

令和2年度高性能汎用計算機高度利用事業  
「富岳」成果創出加速プログラム  
「省エネルギー次世代半導体デバイス開発のための  
量子論マルチシミュレーション」  
成果報告書

令和3年5月28日  
名古屋大学・未来材料システム研究所・特任教授

押山 淳

## 目次

1. 補助事業の目的	2
2. 令和2年度（報告年度）の実施内容	
2-1. 当該年度（令和2年度）事業実施計画	2
2-2. 実施内容（成果）	
(1) 量子論第一原理計算による表面・界面原子機構解明と実験との比較	3
① GaN-MOS デバイスにおけるゲート絶縁膜 AlSiO 中の酸素空孔の特性解明	3
② GaN-AlSiO 絶縁膜界面の構造決定と電気的性質	4
③ GaN 薄膜中の転位とアクセプター複合欠陥の構造決定と pn 接合ダイオード劣化原因の解明	6
④ SiC/SiO <sub>2</sub> デバイス界面の欠陥解明とデバイス特性改善策の提案	7
⑤ SiC 結晶多形における、歪みと結晶対称性が正孔バンド構造に及ぼす影響解明	8
⑥ 窒素系ガスアニールを施した SiC-MOS 界面の構造探索	9
⑦ ウェット酸化 SiC (000-1)/SiO <sub>2</sub> 界面の特異欠陥生成メカニズムの解析	10
⑧ アモルファス SiO <sub>2</sub> 中 N 不純物欠陥の解析	11
(2) エピタキシャル成長統合シミュレーション技術の開発と有用性の検証	12
① GaN-MOVPE 成長における Ga 原料ガスの気相分解反応解明	12
② ステップフロー GaN-MOVPE 成長機構の素過程解明	15
③ GaN 成長中の酸素不純物取り込み機構の解明	16
④ 量子論分子動力学法における GaN 成長環境下での表面液体化の発見	18
⑤ SiC-CVD 成長における Si 原料ガスと C 原料ガスの気相分解反応解明	19
⑥ データ同化による気相反応モデルの高精度化	21
(3) 統合デバイスシミュレータによる省エネルギー MOSFET の特性解明と実デバイスとの比較	22
① ナノデバイスシミュレーションの環境構築	22
② パワーデバイスの特性解明	23
(4) GaN エピタキシャル成長素過程の解明：TOF-MS を用いた MOVPE 気相反応解析	24
① TMGa を用いた MOVPE 気相反応の解析	25
② TMGa と TEGa 分解の比較	29
(5) プロジェクトの総合的推進	31
2-3. 活動（研究会の活動等）	32
2-4. 実施体制	32
別添 1 学会発表等実績	34

## 補助事業の名称

「富岳」成果創出加速プログラム

省エネルギー次世代半導体デバイス開発のための量子論マルチシミュレーション

### 1. 補助事業の目的

量子論第一原理物質計算により、アモルファスゲート絶縁膜／半導体に代表されるデバイス界面の特性を解明し、さらに第一原理計算アプリケーションと半導体デバイスシミュレータおよびエピタキシャル成長プロセスシミュレータとを統合した新たなシミュレーション技術を確立する。シミュレーション結果と実験結果の検証により、次世代省エネルギー半導体デバイスにおける科学と製造技術の発展に資する。

### 2. 令和2年度（報告年度）の実施内容

#### 2-1. 当該年度（令和2年度）の事業実施計画

[以下、事業実施項目(2)と(3)は、本成果報告書の内容に鑑み、  
令和2年度事業計画書における順番と入れ替えた。]

#### (1) 量子論第一原理計算による表面・界面原子機構解明と実験との比較

SiC、GaN 等の省エネルギー半導体のデバイス界面、薄膜成長表面での原子反応機構を量子論計算に基づいて解明し、さらに作成されたデバイス構造におけるキャリア捕獲中心の同定を実験との共同で行う。これにより高品質デバイス界面作成の指針を得る。

#### (2) エピタキシャル成長統合シミュレーション技術の開発と有用性の検証

GaN、SiC エピタキシャル成長における成長炉内および成長表面での反応素過程を量子論計算に基づき解明する。さらに流体力学シミュレーションとの統合を局所熱平衡概念を用いて行い、その有用性を実際の成長実験との比較を通して検討する。

#### (3) 統合デバイスシミュレータによる省エネルギーMOSFETの特性解明と実デバイスとの比較

第一原理物質計算アプリケーションと MOSFET デバイスシミュレータとを統合し、ナノワイヤー型 MOSFET、縦型 MOSFET のデバイス特性を予測し、実デバイス特性と比較検討を行う。

#### (4) GaN エピタキシャル成長素過程の解明：TOF-MS を用いた MOVPE 気相反応解析

MOVPE 法を用いた GaN エピタキシャル成長実験中の気相の分子成分比を、高分解能 Time-Of-Flight 質量分析実験 (TOF-MS) によって明らかにし、シミュレーションとの比較により成長素過程を明らかにする。

#### (5) プロジェクトの総合的推進

本事業を効率的かつ効果的に推進するため、プロジェクト推進会議を適宜開催し、参画各機関の連携・調整を実施する。とくに、シミュレーションデータと実験データとの比較、両者のフィードバックによるシミュレーション技術の改善促進、有用な実験データの取得を促進させる。また、プロジェクト全体の管理・調整業務を行う。

## 2-2. 実施内容（成果）

### (1) 量子論第一原理計算による表面・界面原子機構解明と実験との比較

#### ① GaN-MOS デバイスにおけるゲート絶縁膜 AlSiO 中の酸素空孔の特性解明

(名古屋大学計算グループ+名古屋大学実験グループ)

GaN-MOS デバイスのゲート絶縁膜としては、 $\text{SiO}_2$ と  $\text{Al}_2\text{O}_3$ が主に用いられているが、一長一短がある。すなわち、より広いバンドギャップ (9.0 eV) をもつ  $\text{SiO}_2$ は GaN 界面で電子、正孔ともに十分なバンドオフセットをもつが、誘電率がそれほど大きくない ( $\epsilon = 3.8$ )。一方  $\text{Al}_2\text{O}_3$ は大きな誘電率 ( $\epsilon = 8.5$ ) を持つが、バンドギャップが狭いため (6.7 eV)、十分なバンドオフセットが取れない場合がある。そこで我々は両者の混合酸化物  $(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}(\text{SiO}_2)_x$ の可能性を探索した (以下 AlSiO と略記)。実際 AlSiO については、名大/豊田中研の実験グループにより、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ と  $\text{SiO}_2$ の交互堆積とその後のアニーリングによりアモルファス AlSiO が作成され、約 20%の Si 含有量で、MOS 構造の絶縁破壊において最高の耐性を示している。一般に絶縁破壊の要因は酸化膜中の酸素原子空孔であることが多いので、AlSiO 中の酸素空孔の特性を調べた。

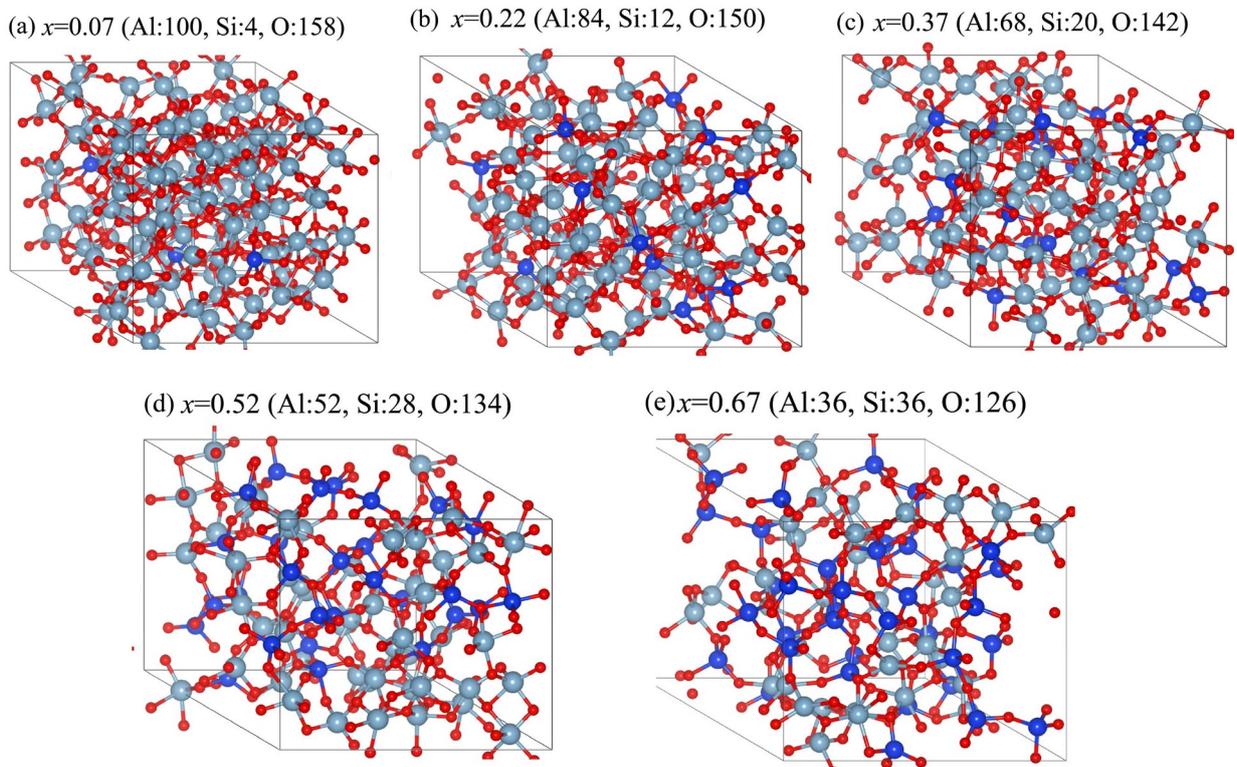


図 1 : melt-quench 法によって作成された様々なストイキオメトリーをもつアモルファス  $(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}(\text{SiO}_2)_x$  の原子構造。青灰色、青色、赤色は、Al、Si、O 原子を表している。

計算は密度汎関数理論 (Density Functional Theory: DFT) に基づくボルンオッペンハイマー(BO)分子動力学法 (Molecular Dynamics: MD) により行われた。まずターゲット材料の温度を 6000K まで上昇させ、その温度で 10 ピコ秒(ps)間熱平衡化させた。その後 100K/ps あるいは 200K/ps の速度でクエンチすることによって (melt-quench 法) アモルファス AlSiO を作成した (図 1)。実際アモルファスが作成されていることは、原子対相関関数、構造トポロジーにより確かめている。この作成したアモルファス

の各位置の酸素原子を抜くことにより、様々な酸素原子空孔を用意し、その安定構造、生成エネルギー、電子準位構造を調べた。

AlSiO 中の酸素空孔は、空孔の最近接に位置する Al 原子の数で分類することができる。今回の計算で空孔の生成エネルギーは周囲の Al 原子の数が 0 個から 5 個に変化するにつれ、4.9 eV から 6.7 eV に上昇することがわかった。周囲を全て Si に囲まれた空孔と Al4 個に囲まれた空孔の電子準位を図 2 に示す。Al に囲まれた空孔はギャップ中に電子準位を作るのに対し、Si だけに囲まれた空孔は Si の再結合化によりギャップ中に電子準位を作らないことがわかった。つまり AlSiO 中の酸素空孔は生成エネルギーの低い Si に囲まれたものがマジョリティであり、そのマジョリティ空孔はキャリアトラップを引きおこしにくい。さらに異なる酸素空孔間の構造転移を調べた。図 3 は、Al に囲まれた酸素空孔が Si に囲まれた酸素空孔に変異する反応経路を探索し、対応する反応エネルギーを求めたものである。周囲の Si および Al 原子のわずかな変位によ

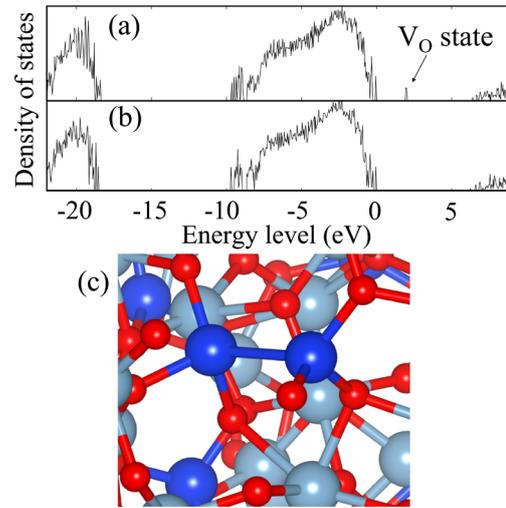


図 2:  $(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0.7}(\text{SiO}_2)_{0.3}$  中の酸素原子空孔の電子状態密度。(a)は Al 四原子に囲まれた空孔、(b)はすべて Si 原子に囲まれた空孔。価電子帯上端がエネルギーの原点に取ってある。(c)は空孔(b)の原子構造。青、青灰、赤が Si, Al, O 原子を表している。

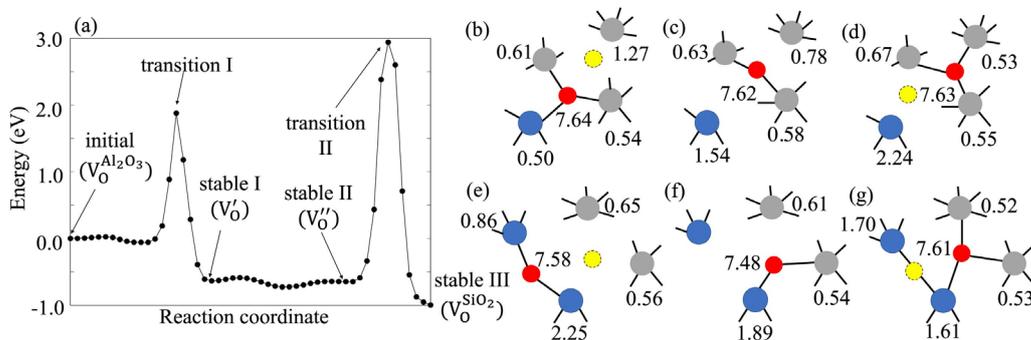


図 3: Al 原子付近に形成された O 空孔が Si 原子付近に移動する際のエネルギープロファイルと各状態での原子構造。(a)O 空孔移動の際のエネルギープロファイル。(b)Al 原子付近に O 空孔が形成されたときの原子構造。(c)~(f)Al 原子付近から Si 原子付近に O 空孔が移動する際の準安定状態と遷移状態の原子構造。(g) Si 原子付近に O 空孔が形成されたときの原子構造。灰、青、赤、黄の丸は、Al 原子、Si 原子、O 原子、O 原子空孔の位置を表す。

り、電気的に活性な Al 近傍酸素空孔が、電気的に不活性な Si 近傍酸素空孔に変異する様子がわかった。今回計算で明らかになったアモルファス AlSiO の酸素空孔の特性が、AlSiO ゲート絶縁膜の絶縁破壊に対する高い耐性の成因であると考えられる。この結果は Physical Review Applied 誌に発表された。

## ② GaN-AlSiO 絶縁膜界面の構造決定と電気的性質 (名古屋大学計算グループ)

AlSiO 膜の優位性は上記の酸素原子空孔の特性に加え、GaN との界面構造とその電子状態にも起因することが更なる計算で判明した。計算では、実際の GaN/AlSiO 界面を図 4(i)で示すような AlSiO 膜と GaN 膜の超格子構造でモデル化した。超格子構造なので界面は 2 種類存在し、それぞれ AlSiO/GaN(0001)

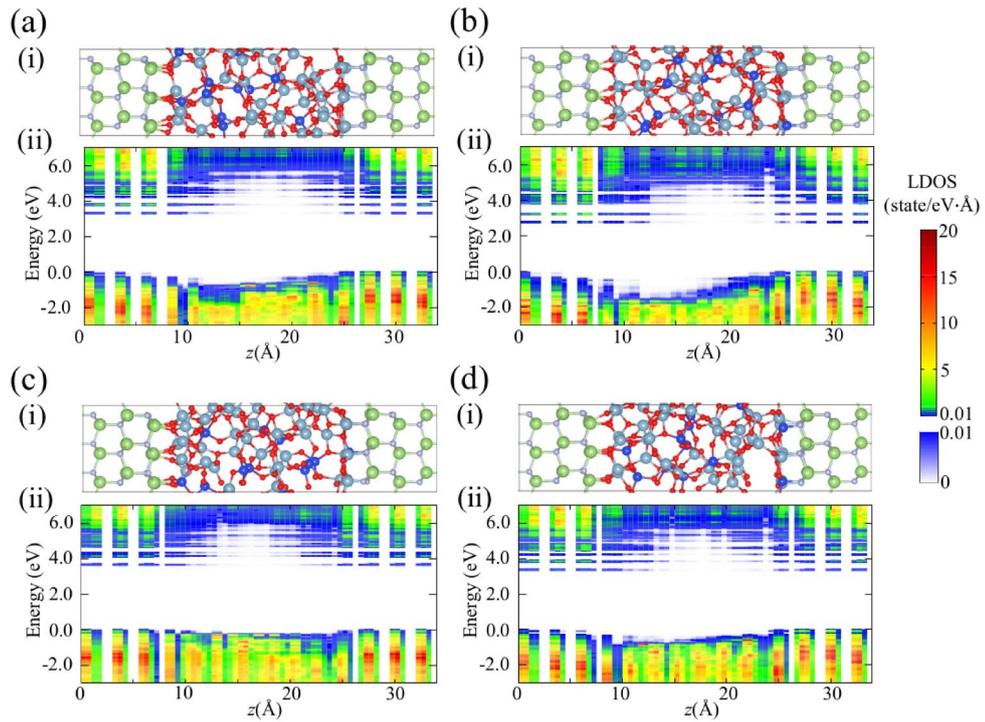


図 4:  $(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0.62}(\text{SiO}_2)_{0.38}/\text{GaN}$  界面付近の原子構造(i)と局所電子状態密度 (LDOS) (ii)。左側の界面が  $\text{GaN}(0001)/\text{AlSiO}$ 、右側の界面が  $\text{AlSiO}/\text{GaN}(000-1)$ に対応している。(i)での緑、灰、青、灰青、赤の球は、Ga、N、Si、Al、O 原子を表している。LDOS はカラー等高線で表され縦軸のエネルギー原点は  $\text{GaN}$  の価電子帯上端にとってある。(a)-(d)は作成した異なる 4 種のアモルファスに対する結果。

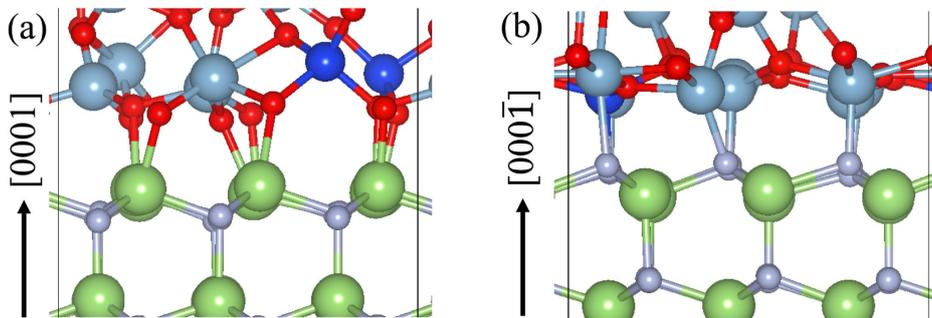


図 5: melt-quench 法で得られた(a)アモルファス $(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0.62}(\text{SiO}_2)_{0.38}/\text{GaN}(0001)$ 界面構造と(b) アモルファス $(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0.62}(\text{SiO}_2)_{0.38}/\text{GaN}(000-1)$ 界面構造。原子を表すカラーコードは図 4 と同一。

と  $\text{AlSiO}/\text{GaN}(000-1)$  界面に対応する。項目①と同様な melt-quench 法により、4 種類の異なるアモルファス  $\text{AlSiO}$  と  $\text{GaN}(0001)$  および  $\text{GaN}(000-1)$  との界面を作成した。驚くべきことに、どのアモルファスサンプルにおいても、(0001)界面の Ga および(000-1)界面の N のダングリングボンドはきれいに消失することがわかった (図 5)。これはアモルファス中の酸素が(0001)界面に拡散して来て Ga ダングリングボンドを修復し、またアモルファス中の Al および Si は(000-1)界面に拡散して N ダングリングボンドを修復するためである。実際、MD シミュレーション中でアモルファス中を O、Si、Al 各原子が拡散していることを確認できた。この界面への拡散は酸素と Ga および N と III 族、IV 族元素との強いボンド形成に起因している。

図 4(ii)は 4 種類の  $\text{GaN}/\text{AlSiO}$  超格子構造に対する計算で求めた局所電子密度である。界面でのダングリングボンドの消失に対応して、 $\text{GaN}$  および  $\text{AlSiO}$  絶縁膜のエネルギーギャップ領域には界面電子準

位は現れない。完全な界面が形成されている。もちろんこのモデリングには含まれていない界面反応等による不純物原子の影響は今後考慮すべきだが、今回得られた結果は、AlSiO 絶縁膜の潜在的な優位性を示している。得られた成果は、Applied Physics Letters 誌に発表された。

