定義がある。検証は両方の拡散距離について行った。その結果、 x_{diff} と L_{nuc} どちらに関しても「拡散距離がテラス幅よりも小さくても等間隔ステップは出現しないこと」、「高温においてバンチング幅が減少すること」がシミュレーションにより判明した。これらの結果は窒化物半導体の実験傾向と一致しないことから、従来のモデルでは実験結果を正しく説明できないことが確認された。以上より、ここで提案するステップ引力・斥力相互作用と ESB (Ehrlich Schwoebel Barrier) 効果を複合させた運動論的モデルの妥当性、有用性が示された。

第 4 章 結論

本論文で得られた結果をまとめた。

〔作成要領〕

1. 用紙はA4判上質紙を使用すること。
2. 原則として、文字サイズ10.5ポイントとする。
3. 左右2センチ，上下2.5センチ程度をあげ，ページ数は記入しないこと。
4. 要旨は2,000字程度にまとめること。
(英文の場合は，2ページ以内にまとめること。)
5. 図表・図式等は随意に使用のこと。
6. ワードプロ浄書すること（手書きする場合は楷書体）。
この様式で提出された書類は，「九州大学博士学位論文内容の要旨及び審査結果の要旨」
の原稿として写真印刷するので，鮮明な原稿をクリップ止めで提出すること。