第50回 東レ科学振興会科学講演会記録
平成12年9月20日　東京 有楽町朝日ホール

完全結晶への挑戦

― 結晶成長メカニズムの理解から欠陥を制御する ―

東京大学名誉教授
名城大学理工学部教授　**西永　頌**

私はこの４月から赤﨑先生と同じ名城大学に勤務しておりますが、今日お話し申し上げることは、３月まで勤務していた東京大学で大学院の方々、職員の方々と一緒になってやらせていただいた仕事ですので、あらかじめお断りさせていただきます。

今日お話し申し上げる内容ですが、最初に今までに結晶成長が果たしてきた役割をお話しさせていただき、次に結晶成長とは何か、その原子的なモデルについてお話しします。その後、結晶成長のメカニズムに対する知識を用いて結晶の形態をどのように制御するかということを説明し、その上で今日の主題である「完全結晶への挑戦」として、欠陥を制御するというお話をさせていただき結びとしたいと思います。

まず、結晶成長が今までどんな役割を担ってきたのかということをお話ししたいと思います。今までの歴史を**表１**にまとめてみました。結晶がどういうものかは、ただいまの赤崎先生のお話でご紹介があったとおりですが、半導体の結晶が非常に重要であることを初めて世の中に示したのは、トランジスタの発明です。最初のトランジスタは、アメリカのベル電話研究所というところで作られました。それは1948年のことで、**図１**のような構造をしていました。図に示すように、ゲルマニウムの単結晶があり、これに針を立てて電流を注入して、それを単結晶基板にかける電圧でコントロールします。最初のトランジスタは針により電流を注入するタイプのものでした。その後p型、n型半導体により構成される、 pnpあるいはnpnというトランジスタに変わり、針が不要となり安定に動作するトランジスタが出

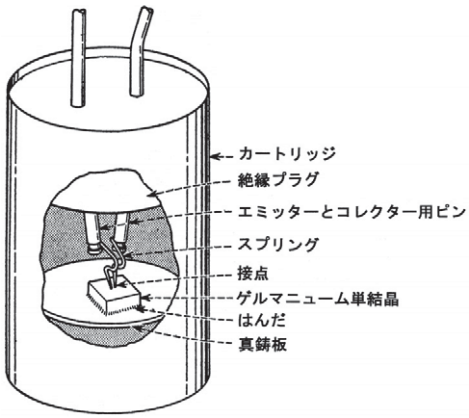

図１　トランジスタが発明されたときの構造

ゲルマニュームの高純度単結晶	→	トランジスタの発明
シリコンのエピタキシャル成長	→	プレーナ型トランジスタ → 集積回路の誕生
液相エピタキシャル成長	→	発光ダイオード 半導体レーザーダイオード
分子線エピタキシャル成長（MBE） 有機金属気相成長（MOCVD）	→	HEMT（高移動度トランジスタ） MQW レーザー
格子定数差の大きなヘテロエピタキシー（低温バッファー層）	→	窒化物青色発光ダイオード・レーザー

表１　結晶成長の果たしてきた役割

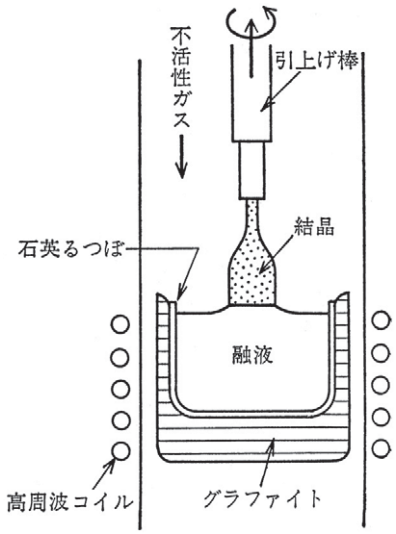

図２　結晶引上げ法（チョクラルスキー法）の原理

来たのです。ここで本質的に重要だったのは、ゲルマニウムの単結晶です。この単結晶があって、初めてトランジスタが誕生したのです。

日本でも第二次世界大戦の末期からその後にかけて、半導体を使って整流素子やトランジスタを作ろうという研究がなされていました。しかし、当時は単結晶ではなく非常に質の悪い多結晶、細かい結晶の寄せ集まりですが、これを使って整流器やトランジスタを作ろうとしたので、それは全く成功しませんでした。トランジスタは単結晶がなくては出来なかったのですが、アメリカのベル電話研究所ではこの単結晶ができていたのです。これがトランジスタの発明がベル電話研究所で行われた基本的な理由です。

その頃、どのように結晶が作られていたかということですが、その方法を**図２**に示します。これは結晶を作る一つの方法で、結晶引き上げ法と呼ばれています。ベル電話研究所ではこれを使ってゲルマニウムの単結晶を作っていたのです。この方法では半導体を融かして、そこに種結晶をつけて、ゆっくり引き上げて結晶を作ります。そうすると種結晶に引き続いて切れ目のない結晶、つまり単結晶が成長するのです。これを切断して、さっきのトランジスタに使われている単結晶片を作ったのです。この研究がベル電話研究所で行われていたことが、トランジスタの発明の非常に重要な要素でした。

その後、シリコンのエピタキシャル成長という技術が登場しました。この研究の中心も、やはりアメリカのベル電話研究所でした。先ほどの赤﨑先生のお話にもありましたが、半導体のエピタキシャル成長の例を**図３**に示します。この場合、化学反応を利用しながら、エピタキシャル層と言う薄い結晶層を作ります。この図では四塩化ケイ素を原料としていますが、これを成長室に送り高温で種結晶基板の上にシリコンを薄く成長させます。その

