

TR - O - 0058

49

GaAs(111)A面上の横方向p-n接合と基板上の
MBE成長シミュレーション

藤井元忠 武部敏彦 山本悌二 稲井誠

1993. 3. 1.

ATR光電波通信研究所

復 帰 報 告 書

記入日 1993年2月24日

1. 氏名 藤井 元忠
2. 所属 ATR光電波通信研究所 通信デバイス研究室
3. 研究テーマ GaAs(111)A段差基板上的光デバイスの作製
4. 滞在期間 平成2年4月1日～平成5年2月28日
5. 復帰先 三菱電線工業株式会社
伊丹市池尻4丁目3番地
中央研究所 基礎技術研究部 0727(81)8822

6. 主な成果の概要

(1)GaAs(111)A面上の横方向p-n接合の作製と評価

GaAs(111)A面の持つ3回対称性とSi原子のGaAs中での両性不純物としての性質を組み合わせることにより、等価な<100>方向に傾斜した斜面を持つ正三角形の段差構造を形成したGaAs(111)A基板に、SiドーパGaAsのMBE成長を行なうことで、中央の正三角形p型領域を三つのn型斜面で取り囲んだ横方向p-n接合を作製した。

カソードルミネセンス法を用いて横方向p-n接合の光学的評価を行ない、リッジ構造とグループ構造の比較から、リッジ構造の方が電流狭窄層などの平面的な閉じ込め構造への応用に適していることなどを確認した。

(2)段差基板上的MBE成長シミュレーション

段差基板上的MBE成長時のGaアドアトムの表面拡散に起因すると考えられている現象を、拡散係数とドリフト速度に面方位依存性を持たせた拡散モデルでシミュレートすべく検討を行なった。

7. 特記事項

8. まとめ

成果概要(2)に記した項目については、シミュレーションで用いられているパラメータを決める実験あるいは計算を行なうことで、今後発展させる可能性があると考えている。期間内に実験を含めたトータルな研究まで持って行けなかったことが残念である。

しかし、MBE成長をはじめカソードルミネセンス法による評価、結晶成長シミュレーションとこれまでにない研究を体験することができ、非常に有意義な3年間であった。

文献

①誌上論文

1. M. Fujii, T. Yamamoto, M. Shigeta, T. Takebe, K. Kobayashi, S. Hiyamizu and I. Fujimoto, Lateral p-n junctions on GaAs(111)A substrates patterned with equilateral triangles, Surface Science, 267(1992), 26-28
2. M. Fujii, T. Takebe, T. Yamamoto, M. Inai and K. Kobayashi, OPTICAL AND ELECTRICAL CHARACTERIZATION OF LATERAL P-N JUNCTIONS ON GaAs(111)A PATTERNED SUBSTRATES, Superlattices and Microstructures, 12(1992), 167-170
3. 武部、山本、藤井、小林:(111)および(110)面上におけるGaAsのMBE成長、「応用物理」学会誌(1992. 2)

②口頭発表論文

1. 藤井、武部、繁田、山本、小林、冷水(阪大):(111)Aパターン基板上的GaAs(Si)のMBE成長 - CLによる評価 -、第38回応用物理学関係連合講演会(1991. 3)
2. 藤井、山本、繁田、武部、小林、冷水(阪大)、藤本(NHK):Lateral P-N Junctions on (111) A Substrates Patterned with Equilateral Triangles, 5th Inter. Con. on Modulated Semiconductor Structures(1991. 7)
3. 藤井、稲井、山本、武部、小林、下村(阪大)、冷水(阪大)、藤本(NHK):GaAs(111)Aパターン基板上的SiドープGaAsのMBE成長 -CLによる評価(2)-、第52回応用物理学学会学術講演会(1991. 10)
4. 藤井、武部、山本、稲井、小林:Optical and Electrical Characterization of Lateral P-N Junctions on GaAs(111)A Patterned Substrates, 6th Int. Conf. on Superlattices, Microstructures and Microdevices(1992. 8)
5. 武部、山本、藤井、繁田、小林:GaAs(111)A基板のHF系エッチング特性とパターン基板への応用、第38回応用物理学関係連合講演会(1991. 3)
6. 山本、繁田、武部、藤井、小林:GaAs(111)A面上へのMBE成長(アンモニア処理+サーマルエッチによる成長表面の改善)、同上
7. 山本、藤井、武部、繁田、小林:MBE法によるGaAs(111)A段差基板上的GaAs:Siのエピタキシャル成長、10th Symp. Record of Alloy Semiconductor Physics and Elect(1991. 7)
8. 山本、藤井、武部、D. Lovell, 小林:Abrupt Hetero-junctions of AlGaAs/GaAs Quantum Wells Grown on (111)A GaAs Substrates by Molecular Beam Epitaxy, 18th Int. Symp. on GaAs and Related Compound(1991. 9)
9. 稲井、山本、D. Lovell, 藤井、武部、小林、冷水(阪大)、藤本(NHK):(111)AGaAsパターン基板へのGaAs(Si) MBE成長による電流狭窄構造(p-n-p接合)の作製、第52回応用物理学学会学術講演会(1991. 10)
10. 武部、山本、藤井、藤田、小林:GaAs(111)Aパターン基板上的GaAs MBE成長の側壁傾斜角依存性、同上
11. 井上(阪大)、下村(阪大)、冷水(阪大)、山本、藤井、小林:GaAs段差基板上的InGaAs/AlAs歪量子井戸の非線型光学効果、同上
12. 武内(阪大)、下村(阪大)、冷水(阪大)、山本、藤井、小林:微小斜面を持つGaAs段差基板上的GaAsMBE成長、同上
13. 下村(阪大)、冷水(阪大)、山本、藤井、小林:GaAs段差基板サブミクロンファセット上のGaAs/AlAs QWによる横方向のキャリア閉じ込め、同上
14. 武部、山本、藤井、小林、藤本(NHK):GaAs(111)Aパターン基板上的結晶成長と横方向p-n接合の作製、電気学会電子材料研究会「原子オーダー構造制御」(1991. 12)
15. 稲井、山本、D. Lovell、藤井、武部、小林、斎藤(NHK)、藤本(NHK):(111)A GaAsパターン基板上的横方向p-n接合の電気特性、第39回応用物理学関係連合講演会(1992. 3)
16. 武部、藤井、山本、藤田、小林:GaAs(111)Aパターン基板上的GaAs MBE成長におけるコーナーファセットの検討、同上
17. 下村(阪大)、冷水(阪大)、山本、藤井、小林:GaAs段差基板上的GaAsのMBE成長(成長モードの斜面幅依存性)、同上
18. 藤田、稲井、山本、藤井、D. Lovell、武部、篠田、小林:MBE Growth of GaAs P-N Junctions on (111)A GaAs Substrates Using Only Silicon Dopant, 7th Int. Con. on MBE(1992. 8)
19. 武部、藤井、山本、藤田、小林:Study of Facet Generation during MBE of GaAs on (111)A Substrates Patterned with Ridge-Type Triangles, 同上

20. 稲井、山本、武部、藤井、D.Lovell、篠田、藤田、小林:Electrical Characterization and Analysis of Lateral p-n Interfaces on (111)A GaAs Nonplanar substrates by Molecular Beam Epitaxy、1992年国際固体素子・材料コンファレンス(1992.8)
21. 藤田、藤井、山本、武部、小林(NHK):GaAs(111)A基板上AlGaAs成長におけるSiドーピング特性、第53回応用物理学会学術講演会(1992.9)
22. 下村(阪大)、分島(阪大)、冷水(阪大)、佐野(関学)、安立(日新)、山本、藤井、小林:(411)A面GaAs基板上的GaAsMBE成長、同上
23. 山本(阪大)、冷水(阪大)、下村(阪大)、佐野(関学)、安立(日新)、山本、藤井、小林:V溝状GaAs基板上的GaAs/AlAsMBE成長、同上
24. 劉(阪大)、冷水(阪大)、下村(阪大)、蒲生(阪大)、安立(日新)、佐野(関学)、山本、藤井、小林:微細加工した、GaAs基板上へのGaAsのMBE成長、同上
25. 分島(阪大)、井上(阪大)、下村(阪大)、冷水(阪大)、弓場(阪大)、蒲生(阪大)、佐野(関学)、岡本(クボタ)、藤井、山本、小林:段差基板上的InGaAs/AlAs QWのCL発光、同上
26. 稲井、山本、武部、藤井、小林:Effect of Ga Adatom Migration on Electrical Characteristics of Lateral p-n Interfaces on (111)A GaAs Nonplanar Substrates, 19th Int. Sympo. on GaAs and Related Compounds(1992.9)
27. 篠田、山本、稲井、小林、武部、藤井:Low Diffusivity of Acceptor Si Delta-Doped GaAs Layer on GaAs(111)A, 同上

③特許

1. 藤井、山本、繁田、武部、小林、藤本:面発光素子とその製造方法
2. 武部、藤井、山本、繁田、小林、藤本:Ⅲ-V族化合物半導体成長膜の伝導型制御方法
3. 山本、繁田、藤井、武部、小林:GaAs(111)A面基板の表面処理方法
4. 武部、藤井、山本、藤田、小林:Ⅲ-V族化合物半導体薄膜の形成方法

