

## 3c-SiC/Si 上にエピタキシャル成長した GaN 膜表面モフォロジーの改善

Improvement of surface morphology of epitaxial GaN films grown on 3c-SiC/Si

伊藤慶文<sup>\*1</sup>、山本高勇<sup>\*2</sup>

Yoshifumi ITO and Akio YAMAMOTO

## Abstract

Surface morphology of epitaxial GaN films grown on 3c-SiC/Si has been improved widely by introduction of nitride process in MOVPE. Crystallization and optical properties of the films have been also improved widely.

## 要約

3c-SiC/Si 基板上に成長した GaN エピタキシャル膜の表面モフォロジーは、プロセスに窒化処理を導入することにより大幅に向上した。GaN エピタキシャル膜の結晶性、光学的特性も大幅に向上した。

## はじめに

GaN は高速・高周波特性に優れ、高電圧・高温で使用可能なワイドバンドギャップ半導体であるため、デバイスとしての実用化に向けての研究が精力的に進められている。

GaN は高品質のバルク結晶作製が困難であるため、基板上に作製する必要がある。現在、高品質の GaN 膜は SiC 又はサファイヤ ( $\text{-Al}_2\text{O}_3$ ) 基板上にのみ得られている。両者は共に高価である上、SiC は大面積化に難点があり、 $\text{-Al}_2\text{O}_3$  は絶縁物であるためデバイスとしての使用に強い制限が課せられる。高品質かつ安価で大面積化が可能な Si が GaN 作製用の基板材として使用可能であれば、経済性にも優れ GaN デバイスの使用用途は膨大となる。

イオン注入法を用いた Si 表面処理により作製される 3c-SiC/Si を GaN 膜作製のための基板材として使用する開発研究を実施している。高温状態の Si ウエファーに高ドーズ C ビームを注入し、注入後の熱処理により Si 表面近傍に単結晶 3c-SiC 層を生成する。化学処理により表面層の不要部を除去した後、3c-SiC/Si 基板を GaN の基板材として使用している。

3c-SiC/Si 基板を用いて、残留応力の少ない GaN エピタキシャル膜の成膜が可能であった。然しながら、3c-SiC/Si 基板上での GaN 表面モフォロジーは“蜂の巣状”で凹凸が大きい膜表面であり、デバイス応用を考慮すると GaN 膜の表面モフォロジーの大幅な改善が必要あることが分かった。

本報告は、3c-SiC/Si 基板を用いてされる GaN 表面モフォロジー改善に関する研究である。

## 3c-SiC/Si(111)構造基板上への GaN の MOVPE 成長

GaN 膜の成長には、MOVPE (Metalorganic Vapor Phase Epitaxy) 装置を使用した。反応管の型式は横形反応管である。装置の配管系統図、反応管断面の概念図は参考文献 1) に記載されている。装置には Ga 源として TEG (Triethyl Gallium) コンテナ、N 源として  $\text{NH}_3$  ガスボンベが装備されている。TEG の SUS コンテナは成長中一定温度に保たれている。TEG のキャリアガス用として高純度の  $\text{H}_2$  又は  $\text{N}_2$  が使用できる。反応管の真空排気には油回転ポンプ (RP) を使用した。装置は、減圧成長と常圧成長が行えるようになっており、減圧成長の場合には、真空排気とは別の減圧成長

\*1 研究開発部 エネルギー材料グループ、\*2 福井大学 工学部

本研究は、(財)若狭湾エネルギー研究センターが関西電力・日本原子力発電・北陸電力の受託研究として実施した研究の一部である。

用 RP を使用した。反応管の材質は石英であり形状は円筒型である。サセプタは SiC コートした高純度カーボン製であり、サセプタ上は 2.5cm 四方の基板が 5 枚装着できるようになっている。基板の加熱は高周波誘導 ( $40 \pm 30\text{kHz}$ ) により