### ③ GaN 薄膜中の転位とアクセプター複合欠陥の構造決定と pn 接合ダイオード劣化原因の解明

(名古屋大学計算グループ+名古屋大学実験グループ)

無転位 Si と対照的に GaN 膜中には未だ多くの転位が存在し、その制御は工業上極めて重要である。一つの例は、名大実験グループで明らかになった、pn 接合ダイオードの逆バイアス下での漏れ電流がらせん転位の場所と一致しているという報告である。今回 DFT 計算により、世界で初めてらせん転位の芯構造を明らかにし、さらにらせん転位は Mg アクセプター原子をひきつけること、それにより p 型が n 型に変換してしまうことを突き止めた。

構造について実験的にわかっているのは、らせん転位のバーガース・ベクトルが $[0001]$ であることだけなので、DFT 計算で網羅的に構造の安定性を調べた。転位線の位置が $[0001]$ 方向に沿って、6 原子から成るヘキサゴンの真ん中に位置する場合 (Single とよぶ)、ボンドの真ん中に位置する場合 (Double とよぶ) の二つの可能性があり、さらに転位芯のまわりに Ga と N 原子がいくつ存在するのかわかると、16 種類の可能性がある (図 6)。そのすべての構造を最適化し、Ga の化学ポテンシャルの関数として転位芯構造のエネルギーを計算した。その結果、Ga リッチから N リッチに亘る環境下で、図 6 でマークした三つの転位芯構造が出現することがわかった。さらに p 型 GaN を形成する Mg アクセプター原子は、この三つの転位芯にひきつけられることも計算で判明した (図 7 の結合エネルギー)。この転位-アクセプター複合体形成により、電子論的には価電子帯近くのアセプター準位とミッドギャップ付近の転位起因の準位が混ざりあい、量子力学の教科書にあるように、下の準位は下に上の準位は上にシフトするので、アクセプター準位が消え、転位準位が伝導帯近くに位置してドナー的振る舞いをすることがわかった (図 8)。

つまり pn 接合が転位芯付近では局所的 nn 接合になっていて、これが逆バイアス下での漏れ電流を引き起こすと考えられる。この成果は、第一原理計算による世界初の半導体中複合

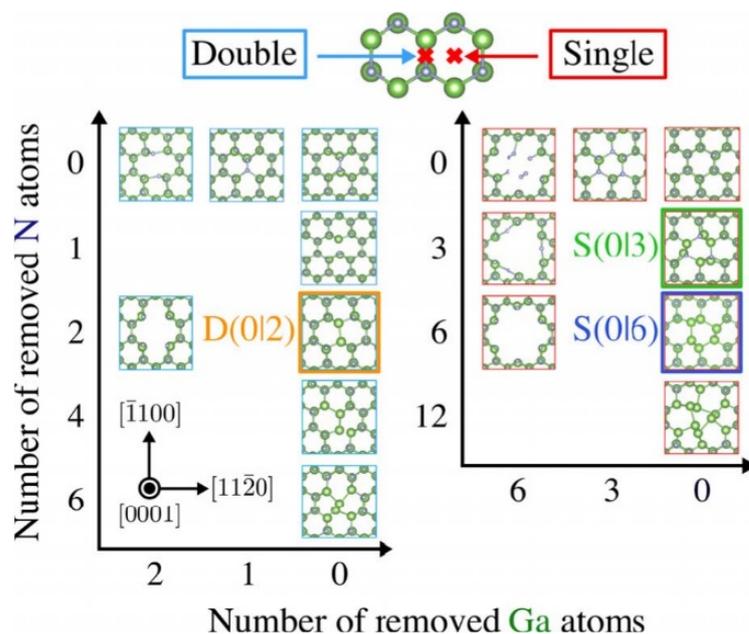


図 6 : 様々ならせん転位芯構造の $[0001]$ 方向からの模式図。転位線の位置に応じて Single、Double の可能性がある。さらに Ga、N が芯に充填された場合と、Ga が  $n$  個、N が  $m$  個、芯から除外された構造  $S/D(n,m)$  が考えられる。得られた転位芯構造の全エネルギーより  $D(0|2)$ 、 $S(0|6)$ 、 $S(0|3)$  の転位芯が Ga および N の化学ポテンシャルの値に依存して、安定に出現することがわかった。

欠陥の同定であり、Applied Physics Letters 誌に発表された。

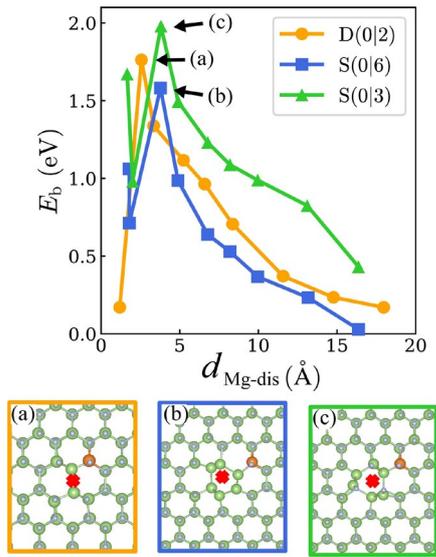


図 7: 三つの最安定らせん転位芯構造 (a) D(0|2), (b) S(0|6), (c) S(0|3) と Mg アクセプターの複合体形成。Mg と転位芯の距離  $d$  の関数としての結合エネルギー  $E_b$ 。

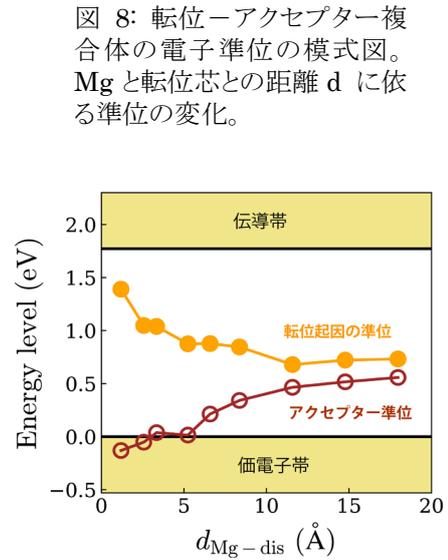


図 8: 転位-アクセプター複合体の電子準位の模式図。Mg と転位芯との距離  $d$  に依る準位の変化。

④ SiC/SiO<sub>2</sub> デバイス界面の欠陥解明とデバイス特性改善策の提案

(東工大計算グループ+京大実験グループ+阪大実験グループ)

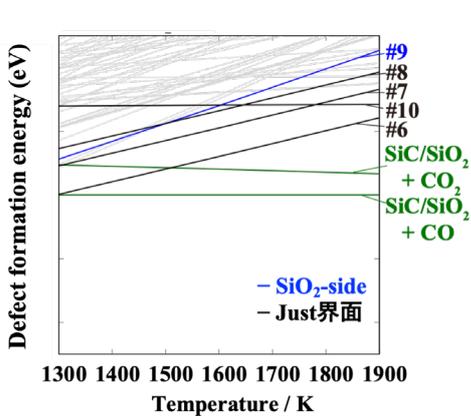


図 9: DFT によって計算された炭素関連欠陥の形成エネルギーの温度依存性。形成エネルギーが高いほどその欠陥が不安定であることを意味する。黒線は SiC/SiO<sub>2</sub> 界面に分布する欠陥を、青線は SiO<sub>2</sub> 膜中に分布する炭素関連欠陥を表す。参照として、CO<sub>2</sub>(気体)とCO(気体)の形成エネルギーもプロットしている。通常の実験では熱酸化の温度として 1600K 程度が用いられる。

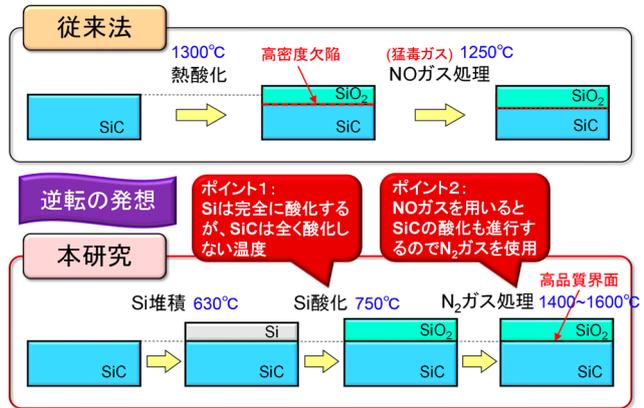


図 10: 従来法の酸化膜形成法と本研究による酸化膜形成法の比較。通常の酸化膜形成法では、1300°C で SiC 基板を熱酸化する。今回の新しい酸化膜形成法では、630°C において SiC 基板に Si 膜を堆積する。その後、750°C という低温で Si 膜のみを酸化し(実際に、750°C の低温下では SiC は一原子層も酸化されない事が知られている。) SiC/SiO<sub>2</sub> 界面を形成する。その後、SiC/SiO<sub>2</sub> 界面の欠陥を処理するために、N<sub>2</sub> ガスによる界面処理を行う。

SiC-MOS デバイスのキャリアトラップとして有力視されている炭素関連欠陥にフォーカスし、3つの領域 (SiC 結晶中、SiO<sub>2</sub>膜中、SiC/SiO<sub>2</sub>界面) における炭素関連欠陥の安定性を DFT 計算により解明した。具体的に、全部で 126 種類の炭素関連欠陥 (SiC 結晶中に分布したもの 23 種類、SiO<sub>2</sub>膜中に分布し

たもの 24 種類、SiC/SiO<sub>2</sub>界面に分布したもの 79 種類) を用意し、それらに対する網羅的な理論計算を実施した。また、その計算結果から、残留炭素欠陥の存在分布領域を解明し、炭素関連欠陥の多くは、SiC/SiO<sub>2</sub>界面領域に分布していることを明らかにした。得られた結果を実験へとフィードバックし、それにより、欠陥が高温低圧下において不安定化することを見出した。このことは、阪大渡部グループにおいて実験的に報告された事実と定性的に合致することを確認した(図 9)。

さらにはデバイス特性改善策の提案を行った。界面近傍に分布する炭素関連欠陥が安定であることは、熱酸化で酸化膜を形成する以上は不可避な欠陥であることを意味する。つまり、界面における残留炭素欠陥を減らすためには、通常熱酸化による酸化膜形成法を諦めなければならないことを意味する。そこで、我々は SiC の熱酸化によらない新しい酸化膜形成法を京都大学の木本研究室と共同で考案し、実験によりその有効性を確認した。新しい酸化膜形成法の概念図は図 10 の通りである。

新しい酸化膜形成法を実験により確認した結果を図 11 に示す。電子の移動度に特に影響を及ぼすのは伝導帯下端近傍の界面欠陥密度である事が知られている。実験の結果、伝導帯下端近傍の界面欠陥密度が 10 分の 1 程度に低減している様子がわかる。これにより、確かに、10 倍高品質な界面が実現できていることが実験的にも示された。得られた成果は Applied Physics Express 誌に発表された。

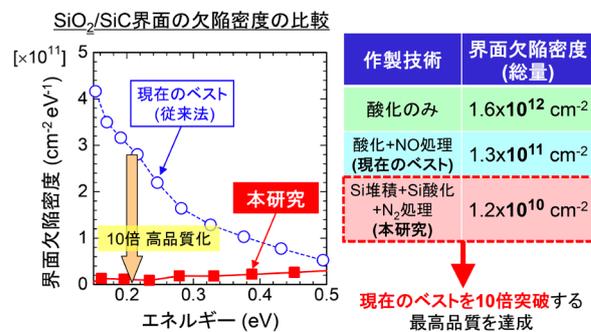


図 11: 伝導帯下端近傍の界面欠陥密度の従来法と新しい方法との比較 (左) と界面欠陥密度の総量の比較 (右)。

### ⑤ SiC 結晶多形における、歪みと結晶対称性が正孔バンド構造に及ぼす影響解明

(東工大計算グループ)

SiC において、結晶対称性と結晶歪み、それらと正孔バンド構造との間の関係を DFT 計算により明らかにした。具体的には、立方晶系として 3C 構造を、六方晶系として 2H 構造、4H、6H 構造を例に、それらの電子バンド構造を詳細に議論した。具体的には、スピン軌道相互作用を考慮した DFT 計算を実行し、電子バンド構造を計算した。その結果、正孔バンドにおいて重い正孔バンド (HH) と結晶場分裂正孔バンド (CF) の間のエネルギー分裂がヘキサゴナリティと呼ばれる六方晶性の度合いと比例していることを明らかにした。(ちなみに定義されたヘキサゴナリティは、3C 構造において 0%、2H 構造において 100%、4H 構造において 50%、6H 構造において 33%となる)。結晶対称性と正孔バンド構造の関係は化合物半導体一般にお

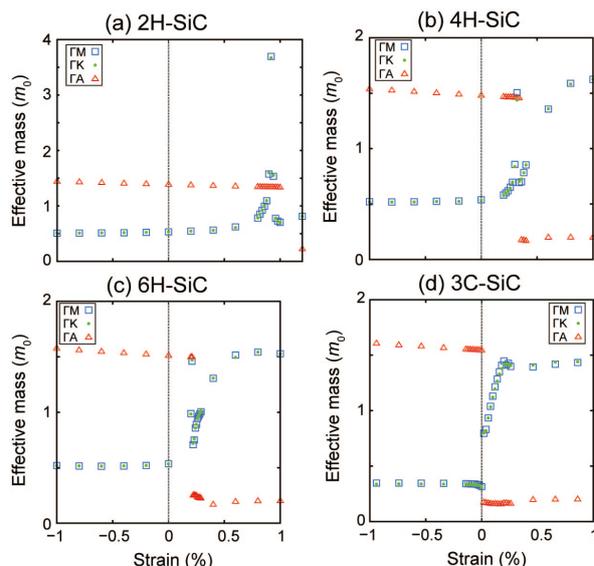


図 12: SiC 結晶多形における 2 軸歪み (引っ張り歪みを正の値、圧縮歪みを負の値) と正孔有効質量 ( $\Gamma$  M 方向、 $\Gamma$  K 方向、 $\Gamma$  A 方向) の関係。(a) 2H 構造、(b) 4H 構造、(c) 6H 構造、(d) 3C 構造。

いて p 型デバイス作成の際に重要な知見を与える。次に、それぞれの結晶多形に 2 軸歪みを印加した際の正孔有効質量を計算した (図 12)。その結果、いずれの場合も引っ張り歪みにおいて、特徴的な歪み量を超えると、面垂直方向の有効質量が減少し、面内方向の正孔有効質量が重くなる傾向があることがわかった。特に、面内方向に関して、ある特徴的な歪みにおいて、有効質量が発散する振る舞いが観察された。これらの振る舞いは、重い正孔バンド (HH) バンドと軽い正孔バンド (LH) 間の混成により生じていることを明らかにした。実際のデバイスでは異種物質界面において歪みが生じる。今回の成果は、界面歪みが正孔に及ぼす影響を理解する際に重要な知見となる。得られた成果は AIP Advances において発表した。

## ⑥ 窒素系ガスアニールを施した SiC-MOS 界面の構造探索

(神戸大学計算グループ)

SiC-MOS デバイス界面の特性は窒素系ガスアニールにより向上することが知られているが、その理由にはわかっていない。この課題を明らかにするため、今年度 RSPACE コードによる DFT 計算により、窒素系ガスアニール処理後の界面

原子構造を探索した。

4H-SiC を対象に、Si(C)面方向、a 面方向、m 面方向に窒素が導入された窒化膜を形成し、その界面窒素原子密度を評価した。窒化膜は、バルク中から Si 原子を 1 個除去し、Si 空孔 1 個に対し隣接する C 原子 4 個を N 原子に置換したものを要素として、各要素を 4 つ並べることで界面を模した。このモデリングによる窒素原子面密度はおよそ  $10^{15}\text{cm}^{-2}$  となり、実験で観測されているものと同程度となっている。この窒化膜に対し、形成エネルギーを計算した。表 1 が計算結果であり、a 面方向に窒化膜が広がる方が安定であることがわかる。窒化膜形成エネルギーの面方位依存性は、Si

表 1: 窒化膜形成エネルギーと隣接 N 原子数を分類に用いた Si 原子数。Si(0)は隣接 N 原子なし。Si(1)は隣接 N 原子 1 個。Si(2)は隣接 N 原子 2 個。4H 構造では置換される Si 位置には k と h の二種類がある。

サイト	面方位	$E_{\text{total}}[\text{eV}]$	$\Delta E[\text{eV}]$	Si(0)	Si(1)	Si(2)
k	a	-54100.663	0.000	32	8	20
k	m	-54098.206	0.614	28	16	16
k	Si	-54098.368	0.574	24	24	12
h	a	-54098.737	0.481	28	16	16
h	m	-54097.280	0.846	14	24	12
h	Si	-54097.918	0.686	24	24	12

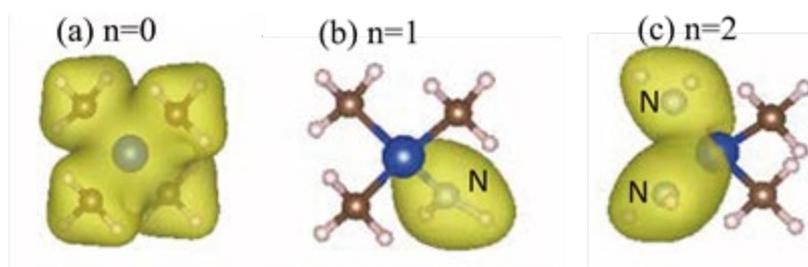


図 13:  $\text{Si}(\text{NH}_2)_n(\text{CH}_3)_{4-n}$  分子の最低エネルギーの  $sp^3$  結合軌道の電子密度分布。

原子に隣接する窒素原子の数に相関があり、a 面は N 原子 2 個と隣接した Si 原子が他の面に比べて多い。Si 原子の N 原子隣接数に対する局所状態密度の変化を計算すると、N 原子の高い電気陰性度により、N 原子と結合した Si 原子の  $sp^3$  軌道のエネルギーが下がることがわかった。さらに詳しく調べるために、 $\text{Si}(\text{NH}_2)_n(\text{CH}_3)_{4-n}$  分子の全エネルギー  $E(n)$  を計算し、その変化量  $\Delta E = E(n) - E(n-1)$  を求めた。n=1 の場合は、窒化によるエネルギー減少幅が小さいが、n>1 では、減少幅が増大することがわかった。図 13 に

最低エネルギーの  $sp^3$ 結合軌道の電子密度分布を示す。N と結合した Si 原子では、N 原子近傍に  $sp^3$ 結合軌道の電子密度分布が局在していることがわかる。1 つの N 原子としか隣接しない Si 原子の Si-N 結合は、2 つ以上の N 原子と隣接する Si-N 結合よりも局在が強くなりすぎ、電子の運動エネルギーが大きくなるため安定化しない。このため、2 つの N 原子と隣接する Si 原子数が最大化する a 面が最も安定化する。

以上の結果より、a 面を使って作成した MOS に窒素系ガスアニールを施せば、原子レベルで平坦な MOS 界面を生成でき、高い移動度が期待できることが示唆される。

### ⑦ ウエット酸化 SiC (000-1)/SiO<sub>2</sub>界面の特異欠陥生成メカニズムの解析

(神戸大学計算グループ)

SiC(000-1)面をウエット酸化して作成された SiC MOSFET は、(0001)面、(1-100)面、(11-20)面などの結晶面やドライ酸化によって作成された MOSFET に比べて、移動度が高い傾向にある。これは、他の面および酸化方法に比べて界面欠陥準位が少ないことに起因していると考えられる。一方、SiC (000-1)面のウエット酸化界面では、他の面や酸化方法では現れない界面欠陥が主成分を占めることを筑波大学・梅田らが Electrically Detected Magnetic Resonance(EDMR)計測で見出した[Appl. Phys. Lett. **115**, 151602 (2019)]。これらの欠陥は(000-1)面が C 面と呼ばれることから C 面欠陥と呼ばれている。この C 面欠陥としては、Si 原子空孔を隣接する C 原子がアンチサイトとして占有した C<sub>Si</sub>V<sub>C</sub>と、C<sub>Si</sub>V<sub>C</sub>の C<sub>Si</sub>が離脱した V<sub>Si</sub>V<sub>C</sub>がある。さらにこれらは、C<sub>Si</sub>V<sub>C</sub> での C<sub>Si</sub>原子の未結合手が[000-1]方向に平行な c-axial 型と(000-1)面に平行な basal 型に分類される。(000-1)面のウエット酸化では、界面欠陥の量は C<sub>Si</sub>V<sub>C</sub> c-axial >> V<sub>Si</sub>V<sub>C</sub> basal >> その他の欠陥、の順であり、C<sub>Si</sub>V<sub>C</sub>と V<sub>Si</sub>V<sub>C</sub>には明確な選択性がある。(000-1)面の酸化現象は、(1-100)面、(11-20)面など他の面の酸化現象を理解するために補助的に用いられるため、(000-1)面に特有に現れる欠陥の生成機構を明らかにすることは SiC MOSFET の移動度向上に向けて重要である。本年度、C 面欠陥生成の選択性と C 面欠陥がキャリア散乱に与える影響を明らかにするため、RSPACE を用いて C 面欠陥の生成エネルギーと電子状態の評価を行った。