GaAs(111)A面上の横方向p-n接合と
段差基板上的MBE成長シミュレーション

藤井 元忠、武部 敏彦、山本 悌二、稲井 誠

概要

GaAs(111)A面の持つ3回対称性とSi原子のGaAs中での両性不純物としての性質を組み合わせることにより、等価な $\langle 100 \rangle$ 方向に傾斜した斜面を側面とする正三角形状の段差構造を形成したGaAs(111)A基板にSiドープGaAsのMBE成長を行なうことで、中央の正三角形p型領域を三つのn型斜面で取り囲んだ横方向p-n接合を作製できた。カソードルミネセンス法でこの横方向p-n接合の構造を評価するとともに、リッジ構造とグループ構造のコーナーの比較からリッジ構造が電流狭窄構造などの応用に適することを確認した。

また、段差基板上のMBE成長では、成長時のアドアトムの表面拡散に起因すると考えられている層厚や組成の変化といった、構造および電氣的・光学的特性に関する現象がみられる。これら現象を解析するために、Gaアドアトムの拡散係数とドリフト速度に面方位依存性を持たせた拡散モデルを仮定しシミュレーションを行った。

目次

§ 1 序論

§ 2 GaAs(111)A面上の横方向p-n接合

§ 2-1 横方向p-n接合の作製

§ 2-2 カソードルミネセンス法による横方向p-n接合の評価

§ 2-3 リッジ構造とグループ構造の比較

§ 2-4 まとめ(1)

§ 3 段差基板上のMBE成長の数値シミュレーション

§ 3-1 結晶表面の拡散現象

§ 3-2 MBE成長シミュレーション

§ 3-3 ドリフトのある拡散モデルによるMBE成長シミュレーション

§ 3-4 まとめ(2)

謝辞

付録1

参考文献

§ 1 序論

GaAsの属する閃亜鉛鉱型結晶構造では、 $\langle 100 \rangle$ 晶帯軸は2回回転対称軸、 $\langle 111 \rangle$ 晶帯軸は3回回転対称軸である。したがって、通常の(100)基板に矩形状の構造を形成しても、対向する斜面は結晶学的に等価であるが隣り合う斜面は異なる性質を持つことになる。そのため、(100)基板ではV溝構造を用いて微細構造等の研究を行なうことが多い。しかし、(111)A基板の場合は、等価な三つの斜面を持つ正三角形のリッジ、グループ構造を通常の写真リソグラフィーで形成することができるため、これを単位とした素子構造の作製が考えられる。また、GaAs中のSi原子の両性不純物としての振舞いから、基板の面方位を(111)A面から(100)面に傾斜させていくと、同一の成長条件においてSiドープGaAs層の電気伝導型がp型からn型に反転することが知られている。したがって、(111)A基板に(100)方向に傾斜した斜面を持つ段差構造を形成し、SiドープGaAsのMBE成長を行うことによって(111)A面がp型、斜面がn型の横方向p-n接合を作製することができる。

以上のことから、GaAs(111)A面の3回回転対称性とSi原子の両性不純物としての特徴を組み合わせることにより、一回のMBE成長で中央のp型正三角形領域の周囲を三つのn型斜面で取り囲んだ横方向p-n接合構造の作製が可能となる。この横方向p-n接合は、面発光レーザーの電流狭窄層などの二次元的な閉じ込め構造への応用が考えられる。

一方、段差基板を用いたMBE成長では、斜面にファセットが発生したり層厚変化や組成変化などの現象が知られている。これらは成長中のGaやInなどアダトムの結晶表面の拡散現象に起因すると考えられている。今回の研究でも、 $\{411\}$ Aファセットが斜面に発生したり、斜面上下のコーナーで光学的特性に差があるなどMBE成長中のGaアダトムの表面拡散に関係すると思われる現象が見られる。これら現象のMBE成長メカニズムを研究することは、試料の構造や光学的、電気的特性を定量的に評価していく上で重要である。

本報告では、最初にGaAs(111)A基板上の横方向p-n接合の試作とカソードルミネセンスによる光学的評価について述べる。次いで、段差基板上のMBE成長シミュレーションについて、これまで検討した結果について述べる。

§ 2 GaAs(111)A面上の横方向p-n接合

§ 2-1 横方向p-n接合の作製^(1,2)

GaAs中ではSi原子は両性不純物として振舞い、MBE成長層の電気伝導型は(111)A基板上ではp型、(100)基板上ではn型、その中間の面方位においてはp型からn型へと変化する^(3,4,5)。従って、横方向p-n接合を形成するためには、GaAs(111)A基板上に、 $\langle 100 \rangle$ 方向に傾斜した斜面がエッチングで形成されるようにフォトマスクを配置する。図1にエッチングで形成する正三角形形状段差構造の模式図を示す。斜面の傾斜角度は{411}Aファセットが発生しないように 30° とした⁽⁶⁾。また、 As_4/Ga フラックス比(γ)を変えて光学的特性の変化を調べた。以下、フォトリソ工程とMBE成長条件を記す。

《フォトリソ工程》

レジスト AZ1350J
エッチング液 $HF:H_2O_2:H_2O=1:8:500$ 25°C
エッチング量 約 $3\mu m$

《MBE成長条件》

最終化学処理 conc. H_2SO_4 (RT) 1min
 水洗 (流水) 10min
 $HN_4OH:H_2O_2:H_2O=10:5:480$ (25°C) 1min
 水洗 (流水) 5min
 水洗 (静水) 30min
 N_2 ブロー
サーマルクリーニング 680°C (設定値800°C) As圧 3×10^{-5} Torr 5min
基板温度 620°C (設定値700°C)
Ga圧力 5.4×10^{-7} Torr (Flux表示値)
As圧力 1.6×10^{-5} 、 3.0×10^{-5} 、 3.5×10^{-5} Torr (Flux表示値)
 ($\gamma = 5.8$ 、 6.5 、 7.5)
基板回転速度 60rpm
バッファー層 1000Å
成長層厚 $1\mu m$
Si濃度 $1 \times 10^{18} cm^{-3}$

このとき、入射分子線が平行な均一分布でないため同一三角形の三つの斜面間の分子線強度 (比) に差がでるが、その成長層への影響が大きくなるように基板回転数を60rpm程度の高めに保つ。

§ 2-2 カソードルミネセンス法による横方向p-n接合の評価^(1,2)

基板面方位を(111)A面から(100)面に傾斜させていくと、電気伝導型はp型からn型に反転するが、このときフォトルミネセンス(PL)ピーク波長は一旦長波長側にシフトし、伝導型が反転した後は再び短波長側にシフトしていくことが報告されている⁽³⁾。従って、〈100〉方向に傾斜させた斜面に電子線ビームを照射したときのカソードルミネセンス(CL)のピーク波長 λ_p が(111)A面の値よりも短波長側であれば、斜面の伝導型がn型であることが分かる。CLの測定は78Kで行った。斜面、(111)A面からのCLスペクトルと斜面のSEM像、分光器を810nmに合わせて撮影したCL像を図2に示す。この試料では(111)A面の λ_p が約835nmであるのに対して斜面の値は約805nmと短波長側にあり、斜面がn型であることが確認できる。(なお、この試料は§2-1のプロセスとは別条件で作製したものである。この試料の作製条件を付録1に示す。)

図2では斜面からのCLスペクトルとして一つを示してあるが、実際には斜面上の測定場所によってスペクトルが変化する。図2(b)に示した矢印の向きに電子線の照射点をステップさせて測定した λ_p のマッピング図を図3示す。 $\gamma=5.8$ のグラフから、斜面上下のp-n接合で λ_p の変化に差があり、上側の接合の方が下側の接合よりも急峻に伝導型が反転していることが分かる。また γ を高くすると、n型領域の裾が(111)A面に広がるが、斜面の λ_p はより短波長側へとシフトし一定の値に分布していることから、斜面が良好なn型になっていると考えられる。また、斜面下側の接合も急峻になることが分かる。これらの現象は、成長中のGaアトムの結晶表面の拡散が、Si原子のGaAs中への取り込まれかたに影響しているためと思われる。

§ 2-3 リッジ構造とグループ構造の比較⁽²⁾

次に、この構造を電流狭窄構造などに応用していく観点から、リッジ構造とグループ構造の比較を行った。図4に各コーナーの基板エッチング時とMBE成長後のSEM写真を示す。これから分かるように、グループ構造ではエッチング時に丸まったコーナーの形が成長後もほぼそのまま保たれるため、〈011〉方向に傾斜した面が現れている。(011)基板上のSiドープGaAs層の伝導型は成長条件によって変化することが報告されており⁽⁷⁾、従ってこのコーナーの伝導型がp型かn型かを調べる必要がある。図4の矢印の方向に電子線をステップさせてCLのマッピング測定を行った結果を図5に示す。リッジ構造では λ_p が短波長側にシフトしてn型となっているのに対して、グループ構造ではシフトが見られずコーナーの伝導型がp型であることが分かる。図6に分光器を810nmに合わせて撮影したコーナーのCL像を示す。(図6の試料も付録1に示したプロセスで作製したものである。)このことから、