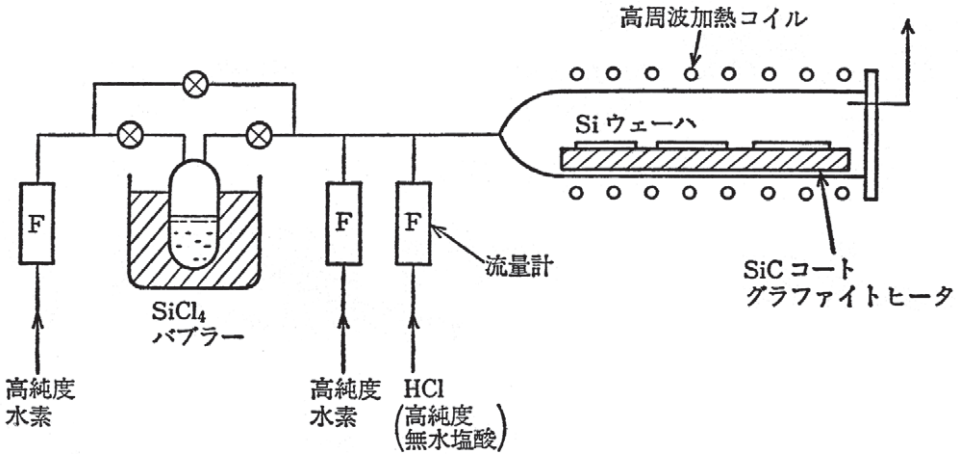

図３　$SiCl_4$を原料としたSiの気相エピタキシャル成長装置

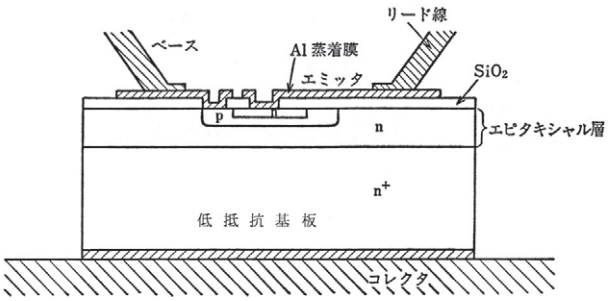

図4　プレーナー・トランジスタの構造

とき、n型の基板を用いp型を成長させると、p-n接合を作ることができます。これが非常に画期的だったのは、集積回路の発明につながったことです。

図4にエピタキシャル層を使ったプレーナー・トランジスタを示します。この場合、単結晶基板は不純物をたくさんドープしたn型のものですが、そこに不純物が比較的少ないn型層を成長させ、拡散法という方法でそこにp-n接合を作ります。このトランジスタの構造は表面が平坦になっているために、プレーナー・トランジスタと呼ばれていますが、この構造が後に集積回路を生むきっかけになりました。

その後、集積回路はこの構造のようなpnp型またはnpn型のトランジスタを用いるものから、MOS型という別の構造に変わってきましたので、現在の集積回路に関して言うと、エピタキシャル層を使っているものもありますが、大半はエピタキシャル層を使わない集積回路になっています。しかし、エピタキシャル成長層が出来たために集積回路が実用になったという意味で、シリコンのエピタキシャル成長の成功は画期的なものだったと言えると思います。

その次の出来事ですが、液相エピタキシャル成長法という方法がRCAのネルソンという人によって提案されました。この成長法によって、初めて効率の非常に高い発光ダイオードとか室温で働くレーザーダイオードが可能になりました。

図5に、液相エピタキシャル成長法の簡単な模式図を示します。この方法を、ガリウムとヒ素の化合物であるヒ化ガリウムを例にとって説明します。図に示すように、ヒ化ガリウムの原料、ヒ化ガリウムの種結晶およびガリウムの溶液を配置します。次にガリウム溶液に原料を十分溶かした後、溶液を種結晶の上に持ってきて温度を下げると、溶けていたヒ素がガリウムとともに基板結晶に析出し、薄いヒ化ガリウムの層が成長します。この方法は、極めて結晶性のよいエピタキシャル層を与えるために、これによって初めてレーザーダイオードが作られたという歴史的ないきさつがあります。

先ほどの赤﨑先生のお話にもあったように、

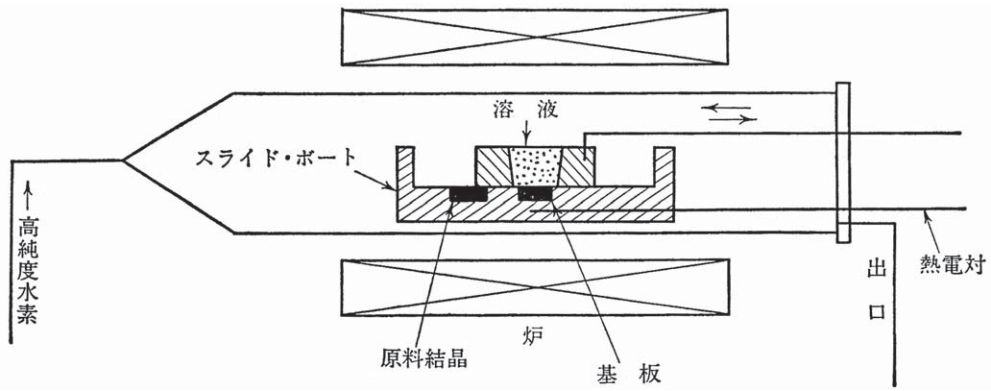

図5　液相エピタキシャル装置

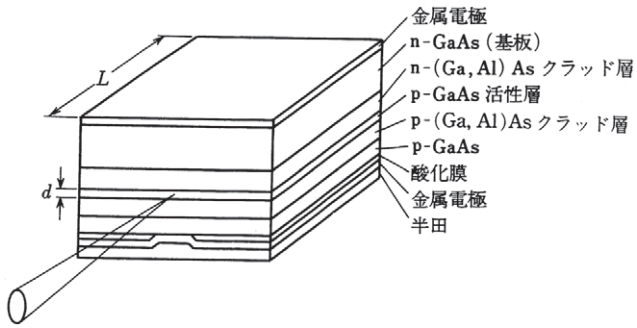

図６　典型的なダブルヘテロ構造（DH）レーザー

レーザーダイオードはたくさんの層から出来ています。この構造を**図６**に示します。同図に示す活性層で電子と電子の抜け穴であるホールが結合し、誘導放出により強いレーザー光が得られます。この活性層の結晶性がよくないと、レーザー発振は行われません。液相成長法を用いて、初めてこれが可能になりました。

その後、エピタキシャル成長法はさらに発展して、分子線エピタキシャル成長法、あるいは赤﨑先生のお話にも出てきた有機金属気相成長法という方法が生まれ、その結果、非常に高性能のトランジスタや、レーザーダイオードが生まれたという歴史をたどっています。

その次の画期的な出来事は、格子定数差の大きいヘテロエピタキシーにおける低温バッファー層の導入です。これは非常に大きな出来事で、それによって結晶性が格段に改善されました。この技術を窒化ガリウムに適用されたのが赤﨑先生のグループで、これにより今までに比べ格段に結晶性の優れた窒化ガリウムが出来ました。この結果p型窒化ガリウムが出来、窒化物の発光ダイオード、レーザーダイオードが誕生したのです。

結晶成長はこのような役割を果たしてきましたが、今後どのような展開があるだろうかということをお話ししてみたいと思います。そのために結晶成長とはなんだろう、結晶成長はどんなふうに行われるのだろうというメカニズムに立ち返って、今まで理解されていることを少し復習してみたいと思います。

まず、結晶の表面はどんなものかということを**図７**に示します。これは非常に簡単化した結晶表面のモデルで、コッセルモデルと呼ばれています。簡単化という意味は、原子をサイコロのように、角砂糖のようにとらえていることです。コッセルモデルではこのような原子がキンクにつき、この結果キンクが伸び、これがステップの前進をもたらすと考えます。

このようなことが起こるためには原子のステップが必要で、ステップがどのようにして作られるのかということが問題になります。繰り返しになりますが、これは非常に単純化されたモデルで、本当の結晶の表面はこのようなサイコロで出来ているわけではありません。原子がたくさん存在していますが、それだけではなくて特有の構造をしています。