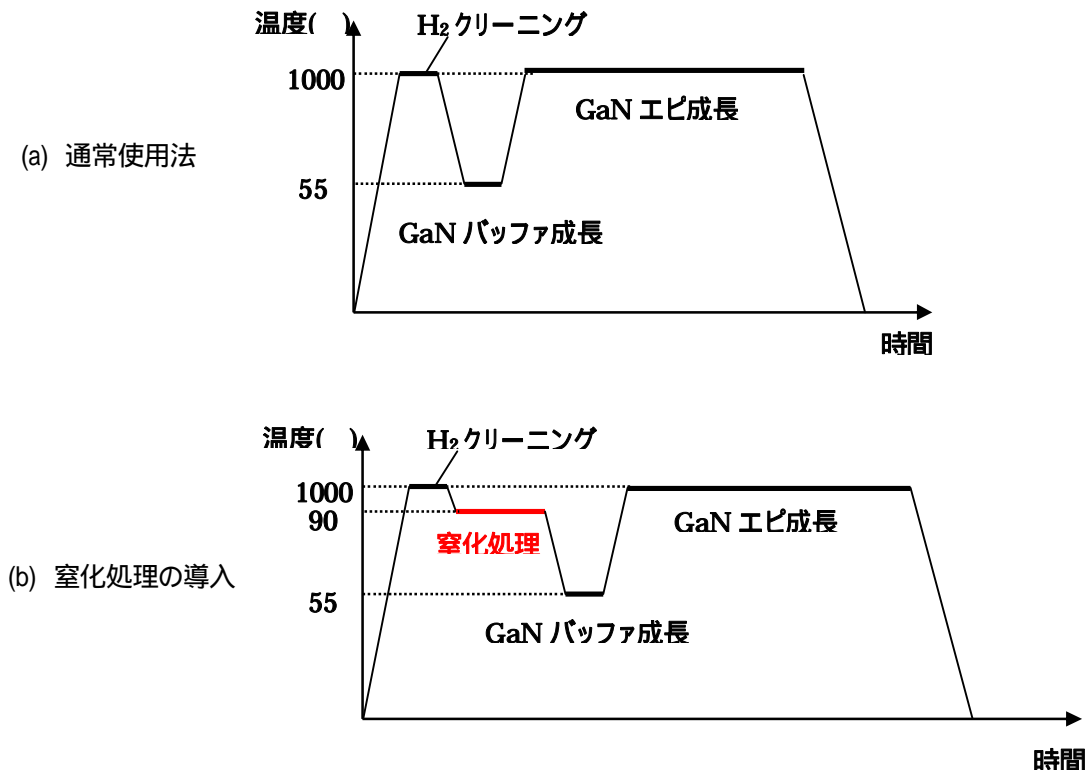


図-1 GaN 膜成長のタイムチャート。(a) 通常使用法の場合、(b) 窒化処理の導入の場合

行い、サセプタ温度は、白金・白金・ロジウム熱電対により測定される。成長時にはこの温度を便宜上成長温度とした。

図-1 (a) に、通常使用される GaN 膜の MOVPE 成長プロセスを示す。反応管内に装填された基板は、基板表面のクリーニングのために、最初水素気流中で 1000、15 分の熱処理を施される。続いて、基板温度を 550 まで低下した状態で GaN バッファ層を成長させる。 $\text{-Al}_2\text{O}_3$  基板上への GaN 成長のような異種基板上へのエピタキシャル成長においては、低温成長緩衝層(バッファ層)を用いることによりエピタキシャル膜の結晶性及び、電気的・光学的特性が飛躍的に向上することが知られている。これは、異種基板上での高温成長では均一な核形成が困難なために三次元的で欠陥密度の高い膜成長が起こるのに対し、低温成長バッファ層が均一な核形成の実現など擬似ホモエピタキシャル成長的状況を実現するためである。最後に、基板温度を 1000 まで上昇させ、所定の厚さの GaN エピタキシャル層の成長を行う。

3c-SiC/Si 基板上(a)及び  $\text{-Al}_2\text{O}_3$  基板上(b)に成長した GaN エピタキシャル膜表面の SEM (Scanning Electron Microscope) 観察像を図-2(a)及び(b)に示す。 $\text{-Al}_2\text{O}_3$  基板上 GaN エピタキシャル膜表面に比べ、3c-SiC/Si 基板上での表面モフォロジーは“蜂の巣状”で凹凸が大きい膜表面である。なお、SEM 写真に見える黒い線はクラックではなく SEM のイメージプリンターによるものである。

3c-SiC/Si 基板上 GaN エピタキシャル膜の断面の TEM (Transmission Electron Microscope) 観察により、以下の点が明らかになった。

- (1) GaN バッファ層が均一に成長する -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上とは異なり、GaN バッファ層が島状成長している。
- (2) GaN エピタキシャル膜がバッファ層の存在しない 3c-SiC/Si 基板表面からも成長している。