この横方向p-n接合構造を電流狭窄構造などに応用するにはリッジ構造が適しているといえる。図7にn型の波長に合わせたリッジ正三角形状段差構造のCL像を示す。

§ 2-3 まとめ(1)

等価な $\langle 100 \rangle$ 方向に傾斜した斜面を側面とする正三角形状段差構造を形成したGaAs(111)A基板に、SiドープGaAsのMBE成長を行なうことによって、中央の正三角形p型領域を三つのn型斜面で取り囲んだ横方向p-n接合が作製できたことをカソードルミネセンス法で確認した。斜面の上側と下側のp-n接合に特性の差があり上側の接合が急峻であること、フラックス比を高くすることによってより急峻な接合を作製できることが分かった。また、応用的にはリッジ構造とグループ構造のコーナーの比較から、リッジ構造が電流狭窄構造などへの応用に適することを確認した。

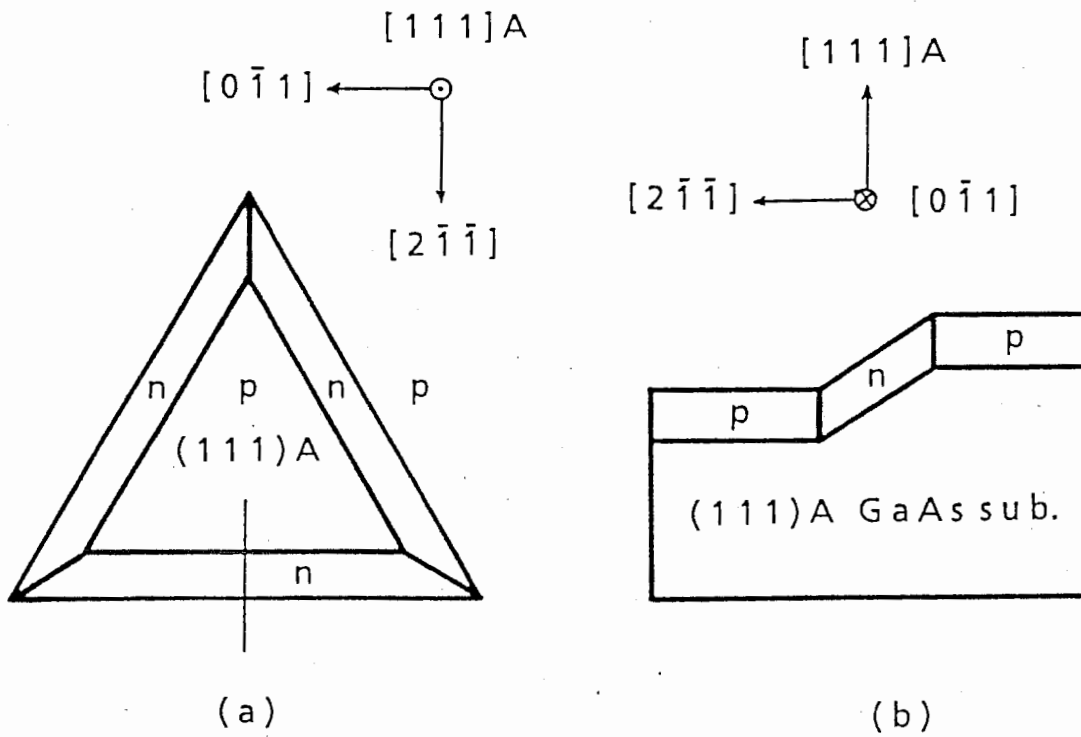


図1 GaAs(111)A基板の上にエッチングで形成するリッジ正三角形状段差構造の(a)正面図と、(b)(a)の斜面に示した実線部分の断面図。グループ構造の場合は、三角形を逆向きにする。

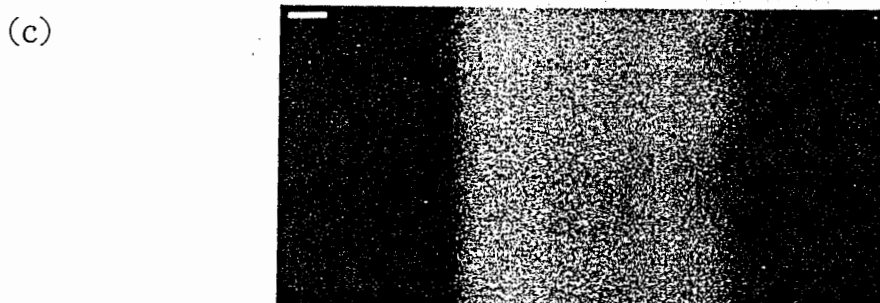
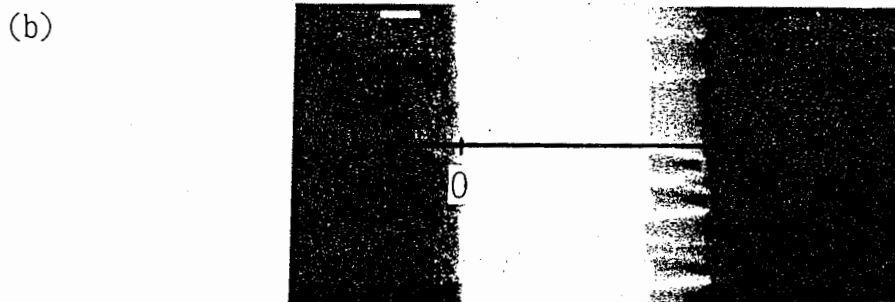
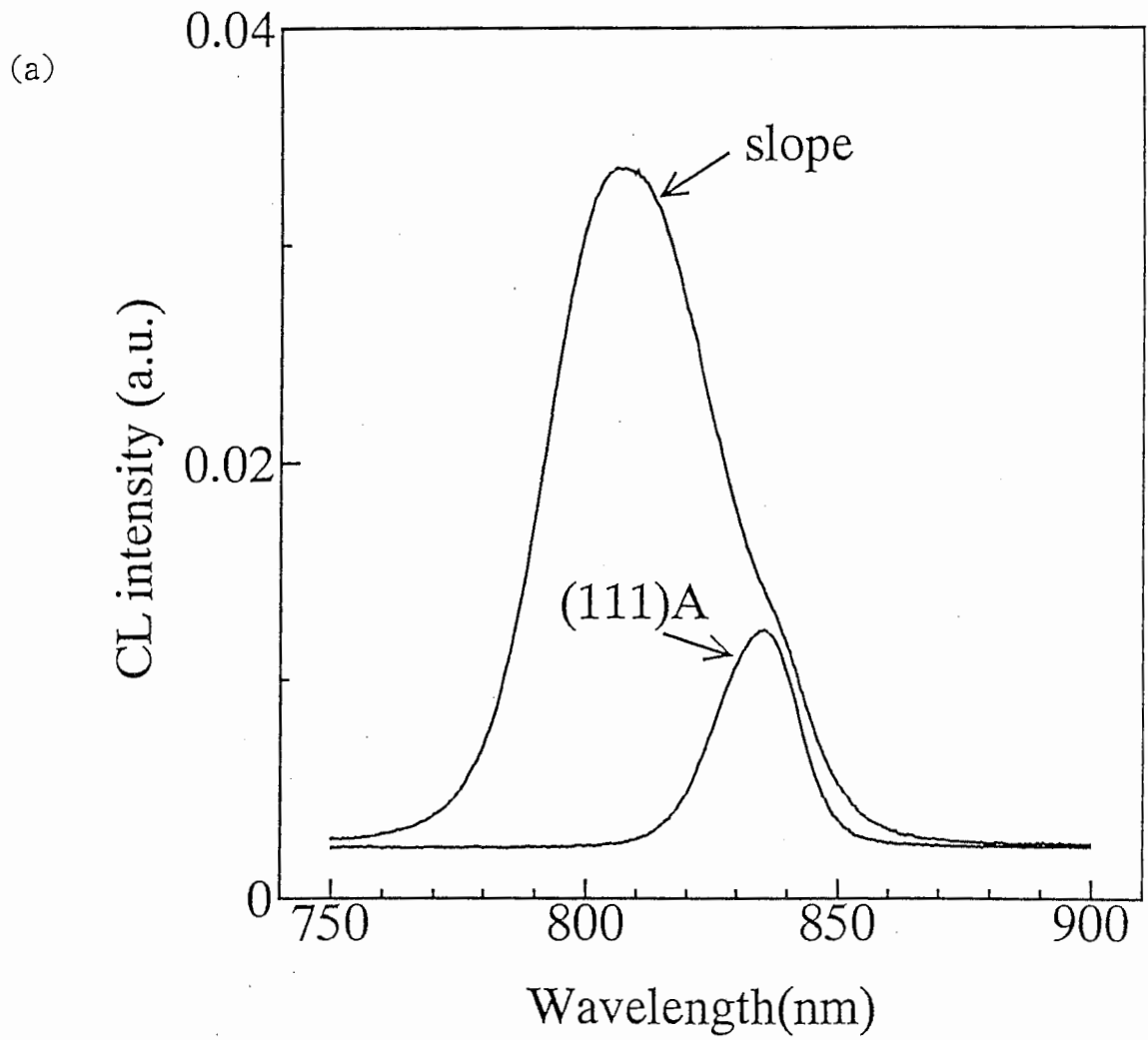


図2 (a)[100]方向に傾斜した斜面と(111)A平面のCLスペクトル、(b)斜面のSEM像、(c)分光器を810nmに合わせて撮影したCL像。(b)の矢印の向きが $[2\bar{1}\bar{1}]$ 方向である。測定温度は78K。マーカーは $1\mu\text{m}$ を示す。

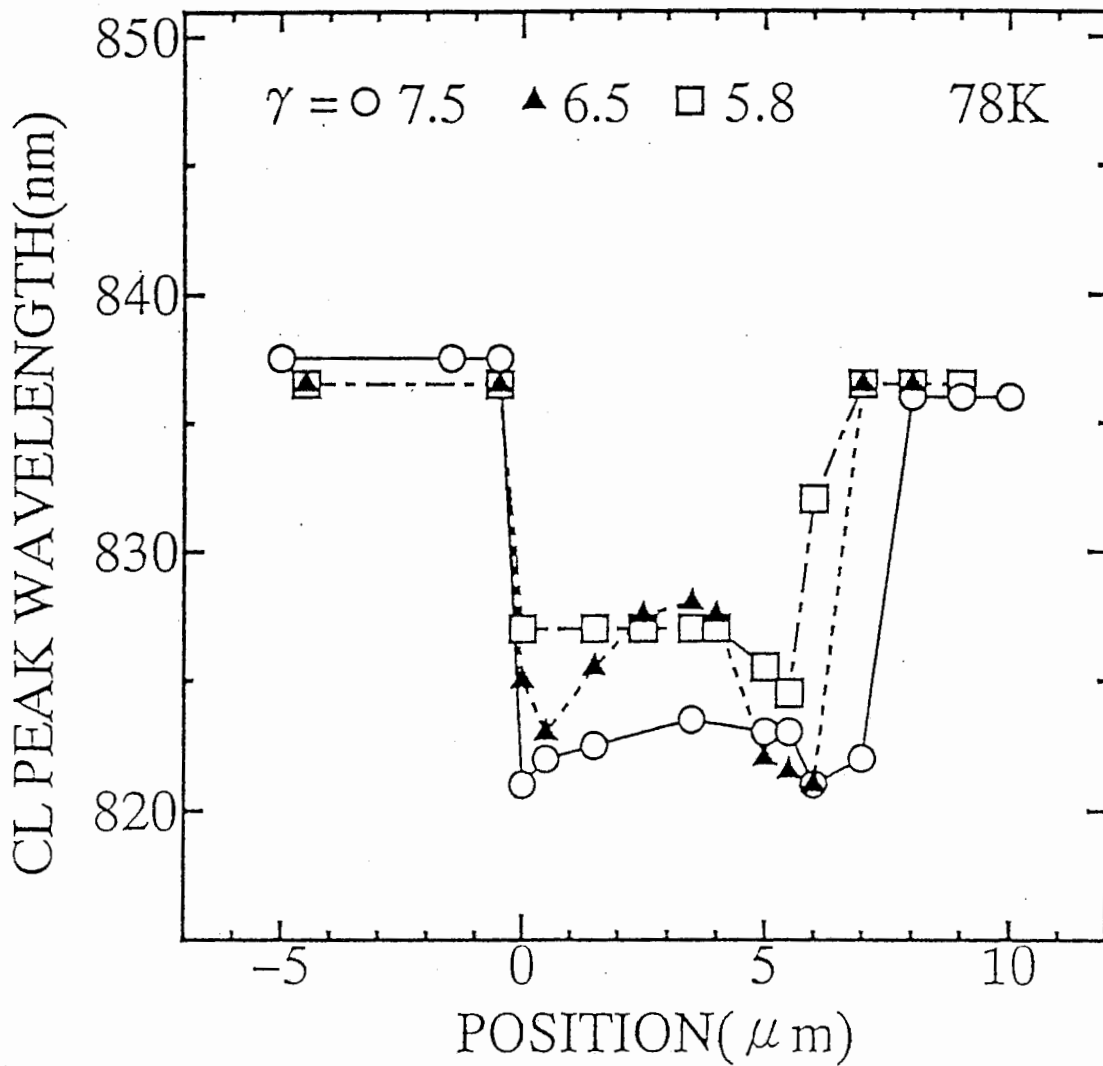


図3 [100]方向に傾斜した斜面のCLピーク波長のマッピング図。横軸は図2(b)に矢印で示した軸上の位置を表わす。MBE成長条件 $\gamma = 5.8$ 、 6.5 、 7.5 の三つの試料を示す。

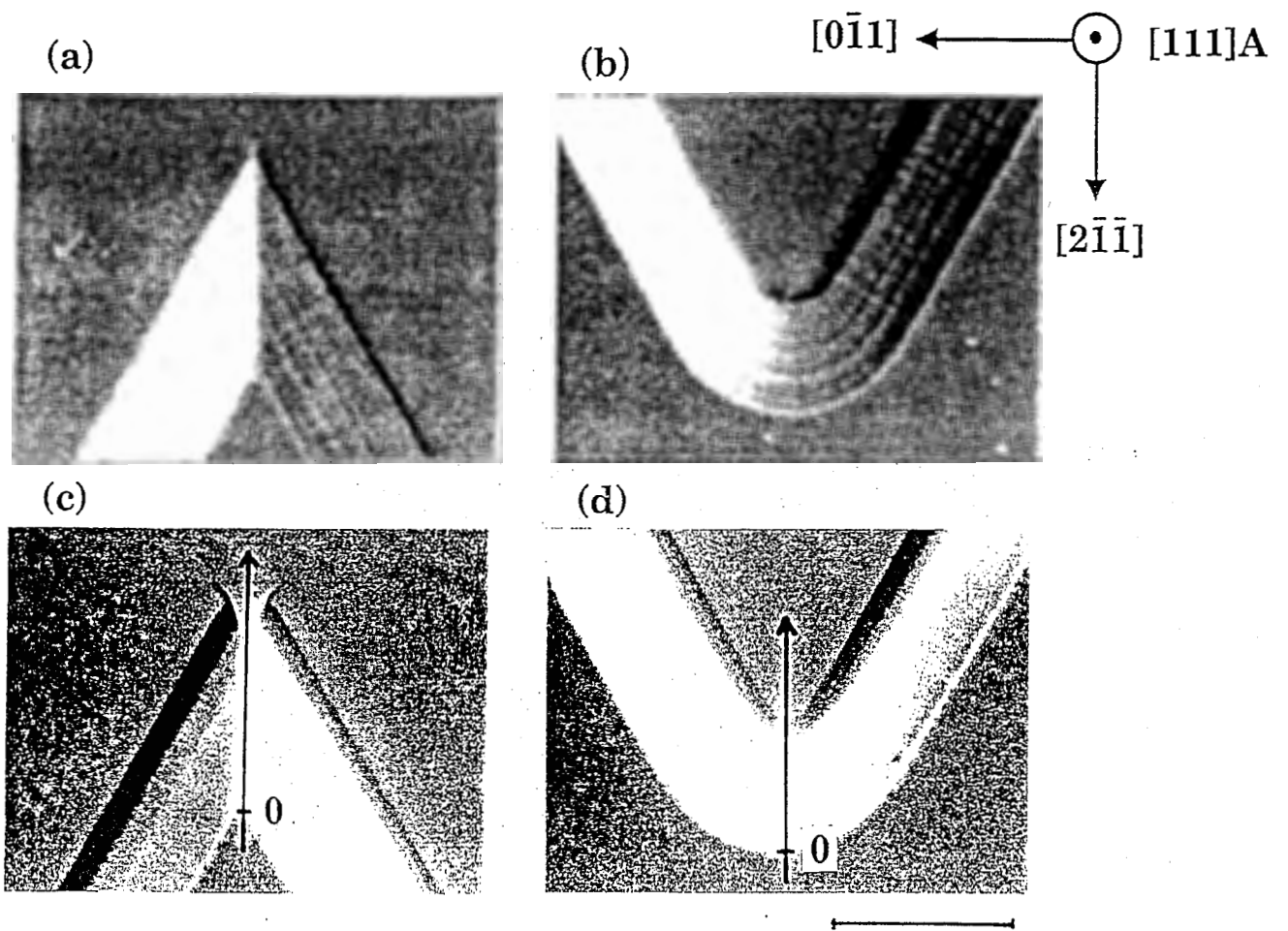


図4 正三角形状段差構造コーナーの基板エッチング表面(a)、(b)とMBE成長表面のSEM像。(a)、(c)がリッジ構造、(b)、(d)がグループ構造。横棒が $1\mu\text{m}$ を示す。

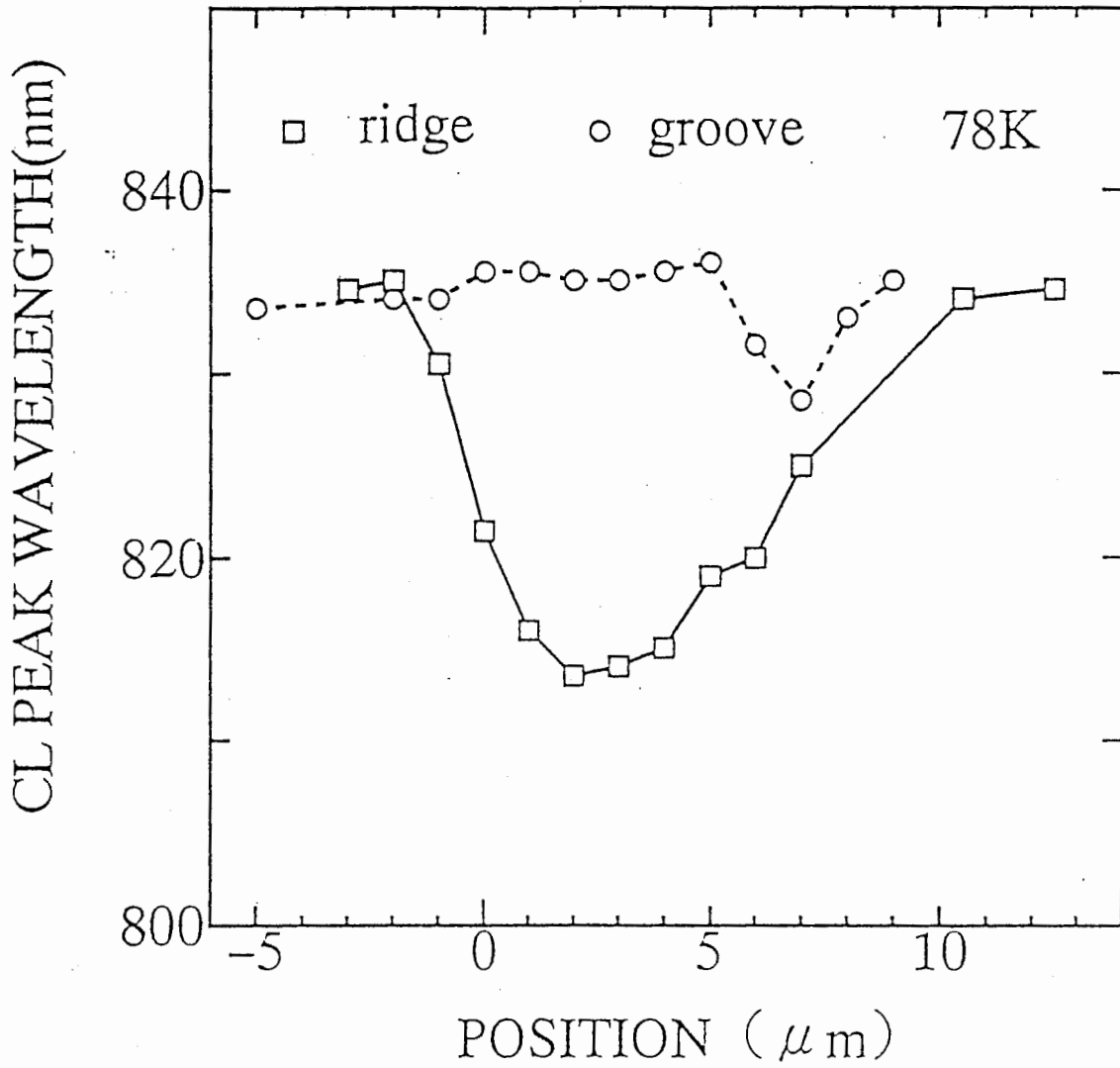
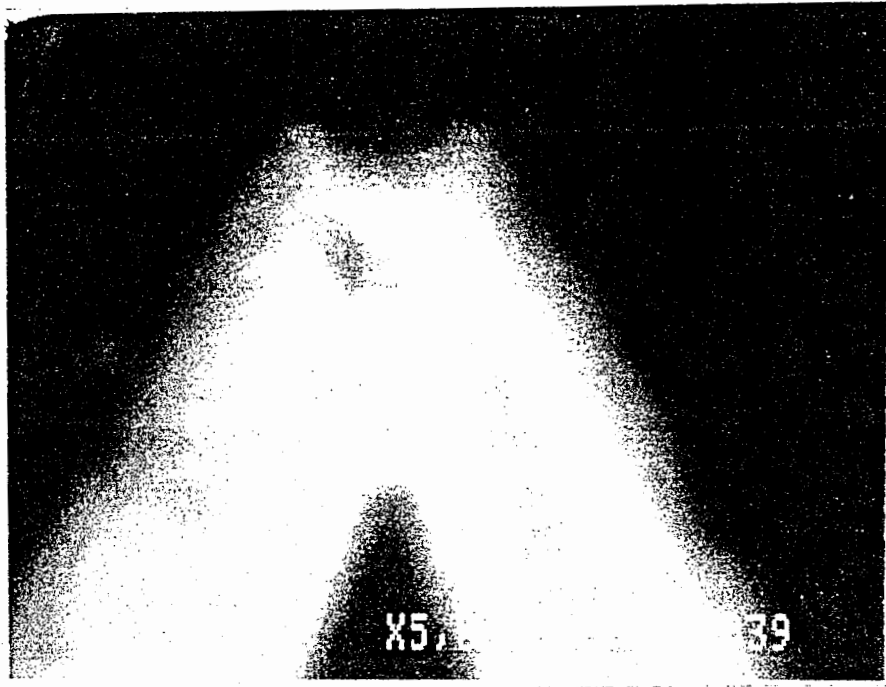


図5 コーナーのCLピーク波長のマッピング図。横軸は図4に矢印で示した軸上の位置を表わす。

(a)



(b)

