

外976

早稲田大学大学院理工学研究科

# 博士論文概要

## 論文題目

MBE法Ga(Al)As結晶の成長その場観察法と  
成長機構に関する研究

申請者

大坂次郎

JIRO OSAKA

1997年5月

GaAsを中心とした化合物半導体は高移動度で材料設計の自由度が高いため電子デバイスへの利用が盛んに検討されている。特に最近では将来デバイスとしてヘテロ接合を利用した量子効果デバイスの研究が精力的に行なわれている。量子効果デバイスでは極薄膜障壁でのトンネル効果や量子井戸内の量子準位を利用するため、障壁や井戸を形成するヘテロ界面の平坦性等の完全性がデバイス特性に大きな影響を与えると考えられている。従って、結晶成長を原子レベルで制御することが望まれている。このため従来より、成長状態の制御、たとえば成長速度やドーパント濃度制御が他の成長方法と比べて比較的容易で、さらにヘテロ界面が急峻な分子線エピタキシー (Molecular Beam Epitaxy; MBE) 結晶がデバイス作製に用いられてきている。しかし、制御に不可欠なMBE成長機構の理解という点に関しては膨大な研究がなされ、徐々に解明されつつあるが、原子レベルでの理解についてはまだ不十分である。

これまで、MBE成長機構の研究や成長の制御には表面の凹凸やAs被覆率、さらに成長速度についての情報を得ることが出来るRHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) による成長結晶表面のその場評価手法が主に用いられてきており、原子レベルの制御に向けて大きな進展があった。しかし、RHEEDでは電子線の結晶表面回折図形、すなわち逆格子空間情報しか得られず、しかも入射電子ビーム直径が100~1000  $\mu\text{m}$ と大きいため、得られる情報は空間的・時間的に平均化され、かつ定性的である。従って、成長機構に関する知見・理解は不完全であり、また微小領域まで原子レベルで結晶品質や構造が制御されているか不明であった。また、ここ数年、走査型トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscopy; STM) や原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscopy; AFM) の開発・普及が急速に進行し結晶表面の原子レベルでの観察が容易に行なえるようになってきた。しかし、これらの顕微法では成長室と観察室を真空容器で連結 (in-line) して成長表面の汚染は防止しているが、一端冷却せざるを得ず、必ずしも成長中の表面状態を再現しているとは言えないという致命的欠点がある。一方、高分解能その場観察の有力な方法として電子顕微鏡を用いたその場観察技術があり、Si結晶については走査型反射電子顕微鏡 (Scanning Reflection Electron Microscopy; SREM) を用いた成長島や単分子ステップの観察例が報告されている。しかし、GaAsについては蒸気圧の高いAsを装置内で使用することが必要であるので電子銃汚染が心配されるため、検討例は無かった。そのため、GaAs系MBE結晶について実空間での高分解能・リアルタイムその場観察法の確立、およびこれを基にした原子レベルでの成長機構の解明が強く望まれている。

本研究は、化合物半導体結晶、とくにGa(Al)AsのMBE成長結晶について、成長表面の平坦化を狙いとして、走査型 (反射) 電子顕微鏡を用いた成長その場観察・評価・成長制御法を開発するとともに、結晶成長機構を解析したものである。

本論文は5章から構成されており、以下に各章の概要を述べる。

第1章は序論であり、1.1節では、MBE結晶成長機構解明の必要性和従来の結晶表面観察技術の現状を述べ、問題点を概括する。1.2節では、本論文の目的と概要および構成について述べ本研究の意義を明らかにする。

第2章では、表面構造に敏感な表面回折電子を用いたSREMとGa(Al)As系のMBE成長装置を複合して作製したSREM-MBE複合その場観察装置と、これを用いたマクロな表面荒れ機構に関する研究結果について述べる。2.1節では、電子顕微鏡を用いたその場観察技術の背景を説明する。2.2節では、作製したその場観察装置の装置構成、性能について述べ、GaAsの初期成長による表面変化観察への適用結果をもとに、成長機構研究に対するその場観察の有効性およびSREM法の限界・高分解能化への指針について述べる。2.3節では、AlGaAsおよびGaAs成長中の表面荒れ発生機構に関する研究結果について述べる。まず、これまで想像はされていたがその振る舞いが明らかでなかったIII族液滴の発生・消滅条件を明らかにし、その機構を考察する。次いで、V族不足条件成長によりIII族液滴が発生し、これが荒れ発生の原因となっていることを明らかにし、その低減法を示す。

