

OVPE 成長条件下における GaN 表面構造および O 不純物の脱離エネルギーの解析

Stable Surface Structures of GaN Under OVPE Growth Conditions and Desorption Energy of Oxygen Impurities

○河村 貴宏^{1,2}、北本 啓²、今出 完²、吉村 政志²、森 勇介²、森川 良忠²、
寒川 義裕³、柿本 浩一³ (1. 三重大院工、2. 阪大院工、3. 九大応力研)
○Takahiro Kawamura^{1,2}, Akira Kitamoto², Mamoru Imade², Masashi Yoshimura²,
Yusuke Mori², Yoshitada Morikawa², Yoshihiro Kangawa³, Koichi Kakimoto³
(1. Mie Univ., 2. Osaka Univ., 3. RIAM, Kyushu Univ.)
E-mail: tkawamura@mach.mie-u.ac.jp

はじめに Oxide Vapor Phase Epitaxy (OVPE) 法による GaN 成長では O 不純物量の制御が課題となっており、O 原子種を考慮した GaN 成長過程の理解が求められている。その一環として本研究では第一原理計算を用いて OVPE 成長条件下における GaN 極性面、非極性面、半極性面の表面構造の比較を行った。また、各表面からの O 不純物の脱離エネルギーを求め、その結果から O 不純物の取り込みに関する面方位依存性について考察した。

計算方法 解析には第一原理分子動力学プログラム“STATE-Senri”[1]を用いた。各面上に Ga, N, H, O で構成される原子・分子を吸着させた表面構造モデルについて解析を行い、得られた全エネルギー値を用いて表面生成エネルギーを計算した [2]。各表面構造の表面生成エネルギーを比較することで、温度・圧力と安定な表面構造の関係を表面状態図にまとめた。また、結晶表面に O 不純物 (O 原子, OH, H₂O) が吸着している場合は、それらの脱離エネルギーと脱離速度を求めた。

結果および考察 表面状態図の例として図 1 に GaN(10-11) 面の結果を示す。グラフの縦軸は温度、横軸は Ga 圧力である。O 圧力は Ga 圧力の半分とし、NH₃ と H₂ の圧力は 0.1 atm で一定とした。代表的な成長条件である温度 1500 K, Ga 圧力が 10⁻²–10⁻³ atm の場合、最表面から配位数 2 の N を取り除き、そこに O が結合した構造 (図中の 4N_v+4N-H+Ga-O) が安定であることが分かった。次に、各面上に吸着した O 不純物の脱離エネルギーとその脱離速度を表 1 に示す。ここでは不純物が脱離する際にエネルギー障壁は無いと仮定した。また、脱離速度は一次の反応速度式 ($k = A \exp(-E/k_B T)$, A : 10¹³ s⁻¹, E : 活性化エネルギー, k_B : ボルツマン定数, T : 1500 K) より計算した。この結果から、(000-1) 面と (10-11) 面に結合した O 原子が非常に脱離し難いことが分かったため、O 不純物の低減という観点からは N 極性面での成長は好ましくないと考えられる。

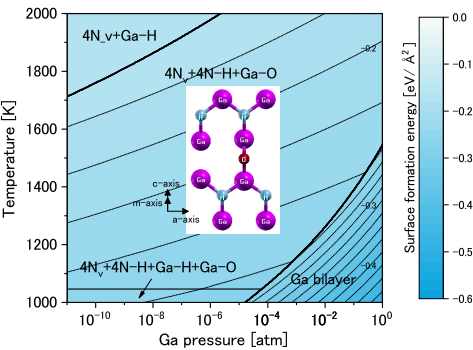


図 1: GaN(10-11) 面の表面状態図

表 1: O 不純物の脱離エネルギーと脱離速度

結晶面	O 不純物	脱離エネルギー [eV]	脱離速度 [s ⁻¹]
(0001)	OH	5.31	1.44×10 ⁻⁵
(0001)	H ₂ O	1.63	3.34×10 ⁷
(000-1)	O	6.41	2.91×10 ⁻⁹
(000-1)	OH	3.96	4.95×10 ⁻¹
(11-20)	OH	5.23	2.68×10 ⁻⁵
(11-20)	H ₂ O	0.38	5.29×10 ¹¹
(1-100)	OH	4.96	2.16×10 ⁻⁴
(1-100)	H ₂ O	0.18	2.48×10 ¹²
(10-11)	O	7.41	1.27×10 ⁻¹²
(10-1-1)	OH	4.28	4.17×10 ⁻²
(10-1-1)	OH	4.00	3.64×10 ⁻¹

[1] Y. Morikawa, Phys. Rev. B **51**, 14802 (1995). [2] T. Kawamura et al., Phys. Status Solidi B **254**, 1600706 (2017).