

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13351

研究課題名(和文)ワイドバンドギャップ材料の欠陥定量解析手法の確立

研究課題名(英文)Development of quantitative analysis of defects in wide bandgap materials

研究代表者

柿本 浩一(Kakimoto, Koichi)

九州大学・応用力学研究所・教授

研究者番号：90291509

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本提案では、過去40年以上にわたって解決できなかった高精度結晶欠陥制御、特にデバイス特性に影響を与える転位密度の低減と制御を、転位増殖の実験結果に基づいた3次元非定常転位分布数値解析法の開発と結晶成長炉内熱流束精密制御により、極低転位密度結晶成長が可能な新規結晶成長法の提案と実証を行った。すなわち、SiC、GaN、そしてAl₂O₃単結晶の転位密度を定量的に予測できるようになった。結晶欠陥の定量予測が可能となったことにより、従来解析が不可能であった結晶内の3次元転位分布の予測が可能になった。

研究成果の概要(英文)：To effectively reduce defects such as plane dislocations (BPDs) during SiC physical vapor transport growth, a three dimensional model for tracking the multiplication of BPDs has been developed. The distribution of BPDs inside global crystals has been shown. The effects of the convexity of the growth surface and the cooling rate have been analyzed. The results show that the convexity of the growth surface is unfavorable and can cause a large multiplication of BPDs when the crystal grows. Fast cooling during the cooling process is beneficial for the reduction of BPDs because fast cooling can result in a smaller radial flux at the high-temperature region. In addition, fast cooling can reduce the generation of stacking faults during the cooling process. Therefore, to reduce BPDs and stacking faults, it is better to maintain or reduce the convexity of the growth surface and increase the cooling rate during the cooling process.

研究分野：結晶成長学

キーワード：SiC GaN Al₂O₃ 転位 結晶成長

1. 研究開始当初の背景

近年、地球レベルでのエネルギー需要が年々増加しており、今後も世界人口の増加や、特に中国やインドなどのアジア諸国の経済成長と共に増え続けることが予測されている。一方で、一次エネルギーの80%以上を占める主要なエネルギー源である石油、石炭、天然ガスなどの化石燃料は有限の資源であるため、近い将来枯渇することが懸念されており、エネルギーを効率的に利用するための省エネルギー技術の開発機運が高まってきている。代表的な環境対応車として、電気自動車 (EV: Electric Vehicle) やハイブリッド車 (HV: Hybrid Vehicle)、燃料電池自動車 (FCV: Fuel Cell Vehicle) などが挙げられる。これらの自動車は、動力源として電力を用いるため、ガソリンの消費を低減し、CO₂の排出が低減可能である。我が国の発電電力構成の場合、電気自動車の走行により発生する正味のCO₂排出量は、エンジン車 (ICV: Internal Combustion engine Vehicle) の約60%となり、電気自動車の普及によって40%近くのCO₂排出量削減を見込むことができるといわれている。また、環境対応車はエネルギー効率の面でも優れている。

電気自動車用パワーデバイスの観点から様々な利点をもつSiCをパワーデバイス用材料として用いることにより、現在のSiデバイスを用いた各種パワーエレクトロニクスの耐圧、容量、変換効率の向上や、適用範囲の拡大が期待されている。実際に、GaNやSiCパワーデバイスの開発・導入が順調に進展すれば、2020年の時点で、自動車分野だけで約6.3x10⁹ kWh/年という莫大な省エネルギー効果が期待できると報告されている。

ところが、パワーデバイス用材料として非常に魅力的なSiCやGaNには、結晶成長からデバイス製作に至る全ての要素技術において、普及拡大に向けた課題が未だ多く存在する。本研究では、GaNやSiCの結晶欠陥制御技術についての課題に取り組む。

本報告では、過去40年以上にわたって解決できなかった高精度結晶欠陥制御、特にデバイス特性に影響を与える転位密度の低減と制御を、転位増殖の実験結果に基づいた3次元非定常転位分布数値解析法の開発と結晶成長炉内熱流束精密制御により、極低転位密度結晶成長が可能となる新規結晶成長法の提案と実証を行った。さらに、いかなる結晶成長条件、冷却条件が転位密度の低減に資するかを明らかにした。すなわち、GaN成長層と基板であるAl₂O₃単結晶の転位密度を定量的に予測できるようになった。

2. 研究の目的

本研究では、GaN成長層と基板であるAl₂O₃単結晶の転位密度を定量的に予測すべく、図1に示すような液相成長法を用いたGaN on サファイア系を解析とした。解析には粘弾性モデルである、Haasen-Alexander-Sumino

(HAS)モデルを使用した。

本研究では、成長途中および冷却過程までを考慮したにGaN成長層と基板であるAl₂O₃単結晶の転位密度を、非定常解析を基に定量的に予測することを本研究の目的とする。特に、基板の熱膨張係数や熱伝導度が転位密度に及ぼす影響について検討した。

3. 研究の方法

まず、結晶中の熱応力を算出するために、坩堝内部の温度分布を求める必要がある。そこで、本研究では全ての構成要素内の伝熱解析を行い、更に、坩堝内部では多成分化学種の輸送解析を行うことで、それらの分布を計算した。主な計算仮定は以下の通りである。

1. 温度は非定常状態とする。
2. 炉の形状は軸対称とする。
3. 輻射面は灰色面とする。
4. 坩堝内の流れは圧縮性流れとする。
5. 炉内のガス流れは無視する。

図1にGaN液相成長炉の全体像を示す。

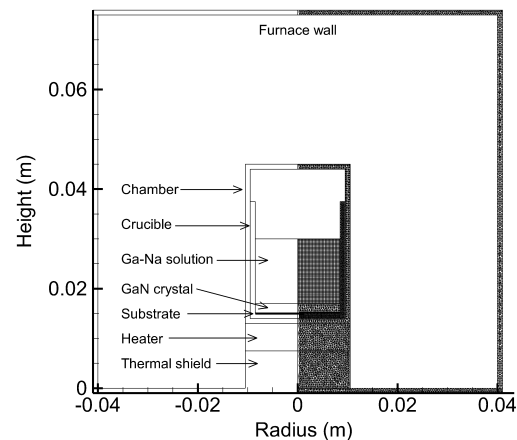


図1 GaN液相成長炉の構成図。

図2は、GaN結晶の底部の温度分布の時間変化を解析により求めた結果を示す。冷却時間におけるヒーター電力停止までの時間が0.5時間から1.5時間と設定したときの温度変化である。これにより、ヒーター電力を停止したのちも、炉体の熱容量により結晶底部の温度は室温までは低下しないことがわかる。すなわち、比較的長時間の熱応力が結晶に印加されることがわかる。

ここで得られた温度分布を基に、まず熱応力を計算し、その値を転位の運動速度のドライビングフォースとして与え、転位の移動速度を時々刻々解析した。同時に、転位同による応力緩和を熱応力に加味して、結晶内の残留応力を解析した。このとき、GaN成長層と基板であるAl₂O₃単結晶の両方とも、温度、転位密度、熱応力残留応力の解析は、非定常

3次元で行った。ここ、成長温度から室温までの冷却過程すべての解析を行った。

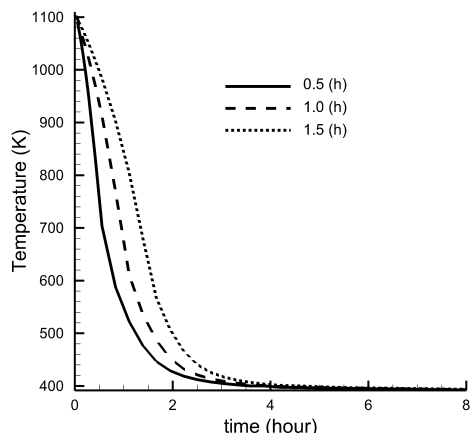


図2 GaN 結晶底部の温度の時間変化。

GaN 成長層と基板である Al_2O_3 単結晶中の熱応力と転位密度は、温度の時間変化を考慮して、非定常解析を行った。

4. 研究成果

図3は、成長温度から室温まで冷却した後の Al_2O_3 単結晶基上の GaN 成長層における転位密度分布（基板と成長層の上下が逆転）を示す。これより、六方晶である Al_2O_3 単結晶基板特有の六回対象の転位密度分布が得られた。さらに、転位密度は 10^5cm^{-2} 程度であることがわかる。また、GaN 成長層

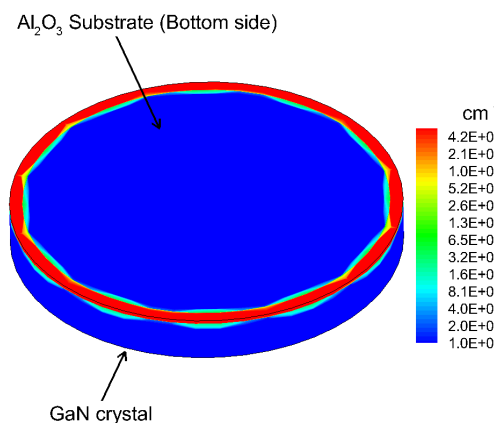


図3 Al_2O_3 単結晶基上の GaN 成長層における転位密度分布（基板と成長層の上下が逆転）。

次に、基板を SiC に変更した場合の解析結果を図4に示す。この結果から、基板を SiC に変更した場合は、GaN 基板を用いた場合に比較して、3桁程度転位密度が低減できていることがわかる。このメカニズムを明らかに

するために、次に挙げる2つパラメータが転位密度にいかに関与するかを検討する。

- 基板と成長層の熱膨張率の差
- 基板と成長層の熱伝導度の差

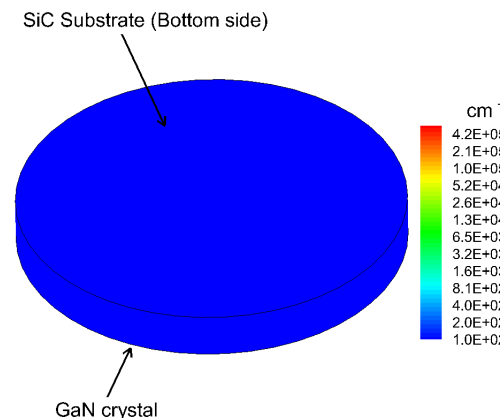


図4 SiC 単結晶基上の GaN 成長層における転位密度分布（基板と成長層の上下が逆転）。

図5は、 Al_2O_3 、GaN、SiC の熱膨張係数の温度依存性を示す。これより、 Al_2O_3 のほうが SiC よりも GaN との熱膨張係数の差が大きく、結晶の冷却過程における熱膨張係数の差における熱応力の発生は Al_2O_3 のほうが SiC よりも大きいことがわかる。

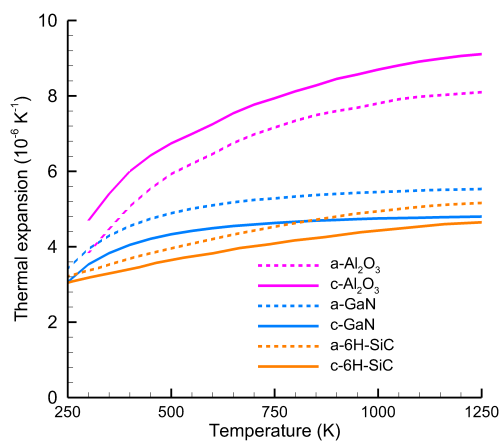


図5 Al_2O_3 、GaN、SiC の熱膨張係数の温度依存性。

一方、熱伝導度に関しては次のように説明できる。図6は、 Al_2O_3 、GaN、SiC の熱伝導度の温度依存性を示す。これより、 Al_2O_3 のほうが SiC よりも GaN との熱伝導度の差が大きく、結晶の冷却過程における熱伝導度の差における熱応力に影響するように考えられる。しかし、熱伝導度と熱膨張係数の値を種々考慮して解析した結果、 Al_2O_3 と SiC の熱膨張係数の差のほうが、結晶冷却中の転位密度分布の差に大きな影響を与えることが

明らかとなった。

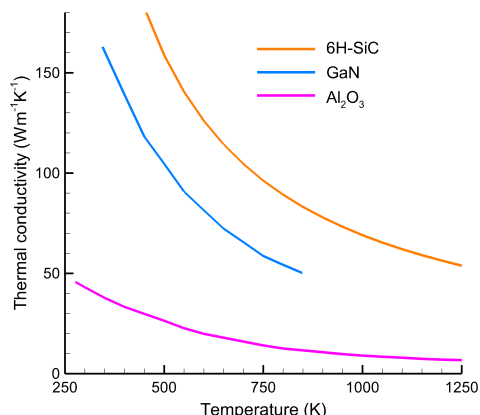


図6 Al₂O₃、GaN、SiC の熱伝導度の温度依存性。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 4 件)

Takahiro Kawamura, Akira Kitamoto, Mamoru Imade, Masashi Yoshimura, Yusuke Mori, Yoshitada Morikawa, Yoshihiro Kangawa, and Koichi Kakimoto, First principles study of the surface phase diagrams of GaN (0001) and (000-1) under oxide vapor phase epitaxy growth conditions, 査読有, physica status solidi (b) (2017) DOI: 10.1002/pssb.201600706

Mitsuhiro Matsumoto, Hirofumi Harada, Koichi Kakimoto and Jiwang Yan¹, Study on Mechanical Properties of Single-Crystal Silicon Carbide by Nanoindentation, 査読有, Advanced Materials Research 1136, 549-554 (2016)

doi:10.4028/www.scientific.net/AMR.1136.549

S. Araki, B. Gao, S. Nishizawa S. Nakano, and K. Kakimoto, Study on Mechanical Properties of Single-Crystal Silicon Carbide by Nanoindentation, 査読有, Cryst. Res. Technol. 51, No. 5, 344-348 (2016) DOI 10.1002/crat.201500344

Takahiro Kawamura, Mitsutoshi Mizutani, Yasuyuki Suzuki, Yoshihiro Kangawa, and Koichi Kakimoto, Strain energy analysis of screw dislocations in 4H-SiC by molecular dynamics, 査読有, Japanese Journal of Applied Physics 55, 031301 (2016) 031301-1-031301-5

<http://doi.org/10.7567/JJAP.55.031301>

〔学会発表〕(計 6 件)

S. Nakano, B. Gao, K. Kakimoto, Relationship between the Dislocation Density and Residual Stress in a GaN Crystal during the Cooling Process, The 7th International Symposium on Advanced Science and Technology of Silicon Materials, 2016/11/21-25 (11/24), Sheraton Kona Resort & Spa at Keauhou Bay, Hawaii (Hawaii, USA) W. Fukushima, B. Gao, S. Nakano, H. Harada, Y. Miyamura, and K. Kakimoto, Effect of oxygen atoms on dislocation multiplication in a silicon crystal, 2016/8/7-12 (8/8), The 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy, Nagoya Congress Center (愛知県名古屋市)

中野 智、高 冰、柿本 浩一、GaN 単結晶における基板と冷却速度の転位密度に与える影響、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、平成 28 年 3 月 19 日-22 日 (3/19、) 東工大岡山キャンパス

S. Nakano, B. Gao, K. Kakimoto, Numerical Analysis of the Effect of Substrate and Cooling Rate on Grown-in Dislocation Multiplication for GaN Single Crystal, The 8th International Workshop on Modeling in Crystal Growth, 2015/11/15-18 (11/16), Spa, Belgium Satoshi Nakano, Bing Gao, Koichi Kakimoto, EFFECT OF COOLING RATE ON GROWN-IN DISLOCATION MULTIPLICATION ON PRISMATIC SLIP PLANES FOR GAN SINGLE CRYSTAL, ACCGE-20/OMVPE-17, 2015/08/2-7 (8/3), Big Sky, Montana, USA

Koichi Kakimoto, Shin-ichi Nishizawa, Bing Gao, Satoshi Nakano, Hirofumi Harada, Yoshiji Miyamura, Takafumi Sekiguchi, ATOMIC AND MACRO SCALE CALCULATIONS ON CRYSTAL GROWTH OF WIDE BANDGAP SEMICONDUCTORS, ACCGE-20/OMVPE-17, 2015/08/2-7(8/3), Big Sky, Montana, USA

〔その他〕

ホームページ等

http://www.riam.kyushu-u.ac.jp/nano/ind_in_e.html

6. 研究組織

(1)研究代表者

柿本 浩一 (KAKIMOTO, Koichi)
九州大学・応用力学研究所・教授
研究者番号：90291509

(2)研究分担者

中野 智 (NAKANO, Satoshi)

九州大学・応用力学研究所・技術専門職員
研究者番号：80423557