

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 2 日現在

機関番号：15501

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2011～2012

課題番号：23860033

研究課題名（和文）ハイドライド気相成長法による低転位非極性面 GaN 基板の作製技術の開発

研究課題名（英文）Development of low defect density semipolar GaN substrates by hydride vapor phase epitaxy

研究代表者

山根 啓輔 (YAMANE KEISUKE)

山口大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：80610815

研究成果の概要（和文）：ハイドライド気相成長法を用いて、高効率発光素子材料として期待される非極性{10-11}面、{11-22}および{20-21}面 GaN 基板の作製を行った。基板の作製には我々の独自技術であるサファイア加工基板上結晶成長技術を用いた。{10-11}面 GaN では厚膜化に伴い、欠陥密度が急激に減少することが明らかになった。サファイア加工基板上と従来サファイア基板上において、厚膜成長した際の自発分離機構を明らかにした。最終的には発光ダイオードを試作し、我々が作製した GaN 基板がデバイスレベルで利用可能であることを示した。

研究成果の概要（英文）：We fabricated semipolar {10-11}, {11-22} and {20-21} GaN substrates, which are expected to be possible candidates for high performance devices. We used patterned sapphire substrates (PSSs) as substrates for the hydride vapor phase epitaxy growth. It is revealed that the defect density of {10-11} GaN drastically decreased with increasing the thickness. We clarified the difference of natural separation mechanism between on conventional sapphire substrates and PSSs. Finally, it is shown by a fabrication of green LEDs that our GaN substrates can be used for device applications.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|---------|-----------|---------|-----------|
| 2011 年度 | 1,300,000 | 390,000 | 1,690,000 |
| 2012 年度 | 1,200,000 | 360,000 | 1,560,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 2,500,000 | 750,000 | 3,250,000 |

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：ハイドライド気相成長、窒化ガリウム基板、非極性面

1. 研究開始当初の背景

| 現在、世界の総消費電力の 20%が蛍光灯を

主流とした照明に使用されており、高効率白色 LED への期待は高い。高効率白色 LED の新規基板材料として窒化物半導体 (GaN) 基板が注目されている。しかしながら、既存の手法で作製される GaN 基板が極めて高価であることから、民生用照明への普及には至っていない。これまでは、GaN の格子間隔に近い基板材料がなかったため、発生した欠陥の伝搬を如何に回避するかという技術開発が先行している。ただし、結晶工学の原点に立ち返れば、III 族窒化物半導体デバイスにおいても、高効率・長寿命化に結晶欠陥の抑制は将来的に無視することのできない最重要課題であることは明白である。そこでは、大面積かつ無欠陥 GaN 基板の実現が本質的な解決方法と考えられる。

本研究が着目するのは、非極性面 GaN 基板である。発光特性の観点から非極性面を採用することは極めて有効であることはすでに明らかにされた。申請者グループでは、サファイア加工基板を用いて有機金属気相成長 (MOVPE) 法によりフラットな非極性面 GaN 薄膜を形成する技術を有している。本手法の特徴を図 1 に示す。この方法は、安価なサファイア基板に一回の成長で非極性面 GaN 基板を作製できる。また、得られる結晶方位の選択肢が多く、既存のサファイアの基板サイズ (~6inch) の結晶面を得ることができる。以上の観点から、サファイア加工基板上の GaN の結晶成長技術が、大面積かつ無欠陥 GaN 基板を実現する方法として期待される。


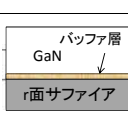
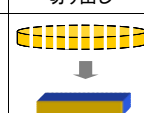
| | 加工基板上 選択成長 | ダイレクト成長 | バルク結晶から 切り出し |
|------------|--|--|---|
| |  サファイア加工基板 |  バッファ層 GaN r面サファイア |  |
| 基板 | サファイア, Si | 異種基板 | c面 GaN基板 |
| コスト | ◎ | ◎ (基板によっては×) | × |
| 面方位 選択性 | ◎ | △ a,m,(11-22)など 基板による | ◎ 切り出すので 方位は任意 |
| サイズ | ◎ | ○ | × |
| 結晶品質 | 本研究課題 | × | ◎ |

