

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 5 日現在

機関番号：13904

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26790044

研究課題名(和文) 高原料利用効率ハイドライド気相成長法による高品質大面積非極性面Ga_N基板の開発

研究課題名(英文) Development of high quality semipolar-GaN substrates by HVPE with improved source-utilization efficiency

研究代表者

山根 啓輔 (YAMANE, KEISUKE)

豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：80610815

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：高効率白色LEDの基板材料として、高品質Ga_Nウエハの開発を行った。系統的に様々な面方位のGa_N基板の作製を行い、{20-2-1}面において成長速度が速く(原料利用効率が高く)、低い転位密度が得られることを見出した。さらに、基板の反りの現象に関して、そのメカニズムを実験および理論の両側面から解明し、回避策を示した。得られた結果に基づき、反りを回避するための成長手法も開発した。また、欠陥密度の低減という課題については、成長初期にピラミッド状に成長させるファセット成長と表面を平坦化させる埋め込み成長とを繰り返すことで最終的に転位密度10E5cm⁻²のGa_N基板の作製手法を開発した。

研究成果の概要(英文)：We developed high-quality Ga_N wafers for efficient white LEDs. From systematic investigations for various semipolar planes of Ga_N, it was revealed that {20-2-1} plane indicated high growth rate (efficient utilization efficiency of Ga source) and low dislocation density. In addition, mechanism of wafer bow was clarified from both experimental and theoretical aspects. Based on obtained results, a new growth method to suppress the wafer bow is also developed. For the purpose of reduction of crystalline defects, the combination of facet growth and surface flattening were effective. At the final stage of the project, we achieved the overall dislocation density of 10E5 cm⁻².

研究分野：結晶工学 半導体工学

キーワード：Ga_N基板 結晶欠陥 非極性面 反り

1. 研究開始当初の背景

現在、世界の総消費エネルギー量の約 20% を占める照明分野において、高効率白色 LED への期待は高い。屋内照明に適した白色光は、紫外 LED+青・緑・赤色蛍光体の組み合わせが必要であり、その効率は、50 lm/W と蛍光灯の約半分である。この問題を本質的に解決するためには、高効率の緑/黄色 LED を GaN 系材料を用いて実現する必要がある。現在実用化されている LED では、結晶成長が容易な c 面 GaN が母材として用いられており、緑色領域(550 nm)以上の効率が極めて低い。これは発光層の c 軸方向に発生する強いピエゾ電界によって、注入したキャリアが空間的に分離することが本質的な問題と指摘されている。この問題に対し、緑色領域の高効率化を達成する手段として、非極性面と呼ばれる特殊な面方位を適用することが有効であると言われている。

2. 研究の目的

”次世代照明用 高効率白色 LED の研究開発”を目的とする全体構想の中で、非極性面 GaN に注目し、高原料利用効率かつ低欠陥化可能な結晶成長法を見だし、大面積非極性面 GaN 基板を実現することを研究目的とする。

3. 研究の方法

大面積非極性面 GaN 基板は以下の工程により作製する。

- (a) サファイア基板の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。凹凸パターンの角度・深さなどの精密な制御は、本学発ベンチャー企業山口光半導体研究所(YOSL)と連携して進める。
- (b) MOVPE法により非極性面GaNを約4 μm成長する。その後、界面から発生する転位を止めるためのSiO₂マスクを施す。GaN/サファイア界面から発生する欠陥はc面に沿って伝搬し、特定の領域に集中することがわかっている。そこで、図6(b)に示すように、