表 2 に SiC(000-1)/SiO<sub>2</sub>界面における欠陥の生成エネルギーを示す。生成エネルギーの計算結果は、C<sub>Si</sub>V<sub>C</sub>は界面第 1 層に c-axial として、V<sub>Si</sub>V<sub>C</sub>は界面第 2 層に basal として生成されやすいことを示唆している。酸化過程において SiC 基板中の Si は、表面に近い第 1 層目の方がバルク深部の第 2 層目よりも抜けやすいことは明白であり、欠陥の量が C<sub>Si</sub>V<sub>C</sub> c-axial >> V<sub>Si</sub>V<sub>C</sub> basal であるという梅田らの EDMR の計測結果とよく一致する。また、生成エネルギー計算の結果より、EDMR 計測で検出されない欠陥は、生成エネルギーが大きい形形成されないか、SiO<sub>2</sub>側からの O 原子の侵入により、欠陥が消滅することがわかる。さらに局所状態密度の計算結果より、各欠陥では、C 原子が未結合

表 2: SiC(000-1)/SiO<sub>2</sub>界面における C 面欠陥の生成エネルギー。第 1 層は界面から基板側に向けて 1 番目の SiC 原子層、第 2 層は 2 番目の SiC 原子層の Si 原子が抜けた構造を示す。単位は(eV/欠陥)である。表中の NA は、SiO<sub>2</sub>側からの O 原子の侵入により、欠陥が消滅することを表す。生成エネルギーは、各欠陥構造のうち、生成エネルギーが最小で最も生成されやすいものを 0 とする。

欠陥	c-axial	basal
C <sub>Si</sub> V <sub>C</sub> @第 1 層	0	NA
C <sub>Si</sub> V <sub>C</sub> @第 2 層	+1.73	+0.91
V <sub>Si</sub> V <sub>C</sub> @第 1 層	NA	NA
V <sub>Si</sub> V <sub>C</sub> @第 2 層	+0.11	0

手を持つこと、C 原子近傍準位の片方のスピンのみが電子に占有されることが明らかとなった。これは本計算で用いた界面欠陥モデルが、EDMR 計測で検出されるものであることを担保している。

### ⑧ アモルファス SiO<sub>2</sub> 中 N 不純物欠陥の解析 (富士電機計算グループ)

ゲート絶縁膜であるアモルファス SiO<sub>2</sub> 中の窒素不純物の振舞を調べるため、RSDFT コードによる検討を行った。まず、密度が実験的に得られるものと近いβ-クリストバライト構造 (2\*2\*2 超格子モデル, 192 原子) を初期構造として melt-quench 法により融解、冷却 (200 K/ps) することで、アモルファス構造を作成した[図 14(a)]。次にアモルファス SiO<sub>2</sub> 作成の過程で得られた構造スナップショットを初期構造として、不純物欠陥 (N) を含む構造を作成した。アモルファス SiO<sub>2</sub> 冷却過程において、いくつかの温度 (5000 K~2000 K) における構造スナップショットを抽出し、O の一部を N で置換したうえで、各温度から 300 K まで冷却を行った。なお、価電子数の過不足をなくするため、N を 2 つ導入し、O を 3 つ除外した。

5000 K など高温で液体状態にある構造へ N を導入すると、N は NO ガス分子を安定に形成し、300 K まで冷却を行っても N が SiO<sub>2</sub> のネットワークの中に取り込まれず NO ガスとして残ることが分かった。3500 K 以下での計算では、NO ガスが形成されにくくなったため、3500 K~2000 K からの不純物導入計算によりいくつかの欠陥構造を抽出することができた[図 14(b)]。

N が関わる欠陥構造には、導入温度や導入時の初期位置に依存していくつかのバリエーションが存在したが、温度に依らず出現する構造も見られた。最も典型的な構造として、Si に N が 3 配位する構造があった (Si<sub>3</sub>N 構造)。Si は他に O と 3 つ結合を作っており、価電子数から考えて理想的な配位数である。同時に、Si が 2 員環を作る構造も頻出した (図 14(c))。これは 1 組の隣り合う Si-Si ペアに対して O と N がそれぞれ Si-O-Si, Si-N-Si 結合をもつ構造である。N は別の Si ともう 1 つ結合を有しており、前述の構造と N の配位数は同じであるが、Si-O-Si 結合が入ることで環を形成する点異なる。これらの欠陥は、構造最適化計算を行ったあとも残ることから、少なくとも準安定状態にある欠陥であることが分かった。

得られた欠陥を含むアモルファス SiO<sub>2</sub> について電子の状態密度を計算し、欠陥部分が形成するエネルギー準位を調べた。前述した最も典型的な Si に N が 3 配位する構造 (Si<sub>3</sub>N 構造) の場合、不純物を含まないアモルファス SiO<sub>2</sub> の価電子帯上端とほぼ同じ位置に N 不純物に由来する準位を形成することが分かった。一方、Si が 2 員環を作る構造の場合、アモルファス SiO<sub>2</sub> の価電子帯上端を基準として 0.3 eV

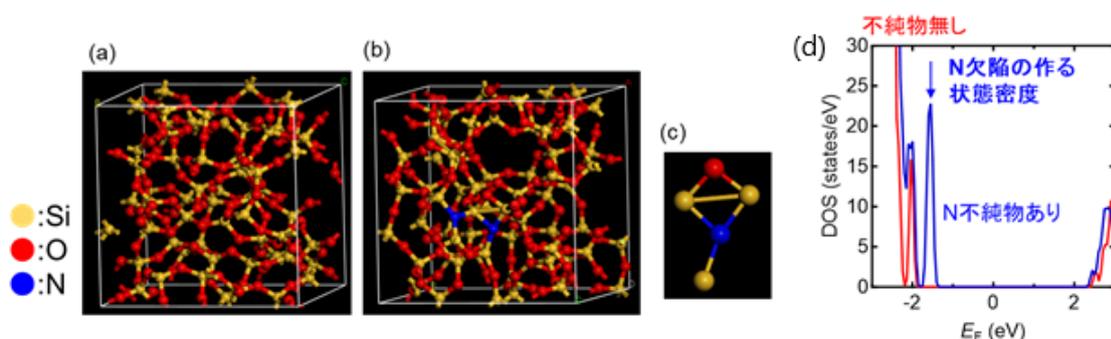


図 14: 300K まで冷却後の(a)アモルファス SiO<sub>2</sub>, (b)2500K から N を導入したアモルファス構造、(c)アモルファス構造中に現れた SiON からなる 2 員環欠陥。(d) 左の(a)、(b)構造のフェルミ準位付近の状態密度。

～1.0 eV 程度高エネルギー側に準位を形成することが分かった[図 14(d)]。これは正孔トラップの出現を示唆している。ただし、パワー半導体との接合構造の場合、価電子帯のオフセット量により影響の仕方は構造ごとに異なる。例えば SiC の場合、面方位によらずアモルファス SiO<sub>2</sub> に比べ少なくとも 2.5 eV 以上高エネルギー側に価電子帯上端を持つため、今回得られた環状の欠陥の準位は SiC のバンドギャップ中には存在しないと考えられる。このため一般的な MOSFET デバイス動作の範囲では、この欠陥はしきい値電圧などに対してあまり影響がないと考えられる。

この他にも、N を導入したアモルファス構造では O が Si に 5 配位する構造や Si-Si 結合など、N は直接関与しないものの、理想的なアモルファス SiO<sub>2</sub> からは外れた Si と O からなる欠陥構造が現れ、SiO<sub>2</sub> のバンドギャップ中に欠陥準位を形成することが分かった。現れる構造はアモルファス構造の形成条件に依存するものの、N を導入することで結合のネットワークが乱れ、このような結合の乱れが起こりやすくなっている可能性が考えられ、不純物導入の間接的な悪影響の存在が示唆された。

## (2) エピタキシャル成長統合シミュレーション技術の開発と有用性の検証

### ① GaN・MOVPE 成長における Ga 原料ガスの気相分解反応解明 (名古屋大学計算グループ)

GaN の MOVPE (MetalOrganic Vapor Phase Epitaxy) 成長では、Ga 源として TMG [Trimethyl Gallium: Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>]、N 源としてアンモニア[NH<sub>3</sub>]、キャリアガスとして H<sub>2</sub> と N<sub>2</sub> が反応炉内に流入し、気相および基板上での熱分解(基板温度 1300K)により、GaN 薄膜が成長する。高品質薄膜の製造のためには、成長中とくに気相での密度場、温度場を制御することが重要であるが、そのための実験中における観測は成長温度が高温であるため、極めて困難である。したがって、高精度の信頼できるシミュレーションにより、成長装置内の状況を把握することが重要である。今年度、TM Energy (eV) 反応について第一原理計算と反応速度論を用いて、初めてそのミクロな機構を解明した。

気相中での TMG の分解については、これまで経験的なパラメータを用いたシミュレーションによりいくつかの提案がなされてきた。アンモニアとの反応によりポリマーが形成されるとの説[Hirako *et al.*, JJAP 44, 874 (2005)]、さらにポリマー重合反応に加え、ラジカル反応が重要で GaNH<sub>2</sub> が最終生成物とする説[Ravasio *et al.*, J Phys Chem A, 119, 7858 (2015)]などがあるが、その信頼性は担保されていない。そこで我々は、量子論に基づき結晶成長温度である 1300K での各化学反応の活性化ギブスエネルギーを計算し、遷移状態理論から導出されるアイリングの式を用いて速度定数を計算するアプローチを採用した。

まず TMG からメチル基が一つ外れる反応について考える。表 3 は今回の計算で求めた、1300K における各化学反応の活性化ギブスエネルギー及び、速度定数である。表中の Reaction 1 にあるように、TMG が H<sub>2</sub> と反応するときの 1300K での活性化ギブスエネルギーは 3.24eV なのに対し、最初に NH<sub>3</sub> と反応しアミノ基を形成後(Reaction2)、さらに H<sub>2</sub> と反応しアミノ基を脱離する反応(Reaction3)の活性化ギブスエネルギーはそれぞれ 2.96eV、2.84eV と小さくなった。この活性化ギブスエネルギーの差から速度定数を計算すると、H<sub>2</sub> との速度定数に比べ NH<sub>3</sub> との速度定数の方が約 12 倍大きくなることが判明した。

このようにして TMG から DMG [Dimethyl Gallium: Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>]、さらには MMG [Monomethyl Gallium: GaCH<sub>3</sub>] が生成されていくが、その際の反応としては表 3 に示すような、29 個のものが考えられる。DMGNH<sub>2</sub> に対しては H<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub> が反応する場合、Reaction3、Reaction5、Reaction6 の 3 通りが

表 3: DFT で計算された 1300K における活性化ギブスエネルギーと得られた速度定数。

	Reaction	B3LYP(6-311g+(d,p))	
		Gibbs energy of activation at 1300K (eV)	Kinetic constant at 1300K (m <sup>3</sup> /mol/s)
1	$\text{Ga}(\text{CH}_3)_3 + \text{H}_2 \rightarrow \text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{H} + \text{CH}_4$	3.240	0.806
2	$\text{Ga}(\text{CH}_3)_3 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2 + \text{CH}_4$	2.965	9.410
3	$\text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{H} + \text{NH}_3$	2.840	28.52
4	$\text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{H} + \text{NH}_3 \rightarrow \text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2 + \text{H}_2$	2.811	37.16
5	$\text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaCH}_3\text{HNNH}_2 + \text{CH}_4$	3.526	0.063
6	$\text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{GaCH}_3(\text{NH}_2)_2 + \text{CH}_4$	3.175	1.439
7	$\text{GaCH}_3(\text{NH}_2)_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaCH}_3\text{HNNH}_2 + \text{NH}_3$	3.029	5.317
8	$\text{GaCH}_3\text{HNNH}_2 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{GaCH}_3(\text{NH}_2)_2 + \text{H}_2$	2.998	6.956
9	$\text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{H} + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaCH}_3\text{H}_2 + \text{CH}_4$	3.192	1.237
10	$\text{Ga}(\text{CH}_3)_2\text{H} + \text{NH}_3 \rightarrow \text{GaCH}_3\text{HNNH}_2 + \text{CH}_4$	2.942	11.53
11	$\text{GaCH}_3\text{HNNH}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaCH}_3\text{H}_2 + \text{NH}_3$	2.817	35.00
12	$\text{GaCH}_3\text{H}_2 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{GaCH}_3\text{HNNH}_2 + \text{H}_2$	2.791	44.39
13	$\text{GaCH}_3(\text{NH}_2)_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaH}(\text{NH}_2)_2 + \text{CH}_4$	3.980	0.001
14	$\text{GaCH}_3(\text{NH}_2)_2 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{Ga}(\text{NH}_2)_3 + \text{CH}_4$	3.441	0.134
15	$\text{Ga}(\text{NH}_2)_3 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaH}(\text{NH}_2)_2 + \text{NH}_3$	3.124	2.270
16	$\text{GaH}(\text{NH}_2)_2 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{Ga}(\text{NH}_2)_3 + \text{H}_2$	3.258	0.684
17	$\text{GaCH}_3\text{HNNH}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaH}_2\text{NH}_2 + \text{CH}_4$	3.516	0.068
18	$\text{GaCH}_3\text{HNNH}_2 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{GaH}(\text{NH}_2)_2 + \text{CH}_4$	3.063	3.897
19	$\text{GaH}(\text{NH}_2)_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaH}_2\text{NH}_2 + \text{NH}_3$	3.058	4.093
20	$\text{GaH}_2\text{NH}_2 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{GaH}(\text{NH}_2)_2 + \text{H}_2$	3.024	5.526
21	$\text{GaCH}_3\text{H}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaH}_3 + \text{CH}_4$	3.157	1.687
22	$\text{GaCH}_3\text{H}_2 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{GaH}_2\text{NH}_2 + \text{CH}_4$	2.937	12.04
23	$\text{GaH}_2\text{NH}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaH}_3 + \text{NH}_3$	2.837	29.28
24	$\text{GaH}_3 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{GaH}_2\text{NH}_2 + \text{H}_2$	2.768	54.21
25	$\text{GaH}_2\text{NH}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaN}(\text{H}_2) + 2\text{H}_2$	3.610	0.030
26	$\text{GaH}_3 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaH} + 2\text{H}_2$	3.861	0.003
27	$\text{GaCH}_3\text{H}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaCH}_3 + 2\text{H}_2$	3.931	0.002
28	$\text{GaCH}_3 + \text{H}_2 \rightarrow \text{GaH} + \text{CH}_4$	2.666	135.2
29	$\text{GaCH}_3 + \text{NH}_3 \rightarrow \text{GaN}(\text{H}_2) + \text{CH}_4$	2.608	227.2

考えられる。その結果、メチル基が外れる反応(Reaction5、Reaction6) より、 $\text{H}_2$  によってアミノ基が外れる反応(Reaction3) の方が、活性化ギブスエネルギーが小さく反応速度は速いことがわかる。よって、 $\text{DMGNH}_2$ は  $\text{H}_2$ と反応して  $\text{DMGH}$  に変化することが示唆された。これは、アミノ基の反応性がメチル基の反応性よりも高いためだと考えられる。 $\text{DMGH}$  の分解においても、 $\text{DMGH}$  が  $\text{H}_2$ と反応するときの活性化ギブスエネルギーが 3.19eV(Reaction9) なのに対し、最初に  $\text{NH}_3$  と反応しアミノ基を形成後、 $\text{H}_2$ と反応しアミノ基を脱離した方が活性化エネルギーはそれぞれ 2.94eV (Reaction10)、2.82eV (Reaction11)と小さくなり、反応が速く進むことがわかる。同様に、 $\text{MMGH}_2$ の分解も  $\text{H}_2$  がそのまま反応しメチル基が外れる反応(Reaction21) より  $\text{NH}_3$  と反応した後(Reaction22)、 $\text{H}_2$  と反応する(Reaction23) 方が、分解が早く進むことがわかる。このように考えると  $\text{TMG}$  は  $\text{NH}_3$ と反応しアミノ基を形成した後、 $\text{H}_2$ と反応しそのアミノ基を脱離する逐次反応を繰り返すことで、分解が進んでいくことがわかった。また、 $\text{GaH}$  (Reaction26) や  $\text{GaCH}_3$  (Reaction27) が生成される反応は活性化ギブスエネルギー

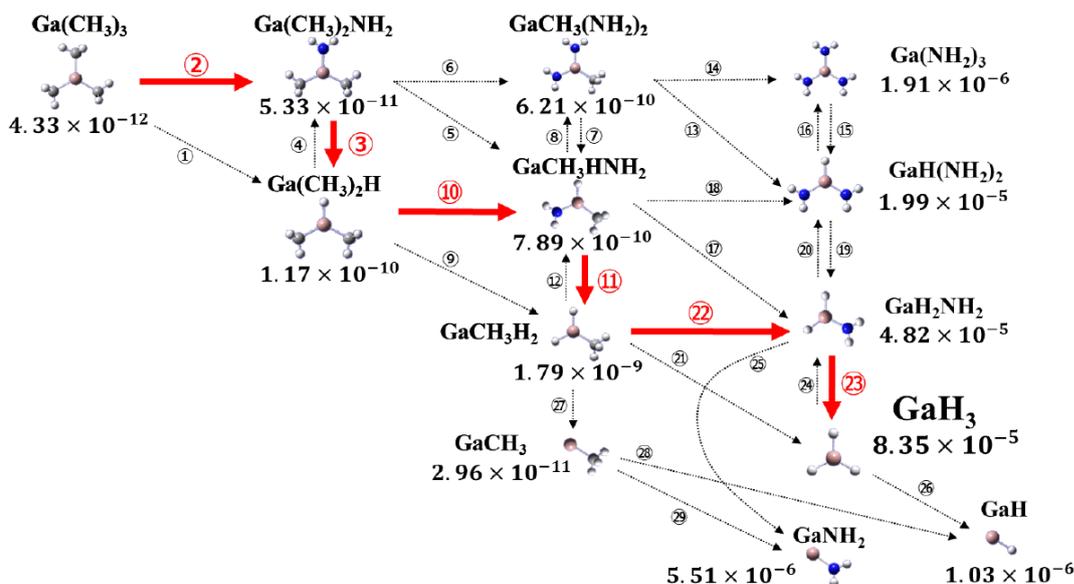


図 15: GaN-MOVPE における気相中の TMG 分解の主反応経路と 1300K における 1 秒後の各分子のモル分率。

ギーが高くなるため、実際には生成されにくい分子であると予想される。

以上まとめると TMG の分解反応は、図 15 にまとめられる。計算した速度定数からガス流入 1 秒後の各分子のモル分率も示してある。すなわち、TMG は  $\text{NH}_3$ 、 $\text{H}_2$  と交互に反応しながらメチル基を一つずつ外していき、 $\text{GaH}_3$  まで分解することがわかった。本研究で得られた主反応経路は以下のように表すことができる。



また、炭素混入の原因だとされるメチル基が存在する分子は、 $\text{GaH}_3$  に比べ、非常に小さな値となっていることから、1300K 程度の高温で一定時間以上 TMG を分解させることが、結晶への炭素混入を抑止することに効果的であることが予想される。さらに、最終生成物だと考えられている  $\text{GaNH}_2$  や  $\text{GaH}$  は  $\text{GaH}_3$  に比べ 1/10 以下にとどまっており、これまでは表面反応に関係しないと考えられている  $\text{GaH}_3$  分子が重要な役割を果たしていることもわかる。

以上の結果は Japanese Journal of Applied Physics 誌に発表された。

さらに、こうした第一原理計算によって得られた気相反応に基づいて、局所平衡の概念を用いて量子力学と流体力学をシームレスに繋いだマルチフィジックス結晶成長シミュレーションを実行した。具体的には表 3 に表された 29 個の化学反応をすべて取り込んで、結晶成長シミュレーションを行った。得られた TMG と  $\text{GaH}_3$  の分布が図 16 である。この図からわかるように、 $\text{GaH}_3$  の濃度は基板付近で急激に増

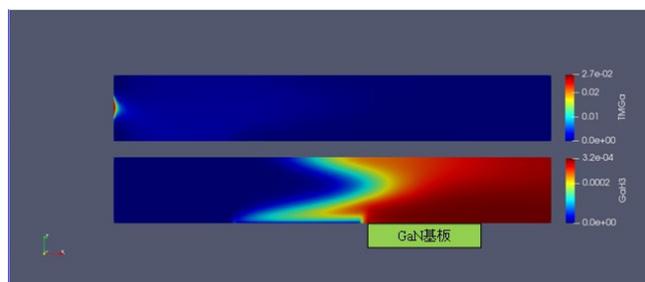


図 16: マルチフィジックス結晶成長シミュレーションによって得られた反応炉内の TMG (上) と  $\text{GaH}_3$  (下) の分布。MOVPE 成長炉の断面形状は長方形であり、図の長方形が成長炉を表している。それぞれのガス成分量が右端に示すカラー等高線で示されている。成長ガスは左側から流入し、「GaN 基板」上で成長反応を起こす。TMG は流入後すぐに分解し、基板付近では、大部分が  $\text{GaH}_3$  となっていることが見て取れる。

