

令和 5 年 5 月 30 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H00352

研究課題名（和文）OVPE法による超低抵抗・厚膜GaN結晶成長技術

研究課題名（英文）Growth of a thick GaN crystal with extremely low resistivity by the OVPE method

研究代表者

森 勇介（Mori, Yusuke）

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：90252618

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 35,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では低転位密度のGaN結晶をoxide vapor phase epitaxy（OVPE）法により作製し、OVPE-GaN基板上のPNダイオード（PND）の特性を測定することを目的とした。新規にホットウォール加熱形式のヒーターを導入することで、多結晶を抑制し300um/hの高速成長を実現した。OVPE-GaN基板上のPNDの逆方向電圧印可時のリーク電流は、市販のHVPE基板に比べて同程度であったが、順方向電圧印可時に電流が極端に増大する伝導度変調の効果が現れ、高酸素ドーピングによる高キャリア濃度を用いる優位性を示すことができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、厚膜成長技術の主流として用いられているハイドライド気相成長（HVPE）法では、結晶成長速度が200μm/hと大きいのが特徴であるが、転位密度は種結晶に依存する。一方、OVPE法ではファセット成長により種結晶から転位密度が減少する機構があることに加え、結晶に酸素が高濃度にドーピングされることから電気抵抗を大幅に低減可能である。当該結晶上にデバイス作製することで、パワーデバイスの歩留まり向上と更なる省エネルギー化が見込まれる。

研究成果の概要（英文）：In this study, low dislocation density GaN crystals were grown by the oxide vapor phase epitaxy (OVPE) method and the characteristics of PN diodes (PNDs) on OVPE-GaN substrates were measured. The leakage current of PNDs on OVPE-GaN substrates when reverse voltage is applied was comparable to that of commercially available HVPE substrates, but the effect of conductivity modulation, in which the current increases extremely when forward voltage is applied, was observed, demonstrating the advantage of using high carrier concentration due to high oxygen doping.

研究分野：結晶工学

キーワード：OVPE GaN PNダイオード

1. 研究開始当初の背景

GaN系窒化物半導体は、半導体材料の中では最も優れた光・電子特性を有しており、LED等の青色発光デバイスとして実用化されている。近年では、電力損失がSiの1/10以下のパワーデバイスをはじめ、携帯電話の1,000倍の速度・通信容量を実現する超高速動作トランジスタ等の新技術開発が進められている。しかしながら、これらのデバイスには高品質かつ安価な下地結晶が必要であり、Siのような大口径・高品質インゴット(厚膜結晶)のGaNが存在しないことからその実現には至っていない。現在の市販GaN結晶は、異種結晶(サファイア、ガリウムヒ素等)上にハイドライド気相成長(HVPE)法によって作製されている^[1]。この方法は、成長速度が速い(商用で200 $\mu\text{m}/\text{h}$ 以上)という利点がある一方、異種結晶とGaNの格子定数の違いによる欠陥(転位)密度の高さ($10^5 \sim 10^6 \text{ cm}^{-2}$)が低転位GaNウエハ実現の原理的な障壁となっている。従来の気相成長法では転位の直進性が高く、反応や対消滅現象が生じにくいことが要因として挙げられる。近年の研究でNaフラックス法を用いて低転位密度・大口径のGaNウエハ作製に成功しているが^[2]、高速・厚膜成長が困難であることから、インゴット化については気相成長法との組み合わせが必要である。

上記に対し、我々は酸化ガリウムを原料とするオキサイド気相成長(OVPE)法を用いて取り組んでいる。当該手法において副生成物は H_2O (水蒸気)であり、固体副生成物が発生しないことから持続成長が可能である。近年の研究で発見したOVPE法の興味深い特徴は、ファセットが顕著に出現する三次元モードでの成長を維持可能ということであった。当該成長モードではn型ドーパントとして作用する酸素不純物が容易に取り込まれ、超低抵抗のGaN結晶を作製可能である^[3]。また、転位密度が 10^4 cm^{-2} 台まで減少することも分かっている。一方、酸素不純物の影響で酸化ガリウムも生成しやすく、それを起点とした多結晶や大ピットが発生し、厚膜成長や高速成長が実現できていない。また、実際にOVPE基板上にエピタキシャル成長を実施し、ダイオードを作製した事例は少なく、デバイスに関して更なる研究開発が必要とされていた。

2. 研究の目的

本研究では、下記の3点を研究目的とした。

- (1) 酸化ガリウムを起点とする多結晶や大きいピットの抑制と高速成長(300 $\mu\text{m}/\text{以上}$)の実現
- (2) OVPE法で作製したGaN結晶の欠陥状態・格子定数の調査
- (3) 転位密度減少機構の推定
- (4) OVPE基板上GaNデバイス(PNダイオード)の作製と評価

3. 研究の方法

- (1) 酸化ガリウムを起点とする多結晶や巨大ピットの抑制と高速成長(300 $\mu\text{m}/\text{以上}$)の実現
近年の研究で、GaN結晶上に堆積する多結晶は、基板に到達するまでの気相中で発生することがわかってきた。また、多結晶が基板に発生する巨大ピットの原因になるとも考えられていた。気相中で多結晶が生成するのは、基板部のみを加熱するコールドウォール方式を用いていることが一因である。そこで、本研究では図1に示すように新たにホットウォールヒーターを導入し、気相中での多結晶生成の抑制に取り組んだ。また、多結晶を抑制かつ種結晶の品質を引き継いだ状態において、成長速度をどこまで増大可能かの検討も実施した。

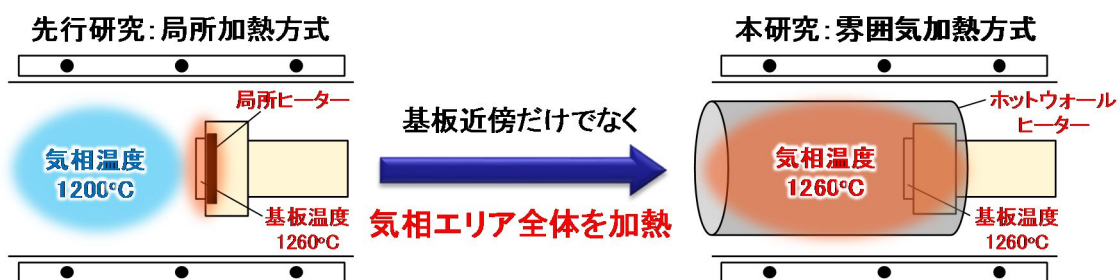


図1 本研究で導入したホットウォールによる結晶成長の模式図

- (2) OVPE法で作製したGaN結晶の欠陥状態・格子定数の調査

OVPE法で作製したGaN結晶は酸素濃度が 10^{20} cm^{-3} 台程度と高く補償する形で点欠陥が導入されている可能性がある。そこで、本研究では陽電子対測定により欠陥の状態を予測した。また、酸素不純物濃度の高い結晶は着色が見られるが、水素不純物濃度の高い結晶については透明化傾向が得られ、その要因については分かっていた。そこで、第一原理計算を利用したバンド構造と電子状態計算を用いて、水素が結晶中に入る状態とバンド内に形成される準位を予測した。格子定数についても放射光エックス線を用いた逆光子マッピングにより評価を行った。

(3) 転位密度減少機構の推定

OVPE 法では低転位な GaN 結晶が得られる一方、その転位減少機構については明らかになっていないため、本研究において MPPL や SEM 観察により転位挙動を調査した。

(4) OVPE 基板上 GaN デバイス (PN ダイオード) の作製と評価

OVPE 法で作製した GaN 結晶上に有機金属気相成長 (MOVPE) 法を用いてエピタキシャル成長を行い、PN ダイオードを作製した。また、順方向及び逆方向電圧印可時の I-V 特性の評価を行った。

4. 研究成果

(1) 酸化ガリウムを起点とする多結晶や大きいピットの抑制と高速成長 (300 μm /以上) の実現

ホットウォール及び従来の加熱方式において、1 時間の成長で得られた結晶の表面 SEM 像を図 2 に示している。膜厚が薄い領域についても 321 μm の厚さであり、300 μm /以上のレートで結晶を得ることを成功した。また、表面には多結晶が堆積しておらず、多結晶フリーの状態での高速成長を実現した。表面のピットについても鳥瞰 SEM 像により評価したところ、ピット底部に多結晶は見られず、従来の加熱方式で見られていたような多結晶を起点とした巨大ピットの生成を防ぐことにも成功した。

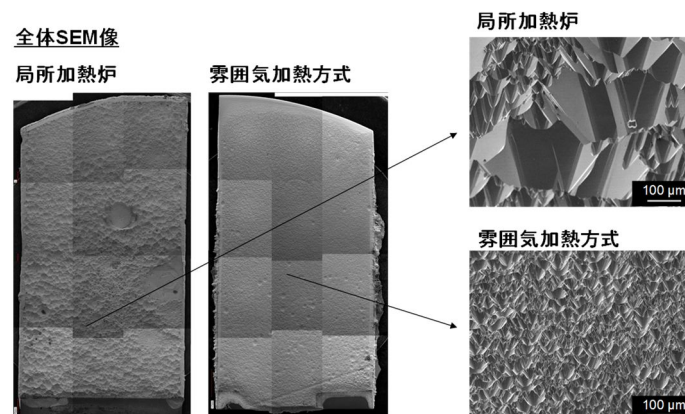


図 2 ホットウォール加熱方式及び従来の局所加熱方式で得られた GaN 結晶の表面 SEM 像

(2) GaN 結晶の欠陥状態・格子定数の調査

陽電子対消滅により、OVPE GaN 結晶中の欠陥状態を推定した結果、主にガリウム欠陥と酸素 (窒素サイトに存在) が結びついた状態、或いはダイベカンシーが同様の酸素と結びついた状態が支配的であることが明らかになった。透明性についても欠陥量を示す S パラメーターとの相関が見られ、欠陥量が多い結晶ほど着色が見られた。一方、当該結晶上に有機金属気相 (MOVPE) 成長した結晶についても評価を行ったところ、欠陥量は検出下限以下、或いはそれに近いという結果であり、エピタキシャル成長層にはバルク基板の点欠陥が引き継がれないことが明らかになった。

次に、バンド構造と電子状態計算を用いて、水素が結晶中に入る状態とバンド内に形成される準位を予測した。陽電子消滅で観測されたガリウム欠陥と酸素の複合欠陥に、水素が結びついたモデルで計算した結果、単純なガリウム空孔や窒素空孔に起因する欠陥準位が消滅することがわかった。Mg, Zn, Si, Ge や Sn といった元素もガリウム空孔に起因する欠陥準位の抑制に有効であり、これらの不純物を添加することで結晶の黒色化を抑制できることが示唆された。実験的にも Ge を添加することで透明化するような傾向が得られている。

格子定数については、酸素濃度をドープした結晶ほど格子定数は増加傾向ではあったが、想定していたほどの増加幅ではなかった。格子間など、窒素サイトに酸素が入る以外の状態で GaN 結晶内に酸素が存在していることが示唆されている。

(3) 転位密度減少機構の推定

次に、転位密度減少機構に関する評価を行った。SEM や MPPL を用いて表面に形成されたピットの傾斜角度を測定し、ピットを構成する面を推定した結果、 $\{11\text{-}22\}$ 面と $\{30\text{-}34\}$ 面であることが分かった。これらの角度は、HVPE 製の GaN 結晶で報告されているピット構成面に比べて大きな傾斜角度であり、転位の湾曲がより促進され、転位密度減少が早くなることが示唆されている。実際にピット密度の成長膜厚依存性について調査したところ、HVPE に比べて早い段階において転位密度が減少しており、上述のピット形状の違いが当該挙動に寄与していると考えられる。ピットが増大する条件についても検討したところ、図 3 の MPPL 像ように低 / 比で成長した結晶については、結晶成長中にピットが拡大しやすいことも明らかになった。

多光子像

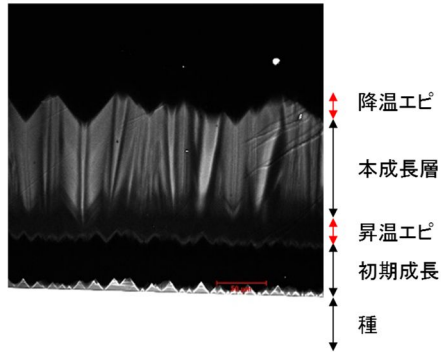


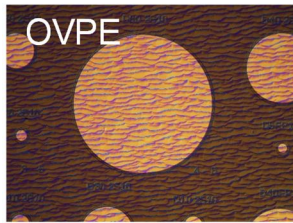
図3 OVPE GaN 結晶の断面 MPPL 像

(4) OVPE 基板上 GaN デバイス (PN ダイオード) の作製と評価

最後に, MOVPE エピタキシャル成長後の結晶について, PND を作製した結果について述べる. エピタキシャル成長後の表面モルフォロジーは図4に示すように, HVPE 法で作製した GaN 基板上 PND に比べて OVPE 基板上 PND の方が荒れていることが分かった. 上述の若干の格子不整合やオフ角が影響していると考えている.

続いて当該 PND に順方向及び逆方向に電圧を印加した際の I-V 特性をそれぞれ図5(a)及び(b)に示している. 順方向電圧印可時において, 3V 以上の電圧を印加した際に電気抵抗が大幅に減少する現象, すなわち伝導度変調が生じている可能性が示唆されていた. 逆方向については市販の HVPE と大きな差は見られなかった. 以上から, OVPE 基板上 PND では, HVPE 基板上 PND に比べて抵抗が小さく, より社会が目指す省エネルギー化に貢献できると期待できる.

(a)



(b)

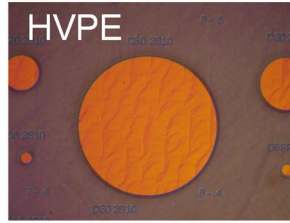


図4(a)OVPE 法及び(b)HVPE 法で作製した GaN 基板上に作製した PND における p 電極像

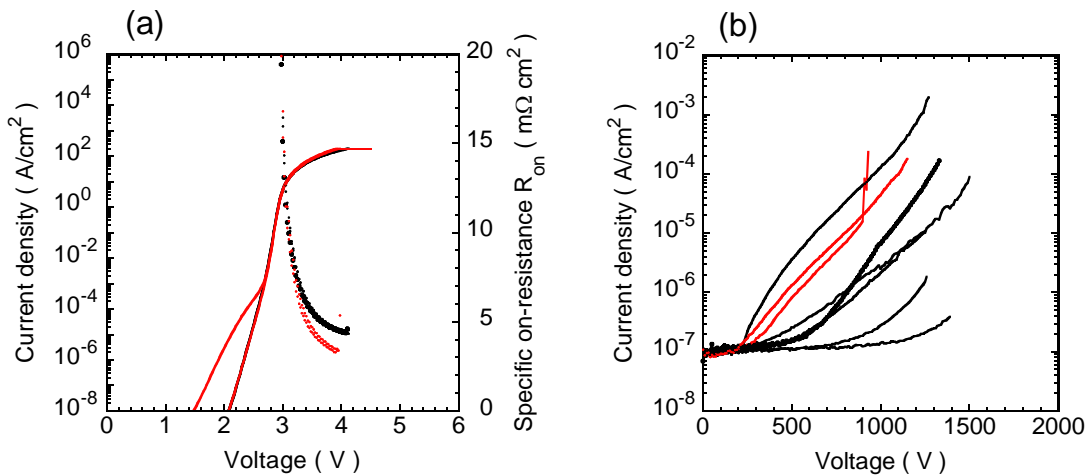


図5 GaN 基板上 PND の(a)順方向電圧印可時の I-V 特性と(b)逆方向電圧印可時の I-V 特性
黒線: HVPE 基板上 PND 赤線: OVPE 基板上 PND

今後は 2 インチ口径の低抵抗 GaN 基板を量産し, デバイスメーカーに供給する予定である.

< 引用文献 >

T. Yoshida 他, Phys. Stat. Solidi C 8 (2011) 7.
M. Imanishi 他, Appl. Phys. Express 12 (2019) 045508.
J. Takino, M. Imanishi 他, Jpn. J. Appl. Phys. 58 (2019) SC1043.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 T. Hamachi, T. Tohei, Y. Hayashi, M. Imanishi, S. Usami, Y. Mori, N. Ikarashi, A. Sakai	4. 巻 129
2. 論文標題 Propagation of threading dislocations and effects of Burgers vectors in HVPE-grown GaN bulk crystals on Na-flux-grown GaN substrates	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 225701-1-19
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0053766	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 森 勇介、今西 正幸、宇佐美 茂佳、吉村 政志、守山 実希
2. 発表標題 高周波デバイス高性能化に向けたGaN結晶育成技術
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	上殿 明良 (Uedono Akira) (20213374)	筑波大学・数理物質系・教授 (12102)	
研究分担者	津坂 佳幸 (Tsusaka Yoshiyuki) (20270473)	兵庫県立大学・理学研究科・准教授 (24506)	
研究分担者	酒井 朗 (Sakai Akira) (20314031)	大阪大学・基礎工学研究科・教授 (14401)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	河村 貴宏 (Kawamura Takahiro) (80581511)	三重大学・工学研究科・助教 (14101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関