



窒化物半導体のバルク結晶成長

徳島大学大学院

ソシオテクノサイエンス研究部

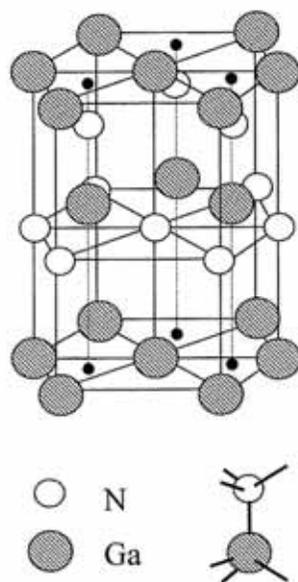
先進物質材料部門

西野克志



内容

- 直接合成法によるGa₂N (窒化ガリウム)のバルク結晶成長
- 昇華法によるAlN (窒化アルミニウム)のバルク結晶成長





研究背景

- 窒化物半導体[(In,Ga,Al)N]の現状
 - 発光デバイス
 - LED: 白色発光の実現、照明用途の拡大
 - LD: ブルーレイ
 - 高周波・パワーデバイス
- 課題
 - 高品質結晶作製に必要な基板が高価



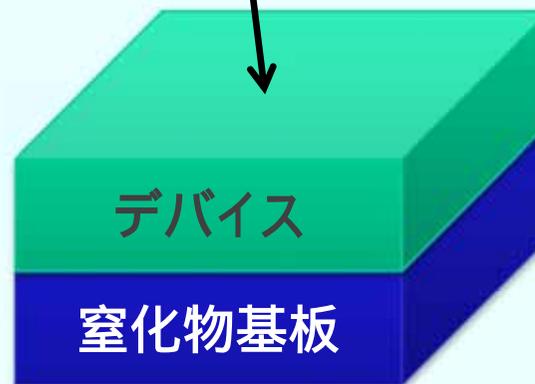
基板とデバイス用結晶

結晶欠陥が多い



↑
サファイア、Siなど(安価)

結晶欠陥が少ない(高品質、高性能)



↑
GaN、AlN(高価)



研究背景

- 青色LEDまでは欠陥多くてもOK
- 他のデバイスへの応用を考え低コストで結晶の高品質化を図るためには、安価な基板が必要





研究目的

- 低コストで基板として使用可能な窒化物半導体のバルク結晶成長を行う
 - 高速成長
 - 高品質結晶
- 直接合成法(GaN結晶成長)
- 昇華法(AlN結晶成長)