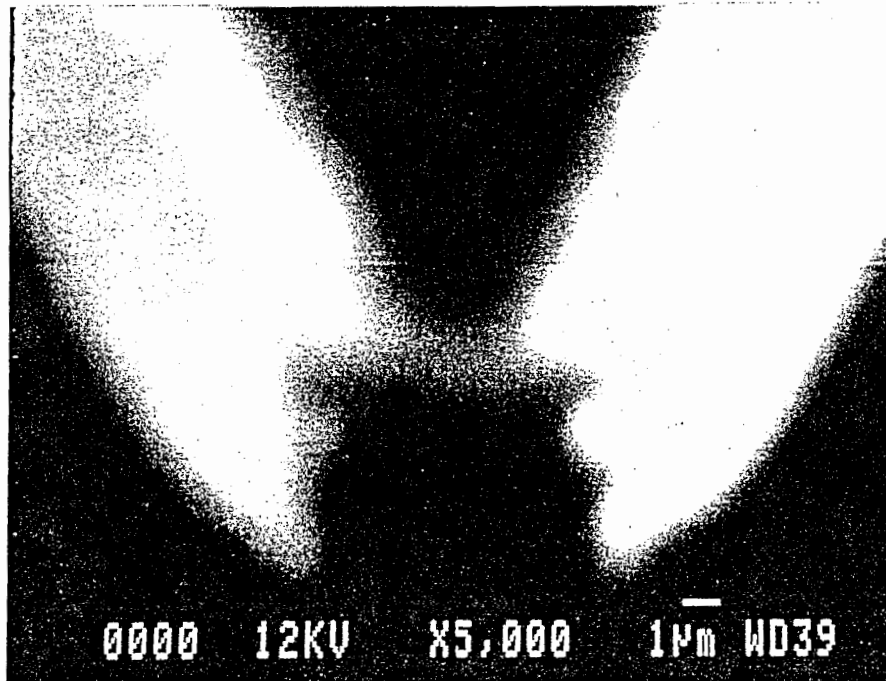


図6 分光器を810nmに合わせて撮影したコーナーのCL像。(a)がリッジ構造、(b)がグループ構造。

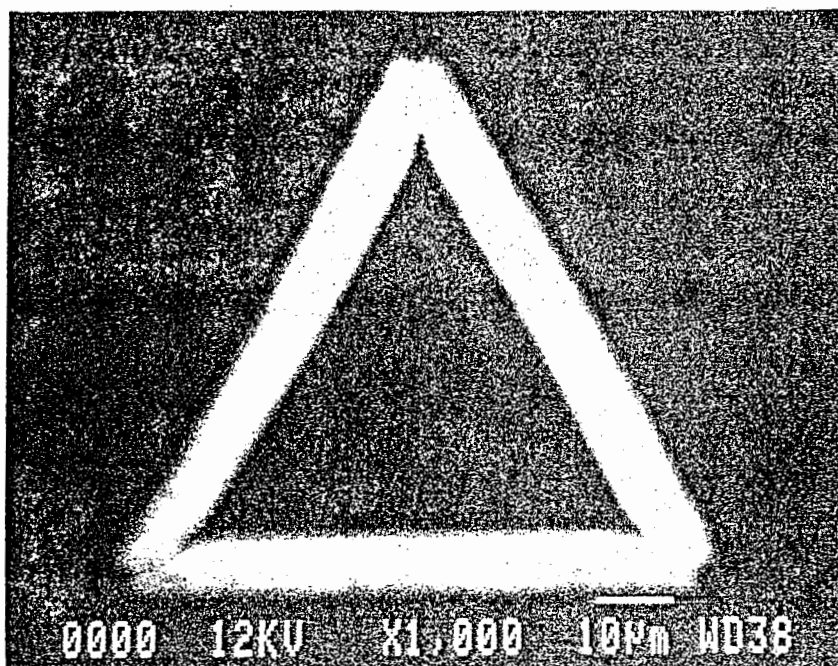


図7 分光器を810nmに合わせて撮影したリッジ正三角形形状段差構造全体のCL像。

§ 3 段差基板上的MBE成長の数値シミュレーション

§ 3-1 結晶表面の拡散現象

段差基板上的MBE成長においては、結晶表面をアドアトムが拡散することによって生じると考えられる現象が多い。リッジあるいはグループ構造のストライプを形成した(100)基板の上にGaAlAs層やMQ層をMBE成長すると、ストライプ中央の平坦部におけるAl濃度や成長層厚がストライプ幅によって変化すること⁽⁸⁾、斜面と(100)面の交差線からの距離によって(100)面の組成や層厚に変化があり、このときの変化が斜面上下の(100)面で異なること⁽⁹⁾などが報告されている。また、(100)基板や(111)A基板に段差を形成しGaAsのMBE成長を行うと、斜面に(411)A面ファセットが発生しファセットの(100)面側に指数関数的な裾が見られるが、これもGaアドアトムの拡散によるものと考えられている⁽¹⁰⁾。我々の(111)A面上の横方向p-n接合においても、§2で述べたように斜面上下のコーナーでCLによる光学的特性に差がみられたり、斜面の傾斜角度によっては指数関数的な裾を持つファセットが発生する。このような現象のMBE成長メカニズムを研究することは、作製した試料の構造や光学的、電気的特性を定量的に評価、議論する上でも重要である。

§ 3-2 MBE成長シミュレーション

このような段差基板上的MBE成長に対する数値シミュレーションとして、面方位による成長速度のデータから結晶の平衡形をWulffの方法で作図する方法⁽¹¹⁾、MBE成長がステップ近傍では平衡状態に近いと仮定し熱力学的な化学ポテンシャルから定常状態の形状を計算する方法⁽¹²⁾、Gaアドアトムの表面拡散方程式を仮定してファセットの発生を導く方法などがある⁽¹³⁾。また、上側のテラスと下側のテラスから拡散してくるGaアドアトムがステップに取り込まれる確率が異なると仮定して、微傾斜基板表面のステップとテラスの成長過程をシミュレートする方法⁽¹⁴⁾も報告されている。しかし、文献(12)は二次元核成長はないと仮定しているためファセットの発生をシミュレートできず、文献(11)の結果も同文献中で比較しているように実際の形状をうまくシミュレートできていない。また、文献(13)ではGaアドアトムが結晶相に取り込まれるまでの平均寿命 τ_c 、すなわち成長速度に面方位依存性を仮定している。しかし、実際に(100)、(311)A、(111)A基板を用いたMBE成長では成長速度は等しく面方位依存性は見られない。この違いの原因は、通常いわれている成長速度の面方位依存性のデータが、段差を形成した(100)基板でMBE成長を行なったときの、(100)面と隣り合うファセット(あるいは斜面)との成長速度の比から求めたもの⁽¹⁵⁾であるためである。この場合、 τ_c には異なる方位の面が接したときの相互作用が含まれてしまっている。また、コーナーの成長形状を、コーナー部分で結晶相に取り込まれるGaアドアトムの数から直接求めることはせず、近似したWulffの作図法を用いて計算している。文献(14)は原子層ステップの移動から結晶形を導く試みであり興味深い。議論が単原子層ステッ

アの微傾斜基板に限られている。実際の色々な傾斜角度の斜面が全て単原子層ステップの積み重ねで形成されていると考えにくいため、この理論を段差基板にそのままあてはめるには無理がある。しかしながら、この手法で微傾斜基板上の分数超格子のテラス幅のオーダリングがうまく説明でき⁽¹⁶⁾、ミクロな視点から巨視的現象をうまく説明している理論として注目に値する。原子の基板上での動的挙動をモンテカルロ法で計算する方法もあるが⁽¹⁷⁾、メモリーと計算時間という物理的制約から現時点では原子層ステップの移動をシミュレートするのが限度であろうと思われる。

§ 3-3 ドリフトのある拡散モデルによるMBE成長シミュレーション

段差基板上MBE成長のシミュレーションを行うに当たり、原子の結晶表面の動的挙動を微視的に扱う立場は避け、文献(13)のGaアトムの表面拡散方程式を修正して計算することとした。まず、実験結果にもとずき τ_c は面方位によらない定数であるとし、拡散係数Dに面方位依存性を与えることとした。図8に $\langle 100 \rangle$ 方向に 3° オフした(111)A基板上のGaAsMBE成長表面のSEM像を示す。全体的に三角形形状のリップル模様が出ているが、微粒子の $\langle 2\bar{1}\bar{1} \rangle$ 側に広がった波紋状の模様があるのが分かる。この模様は、(111)A微傾斜表面をGaアトムが流れた痕跡を示すと思われる。このことからGaアトムのドリフトを仮定し、ドリフト係数に面方位依存性を持たせた。ドリフトの存在と拡散の異方性は対応しており⁽¹⁸⁾、このドリフト項によって平面上のGaアトムの拡散に異方性を設定することができる。ドリフトが生じるのはステップ上下のテラスに存在しているアトムが、ステップに取り込まれる確率に差があるためと考え、ドリフト項の導入は文献(14)と同じ考え方である。しかし、文献(14)では単原子層ステップとして扱うことのできる傾斜角度に議論を限っているが、ここではそれ以外の傾斜角度についても、巨視的変数であるドリフト速度に面方位依存性を与えることで同様に議論することができることと仮定した。また、段差基板上の異なる面方位の斜面が接する場合の相互作用を、拡散係数およびドリフト速度に面方位依存性を与えることで表わせると仮定した。

ドリフトのある拡散方程式はFokker-Planck方程式で表わされ⁽¹⁸⁾、結晶表面のGaアトムの拡散に適用すると次式となる。

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial s} \left(D \frac{\partial u}{\partial s} \right) - \frac{\partial}{\partial s} (2cu) - \frac{u}{\tau_c} + j \quad (1)$$

ここで、 u がGaアトムの面密度であり、拡散係数Dとドリフト速度 c に面方位依存性を持たせ、Gaアトムが結晶相に取り込まれるまでの平均寿命 τ_c は面方位

によらないと仮定する。また、Gaアトム結晶表面からの離脱は無視した。 s は結晶表面に沿った距離、 j は空間から入射してくるGaフラックスである。

図9をもとに離散化

$$\begin{aligned}
 x &\rightarrow x_m = m \cdot \Delta x & (m = 0, 1, 2, 3, \dots, M) \\
 t &\rightarrow t_n = n \cdot \Delta t & (n = 0, 1, 2, \dots) \\
 u(s, t) &\rightarrow u_{m,n} & (m = 1, 2, 3, \dots, M) \\
 D &\rightarrow D_{m,n} & (m = 1, 2, 3, \dots, M) \\
 c &\rightarrow c_{m,n} & (m = 1, 2, 3, \dots, M) \\
 j &\rightarrow j_{m,n} & (m = 1, 2, 3, \dots, M)
 \end{aligned}$$

と、距離 s と位置 x の変数変換を行なうと(1)式の差分近似式として次式を得る。

$$\begin{aligned}
 u_{m,n+1} &= \left(4 \frac{\Delta t}{\Delta S} c_{m-1,n} + 32r \frac{\Delta s_{m+1,n} + \Delta s_{m,n}}{\Delta S} D_{m-1,n} \right) u_{m-1,n} \\
 &+ \left(1 - \frac{\Delta t}{\tau_c} - 32r D_{m,n} \right) u_{m,n} \\
 &+ \left(-4 \frac{\Delta t}{\Delta S} c_{m+1,n} + 32r \frac{\Delta s_{m,n} + \Delta s_{m-1,n}}{\Delta S} D_{m+1,n} \right) u_{m+1,n} \\
 &+ j_{m,n} \Delta t
 \end{aligned} \tag{2}$$

ここで、

$$\begin{aligned}
 \Delta S &= \Delta s_{m+1,n} + 2\Delta s_{m,n} + \Delta s_{m-1,n} \\
 r &= \frac{\Delta t}{(\Delta S)^2} \\
 \Delta s_{m,n} &= \sqrt{(\Delta x)^2 + (z_{m,n} - z_{m-1,n})^2}
 \end{aligned}$$