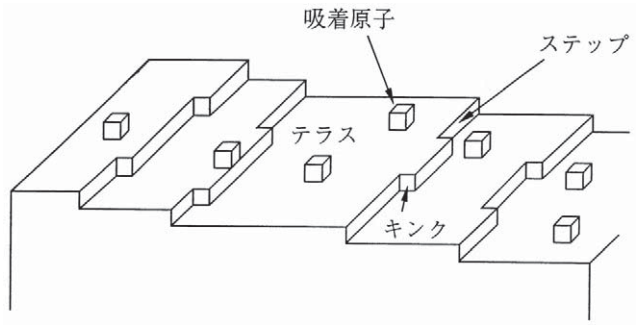

図７　コッセルモデルによる結晶表面

例えば、シリコンの結晶の表面は決して単純ではなくて、一番上の表面はシリコン同士がつなぎ合って距離が短くなっています。ですから表面の構造は、決してさっきのようにサイコロで出来ているのではなくて、原子的に見るとか

なり複雑な構造をしています。

一方、ヒ化ガリウムの表面も、表面に特有な構造を取っています。この構造は温度によって、また成長時におけるヒ素やガリウムなどの雰囲気圧力によっても変化するので、表面はかなり複雑な構造をとります。

しかし、最近いろいろな研究手段が開発されたため、定常状態における表面構造はかなりわかるようになってきました。ところが、結晶を作るような動的な場では、このような表面構造の上に、さらにガリウム原子が来たりヒ素分子が来たりし、成長の表面構造を作るので、かなり複雑なものになります。その詳細は現在でもまだ完全にはわかっておりません。

現実には成長表面は複雑な原子構造を取っていますが、最初にお話ししたコッセルモデルは、巨視的に見るとかなり現象をよく説明しているので、巨視的なサイコロのモデルは極めて有用です。**図8**にコッセルモデルで結晶ができるとき、最初にどういうことが起こるだろうかというのを示します。

これはGilmerとJacksonによるコンピューターによるシミュレーションの結果で、コンピューターで原子を平らな面に降らせていったとき、どのようなことが起こるかをシミュレートしています。原子をどんどん降らせていくと、まず高さの低い島が出来ます。これを二次元核と呼んでいます。二次元核が出来るまでは、到来した原子は表面を動き回ったあと再蒸発してしまって、成長に関与しませんが、いくつかの原子が集まって二次元核を作ると、そこに原子がついて成長が起こることが知られています。すなわち、結晶を作っていくときにはこのような二次元核がまず必要になります。

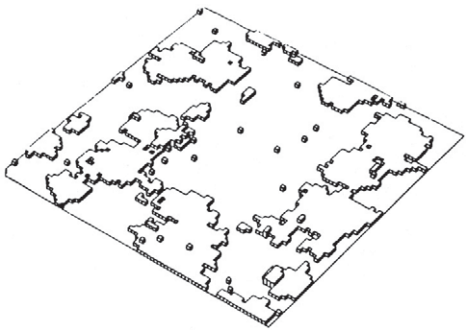

図8　二次元核による成長のシミュレーション

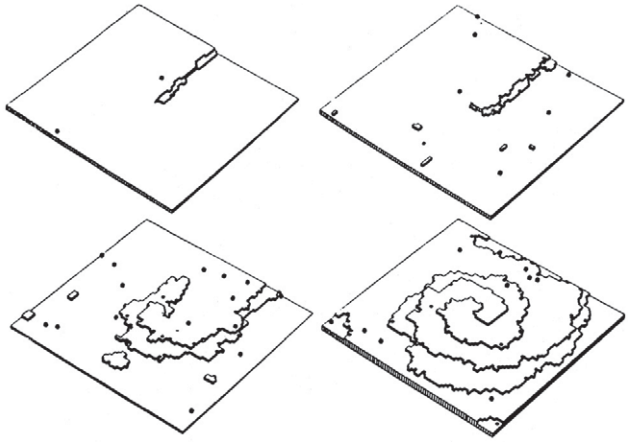

図9　らせん転位による成長のシミュレーション

一方、二次元核がなくても結晶にらせん転位という欠陥があると、そこからステップが生み出されて、そのステップに原子がつくことにより成長が行われます。この場合、ステップは渦巻き模様になり**図9**に示すような表面となります。このらせん転位からはステップが永久に吐き出されるために、結晶成長が進むことが知られています。

結晶がいかにして出来るかというところに話を戻します。もう一つのメカニズムですが、荒れた面での成長ということが知られています。温度を変えたときの結晶の表面を計算機でシミュレートした様子を**図10**に示します。温度が高くなると平らな面が維持できなくなり、抜け穴ができたり上についたりします。この図は結晶成長時の表面ではなく、高温時の平衡状態を示しています。温度を上げていくと結晶の表面が乱れてきて、あたかも二次元核があるような形態になってきます。このように荒れてしまった場合には、核発生がな

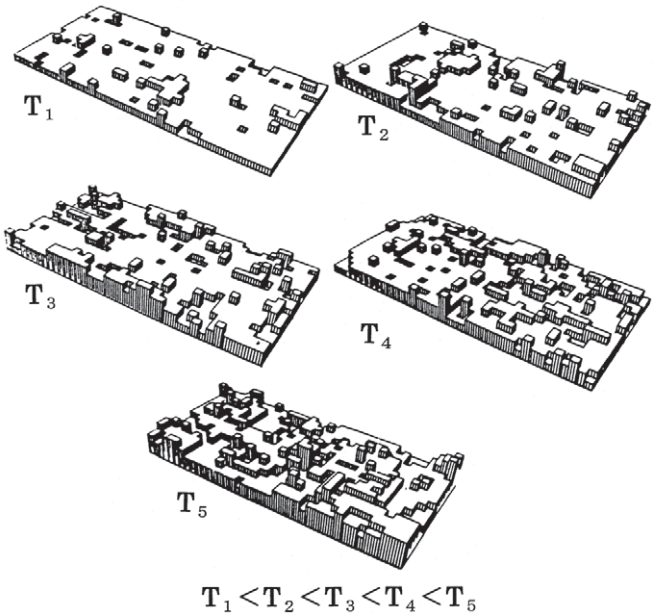

図10　各種温度での結晶の表面

くても、らせん転位がなくても、結晶はそのまま成長します。

成長が起こるもう一つの場合は、基板が安定な面から傾いた場合です。結晶面を人為的に斜めにカットすると、安定な面がテラスとなりステップが自然に形成されます。したがって二次元核による場合、らせん転位による場合、温度が高く荒れた面になる場合、基板が安定な面から傾いている場合、この四つの場合に結晶が成長することが知られています。

以上の知識はそれほど深いものではありませんが、成長に関するごく基本的なこととしてご紹介しました。この理解に立って、まず形態を制御するということをご紹介したいと思います。形態にはいろいろなものがあり得るのですが、ここでは形態を制御することを二つの例を使って説明したいと思います。

一つはナノ構造を作るということです。現在、非常に小さな構造を結晶の中に作り込むことによって、新しい物性を引き出そうという試みがあります。先ほど赤﨑先生も「窒化物半導体で量子構造を作ることが今後の重要な課題だ」とおっしゃいましたが、それはナノ構造というか、非常に小さな構造を作ることによって実現されます。ここでは、形態を制御する一つの例としてナノ構造を作る方法をご紹介します。その際、面間拡散を制御しながらナノ構造を結晶内に作るというお話をさせていただきます。