図 1 加工基板上選択成長の有用性

2. 研究の目的

本研究は、III 族窒化物半導体を用いたあらゆる光・電子デバイスに関わる最重要かつ未解決の「無欠陥 (転位) GaN 基板実現」という課題の中で非極性面 GaN 薄膜の欠陥抑制技術を構築することを目的とする。そこでは、申請者グループの独自技術であるサファイア加工基板上の非極性 GaN 薄膜の成長技術を発展させ、新たにハイドライド気相成長

(HVPE) 法を導入する。低転位 (10^6 cm^{-2} 台) 非極性面 GaN 基板の作製を行い、発光ダイオードの試作まで展開する。

3. 研究の方法

非極性面 GaN 自立基板の作製には、図 2 に示す工程を用いる。

- (1) サファイア加工基板上にフォトリソグラフィ・エッチングにより溝加工を施す。凹凸パターンは角度・深さなどの精密な制御は、本学発ベンチャー企業 YOSL と連携して進める。
- (2) サファイア加工基板上に MOVPE 法により非極性面 GaN 薄膜を約 $4 \mu\text{m}$ 成長する。
- (3) 高速成長が可能な HVPE 法により、約 $500 \mu\text{m}$ の基板用 GaN 厚膜を成長する。
- (4) HVPE 成長後基板温度を下げる工程で自発分離が生じ、非極性面 GaN 自立基板が得られる。このとき、必要に応じて表面を化学機械研磨し、原子レベルで平坦な表面を得る。
- (5) 実際に発光ダイオードを試作し、非極性面 GaN 自立基板の有効性を検証する。

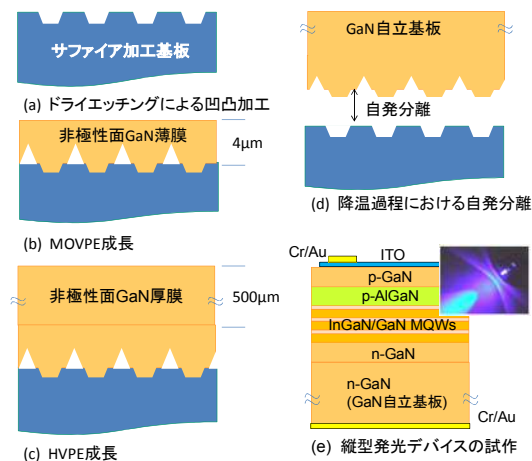


図 2 非極性面 GaN 自立基板の作製方法

4. 研究成果

非極性面 {10-11}, {11-22}, {20-21} GaN の HVPE 成長を行った。図 3 に各面方位についてカソードルミネッセンス (CL) 像をまとめた。MOVPE 成長した各非極性面 GaN 層では、転位がストライプ状に密集している。これは、サファイア加工基板のストライプ側壁から選択成長する際に発生する転位が c 面内を伝搬し表面に達しているためと考えられる。15 分の HVPE 成長後には、それらの転位が徐々に分散し、6 時間成長後にはさらに均一に分散している。なお非極性面では、ヒロックと呼ばれる異常成長部の発生により転位密度のばらつきが大きい。欠陥密度の典型値に着目すると、{10-11} 面 GaN では、数十 μm 程度

までは転位の減少率は小さいが、その後劇的に減少する。これは、c 面で得られている転位の減少率と同等以上であり、{10-11}面 GaN の HVPE 成長が低転位密度化に効果的であることを示唆している。