加していることがわかる。さらにこれから成長速度の基板面内の分布を求めた。得られた結晶成長速度は約  $2 \mu\text{m/h}$  となり実験とよい一致をみることがわかった。

## ② ステップフローGa<sub>N</sub>-MOVPE 成長機構の素過程説明 (名古屋大学計算グループ)

上記①にあるように、Ga<sub>N</sub>-MOVPE 成長での Ga ソースである TMG は GaH<sub>3</sub>まで分解し、成長表面は Ga リッチとなっていることが判明した。一方 N ソースである NH<sub>3</sub>は気相で分解せずに表面に到達することが研究項目(4)の質量分析実験から明らかになっている。したがって表面成長機構説明には、Ga リッチ表面での NH<sub>3</sub>の振舞を調べるべきである。2018 年に発表した(J. Phys. Chem. C)我々の DFT 計算によれば、Ga<sub>N</sub>(0001)表面での NH<sub>3</sub>は Ga アドアトム上に吸着し、NH と H<sub>2</sub>に分解し、NH は弱い Ga-Ga ボンドに侵入する。今回この NH の表面テラス上での拡散経路の決定と拡散エネルギー障壁の計算を行った。図 17 にあるように、NH は等価な安定位置を比較的に低いエネルギー障壁を越えて経めぐる事が判明した。その拡散障壁の高さは 0.6 eV と計算された。

一方成長表面では原子ステップが存在し、そのステップが成長することによりエピタキシャル成長が起こる。ステップ構造には全部で 5 つの可能性がある。[11-20]方向に微傾斜した面では Ga と N の双方がステップ端に現れる GN ステップ端、[1-100]方向に微傾斜した面では、Ga がステップ端に現れ、構造最適化前には 2 本あるいは 3 本のダングリングボンドが登場する Ga<sub>2</sub> および Ga<sub>3</sub> ステップ端、N がステップ端に現れる場合は同様に N<sub>2</sub> および N<sub>1</sub> ステップ端がそれである。今回我々はそのすべてのステップ構造を全エネルギー計算より最適化し、その生成エネルギーを求めた。一例が図 18 に示した[11-20]に微傾斜した Ga<sub>N</sub>(0001)表面に特徴的な GN ステップ構造、および[1-100]方向

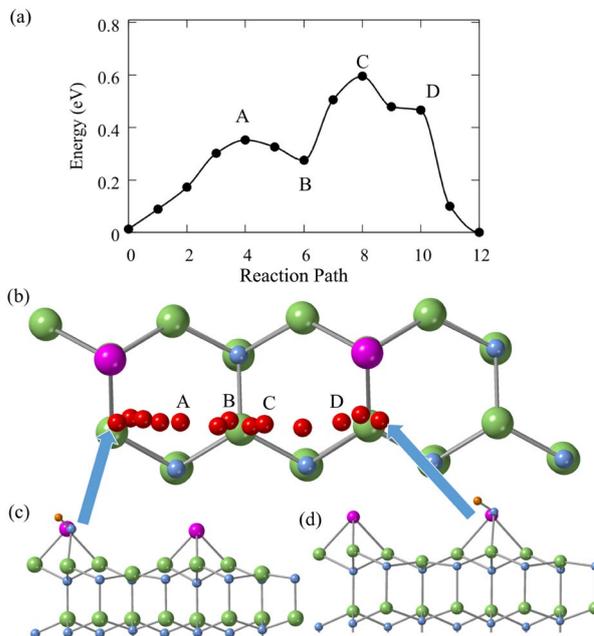


図 17: Ga<sub>N</sub>(0001)表面テラス上での NH ユニットの拡散。テラス上 Ga アドアトムサイトに吸着した NH<sub>3</sub>は H<sub>2</sub> と NH ユニットに分解し、NH ユニットは弱い Ga-Ga ボンドに侵入する(c)。この配置から隣の同等な配置(d)までの NH の拡散経路 (b)とその経路に沿ったエネルギー・プロファイル (a)が計算された。青は N 原子、橙は水素原子、緑と赤ワイン色は Ga 原子を表している。(b)での赤ドットは拡散経路に沿った NH の N の位置を表す。

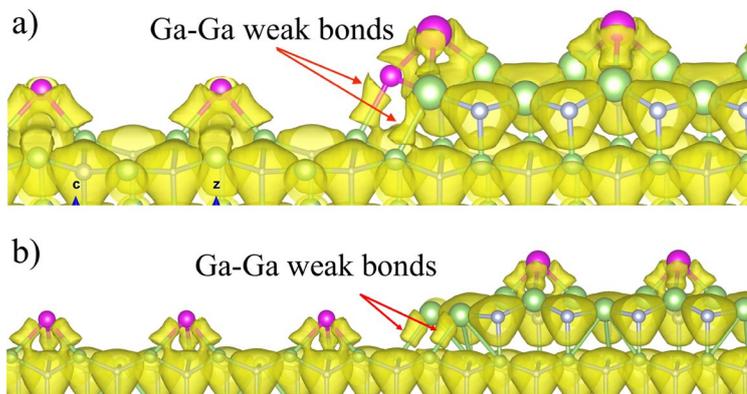


図 18: Ga<sub>N</sub>(0001)微傾斜面での安定原子ステップ構造。(a)GN ステップ、(b)Ga<sub>2</sub>ステップ。大きい球、小さい球が Ga、N 原子を表している。黄色い雲は計算された電子密度の等値面。小さな等値面は電子密度が低いことに対応しており、ステップ端での弱い Ga-Ga ボンドの存在が見て取れる。

に微傾斜した(0001)表面に特徴的な Ga<sub>2</sub> ステップ構造である。いずれの場合にも、ステップ端では上テラスの Ga と下テラスの Ga が新たなボンドを形成している。このリボンドが半導体表面ステップでの構造的特徴である。しかしこのボンドは Ga-N のボンドに比べて弱い。それは表示した電子密度からも明らかである。

このステップ端にテラス上を拡散してきた NH が取り込まれるプロセスを考える。テラス上の2つの独立な NH がステップ端に取り込まれた場合の安定構造が図 19(a)である。この構造はテラス上に NH がいる場合に比べて 0.45 eV エネルギーを得ることがわかった。つまり NH はステップ端に引き寄せられる。ここで表面にリッチに存在する Ga 原子が新たにこのステップ端に近づき、二つの NH の H が H<sub>2</sub>として脱離し、代わりに新たな Ga が N のダングリングボンドを修復する過程を考えると、その最終構造は図 19(b)のようになることが判明した。計算の結果、この過程は成長温度、成長炉内の気圧下での自由エネルギー変化を計算すると、十分起こり得る過程であることがわかった。この最終構造を[0001]方向から見たのが図 19(c)である。反応前の GN ステップ端が1ユニット進んだことが明らかである。これがステップフロー・エピタキシャル成長の素過程であると考えられる。この成果は Applied Surface Science 誌に発表された。

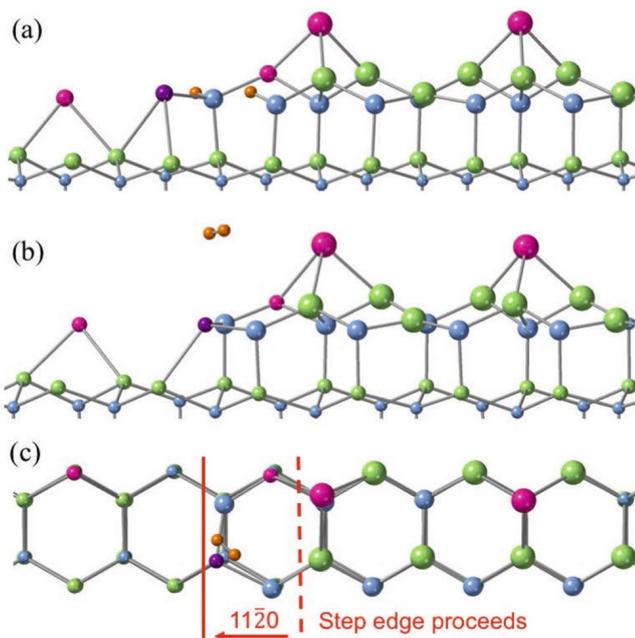


図 19: ステップフロー・エピタキシャル成長の素過程。(a)GN ステップに取り込まれた2つの NH ユニット。(b)新たな Ga がステップに取り込まれるとともに、NH ユニットの H が脱離した構造。(c) 構造(b)を[0001]方向から見た図。青が窒素原子、橙が H 原子、緑、赤紫、赤ワイン色は Ga 原子。

### ③ GaN 成長中の酸素不純物取り込み機構の解明

(九州大学計算グループ + 名古屋大学計算グループ)

GaN-MOVPE 成長では酸素が成長中に取り込まれ、GaN 膜中に  $10^{15}\text{cm}^{-3}$ から多い場合には  $10^{17}\text{cm}^{-3}$  までの濃度で混入し、予期せぬドナーとして働いてしまう。したがってその制御は克服すべき重要な課題である。とくに(1-100)面 (m 面) を用いた成長では、基板を[0001]+c 方向に 5°微傾斜した場合 (以降では+c 5°オフと表記) と[000-1]-c 方向に 5°微傾斜した場合 (以降では-c 5°オフと表記) を比較すると、前者の方が不純物酸素の取込み量が1桁多くなることが名大実験グループにより明らかにされている。今回、この微傾斜方向依存性を量子論第一原理計算で解明した。

一般に GaN-MOVPE はステップ端での原子の取り込みによって成長が進む (ステップフロー成長)。したがって、まず最初の課題は、ステップ端および表面テラスの構造決定である。この際、成長表面は成長条件によって定まる特定の温度と圧力下の気相と局所的熱平衡にあることを考慮せねばならない。そこで我々は、まず様々な表面ステップ構造の構造最適化と対応するエネルギー (エンタルピー) を DFT

計算で求めた。候補となる表面ステップ構造に対しては気相分子から供給される様々な吸着子の存在を考慮した。実際、+c 5°オフ面では5つの候補（理想ステップ端、Hが吸着した3Ga-Hステップ端、および4Ga-Hステップ端、Ga原子が吸着したGa-atomステップ端、N原子が吸着したN-atomステップ端）、-c 5°オフ面では6つの候補（理想ステップ端、Hが吸着した3N-Hステップ端、および4N-Hステップ端、Ga原子が吸着したGa-atomステップ端、およびGa-monolayerステップ端、Ga, N, H原子が吸着した2N-Ga+N-Hステップ端）を網羅的に調べた。表面テラス構造に対しては、一般的なMOVPE成長条件下では理想表面が安定となることがわかっているので、本研究においてもテラス表面(m面)は理想表面とした。一方、気相分子の並進、振動、回転運動による自由エネルギーを独立分子近似で計算し、表面吸着子が気相分子と熱平衡にあるという条件のもとに、与えられた温度と圧力のもとでの表面ステップ構造を決定した。得られた相図(成長条件から決まるNソースであるアンモニアとGaソースであるTMGのガス圧比 V/III ratio および成長温度の関数としての最安定ステップ構造)を図20に示す。これより実験条件 (V/III = 1019、T = 1100°C) において最も安定なステップ端構造は、+c 5°オフ、-c 5°オフのそれぞれでIdeal (理想)構造、3N-H構造であることがわかった。

舞台となるステップ構造がマイクロに同定されたので、次はそのステップ端での酸素取込みである。図21はDFT計算で得られたステップ端近傍のテラス上での窒素原子を置換した酸素原子のエネルギーである。+c 5°オフ、-c 5°オフで顕著な相違が見られる。すなわち+c 5°オフの微傾斜面では、ステップ端近傍の下方テラスの窒素原子置換により、顕著なエネルギーの低下(0.8 eV)が見られる。一方、-c 5°オフ微傾斜面ではそのようなエネルギーの低下は見られない。物理的にはこれはelectron counting (ec) 則<sup>1</sup>によって説明できる。+c 5°オフ面では、ステップ端最近接下方テラスへの酸素置換により電子がステップ端Gaに供給されてGa-Gaボンドが形成されて安定化するのに対し、-c 5°オフ面では、安定ステップ端である3N-H構造は酸素の存在如何にかかわらずec則が満たされているので、酸素置換のエネルギーに特別な位置依存性は見られない[図21(d)]。この成果はApplied Physics Express誌に発表された。

この計算で判明した+c 5°オフ面でのステップ端近傍での酸素置換のエネルギー利得は、ステップフロー成長においては、GaN成膜中に酸素が取り込まれやすいことを示唆している。しかしながら、それを定量的に検証するためには、表面テラス上での吸着子の入射、拡散、脱離、ステップ端での取り込みなどの素過程の総合的検証が必要である。我々はBurton、Cabreara、Frankによって提唱された拡散方程式

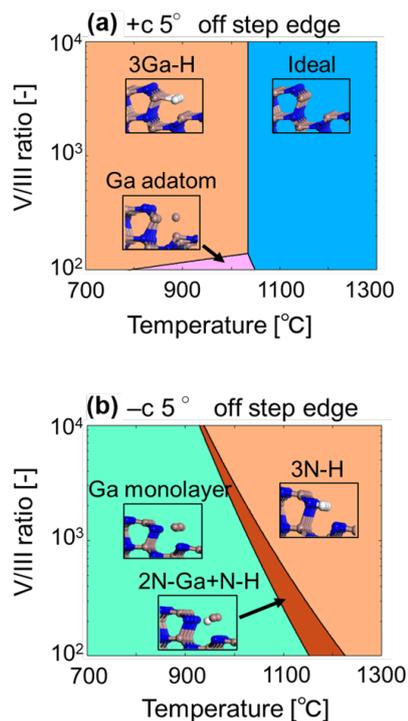


図 20: +c 5° オフ(a)および-c 5° オフ(b)の m 面での成長条件下 (成長温度および NH<sub>3</sub>/TMG のガス圧比) での安定ステップ構造の相図。

<sup>1</sup> 化合物半導体においては、エネルギー的に高いカチオンのダングリングボンドからエネルギー的に低いアニオンのダングリングボンドに電子を移動させる、あるいは吸着子がボンド形成に必要な電子の供給を行うことによって、表面(ステップ)構造が安定化する。これを electron-counting 則という。

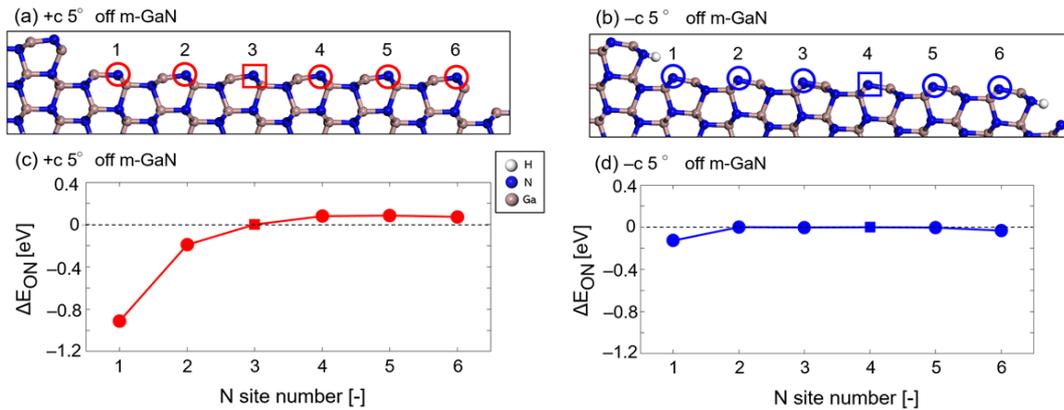


図 21: (a), (c) +c 5° オフ微傾斜、(b), (d) -c 5° オフ微傾斜 m 面における窒素置換位置の酸素不純物のエネルギーステップ端からの位置の関数としてのエネルギーのプロット。

に依拠した BCF 理論により、酸素取込み量の定量解析を行った。図 21 におけるステップ端 No1 サイトでの酸素原子の N サイトの置換が、ステップ端での酸素取り込みのエネルギーゲインであると考えられるので、それをマイクロなパラメータとして、拡散方程式を解くことにより、酸素取込み濃度を得ることができる。結果は図 22 である。実験結果と見事に整合して、+c 5° オフ面での成長では、酸素原子の取り込みが -c 5° オフ面での成長に比べて一桁上昇することが示されている。ec 則という物理的法則が酸素不純物取り込みという工業的に重要な現象を既定しているという発見である。この成果は、physica status solidi 誌の Rapid Research Letter として発表された。

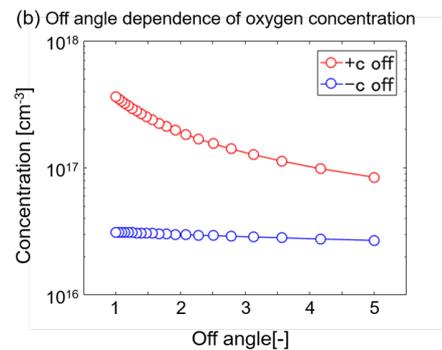


図 22: +c 5° オフおよび -c 5° オフ微傾斜 m 面上のエピタキシャル成長薄膜での酸素不純物原子取込み量。

#### ④ 量子論分子動力学法における GaN 成長環境下での表面液体化の発見

(名古屋大学計算グループ + Strasbourg 大学計算グループ)

GaN の MOVPE 成長温度は 1300 K である。その状況での表面原子の動的性質は原子レベルでは全く分かっていない。そこで我々は Ga リッチ GaN(0001) での CPMD (Car-Parrinello Molecular Dynamics) シミュレーションを行った。シミュレーションセルの表面内でのサイズは 4x4 とした (より大規模なシミュレーションは今後の課題である)。シミュレーション系の温度は、室温から 1300K まで徐々に上げられた。各温度での熱平衡化の間に  $Ga_{ad}$  原子に対する以下の対相関関数 (Pair Correlation Function: PCF) が計算された。

$$g(r) = \frac{V}{4\pi r^2 N^2} \left\langle \sum_i \sum_{j \neq i} \delta(r - r_{ij}) \right\rangle$$

ここで、 $N$  は体積  $V$  中の  $Ga_{ad}$  原子数、 $r_{ij}$  は原子間距離であり、平均は CPMD シミュレーションにより計算される。また、各時刻  $t$  での原子  $I$  の速度  $v_I(t)$  も計算されるので、速度自己相関関数から  $G_{ad}$  の拡散係数  $D$ 、

$$D = \frac{1}{3} \int_0^{t \rightarrow \infty} \left\langle \frac{1}{N} \sum_{I=1}^N v_I(t) v_I(0) \right\rangle dt$$

も求まる。

図 23 は各温度での PCF である。300K から 1100K までは、Ga リッチ表面構造に特徴的な 6.5Å 付近のピークが現れ、温度上昇とともに、熱運動によるピーク幅の増加が見られる。しかしエピ成長温度の 1300K では劇的な変化が見られる。6.5Å 付近のピークは消滅し、代わりに 2.6–2.7Å を中心とするピークが現れる。この原子間距離は、Ga-Ga のボンドの距離 (single ボンド 2.59 Å, double ボンド 2.41-2.25 Å, triple ボンド 2.45-2.21 Å) に対応しており、Ga-Ga 凝縮体の形成を示唆している。実際シミュレーション動画より、Ga<sub>ad</sub> が表面 Ga とのボンドを解消し、表面上を拡散し、Ga<sub>ad</sub> 凝縮体を形成することがわかった。さらに重要なことは 1300K の PCF には、2.6-2.7Å のピーク以外にはピークが存在しないことである。凝集体が固体であるならば、最近接距離以外に、次近接、次々近接のピークが現れるはずであるが、図 23 では最近接以外の位置には相関はない、つまり液体に特有な構造ができていることを示している。

この液体化は拡散係数にも現れている。図 24 は上記速度相関関数から求めた各温度での拡散係数である。1100K までは拡散係数は見事にアレニウスプロットで記述され、拡散障壁は  $E_b = 0.28 \text{ eV}$  そして拡散係数の prefactor は  $D_0 = 7.94 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$  と求められるが、成長温度になった途端に一桁上昇することがわかった。従来エピ成長は固体表面上のボンドの破壊と再構成で起こるとされてきたが、成長温度に到達すると、最表面が液体化して取り込み反応が促進されるという新たな考え方をすべきかもしれない。この成果は *Japanese Journal of Applied Physics* 誌に発表された。

### ⑤ SiC-CVD 成長における Si 原料ガスと C 原料ガスの気相分解反応解明

(名古屋大学計算グループ + (株) ニューフレアテクノロジー)

SiC のエピタキシャル成長は  $\text{C}_3\text{H}_8$  と  $\text{SiH}_4$  を原料ガスとして約 1500~1700°C で CVD (Chemical Vapor Deposition) 法により行われており、これに HCl ガスを添加した HCVD 成長も行われている。HCl の有無により、気相反応で形成される分子や SiC 表面構造は異なるものになると考えられる。そのため SiC の HCl 環境下での CVD 成長における気相反応の解明、および表面再構成構造の決定を行うことは極めて重要であるが CVD 法と HCVD 法を系統的に比較した理論研究はこれまで存在しない。本年