もう一つの例として、波模様をなくすというお話をいたします。結晶が作られるとき、その表面に自然に形成される砂丘のような模様があります。その模様をどうしたらなくせるかにつき、形態を制御することの第二の例としてお話しします。

最初に、ナノ構造を作るということにつきお話しします。ナノ構造を作るにはいろいろな方法がありますが、今日はその中で面間拡散を利用した方法をご紹介します。ある結晶の面AとBの間で成長原子が流れることを、面間拡散と言います。面間拡散が起こる理由は、ある面Aの原子濃度が他の面Bの原子濃度より高いとき、原子は面AからBに流れます。原子濃度に差の出る原因ですが、一番考えやすいのは、二つの面で核形成のしやすさに差がある場合です。もし面Aのほうが核形成しやすければ、多くの原子が成長に使われてしまいますから、面Aに存在する原子濃度は減ってしまいます。一方、面Bでは面Aに比べて核形成がしにくい場合には、面Bに原子がたまってきますので、濃度が高くなり面Bから面Aに原子が流れます。このような面間拡散を利用して、ナノ構造を作ることができます。

図11にこの例を示します。同図はある結晶の断面模式図で、リソグラフィ技術により（111）面と（001）面が形成されています。結晶には非常に安定な面があります。成長していくときに現れる面は、そのように安定な

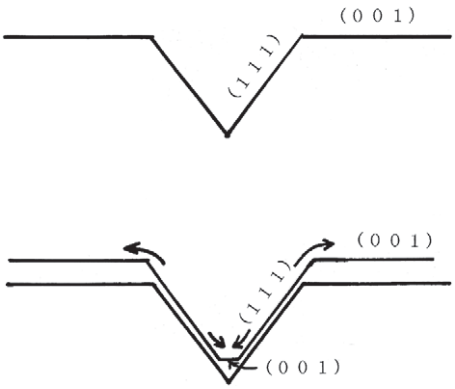

図11　面間拡散を用いた微細構造の作製

面と考えていただいて良いと思いますが、そのような面が二つあったとします。そして原子が（111）面から（001）面に流れやすい状況を作ってやると、降ってきた原子は（001）面に流れますから、その面の成長速度が高くなって厚くなります。このようにして面間拡散を利用し、溝の底に断面が三角形の構造を作ることができますので、これをナノ構造として用いることができます。

図12に面間拡散がどのように起こるのかを明らかにするために私どもが使っている装置を示します。この装置をマイクロプローブ-RHEED/SEM MBEと呼んでいますが、分子線エピタキシー装置と高分解能走査型電子顕微鏡を一体化したものです。

GaAsのMBE成長を例にとり説明します。まず、基板結晶の温度を上げ酸化膜を蒸発させたあと、基板を必要な温度に保ちます。次に、高温に保った噴出セルから原料を蒸発させ、基板に原子または分子が飛来して結晶が成長します。GaAsの場合、ガリウム用のセルとヒ素用のセルを用意し、各々ガリウム原子およびヒ素分子を蒸発させ、結晶成長を行い、成長のその場を電子顕微鏡を使って観察します。この際、二通りの観察法を用います。

一つは、基板から出てくる２次電子を使って表面の走査型電子顕微鏡像を観察する方法ですが、もう一つは結晶表面で回折して来る電子線を下に置かれている蛍光スクリーンに導き観察する方法です。すなわち、この装置により成長表面の電子線回折像と走査電子顕微鏡像の両方を観察します。

面間拡散を測定する原理をご紹介します。結晶を加工して、**図13**に示すように二つの面を作ります。同図の場合は、（111）Aと呼ばれる面と（001）という面を化学薬品による処理を用いて形成します。このような基板を用いて結晶成長を行いますと、原子はこの二つの面の間を流れます。この流れの様子を、

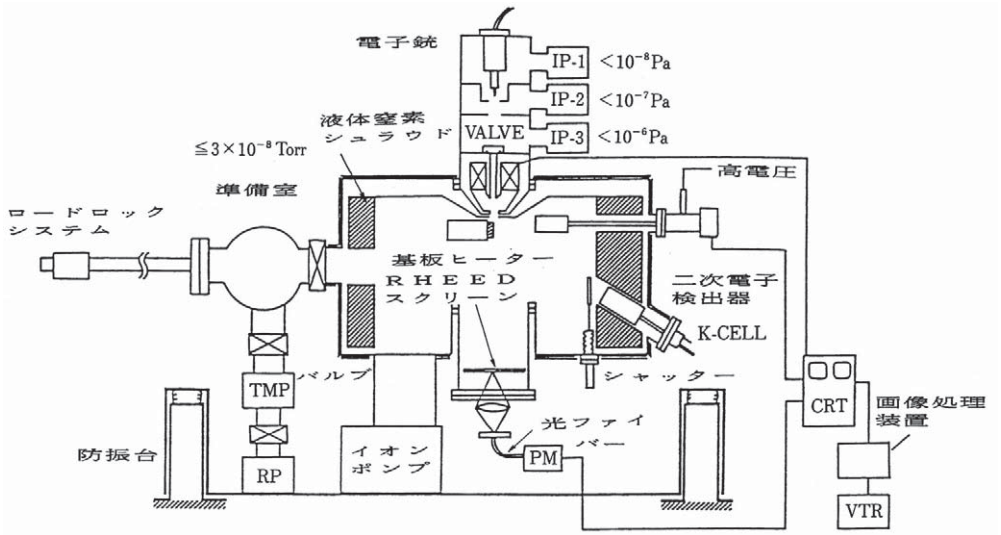

図12　microprobe-RHEED/SEM分子線エピタキシ装置

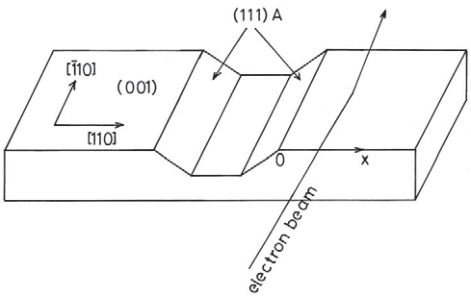

図13　局所的な成長速度を測定する方法

局所的な成長速度を電子線回折の強度振動を用いて測定することにより調べることができます。

その原理をここに示します。結晶は最初は非常に平坦ですが、結晶成長が始まると、コッセルモデルのところで説明しましたように二次元核が形成されます。成長が進むにつれて二次元核が広がり、合体が起こるので平坦化が進みます。このようにして最後にはまた最初と同じように平坦な面が形成されます。

このようなサイクルを繰り返しながら結晶が成長していきますが、この様子を電子線によりモニターすることができます。すなわち、核発生により電子線が散乱されるので回折強度が弱くなりますが、平坦化が進むと回折強度が回復し強い強度の電子線回折が得られます。

つまり、核発生が起こってくると回折強度が減りますが、平担性が回復するとまた強くなるということで、一つの周期が平らな面から平らな面への時間になります。したがって、この周期を測定することによって結晶の成長の速さが測定できます。この振動がすごく密に起こっているときには成長が速く、粗に起こっているときは成長が遅いということになりますので、この周期を測定することによって成長の速さを測定することができるのです。電子線の径としては50nm程度のものを用いていますので、この程度の空間分解能で成長速度を場所の関数として求めることができます。