である。

時刻 t_n における区間 (x_{n-1}, x_n) の成長層厚は、

$$\frac{u_{m,n}}{\tau_c} \cdot \Delta t \tag{3}$$

からもとまる。このとき、位置 x_m に対して左右の区間 (x_{m-1}, x_m) と (x_m, x_{m+1}) から各々層厚が与えられるが、隣り合う区間の作る形状がconcaveの場合は厚い方、convexの場合は薄い方の値を採用して時刻 t_{n+1} における $z_{m,n+1}$ を計算した。基板は、対称性の点から計算が簡単な(100)面の(011)断面を仮定し、境界条件 $u_{1,n}$ 、 $u_{M,n}$ として(100)面の成長速度に相当する値を与えた。

計算にあたり D と c の面方位依存性に関する具体的なデータが存在しないため、 D と c について色々と仮定して、実際のMBE成長形状とのフィティングを試みた。

まず、傾斜角度の緩い斜面で拡散係数、ドリフト速度の効果を調べた。図10に結果を示す。斜面の傾斜角は 15° である。 $c=0$ 、 $D=0$ とすると(a)に示すように、コーナーが角張ったままの形状を保って成長していく。一方、 $c=0$ で斜面の傾斜角度に比例（反比例）して D が大きく（小さく）なるとした場合は(b) ((c)) に示すようにコーナーに丸みができるが、上下のコーナーが右側（左側）に移動している。また、(c)の場合はコーナー下側の(100)面の層厚が薄くなっている。 D が傾斜角に比例し、斜面の下向きにドリフトがあるとすると(d)となる。実際の斜面のSEM像⁽⁶⁾（図11）と比較すると(d)がよく一致しており、 D と c を組み合わせて設定すれば実際の形状をうまくシミュレートできると考えられる。

しかしながら、(d)の場合においても斜面上下のコーナーの形状の違いがでておらず、当初の目的とした指数関数的な裾をひいた(411)Aファセットについても、現時点では実際の形状と一致する結果は得られていない。これは、考えている断面の全傾斜角度について D と c の値を設定する必要があるが、具体的なデータのない現時点においては斜面の形状から D と d を逆にフィティングするのが難しいという理由がある。従って、今回用いたモデルの正否の結論を含め今後議論を進展させていくには、各面方位についての拡散係数 D とドリフト速度 c について、実験あるいは文献(14)の議論を応用した計算を行なうなどして求めた値を用いて、計算を行なう必要がある。また、複数の優先的な面（例えば{100}, {111}, {011}面など）が組み合わさった段差で斜面を表わすなど、モデルに対しても検討を重ねていく必要があると思われる。

§ 3-4 まとめ(2)

Gaアドアトムのドリフトを仮定し、拡散係数およびドリフト速度に面方位依存性を与えた表面拡散方程式を用いて、段差基板上のGaAsMBE成長のシミュレーションを行なった。傾斜角度の緩い斜面の計算結果は、拡散係数とドリフト速度をうまく設定することで実際の成長形状をシミュレートできる可能性を示していると思われる。しかし、今後今回用いたモデルの正否の結論を含めさらに議論を発展させていくには、各面方位についての拡散係数とドリフト速度について、実験あるいは文献(14)の議論を応用した計算を行なうなどして求めた値を用いて、計算を行なっていく必要がある。



図8 $\langle 100 \rangle$方向に 3° オフした(111)A基板上的GaAsMBE成長層表面のSEM像。白く見える微粒子の$\langle 2\bar{1}\bar{1} \rangle$側に広がった波紋状の模様が見える。