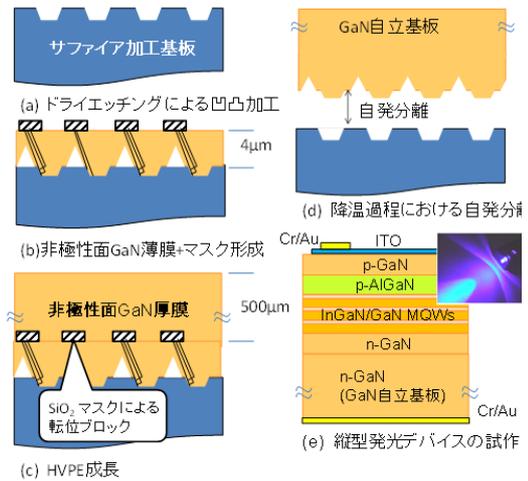


図1 大面積非極性面 GaN 基板の作製手順

転位の密集した領域にSiO₂マスクを施すことで、転位の伝搬を阻止する。面方位に関しては、これまで転位密度を最も低くできた{10-11}面、デバイス作製時Inの取り込みに有利とされる{20-21}面を中心に実験を行う。

- (c)高速成長が可能なHVPE法により、約500 μmの基板用GaN厚膜を成長する。
- (d)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。

4. 研究成果

高効率白色LEDの基板材料として、高品質 GaN ウエハの開発を行った。系統的に様々な面方位の GaN 基板の作製を行い、{20-2-1}面において成長速度が速く(原料利用効率が

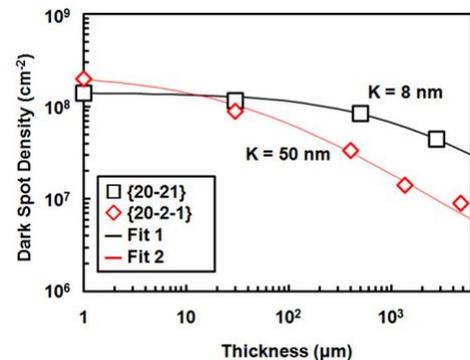


図2 {20-21}GaN と{20-2-1}GaN の転位密度の成長膜厚依存性.

高く、低い転位密度が得られることを見出した。(図2, 発表論文[2])

さらに、基板の反りの現象に関して、そのメカニズムを実験および理論の両側面から解明し、回避策を示した。従来は、GaN 基板の裏面と表面で貫通転位密度に差があることからこれが反りの起源と予想されていた。本研究では我々が作製した基板を基に、転位の定量的な評価を含めて、反りのメカニズムの解明を行った。一定の反りをもつ自立 GaN 基板の断面カソードルミネッセンス像による転位の解析から、GaN 層の面内に伝搬する転位が存在することを発見した。これらは成長方向に渡って均一な密度で観察され、表面にぬける貫通転位とは性質が異なる事があきらかになった。また、透過型電子顕微鏡による解析から、面内に伝搬する転位は、半原子面を下方向に持つ転位であることが明らかになった。これらの結果をもとに反りを形成するモデルを提唱した(図3, 発表論文[1])

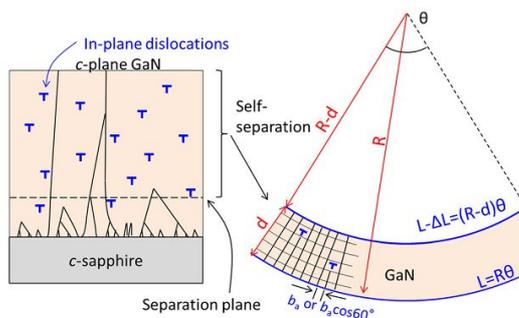


図3 GaN 基板の反りのモデル

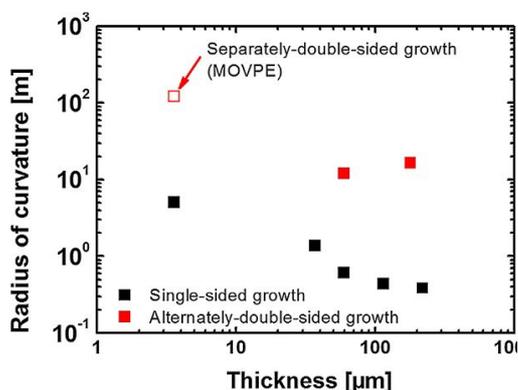


図4 両面成長による反りの低減

得られた結果に基づき、反りを回避するための成長手法も開発した(発表論文[3])。その成果の一例を図4に示す。専用治具を開発し、サファイア基板の両面に GaN を成長した。比較として、従来通り、サファイアの片面のみ成長した試料のデータも示す。両面成長では、曲率半径 14m と大きく反りが改善されている。

