

学位論文内容の要旨	
学位論文題目	r面サファイア加工基板を用いた半極性{11-22} GaNの成長に関する研究
氏名	古家 大士
<p>GaN系半導体は直接遷移型で広いバンドギャップを有しており、近紫外から可視光の波長域で動作する発光デバイスとして広く利用されている。1992年に青色発光ダイオード(LED)が開発されて以来、炎、白熱電球、蛍光灯に続く第4世代の光源として、GaNを用いたLEDは急速に普及してきた。しかしながら、LED技術の更なる発展のためには、光の三原色の一つである緑色領域で発光するLEDの高効率化が必須である。緑色以外の光の三原色である赤色、青色領域においてはすでに高い外部量子効率を有するLEDが開発されている。一方、緑色領域においては外部量子効率が20%程度と低い現状である。緑色LEDでは、量子井戸層であるInGaN層のIn組成が高いため、圧電分極効果によって引き起こされる量子閉じ込めシュタルク効果の影響を強く受け、発光効率の低下が生じる。これを解決する手法としては、極性面の{0001}面(c面)とは異なる非極性面上にLEDデバイスを作製する方法がある。</p> <p>しかしながら、サファイア等の異種基板上へ成長した非極性GaNは高い転位密度を有しており、発光効率の向上には適していない。またバルクGaNから切り出すことで高品質の非極性自立GaN基板を作製する方法があるが、大面積の基板が得られないことや、コストの面において課題が残る。</p> <p>そこで本研究では、高品質かつ大面積な非極性GaN基板の作製を目的として、r面サファイア加工基板(r-plane Patterned Sapphire Substrates; r-PSS)を用いた半極性{11-22} GaNの成長に関して検討を実施した。</p> <p>第一に、有機金属気相成長(Metal Organic Vapor Phase Epitaxy; MOVPE)法によるr-PSS上半極性{11-22} GaNの成長において、転位密度の低減を試みた。転位密度低減のための手法として、溝深さの浅いPSSの利用と、転位ブロッキングの2つについて効果を検証した。</p> <p>{11-22} GaNの成長方法として、r-PSSを用いた選択的横方向成長が既に提案されている。しかしながら、得られる{11-22} GaNの貫通転位密度は<math>3 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}</math>と高い。この転位は選択成長領域であるr-PSSのc面近似した側壁とGaN結晶との界面で生じるため、選択成長領域を狭くすることで転位密度の低減が見込まれる。従来<math>1 \mu\text{m}</math>であるr-PSSの溝深さを変化させ、GaNの成長を実施した結果、溝深さ100 nmまでは選択的にGaNが成長することがわかった。また成長温度をコントロールすることで選択成長と結晶核同士の会合を実現し、平坦な{11-22} GaN薄膜を得た。貫通転位密度は溝深さが浅くなるほど低減し、最も小さいものでは<math>1.4 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}</math>と従来品の半分以下の値になり、選択成長領域の面積が転位密度に影響することを証明した。また転位ブロッキングでは、転位を結晶核同士の会合部においてブロックすることにより転位密度の低減を試みた。r-PSSを用いた{11-22} GaNの結晶成長では、成長温度によってr-PSS側壁より成長するGaN結晶の形状が異なることがわかった。そこで成長温度にて結晶形状を制御することにより、成長界面で生じた転位を会合部に伝播させ転位密度の低減を図ったところ、貫通転位密度が<math>0.9 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}</math>と従来の3分の1にまで低減した{11-22} GaN薄膜を得ることに成功した。これより、この手法が転位密度低減に効果的であることが証明された。</p> <p>第二に、ハイドライド気相成長(Hydride Vapor Phase Epitaxy; HVPE)法による{11-22} GaN自立基板の作製について検討を行った。HVPE法は高い結晶成長速度が実現できる成長手法であり、これにより{11-22} GaN厚膜および自立基板の作製を試みた。MOVPEで作製した{11-22} GaNテンプレート上にHVPEにて厚膜GaNを成長したところ、表面には多数のヒロックが発生した。</p>	