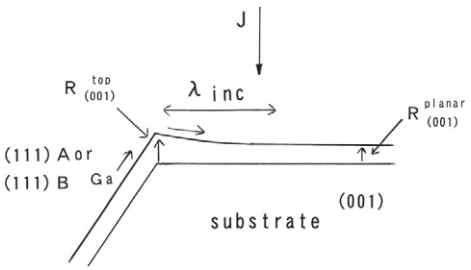

図14　面間拡散の方向を決定する方法

図14にGaAsのMBEの場合を例として、Gaがどの方向に流れるかを調べる方法を説明します。この場合、成長速度の全般的な分布を測定する必要はなく、二つの面の境界付近の成長速度と、そこからある程度離れたところの成長速度の２点を測ると、ガリウムの流れる方向を決定できます。

同図で境界近くの成長速度$R^{top}_{(001)}$と書いてありますが、この値を境界から離れた点での成長速度$R^{planar}_{(001)}$で割った値Rが１よりも大きい場合には、ガリウムが斜面から上面へ流れていることがわかります。一方、逆にRが１より小さい場合には、ガリウムは上面から斜面に流れていくことがわかります。

図15にRをヒ素圧の関数として実験的に測定したものを示します。この図から、ヒ素圧が小さいときにはガリウムは斜面から上面に流れていくが、ヒ素圧を増加させると逆に上面から斜面に流れ始めるということがわかります。この流れの反転現象を用いて形態を制御することが可能になります。

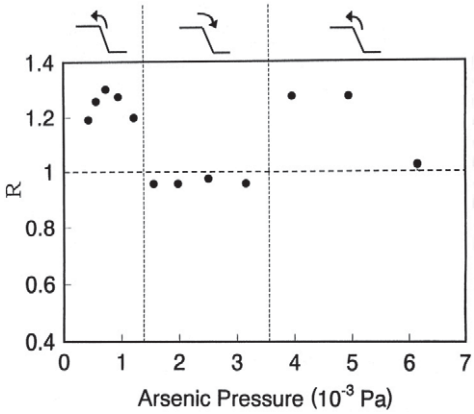

図15　面間拡散の方向とヒ素圧の関係

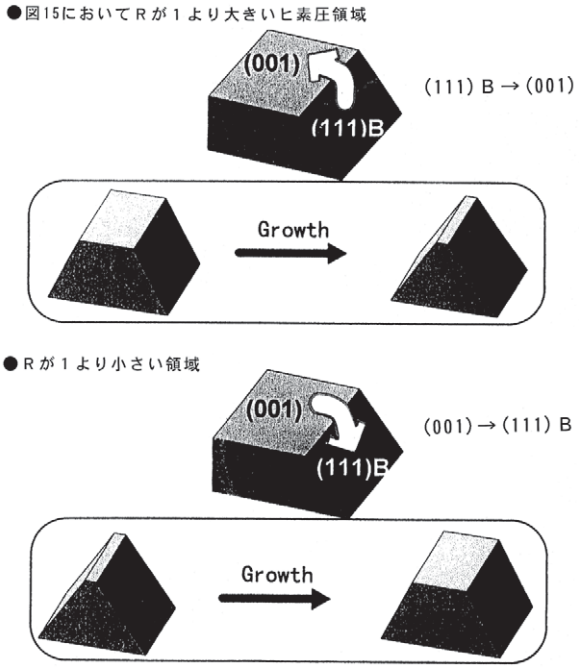

図16　ヒ素圧による先端形状の制御

図16にこの原理を利用し、先端を尖らせたり平坦化したりする方法を示します。もし、ヒ素圧が小さいときは図15でみましたように、ガリウムは斜面から上面に向かいますので、頂上はどんどん狭くなり尖ってきます。一方、ヒ素圧を上げ図15の中央の領域を選びますと、流れの方向が反転しますので、尖っていた頂上が平坦化します。つまりヒ素圧を変えることによって、先端を尖らせたり、平らにしたり、自在にできることがわかります。

この様子を、先端が切断されたピラミッドの成長で実時間観察したのが図17です。まず、化学薬品とフォトリソグラフィーの手法により、結晶に同図（a）に示すようにメサ構造を基板に作り込んでおきます。成長を開始すると、まずメサ構造のふもとにファセットと呼ばれる非常に平らな面が顔を出します。成長を続けますと側面がファセットで覆われ、ピラミッドの先端を切断したような構造が得られます。

成長をさらに続けると、最後は先端が尖ったピラミッドになります。しかし、この場合はエジプトのピラミッドと異なり三角錐になっています。このように尖るのは、斜面から上面にガリウムが流れ込むためです。ヒ素圧を変えると、尖っていたところが再び平らになりますが、これを同図（c）に示します。このようにヒ素圧を変えると先端が平らになったり尖ったりするので、この性質を使って、ナノ構造を作ることができると考えています。

面間拡散を理解しながら、その性質を使ってナノ構造を作っていくということをご紹介しましたが、形態制御の次の例として、波模様をなくすという話をいたします。液相エピタキシーについては、結晶成長が果たしてき