また、欠陥密度の低減という課題については、成長初期にピラミッド状に成長させるファセット成長と表面を平坦化させる埋め込み成長とを繰り返すことで最終的に転位密度 10^5 cm^{-2} 台の GaN 基板の作製手法を開発した(論文執筆中)。

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6件)

- [1] K. Yamane, T. Matsubara, T. Yamamoto, N. Okada, A. Wakahara, K. Tadatomo, "Origin of lattice bowing of freestanding GaN substrates grown by HVPE", Journal of Applied Physics, **119** (2016) pp.045707-045711
- [2] Y. Hashimoto, K. Yamane, N. Okada, K. Tadatomo, "Growth of Semipolar {20-21} GaN and {20-2-1} GaN for GaN substrate" Phys. Status Solidi (b) **253** (2016) pp.36-44
- [3] N. Okada, H. Ihara, K. Yamane, K. Tadatomo, "Alternately double-sided growth of low-curvature GaN templates on sapphire substrates using hydride vapor phase epitaxy", Physica Status Solidi (b) **253** (2016) 819-823.
- [4] T. Uchiyama, S. Takeuchi, S. Kamada, T. Arauchi, Y. Hashimoto, K. Yamane, N. Okada, Y. Imai, S. Kimura, K. Tadatomo, A. Sakai, "Positional dependence of defect distribution in semipolar (20-21) HVPE-GaN films grown on (22-43) patterned sapphire substrates" Japanese Journal of Applied Physics, **55** (2016) pp.05FA07.1-7.
- [5] S. Takeuchi, T. Uchiyama, T. Arauchi, Y. Nakamura, K. Yamane, N. Okada, K. Tadatomo, A. Sakai, "Thickness and Growth Condition Dependence of Crystallinity in Semipolar (20-21) GaN Films Grown on (22-43) Patterned Sapphire Substrate", Phys. Status Solidi (b) **252**

(2015) pp.1142-1146.

- [6] T. Arauchi, S. Takeuchi, Y. Nakamura, **K. Yamane**, N. Okada, Y. Imai, S. Kimura, K. Tadamoto, A. Sakai, "Crystalline property analysis of semipolar (20-21) GaN on (22-43) patterned sapphire substrate by X-ray microdiffraction", Phys. Status Solidi (b) 252 (2015) pp.1149-1154.

〔学会発表〕(計 25 件)

- [1] **K. Yamane**, T. Yamamoto, T. Inagaki, N. Okada, K. Tadamoto, "Origin of Lattice Bowing of Freestanding GaN Substrates", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN 2014), MOGO7, WROCLAW, Poland, Aug 24-29, 2014.
- [2] K. Nakao, T. Inagaki, T. Egami, Y. Okamura, **K. Yamane**, N. Okada, K. Tadamoto, "Impact of Structural Defects in Semipolar {11-22} GaN on Emission Intensity of Light-Emitting Diode", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN 2014), TuOP56, WROCLAW, Poland, Aug 24-29, 2014.
- [3] T. Uchiyama, S. Takeuchi, T. Arauchi, Y. Nakamura, **K. Yamane**, N. Okada, K. Tadamoto, A. Sakai, "Thickness and Growth Condition Dependence of Crystallinity in Semipolar (20-21) GaN Films Grown on (22-43) Patterned Sapphire Substrate", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN 2014), WeGP21, WROCLAW, Poland, Aug 24-29, 2014.
- [4] T. Arauchi, S. Takeuchi, Y. Nakamura, Y. Imai, **K. Yamane**, N. Okada, K. Tadamoto, A. Sakai, "Crystalline Property Analysis of Semipolar (20-21) GaN on (22-43) Patterned Sapphire Substrate by X-ray Microdiffraction", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN 2014), WeBP21, WROCLAW, Poland, Aug 24-29, 2014.
- [5] K. Tadamoto, N. Okada, **K. Yamane**, H. Furuya, Y. Hashimoto, "Fabrication of semipolar freestanding GaN substrates", Summer School of PolarCoN, Bensheim Germany, Sept. 25, 2014.
- [6] N. Okada, T. Yamamoto, H. Ihara, **K. Yamane**, K. Tadamoto, "Alternately-double-sided growth of low-curvature GaN template on sapphire substrate by hydride vapor phase epitaxy", 11th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-11), TuGP18, Beijing, China. Aug. 30- Sept. 4, 2015.
- [7] T. Uchiyama, S. Takeuchi, S. Kamada, T. Arauchi, Y. Hashimoto, **K. Yamane**, N. Okada, Y. Imai, S. Kimura, K. Tadamoto, A. Sakai, "Positional dependence of

