1. 原子層制御から原子位置制御へ

東京大学 工学部 西永 頌

Tatau NISHINAGA: From Atomic Layer Controlled Epitaxy to Atomic Position Controlled Epitaxy

The recent progress in epitaxial technology is now opening the age of Atomic Position Controlled Epitaxy (APCE). Toward this technology, the understanding of the elemental growth process is basically important. In this article, the recent understanding on the elemental growth process in GaAs MBE is reviewed and it is pointed out that there are contradicting experimental results in the determination of surface diffusion length of Ga in GaAs MBE. The important problems to be solved to get APCE technology are finally discussed.

1. はじめに

エピタキシャル成長 (epitaxial growth) 技術はシリコンやGaAs等化合物半導体の高品質単結晶薄膜成長技術として欠くことのできない技術となっている。この技術を用いてレーザダイオード、発光ダイオード、超高速トランジスタ等各種光デバイスおよび電子デバイスが作製されている。これ等のデバイスの性能向上のため、いかに薄くかつ制御された膜厚のエピタキシャル層を得るかということがこれに関係する研究者の過去10年程の目標であった。この目標は分子線エピタキシ法 (MBE, Molecular Beam Epitaxy), 有機金属原料気相エピタキシャル成長法 (MOVPE, Metalorganic Vapor Phase Epitaxy) の出現とともに急速に達成され、現在一原子層の精度で薄膜単結晶を成長させることはそんなに難しいことではなくなっている。この技術を用いることにより量子井戸レーザーをはじめHEMT (High Electron Mobility Transistor) やHBT (Hetero-Bipolar Transistor) のような超高速トランジスタが作られている。しかし、この技術を進めて数原子の精度で三次元的構造を半導体単結晶内部に形成することが出来ればこれ等のデバイスの特性

をさらに大きく改善することができる他、従来にない新しいデバイスの作製も可能となる。

薄膜はいわば二次元構造を持ち、その制御に関しては従来のエピタキシャル成長技術により大きな困難なしに対応できた。しかし三次元構造となると質的に異なる技術が要求される。膜厚制御より一次元高い技術としての面内位置制御技術が必要とされる。すなわち、原子位置制御技術が必要であって、結晶成長の性質を巧みに利用しその位置制御を行なわねばならない。そのためには、結晶成長の素過程を充分に理解することが先決である。本稿ではこの視点に立ち、例として主にGaAsのMBE成長をとりあげ原子レベルでの半導体結晶成長機構の理解に関する最近の話題と原子位置制御への課題について述べてみたい。

2. 原子レベルでの成長機構に関する最近の話題

成長機構を論ずるとき、化合物半導体とSi, Geのような元素半導体とでは大きな差がある。それは前者の例としてGaAsを考えると、キンクのような成長点で、GaとAsが交互にとり込まれねばならないことからお互いの供給量が成長素過程に大きく影響する点である。MBEの場合、Asの蒸気

圧によってGaが結晶にとり込まれるまでに拡散する距離が大きく異なる。また、Asの蒸気圧によって表面やステップおよびキンクでの原子の再構成が変るのでこれも成長に大きく影響する。この点、元素半導体にはこのような問題がないのでかなり単純である。しかし本稿の目的である原子位置制御という観点から見て格子定数差のないヘテロ接合が容易な化合物半導体の方がより有利であるのでここでは化合物半導体の成長機構を論ずる。

任意の三次元構造を結晶内に作り込むためには原子一個一個を思う所に配置しながら結晶成長を行なう必要がある。現状はこの目標から見るとはるか手前にあるが、このように人為的に三次元的成長を行なうには超薄膜成長法として用いられてきたMBEおよびMOVPE法から出発することが妥当であろう。この視点に立ち、特にGaAsのMBE法を取りあげその素過程の理解に関する話題につき述べる。