第3章では、第2章で開発したSREM-MBE複合その場観察装置を用いた走査型電子顕微鏡 (SEM) モードによるその場観察・計測技術とこれにより明らかにした成長機構、ならびに成長その場制御技術を用いた新成長法について述べる。3.1節では、観察試料から放出される信号としては二次電子量の方がSREMで用いる表面回折電子量より多いため、SEMのほうが高感度な像が高速走査で得られるので、リアルタイムその場観察に有利であることを示し、また、二次電子量が表面のAsの被覆率に依存することを明らかにし、その機構を検討する。3.2節ではGa液滴の形成時期、発生間隔について詳細な計測および解析を行ない、4x2Ga安定化面は擬似的な自己停止面でありGa液滴と共存することにより安定化すること、およびGa液滴は4x2Ga安定化面上の過飽和なGa原子の拡散律速型核形成機構により発生することを明らかにする。3.3節では、二次電子量の被覆率依存性と4x2Ga安定化面の擬自己停止性を利用した被覆率測定法を提案し、これを用いて被覆率の表面再構成構造依存性・基板温度依存性を明らかにする。3.4節では、Ga液滴発生間隔がMBE法や他の代表的GaAs成長法における成長島形成間隔より2桁大きいことを明らかにしその機構を考察する。さらに、Ga液滴間隔の巨大性および4x2Ga安定化面の擬自己停止性を利用し、被覆率をその場で測定しながら制御することにより単分子層高さのテラスの幅がミクロンオーダーに及ぶ平坦成長法としてGa単原子層横方向成長法を提案する。また、この成長法がAlGaAsにも適用可能であることを示す。

第4章では、二次電子像をさらに高感度・高分解能化することにより成長島や単分子層ステップの観察を可能とし、GaAs成長表面の成長島の変化をその場観察し

た結果と、これを基に表面平坦化に寄与する原子レベルの成長機構について検討した結果を述べる。4.1節では、従来のMBE成長機構研究および理論的解析手法について説明し、その問題点を明らかにする。4.2節では、作製した高分解能SEM-MBE複合装置について述べ、STMによる成長表面のex-situ観察結果と比較することにより、単分子ステップおよび成長島がSEMモードにより5nmの分解能で観察可能であることを明らかにする。4.3節は5小節からなり二次元核形成成長機構に関する研究結果を述べる。4.3.1節ではRHEEDを用いた従来の二次元核形成成長機構モデルについて説明する。4.3.2節では観察された実際の核形成の様子を概説し、二次元核密度の解析を通してRHEEDの解釈に立脚した従来の成長モデルと比較検討し、島密度が従来の予測と一致する事を述べる。4.3.3節では、成長初期の核形成機構に関してこれまで知られていなかった二次元核発生の遅れと連続核形成現象について検討する。前者からは成長に伴う電子の授受を考慮した原子論的考察（エレクトロンカウンティングモデル:ECM）の必要性を、後者からは平衡論的考察の妥当性を明らかにする。4.3.4節では、RHEED振動および供給したGa量と成長島の発生・成長の対応関係が従来の予測と異なっていることを明らかにする。端的な例は、成長島の被覆率（島被覆率）が供給Ga量に比例せず、核形成の遅れの後、S字状に変化することである。この結果、島被覆率増加速度がGa供給速度より大きくなったり、島被覆率がGa供給量より大きくなる等の奇異な現象が発生することを明らかにする。さらに、これらの新知見を基にECMとGaの拡散を考慮して成長機構を考察し、被覆率依存成長モデルを提案する。このモデルは、Ga供給量が0.25原子層に達するまでは供給された全てのGaが表面再構成構造を変化させることに消費され、0.25を越えると核形成が始まり、被覆率0.75の島が発生・成長すると考えるもので、これにより全ての観察結果を矛盾無く説明できることを示す。4.4節では成長中断による平坦化機構に関する研究結果を述べる。成長条件の異なる成長島の中断後の消長を観察し、平衡論的考察により機構を明らかにする。

第5章では、本論文の主な結果をまとめて結論とし、さらに本研究の意義を明らかにするとともに、将来展望を述べる。