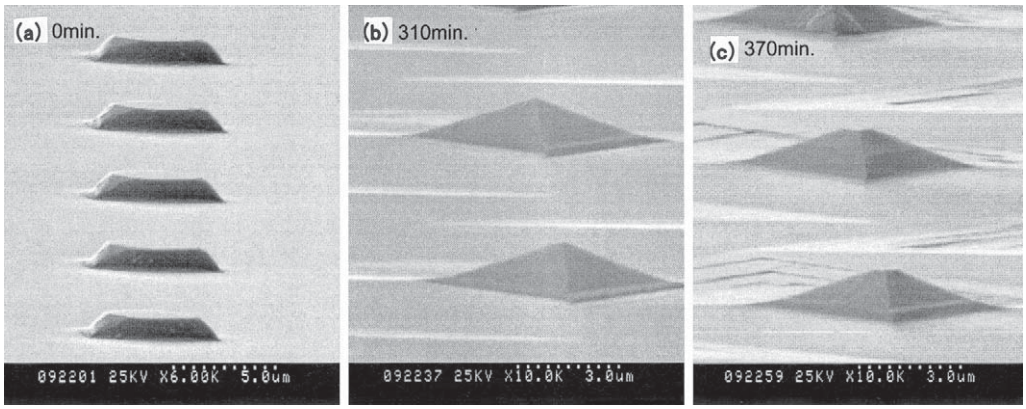

図17　ピラミッド形成の実時間観察

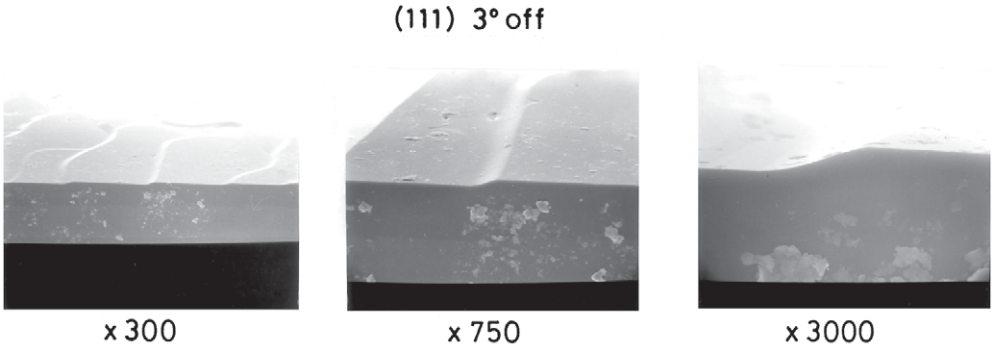

図18　GaP液相エピタキシャル成長表面に現れた波模様の走査型電子顕微鏡写真

た役割のところでレーザーダイオードの誕生に関連してお話ししました。

液相エピタキシャル成長で得られた結晶の表面には、砂丘のように美しい波模様が形成されています。この波模様は、成長に重要な役割を果たしている原子ステップが局所的に集合することによって出来ます。さらに、その模様に付随して不純物の不均一分布が形成されることがわかりました。したがって、このような波模様はぜひともなくしたいのです。そのためにはどうしたらいいかということが大きな問題でしたが、結論を申し上げますと、基板の表面を結晶の低指数面に一致させれば良いことがわかりました。

熱平衡状態では、結晶の表面は安定な面で囲われます。安定な面はいくつかありますが、一般には（001）とか（111）という低指数で表される面が安定な面になります。エピタキシャル成長するとき基板を用いますが、基板表面を安定な面に一致させると波模様がなくなることがわかりました。これを研究する過程でわれわれは、欠陥を制御するための新しい技術を生み出すことができました。そこでまず、波模様をなくす研究の結果についてお話しさせていただきます。

図18に、液相成長された結晶表面の走査型電子顕微鏡写真を示します。断面を見ますと、波模様は段と二つの平らな面から成っていることがわかります。段の高さは原子ステップに比べますと何万倍も大きく、ミクロン・オーダーになっています。

鳥取の砂丘は平らな部分がなく、全体的になだらかですが、これに似た波模様が結晶の表面に作られます。これをさらに拡大してみますと、段部の断面は非常にスムースな曲線となっていることがわかります。「鳥取の砂丘のようだ」と申し上げました。この模様は美しいのですが、電子あるいは光デバイスを作るときにはこれが邪魔をします。

図19に、成長結晶を二つに割り、その断面にレーザー光を当てたときに得られるフォ

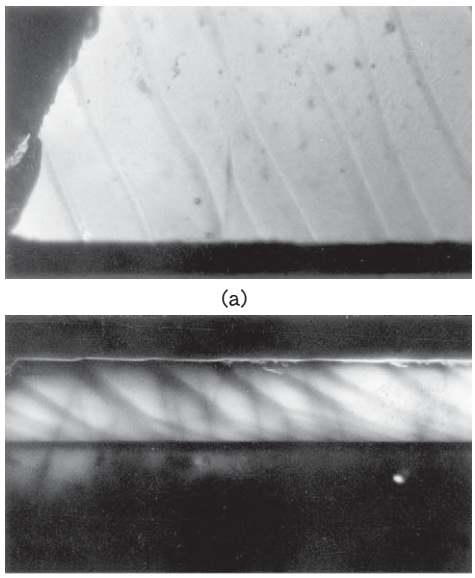

図19　GaP液相エピタキシャル成長層表面（a）と断面フォトルミネッセンス像（b）

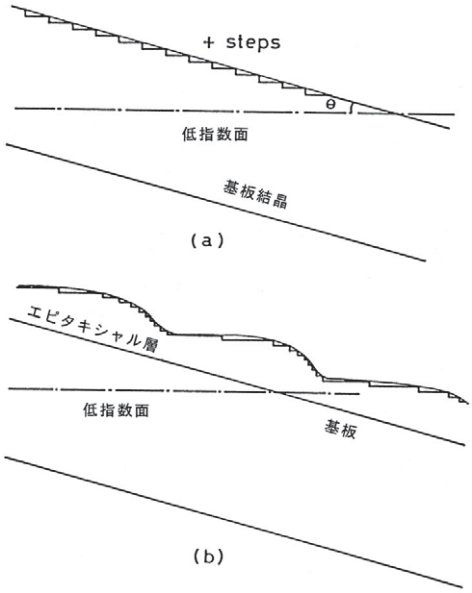

図20　低指数から傾いた基板における巨大ステップの形成

トルミネッセンス像を示します。レーザー光を当てると、先ほど赤﨑先生のお話にありましたように、電子が価電子帯から伝導帯に励起され、その後落ちて来ますが、そのとき光を出します。それを顕微鏡で見たものがフォトルミネッセンス像です。図には発光の明るいところと暗いところが見られますが、波模様の段部に対応する部分は暗くなっています。同時に、直線的に走っている暗い線がありますが、これは転位によるものです。したがって、転位がたくさんあると発光強度が低くなり、発光効率が落ちます。レーザーダイオードのように強い光が存在していると転位が増殖し、寿命が低下します。この意味で転位は悪役です。一方、転位と同時に波模様に付随した暗い領域が形成されていることがご覧いただけると思います。

したがって、この波模様もなくさなければなりません。研究の結果、波模様に付随して暗い領域が形成される理由は、発光センターとして働く窒素の濃度が、暗い部分で少なく添加されるためだとわかりました。

このような研究の結果、波模様の形成原因がわかりました。すなわち、**図20**に示すように基板が低指数面から傾くと、そこにステップが形成されます。この図の場合、大きな傾き角になっていますが、１度とか２度という小さな角度でも、非常にたくさんのステップが現れます。普通、基板は企業から購入しますが、若干低指数面から傾いています。１度以内、あるいは0.5度以内という仕様で買いますが、この程度でも傾いていると、ステップが多数発生します。このステップは成長とともに集合して、図に示すようにステップが形成されます。

私も、ステップが集合するのはなぜかということを、ずいぶん長い期間をかけて研究しましたが、結晶が出来ていくとき成長界面に三次元的に形成される拡散の場が、成長界面と連動して不安定になるために出来るということがわかりました。いずれにしても、ステップが集合して巨大ステップが出来ることは好ましくありません。これをなくすためにはどうしたらいいかというと、一つの方法は、

