

Si 基板上に成長した半極性 GaN の欠陥構造評価 Defect Structure in a Semi-polar GaN grown on an Si Substrate

澤木宣彦¹, 中北太平¹, 伊藤翔悟¹, 岩田博之¹
谷川智之^{2,3}, 本田善央², 山口雅史², 天野浩²
Nobuhiko Sawaki¹, Taihei Nakagita¹, Shogo Ito¹, Hiroyuki Iwata¹,
Tomoyuki Tanikawa^{2,3}, Yoshio Honda², Masahito Yamaguchi², Hiroshi Amano²

Abstract Defect structure on the coalescence of semipolar (1-101)GaN grown on a patterned Si substrate was investigated using high resolution transmission electron microscopy. The reduction of threading dislocation density was achieved by facet based growth mode on AlN nucleation layer, while the reduction of stacking faults density was achieved by transition of multiple stacking errors to a single stacking error during the off-axis growth.

1. 緒言

GaN に代表される III 族窒化物半導体は、交通信号機その他、屋外大型ディスプレイや白色 LED として液晶ディスプレイのバックライトとして実用デバイスに利用され、現在では窒化物半導体による照明用白色 LED や高効率電力用トランジスタ等が省エネルギーに貢献できるとして大きな期待が寄せられている。他方で、Si 集積回路技術は 10 ナノメートル台へと微細化が進み、産業技術や情報通信技術の分野でその高度化に貢献しているが、「More Moore」あるいは「More than Moore」を目指す研究開発が内外で進められている。その革新的技術の一つとして、シリコン集積回路技術に光技術を融合する「シリコンホトニクス」に大きな期待が寄せられている。シリコン基板上に発光デバイス（半導体レーザ等）を直接作り付ける技術の研究は 30 年以上の歴史があるにもかかわらず、よい結果が得られていない。これは、光半導体とシリコンとは結晶構造、格子定数、熱膨張係数が異なるため、良質なエピタキシャル成長が出来ないことに原因がある。我々は、このような背景のもと、シリコン基板上への高品質窒化物半導体デバイス作製技術のためのヘテロエピタキシを検討している。

窒化物半導体とシリコンとは結晶構造、格子定数、熱膨張係数などに大きな相違があり、従来の常識を超えるヘテロエピタキシで、緩衝層の改善など多くの課題が残されている。我々は、これまでの研究で、加工 Si 基板上にナノクリスタルを形成し、それを核として窒化物結晶を成長させることにより、転位密度の低い結晶を得ることに成功しているが、実デバイスへの適用には更なる転位密度の低減が必要で、緩衝層の最適化が必須の課題である。

Si 基板上への光デバイスの直接作製には、簡易なプロセスにより、欠陥が少なく伝導性制御が可能な半導体薄膜を作製する必要がある。従来の Si 基板上への窒化物結晶成長法では、格子不整合（大きな格子定数差並びに熱膨張係数差）による障害を回避するために緩衝層として多層膜形成が採用されてきた。この手法は、ウエハー全面に均様な薄膜単結晶を形成するというモノリシック集積回路作製には適しているが、窒化物結晶成長には複雑なプロセスが必要であり、シリコンホトニクスのように個別デバイスを限られた場所に作製するための手法とは相容れない側面がある。本研究では、基板上の限られた領域で高品質な結晶を簡易なプロセスで得ることを目的として、選択成長法による半極性 GaN 結晶成長における欠陥形成に焦点を絞り、その姿態を電子顕微鏡観察により評価した。

我々が提案する、選択成長法の特長は、Si 基板上で任意の傾斜角を有する(111)ファセット面を異方性エッチング法により形成し、このファセット面上に C 軸配向した六方晶 GaN を形成するという点にあり、今日では、サファイ

1 愛知工業大学 工学部 電気工学科 (豊田市)
2 名古屋大学 大学院工学研究科 (名古屋市)
3 (現) 東北大学 金属材料研究所 (仙台市)

ア基板にも拡張され世界的にも認められた手法として各国で採用されている[1-4]。しかし、この方法の最大の欠点は隣り合う結晶が合体する場所に積層欠陥が導入されることである[3]。このことはマイクロメートルサイズのデバイス作製には大きな支障とならないが、ミリメートルオーダーのデバイスではその性能を損なう大きな要因となる。この制御には合体領域における欠陥の振る舞いを明らかにする必要がある。そこで、本研究では(001)傾斜基板上に作製した(1-101)GaN におけるストライプの合体と積層欠陥の生成ならびに伝搬状況を高分解 TEM 像により観察・評価することとした。

2. 半極性 GaN の選択成長

半極性(1-101)GaN の結晶成長には 7 度オフ(001)Si 基板を用いる。まず、基板の上に幅 1 ミクロン、周期 2 ミクロンの SiO₂ ストライプマスクパターンを形成する(図 1)。その後、KOH 液に試料を浸し、Si 表面を処理すると、シリコンのファセット面によりエッチング速度が異なる異方性エッチングが起こり、最も安定な(111)ファセット面を側面とするトレンチが形成される。このトレンチの側壁の内一方を SiO₂ マスクで覆うことで、一つの側面だけが露出した成長用基板が出来る[1]。

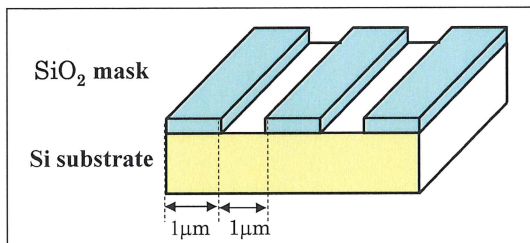


図 1 選択成長用マスクパターンの形状

この基板を MOVPE 装置に導入して GaN を成長させる。図 2 の断面写真に見えるように、GaN は SiO₂ が貼り付けられていない一方の(111)面上のみに、AlN 緩衝層を介して C 軸が基板上で傾いた形で成長する。ここでは Si 基板の方位を(001)面上で<1-10>軸周りに 7 度回転しておくことで、成長した GaN の(1-101)面が Si 基板の表面と平行になるようにしている[1]。

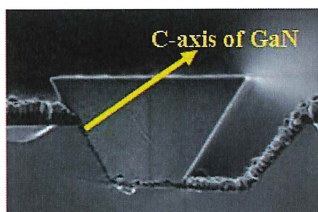


図 2 傾斜(111)ファセット面上への GaN 成長

周期的に形成された Si(111)ストライプ状ファセット面上に選択的に成長した GaN ストライプ構造は、成長時間を長くすると大きくなり、やがて、隣のファセット上に成長した GaN と合体する。このとき、GaN 結晶の結晶軸が互いに揃っていれば、合体後には平坦な(1-101)面結晶が得られる。図 3 は合体後の結晶の断面 SEM 写真である。見かけ上は完璧に合体し、平坦な表面が得られているように見える。事実、表面の AFM 像ではラフネスが 0.2nm 程度の平坦性があり、2次元成長表面に特有な原子ステップ構造が見られた。

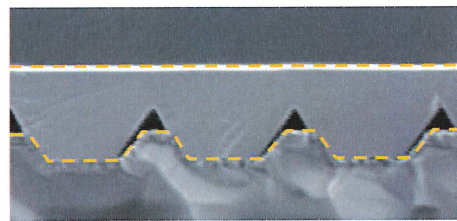


図 3 (1-101)GaN の断面 SEM 像
(ストライプ周期は 2μm)

断面 SEM 写真で見る限り、精密な合体が得られているように見えるが、CL イメージを解析すると、合体部分のバンド端発光スペクトルは窓領域のそれとは異なり、発光強度が弱い上にやや低エネルギー側に発光ピークが見られた。このことは、合体部分に結晶欠陥が導入されていることを示唆している。

3. ストライプ合体近傍の断面 TEM 像

断面 TEM 像の評価には本学総合技術研究所に設置されている透過型電子顕微鏡 (JEM2010) を使用した。図 4 に典型的な結果を示す。合体部分には複雑なコントラストがあり、何らかの欠陥が導入されていることが見て取れる。コントラストの形状から、欠陥の多くは積層欠陥 (BSF) と貫通転位 (TD) であることが分かる。

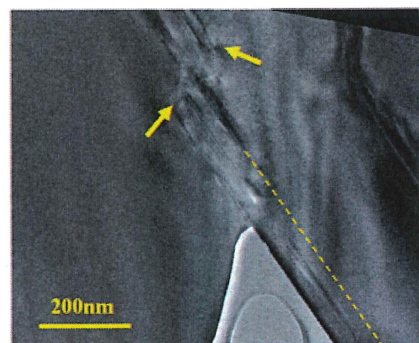


図 4 合体部分の断面 TEM 像

図5には、合体部分の上部(成長層の表面近く)の断面TEM像を示した。この像には、細い直線状の暗線とやや太く途中で屈曲する暗線の2種類がある。像の特長から前者がa面の積層欠陥(BSF)であり、後者は貫通転位(TD)と考えられる。一般に貫通転位はⅢ族窒化物結晶とSi基板との界面に発生するミスフィット転位や歪みが要因となって誘起され、GaN結晶内では(0001)軸(C軸)方向に伝搬するものであるが、本試料のように(-1-101)半極性ファセット面を伴いながら成長させるときには、このファセット面と遭遇した貫通転位は表面に垂直な方向に力を受け、C軸に垂直な方向に曲げられる。その結果、図5に示されるようにa面上のコントラストとして観測される。図5では、貫通転位が伝搬の途中で消失しているように見えるが、これは、画面に垂直な方向に転位が曲げられ見えなくなったことによるものである。このような屈曲現象により、この貫通転位は試料表面に到達する機会が失われ、結果として、試料表面における貫通転位密度が低減することになる。実際、GaN/AlN/Siヘテロ界面で発生した多くの貫通転位はこの過程を経て消滅し、試料表面に到達するものは一割以下になる。この機構は、AlNナノクリスタルを成長核として利用する本手法に特有の現象で、低温バッファ層を用いるサファイア基板上での成長モードでは見ることは出来ない。

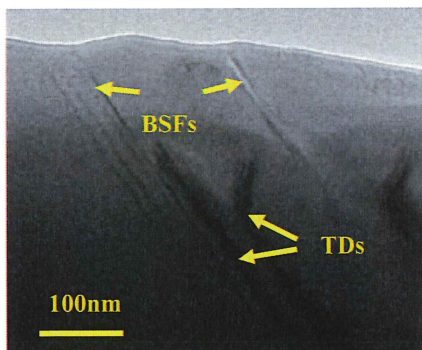


図5 貫通転位と積層欠陥の伝搬

4. 積層欠陥の振る舞い

本節では図4と図5に見られた積層欠陥について詳しく考察する。積層欠陥は、図4にはC軸に垂直なa面上のコントラストとして観察され、太い帯状のものと細い筋状のもの2種類が見られる。帯状のものは矢印で示した部分で消滅あるいは発生していることが見て取れる。一方、図5では細い筋状のものが見られるが、筋の太さに差があること、筋の一部は途中で消失しているように見えることに

注目する。

従来の研究によれば、半極性あるいは無極性GaNに見られる積層欠陥は、一般的に、消えることは無く試料表面まで到達すると報告されているが、ここでの観察結果はこのことと一致しない[2,5]。極めて欠陥の多い試料では、積層欠陥が何らかの欠陥の助けを借りて発生したり消滅することがあるとの報告があるが、我々の試料には高密度の欠陥が無いいため、このような機構は考えにくい。そこで、高分解TEMによる格子像を評価することとした。

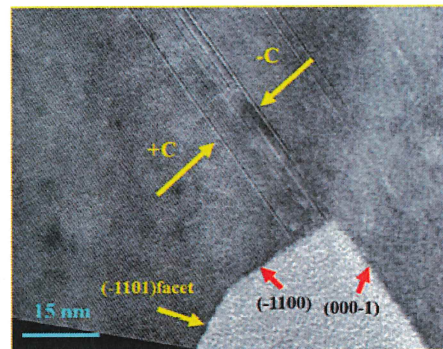


図6 合体部分の高分解TEM像

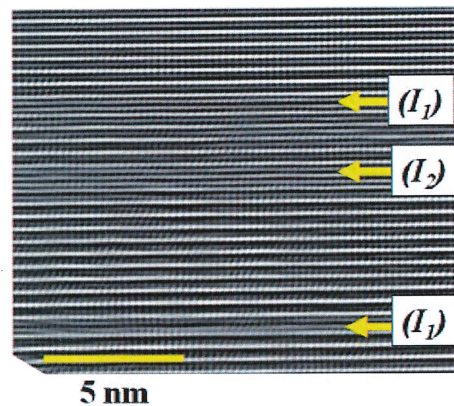


図7 格子像(積層欠陥の種類)

図6は図4の結晶の無い三角形ボイドの頂上部分を拡大したものである。ボイド部分の結晶表面は、図6に示したように、左側から成長してきた(-1-100)面と右側から成長してきた(000-1)面とからなっている。本来は図の右下に見られる(-1101)面が左側結晶の下部ファセット面となるべきところ、合体部分では(-1-101)面に変異していることから、合体前後に何らかの熱力学的作用が働いたと思われる。いずれにせよ、-C軸方向に成長してきた右側結晶と、+C軸方向に成長してきた左側結晶とが合体する様子が見て取れる。結晶は分子層オーダーで正確に合体しており、僅かな

誤差が積層欠陥で補われていることが分かる。

図 6 でも積層欠陥には細い線とやや太い線の 2 種類があることが分かる。格子像をさらに拡大してみると、図 7 に示したように、積層欠陥には単層 (I_1)、複層 (I_2) の 2 種類からなっていることが分かった。いずれも、六方晶のスタックに、立方晶スタックが混ざるもので GaN に典型的な積層欠陥であった。

図 4、図 5 では積層欠陥が成長と共に生成したり消滅したりすることが見られたが、その様子をさらに詳しく考察するため、合体付近の格子像を図 6 よりやや上部で観察した。結果を図 8 に示す。成長方向は図中矢印、右下から左上方向の $\langle 1-101 \rangle$ 軸方向である。この部分では、単層、複層に加えて、多層(E タイプ)の積層欠陥が平行して導入されており、しかもこれらが生成、消滅する様子が見える。すなわち、複数の多層欠陥が相互作用しながら、その層数を変化させるとともに、多層欠陥が複層欠陥に変異することが見て取れる。さらに試料上部では、複数の複層欠陥が相互作用して単層の欠陥に変異する様子も見られた。その結果、最終的には、試料表面に現れる積層欠陥のほとんどが単層の積層欠陥 (I_1) に限定されることとなった。

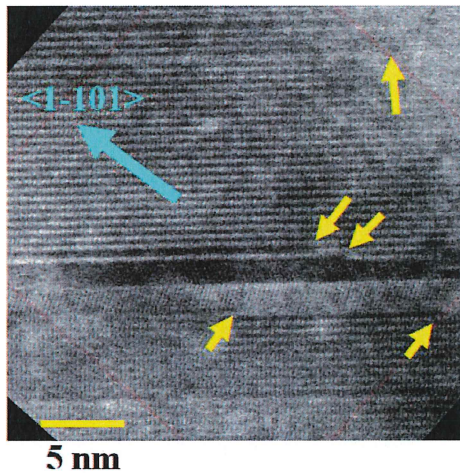


図 8 積層欠陥の振る舞い

このような積層欠陥の変異は、成長と共に、最もエネルギーの低い単層欠陥に移ったものとして理解できるが、結晶成長条件下では立方晶より六方晶の方が安定であることも関係していると考えられる[6]。

5. 結言

加工シリコン基板上への GaN 選択成長法における線欠陥と面欠陥の振る舞いについて検討した。基板表面との界面付近に発生した貫通転位の多くは、成長中に成長方向とは異なる方向に曲げられ、最表面に到達せず、試料の低転

位密度化に貢献している。半極性面試料に特有の積層欠陥については、成長初期には合体部分で多くが発生するものの、成長と共に、最もエネルギーの低い単層欠陥に変異することによって、転位密度の低減が確保されていることが明らかになった。

本手法による、半極性試料作製では、異なる部分から成長を開始した単結晶が合体することによって所定のサイズの結晶を形作ることになるため、合体部分の格子整合が最も大きな課題である。シリコン基板の結晶性が極めて良いため、2 ミクロンも離れた箇所を起点とする単結晶が、積層欠陥を伴いながらも、分子層オーダーの精度で合体し単結晶を形成することが確認された。

謝辞

本研究は、平成 22 年度文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援プロジェクト(平成 22~26 年度 : S1001033) ならびに日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(B)22360009 の援助を受けて行われた。MOVPE 装置による結晶成長は名古屋大学大学院工学研究科クリーンルームで行われた。関係各位に感謝する。

参考文献

- [1] N.Sawaki, T.Hikosaka, N.Koide, S.Tanaka, Y.Honda, and M.Yamaguchi, "Growth and properties of semi-polar GaN on a patterned silicon substrate," *J. Crystal Growth* 311 (2009) 2867–2874.
- [2] N.Izyumskaya, S.J.Liu, V.Avrutin, X.F.Ni, M.Wu, U.Ozgur, S.Metzner, F.Bertram, J.Christen, L.Zhou, D.J.Smith, H.Morkoc, "Epitaxial lateral overgrowth of non-polar GaN(1-100) on Si(112) patterned substrates by MOCVD," *J. Crystal Growth* 314 (2011) 129–135.
- [3] F.Scholz, "Semipolar GaN grown on foreign substrates: a review," *Semicond. Sci. Technol.* 27 (2012) 024002 (15pp)
- [4] N.Okada and K.Tadatomo, "Characterization and growth mechanism of nonpolar and semipolar GaN layers grown on patterned sapphire substrates," *Semicond. Sci. Technol.* 27 (2012) 024003 (9pp).
- [5] R.Ravash, P.Veit, M.Müller, G.Schmidt, A.Dempewolf, T.Hempel, J.Blasing, F.Bertram, A.Dadgar, J.Christen, and A.Krost, "Growth and stacking fault reduction in semi-polar GaN films on planar Si(112) and Si(113)," *P hys. Status Solidi C* 9 (2012) 507–510.
- [6] A.Belabbes, L.C.de Carvalho, A.Schleife, and F.Bechstedt, "Cubic inclusions in hexagonal AlN, GaN, and InN: Electronic states," *Phys. Rev. B* 84 (2011) 125108.