またテンプレートと比較して大きく転位密度を低減するには至らず、表面平坦性および結晶性の向上が必要であるとわかった。これを解決する手法として、{11-22} GaN テンプレート上にストライプ形状の SiO<sub>2</sub> 膜を形成する方法を見出した。SiO<sub>2</sub> 膜にて結晶成長方向を横方向へと制御することにより、ヒロックの発生が抑制され平坦な{11-22} GaN 厚膜を得た。また横方向成長は転位同士のループを形成するため転位密度低減に効果的であり、1 cm<sup>2</sup>あたりの貫通転位密度を 10<sup>6</sup> 台と大きく低減することに成功した。この手法により、表面平坦性かつ結晶性に優れた{11-22} GaN 厚膜を得ることが可能となった。また自立基板の作製には GaN 層とサファイア基板とを分離する必要があるが、r-PSS を用いたところ結晶成長時の熱応力にて自発的に GaN 層が分離することがわかった。また分離のしやすさは r-PSS の溝深さに依存し、GaN 層の分離においても溝深さの浅い r-PSS が効果的であることが示された。

以上の検討結果より、高品質かつ大面積の半極性{11-22} GaN 自立基板を作製する方法を見出した。この技術により、より高効率な緑色領域で発光する LED が実現可能になると期待される。

## 【論文審査結果の要旨】

近年、発光ダイオード (light emitting diodes : LED) を使った照明器具が急速に発展・普及し、我々の身近なものになってきた。この LED 照明に使用されている LED チップは窒化ガリウム (GaN) 系の半導体で作製されている。赤色、青色領域の LED の高い外部量子効率に比べて、緑色領域の LED の外部量子効率は 20%程度と低く、LED 技術の更なる発展のためには、光の三原色の一つである緑色領域の LED の高効率化が重要である。緑色領域の LED の低い発光効率は、発光層の InGaN 量子井戸層の In 組成が高いために圧電分極効果による量子閉じ込めシュタルク効果の影響を強く受けているためと言われている。これを解決する方法の一つに、極性面の (0001) 面 (*c* 面) とは異なる非極性 (無極性若しくは半極性) 面 GaN 上に LED を作製する方法がある。しかしながら、サファイア等の異種基板を使った成長では、高転位密度の非極性面 GaN しか得られず、高効率 LED の作製には適していない。また、厚膜成長した *c* 面 GaN から切り出すことで高品質の非極性面自立 GaN 基板を作製する方法があるが、大面積の基板が得られないこと、非常に高価な基板となること等の課題が残る。

このような研究背景の下、本研究では工業的な応用を見据え、高品質かつ大口径の非極性面 GaN 基板の作製を目的として、*r* 面サファイア加工基板 (*r*-plane patterned sapphire substrates : *r*-PSS) の *c* 面近傍側壁からの GaN 成長を用いた非極性 {11-22} GaN の成長に関して異なる三つの方向から検討を行った。

第一は、有機金属気相成長法 (metal organic vapor phase epitaxy ; MOVPE) による *r*-PSS 上の半極性 {11-22} GaN の成長における、発生する転位の低減である。高品質 {11-22} GaN の成長方法として、*r*-PSS の *c* 面近傍側壁からの選択横方向成長法は既に提案されている。しかしながら、成長した {11-22} GaN の貫通転位密度は  $3 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$  と高い。この転位の多くは選択成長領域である 1  $\mu\text{m}$  程度の深さの *r*-PSS の *c* 面近傍側壁と GaN との界面で発生する。したがって、選択成長領域を狭くすることで発生する転位の低減が期待される。従来 1  $\mu\text{m}$  程度である *r*-PSS の溝の深さを変化させて GaN の成長実験を行った結果、深さ 100 nm までは選択的に GaN の結晶核が *c* 面近傍側壁から成長することが確認された。また、成長温度を最適化することで選択成長と GaN の結晶核同士の会合が実現され、平坦な {11-22} GaN 薄膜が得られた。貫通転位密度は溝の深さが浅くなるほど低減し、最も小さいものでは  $1.4 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$  と従来技術で得られる転位密度の半分以下の値になり、選択成長領域の面積が転位密度に影響することを証明した。[第 2 章、関連論文 ①]