MBE法、MOVPE法ともに“非平衡成長法”と考えられてきた。融液成長や液相エピタキシャル成長(LPE)法のように平衡に極く近い所で行なわれる成長法にくらべ、“非平衡成長法”では急峻な組成および不純物濃度変化が可能なので微細な構造を形成するのに適している。しかし、“非平衡”といっても、どのようにまた、どの程度“非平衡”なのかという問題についてははっきりした答が与えられていない。MBEやMOVPEでも不純物偏析が起ることは良く知られているし、この点から見ればある程度平衡に近い振舞も示している。

この問題に大きな示唆を与える先駆的研究として1985年のNeave等の研究がある¹⁾。彼等は(100)面からわずかに傾いた表面を持つGaAs基板上にGaAsのMBE成長を行ないこの様子をRHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) により観察した。これによると成長温度が低い場合には二次元核の発生と合体を示すRHEED振動が観察されるが成長温度が高い場合にはこの振動が消失する。これを彼等は次のように説明した。すなわち第1図に示すように、微斜面(vicinal surface)を持つ基板には規則正しいステップ列が現れるが、低温ではステップ間に二次元核が発生する。しかし、高温では表面拡散が活発となるので原子はすべてステップに行き成長する

第1図 微斜面上での二つの成長様式とRHEED強度(I_{SB})の振舞¹⁾。

ため核発生は起らずRHEED振動は消滅する。彼等は成長が一層行なわれるまでに原子がステップに達すればステップ間に核発生が生じないとしRHEED振動の発生・消滅の臨界温度におけるGaAs(100)面上のGaの表面拡散係数を求めた。しかし、一層成長するまでにステップに達することが臨界条件ではなく、核発生が起る平均時間までにステップに達することを臨界条件とすべきである。後者の考え方に立ち、我々はNeave等の拡散係数に比べ2~3桁大きな拡散係数を得た²⁾。いずれにしても、ステップは原子の大きな吸込み口として働くため二次元核はステップ間の中央近くで形成されるものと考えられる。このことはシリコンの(111)基板上へのMBE成長においてIchi-kawa等³⁾、Latyshev等⁴⁾によって各々マイクロRHEED、REMによる実験で示されている。ここで問題なのは、ステップが吸込み口となっており、表面拡散が律速過程となっているにしても、ステップではどの程度平衡に近いかということである。ステップでの平衡、非平衡は温度によっても大きく変わるであろうし、ステップの原子構造すなわち微斜面をどの方向に形成するかということでも大きく変わるであろう。我々の現在のGaAs MBE成長に対する結論ではRHEED振動が消滅

するような比較的高温では(100)面上〔110〕方向に傾けた場合には平衡に近く〔110〕方向に傾けた場合には非平衡、(111)B面上では平衡に近いというものである。しかし、これは他の実験により裏づけられねばならない。

RHEED振動が消失する条件下では成長は平行にならんだステップが一方方向に移動するいわゆる“ステップフロー”型で行なわれる。Petroff等⁵⁾はこの事実を巧みに利用し、面内超格子の作製を試みある程度の成功を修めており、Fukui等⁶⁾はMOVPE法により同様な手法を用いてかなり完全なものに近い面内超格子の作製に成功している。これは一つの原子位置制御の試みであり、三次元原子位置制御への第一歩と位置づけることができる。

なぜステップが等間隔にならぶかについてTo-kura等⁷⁾はステップの上側と下側からの表面拡散フラックスに差があると考えシミュレーションを行なうことによりその原因を明らかにした。この効果は表面拡散を通してのステップ間相互作用におけるSchwoebel効果⁸⁾として古くから知られていることではあるが、理想に近い成長系である半導体薄膜成長法でこれが示された意味は大きい。