3c-SiC/Si 基板上 GaN エピ膜について KOH エッチング法による極性判定を行った結果、Ga 極性が支配的である GaN 膜が成長していることが分かった。また、SiC と GaN では Si-N、C-Ga 間の結合力がそれぞれ強く、Si 面 SiC 基板上には Ga 極性 GaN 膜が、C 面 SiC 基板上には N 極性 GaN 膜が成長すると報告されている。このことより、本研究で使用している 3c-SiC/Si 基板の 3c-SiC 層は Si 面が支配的であると結論される。GaN バッファ層が島状成長する原因

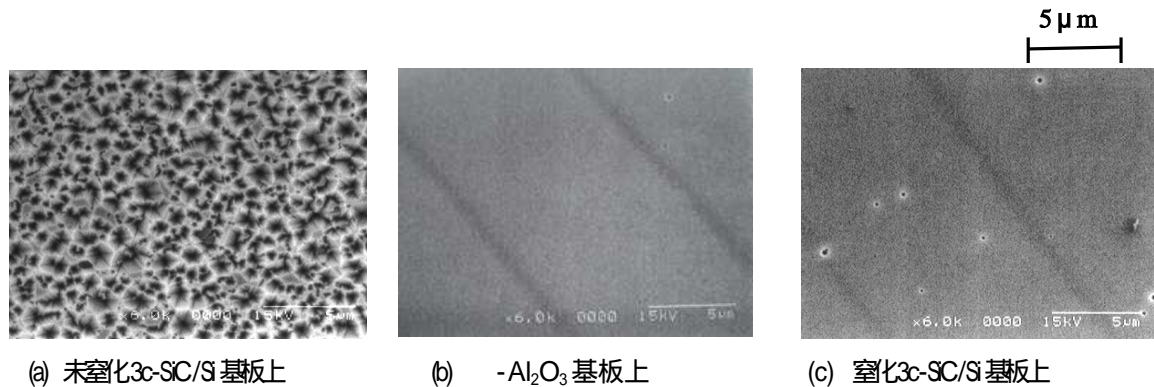


図-2 各種基板上 GaN エピタキシャル膜の表面モフォロジー(SEM 像)

は、GaN と Si 面 SiC との“濡れ性”が悪いことにより GaN のマイグレーションが促進され、GaN バッファが凝集し島状に成長するためである。

GaN バッファ層の再結晶化のために、バッファ成長後に NH<sub>3</sub> 雰囲気中で 1000°C まで昇温してアニール処理を行った。アニール処理中にバッファ層の成長していない 3c-SiC/Si 基板表面が窒化され Si-N 結合が形成された結果、GaN バッファ層の存在しない 3c-SiC/Si 基板表面からも GaN 膜が成長しているものと考えられる。窒化処理を施した 3c-SiC/Si 基板表面の Si-N 結合の存在は XPS (X-ray Photoelectron Spectroscopy) 測定により確認した。

GaN のエピタキシャル成長が GaN バッファ層からの成長と Si-N 結合の形成を通して 3c-SiC/Si 基板表面からの成長で起こったために、GaN 膜表面が凹凸が大きい膜表面になったと考えられる。(1)、(2)の問題点を解決するために、GaN バッファ層成長前に 3c-SiC/Si 基板表面を窒化し Si-N 結合を形成するプロセスを導入することで 3c-SiC/Si 基板上にエピタキシャル成長する GaN 表面モフォロジーの改善を試みた。

#### ・ 窒化処理導入による GaN 膜表面モフォロジーの改善

図-1 (b)に窒化処理を導入した場合の 3c-SiC/Si 基板上への GaN 膜の MOVPE 成長プロセスを示す。基板表面の窒化処理は GaN バッファ層成長前に行い、窒化条件は基板温度 900°C、30min を用いた。なお、この窒化条件での Si-N 結合の形成を XPS により確認した。

窒化処理を施した 3c-SiC/Si 基板表面の RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction)像は、未窒化の場合と同じ 3c-SiC のスポットパターンを示した。又、窒化処理有無の場合での 3c-SiC/Si 基板表面の AFM (Atomic Force

Microscopy) 像は、二乗平均面粗さ(Rms 値)にも大きな差がなく、基板の表面モフォロジーに顕著な差がないことを示した。3c-SiC/Si 基板表面の窒化処理は、基板表面に Si-N 結合を形成するのみで、基板表面モフォロジーに影響がないことが分かった。

AFM を用いた窒化処理有無の場合での 3c-SiC/Si 基板上 GaN バッファ層表面及び比較のために、 $-Al_2O_3$ 基板上 GaN バッファ層表面を観察した。窒化処理を施さない場合、 $-Al_2O_3$ 基板上 GaN バッファ層に比べ、離散的に島状成長しており、窒化処理を施した場合、 $-Al_2O_3$ 基板上 GaN バッファ層と同様、GaN バッファ層が均一に成長していた。これは、3c-SiC/Si 基板表面を窒化処理することで均一な GaN バッファ層が成長することを示す。

図-2(c)に、窒化処理を導入して作成した 3c-SiC/Si 基板上 GaN エピタキシャル膜表面の SEM 像を示す。図-2(a)の窒化処理を施さない場合の凹凸が大きい GaN 膜表面に比べ、非常に平坦な膜表面であり、大幅に改善されたことが分かる。これは、3c-SiC/Si 基板表面に窒化処理を施すことにより、GaN バッファ層が基板表面に対し均一に成長し、成長初期段階で GaN バッファ層からの成長になったためであると考えられる。図-2(b)の  $-Al_2O_3$ 基板上 GaN 膜表面と比較しても顕著な差がないことが分かる。また、窒化処理有無の場合の 3c-SiC/Si 基板表面と  $-Al_2O_3$ 基板の AFM 像観察は、窒化 3c-SiC/Si 基板表面は  $-Al_2O_3$ 基板表面に比べ凹凸が大きいですが、その上に成長した GaN 膜表面には顕著な差がないことを示した。すなわち、基板表面の凹凸に関係がなく平坦性に優れた GaN 膜が成長できた。以上により、3c-SiC/Si 基板表面の窒化処理は GaN エピタキシャル膜の平坦性の改善に非常に有効であることが分かった。

基板窒化処理有無の場合での 3c-SiC/Si 基板上 GaN エピ膜表面の RHEED パターン、及び  $-Al_2O_3$ 基板上 GaN エピ膜表面の RHEED パターンより、以下のことが判明した。3c-SiC/Si 基板表面の窒化処理を施さない場合、ウルツ鉱構造型 GaN のパターンが得られた。スポットパターンであることから、平坦性は良くないが c 軸配向性がある GaN 膜である。3c-SiC/Si 基板表面の窒化処理を施した場合、平坦性に優れた GaN 膜を示すストリークパターンが得られた。

$-Al_2O_3$ 基板上 GaN 膜の RHEED パターンと比べ遜色がないことから、3c-SiC/Si 基板表面の窒化処理を施すことにより  $-Al_2O_3$ 基板上 GaN 膜表面の結晶性並に改善できることが分かった。

基板窒化処理有無の場合での 3c-SiC/Si 基板上及び  $-Al_2O_3$ 基板上 GaN エピ膜の GaN(0004)面の X 線ロックン グカーブ(XRC-FWHM)を観察した。半値幅が未窒化基板上で約 4500 秒から窒化基板上で約 900 秒と大幅に狭くなっていることから、Tilt(c 軸の傾き)などの少ない c 軸配向性の良い GaN 膜が成長していることが分かった。今後 GaN の成長条件の最適化を図れば、更なる結晶性の向上が実現できるものと考えられる。

基板窒化処理有無の場合の 3c-SiC/Si 基板上及び  $-Al_2O_3$ 基板上 GaN エピタキシャル膜の室温でのフォトルミネッセンス(PL)スペクトル観察は、基板窒化処理を施すことにより PL ピーク半値幅が約半分程度狭くなり、 $-Al_2O_3$ 基板上ともほぼ差がないことが分かった。この結果から、基板窒化処理は GaN 膜中の光学的特性向上に有効であることが結論される。

． おわりに

イオン注入法により作製した 3c-SiC/Si 基板を用いて成長した GaN エピタキシャル膜の表面モフォロジーは、プロセスに窒化処理を導入することにより、 $-Al_2O_3$ 基板上並に大幅に向上した。GaN エピタキシャル膜の結晶性、光学的

特性も大幅に向上することが分かった。

3c-SiC/Si 基板を用いて作製される GaN 膜の内、低い残留応力を有する GaN 膜作製の再現性は良好ではない。GaN 膜の平坦化については解決策が見出された現在、3c-SiC/Si 基板上 GaN 膜中の残留応力低減が、GaN/3c-SiC/Si 系をデバイスに適用する場合に最重要であり、その解決に向けての研究が進められている。

#### 参考文献

- 1) 平成15年度報告書「発電所等のエネルギー利用と環境・社会に関する研究(3)」、平成16年3月、2-94