

GaN MOVPE における気相中および基板上での反応プロセス解明

Analysis of the Reaction Process in the Vapor Phase and on the Substrate during GaN MOVPE

名大院工¹, 名大未来研², 九大応力研³ ○関口 一樹¹, 白川 裕規¹, 長川 健太¹,
洗平 昌晃^{2,1}, 寒川 義裕^{3,2}, 柿本 浩一³, 白石 賢二^{2,1}

Graduate School of Engineering, Nagoya Univ.¹, IMASS, Nagoya Univ.², RIAM, Kyushu Univ.³,

○Kazuki Sekiguchi¹, Hiroki Shirakawa¹, Kenta Chokawa¹, Masaaki Araidai^{2,1},

Yoshihiro Kangawa^{3,2}, Koichi Kakimoto³, Kenji Shiraishi^{2,1}

E-mail: sekiguchi@fluid.cse.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに

次世代パワー半導体である GaN の高品質化を目指し、その結晶成長についての研究は盛んに行われているが、Ga 原料ガスである TMG (Trimethylgallium: $[\text{Ga}(\text{CH}_3)_3]$) の詳細な分解メカニズムは不明である。私たちは、MOVPE (Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy) 法[1]における TMG の分解プロセスを第一原理計算および熱力学計算に基づいて解析しており、先行研究において、現在の結晶成長流体シミュレーションプログラム[2,3]に組み込まれているアダクト形成反応は起こらないことを提言した[4]。したがって、新たな流体プログラムを開発する必要がある、そのために本研究では、形成エネルギーと活性化エネルギーを考慮することで詳細な TMG の分解プロセスを解明していく。

2. 計算手法

気相の Gibbs 自由エネルギー[5]の温度変化を解析し、気相反応前後のエネルギー差である形成エネルギー ΔG を計算することで、反応の起こりやすさを検討した。分圧等の計算条件は MOVPE 法の成長条件(V/III 比、TMG の初期分圧等)をもとに決定した。さらにその結果から反応の最小エネルギー経路 MEP 及び活性化エネルギーを遷移状態理論に基づく NEB (Nudged Elastic Band)法を用いて解析した。また、基底状態のエネルギー等は密度汎関数法に基づく第一原理計算コードである VASP (Vienna Ab-initio Simulation Package)[6]を用いた。

3. 計算結果と考察

TMG はまず H_2 と反応することでメチル基を1つ脱離させ $(\text{CH}_3)_2\text{GaH}$ に分解する。このときの形成エネルギーは流入口付近の温度 300K で -0.73eV であり、 $(\text{CH}_3)_2\text{GaH}$ に分解した方が安定であることを示す。さらにこの反応の 0K での活性化エネルギーは 1.21eV であり、このバリアの高さは炉内温度(300~1300K)環境下では比較的容易に越えることができる。次に $(\text{CH}_3)_2\text{GaH}$ が $(\text{CH}_3)\text{GaH}_2$ に分解する反応における活性化エネルギー 1.21eV であり、この反応も

容易に進行だろう。さらに $(\text{CH}_3)\text{GaH}_2$ は 1.18eV のバリアを超えて GaH_3 に、 GaH_3 は 1.81eV のバリアを超えて GaH へ分解していく。したがって、TMG の主反応経路は Fig.1 で示す通り、 $\text{Ga}(\text{CH}_3)_3 \rightarrow (\text{CH}_3)_2\text{GaH} \rightarrow (\text{CH}_3)\text{GaH}_2 \rightarrow \text{GaH}_3 \rightarrow \text{GaH}$ のように反応が進み、この結果は永松らの高精度質量分析の実験と定性的に一致する[7]。本講演では、最終的に生成される GaH および N 原の NH_3 が GaN 基板表面でどのように反応して結晶成長が進行してくかにも議論していく。

謝辞

本研究は文部科学省「省エネルギー社会の実現に資する次世代半導体研究開発」の委託を受けたものです。

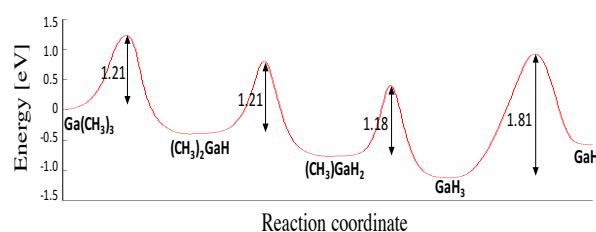


Fig. 1 Calculated the activation energy of the main reaction path of TMG during GaN MOVPE. It is based on NEB method.

References

- [1] H. Amano et al., Appl. Phys. Lett. 48, 353 (1986).
- [2] A. Thon and T. F. Kuech, Appl. Phys. Lett. 69, 55 (1996).
- [3] D. Sengupta et al., J. Cryst. Growth **279**, 369 (2005).
- [4] K. Sekiguchi et al., Jpn. J. Appl. Phys., in press.
- [5] Y. Kangawa et al., Surf. Sci. 493, 178 (2001).
- [6] G. Kresse and J. Furthmüller, Phys. Rev. B **54**, 11169, (1996).
- [7] K. Nagamatsu et al., phys. status solidi b, in press.