defect distribution in semipolar (20-21) HVPE-GaN films grown on (22-43) patterned sapphire substrates", The 6th International Symposium on Growth of III-Nitrides, We-B31 Act City Hamamatsu, Hamamatsu, Japan, Nov. 8-13, 2015.

- [8] **K. Yamane**, T. Matsubara, N. Okada, A. Wakahara, K. Tadamoto, "Structural origin of lattice bowing of freestanding GaN substrates grown by hydride vapor phase epitaxy" European Materials Research Society 2016 Fall Meeting (E-MRS 2016 Fall), Warsaw University of Technology, Warsaw, Poland, Sep. 19-22th, 2016.
- [9] S. Goubara, K. Yukizane, N. Arita, T. Matsubara, **K. Yamane**, R. Inomoto, N. Okada, K. Tadamoto, "Bulk GaN substrate with overall dislocation density in the order of 104-105/cm² by Hydride Vapor Phase Epitaxy" International Workshop on Nitride Semiconductors, Orlando, Florida, USA, Oct. 2-7th, 2016.
- [10] N. Okada, **K. Yamane**, T. Matsubara, S. Goubara, H. Ihara, K. Yukizane, T. Ezaki, S. Fujimoto, R. Inomoto, K. Tadamoto, "HVPE-grown GaN substrate with overall low dislocation density and relation between lattice bowing and defects" 12th International Conference on Nitride Semiconductores, Strasbourg, France Jul. 24-28th, 2017.
- [11] 只友一行, **山根啓輔**, 岡田成仁, 稲垣卓志, 中尾洗太:「サファイア加工基板を用いた非極性面 GaN の結晶成長とデバイス応用」第2回 ワイドバンドギャップ半導体デバイスに関わる超精密加工プロセス研究分科会講演会, 10:15-10:30 (2014.9.10), 東京電機大学, 東京.
- [12] 橋本健宏, 稲垣卓志, 中尾洗太, **山根啓輔**, 岡田成仁, 只友一行: 「HVPE 成長した半極性{20-21}面と{20-2-1}面 GaN の結晶性比較」2014年第75回応用物理学会秋季学術講演会, 17p-C5-6 (2014.9.17), 北海道大学, 北海道.
- [13] 荒内琢士, 竹内正太郎, 橋本健宏, 中村芳明, 今井康彦, **山根啓輔**, 岡田成仁, 木村滋, 只友一行, 酒井朗: 「周期溝加工(22-43)サファイア基板上半極性面(20-21)GaNの微視的結晶構造解析」2014年第75回応用物理学会秋季学術講演会, 17p-C5-2 (2014.9.17), 北海道大学, 北海道.
- [14] 内山星郎, 竹内正太郎, 荒内琢士, 橋本健宏, 中村芳明, **山根啓輔**, 岡田成仁, 只友一行, 酒井朗: 「X線回折法による