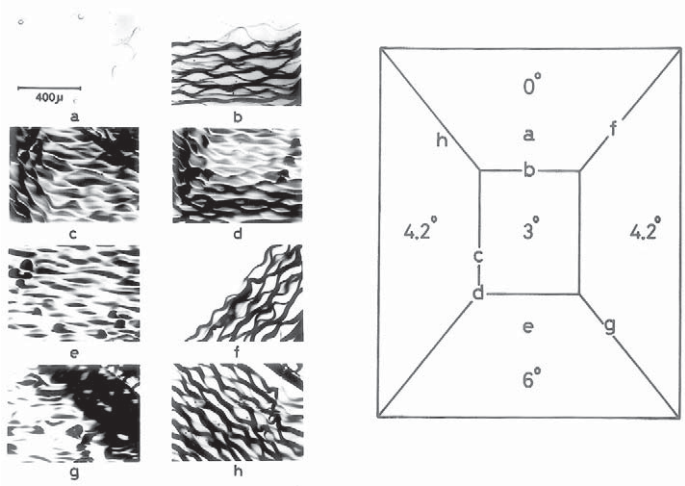

図21　色々な面方位をもつ基板上への成長結果
面aは(111)B面に一致した面である。

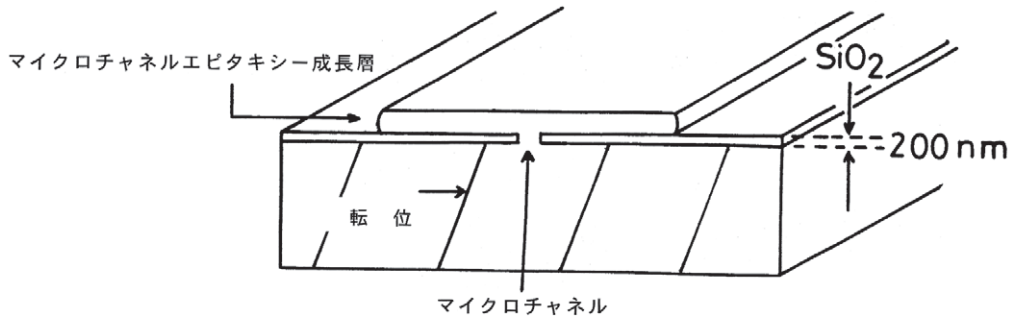

図22　マイクロチャネルエピタキシーによる低転位密度結晶の成長

基板をできるだけ低指数面に合わせればいいのです。

図21にいろいろな面方位をもつ基板上での成長表面を示します。aがちょうど低指数面に一致している場合ですが、ほとんど波模様がなく、この面から傾くと波模様が発生することがわかりました。ですから、工業的には研究はこれで終わりとも言えます。しかし、基板を常に精度良く低指数面に一致させるのは容易ではありません。したがって、人為的に波をなくす方法が必要です。

そこで、われわれは**図**22に示す方法を考案しました。つまり、基板にシリコンの酸化膜のような非晶質膜をつけて、そこに線状の窓を開けます。そこから成長させると表面は自然に低指数面となりますので、波模様が形成されないことがわかりました。

それと同時に、この方法にはもう一つ有利な点があります。すなわち、同図に示すように発光素子の寿命を低下させ、発光効率を下げる転位が成長層の大部分から排除されるので、完全性の高い結晶が成長できます。これについては次の節でより詳しくお話しします。

次の話題として、欠陥を制御するというところに移ります。欠陥を制御することについては、二つの話題をお話ししてみたいと思います。一つは赤﨑先生がご紹介された低温バッファー層、もう一つは今申し上げた方法です。この方法に私どもはマイクロチャネルエピタキシーという名をつけました。これらの二つの方法は、いずれも結晶成長を理解しようとして生まれてきた技術です。最初に低温バッファー層による欠陥低減化技術をご紹介したいと思います。

まず、低温バッファー層の歴史を述べます。私の知る限り、最初に低温バッファー層を用いたのは大西さんたちで、1978年にサファイヤの上に室温ZnOのバッファー層をつけ、その上に同じくZnOをつけ、特性の良い成長層を得ています。その次に、シリコンを基板とし、その上に炭化シリコンの低温バッファー層をつけてから炭化シリコンを成長させるという研究を、1980年に西野さんたちがやっています。その次は1981年における石田さんたちの仕事です。彼らはサファイアの上にシリコンの低温バッファ層をつけ、その上に高品質のシリコン単結晶薄膜を成長させることに成功しました。そのあと赤﨑先生のグループが、サファイアの上にAlNの低温バッファ層をつけ、その上に高品質のGaNを成長させ、世界的に初めてp型GaNの成長に成功しました。この成功がGaN系の発光ダイオード、レーザーダイオードの実現に対するブレークスルーとなったことはよく知られています。

次にマイクロチャネルエピタキシーについてお話しします。この方法は、次の原理で欠陥を排除します。**図**23に通常のエピタキシーを模式的に示します。エピタキシーという言葉を今日ここで初めて聞かれた方もおられるかもしれません。エピというのはギリシャ語で「上に」という意味で、英語ではonに

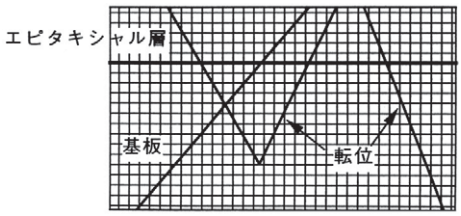

図23　通常のエピタキシーにおける転位の伝播

なります。タキシーはギリシャ語のタキシスという言葉から来ていて、配列という意味を持っています。英語ではarrangementです。配列の上に結晶が成長することを、エピタキシャル成長といいます。すなわち、エピタキシャル成長とは、基板結晶の原子配列を引き継いでその上に結晶が出来ることを言います。

もし、基板がガラスのように非晶質のときには、その上には単結晶は成長しません。ところが、図23に示す通常のエピタキシャル成長では結晶の情報をもらうと同時に、欠陥の情報までも引き継いでしまいます。ここでは欠陥として転位のような線状欠陥を考えていますが、結晶情報と欠陥情報の両方を引き継ぐのが普通のエピタキシャル成長です。

それに対してマイクロチャネルエピタキシーは、**図24**に示すように、結晶の情報だけは細い穴を通してもらうけれども、欠陥の情報は非晶質の膜で遮断してしまおうというものです。つまり、基板の欠陥はもらわないで、結晶の情報だけをもらおうとするものです。それを実現するためには、細いマイクロチャネルから結晶成長を開始して、横方向に成長を進めなくてはいけません。そんなことがうまくいくのかということが問題になります。

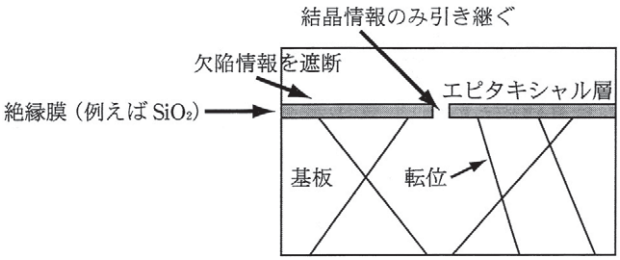

図24　マイクロチャネルエピタキシーの原理

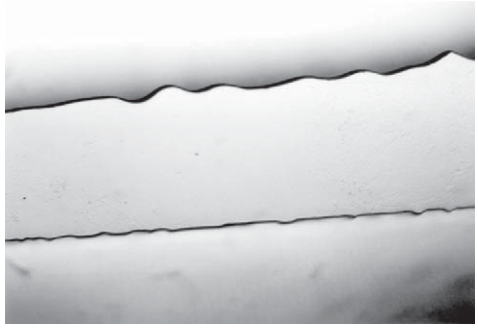

図25　GaAsのマイクロチャネルエピタキシー成長層
化学エッチングをほどこしたもの。

しかし、先ほどご紹介した結晶成長の理解を通してそれが可能なことがわかります。つまり、横方向に早く成長させ、上方向には遅く成長させる方法を実現すればよろしいのです。これを実現する方法はいくつか考えられますが、横の部分を荒れた面とし、上の面は低指数面に一致させ平らな面になるように基板を選ぶと、これが可能になります。荒れた面は、成長原子が来ればそのまま成長しますが、低指数面はらせん転位が存在するか、二次元核が形成されるか、いずれかでないと成長が起こりません。いずれにしても、その成長速度は遅くなります。したがって、この差を利用すると、横方向には早く成長するけれども、縦方向の成長は遅いということが実現されます。実験的にもこれが可能なことがわかりました。このようにして、転位を低減化できることを初めて示したのは、1988年の論文です。この論文は私が東大に勤務していた頃に発表したものです。**図25**はその論文の中の写真ですが、成長後のエッチング写真です。