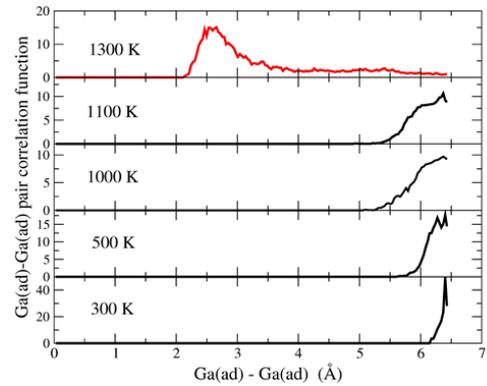


図 23: 各温度での Ga アドアトム-Ga アドアトムの対相関関数。

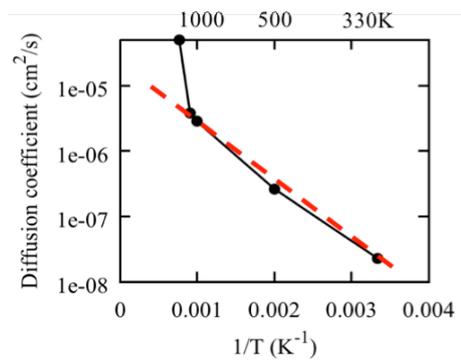


図 24: 速度自己相関関数から求めた Ga N 成長表面での Ga アドアトムの拡散係数の温度依存性。

度、この課題に着手した。

基底状態での構造および全エネルギーは DFT の第一原理計算で求めた。気相に存在する分子の化学ポテンシャルの温度と分圧による影響は、ギブス自由エネルギーを用いた熱力学解析で行った。平衡定数と分圧の関係式について連立方程式をたて、これを解くことで各温度における各分子の平衡分圧を決定する。計算に用いた化学反応式群とこれらに対応する平衡定数を表 4 に与える。また、分圧が高いガスが、(0001) 表面で水素終端構造や Si 終端構造を形成する際の形成エネルギーを計算することで、最安定な再構成表面構造の成長環境依存性を考察した。

図 25 は、従来の CVD 法における、表 4 に示した各分子の気相における計算された平衡分圧である。これからわかるように、実験の温度 1600°C 程度では Si-C の複合体以外では Si 系ガスの平衡分圧は Si<sub>4</sub> クラスターが最も分圧が大きくなっていることがわかる。この結果は従来の CVD 成長では Si クラスターが形成されやすいことを示している。一方 C 系ガスは C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> が最も分圧が大きくなっていることがわかる。図 26 は、HCl 添加した HCVD における同様の平衡分圧である。

1600°C 程度では Si 系ガスの中では SiCl<sub>2</sub> が最も平衡分圧が高いことがわかる。ここで注目すべきことは、HCl の添加によって Si クラスターが形成されなくなったことである。一方 C 系ガスは、C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> の分圧が依然として最も高い。まとめると HCl を添加することによって Si クラスターの形成が抑制され、より均一な成長がおこりやすくなったといえる。

表 4: 本計算で用いた化学反応式とそれらに対応する平衡定数。

Chemical reaction	Equilibrium constant	
$\text{SiH}_4 \rightarrow \text{SiH}_2 + \text{H}_2$	$K_1(T) = P_{\text{SiH}_2} P_{\text{H}_2} / P_{\text{SiH}_4}$	(R1)
$\text{SiH}_4 \rightarrow \text{Si} + 2\text{H}_2$	$K_2(T) = P_{\text{SiH}_2} P_{\text{H}_2}^2 / P_{\text{SiH}_4}$	(R2)
$2\text{Si} \rightarrow \text{Si}_2$	$K_3(T) = P_{\text{Si}_2} / P_{\text{Si}}^2$	(R3)
$3\text{Si} \rightarrow \text{Si}_3$	$K_4(T) = P_{\text{Si}_3} / P_{\text{Si}}^3$	(R4)
$4\text{Si} \rightarrow \text{Si}_4$	$K_5(T) = P_{\text{Si}_4} / P_{\text{Si}}^4$	(R5)
$2\text{SiH}_4 \rightarrow \text{Si}_2\text{H}_6 + \text{H}_2$	$K_6(T) = P_{\text{Si}_2\text{H}_6} P_{\text{H}_2} / P_{\text{SiH}_4}^2$	(R6)
$\text{C}_3\text{H}_8 + \text{H}_2 \rightarrow \text{C}_2\text{H}_6 + \text{CH}_4$	$K_7(T) = P_{\text{C}_2\text{H}_6} P_{\text{CH}_4} / (P_{\text{C}_3\text{H}_8} P_{\text{H}_2})$	(R7)
$\text{C}_2\text{H}_6 \rightarrow \text{C}_2\text{H}_4 + \text{H}_2$	$K_8(T) = P_{\text{C}_2\text{H}_4} P_{\text{H}_2} / P_{\text{C}_2\text{H}_6}$	(R8)
$\text{C}_2\text{H}_4 \rightarrow \text{C}_2\text{H}_2 + \text{H}_2$	$K_9(T) = P_{\text{C}_2\text{H}_2} P_{\text{H}_2} / P_{\text{C}_2\text{H}_4}$	(R9)
$2\text{CH}_4 \rightarrow \text{C}_2\text{H}_2 + 3\text{H}_2$	$K_{10}(T) = P_{\text{C}_2\text{H}_2} P_{\text{H}_2}^3 / P_{\text{CH}_4}^2$	(R10)
$\text{Si} + \text{C}_2\text{H}_2 \rightarrow \text{SiC}_2 + \text{H}_2$	$K_{11}(T) = P_{\text{SiC}_2} P_{\text{H}_2} / (P_{\text{Si}} P_{\text{C}_2\text{H}_2})$	(R11)
$\text{Si}_4 + \text{C}_2\text{H}_2 \rightarrow 2\text{Si}_2\text{C} + \text{H}_2$	$K_{12}(T) = P_{\text{Si}_2\text{C}}^2 P_{\text{H}_2} / (P_{\text{Si}_4} P_{\text{C}_2\text{H}_2})$	(R12)
$\text{SiH}_4 + \text{HCl} \rightarrow \text{SiH}_3\text{Cl} + \text{H}_2$	$K_{13}(T) = P_{\text{SiH}_3\text{Cl}} P_{\text{H}_2} / (P_{\text{SiH}_4} P_{\text{HCl}})$	(R13)
$\text{SiH}_4 + 2\text{HCl} \rightarrow \text{SiH}_2\text{Cl}_2 + 2\text{H}_2$	$K_{14}(T) = P_{\text{SiH}_2\text{Cl}_2} P_{\text{H}_2}^2 / (P_{\text{SiH}_4} P_{\text{HCl}}^2)$	(R14)
$\text{SiH}_4 + 3\text{HCl} \rightarrow \text{SiHCl}_3 + 3\text{H}_2$	$K_{15}(T) = P_{\text{SiHCl}_3} P_{\text{H}_2}^3 / (P_{\text{SiH}_4} P_{\text{HCl}}^3)$	(R15)
$\text{SiH}_4 + 4\text{HCl} \rightarrow \text{SiCl}_4 + 4\text{H}_2$	$K_{16}(T) = P_{\text{SiCl}_4} P_{\text{H}_2}^4 / (P_{\text{SiH}_4} P_{\text{HCl}}^4)$	(R16)
$\text{SiH}_4 + 2\text{HCl} \rightarrow \text{SiCl}_2 + 3\text{H}_2$	$K_{17}(T) = P_{\text{SiCl}_2} P_{\text{H}_2}^3 / (P_{\text{SiH}_4} P_{\text{HCl}}^2)$	(R17)
$\text{C}_3\text{H}_8 + 8\text{HCl} \rightarrow \text{C}_3\text{Cl}_8 + 8\text{H}_2$	$K_{18}(T) = P_{\text{C}_3\text{Cl}_8} P_{\text{H}_2}^8 / (P_{\text{C}_3\text{H}_8} P_{\text{HCl}}^8)$	(R18)
$\text{C}_2\text{H}_6 + 6\text{HCl} \rightarrow \text{C}_2\text{Cl}_6 + 6\text{H}_2$	$K_{19}(T) = P_{\text{C}_2\text{Cl}_6} P_{\text{H}_2}^6 / (P_{\text{C}_2\text{H}_6} P_{\text{HCl}}^6)$	(R19)
$\text{C}_2\text{H}_4 + 4\text{HCl} \rightarrow \text{C}_2\text{Cl}_4 + 4\text{H}_2$	$K_{20}(T) = P_{\text{C}_2\text{Cl}_4} P_{\text{H}_2}^4 / (P_{\text{C}_2\text{H}_4} P_{\text{HCl}}^4)$	(R20)
$\text{C}_2\text{H}_2 + 2\text{HCl} \rightarrow \text{C}_2\text{Cl}_2 + 2\text{H}_2$	$K_{21}(T) = P_{\text{C}_2\text{Cl}_2} P_{\text{H}_2}^2 / (P_{\text{C}_2\text{H}_2} P_{\text{HCl}}^2)$	(R21)
$\text{CH}_4 + 4\text{HCl} \rightarrow \text{CCl}_4 + 4\text{H}_2$	$K_{22}(T) = P_{\text{CCl}_4} P_{\text{H}_2}^4 / (P_{\text{CH}_4} P_{\text{HCl}}^4)$	(R22)
$\text{Cl}_2 + \text{H}_2 \rightarrow 2\text{HCl}$	$K_{23}(T) = P_{\text{HCl}}^2 / P_{\text{Cl}_2} P_{\text{H}_2}$	(R23)

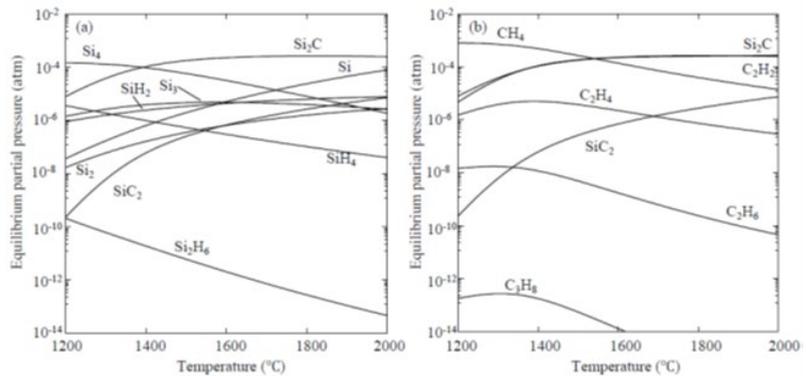


図 25 : 従来の CVD 法における平衡分圧の温度依存性。(a) Si 系ガスの平衡分圧。(b) C 系ガスの平衡分圧。ここで、流入ガスの SiH<sub>4</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>, H<sub>2</sub> の分圧は C/Si 比 1.35、Si/H 比 2.36x10<sup>-3</sup>、および全圧は 0.264atm としている。

成長中の表面については、従来の CVD 成長では Si 終端の再構成構造になることを我々は 2019 年に報告している[Jpn. J. Appl. Phys]。今年度、HCVD 成長における表面再構成構造を考察した。SiC の表面は多くの再構成構造の候補が知られている。今回我々は 8 種類の表面構造[理想表面、Si リッチな(2x2)構造、同じく( $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ )R30° 構造と(3x3)構造、水素終端(1x1)H 構造、炭素最表面(2x2)C 構造と( $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ )C 構造、そして HCl 終端(1x2)HCl 構造 ]を網羅的に調べ、HCVD 成長下ではどの再構成表面が自由エネルギー的に最も安定となるかを調べた。気相との平衡を考えるにあたって 7 つの気相 - 表面反応を考慮した。結果は図 27 である。これより、HCVD 成長条件下では、(2x2)構造と( $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ )R30° 構造が最も出現しやすい表面構造であることがわかる。この表面に SiCl<sub>2</sub>や C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>がどのように吸着し、エピタキシャル成長が進行するかが次のターゲットである。以上の成果は Japanese Journal of Applied Physics に発表された。

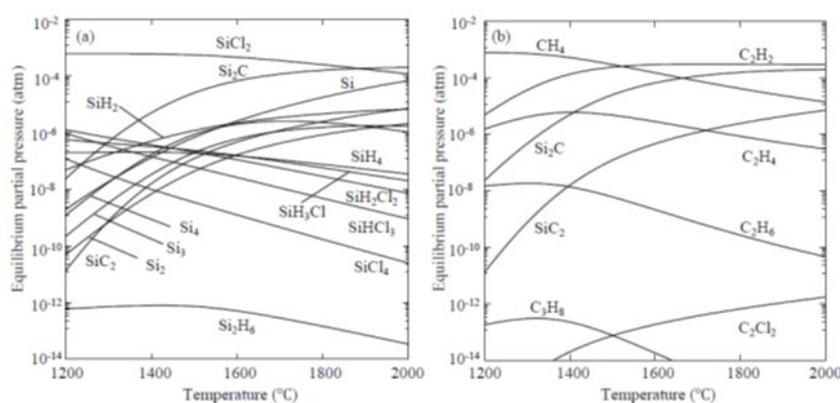


図 26 : HCVD 法における平衡分圧の温度依存性。(a)Si 系ガスの平衡分圧。(b)C 系ガスの平衡分圧。ここで、流入ガスの SiH<sub>4</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>, H<sub>2</sub> の分圧は C/Si 比 1.35、Si/H 比  $2.36\times 10^{-3}$ 、および全圧は 0.264atm としている。

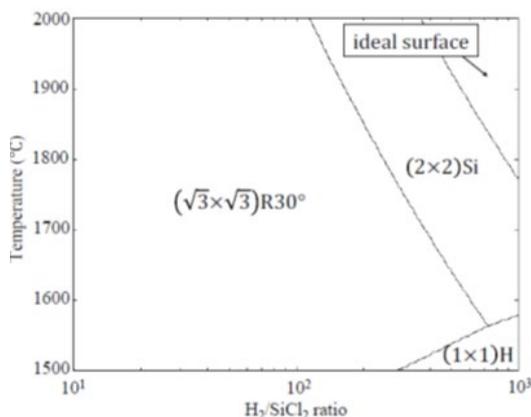


図 27: HCVD 成長中に出現する表面再構成構造の H<sub>2</sub>/SiCl<sub>2</sub> 比と温度に対する依存性。

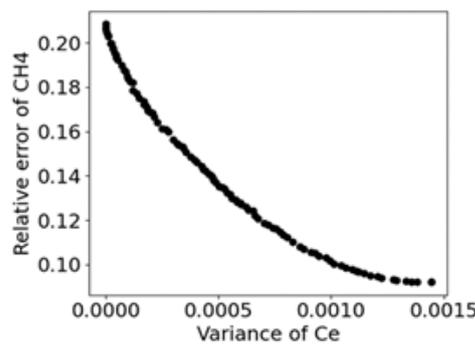


図 28: 反応速度パラメータセットのパレート解。

#### ⑥ データ同化による気相反応モデルの高精度化 (九州大学計算グループ)

GaN-MOVPE 成長における高品質化・低コスト化に向けた条件最適化では、マルチスケール・マルチフィジックスシミュレーションと AI 関連技術を組み合わせることで、膨大な実験回数を削減し、プロセス開発期間を大幅に短縮することが期待される。具体的には、ベイズ最適化による計算機実験のループを回すことになるが、そこでは、シミュレータの高い定量性が求められる。本プロジェクトで開発した MOVPE 気相反応モデル(理論)をデータ同化により TOF-MS データ(実験)と協調させることで、DFT

計算と遷移状態理論による演繹的手法の限界を超えた高精度予測を目指す。当該年度は、データ同化による速度定数チューニングのための予備実験に着手した [以下の名古屋大学実験グループによる研究項目(4)を参照]。MOVPE 気相反応モデルの一部であるトリメチルガリウム (TMG) の分解反応のみ (TMG → DMGH → MMGH<sub>2</sub> → GaH<sub>3</sub>) を対象に、メタン (CH<sub>4</sub>) の TOF-MS データの濃度換算値を再現できるように、かつ、DFT 計算による各活性化障壁の比から逸脱しないように、遺伝的多目的アルゴリズム (GA 法) を用いて速度定数チューニングを行った。作成された多数のトレードオフな解 (パレート解) を図 28 に示す。ここでは、許容可能なチューニングの範囲内で、CH<sub>4</sub>濃度が相対誤差 0.10 以下という高い定量性が達成可能であることが確認された。

### (3) 統合デバイスシミュレータによる省エネルギー-MOSFET の特性解明と実デバイスとの比較 (大阪大学計算グループ)

#### ナノデバイスシミュレーションの環境構築

非平衡グリーン関数法 (NEGF 法) に基づく量子論デバイスシミュレータを用いて、省エネルギー型ナノワイヤトランジスタやナノシートトランジスタなどのナノデバイスの開発指針を早期に得るためのデバイスシミュレーション環境の構築を進めている。

本年度は、フォノン散乱過程を量子論デバイスシミュレータに導入した。Si における主要なフォノン散乱過程は、変形ポテンシャル結合による散乱であり、局所的な相互作用として取り扱うことができる。そこで、電子系の場の演算子を  $\hat{\Psi}(\mathbf{x})$ 、フォノン系の場の演算子を  $\varphi(\mathbf{x}) = \sum_{\nu\mathbf{q}} A_{\nu\mathbf{q}}(\mathbf{x})(b_{\nu\mathbf{q}}^{\dagger} + b_{\nu\mathbf{q}})$  として ( $\nu$  はフォノンモードを表す指数、 $\mathbf{q}$  はフォノンの波数ベクトル)、電子-フォノン相互作用ハミルトニアン、 $H_{e-ph} = \int \hat{\Psi}^{\dagger}(\mathbf{x})\hat{\Psi}(\mathbf{x})\varphi(\mathbf{x})d\mathbf{x}$

において、つぎの形を仮定した。

$$\sum_{\mathbf{q}} A_{\nu\mathbf{q}}(\mathbf{x})A_{\nu\mathbf{q}}(\mathbf{y}) = B_{\nu}\delta(\mathbf{x} - \mathbf{y})$$

さらに簡単化のため、単一のフォノンモード (光学フォノンモード) のみを考慮した。以上の簡単化を行うと、フォノン散乱を導入した量子論デバイスシミュレータの開発には、単一のパラメータ  $B_{\nu}$  のみが必要になる。本研究では、上記の電子-フォノン相互作用ハミルトニアンを用いて、久保公式を自己無撞着ボルン近似の範囲で計算して得られる低電界移動度が、実測値と一致するようパラメータ  $B_{\nu}$  を決定した。図 29 に調整したパラメータ  $B_{\nu}$  を用いて計算した低電界移動度の電子密度依存性を示す。

以上のようにして決定したパラメータ  $B_{\nu}$  で表現される電子-フォノン相互作用ハミルトニアンを、量子論デバイスシミュレータに導入した。その際、散乱による自己エネルギーの項を反エルミートに近似した。図 30 に示すように、この近似はエネルギー原点をずらすことに対応する。以上述べた、局所フォノン散乱近似、散乱パラメータの調整、反エルミート自己エネルギー近似を用いて、フォノン散乱を導入した量子論デバイスシミュレータを開発した。図 31 に、直径 60 nm、ゲート長 100 nm のナノワイヤトランジスタのシミュレーション結果を示す。フォノン散乱によりオン電流が減少し、その減少割合は、ソース・ドレイン電圧が低い方が大きいことがわかる。シミュレーション結果は、依然として測定結果を大き

めに見積もっており、界面ラフネスなどの他の散乱過程の導入、チャンネル電子状態解析手法の改良、フォノン散乱モデルの精密化などが必要である。

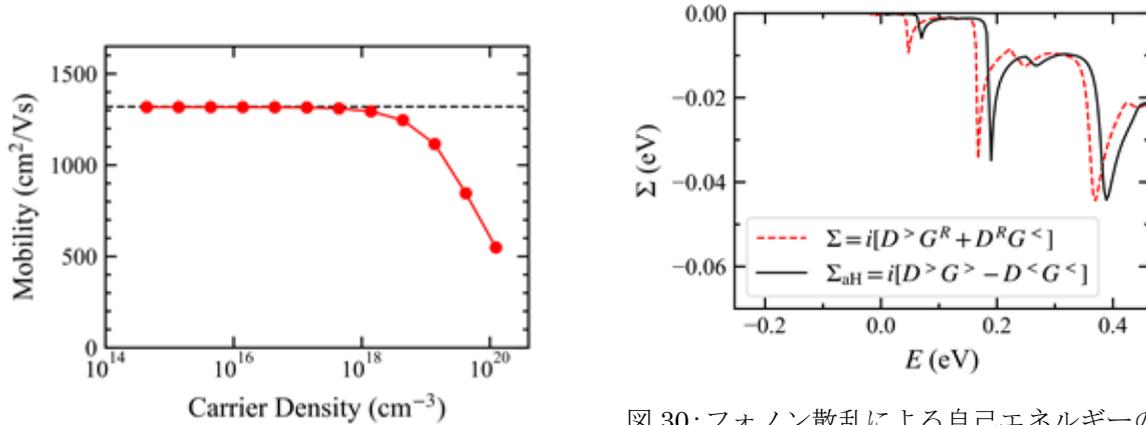


図 29: バルク Si における低電界移動度の電子密度依存性 (赤丸)。点線はターゲットの値。

図 30: フォノン散乱による自己エネルギーの電子エネルギー依存性。赤破線に反エルミート近似を施した結果を黒実線でプロットした。

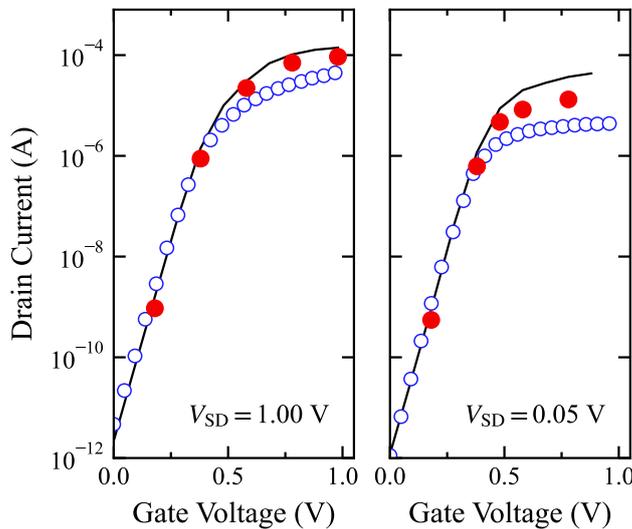


図 31: 直径 60 nm, ゲート長 100 nm の Si ナノワイヤトランジスタの伝達特性。実線は弾道輸送条件, 閉じた赤丸はフォノン散乱を考慮した場合。開いた青丸は測定結果を示す。

### パワーデバイスの特性解明

パワーデバイスの性能向上を図るためには、界面におけるキャリアトラップが、デバイスの伝達特性や出力特性などのトランジスタ特性に及ぼす影響を解明することが必要である。本研究項目では、現実的なデバイス構造を想定し、デバイス中でのトラップの空間的分布・エネルギー分布を考慮したデバイスシミュレーションを実行し、キャリアトラップがトランジスタ特性に及ぼす影響を解明する。本年度は、SiC MOSFET の界面に形成される 2 次元反転層の電子状態を、フルバンド電子状態から計算した。第一原理計算により SiC の電子状態を求め、その結果を局在ワニエ基底で表現し、それをを用いて Si MOSFET 反転層の電子状態解析を行った。反転層は界面から数 nm 範囲のみに存在しているが、空乏層は界面から数 100 nm に広がっている。そこで本研究では、界面からおおよそ 10 nm の範囲をワニエ基底に基づく原子論的手法を用い、そこから基板側は連続体として空乏層近似を用いることにより、2 次元反転層の自己無撞着電子状態解析を行った。図 32 に閉じ込めエネルギーの面電子密度依存性を示す。比較のため、有効質量近似により求めた結果もプロットした。非放物線性のため、高い電子密度の領域で、有効質量近似

は閉じ込めエネルギーを大きく見積もることがわかる。図 33 には、基底サブバンドの面内有効質量の電子密度依存性を示す。フルバンドモデリングでは、縦有効質量が電子密度とともに増加する一方、横有効質量は減少することがわかった。

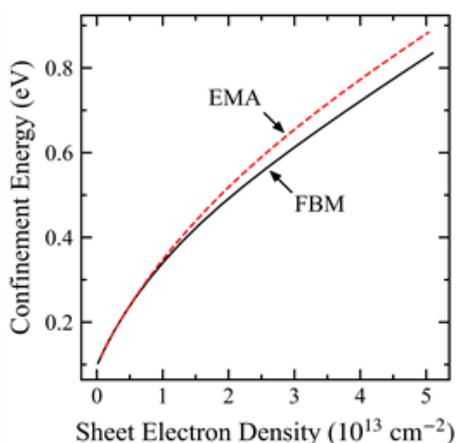


図 32: SiC MOS 構造における閉じ込めエネルギーの面電子密度依存性。黒実線がフルバンドモデリング (FBM)、赤破線が有効質量近似 (EMA) の結果。

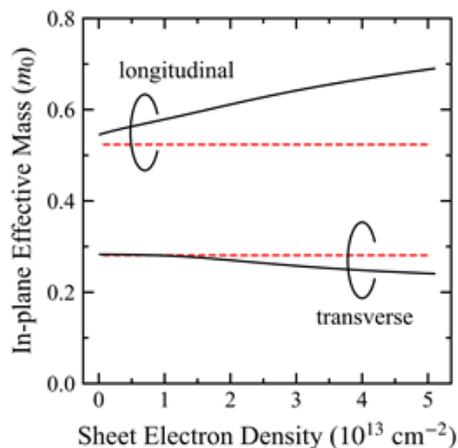


図 33: SiC MOS 構造における面内有効質量の面電子密度依存性。縦有効質量と横有効質量とをプロットした。黒実線が FBM、赤破線が EMA の結果。

#### (4) GaN エピタキシャル成長素過程の解明: TOF-MS を用いた MOVPE 気相反応解析

(名古屋大学実験グループ)

本研究項目では、MOVPE 法を用いた GaN エピタキシャル成長実験中の気相の分子成分比を、高分解能 Time-Of-Flight 質量分析実験 (TOF-MS) によって明らかにし、成長素過程を明らかにすることを目的としている。GaN の MOVPE 成長に用いるトリメチルガリウム(TMGa)およびアンモニア(NH<sub>3</sub>)熱分解および反応過程をその場観察により解析するため、抵抗加熱により温度制御が可能な石英管を用いた簡易状炉を用い、高分解能 TOF-MS を用いて反応炉内の分子種の解析を行っている。まず N<sub>2</sub> 雰囲気中での TMGa の分解の温度特性を確認し、その分解反応が H<sub>2</sub>あるいは NH<sub>3</sub>によってどのような影響を受けるかを解析する。更にキャリアガスとして H<sub>2</sub>の代替として重水素(D<sub>2</sub>)を用いることで、分解種を構成する H の由来を特定することで、反応過程の切り分けを行う。また、比較的低温での成長において C 濃度低減に有効とされるトリエチルガリウム(TEGa)でも同様の解析を行い、高温成長による高純度 GaN における C 濃度低減効果の確認と、その反応過程について解析を行い、TMGa との比較を行う。これらの結果から MOVPE における GaN 成長の気相反応の分子構成を解明する。

本補助事業において、「富岳」を活用した計算グループと共同を行うに際し、以下に成果の報告と共に実験の詳細についても説明する。尚、研究項目(2)⑥の「データ同化による気相反応モデルの高精度化」には、以下の図 35、図 36 の質量分析実験データが用いられている。

① TMGa を用いた MOVPE 気相反応の解析

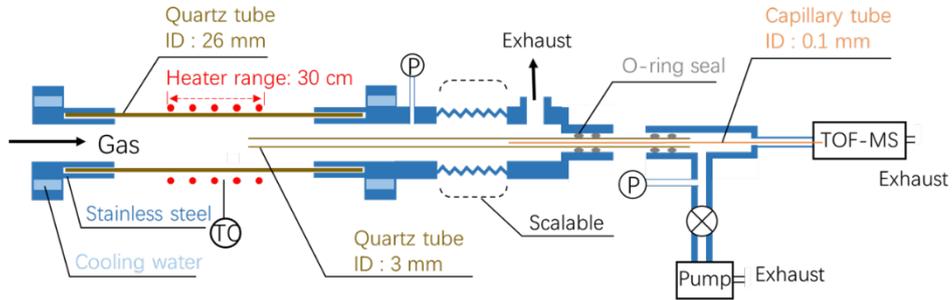


図 34: 気相反応その場観察用の簡易反応炉。

本研究では図 34 に示すような気相反応その場観察用の簡易反応炉を構成し、反応炉内各所のガスをその場でサンプリングし、非常に小型かつ高精度な高分解能 Time-Of-Flight 質量分析実験装置(TOF-MS)で反応種を分析する。本研究で用いたマルチターン方式の TOF-MS は  $m/z = 1 \sim 1000$  の質量範囲に対応し、質量分解能が小数点 3 桁以下の精度を有するため、非常に近い質量(0.001u 程度ほど)をもつ分子でも正確に識別することが可能である。主な実験条件は大気圧、トータル流量 1slm で室温での流速は 0.02 m/s、TMGa 供給量 29 $\mu$ mol/min、NH<sub>3</sub>供給時の V/III は 100 である。横型 MOVPE 炉で通常用いられる流速である 1m/s 程度に対して、0.02 m/s と非常に遅いため、加熱範囲中心部以降ではほぼ平衡状態と考えてよい。温度は抵抗加熱ヒータ制御用熱電対でモニターしながら室温から 1200°C までを変化させて、観察されるガス種の質量ピーク強度の温度依存性を測定した。ガスのサンプリングは 30cm あるヒータ加熱範囲において、上記流量で温度が安定する上流から 20 cm の位置とした。

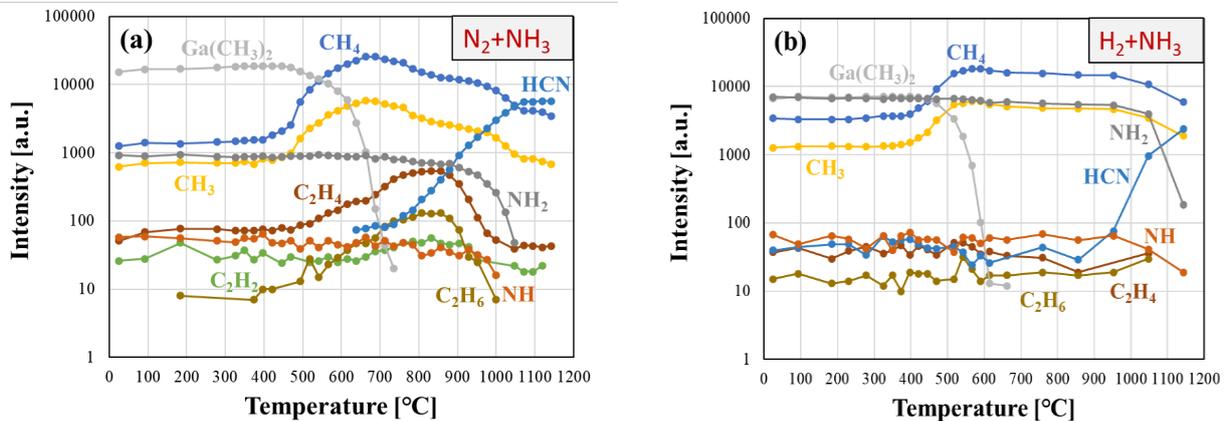
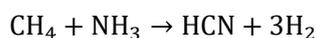


図 35: TMGa と NH<sub>3</sub> と分解反応の温度依存性結果: (a) N<sub>2</sub> 雰囲気、(b) H<sub>2</sub> 雰囲気。

TOF-MS 内では高エネルギーをもつ電子がサンプリングされたガスと衝突し、分子はイオン化する。その過程では、ガス種のフラグメンテーション (分子に高エネルギーの電子をあてると、分子は 1 個の電子を放出してラジカルカチオンになる。これがさらに十分なエネルギーをもっていけばイオン、ラジカルイオン、中性分子、中性ラジカルへと開裂する。また、この開裂のことをフラグメンテーションと呼ぶ。) を起こしやすい。本研究では Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(DMGa)と NH<sub>2</sub>はそれぞれ原料 TMGa(Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)と NH<sub>3</sub> のメインフラグメントとして検出されるため、特に明記しない場合は、DMGa と NH<sub>2</sub>をそれぞれ TMGa

と NH<sub>3</sub>として取り扱う。図 35 は、H<sub>2</sub>または N<sub>2</sub>雰囲気における Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>と NH<sub>3</sub>分解と反応の温度依存性を示している。N<sub>2</sub>中の Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>と NH<sub>3</sub>の分解と反応の結果を図 35(a)に示すように、Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>は約 450°Cで分解を開始し、約 730°Cで信号が消失することが観察された。分解の初期段階では、弱い C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>(C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>のメインフラグメント)信号がみられるが、NH<sub>3</sub>の存在下での主生成物は CH<sub>4</sub>である。これは、Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>と NH<sub>3</sub>の間に反応があり、分離された CH<sub>3</sub>は、互いに重合して C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>を形成するのではなく、NH<sub>3</sub>によって与えられる H と優先的に CH<sub>4</sub>が形成されると考えられる。700°C付近で HCN が生成し始め、NH<sub>3</sub>が枯渇して安定するまで強度が増加するのが観察された。H<sub>2</sub>雰囲気では Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>が約 420°Cで分解し始めるが、分解は N<sub>2</sub>の場合よりもかなり速く、約 600°Cで信号が消える。主な分解生成物は CH<sub>4</sub>であり、高温では C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>は生成しないことを確認した。H<sub>2</sub>と NH<sub>3</sub>の両方が H を提供でき、十分な H が Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>と反応して、より多くの CH<sub>4</sub>を生成すると考えられる。900°C付近で同様に HCN の生成も観察され、同時に CH<sub>4</sub>と NH<sub>3</sub>の強度が弱くなる。熱力学の計算により、CH<sub>4</sub>と NH<sub>3</sub>は反応して HCN を形成する可能性を確認したが、文献によりこの反応には触媒が必要であることが示されている[1]。本研究では、Ga 金属が触媒となった可能性が非常に高いため、下記の式のように CH<sub>4</sub>は NH<sub>3</sub>と反応して HCN を形成するプロセスが考えられる。



また、C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>は CH<sub>4</sub>よりも NH<sub>3</sub>との反応効率が高いと計算され[2]、N<sub>2</sub>雰囲気では HCN がより低温で生成する。これまでのところ、気相における炭素関連の生成物としては、未分解の Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>、CH<sub>4</sub>、C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>、HCN の 4 つが考えられる。CH<sub>4</sub>は安定した対称構造を持っているため、炭素の取り込み効率が非常に低いことが分かっている[3]。C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>は、N<sub>2</sub>中でのみ存在し、高温で NH<sub>3</sub>と反応して HCN を生成する。窒化物への炭素ドーパントとしての HCN については報告があるが、温度を上げると成長しやすいということは、実際の成長において温度を上げるとエピ中の炭素の取り込みが減少するという実験結果とは矛盾する。これらの結果より C の供給源は、未分解の TMGa の可能性に限定される。次に、本実験の簡易反応器で、流量を変えて TMGa の分解を比較した。実際の MOVPE 成長条件では、高流速 (~1m/s) と短い加熱範囲 (2 インチリアクターでは 5cm) が、基板近傍に未分解の TMGa を大量に存在させ、これらが C の取り込みにつながることを推察される。実際の MOVPE 成長条件 (~1m/s、1000°C) で発生する反応は、今回の実験条件では主に低温領域 (約 800°C以下) に集中している。低流速で観測された NH<sub>3</sub>の分解や HCN の生成は、実際の MOVPE 成長時には主に基板近傍では起こらず、実際の反応には寄与していない可能性が高い。しかし基板表面近傍での反応を考える際に考慮に入れるか否かは、検討が必要である。

以上により、未分解の TMGa が主な C 源であると特定された。今後、TMGa の分解プロセスをより詳細に検討することが必要である。図 36 に検出されたすべての Ga 関連の信号種を、最も強い信号強度を持つ DMGa により規格化した。TMGa は容易にイオン化され、異なるガス種になり、TMGa の信号は最も弱く、DMGa の信号は最も強い。個々の Ga 関連ガス種の比率は低温では比較的一定であることから、TMGa は実験系ではイオン化によってのみ影響を受け、熱分解とは関係ないことがわかる。しかし、温度が上昇すると TMGa が分解し始め、個々のガス種間の分圧が変化し始める。MMGa(GaCH<sub>3</sub>)と Ga などの間の分圧は、H<sub>2</sub>雰囲気でも N<sub>2</sub>雰囲気でも増加傾向にある。これまでの TMGa 分解の温度依存性の結果と合わせると、TMGa がメチル基(-CH<sub>3</sub>)脱離を伴って分解し、DMGa(H)、MMGa(H)、Ga(H)となり、CH<sub>3</sub>は CH<sub>4</sub>あるいは C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>となる分解過程が確認できた。

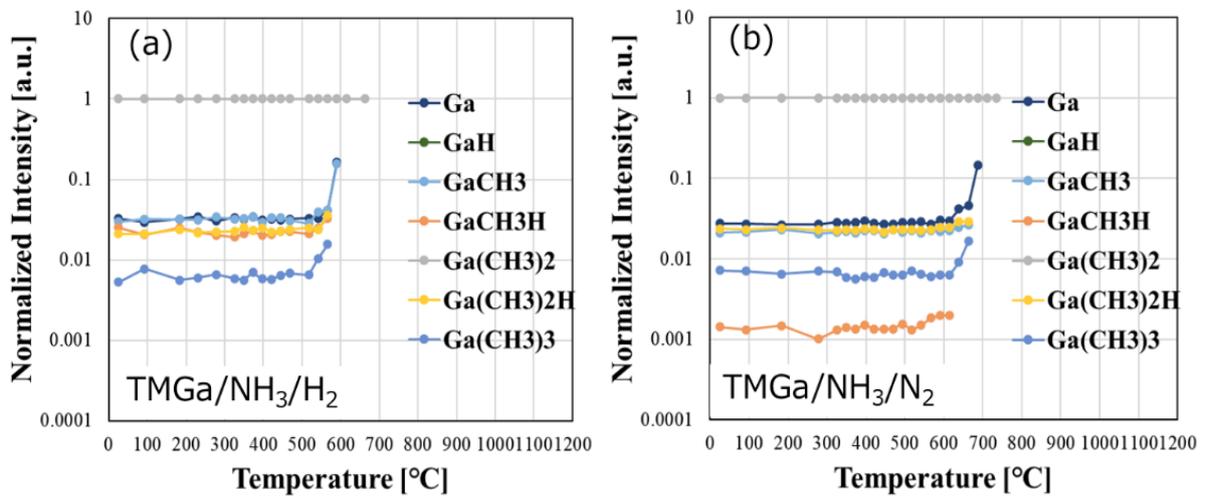


図 36: Ga に関連した各ガス種の温度依存性: (a) H<sub>2</sub> 雰囲気、(b) N<sub>2</sub> 雰囲気。

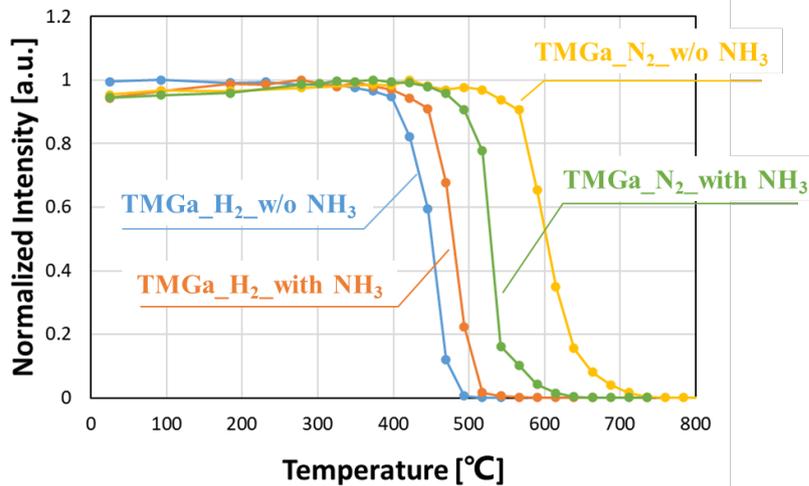


図 37: 異なる雰囲気における TMGa 分解の温度変化。

図 37 はキャリアガスとして N<sub>2</sub> または H<sub>2</sub> を用いた場合、それぞれ、NH<sub>3</sub> 供給有り、無しの雰囲気での室温で強度規格化した DMGa の信号強度の温度変化である。NH<sub>3</sub> が無い場合、H<sub>2</sub> キャリアガス中の TMGa 分解は、N<sub>2</sub> キャリアガス中に比べて低温から始まり、急速に分解が進む。これらの雰囲気に NH<sub>3</sub> が導入された場合、TMGa 分解温度の変化の傾向は、全く逆の作用を示した。N<sub>2</sub> キャリアガスで NH<sub>3</sub> を導入した場合、分解開始温度は約 100 °C 低下し、温度依存性 (分解) の傾きも急峻になった。これは TMGa のメチル基 CH<sub>3</sub> に対して NH<sub>3</sub> が H 供給の役割を果たすため、Ga からの脱離が促進される効果であると考えられる。図 35 から、分解種は CH<sub>4</sub> が主であり、NH<sub>3</sub> からの H 供給により CH<sub>4</sub> が優先的に生成される事がわかる。N<sub>2</sub> キャリガス中で、NH<sub>3</sub> の存在がメチル基の脱離にも寄与していることが示唆される。N<sub>2</sub> キャリアガス中において NH<sub>3</sub> は TMG の分解を促進させることは明らかである。一方、H<sub>2</sub> キャリアガスで NH<sub>3</sub> を供給した場合、TMGa の分解温度は 50 °C ほど高温側にシフトした。これは、NH<sub>3</sub> が TMGa と H<sub>2</sub> の反応を阻害していることを示唆している。また雰囲気に H<sub>2</sub> や NH<sub>3</sub> が有る場合には CH<sub>3</sub> の脱離に必要な H が供給されるため、N<sub>2</sub> のみの場合に比べて、TMGa の分解温度が低下することも明らかになった。

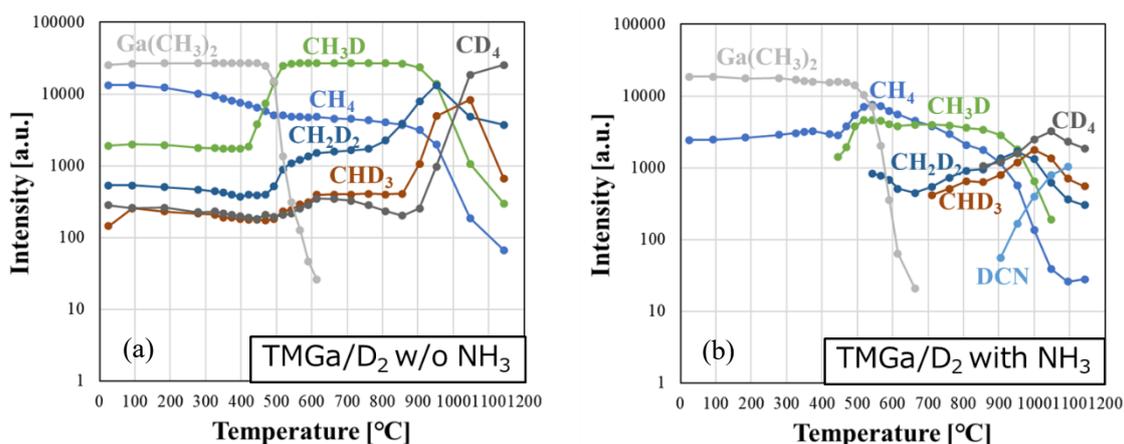


図 38: D<sub>2</sub>雰囲気中の TMGa 分解の温度依存性: (a) NH<sub>3</sub> なし、(b) NH<sub>3</sub> あり。

H<sub>2</sub>雰囲気中で TMGa と NH<sub>3</sub> との相互作用をさらに調べるには、具体的な反応過程を明らかにする必要がある。TMGa、NH<sub>3</sub>、およびキャリアガス H<sub>2</sub>にはすべて H 原子が含まれているため、H 同位体 (D<sub>2</sub>、重水素) を主な標識として使用できる。D<sub>2</sub>をキャリアガスに用いた場合の TMGa 分解の温度依存性の結

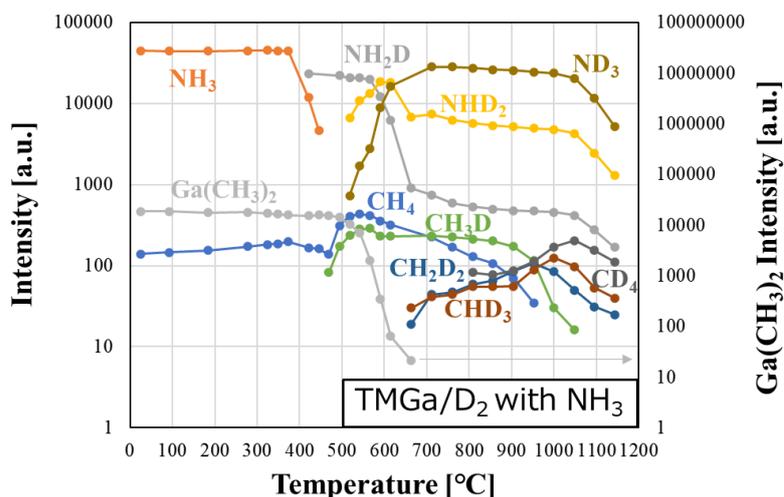


図 39 TMGa/D<sub>2</sub>/NH<sub>3</sub> における NH<sub>3</sub> と TMGa 関連信号の温度依存性。

果を図 38(a)に示す。Ga(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>の信号強度は 450°C付近から低下し、TMGa が分解する。同じ温度で、CH<sub>3</sub>D 信号の強度が急速に増加し、D<sub>2</sub>での TMGa 分解の主な生成物が CH<sub>3</sub>D であることがわかった。TMGa と D<sub>2</sub>の反応を確認し、TMGa の CH<sub>3</sub> (メチル基) が D<sub>2</sub>と反応する様子を確認した。高温領域 (800°C以上) では、CH<sub>3</sub>D が不安定であることが示されている。H-D 交換プロセスが発生し、CH<sub>3</sub>D は CH<sub>2</sub>D<sub>2</sub>に変わり始め、最終的に CD<sub>4</sub>になる。次に図 38(b)には TMGa/D<sub>2</sub>系に NH<sub>3</sub>を供給した場合の TMGa 分解を示す。TMGa の分解は約 470°Cで始まる。TMGa 分解とともに、生成物として CH<sub>3</sub>D の信号があるが、CH<sub>4</sub>の信号強度はより高くなる。CH<sub>4</sub>と CH<sub>3</sub>D は同位体で、イオン化エネルギーはほぼ同じであるため、CH<sub>4</sub>と CH<sub>3</sub>D の強度比は、気相中の CH<sub>4</sub>と CH<sub>3</sub>D の濃度比に近いと考えられる。そのため、TMGa の CH<sub>3</sub>は主に NH<sub>3</sub>の H と反応することが示されている。TMGa と H<sub>2</sub>の反応と比較すると、TMGa と NH<sub>3</sub>の反応優先度がより高いと確認された。温度の上昇に伴い、CH<sub>4</sub>系の H-D 交換反応も観察された。

TMGa/D<sub>2</sub>/NH<sub>3</sub>システムでのTMGaとNH<sub>3</sub>の反応の温度依存性の詳細を図39に示す。TMGaが分解する前に、HD交換により約400°CでNH<sub>3</sub>がほぼNH<sub>2</sub>Dに変換されることがわかった。これは、NH<sub>3</sub>がTMGaの分解前にすでに活性な状態にあり、反応性が高いことを示している。温度が上昇すると、NH<sub>3</sub>のHは徐々にDに置き換わり、最終的にNH<sub>3</sub>はND<sub>3</sub>に変換される。約1000°Cでは、ND<sub>3</sub>がCD<sub>4</sub>と反応してDCNを形成し(NH<sub>3</sub>はCH<sub>4</sub>と反応してHCNを形成)、ND<sub>3</sub>の信号強度は減少する。TMGa/D<sub>2</sub>/NH<sub>3</sub>の結果から、TMGa/H<sub>2</sub>/NH<sub>3</sub>でも同じ反応が起こるはずである。さらに、D-DバンドエネルギーはH-Hのエネルギーよりもわずかに高い[4]ため、関連する反応はH<sub>2</sub>で発生する可能性がより高いと考えられる。従来理解されていた「NH<sub>3</sub>は高温でもほとんど分解されない」という認識に反して、本研究の結果は「NH<sub>3</sub>は低温でも高い反応性を示す」ことを示唆している。MOVPE気相反応の考察を行う上で、重要な実験データが得られたと考えている。

以上の結果から、C濃度をさらに下げるとするには、未分解のTMGaが基板表面に到達するのを抑制することが有効であると考えられる。H<sub>2</sub>はTMGaの分解を促進する効果は大きいですが、NH<sub>3</sub>は低温でTMGaと優先的に反応し、分解を阻害することが示された。TMGaの分解を促進するためには、反応炉の上流領域での予熱など温度管理が重要となる。そのためには、反応プロセスに合わせて、リアクター内の温度分布を設計に取り入れ、最適化する必要がある。

## ② TMGaとTEGa分解の比較

MOVPE成長では、Ga原料としてTMGaもしくはTEGa(Ga(C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub>)が用いられ、LED等で用いるInGaNを成長する低温成長条件(成長温度<900°C)では、TEGaを用いる方がGaN中のC濃度が低いと報告されている[5,6]。しかしながら、パワーデバイスなどで使用される成長温度1000°C付近においてTMGaとTEGaでの異なる原料でのC混入濃度を比較した報告はない。本研究では、まず成長温度1100°Cにおいて異なる原料でGaNを成長させてC混入濃度の比較を行った。さらに、TOF-MSを用いてTMGaとTEGaの気相中の分解反応について詳細な解析を行った。

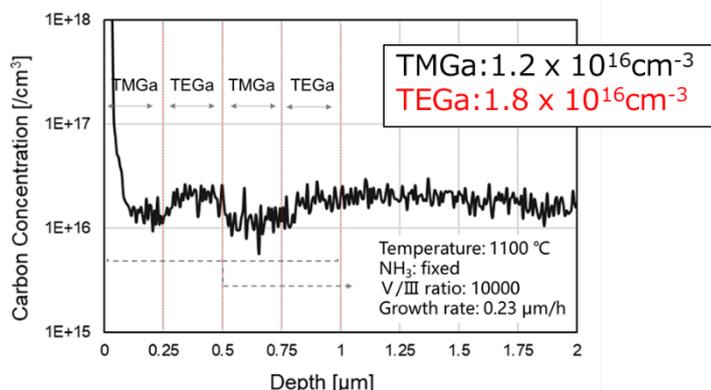


図40 TMGaおよびTEGaを用いて高温成長したGaNのSIMS測定結果。

図 40 に TMGa と TEGa を使用して多層成長した GaN 中の C の SIMS 測定結果を示す。成長条件は同一とし、キャリアガス:水素、温度:1100°C、圧力:100kPa、V/III比:10000、成長レート:0.23 $\mu\text{m}/\text{h}$  である。SIMS 測定結果より TEGa を用いて成長した GaN 層でも C 濃度は TMGa と同等もしくは TEGa の方が高濃度と示されている。その結果、TMGa と TEGa は低温領域と高温領域で C 取り込みが異なることがわかった。

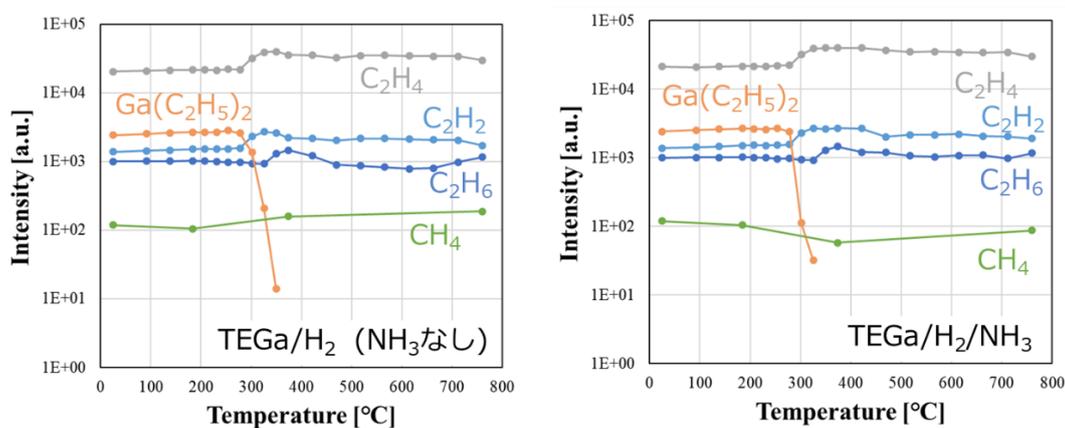


図 41: NH<sub>3</sub> ありなしによる TEGa 分解の温度依存性。

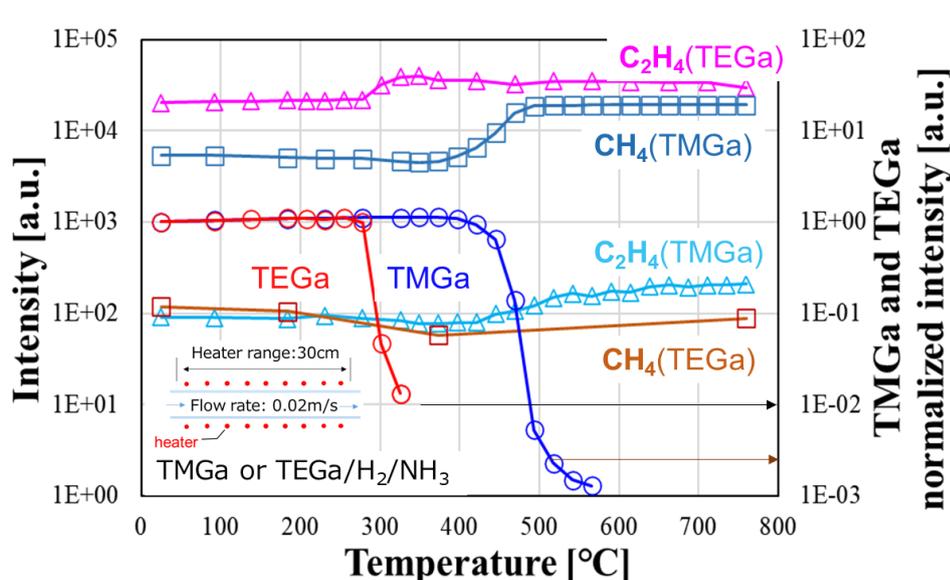


図 42: TMGa と TEGa の分解温度依存性の比較。

この現象を解明するために、TEGa の分解反応を詳細に解析した。実験条件は TMGa の場合と同様である（総流量 1slm、流速 0.02m/s、Ga 原料のモル流量 29 $\mu\text{mol}/\text{min}$ ）。Ga(C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>(DEGa)は原料 TEGa のメインフラグメントとして検出されるため、DEGa を TEGa として取り扱う。また、前述の通り、本実験では実際 MOVPE の成長条件と比べ、流速は低いため、MOVPE 成長温度付近での気相反応は本研究での低温域と対応している。そのため、本実験で注目した温度範囲は 1000°C以下と判断された。NH<sub>3</sub> ありなしによる TEGa 分解の温度変化を図 41 に示すように、NH<sub>3</sub> の有無にかかわらず、TEGa は約 280°C で分解を開始し、生成物に変化しないとわかった。これは、NH<sub>3</sub> が TEGa の分解にほとんど影響しない

ことを示している。次に、TEGa が分解すると、いろいろな  $C_2H_x$  系の信号が検出された。その中で、 $C_2H_4$  の強度が  $C_2H_6$  の強度を 10 倍以上上回り、高温でも  $C_2H_6$  信号の減少に代表される分解過程が検出されなかったため、ここで一番強い強度を持つ  $C_2H_4$  信号は  $C_2H_6$  のメインフラグメントではなく、TEGa の主な分解生成物と特定できる。この反応は、TEGa 中のエチル基( $-C_2H_5$ )が  $\beta$  離脱(金属中心にアルキル基が結合している基質から、脱離が起こりアルケンと金属ヒドリドに分かれる反応)して  $C_2H_4$  を生成するものと考えられる。

TMGa 及び TEGa の分解生成物としてそれぞれ  $CH_4$  及び  $C_2H_4$  が確認された。図 42 では、TMGa 及び TEGa の分解の温度依存性を比較している。低流速で実施しているこの実験において、 $500^\circ C$  領域での気相反応が実際の MOVPE 成長条件の高流速での高温領域での気相反応に対応している。これにより、TMGa と TEGa を原料とした結晶成長において、温度の違いによる C 濃度の変化の違いを理解することが容易になる。まず、MOVPE の低温成長条件では、C の供給源は主に未分解の原料からである。TEGa の分解温度は TMGa よりも大幅に低いため、低温でも分解が進み TEGa の未分解種は非常に少ない。これは TEGa を原料として低温成長させた GaN の C 濃度がより低い要因と考えられる。一方高温域では、TMGa の分解温度が比較的高いことと、実際の反応炉での流速が速いことから、TEGa が完全に分解する一方で、未分解の TMGa がわずかに残ることが予想される。しかし、高温になると原料の分解種である炭水化物が影響を受け始める。炭化水素分子は C ドーパントとなり得るが、 $C_2H_4$  は  $CH_4$  に比べて C 取込効率が高いことが報告されており [7]、この違いが Ga 原料による C 濃度差の要因であることが解った。そのため、高耐圧縦型パワーデバイスの高成長レート、低 C 濃度が要求されるドリフト層 GaN には TEGa は有効ではないと考えられる。

参考文献:

- [1] K. Kachel *et al.*, Mater. Chem. Phys., **177**, 12–18, (2016).
- [2] O. B. Gadzhiev *et al.*, J. Mol. Model., **20**, 2473, (2014).
- [3] X. Li *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B, Nanotechnol. Microelectron. Mater. Process. Meas. Phenom. **33**, 021208 (2015).
- [4] C. Kaspari *et al.*, J. Appl. Phys. **120**, 085701 (2016).
- [5] C. Lund *et al.*, J. Cryst. Growth, **464**, 127(2017).
- [6] K. H. Lee *et al.*, J. Appl. Phys, **110**, 083113 (2011).
- [7] X. Li *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B, **33**, 021208 (2015).

#### (5)プロジェクトの総合的推進

プロジェクト推進会議は、コロナ禍において、対面での開催は不可能であった。それに対応して個別の研究チーム間でのネットワークミーティングが随時開催された。その今年度の集大成として、Int. Symp. on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021 をオンラインで開催した(日本結晶成長学会ナノ構造エピ成長分科会、名古屋大学未来エレクトロニクス集積研究センター、GaN コンソーシアムとの共催)。96 名(日本国内 83 名、海外 13 名)の参加のもとに活発な議論が行われた(ウェブサイト: <https://sites.google.com/view/iswgpds2021>)。また、本プロジェクトのウェブページも日英 2 言語ですでに作成済みであり、多くの訪問者を数えている (<https://fugaku-semicon.jp/>)。

### 2-3. 活動（研究会の活動等）

#### 国際シンポジウム共催

International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021 (ISWGPDs2021) online January 19-21, 2021 <https://sites.google.com/view/iswgpd2021/>

#### 個別メンバーによるワークショップ共催、委員会活動等

森伸也

- 運営委員会委員長, 2020 IEEE International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD), Sep. 27-29, 2020.

寒川義裕

- プログラム委員、ISPlasma2021/IC-PLANTS2021、2021.03.07-11（オンライン）
- 現地実行委員長、The 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology (CGCT-8), 2021.03.01-04（Online）
- 実行委員長、International Symposium on Widegap Semiconductor Growth, Process and Device Simulations 2021 (ISWGPDs 2021), January 19-21, 2021 (Online)
- 論文委員、EMS-39、2020.10.07-09（オンライン）
- 世話人、第12回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会、2020.07.30-31（オンライン）
- 副実行委員長、The 8th International Conference on Light-Emitting Devices and Their Industrial Applications (LEDIA'20), 2020.4.（バーチャル）

小野倫也

- 37th Computational Material Design Workshop (アドバンストコース)共催, 2020年8月31日(月)~9月4日(金), (オンライン)
- 38th Computational Material Design Workshop (スパコンコース)共催, 2021年2月22日(月)~2月26日(金), (オンライン)

### 2-4. 実施体制

業務項目	担当機関	担当責任者
(1) 量子論第一原理計算による表面・界面原子機構解明と実験との比較	〒464-8601 愛知県名古屋市千種区不老町 国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学	押山 淳
	〒152-8550 東京都目黒区大岡山2-12-1 国立大学法人東京工業大学	松下 雄一郎
	〒657-8501 兵庫県神戸市灘区六甲台町1-1 国立大学法人神戸大学	小野 倫也

<p>(2) エピタキシャル成長統合シミュレーション技術の開発と有用性の検証</p>	<p>〒464-8601 愛知県名古屋市千種区不老町 国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学 〒816-8580 福岡県春日市春日公園 6-1 国立大学法人九州大学</p>	<p>白石 賢二  寒川 義裕</p>
<p>(3) 統合デバイスシミュレータによる省エネルギー MOSFET の特性解明と実デバイスとの比較</p>	<p>〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1 国立大学法人大阪大学 〒464-8601 愛知県名古屋市千種区不老町 国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学</p>	<p>森 伸也  押山 淳</p>
<p>(4) GaN エピタキシャル成長素過程の解明：TOF-MS を用いた MOVPE 気相反応解析</p>	<p>〒464-8601 愛知県名古屋市千種区不老町 国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学</p>	<p>天野 浩</p>
<p>(5) プロジェクトの総合的推進</p>	<p>〒464-8601 愛知県名古屋市千種区不老町 国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学</p>	<p>押山 淳</p>

## 別添1 学会等発表実績

### 発表論文 (査読あり)

1. K. Chokawa, T. Narita, D. Kikuta, T. Kachi, K. Shiozaki, A. Oshiyama and K. Shiraishi, "Absence of oxygen-vacancy-related deep levels in amorphous  $(Al_2O_3)_{1-x}(SiO_2)_x$ : First-principles exploration of gate oxides in GaN-based devices" *Phys. Rev. Applied* **14**, 014034 (2020).
2. T. Nakano, Y. Harashima, K. Chokawa, K. Shiraishi, A. Oshiyama, Y. Kangawa, S. Usami, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, Y. Honda, and H. Amano, "Screw dislocation that converts p-type GaN to n-type: Microscopic study on Mg condensation and leakage current in p-n diodes" *Appl. Phys. Lett.* **117**, 012105 (2020).
3. K. M. Bui, K. Shiraishi and A. Oshiyama, "Gallium-gallium weak bond that incorporates nitrogen at atomic steps during GaN epitaxial growth" *Appl. Surf. Sci.* **557**, 149542 (2021).
4. K. Seino and A. Oshiyama "Microscopic mechanism of adatom diffusion on stepped SiC surfaces revealed by first-principles calculations" *Appl. Surf. Sci.* **561**, 149927 (2021).
5. T. Kimura, K. Ohnishi, Y. Amano, N. Fujimoto, M. Araidai, S. Nitta, Y. Honda, H. Amano, Y. Kangawa, and K. Shiraishi, "Thermodynamic analysis of the gas phase reaction of Mg-doped GaN growth by HVPE using MgO", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **59**, 088001.
6. T. Shimizu, T. Akiyama, A. Pradipto, K. Nakamura, T. Ito, H. Kageshima, M. Uematsu, and K. Shiraishi, "Ab Initio Calculations for the Effect of Wet Oxidation Condition on the Reaction Mechanism at 4H-SiC/SiO<sub>2</sub> Interface", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **59**, SMMD01, 2020/4/28.
7. M. Araidai, M. Itoh, M. Kurosawa, A. Ohta, and K. Shiraishi, "Hydrogen desorption from silicene and germanene crystals: Toward creation of free-standing monolayer silicene and germanene", *J. Appl. Phys.*, **128**, 125301, 2020/9/22.
8. H. Kamimura, M. Araidai, K. Ishida, S. Matsuno, H. Sakata, K. Shiraishi, O. Sugino, and J.-S. Tsai, "First-Principles Calculation of Copper Oxide Superconductors That Supports the Kamimura-Suwa Model", *Condens. Matter*, **5**, 69, 2020/11/2.
9. T. Nakanishi, T. Miyajima, K. Chokawa, M. Araidai, H. Toshiyoshi, T. Sugiyama, G. Hashiguchi, and K. Shiraishi, "Negative-charge-storing mechanism of potassium-ion SiO<sub>2</sub>-based electrets for vibration-powered generators", *Appl. Phys. Lett.*, **117**, 193902, 2020/11/10.
10. T. Shimizu, T. Akiyama, K. Nakamura, T. Ito, H. Kageshima, M. Uematsu, and K. Shiraishi, "Effects of Wet Ambient on Dry Oxidation Processes at 4H-SiC/SiO<sub>2</sub> Interface: An Ab Initio Study", *ECS Transaction*, **98**, Number 3, 37, 2020.
11. T. Shimizu, T. Akiyama, K. Nakamura, T. Ito, H. Kageshima, M. Uematsu, K. Shiraishi, "Reaction of NO molecule at 4H-SiC/SiO<sub>2</sub> interface: an ab initio study for the effect of NO annealing after dry oxidation", *Jpn. J. Appl. Phys.* **60**, SBB10, 2021/2/12.
12. Y. Kangawa, A. Kusaba, P. Kempisty, K. Shiraishi, S. Nitta, H. Amano, *Progress in Modeling Compound Semiconductor Epitaxy: Unintentional Doping in GaN MOVPE*, *Crystal Growth & Design* **21** (3), 1878-1890, 2021.
13. D. Yoshio, Y. Matsuo, A. Kusaba, P. Kempisty, Y. Kangawa, H. Murakami, A. Koukitu, *Facet*

- stability of GaN during tri-halide vapor phase epitaxy: an ab initio-based approach, *CrystEngComm* 23 (6), 1423-1428, 2021.
14. P. Kempisty, P. Strak, K. Sakowski, Y. Kangawa, S. Krukowski, Ab initio and thermodynamic picture of Al adsorption of AlN (0001) surface—Role of bond creation and electron transition contributions, *Applied Surface Science* 532, 147419, 2020.
  15. D. Yoshio, F. Shintaku, Y. Inatomi, Y. Kangawa, J.-I. Iwata, A. Oshiyama, K. Shiraishi, A. Tanaka, H. Amano, Oxygen Incorporation Kinetics in Vicinal m(10–10) Gallium Nitride Growth by Metal - Organic Vapor Phase Epitaxy, *Physica Status Solidi (RRL)—Rapid Research Letters* 14 (6), 2000142, 2020.
  16. F. Shintaku, D. Yoshio, Y. Kangawa, J.-I. Iwata, A. Oshiyama, K. Shiraishi, A. Tanaka, H. Amano, Computational study of oxygen stability in vicinal m (10–10)-GaN growth by MOVPE, *Applied Physics Express* 13 (5), 055507, 2020.
  17. T. Kobayashi, T. Okuda, K. Tachiki, K. Ito, Y.-i. Matsushita, and T. Kimoto, “Design and formation of SiC(0001)/SiO<sub>2</sub> interfaces via Si deposition followed by low-temperature oxidation and high-temperature nitridation” *Applied Physics Express* 13, 091003/1-4 (2020).
  18. Y. Kuroiwa, Y.-i. Matsushita, and F. Oba, “Unraveling crystal symmetry and strain effects on electronic band structures of SiC polytypes”, *AIP Advances* 10, 105014/1-9 (2020).
  19. H. Nishi, T. Kosugi, and Y.-i. Matsushita, “Implementation of quantum imaginary-time evolution method on NISQ devices: Nonlocal approximation”, arXiv:2005.12715/1-9 (2020). Accepted in *npj Quantum Information* (2020).
  20. T. Kosugi and Y.-i. Matsushita, “Linear-response functions of molecules on a quantum computer: Charge and spin responses and optical absorption”, *Physical Review Research* 2, 033043/1-16 (2020).
  21. F. Hashimoto, and N. Mori, "Comparative simulation study of intra-layer band-to-band tunneling in monolayer transition metal dichalcogenides," *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 60, SBBH12 (1-9), 2021, [DOI: 10.35848/1347-4065/abdad1](https://doi.org/10.35848/1347-4065/abdad1)
  22. J. Okada, F. Hashimoto, and N. Mori, "Reduction of order of device Hamiltonian with adaptive moment estimation," *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 60, SBBH08 (1-5), 2021, [DOI: 10.35848/1347-4065/abd6df](https://doi.org/10.35848/1347-4065/abd6df)
  23. H. Tanaka and N. Mori, "Analysis of Hall mobility in two-dimensional disordered systems," *Semiconductor Science and Technology*, Vol. 35, No. 9, 095015 (1-9), 2020, [DOI: 10.1088/1361-6641/ab9d0b](https://doi.org/10.1088/1361-6641/ab9d0b)
  24. F. Hashimoto, H. Tanaka, and N. Mori, "Material dependence of band-to-band tunneling in van der Waals heterojunctions of transition metal dichalcogenides," *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 53, 255107 (1-13), 2020, [DOI: 10.1088/1361-6463/ab7ca6](https://doi.org/10.1088/1361-6463/ab7ca6)
  25. T. Kimoto and H. Watanabe: “Defect engineering in SiC technology for high-voltage power devices”, *Appl. Phys. Express* 13, 120101 (2020). [Review Paper].

26. H. Mizobata, Y. Wada, M. Nozaki, T. Hosoi, T. Shimura, and H. Watanabe: "Anomalous interface fixed charge generated by forming gas annealing in SiO<sub>2</sub>/GaN MOS devices", Appl. Phys. Express **13**, 081001 (2020).
27. H. Takeda, M. Sometani, T. Hosoi, T. Shimura, H. Yano, and H. Watanabe: "Insight into channel conduction mechanisms of 4H-SiC(0001) MOSFET based on temperature-dependent Hall effect measurement", Mater. Sci. Forum **1004**, 620 (2020).
28. M. Nozaki, D. Terashima, A. Yoshigoe, T. Hosoi, T. Shimura, and H. Watanabe: "Evaluation and mitigation of reactive ion etching-induced damage in AlGaIn/GaN MOS structures fabricated by low-power inductively coupled plasma", Jpn. J. Appl. Phys. **59**, SMMA07 (2020).
29. Y. Wada, M. Nozaki, T. Hosoi, T. Shimura, and H. Watanabe: "Insight into gate dielectric reliability and stability of SiO<sub>2</sub>/GaIn MOS devices", Jpn. J. Appl. Phys. **59**, SMMA03 (2020).
30. Y. Egami, S. Tsukamoto, T. Ono: Calculation of the Green's function in scattering region for first-principles electron-transport simulations, Phys. Rev. Research **3**, 013038 1-9 (2021).
31. A. Hashmi, K. Nakanishi, M. U. Farooq, T. Ono: Ising ferromagnetism and robust half-metallicity in two-dimensional honeycomb-kagome Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> layer, npj 2D Mater. Appl. **4**, 39 (2020).

#### 招待講演

1. A. Oshiyama, "Computics Approach toward Clarification of Atomic Reactions during Epitaxial Growth of GaN" Int. Conf. Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD) (September 23 - October 6, 2020, All-Virtual Conf)
2. 押山淳、"大規模第一原理計算とデバイス・プロセスシミュレータ統合に向けてーパワー半導体を中心にー" 電子情報通信学会 シリコン材料・デバイス研究会 (SDM) (2020年11月19-20日、オンライン)
3. (Plenary) A. Oshiyama, "Structures, electron states and reactions on growing surfaces and at device interfaces of SiC and GaN" International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021 (ISWGPDS2021) (January 19-21, 2021, on line).
4. 押山淳、"パワー半導体エピタキシャル成長機構解明とデバイス界面制御に向けたコンピューティクス・アプローチ" 計算物質科学人材育成コンソーシアム (PCoMS) シンポジウム (2021年2月15-16日、オンライン)
5. 長川 健太、"SiC と GaN の MOS 界面準位:理論計算による考察, 応用物理学会 先進パワー半導体分科会 (2020年9月14日、オンライン)
6. K. Shiraishi, "Atomic and Electronic Structures of Complexes of Screw Dislocations and Mg Impurities in GaN", International Webinar on Nanotechnology, 2020/10/1, online.
7. K. Shiraishi, "What are nesesaary for future non-volatile memories?" Webinar on Science, Engineering and Technology, 2020/11/17, online.
8. K. M. Bui, Y-I. Matsushita, K. Chokawa, M. Boero, Y. Kangawa, K. Shiraishi, A. Oshiyama, "Structures, electron states and reactions on growing surfaces and at device interfaces of SiC and

- GaN", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 2021/1/19, online.
9. M. Boero, K. M. Bui, A. Oshiyama, Y. Kangawa, K. Shiraishi, "First principles molecular dynamics as a tool to explore complex reactions in GaN", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 2021/1/19, online.
  10. K. Shiraishi, "First Principles Studies on the Complex of the Mg Impurity and the Screw Dislocations in GaN", WebCongress on Computational Materials and Modeling, 2021/1/26, online.
  11. 原嶋庸介, 中野崇志, 長川健太, 白石賢二, 押山淳, 寒川義裕, 宇佐美茂佳, 間山憲仁, 戸田一也, 田中敦之, 本田善央, 天野浩, "p型からn型へ変えるGa<sub>N</sub>中のらせん転位とMgの複合体:第一原理計算と3次元アトムピローブ解析によるアプローチ", 第81回応用物理学会秋季学術講演会, リモート開催, 2020/9/8.
  12. (基調講演) 松下雄一郎, "第一原理計算によるSiC/SiO<sub>2</sub>界面欠陥の特定—新しい酸化膜形成法の提案" 接着・接合技術コンソーシアム、第3回エレクトロニクス系ワーキンググループ 2020年10月
  13. 木本恒暢、小林拓真、立木馨大、松下雄一郎、SiCパワーMOSFETおよび界面高品質化の進展” 第68回応用物理学会春季学術講演会、オンライン開催 (2021)
  14. Y.i. Matsushita, "Theoretical study for Reduction of Interface State Density in SiC-MOSFETs" International Meeting on Thin Film Interfaces and Composite Crystals, Okayama (2021).
  15. Y. i. Matsushita, "An-intio studies on SiC/SiO<sub>2</sub>: identification of interface states and a theoretical approach to reduce the interface-state density" International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, Online (2021).
  16. N. Mori, H. Tanaka, T. Hoshino, and G. Mil'nikov, "Monte Carlo simulation of two-dimensional carrier mobility in wide-gap semiconductor devices," *International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021*, January 19-21, 2021, Virtual Conference
  17. P. Kempisty, K. Sakowski, A. Kusaba, Y. Kangawa, Quantitative compatibility of ab initio thermodynamics with real growth processes of III nitrides semiconductors, The 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, Online, 2021.03.01-04.
  18. Y. Kangawa, Impurity incorporation mechanism in GaN MOVPE: ab initio-based approach, SPIE Photonic West OPTO, San Francisco, 2021.01.25-28.
  19. A. Kusaba, Y. Kangawa, More quantitative prediction of III-nitride growth: theoretical and data-driven approaches, International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021 (ISWGPDs2021), Online, 2021.01.19-21.
  20. Pawel Kempisty, Stanislaw Krukowski, and Yoshihiro Kangawa, Ab initio atomistic thermodynamics of pseudo-hot surfaces in the context of GaN growth and doping, International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021 (ISWGPDs2021), Online, 2021.01.19-21.

21. P. Strak, K. Sakowski, J. Piechota, Y. Kangawa, and S. Krukowski, AlN growth by physical vapor transport method - Ab initio total picture, International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, Online, 2021/1/19-21.
22. T. Kawamura, A. Korei, K. Basaki, T. Akiyama, Y. Kangawa, I. Gorczyca, T. Suski, M. Wierzbowska, and S. Krukowski, Change of the effective bandgaps of InN/AlN superlattices due to lattice distortion, International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, Online, 2021/1/19-21.
23. Y. Kangawa, Modeling semiconductor epitaxy for next generation power device application, IMI Workshop on Fiber Topology Meets Applications, Fukuoka/Online, 2021.01.05-08.
24. [TUTORIAL] 寒川義裕、「窒化物半導体プロセス・インフォマティクス：不純物混入の抑制」、第49回薄膜・表面物理基礎講座、オンライン、2020.11.13.
25. 寒川義裕、「窒化物半導体成長プロセスの理論解析：不純物混入機構」、日本物理学会2020年秋季大会、オンライン、2020.09.08-11.[INVITED] 寒川義裕、「不純物混入と深紫外デバイス特性の相関」、2020年第81回応用物理学会秋季学術講演会、オンライン、2020.09.08-11.
26. Zheng Ye, Shugo Nitta, Markus Pristovsek, Yoshio Honda and Hiroshi Amano, The Decomposition of Trimethylgallium in Different Carrier Gases for MOVPE Studied by High-Resolution Time-of-Flight Mass Spectrometry, International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, オンライン開催, ISWGPDs 2021 Organizing Committee, 2021/1/21.

#### 国際会議発表

1. K. Chokawa, K. Shiraishi, and A. Oshiyama, "First-principles calculations on the atomic and electronic Structures at the GaN/(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>1-x</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>x</sub> interface", 51st IEEE Semiconductor Interface, 18/12/2020.
2. K. Chokawa, K. Shiraishi, and A. Oshiyama, "Atomic and electronic structures at the (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>1-x</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>x</sub>/GaN interfaces", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 20/18/2020.
3. N. Inoue, K. Chokawa, Y. Harashima, A. Oshiyama, and K. Shiraishi, "First-principles calculations on the complex of Mg, H and screw dislocation in GaN", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 20/18/2020.
4. T. Kimura, K. Chokawa, A. Oshiyama, and K. Shiraishi, "Study of Adsorption of H on Stepped SiC Surface during CVD using HCl", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 20/18/2020.
5. D. Yoshio, F. Shintaku, Y. Kangawa, J-I. Iwata, A. Oshiyama, K. Shiraishi, A. Tanaka, H. Amano, "Theoretical model for oxygen incorporation during step flow growth of GaN on vicinal m-GaN by MOVPE", The 8th International Conference on Light-Emitting Devices and Their Industrial Applications (LEDIA 2020), 2020/4/21, online.
6. Y. Ogawa, M. Araidai, T. Endoh, K. Shiraishi, "Effect of Nitrogen Impurity Atoms at Fe/MgO

- Interface on Perpendicular Magnetic Anisotropy Energy", 51st IEEE Semiconductor Interface Specialists Conference, 2020/12/18, online.
7. K. Chokawa, K. Shiraishi, A. Oshiyama, "First-principles calculations on the atomic and electronic structures at the GaN/(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>1-x</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>x</sub> interfaces", 51st IEEE Semiconductor Interface Specialists Conference, 2020/12/18, online.
  8. N. Inoue, K. Chokawa, Y. Harashima, A. Oshiyama, K. Shiraishi, "First-principles calculations on the complex of Mg, H and screw dislocation in GaN", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 2021/1/20, online.
  9. T. Kimura, K. Chokawa, A. Oshiyama, K. Shiraishi, "Study of Adsorption of H on Stepped SiC Surface during CVD using HCl", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 2021/1/20, online.
  10. K. M. Bui, K. Shiraishi, A. Oshiyama, "Incorporation of Nitrogen into Ga-Ga weak bond at step edges on GaN growth surfaces", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 2021/1/20, online.
  11. H. Nakashima, K. Chokawa, Y. Daigo, I. Mizushima, T. Yoda, K. Shiraishi, "First Principles Studies of C Vacancy Incorporation from SiC(0001) Surface", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 2021/1/20, online.
  12. K. Chokawa, K. Shiraishi, A. Oshiyama, "Atomic and electronic structures at the (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>1-x</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>x</sub>/GaN interfaces", International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 2021/1/20, online.
  13. S. Sakakibara, K. Chokawa, M. Araidai, A. Kusaba, Y. Kangawa, K. Shiraishi, "Theoretical study of the effects of H<sub>2</sub> and NH<sub>3</sub> on the TMG decomposition process in GaN crystal growth", The International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, 2021/1/20, online.
  14. D. Yoshio, Y. Kangawa, Surface coverage of impurities during GaN and AlN MOVPE, 13th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials 14th International Conference on Plasma-Nano Technology & Science (ISPlasma2021/IC-PLANTS2021), Online, 2021/3/7-11.
  15. D. Yoshio, Y. Inatomi, and Y. Kangawa, Theoretical approach to carbon concentration on GaN(0001) and (000-1) surfaces during MOVPE, The 8th International Conference on Light-Emitting Devices and Their Industrial Applications (LEDIA 2021), Online, 2020/4/22.
  16. F. Hashimoto and N. Mori, "Comparative simulation study of intra-layer band-to-band tunneling in monolayer transition metal dichalcogenides", 2020 International Conference on Solid State Devices and Materials, September 27-30, 2020, Virtual Conference
  17. J. Okada, F. Hashimoto, and N. Mori, "Reduction of order of device Hamiltonian with adaptive moment estimation", 2020 International Conference on Solid State Devices and Materials, September 27-30, 2020, Virtual Conference
  18. H. Asai, T. Kuroda, K. Fukuda, J. Hattori, T. Ikegami, and N. Mori, "TCAD simulation for

transition metal dichalcogenide channel Tunnel FETs consistent with ab-initio based NEGF calculation," International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices 2020, September 23-October 6, 2020, Virtual Conference

19. G. Mil'nikov, N. Mori, J. Iwata, and A. Oshiyama, "The RSDFT-EM representation and first principle transport simulations of realistic field-Effect transistors," Workshop on "Multiscale Approach from Atoms to Device: Toward Predictive Simulation," International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices 2020, September 23-October 6, 2020, Virtual Conference

#### 国内会議一般公演は省略します

#### 受賞

1. K. Chokawa, K. Shiraishi, A. Oshiyama, Outstanding Poster Awards, International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, , "Atomic and electronic structures at the  $(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}(\text{SiO}_2)_x/\text{GaN}$  interfaces",2021/1/20, online.
2. S. Sakakibara, K. Chokawa, M. Araidai, A. Kusaba, Y. Kangawa, K. Shiraishi, Outstanding Poster Awards, International Symposium on Wide Gap Semiconductor Growth, Process and Device Simulation 2021, "Theoretical study of the effects of  $\text{H}_2$  and  $\text{NH}_3$  on the TMG decomposition process in GaN crystal growth", 2021/1/20, online.
3. 安田賞（若手奨励賞）、第26回電子デバイス界面テクノロジー研究会, 小川湧太郎, 洗平昌晃, 遠藤哲郎, 白石賢二, "Fe/MgO 界面への窒素不純物が磁気異方性と TMR に与える影響について",オンライン開催, 2021/1/22-23.
4. 服部賞（若手奨励賞）、第26回電子デバイス界面テクノロジー研究会, 中西徹, 長川健太, 洗平昌晃, 年吉洋, 杉山達彦, 橋口原, 白石賢二, "K イオンエレクトレットの負電荷蓄積機構及び作製指針の理論的検討",オンライン開催, 2021/1/22-23.
5. D. Yoshio, Y. Kangawa, The Best Short Presentation Awards, ISPlasma2021/IC-PLANTS2021, Surface coverage of impurities during GaN and AlN MOVPE, Online, 2021.3.7-11.
6. 用正大地、新宅史哉、稲富悠也、寒川義裕、岩田潤一、押山 淳、白石賢二、田中敦之、天野浩、学生ポスター賞、第49回結晶成長国内会議（JCCG-49）、「微傾斜 m-GaN MOVPE における酸素混入機構：量子論に立脚した BCF モデル」、オンライン、2020.11.9-11.
7. 用正大地、新宅史哉、稲富悠也、寒川義裕、岩田潤一、押山淳、白石賢二、田中敦之、天野浩、発表奨励賞、第12回ナノ構造エピタキシャル成長講演会、「微傾斜 m(101-0)面 GaN-MOVPE における酸素混入のモデリング」、オンライン、2020.07.30-31.

#### プレス発表

1. 振動発電素子の微視的な仕組みを解明 ～自ら発電するデバイスが身近に～  
<https://www.jst.go.jp/pr/announce/20201019/pdf/20201019.pdf>