GaN ﾎﾓｴﾋﾟﾀｷｼｬﾙ成長中ﾅﾉﾊﾟｲﾌﾟ閉塞への Gibbs–Thomson 効果の寄与の可能性

Possible Contribution of the Gibbs–Thomson Effect to Filling Nanopipes during Homoepitaxial Growth of GaN

法政大 [1]，サイオクス [2]　○望月 和浩 [1]，堀切 文正 [2]，太田 博 [1]，三島 友義 [1]

Hosei Univ. [1], SCIOCS [2]　○K. Mochizuki[1], F. Horikiri[2], H. Ohta[1], T. Mishima[1]

E-mail: kazuhiro.mochizuki.66@hosei.ac.jp

はじめに 自立基板上 GaN p-n ダイオード向け MOVPE 成長時の全圧 P_{total} を 500 hPa から 1000 hPa まで上げると，螺旋転位からナノパイプへの変換が抑制され，逆方向リーク電流が抑制される[1,2]。ナノパイプ生成の抑制を，「一旦形成されたナノパイプ(半径 r, Fig. 1)が Gibbs–Thomson(GT)効果[3]により埋め戻される現象」と仮定し，その起こる可能性を熱力学的に検討したので，報告する。

平均自由工程 λ_{Ga} 有機金属ガスは気相中で Ga に分解し(境界層上端分圧 P_{Ga}^0; 無限平面直上 平衡分圧 P_{Ga}^{eq}; ナノパイプ内 平衡分圧 P_{Ga})，次式により GaN(s)が成長すると仮定する[4]。

$$Ga(g) + NH_3(g) \rightarrow GaN(s) + (3/2)\,H_2(g), \quad (1a)$$

$$NH_3(g) \rightarrow (1-\alpha)\,NH_3(g) + (\alpha/2)\,N_2(g) + (3\alpha/2)\,H_2(g). \quad (1b)$$

ボルツマン定数 k_B，成長温度 T_s，Ga 原子の van der Waals 直径 d (0.48 nm [5])を用いて，

$$\lambda_{Ga} = k_B\,T_s / 2^{0.5}\,\pi\,d^2\,P_{total}, \quad (2)$$

から求めた λ_{Ga} は P_{total} の増加とともに減少した(Fig. 2 白ヌキ丸)。観察されたナノパイプ径 $2r = 61$ nm [1]に対する Knudsen 数 $K_n = \lambda_{Ga} / 2r$ は 5.8 以下であった。1 μm 幅 SiC トレンチ埋込の場合，$K_n \leqq 6.6$ で GT 効果が表れたことから[6]，GaN ナノパイプ埋込にも GT 効果が作用すると考えた。

$P_{Ga}^{eq}-P_{Ga}$　P_{Ga}^0 は Hertz–Knudsen の式[7]及び成長速度 2.6 μm/h [1]から 3.7 mPa と求めた。表面自由エネルギーσ (1.93 J/m^2 [7])，剛性率 G (122.5 GPa[8])，Burgers ベクトル長 b (= 0.52 i nm; i = 1, 2, 3, …)，分子体積 v (1.12×10^{-29} m^3)を用い，転位歪エネルギーを考慮した GT 効果の式

$$P_{Ga}^{eq}-P_{Ga} = P_{Ga}^{eq}\,[1 - \exp\{(-\sigma v / k_B\,T_s\,r)\,(1 - G\,b^2 / 8\,\pi^2\,\sigma\,r\}] \quad (3)$$

から，$P_{Ga}^{eq}-P_{Ga}$ を求めた(Fig. 2 黒ヌキ丸)。$P_{Ga}^{eq}-P_{Ga}$ は，無限平面直上からナノパイプ内への Ga 気相拡散フラックス(Fig. 1 矢印)に比例し，$P_{total} > 750$ hPa で急増することが明らかとなった。

結言 高 P_{total} の MOVPE 成長では，GT 効果によるナノパイプ閉塞が起こり得ることを確認した。講演では α，b 及び σ の影響[9]に関しても報告する。

謝辞 本研究の一部は環境省「GaN 技術による脱炭素社会・ライフスタイル先導イノベーション事業」の委託を受けて行われた。

[1] S. Usami et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **58** (2019) SCCB24.
[2] 宇佐美茂佳，博士論文 (名古屋大学 2019. 3. 25).
[3] M. H. Jhon et al., *Acta Materialia*, **130**, 339 (2017).
[4] S. Mita et al., *J. Appl. Phys.* **104**, 013521 (2008).
[5] S. S. Batsanov, *Inorganic Mat.* **37**, 871 (2001).
[6] K. Mochizuki et al., *Mat. Sci. Forum* **963**, 136 (2019).
[7] J. Northrup and J. Neugebauer, *Phys. Rev. B* **53**, R10477 (1996).
[8] A. Polian et al., *J. Appl. Phys.* **79**, 3343 (1996).
[9] K. Mochizuki et al, *Jpn. J. Appl. Phys.* **60** (2021) 078001.

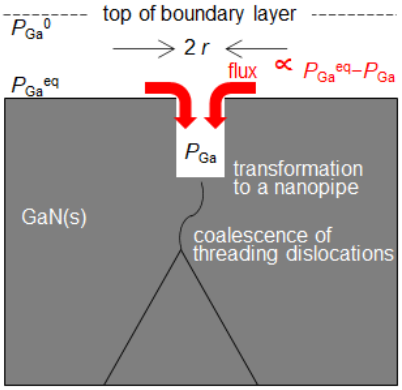

Fig. 1. Schematic cross section of a nanopie into which vapor-phase diffusing Ga flux is flowing. P_{Ga}^0 denotes Ga partial pressure at the top of the boundary layer.

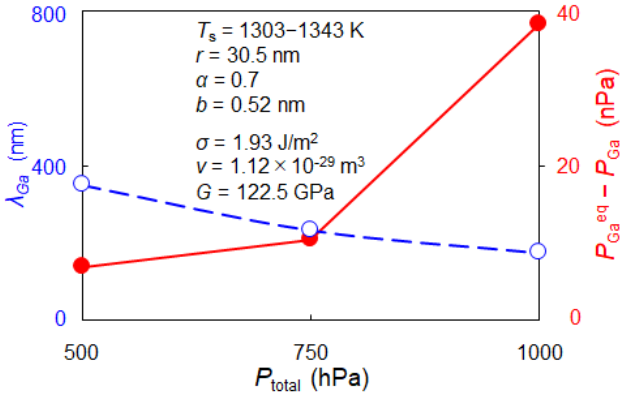

Fig. 2. P_{total} dependence of calculated λ_{Ga} and $P_{Ga}^{eq}-P_{Ga}$ for the reported experiments [1] by using the observed r of 30.5 nm and by assuming α of 0.7 and b of 0.52 nm.

© 2021年 応用物理学会