転位の存在は薬品処理（エッチング）をすると、穴（ピット）が現れるのでわかります。場合によってはチャネルの上にピットが出てきますが、チャネルの外ではピットがほとんどの場合なく、確かにこの方法で転位をなくすことが可能だと実証できたと思います。

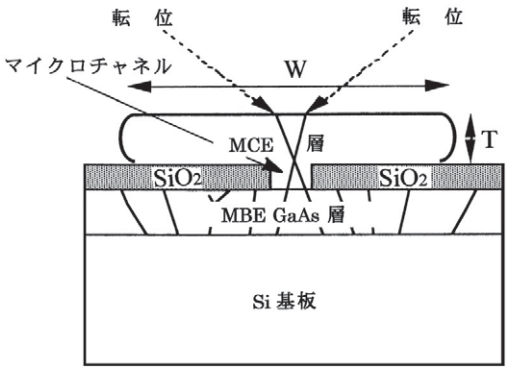

図26　Si基板上のGaAsマイクロチャネルエピタキシー

その技術を使って、格子定数差の大きなシリコンの上に、無転位のGaAsを作るという実験をしました。これを図26に示します。構造は少し複雑になりますが、同じように横方向成長を利用します。シリコン基板上にGaAs MBE層を成長させますが、この層には非常にたくさんの転位があるために、チャネルから抜け出てくる転位もかなりたくさんあります。しかし、窓のところには転位が出てくるけれども、外のところは無転位となるので、この技術は使えるということが明らかになりました。

本講演では、転位がないものを完全結晶と称しています。その後研究が進んで1992年には、シリコン（001）基板上でマイクロチャネルの上には転位があるけれども、その外には全く転位がない結晶が出来るようになりました。この部分をレーザーなどに使えば良いので、シリコン上に長寿命のレーザーを作ることが可能になってきました。

その後、成長条件を最適化することによって、かなり幅の大きな成長層が得られるようになりました。その例を図27に示します。中央にマイクロチャネルがありますが、その両側に約100ミクロンの幅の広い成長層ができるようになりましたので、電子デバイスにも使える段階に入ってきたと思っています。

マイクロチャネルエピタキシー技術は、最近窒化ガリウムに適用されています。NECの碓井さんたちの報告によれば、SiO_2を絶縁膜として用い、そこに窓開けをして、そこから成長を開始して横方向に成長させ、それを合体させることにより転位の少ない層を得ています。

日亜化学、現カリフォルニア大学の中村さんたちは、この技術を使って転位を減らし、長寿命レーザーダイオードを作ったことを報告しています。

私たちは、シリコンの上に無転位GaAsを成長させるため、この技術を10年以上かけて開発してきました。その過程で、この技術にマイクロチャネルエピタキシーという新しい名前をつけたのです。新しい技術は新しい概念に基づき生まれますが、この技術における新しい概念とは、結晶情報はもらうけれども欠陥情報は排除するというものです。この原理を表すものとして、マイクロチャネルエピタキシーという名前をつけたのです。一方、中村さんたちはこの技術にELOGという別の名前をつけました。私としてはマイクロチャネルエピタキシーという名前を使っていただければうれしいと思っています。

欠陥を制御することを目的に生まれた技術とその背後の新しい概念をご紹介して、格子定数差の大きなヘテロエピタキシーにおいても、無転位結晶が出来るということをお話ししました。

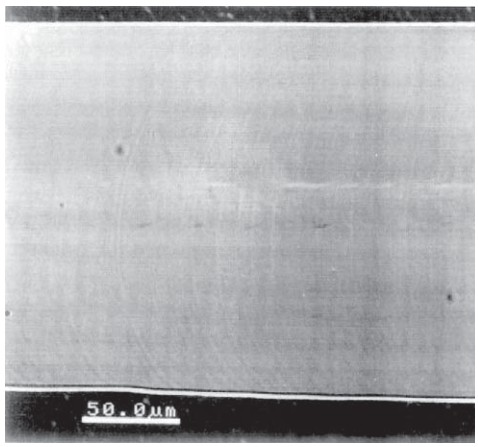

図27　Si基板上のGaAsマイクロチャネル
エピタキシー。
成長層巾が約200μmあるもの。

最後に、今後、結晶成長にどのようなことが求められるかということをまとめてみました。最初にご紹介したように、新しい結晶技術は新しいデバイスを生んでいます。ゲルマニウムの単結晶がトランジスタを生み、液相エピタキシャル成長がレーザーダイオードを生み、低温バッファー層が高品質GaNを生み、青色発光ダイオード、レーザーダイオードを生んだように、新しい結晶技術が常に新しいデバイスを生み出してきました。今後も新しい結晶成長技術が新しいデバイスを生むに違いありません。それが情報化社会のハードウェアの進歩をもたらし、先ほどの赤﨑先生のお話にもあったように、環境問題を解決するための武器となり、21世紀の社会に貢献できると思います。

しかしそれは、単に技術を追い求めるだけでは実現されません。科学としての結晶成長を追求していった結果として、初めて技術としての結晶成長の進歩が与えられると思います。科学を抜きにした結晶成長の技術は盲目です。ただ小手先の工夫からは本質的な発見は生まれません。科学としての結晶成長を追求していく過程で新たな技術としての結晶成長が生まれてくるということを申し上げたいと思います。

科学としての結晶成長とは何かということですが、それは結晶成長を理解することです。先ほど申し上げたように、現在はまだ単純なコッセルモデルの時代と言って良いと思います。この段階でも、現象論的にはかなりのことがわかってきています。しかし、将来は結晶表面の正確な姿を量子論的なアプローチで明らかにし、そこでの原子のダイナミックな振る舞いを明らかにしていくことにより科学としての結晶成長が進展して行くと思います。この段階に達するには、まだまだ時間がかかると思います。まだ何十年という研究期間が必要だと思いますが、現在これに向けて多くの方がスタートを切りつつあります。

そのようにして結晶成長の本当の姿が良くわかってくると、ナノ構造を作製するにはどうしたら良いのか、完全結晶はどうしたら可能かという、技術としての結晶成長の道が見えてきます。それが見えてくると、また新たな科学としての結晶成長の発展の時代に戻ってくるということで、このような科学と技術のらせん的な展開によって学問としての結晶成長が進んで行くと思います。以上をもちまして私の話を終えさせていただきます。ご清聴ありがとうございました。