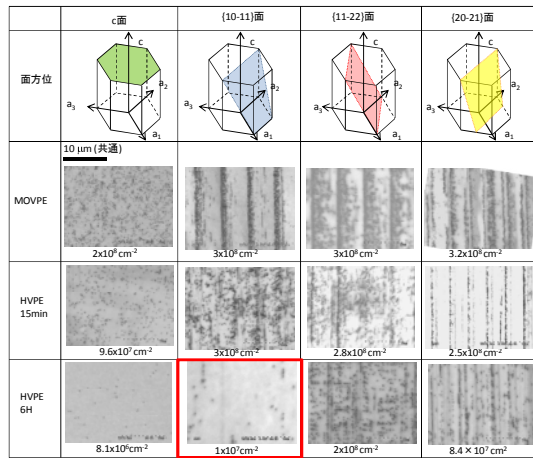


図3 各面方位に成長した GaN の CL 像

また、すべての試料において、数 100 μm 以上の成長においてサファイア加工基板と GaN 層の界面において自発分離の兆候が見られた。一例として図4に分離した{11-22}GaNの分離面の写真を示す。この結果は、GaN 層中で分離する c 面の場合とは明らかに異なる。加工基板においては成長層との接触面積が最も小さい界面で分離すると考えられ、成長したすべての GaN 層を基板として用いることができる。本研究で実証した加工基板を用いた非極性面 GaN の自発分離は、これまで報告例がなく、非極性面 GaN 基板の作製に向け、重要な知見が得られたといえる。

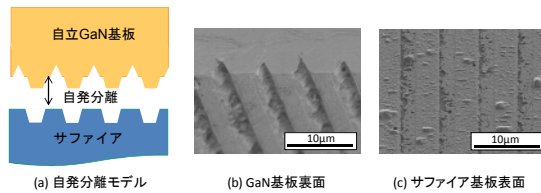


図4 サファイア加工基板上 GaN の分離

作製した GaN 基板表面には多数の異常成長部がみられたため、成長条件の改善を行った。図2(2)の工程の後、幅 2 μm の SiO₂ ストライプマスクを表面に形成し、HVPE 成長を行った。異常成長部の核となる部分を SiO₂ ストライプマスクによって止めることにより、基板全面に渡って平坦な GaN 層を得ることに成功した。このうち{20-21}面、{11-22}面 GaN については研磨を行った。図5に最適化前後および研磨後の基板写真を示す。

ここでは、近年高効率デバイスの面方位として注目されている{20-21}面についてデバ

イス化を検討した。なお、研磨後の{20-21}面 GaN の表面荒さ指数は 0.2 nm であり、原子レベルで平坦な表面が実現できている。研磨された{20-21}GaN 基板を用いて試作した LED の電流電圧特性を図6に示す。LED の特性の典型値として、駆動電圧 V=4.2V (20 mA 時)、理想因子 n=6.5、直列抵抗 R_s=30 Ω を得た。発光波長は面内で 450~500 nm の範囲であった。

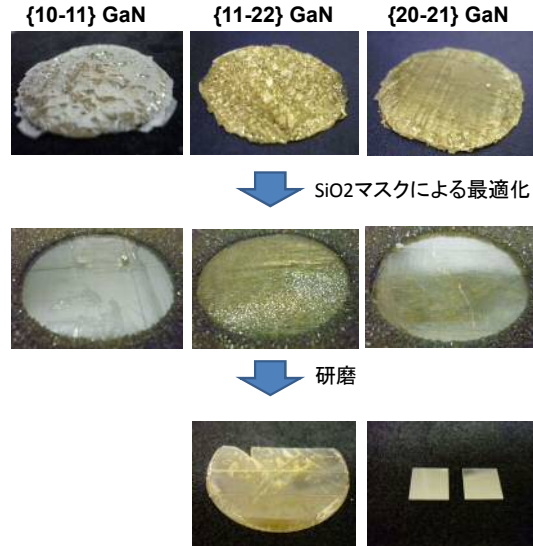


図5 最適化前後および研磨後の基板写真

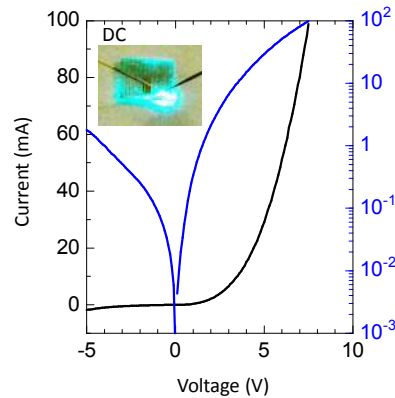


図6 {20-21}GaN 基板を用いて試作した LED の電流電圧特性。挿入図は発光の様子。

結論として、サファイア加工基板を用いて大面積低転位 GaN 基板の作製技術を構築することができた。転位密度は、{10-11}面において典型値 1x10⁷ cm⁻²、さらに最も低い所では 7x10⁶ cm⁻² であり、本研究目的で掲げた目標を達成した。また、本手法で作製した GaN 基板がデバイスレベルで利用可能であることを実証することができた。

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 5 件)

- ① K. Yamane, N. Okada, H. Furuya, K. Tadatomo, “Semipolar GaN growth on patterned sapphire substrates by hydride vapor phase epitaxy”, Proc. SPIE 8625 (2013) 862503-1. (7 pages)
 - ② K. Yamane, M. Ueno, K. Uchida, H. Furuya, N. Okada, K. Tadatomo, “Reduction in Dislocation Density of Semipolar GaN Layers on Patterned Sapphire Substrates by Hydride Vapor Phase Epitaxy”, Applied Physics Express 5 (2012) 095503. (3 pages)
 - ③ K. Yamane, M. Ueno, H. Furuya, N. Okada, K. Tadatomo, “Successful natural stress-induced separation of hydride vapor phase epitaxy-grown GaN layers on sapphire substrates”, Journal of Crystal Growth 358 (2012) 1. (4 pages)
- [学会発表] (国際会議 7 件, 国内会議 15 件 計 5 件)
- ① K. Yamane, M. Ueno, K. Uchida, H. Furuya, N. Okada, K. Tadatomo “Hydride Vapor Phase Epitaxy growth of Semipolar GaN on Patterned Sapphire Substrates” International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, Japan, Oct. 14-19, 2012, MoP-GR-49 (Poster presentation).
 - ② H. Furuya, K. Yamane, N. Okada, K. Tadatomo “Fabrication of large freestanding semipolar {11-22} GaN films using r-plane patterned sapphire substrates” International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, Japan, Oct. 14-19, 2012, TuP-GR-52
 - ③ K. Yamane, M. Ueno, H. Furuya, N. Okada, K. Tadatomo “Behavior of Hydride Vapor Phase Epitaxy-Grown GaN Layers on Sapphire Substrates in Successful Natural Stress-Induced Separation” 39th International Symposium on Compound Semiconductors, University of California, California, USA, Aug. 26-30, 2012, MoP10 (Poster presentation)

[産業財産権]

○出願状況 (計 6 件)

- ①名称:半導体装置の製造方法及びⅢ-Ⅳ族半導体の結晶成長方法
発明者: 山根啓輔, 只友一行, 岡田成仁
権利者: 山口大学
種類: 特許
番号: 特願 2013-47175
出願年月日: 2013/03/8
国内外の別: 国内
- ②名称: 自立基板の製造方法
発明者: 古家大士, 東正信, 只友一行, 岡田成仁, 山根啓輔.
権利者: 山口大学
種類: 特許
番号: PCT/JP2013/001111
出願年月日: 2013/02/26
国内外の別: 国外
- ③名称: 自立基板の製造方法
発明者: 古家大士, 東正信, 只友一行, 岡田成仁, 山根啓輔.
権利者: 山口大学・株式会社トクヤマ
種類: 特許
番号: 特願 2012-039485
出願年月日: 2012/02/27
国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ:

<http://device.eee.yamaguchi-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山根 啓輔 (YAMANE KEISUKE)

山口大学大学院理工学研究科・助教

研究者番号: 80610815

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: