

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

学位論文題目	電子顕微鏡による GaN 層中の欠陥構造に関する研究
氏 名	松原 徹
<p>我が国が抱えるエネルギー問題や、国際社会が直面する環境問題を考えると、再生可能エネルギーとともにキーテクノロジーとなるのが省エネルギー技術であり、電力変換時の損失を大幅に削減できるパワーデバイスが重要となる。従来用いられてきた Si 系パワーデバイスの性能改善は限界に近づいてきており、Si の物性値を上回る GaN や SiC などのワイドギャップ半導体が、高速動作が可能で高電圧省電力で使用できるパワーデバイスとして注目を集めている。</p> <p>GaN 単結晶の成長は GaN と格子整合する基板が存在せず、異種基板上へヘテロエピタキシャル成長する必要があったため、多結晶を含む低品質の結晶しか得ることができなかった。しかし、1986 年にサファイア基板上に低温バッファ層を堆積させることで GaN 単結晶ヘテロエピタキシャル成長に成功した。低温バッファ層により、高品質な GaN 結晶が得られるようになったことで、青色発光ダイオード (Light Emitting Diode ; LED)、緑色 LED が実用化した。現在では照明器具や交通標識が LED に置き換えられつつある。先に述べたように、GaN は高周波デバイスやパワーエレクトロニクスデバイスとして期待されている。しかし、低温バッファ層を用いてもサファイア基板上に完全な GaN 結晶を作製できておらず、貫通転位や積層欠陥に代表される結晶欠陥が残存している。貫通転位は紫外線や緑色 LED の内部量子効率の減少、リーク電流増加、デバイス寿命の低下などデバイス性能に悪影響することが分かってきた。低温バッファ層は高密度の積層欠陥を含むモザイク構造であり、隣接する結晶粒の積層シーケンスの違いに適應するために、ショックレー部分転位とフランク部分転位が高密度に存在する。ショックレー部分転位とフランク部分転位は貫通転位の発生源になるという報告もある。また、GaN 層表面に V 形のピット (V ピット) が形成されることが表面平坦性の悪化や、リーク電流増加といった重要な問題となる。V ピットは貫通転位に起因する他、反転ドメインと関係すると報告されている。以上のように、GaN をより有効にデバイスに応用するためには、これらの結晶欠陥を低減することが重要である。本研究では、貫通転位、積層欠陥、モザイク構造、V ピット、反転ドメインといった結晶欠陥について、電子顕微鏡を用いた原子スケールでの基礎的な評価を行うことで、これら結晶欠陥の発生源や相互関係を明らかにすることを目的とした。</p> <p>第一に、サファイア基板上に成長した GaN 層の成長初期における結晶欠陥に関して、積層欠陥、貫通転位と粒界を含むモザイク構造について調査した。積層欠陥領域を起点とした刃状貫通転位はフランク部分転位を起点として発生し、周囲のウルツ鉱構造に対して変位したウルツ鉱構造を付随していた。貫通転位は積層欠陥領域のような不完全結晶から完全なウルツ鉱構造への移行により生成されると考えられた。一方、成長初期におけるアイランド同士の会合では、モザイク構造のチルトやツイストにより貫通転位が生成すると考えられているが、それらに加えて積層シーケンスの不整合が貫通転位を生成する可能性が示唆された。</p> <p>第二に、ファセット制御選択横方向成長(Epitaxial Lateral Overgrowth; ELO)技術を用いて全面低転位化に成功したハイドライド気相成長(Hydride Vapor Phase Epitaxy; HVPE) GaN 層に関して、斜め研磨した試料を SEM-カソードルミネッセンス(Cathodoluminescence; CL)測定することにより、転位密度の三次元分布とユニークな転位挙動を可視化し、その転位低減機構モデルを提案した。貫通転位と基底面転位密度の三次元分布より、貫通転位は c 面成長領域において c 軸方向に向かって伝搬し、c 面成長領域とファセット成長領域の界面で曲がり、ファセット成長領域中央に集中することで、通常の c 面成長よりも高い確率で対消滅や反応し、ファセット成長領域で消滅しなかった貫通転位はその後 c 面成長領域において分散するという、転位伝搬と低減のモデルを示した。</p>	

第三に、GaN 層の貫通転位芯の原子配置とその挙動の両方について評価した。過去に報告されている刃状転位の転位芯構造に加えて、転位芯の近くに余分な像コントラストが観察された。これは転位芯周辺に存在する余分な変位に起因すると考えられ、基本的な転位芯構造から変位を伴う構造への遷移は転位の伝搬方向の傾斜との関係が示唆された。転位の c 軸方向からの傾斜は、 a 軸方向と m 軸方向の両方であることが分かった。また、変位を伴う刃状転位芯の原子配置が基底面らせん転位と類似していることから、刃状転位は基底面らせん転位を伴うことで a 軸方向に傾くことができ、このように傾いた転位芯は変位を伴って観察されると結論付けた。

第四に、HVPE 成長 GaN において、異物を起点として発生した柱状の反転ドメインを伴う V ピットの調査を行った。V ピットが多く形成された HVPE 成長 GaN 層を使用して、V ピットと反転ドメインの起源の解明を行った。その結果、V ピットは柱状の反転ドメインから発生しており、反転ドメインの起源として、 α - Si_3N_4 粒子と黒鉛系炭素粒子が観察された。このような粒子は、HVPE 炉の構成物に起因し、低温バッファ層表面に付着しやすいと考えられた。 Si_3N_4 粒子に起因する Si 不純物や、炭素粒子の表面に取り込まれた N が反転ドメインを誘発すると推定された。

以上の結果から、GaN 中の貫通転位、積層欠陥、モザイク構造、V ピット、反転ドメインといった結晶欠陥について発生源や相互関係を明らかにした。

学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

(博士後期課程博士用)

山口大学大学院理工学研究科

報告番号	理工博甲 第 729 号	氏名	松原 徹
最終試験担当者		主 査	只 友 一 行
		審 査 委 員	小 松 隆 一
		審 査 委 員	小 柳 剛
		審 査 委 員	山 田 陽 一
		審 査 委 員	岡 田 成 仁
【論文題目】			
電子顕微鏡を用いた GaN 層中の欠陥構造に関する研究 (Study of defect structure in GaN layer using electron microscopy)			
【論文審査の結果及び最終試験の結果】			
<p>我が国が抱えるエネルギー問題や、国際社会が直面する環境問題を考えると、再生可能エネルギー技術とともに省エネルギー技術の研究開発の重要性が増しており、電力変換時の損失を大幅に削減できるパワーデバイスが注目されている。現在用いられている Si 系パワーデバイスの性能改善は限界に近づいて来ており、Si の物性値を上回る GaN や SiC などのワイドギャップ半導体が、高速動作が可能で高電圧・省電力で使用できるパワーデバイスとして期待されている。</p> <p>GaN 単結晶は融液等からの結晶成長ができないために、サファイア基板等の異種基板上へのヘテロエピタキシャル成長が最初の結晶成長として使われる。ヘテロエピタキシャル成長では低温バッファ層を使うことで比較的高品質な GaN 結晶が得られるので、青色発光ダイオード (Light Emitting Diode ; LED) が実用化した。一方、GaN をパワーデバイスとして実用化するためには、電流リーク源となり得る貫通転位を更に数桁低減することが必要であり、様々な転位低減技術が検討されている。この転位は異種基板上の低温バッファ層に起源を有し、HVPE (Hydride Vapor Phase Epitaxial) 成長等による厚膜成長により徐々に転位密度は減少するが、実用的な厚みで十分な低転位密度を得るために、ファセット形成技術を中心に転位密度の低減技術の研究を行っている。また、GaN 層表面に V 形のピット (V ピット) が形成されることが表面平坦性の悪化や、リーク電流の増加といった重要な問題の原因となっている。</p> <p>上記の研究背景を踏まえ、本研究では、貫通転位や V ピット等の結晶欠陥について、(1) ヘテロエピタキシャル成長時、(2) HVPE 成長による厚膜成長時、(3) ファセット構造を使った転位低減成長時の転位の挙動を、電子顕微鏡等を用いた原子スケールでの基礎的な評価を行うことで、これら結晶欠陥の発生・消滅機構や相互関係を明らかにした。さらに、結晶成長技術に評価結果をフィードバックすることで成長技術の改善を行い、新しい転位低減機構を提案した。</p> <p>第一に、サファイア基板上に成長した GaN 層の成長初期における結晶欠陥に関して、積層欠陥、貫通転位と粒界を含むモザイク構造について調査した。積層欠陥領域を起点とした刃状貫通転位はフランク部分転位を起点として発生し、周囲のウルツ鉱構造に対して変位したウルツ鉱構造を付随していた。貫通転位は積層欠陥領域のような不完全結晶から完全なウルツ鉱構造への移行により生成されると考えられた。一方、成長初期におけるアイランド同士の会合では、モザイク構造のチルトやツイストにより貫通転位が生成すると考えられているが、それらに加えて積層シーケンスの不整合が貫通転位を生成する可能性が示唆された。</p> <p>第二に、GaN 層の貫通転位芯の原子配置とその挙動の両方について評価した。過去に報告されている刃状転位の転位芯構造に加えて、転位芯の近くに余分な像コントラストが観察された。これは転位芯周辺に存在する余分な変位に起因すると考えられ、基本的な転位芯構造から変位を伴う構造への遷移は転位</p>			

の伝搬方向の傾斜との関係が示唆された。転位の c 軸方向からの傾斜は、a 軸方向と m 軸方向の両方であることが分かった。また、変位を伴う刃状転位芯の原子配置が基底面らせん転位と類似していることから、刃状転位は基底面らせん転位を伴うことで a 軸方向に傾くことができ、このように傾いた転位芯は変位を伴って観察されると結論付けた。

第三に、ファセット制御選択横方向成長 (Epitaxial Lateral Overgrowth; ELO) 技術を用いて全面低転位化に成功した HVPE 成長 GaN 層に関して、斜め研磨した試料を SEM-カソードルミネッセンス (Cathodeluminescence; CL) 測定することにより、転位密度の三次元分布とユニークな転位挙動を可視化し、その転位低減機構モデルを提案した。貫通転位と基底面転位密度の三次元分布より、貫通転位は c 面成長領域において c 軸方向に向かって伝搬し、c 面成長領域とファセット成長領域の界面で曲がり、ファセット成長領域中央に集中することで、通常の c 面成長よりも高い確率で対消滅や反応し、ファセット成長領域で消滅しなかった貫通転位はその後 c 面成長領域において分散するという、転位伝搬と低減のモデルを示した。

第四に、HVPE 成長 GaN において、異物を起点として発生した柱状の反転ドメインを伴う V ピットの調査を行った。V ピットが多く形成された HVPE 成長 GaN 層を使用して、V ピットと反転ドメインの起源の解明を行った。その結果、V ピットは柱状の反転ドメインから発生しており、反転ドメインの起源として、 α - Si_3N_4 粒子と黒鉛系炭素粒子が観察された。このような粒子は、HVPE 炉の構成物に起因し、低温バッファ層表面に付着しやすと考えられた。 Si_3N_4 粒子に起因する Si 不純物や、炭素粒子の表面に取り込まれた N が反転ドメインを誘発すると推定された。

以上の結果から、GaN 中の貫通転位、積層欠陥、モザイク構造、V ピット、反転ドメインといった結晶欠陥について発生・消滅機構や相互関係を明らかにした。本研究で明らかにした結晶欠陥に関する解析・検討結果は高品質 GaN 結晶の成長技術を確立する上で極めて意義のあるものであり、今後の半導体産業の発展に大きく貢献できるものである。

公聴会等における主な質問内容は、① サファイア基板上のヘテロエピタキシャル成長 GaN の転位の発生機構は一般化できるものか、② 転位が曲がる機構とステップバンチングとの関連について、③ 転位の低減機構について何を新しく見出したか、④ 2 光子 PL 観察においてスポット形状の違いは何に起因するか等であった。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、本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性ともに優れ、博士 (工学) の論文に十分値するものと判断した。

論文内容及び審査会、公聴会での質問に対する応答などから、最終試験を合格とした。

なお、主要な関連論文の発表状況は下記の通りである。(関連論文 計 4 編)

1. T. Matsubara, K. Sugimoto, N. Okada, K. Tadatomo, "Atomic-scale investigation of structural defects in GaN layer on c-plane sapphire substrate during initial growth stage" *Japanese Journal of Applied Physics* 55, 045501 (2016).
2. T. Matsubara, Y. Denpo, N. Okada, K. Tadatomo, "V-shaped pits in HVPE-grown GaN associated with columnar inversion domains originating from foreign particles of α - Si_3N_4 and graphitic carbon" *Micron* 94, 9 (2016).
3. T. Matsubara, S. Goubara, K. Yukizane, R. Inomoto, N. Okada, K. Tadatomo, "Visualization of dislocation behavior in HVPE-grown GaN using facet controlling techniques" *Physica Status Solidi B* 254, 1600716 (2017).
4. T. Matsubara, K. Sugimoto, S. Goubara, R. Inomoto, N. Okada, and K. Tadatomo, "Direct observation of inclined a-type threading dislocation with a-type screw dislocation in GaN" *Journal of Applied Physics* 121, 185101 (2017).