

深さ分解 CFS 光電子分光法を用いた  
絶縁膜/GaN 界面の電子状態と原子構造の研究  
Analyses of Electronic State and Atomic Structure of  
Insulator/GaN Interface by Depth-resolved Constant Final State Mode  
Photoelectron Spectroscopy

上沼 睦典<sup>a</sup>, 藤本 裕太<sup>a</sup>, 松井 文彦<sup>a</sup>, 菊田 大悟<sup>b</sup>, 伊藤 健治<sup>b</sup>,  
太田 紘志<sup>a</sup>, 島野 拓也<sup>a</sup>, 藤田 善樹<sup>a</sup>

Mutsunori Uenuma<sup>a</sup>, Yuta Fujimoto<sup>a</sup>, Fumihiko Matsui<sup>a</sup>, Daigo Kikuta<sup>b</sup>, Kenji Ito<sup>b</sup>,  
Hiroshi Ota<sup>a</sup>, Takuya Shimano<sup>a</sup>, Yoshiki Fujita<sup>a</sup>

<sup>a</sup>奈良先端科学技術大学院大学, <sup>b</sup>株式会社豊田中央研究所

<sup>a</sup>NAIST, <sup>b</sup>Toyota Central R&D Labs., Inc.

GaN パワーデバイスの実現には、絶縁膜/GaN 界面の評価や界面制御技術が必要とされている。本研究では、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{GaN}$  構造における界面評価および後処理改質技術として期待されている高圧水蒸気処理 (High Pressure Water Vapor Annealing : HPWVA) による界面改質の原理解明を目的とした。2 次元表示型球面鏡分析器を用いて光電子回折パターンの測定と終状態固定光電子分光 (Constant Final State モードの XPS) 測定をおこなった結果、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{GaN}$  界面において Al 原子が GaN 結晶中の Ga サイトに侵入していることが明らかとなった。また、高圧水蒸気処理を施すことで  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{GaN}$  界面において Ga-O 成分の増加が見られた。この再酸化反応が界面欠陥低減に関係していると示唆される。

キーワード： GaN、光電子回折パターン、パワーデバイス

#### 背景と研究目的：

次世代パワーデバイスの応用は、鉄道、自動車、電力系統装置まで多岐にわたり電力を有効利用する上で欠かせない技術である。GaN を利用した次世代パワーデバイスの実用化には、異種接合界面品質による閾値電圧変動やリーク電流などの信頼性低下が問題となっており絶縁膜 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$  など) と GaN の界面制御技術の確立が課題となっている。

本研究グループでは、界面改質技術として高圧高温の水蒸気により熱処理を行う高圧水蒸気処理 (HPWVA) を用いており、これまでの研究から  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{GaN}$  界面の電気特性向上に効果があることが分かっている [1,2]。しかし、高圧水蒸気処理の詳細な界面改質メカニズムは不明であり、この処理による界面の局所原子構造変化と電気特性変化との相関を明らかにするためには、界面の電子状態や原子構造の変化を詳細に解明する必要がある。また、絶縁膜を成膜した時点での界面の局所構造も明確になっていない。 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{GaN}$  界面についての  $\text{Al}_2\text{O}_3$  成膜後の断面 TEM 観察では、ダメージ層や明確な混合層などは見られず、急峻な界面が形成されていると考えられる。一方、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  成膜に使われる原子層堆積法では、最表面の Ga-OH 結合に対し原料の  $\text{Al}(\text{CH}_3)_3$  が反応し Ga-O-Al-結合が形成されると考えられるが、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{GaN}$  界面の XPS 評価からは Al-N の結合が僅かに観察されており理想的な界面が形成されていない可能性が示唆される。そこで本研究では、絶縁膜/GaN 界面における原子構造と電子状態を明らかにすることおよび高圧水蒸気処理による界面改質のメカニズムを解明することを目的とした。

#### 実験：

n 型 GaN 基板上 ((0001) Ga- face、オフ角：m 軸方向  $0.4 \pm 0.2^\circ$ 、a 軸方向  $0 \pm 0.2^\circ$ 、エピ層  $2 \mu\text{m}$ ) に  $\text{Al}_2\text{O}_3$  または  $\text{AlSiO}$  を原子層堆積法 (基板温度:  $300^\circ\text{C}$ ) により  $20 \text{ nm}$  成膜した。それぞれの試料に対し高圧水蒸気処理を

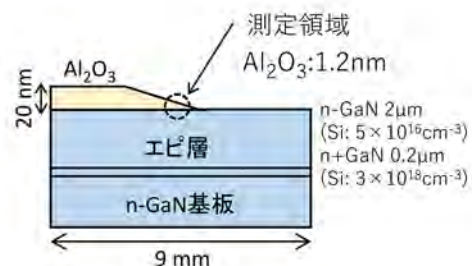


図 1. 試料の断面構造.

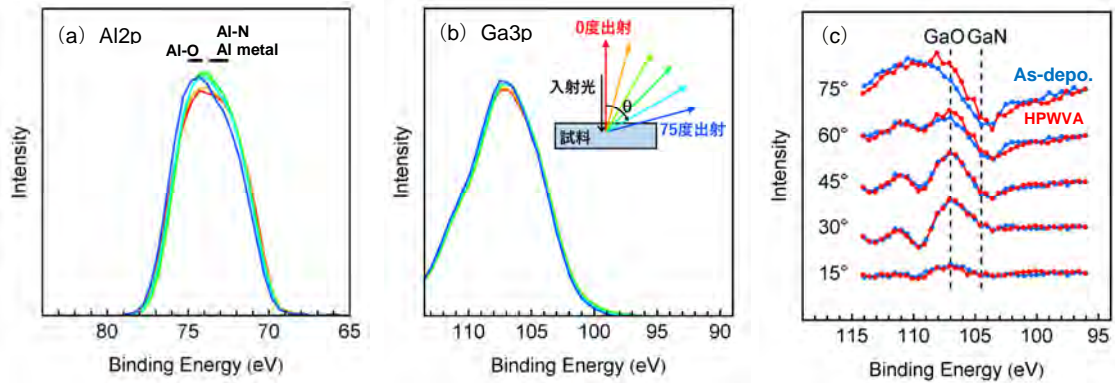


図2. 各出射(0, 15, 30, 45, 60, 75度)における(a) Al 2p (As-depo.)と(b) Ga 3d (HPWVA)のスペクトル. CFS測定における入射角と出射角を図中(b)に示す. (c) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/GaN 試料における Ga 3d の差スペクトル(CFS スペクトルの各出射角と0度出射の差分).

施した試料(HPWVA: 1 MPa, 300°C, 3 h)と未処理試料(as-depo.)の計4種類の試料を用意した。測定には、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>またはAlSiO膜を希HFにより図1のように傾斜エッチングした試料を用い、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>膜厚が1.2 nm程度となる領域でおこなった(入射光のGaN基板への侵入深さは約1.0 nm)。これらの試料についてBL25SUに設置してある2次元表示型球面鏡分析器を用いてConstant Final State (CFS)モードのXPS測定と光電子回折パターンの測定をおこなった。CFS測定においては、光電子の運動エネルギーを800 eVに固定し光エネルギーを掃引してGa 3d, Ga 3p, N 1s, Al 2p, O 1sについて角度分解スペクトルを取得した。光電子回折パターンの測定では、Ga 3pおよびN 1s, Al 2p, O KLLのそれぞれについて光電子の運動エネルギーを800および540、800、504 eVに設定した。