- 半極性(20-21)GaN 膜の膜厚・成長条件依存性評価」2014 年第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 17p-C5-3 (2014.9.17), 北海道大学, 北海道.
- [15] 只友一行, 岡田成仁, **山根啓輔**: 「半極性面 GaN 基板の HVPE 成長と LED 応用」第 55 回真空に関する連合講演会, 20Aa-10 (2014.11.18-20), 大阪府立大学, 大阪. 招待講演
- [16] 河原慎, 山本健志, 稲垣卓志, 岡田成仁, 只友一行, **山根啓輔**: 「ハイドライド気相成長における SiO₂ マスクの品質が GaN の選択横方向成長に及ぼす影響」2015 年第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 11p-B1-4 (2015.3.11), 東海大学, 神奈川.
- [17] 稲垣卓志, 岡村泰仁, **山根啓輔**, 岡田成仁, 只友一行: 「ハイドライド気相成長法を用いて堆積させた SiN_x 中間層上への厚膜 GaN 成長」2015 年第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 11p-B1-5 (2015.3.11), 東海大学, 神奈川.
- [18] 山本健志, 井原洋, **山根啓輔**, 岡田成仁, 只友一行: 「ハイドライド気相成長法を用いた両面成長による GaN テンプレートの反り低減」2015 年第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 11p-B1-6 (2015.3.11), 東海大学, 神奈川.
- [19] 只友一行, 岡田成仁, **山根啓輔**, 古家大士, 橋本健宏: 「半極性自立 GaN 基板の作製」ナノ構造・エピタキシャル成長分科会 第 7 回窒化物半導体結晶成長講演会, FR07 (2015.5.7), 東北大学, 宮城. (招待講演)
- [20] 只友一行, 岡田成仁, **山根啓輔**: 「HVPE 法による GaN 非極性基板作製」ワイドギャップ半導体光・電子デバイス第 162 委員会第 94 回研究会, 講演番号 4 (2015.7.24), 主婦会館プラザエフ, 東京. (招待講演)
- [21] 河原慎, 井原洋, 傳寶裕晶, 岡田成仁, **山根啓輔**, 只友一行: 「ハイドライド気相成長法における GaN ファセット制御」第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 13p-1D-6 (2015.9.13-18), 名古屋国際会議場, 愛知県名古屋市.
- [22] 板垣憲広, 河原慎, **山根啓輔**, 岡田成仁, 井本良, 本山慎一, 小林貴之, 只友一行: 「PECVD 法により成膜した SiO₂ マスクの品質が HVPE 成長における GaN の選択成長に与える影響」第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 13p-1D-7 (2015.9.13-18), 名古屋国際会議場, 愛

知県名古屋市.

- [23] 内山星郎, 竹内正太郎, 荒内琢士, 橋本健宏, **山根啓輔**, 岡田成仁, 今井康彦, 木村滋, 只友一行, 酒井朗: 「X 線マイクロ回折法による半極性面(20-21)GaN 厚膜の欠陥分布評価」第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 13p-1D-8 (2015.9.13-18), 名古屋国際会議場, 愛知県名古屋市
- [24] 河原慎, 行實孝太, 松原徹, 板垣憲広, 岡田成仁, **山根啓輔**, 只友一行: 「ハイドライド気相成長における GaN 選択成長のファセット形状のストライプマスク周期依存性」第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 19a-H121-4, 2016.3.19-22, 東京工業大学, 東京都.
- [25] 傳寶裕晶, 西平貴則, **山根啓輔**, 岡田成仁, 葛原正明, 只友一行: 「ハイドライド気相成長を用いた Fe ドープ GaN の成長」第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 19a-H121-5, 2016.3.19-22, 東京工業大学, 東京都.

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

名称: 半導体基板及びその製造方法、並びにそれに用いる気相成長装置
 発明者: 岡田成仁, 只友一行, **山根啓輔**
 権利者: 山口大学
 種類: 特許
 番号: 特願 2015-026211
 出願年月日: 2015/2/13
 国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山根 啓輔 (YAMANE KEISUKE)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 80610815

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし