

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 1 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420712

研究課題名(和文)窒化アルミニウム粉末を原料とする窒化アルミニウム単結晶成長技術の開発

研究課題名(英文)Development of AlN growth method using AlN powder

研究代表者

寒川 義裕 (Kagawa, Yoshihiro)

九州大学・応用力学研究所・准教授

研究者番号：90327320

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：都市生活を営む上で直流 - 交流変換などの電力変換は不可欠である。本研究では、高品質かつ低コストのAlN単結晶基板の成長技術を確立し、次世代AlN系パワーデバイス開発の加速に貢献することを目的とする。目的達成に向けて、AlN固体ソース溶液成長中の高温固 - 液界面のその場観察装置を開発し、成長初期過程の観察を行った。成長温度1250℃では樹脂状成長様式が、1350℃では多段階ステップの移動による成長様式が観察された。得られたAlNは多結晶であったが、高温固 - 液界面のその場観察技術の開発およびAlN固体ソース溶液成長プロセスの解明に成功した。

研究成果の概要(英文)：Aluminum nitride (AlN) and related compound semiconductors, such as AlGaN, have attracted much attention because of their great potential as power devices. Interfacial phenomena at the liquid/solid interface under high temperatures were observed in real time to understand the growth process of AlN during solid-source solution growth. In this study, we used transparent substrate, i.e., AlN/sapphire template, so as to observe high-temperature liquid/solid interfaces through the substrate from the bottom. Though a poly-crystal formed because of melt-back etching during the initial stage of growth; nevertheless, initial growth process was successfully observed by the in-situ observation system. This in-situ observation system could be a powerful tool for investigating interfacial phenomena at high-temperature liquid/solid interfaces and optimizing crystal growth conditions.

研究分野：半導体結晶成長

キーワード：溶液成長 窒化アルミニウム その場観察

1. 研究開始当初の背景

我々は都市生活を営む上で電力変換素子の恩恵を被っている。例えば、電気自動車ではLiイオン電池から供給されたDC(直流)電力をAC(交流)に変換してモーターを駆動している。また、鉄道やエアコンのようにAC-DC-AC変換により交流周波数を変えて使用するケースもある。この電力変換はインバータ(コンバータ)システムにより行われており、その中枢を担うのが半導体パワーデバイスである。現在、このパワーデバイスにSi材料が用いられているが、変換効率が悪く(80~90%)、供給電力の一部(10~20%)を熱として系外に放出している状況にある。また、Siの劣った材料特性に起因して、大電力用途ではデバイス面積を大きくする必要があるのであるなどの欠点も抱えている。このため、AC-DC変換時における電力損失の低減(エネルギーの高効率利用)およびデバイスの小型化の観点から代替材料による素子の置換が検討されている。現在、鉄道などの大電力用途では炭化ケイ素(SiC)材料への置換が始まっており、並行してデバイス特性の改善が試みられている。また、SiCよりも更に高い変換効率が期待できる窒化ガリウム(GaN)系パワーデバイスの開発も進められている。一方、窒化アルミニウム(AlN)系材料を用いたパワーデバイスは現在プロトタイプが作製されている段階で、GaN系のそれより高温動作に優れているなどの基礎データは報告されているが変換効率はまだ他の材料に追いついていない。これは、Al(Ga)N薄膜を堆積し、デバイスを作製するための高品質かつ低コストのAlN基板結晶が世の中に存在しないことに起因する。

2. 研究の目的

本研究課題では、高品質かつ低コストのAlN単結晶基板の成長技術を確立し、AlN系パワーデバイス開発の加速に貢献することを目的とする。本研究課題の遂行により産業応用に資するAlN基板結晶の成長技術が確立されれば、ノートPC用のACアダプターを小型化し且つ熱の発生を抑制する道が拓ける。また、電気自動車の航続距離が約10%伸びるなど社会生活における利便性の向上が期待される。何より、都市の電力需要の低減(5~10%の省エネ)をもたらすことが最大の意義/メリットとなる。この最終目標に向けて本研究課題ではデバイス作製のAlN基板結晶の新規成長技術の開発を行う。

3. 研究の方法

GaN、AlNなどのIII族窒化物半導体は、大気圧下では液相が存在しないためSiインゴットの作製で良く知られているCZ(Czochralski)法などの融液からの成長法をそのまま適用することができない。そのため、高圧下あるいは溶媒(フラックス、融材)の存在下といった特殊環境下での液相成長法

が検討されている。例えば、Na溶媒を用いた溶液(フラックス)成長法により900°C程度の比較的低温でGaN成長が実現している。また、AlNではGa-Al溶媒を用いた~1300°Cでの溶液成長が報告されている。いずれもHVPEにおける典型的な成長温度(GaN:~1050°C、AlN:~1400°C)より100~200°C低い温度域での成長である。加えて、溶液成長法は一般に、装置や技術も簡便であり、開発費の削減が期待できる手法と言える。しかし、III族窒化物半導体の従来の溶液成長法はN₂ガスを窒素原料としており、気-液界面における雑晶(多結晶)の形成、溶液中の過飽和度制御の困難性などが問題となっていた。これらの問題点を克服するために、近年、Li₃N(融点:813°C)を窒素原料とするAlN固体ソース溶液成長(Solid-Source Solution Growth; 3SG)法を開発した[引用文献①]。3SG法では粉末のLi₃Nを溶解して窒素原料とするため、気-液界面近傍で最大の窒素濃度(=固溶度)となる必然性(束縛条件)が無く、装置設計上の自由度が増すなどの利点がある。

本研究課題では、AlN溶液成長における初期成長様式を制御し、貫通転位密度の低減を図るためにその場観察装置の開発を行った。本装置では、可視光に対して無色透明のAlN/サファイア(sapphire)テンプレートを用いて基板の裏面側から表面(固-液界面)形状をその場観察している。図1にAlN溶液成長におけるその場観察装置の概略図を示す。ここでは外部光源を用いずLi-Al-N溶液からの熱輻射を利用して観察を行っている。基板材料は低圧MOVPE(有機金属気相成長)により成膜した膜厚1µmのAlN/Sapphireテン

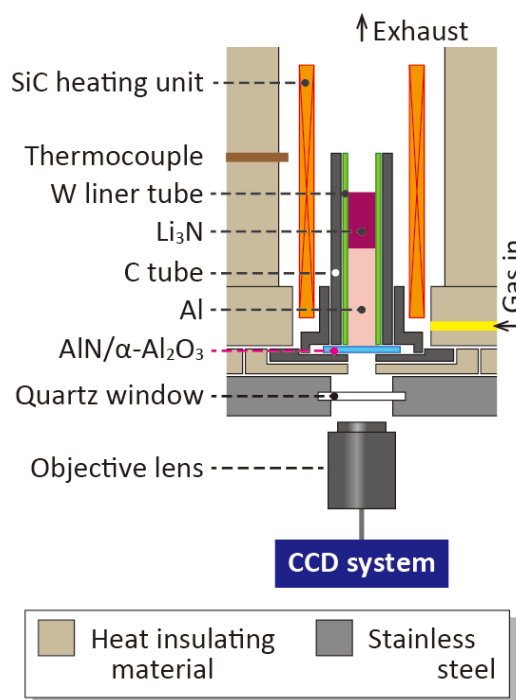


図1 高温固-液界面その場観察装置の概略図。

プレートであり裏面は鏡面研磨処理が施されている。カーボン管にタングステン管を挿入しその中に原料となる $\text{Li}_3\text{N}:\text{Al}=1:4$ の粉末を充填している。原料を融点以上の温度で熱することにより Li-Al-N 溶液と AlN/Sapphire の界面を得る。光学系の構成は次の通りである。(i)長焦点距離対物レンズ(倍率: 4~28 倍、焦点距離: 32 mm、空間分解能: 2 μm)、(ii)高解像度 CCD カメラ(500 万画素、ペルチェ冷却: 室温-20 $^{\circ}\text{C}$)。 (i)、(ii)を合わせた実効的な倍率は約 1000 倍になる。原料坩堝は SiC ヒーターによる抵抗加熱により昇温し、固-液界面の 10 cm 直上の温度を R 熱電対によりモニターしている。3SG による AlN 成長時は純度 6N の N_2 ガスを炉内に流している。

4. 研究成果

図 1 に示すように、 AlN/Sapphire テンプレートの上に Al 粉末、その上に Li_3N 粉末を配置している。昇温前は図 2 に示すように AlN/Sapphire テンプレートを通して Al 粉末が観察される。成長炉を 15 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で昇温したところ熱電対の指示温度が 700 $^{\circ}\text{C}$ になった時に Al 粉末の融解が観察された(図 2 (b)参照)。 Al の融点が 660 $^{\circ}\text{C}$ であり、熱電対の测温位置が固-液界面から 10 cm 直上であることを考えると炉内鉛直方向に約 4 $^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ の温度勾配が生じていることがわかる。 Al 粉末の融解後、1350 $^{\circ}\text{C}$ まで昇温した。昇温後 19 分までは光学像に顕著な変化は見られず、19 分経過した後から 2 段階の成長様式で成長が進行していることが明らかとなった。[Process I] 微結晶の凝集体が形成されその領域(凝集体の体積)が基板面に沿って 2

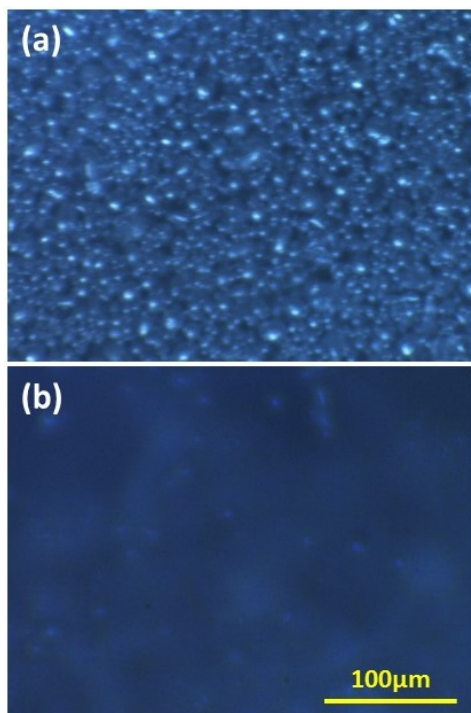


図 2 Al 粉末の光学写真。(a)成長開始前、(b)融解後。

次的に膨張する。[Process II] 微結晶の凝集体を覆うようにマクロステップフローによる成長が進行する(図 3 参照)。ただし、ここでは単結晶ではなく多結晶が成長した。[Process I] は昇温後 19 min から、[Process II] は昇温後 23 min から開始する。成長開始までのタイムラグは Al 原料の上に配置された Li_3N 原料から N が移動(対流および拡散)して固-液界面に到達するまでに時間を要することによる。また、窒素原料からの N 供給量が少ない(Al-N の過飽和度が低い)状況下では[Process I] に見られる微結晶の形成が起こり、過飽和度が高くなってくると[Process II] のようなマクロステップフロー

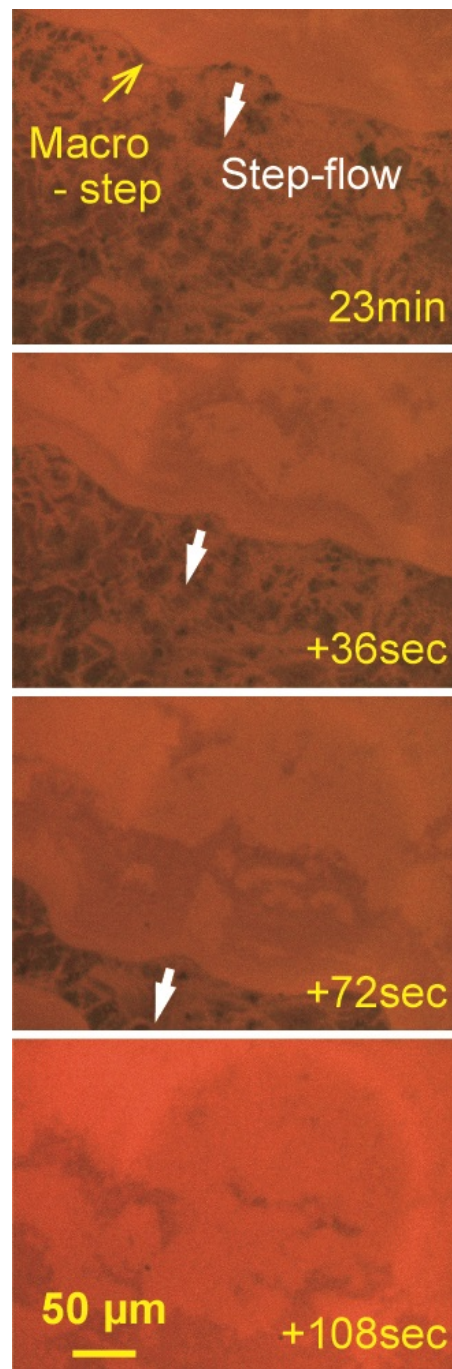


図 3 1350 $^{\circ}\text{C}$ まで昇温した後の固-液界面形状のリアルタイム変化。

による成長が進行すると考えられる。本実験の成長条件では結果として多結晶が形成されたが、高温における固-液界面形状のその場観察に成功した。ここで開発したその場観察装置は、溶液成長における初期成長様式を観察・制御し（成長条件を最適化し）結晶の高品質化を行うための有用な装置となり得ることが示された。

<引用文献>

① Y. Kangawa, R. Toki, T. Yayama, B. M. Epelbaum, K. Kakimoto, Appl. Phys. Express 4, 095501, 2011.

5. 主な発表論文等
〔雑誌論文〕(計3件)

① Y. Kangawa, H. Suetsugu, M. Knetzger, E. Meissner, K. Hazu, S. F. Chichibu, T. Kajiwara, S. Tanaka, Y. Iwasaki, K. Kakimoto, Structural and optical properties of AlN grown by solid source solution growth method, 査読有, Jpn. J. Appl. Phys. 54, 085501, 2015.

<http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.085501>

② Y. Kangawa, A. Kusaba, H. Sumiyoshi, H. Miyake, M. Boćkowski, K. Kakimoto, Real-time observation system development for high-temperature liquid/solid interfaces and its application to solid-source solution growth of AlN, 査読有, Appl. Phys. Express 8, 065601, 2015.

<http://dx.doi.org/10.7567/APEX.8.065601>

③ 寒川義裕, 三宅秀人, Michał Boćkowski, 柿本浩一, AlN 溶液成長における固-液界面その場観察装置の開発, 査読有, 日本結晶成長学会誌, 42, 232, 2015.

〔学会発表〕(計2件)

① Y. Kangawa, H. Miyake, M. Bockowski, K. Kakimoto, Development of in-situ observation system for high-temperature liquid/solid interfaces: application to solid-source solution growth of AlN, Fifth European Conference on Crystal Growth (ECCG-5), 2015. 09. 10, Bologna (Italy).

② Y. Kangawa, H. Miyake, M. Bockowski, K. Kakimoto, Development of in situ observation system for liquid/solid interface during solution growth of AlN, Workshop on Ultra-Precision Processing for Wide Bandgap Semiconductors (WUPP2015), 2015. 08. 20, ヒルトン福岡シーホーク (福岡市) 【招待講演】.

③ H. Sumiyoshi, Y. Kangawa, S. F. Chichibu, M. Knetzger, E. Meissner, Y. Iwasaki, K. Kakimoto, CL studies of AlN/AlN(0001) grown by solid source solution growth

method, International Workshop on Nitride Semiconductors 2014 (IWN2014), 2014. 08. 26, Wroclaw (Poland).

④ Y. Kangawa, S. Nagata, K. Kakimoto, Microstructure of AlN/AlN(0001) grown by solid-source solution growth (3SG) method, 8th International Workshop on Bulk Nitride Semiconductors (IWBNS-VIII), 2013. 10. 01, Kloster Seeon (Germany). 【招待講演】

⑤ Y. Kangawa, S. Nagata, B. M. Epelbaum, K. Kakimoto, Dislocation propagation behavior in AlN grown by solid-source solution growth (3SG) method, JSAP-MRS Joint Symposia, 2013. 09. 18, 同志社大学 (京都). 【招待講演】

⑥ Y. Kangawa, S. Nagata, B. M. Epelbaum, K. Kakimoto, Influence of growth orientation on microstructure of AlN grown by solid-source solution growth (3SG) method, 17th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-17), 2013. 08. 14, Warsaw (Poland).

〔図書〕(計1件)

① 寒川義裕, 第3編, 第3章; 固体ソース溶液成長法~AlN 単結晶成膜を事例として~, (株)NTS, ポストシリコン半導体 ナノ成膜ダイナミクスと基板・界面効果-, pp. 379-390, 2013. ISBN 978-4-86469-059-1

6. 研究組織

(1)研究代表者

寒川 義裕 (KANGAWA, Yoshihiro)
九州大学・応用力学研究所・准教授
研究者番号: 90327320

(4)研究協力者

ボコウスキ ミハエル (BOĆKOWSKI, Michał)
ポーランド科学アカデミー・高圧物理学研究所・教授

マイスナー エルケ (MEISSNER, Elke)
フラウンホーファー研究機構・集積システム・デバイス技術研究所・上席研究員