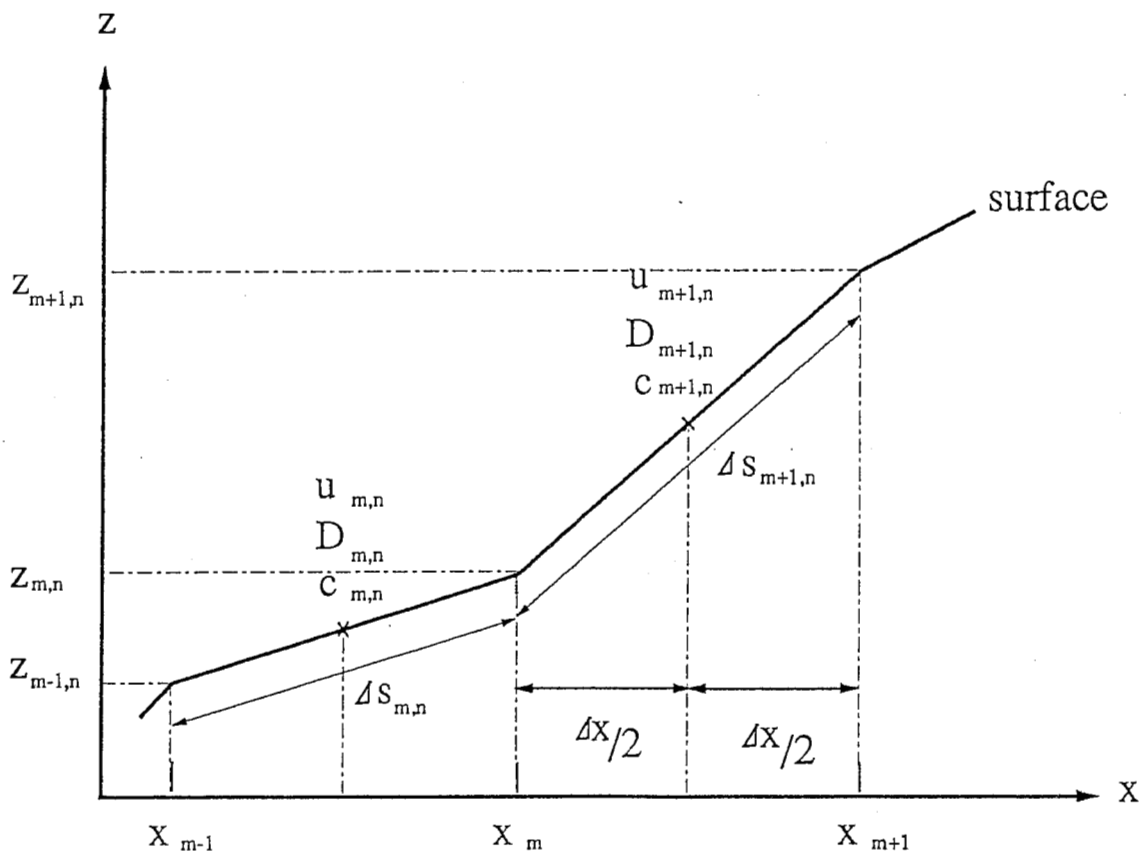


図9 差分近似に用いた格子点。

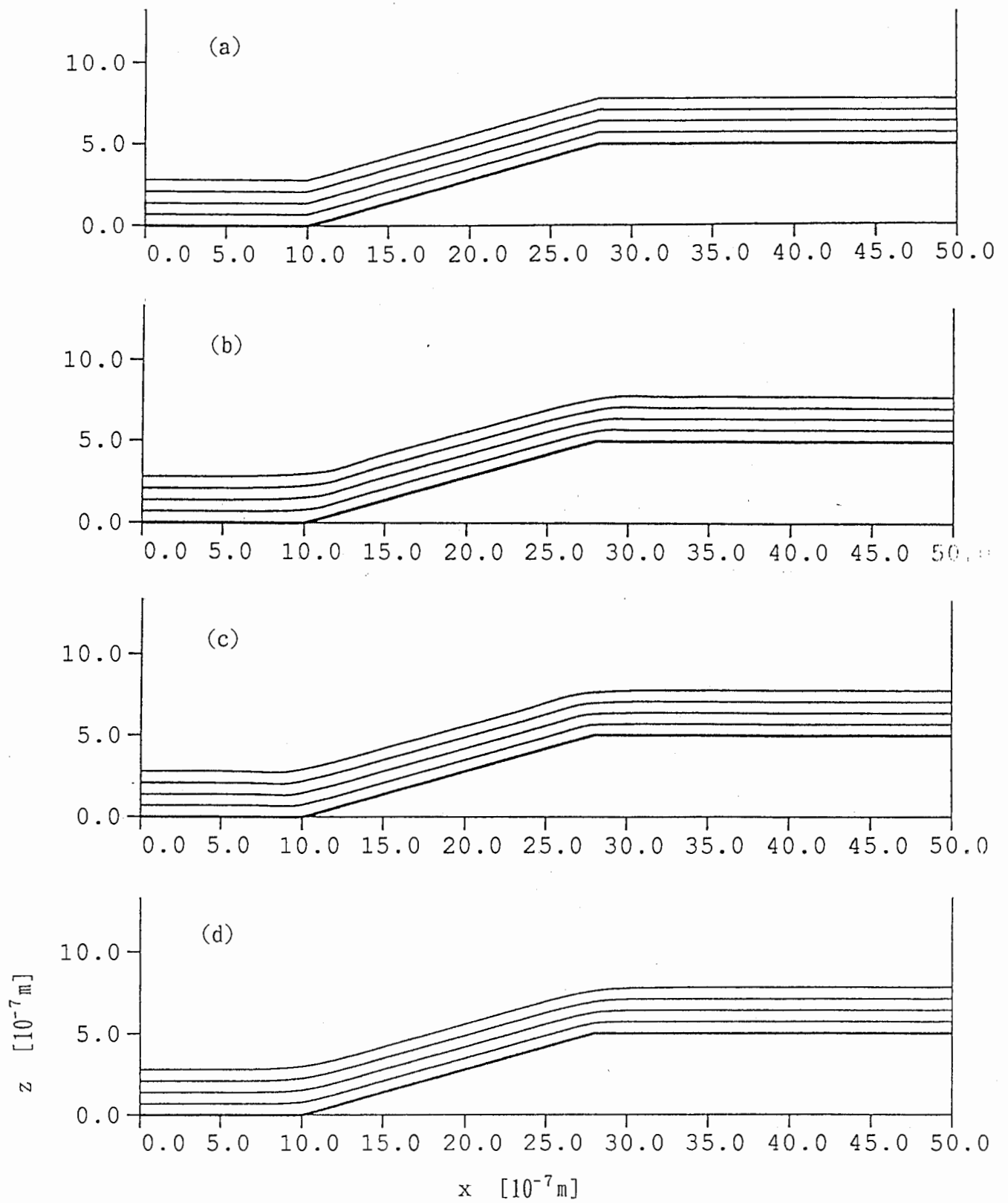


図10 $[0\bar{1}1]$ 方向に平行に走る傾斜角 15° の斜面を形成した(100)基板上のMBE成長シミュレーション。断面は $(0\bar{1}1)$ 面である。(a) $c=0$ 、 $D=0$ の場合、(b) $c=0$ で傾斜角に比例して D が大きくなるとした場合、(c) $c=0$ で傾斜角に反比例して D が小さくなるとした場合、(d) D が傾斜角に比例し、斜面下向きにドリフトがあるとした場合。

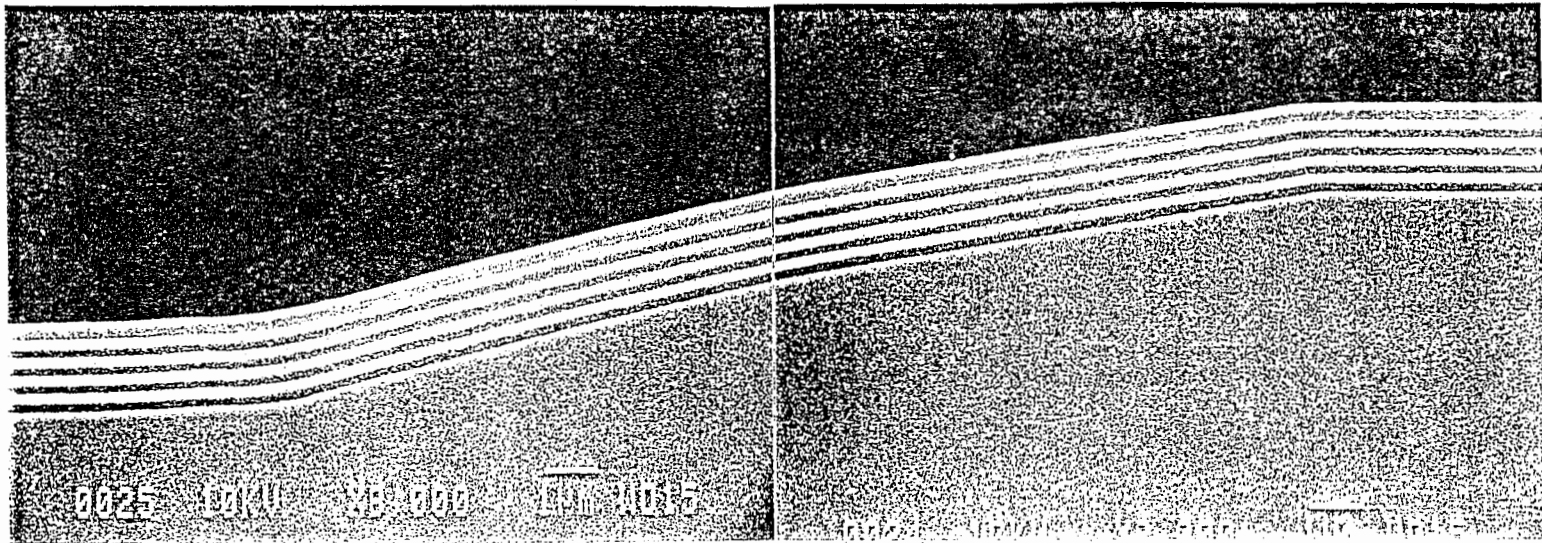


図11 $[0\bar{1}1]$ 方向に平行に走る傾斜角 $10^\circ \sim 15^\circ$ の斜面を形成した(100)基板上のGaAs/AlGaAs多層構造MBE成長層の $(0\bar{1}1)$ 劈開断面図⁽⁶⁾。

謝辞

本研究の遂行に際しご指導を賜りました(株)ATR光電波通信研究所 古濱洋治社長、渡辺 敏英室長、小林 規矩男前室長(現 NHK放送技術研究所)に感謝致します。また、計算機の利用に当たりご助力を頂きました方々に感謝いたします。最後に、日頃から有益な討論をして頂きました材料物性グループの方々に深く感謝いたします。

付録1 図2、図6に用いた試料の作製条件

〈フォトリソ工程〉

レジスト AZ1350J
エッチング液 $\text{H}_3\text{PO}_4:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O}=3:1:50$ 40℃
エッチング量 約4 μm

〈MBE成長条件〉

最終化学処理 本文中と同じ
サーマルクリーニング 680℃ (設定値800℃) As圧 4×10^{-5} Torr 5min
基板温度 620℃ (設定値700℃)
Ga圧力 6.8×10^{-7} Torr (Flux表示値)
As圧力 4.0×10^{-5} Torr (Flux表示値) ($\gamma = 6.8$)
基板回転速度 60rpm
バッファー層 1000Å
成長層厚 3.6 μm
Si濃度 $1 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$

参考文献

- (1) M. Fujii, T. Yamamoto, M. Shigeta, T. Takebe, K. Kobayashi, S. Hiyamizu and I. Fujimoto, *Surface Science* 267(1992) 26
- (2) M. Fujii, T. Takebe, T. Yamamoto, M. Inai and K. Kobayashi, *Superlattices and Microstructures* 12(1992) 167
- (3) Y. Okano, M. Shigeta, H. Seto, H. Katahama, S. Nishine and I. Fujimoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* 29(1990) L1357
- (4) M. Shigeta, Y. Okano, H. Seto, H. Katahama, S. Nishine K. Kobayashi and I. Fujimoto, *J. Crystal. Growth* 111(1991) 284
- (5) W. I. Wang, *Surface Science* 174(1986) 31
- (6) T. Takebe, M. Fujii, T. Yamamoto, K. Fujita and K. Kobayashi, presented at 7th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (Aug. 24-28 1992, Schwäbisch Gmünd, Germany)
- (7) J. M. Ballingall and C. E. C. Wood, *Appl. Phys. Lett.* 41(1982) 947
- (8) H. P. Meier, E. Van Gieson, W. Walter, C. Harder, M. Krahl and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.* 54(1989) 433
- (9) S. Nilsson, E. Van Gieson, D. J. Arent, H. P. Meier, W. Walter and T. Forster, *Appl. Phys. Lett.* 55(1989) 972
- (10) M. Hata, T. Isu, A. Watanabe and Y. Katayama, *J. Vac. Sci. Technol.* B8(1990) 692 ; M. Hata, T. Isu, A. Watanabe and Y. Katayama, *Appl. Phys. Lett.* 56(1990) 2542
- (11) S. H. Jones, L. K. Seidel, K. M. Lau and M. Harold, *J. Crystal. Growth* 108(1991) 73
- (12) M. Ozdemir and A. Zangwill, *J. Vac. Sci. Technol.* A10(1992) 684
- (13) M. Ohtsuka and S. Miyazawa, *J. Appl. Phys.* 64(1988) 3522 ; M. Ohtsuka and A. Suzuki, *J. Crystal. Growth* 95(1989) 55
- (14) E. Colas, G. C. Nihous and D. M. Hwang, *J. Vac. Sci. Technol.* A10(1992) 691
- (15) J. S. Smith, P. L. Derry, S. Margalit and A. Yariv, *Appl. Phys. Lett.* 47(1985) 712
- (16) Y. Tokura, H. Saito and T. Fukui, *J. Crystal. Growth* 94(1989) 46
- (17) T. Ito, T. Ohno and K. Shiraish, *Eleventh Record of Alloy Semiconductor Physics and Electronics Symposium*, 237, Kyoto(1992)
- (18) 例えば H. Haken, *Synergetics* (日本語訳「共同現象の数理」、東海大学出版会) ; W. Feller, *An Introduction to Probability Theory and Its Applications* (日本語訳「確率論とその応用」、紀伊国屋書店)