ステップ端での平衡非平衡の問題に関し、最近平衡説をくつがえす実験結果が得られている。Hata等⁹⁾はGaAsのMBE成長をマイクロRHEEDを用いてモニタすることにより、原子が成長ステップにとり込まれるまでの距離として1~10 μ mを得た。この実験によるとGa原子は何10~何100ものステップをのり越え移動し、最後にステップにとり込まれることになる。ここで問題となるのは成長温度であるが、彼等はこの現象が600 $^{\circ}$ C近くでも起ることを示しておりこれは微斜面上でのRHEED振動の発生消滅臨界温度に近い。したがって、今の所、この二つの実験結果は矛盾した結論を与えておりさらにくわしい実験と理論解析を必要としている。

3. 原子位置制御への課題

— むすびにかえて —

二次元核形成やステップが存在する場所での表面拡散およびステップ間相互作用の理論はすでに20年以上も前にほぼ完成している。しかし、今迄原子レベルで成長の振舞を観察する手段がなかつ

たため理論と実験の精密な比較は困難であった。一方、最近ではRHEEDやマイクロRHEEDおよびREM(反射電顕)等により直接成長をモニタすることが可能となり、原子レベルでの成長の様子がかなり明らかにされるようになった。また、STM(走査トンネル顕微鏡)の出現により結晶表面の原子構造の理解も急速に進んで来た。これ等の状況のもとでは、原子レベルでの成長の素過程に関する理解は急速に進むものと考えられる。

このような背景のもとで原子位置制御技術をどのようにして獲得して行くかが今後の問題である。原子の位置を定めるために考えられることは第1に成長の性質を利用し微細構造を作って行くことで、この例としてはステップ端で成長が行なわれることを利用した面内超格子の作製やマスクエピタキシ技術による量子箱の作製等がある。

一方、直接成長原子を操作し位置を制御しようとするものには原子をイオン化し電磁力を利用しこれを行なおうとするものやSTMのプローブを用いようとするものなどが提案されている。しかし、これ等はまだ半導体に対しては成功する所までは行っていない。本来、後者の行き方が制御性に優れていると考えられるがこの方向の研究はまだ始まったばかりで可能性については全く不透明である。

原子位置制御に関する最大の問題点は成長原子の表面拡散であると考えられる。すなわち、位置を制御しようと思っても拡散により原子が移動してしまつてはそれが困難となる。これを防ぐには低温成長しかないが、この場合格子欠陥の発生が問題となろう。この場合、例えばMEE法(Migration Enhanced Epitaxy)¹⁰⁾などを用いて欠陥の発生を抑制する必要がある。いずれにしても、成長の原子レベルでの理解を進めながら微細な三次元構造を結晶内に作製して行くことは結晶成長の研究者にとってチャレンジすべき高い目標である。

文 献

- 1) J.H. Neave, P.J. Dobson, B.A. Joyce and J. Zhang: Appl. Phys. Lett. **47**, 100 (1985)
- 2) T. Nishinaga and K.I. Cho: Japan. J. Appl. Phys. **27**, L12 (1988)
- 3) M. Ichikawa and T. Doi: Appl. Phys. Lett.

- 50 (1987) 1141.
- 4) A.V. Latyshev, A.L. Aseev, A.B. Krasilnikov and S.I. Stenin: *Phys. Stat. Sol. (a)* **113**, 421 (1989)
- 5) P.M. Petroff, A.C. Gossard and W. Wiegmann: *Appl. Phys. Lett.* **45**, 620 (1984)
- 6) T. Fukui and H. Saitoh: *Appl. Phys. Lett.* **50**, 824 (1987)
- 7) Y. Tokura, H. Saitoh and T. Fukui: *J. Cryst. Growth* **94**, 46 (1989)
- 8) R.L. Schwoebel: *J. Appl. Phys.* **40**, 614 (1969)
- 9) M. Hata, T. Isu, A. Watanabe and Y. Katayama: *J. Vac. Sci. Tech. B* **8**, 692 (1990)
- 10) Y. Horikoshi, M. Kawashima and H. Yamaguchi: *Japan. J. Appl. Phys.* **25**, L868 (1986)