第二は、MOVPE による半極性 {11-22} GaN の成長における伝播する転位のブロックである。選択成長領域で発生し、結晶成長とともに *c* 軸方向に伝播する転位を結晶核の会合部においてブロックすることにより転位密度の低減を試みた。*r*-PSS を用いた {11-22} GaN の結晶成長では、成長温度によって *r*-PSS 側壁より成長する GaN 結晶核の形状が変化する。そこで成長温度を制御することにより GaN 結晶の形状を変化させ、GaN の結晶核を隣の結晶核が覆うように会合することで転位の伝播をブロックする成

長条件を見出した。この手法により作製した {11-22} GaN 薄膜の貫通転位密度は  $9 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$  であった。本方法が転位密度の低減に有効であることが証明された。[第3章、関連論文 ③]

第三は、GaN の高速成長が可能な成長方法であるハイドライド気相成長法 (hydride vapor phase epitaxy : HVPE) を使った {11-22} GaN の厚膜成長による転位密度の低減である。一般的に、結晶成長厚みの増加に伴って転位密度は減少する。しかしながら、当初は、MOVPE で作製した {11-22} GaN 薄膜上に HVPE を使って厚膜成長したところ、GaN の表面には多数のヒロックが発生した。また、MOVPE 成長した薄膜 GaN と比較して、大きく転位密度を低減するには至らず、HVPE 成長における表面平坦性および結晶性の改善が新たな課題であることが分かった。これらの課題を解決するために、{11-22} GaN 薄膜上にストライプ形状の  $\text{SiO}_2$  膜を形成し、GaN の再成長を行う ELO 法 (epitaxial lateral over-growth) を検討した。その結果、ELO 法の成長条件を最適化することで、平坦かつ低転位の {11-22} GaN 厚膜が得られることを見出した。この平坦化・低転位化は、ストライプ形状の  $\text{SiO}_2$  膜にて GaN の結晶成長を a 軸方向に横方向成長することによりヒロックの発生因子が効果的に埋め込まれる等、ヒロックの形成が抑制される機構が働くためと考察した。また、選択横方向成長により転位の伝播方向が横方向に曲げられ、転位同士のループが形成される等の機構が働くことにより、貫通転位密度を  $4 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$  まで低減することに成功した (従来法での転位密度  $3 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ )。また、自立 GaN 基板の作製には GaN 層とサファイア基板とを分離する必要があるが、r-PSS を用いたところ結晶成長時の熱応力等により自発的に GaN 層が容易に分離することがわかった。また分離のし易さは r-PSS の溝深さに依存し、GaN 層の分離においても溝深さの浅い r-PSS が効果的であることが示された。最終的には大口径・低転位 {11-22} GaN 自立基板の作製に成功した。[第4章、関連論文 ②]

このように、本研究では大面積かつ高品質の半極性 {11-22} GaN 自立基板の新しい作製法を開発した。高効率緑色 LED の実現に有用な技術となることが期待される。

公聴会における主な質問内容は、① CL (Cathodoluminescence) で観察される暗点と転位の関係、②結晶成長条件と結晶形状の関係、③ヒロックの発生機構と  $\text{SiO}_2$  マスクを使った ELO によるヒロックの発生抑制機構、④研磨工程の必要性、⑤{11-22} 面を研究対象に選択した理由、⑥転位が集中している領域と少ない領域での PL スペクトルの差異、⑦他の転位密度の大幅な低減技術について、⑧転位ブロック法において完全に転位がブロックできない理由など、今回新規に開発した結晶成長法の効果に関する質問が多くあった。いずれの質問に対しても発表者からの確かな回答がなされた。

以上より、本研究は実用性、信頼性、独創性、有効性ともに優れ、博士 (工学) の論文に十分値するものと判断した。