### 結果および考察：

角度分解CFS測定から得られたAl 2pスペクトルより、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>膜表面にはAl-O結合が多く、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/GaN界面にはAl-N結合または金属Alの結合が見られる(図2(a))。また、Ga 3dスペクトル(図2(b))より、各出射角と出射角0度との差スペクトルを計算した結果、表面敏感な高角度側(60°, 75°)において水蒸気処理有無の違いが見られた(図2(c))。図2(c)の104eVおよび107 eV付近の変化は、それぞれGa-NおよびGa-O結合によるものと考えられる。規格化したGa 3pのピーク強度より、水蒸気処理前後で最上面のGa原子のうち、それぞれ約30%(処理前)、約56%(処理後)のGa原子が酸素と結合している事が示唆された。残りは未結合またはN原子と結合していると考えられる。そのため、高圧水蒸気処理によって、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/GaN界面のGa原子と酸素原子の結合割合が増加し、酸化層を形成することで界面欠陥の低減が生じていると考えられる。

一方、Ga 3pおよびN1s, Al 2pの光電子回折パターンおよび円偏光により測定した円二色性の測定結果を図3, 4に示す。参考としてAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>膜無のGaN基板を測定したGa 3pの光電子回折パターンも図3, 4(a)に示す。図3(a)のGa 3pの回折パターン中に<1100>, <0110>, <1010>方向に前方収束

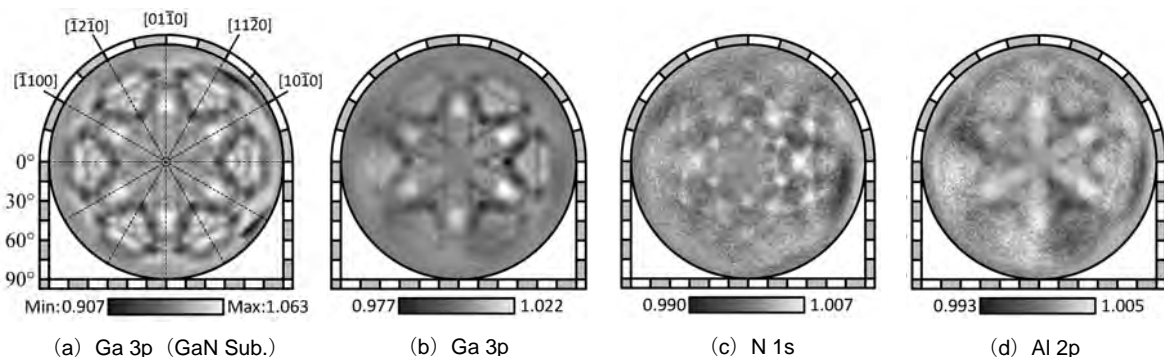


図3. GaN基板のみのGa 3pの光電子回折パターン(a)およびAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/GaN試料(高圧水蒸気処理後)における(b)Ga 3pと(c)N 1s, (d)Al 2pの光電子回折パターン。(コントラストのMax Min値をスケールバーに示す)

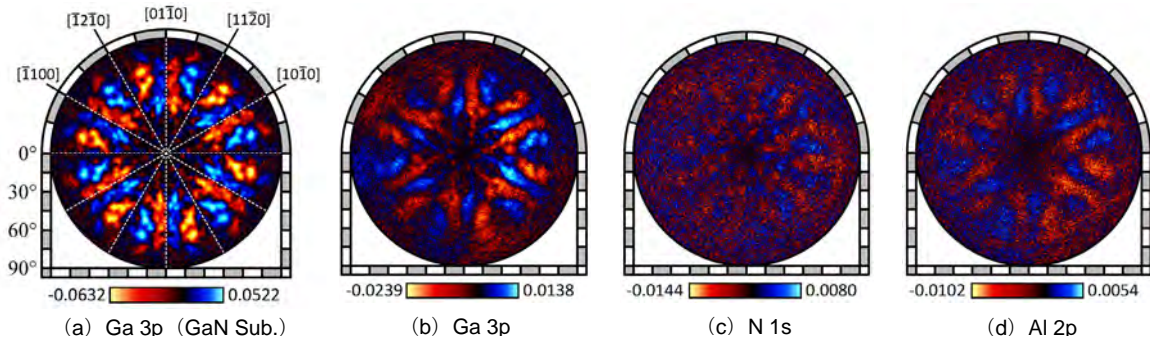


図4. GaN基板のみのGa 3p(a)、およびAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/GaN試料(高圧水蒸気処理後)における(b)Ga 3pと(c)N 1s、(d)Al 2pの円偏光により測定した円二色性パターン。

ピークが確認できる。これらは第一近接Ga原子の方向に対応する。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>膜付試料(図3(b))の場合、非晶質膜があるために高角度側のパターンは明瞭には観測されない。Ga 3pおよびN 1sのパターンについては、計算値とほぼ一致しているが、Al 2pにおいても回折パターンが観察された。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>膜は、非晶質であることが分かっており光電子回折パターンは見られないはずであるが、Ga 3pと類似した位置にピークを持つAl 2pのパターンが得られた。この類似性は、GaNの最上面付近においてAl原子がGaN結晶構造のGaサイトに入っていることを示している(図5)。このことから本研究グループにおいて過去に測定されていたAl-N結合は界面の結合ではなく、GaN基板側へ入り込んだAl-N結合に由来することが明らかとなった。AlSiO膜についても同様のパターンが見られた。このAl 2pの光電子回折パターンは、水蒸気処理の有無にかかわらず確認されたことから、成膜時に形成されたと考えられる。Al 2pの回折パターンのコントラストは、Ga 3pの約1/4であったことから、GaNの再上面付近では約25%以上の割合でAlがGaサイトに侵入していると考えられる。また、Al 2pの回折パターンには僅かに3回対称性が見られることから界面近傍の極薄領域に存在していることが示唆される。これらの結果よりAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/GaN界面にはAlが混入したGaN領域(極薄のAlGaN領域または層)が存在していることが明らかとなった[3]。また、N 1sの回折パターンについては、Gaほど明瞭な回折パターンのコントラストや円二色性パターンが見られていないことから、成膜によってGaN最上面のN原子の結晶構造が乱れているか、またはN原子抜けが生じている可能性が示唆される。

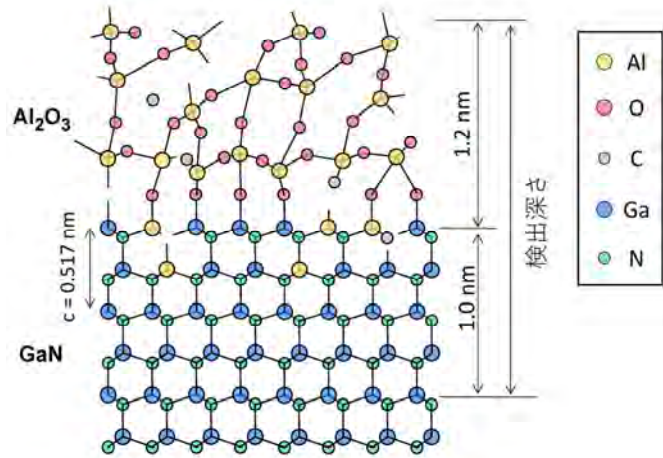


図5. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/GaN試料の界面付近GaNの模式図(界面付近では、Al原子がGaサイトに入っている)

#### 今後の課題：

今回の実験結果より、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/GaN界面は図5のようにGaN基板側へAl原子が入り込んだ構造と考えられる。この界面におけるAlGaN領域が電気特性へ与える影響を明確にし、AlGaN領域そのものが欠陥となる場合は、この領域を形成しない成膜方法の実現が必要と考えられる。また、パワーデバイス用絶縁膜はAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のみではなく、SiO<sub>2</sub>、AlONなども検討されているため、それらの膜についても界面の混入層を評価する必要がある。

#### 参考文献：

- [1] K. Yoshitsugu, M. Horita, Y. Ishikawa, and Y. Uraoka, *ECS Trans.* **67**, 1, 205 (2015).
- [2] J. T. Asubar, Y. Kobayashi, K. Yoshitsugu, et al., *IEEE TED* **62**, 8, 2423 (2015).
- [3] Y. Fujimoto, M. Uenuma et al., 第78応用物理学会秋気季学術講演会 6p-PA8-4(2017).