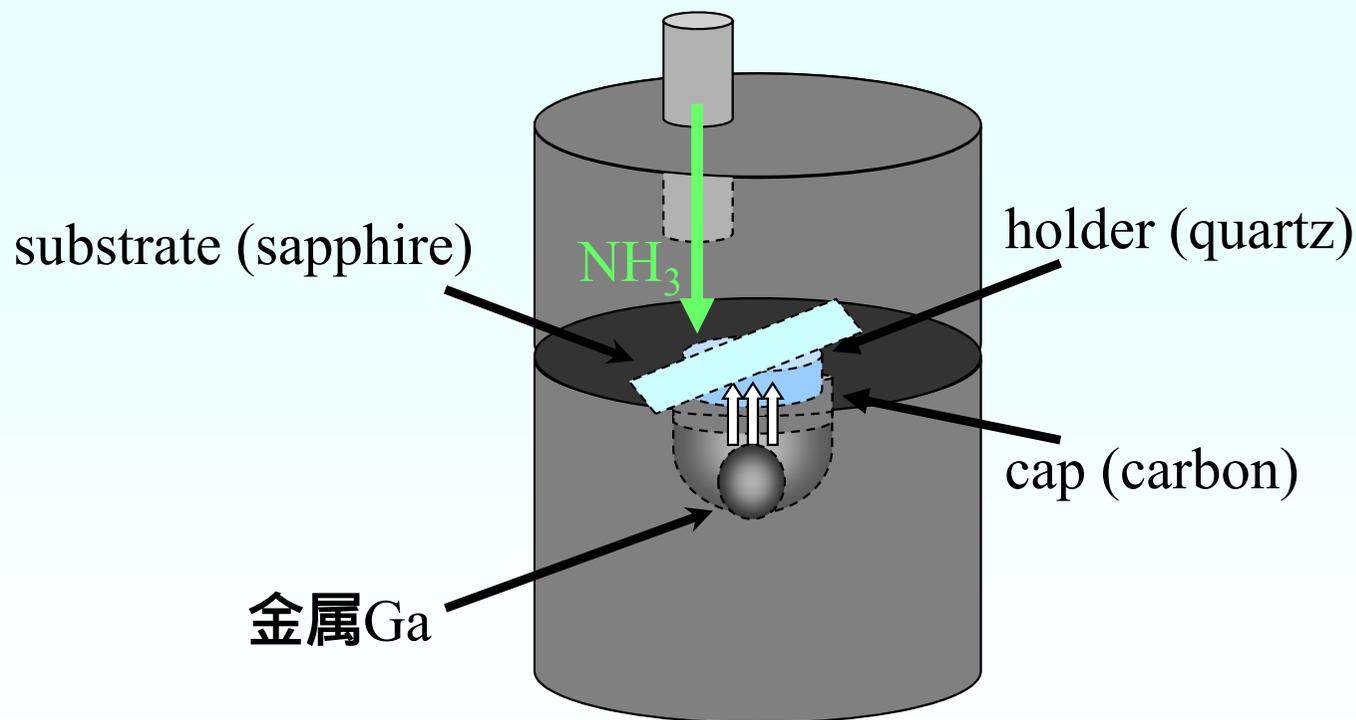
直接合成法によるGaNのバルク結晶成長



直接合成法

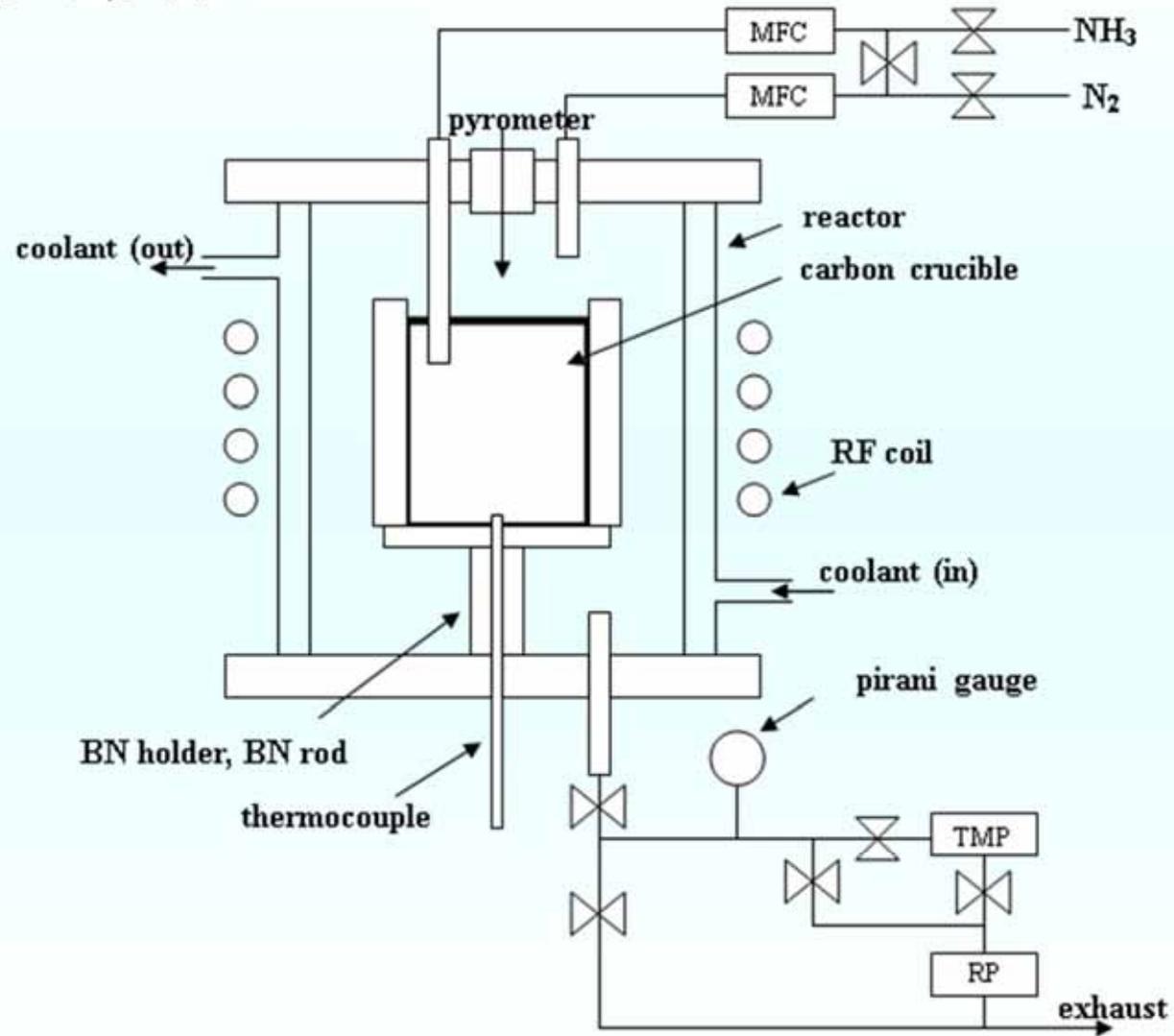
- サファイアなどの基板をグラファイト製るつぼの中に配置し、窒素雰囲気中において高周波誘導加熱

金属Ga、NH₃ガス、常圧で成長





成長装置





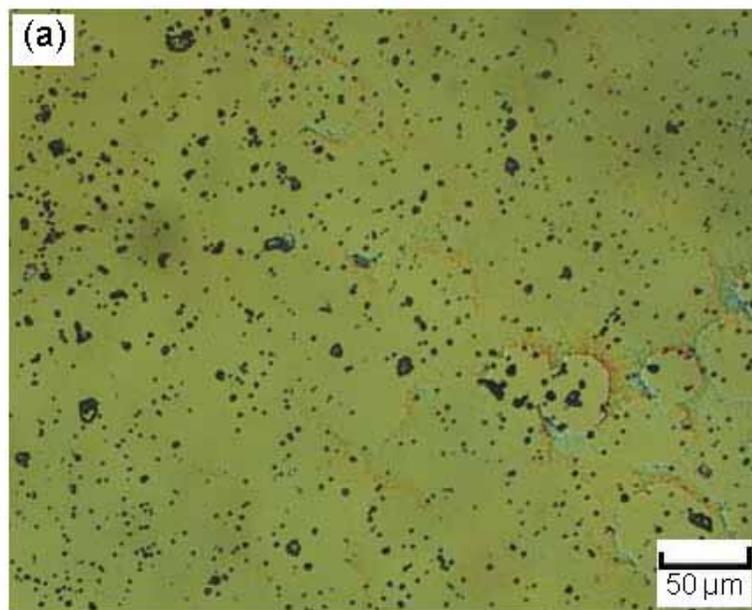
成長条件

- 温度: 1050 ~ 1200
- NH_3 流量: 100 ~ 250sccm
- 成長時間: 1時間
- 压力: 常压

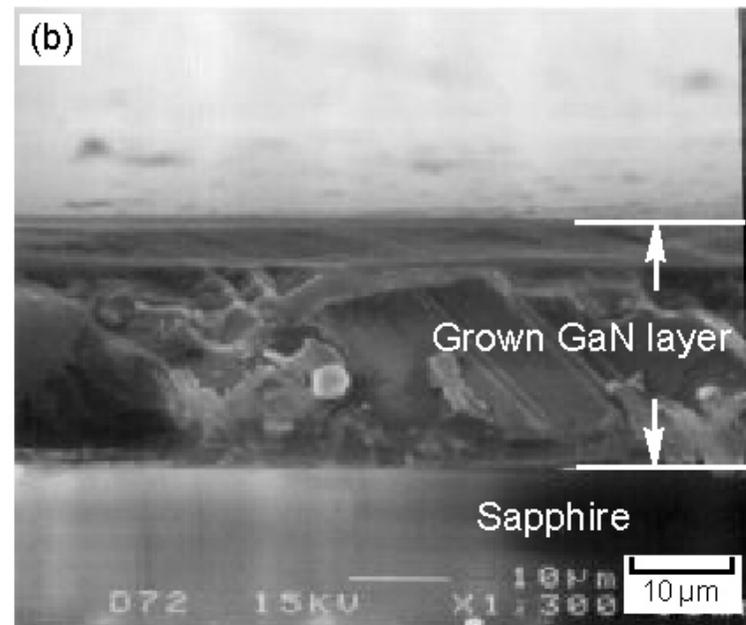


MOCVD-GaN上への成長

基板：サファイアc面上にMOCVDでGaNを成長したもの



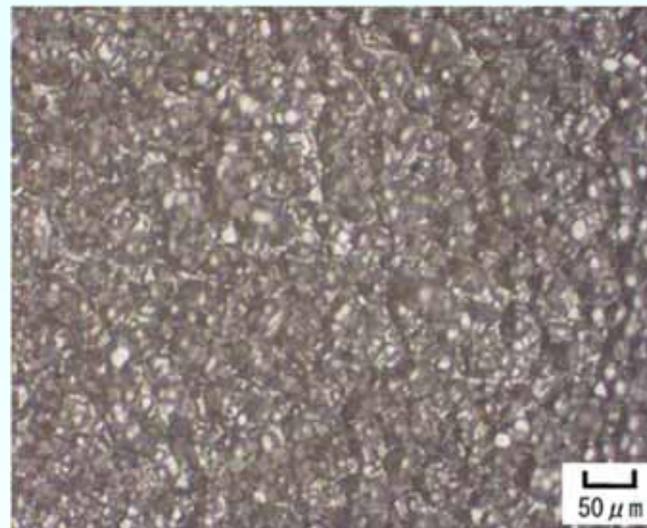
表面



断面

サファイアc面基板上への成長

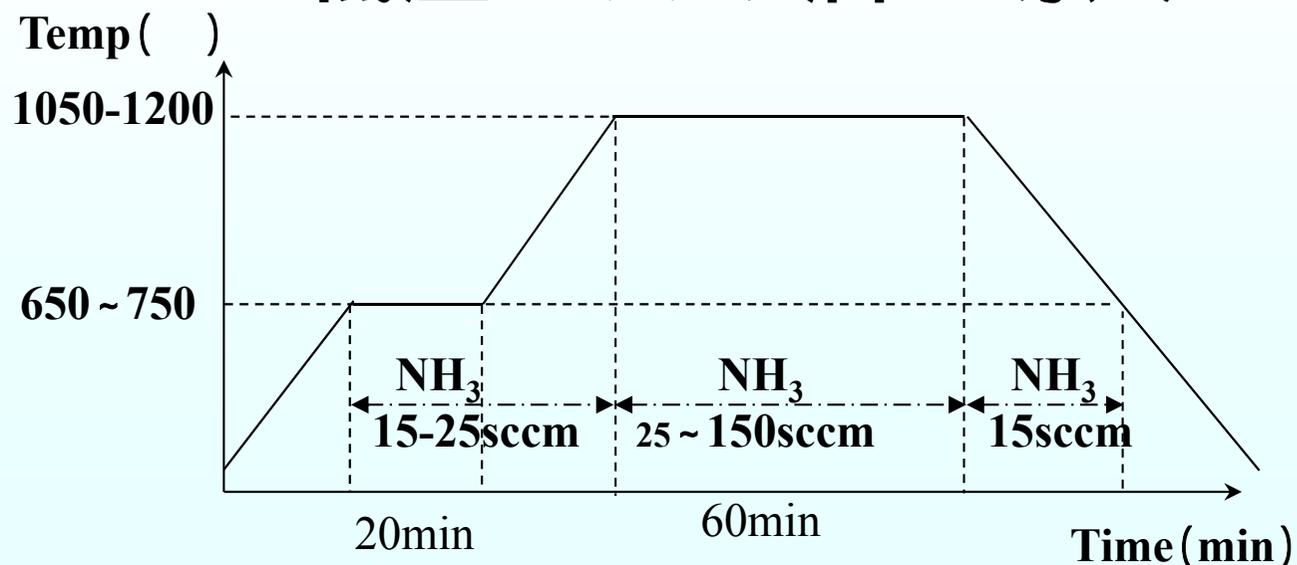
- 基板: サファイアc面
- 成長条件はMOCVD-GaN上と同じ



非常に荒れた表面



低温バッファ層の導入



・低温バッファ層 成長(LT)

温度 : 650 ~ 750°C

NH₃ 流量 : 15 ~ 25sccm

時間 : 20分

・高温成長 (HT)

温度 : 1050 ~ 1200°C

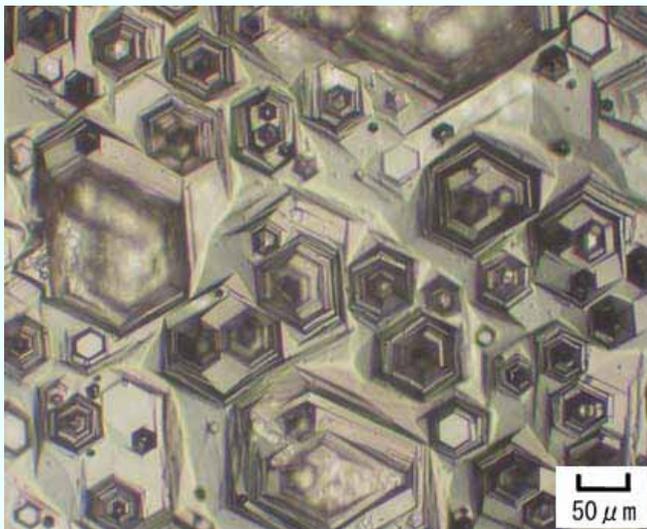
NH₃ 流量 : 25 ~ 150sccm

時間 : 60分

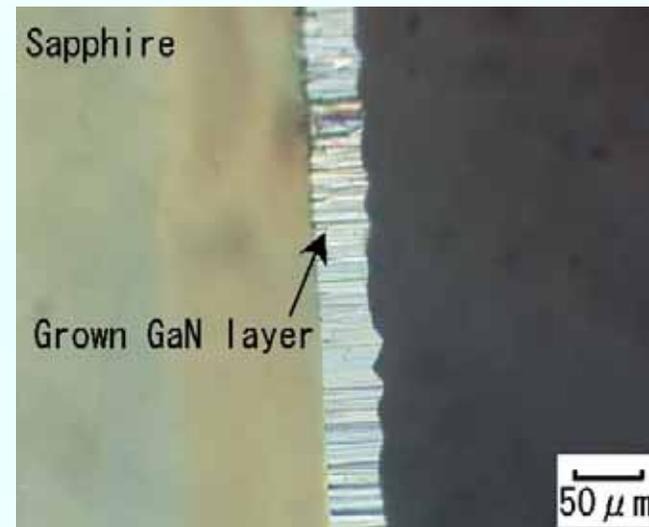




サファイアc面基板上への成長(バッファ層あり)



表面

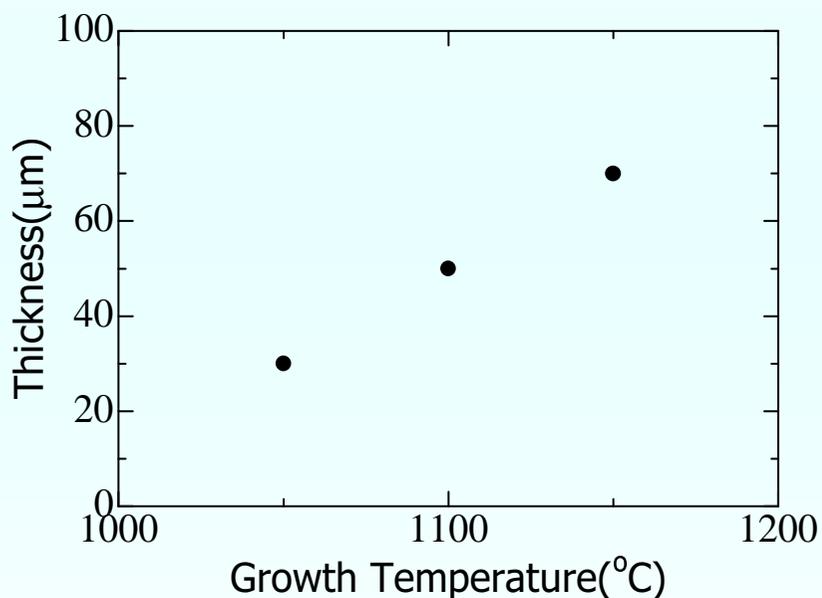


断面

J. Cryst. Growth, Vol.237-239, pp.922-925

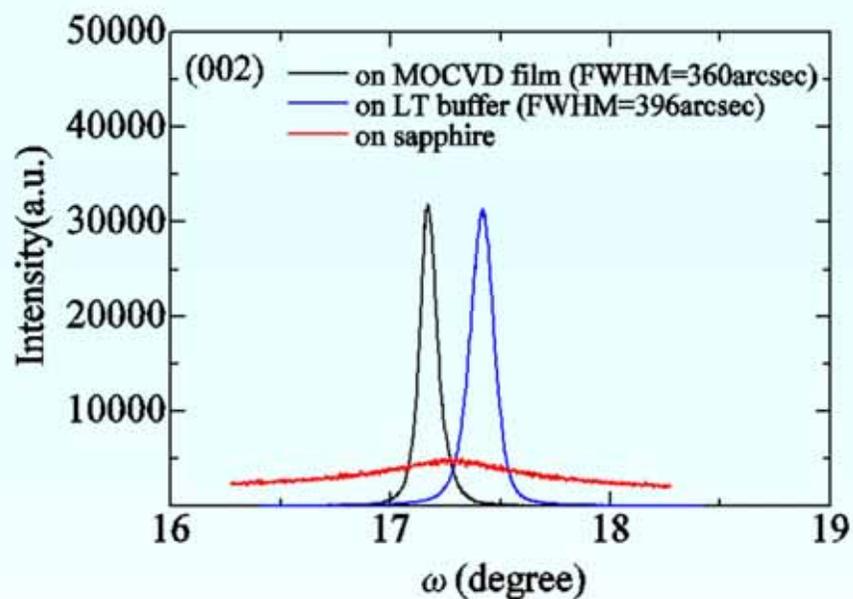


成長速度



成長温度の上昇につれて増加
← 原料供給量の増加

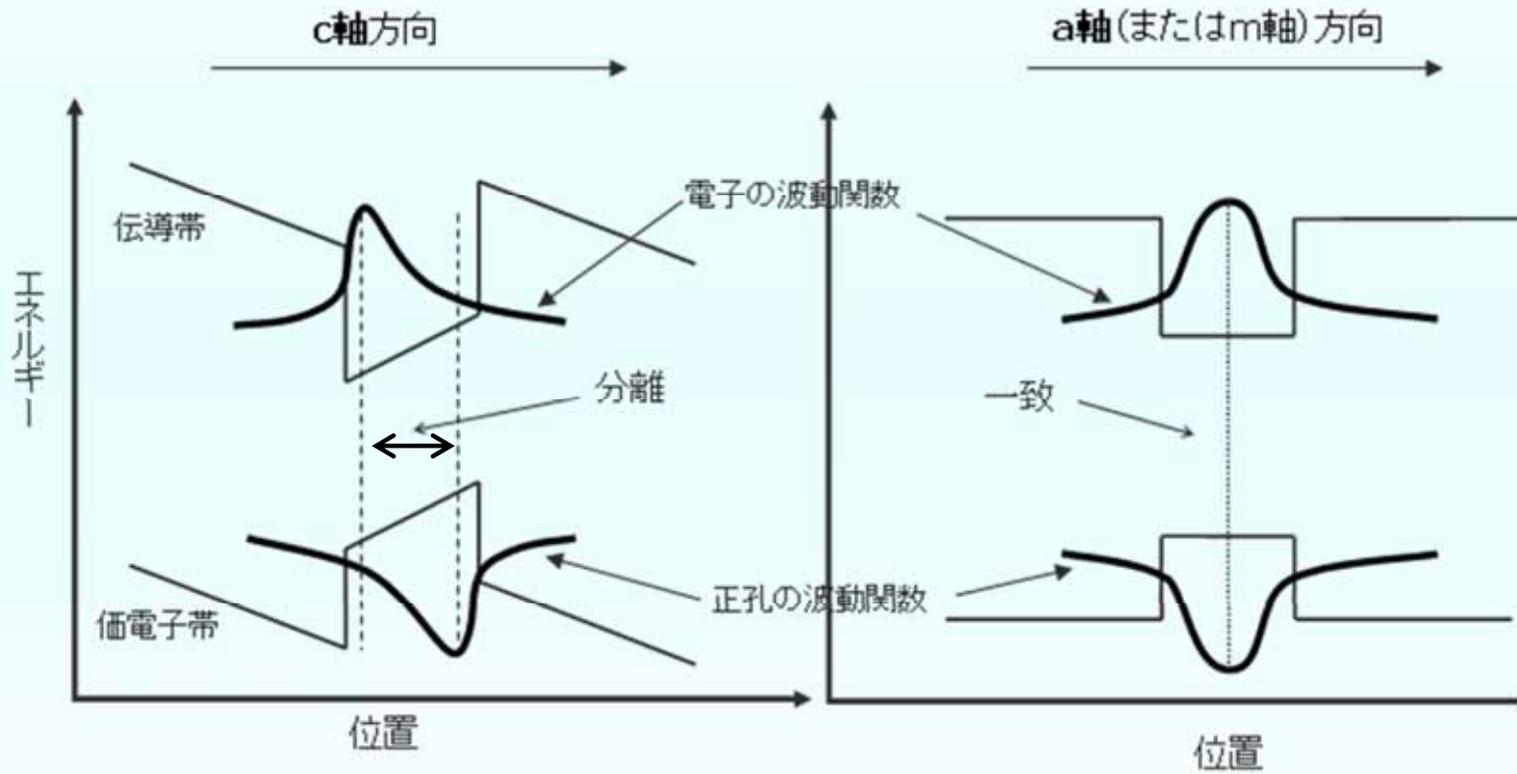
X線回折測定 (結晶品質の評価)



バッファ層ありではMOCVD-GaN上成長と
同程度の品質



無極性GaN

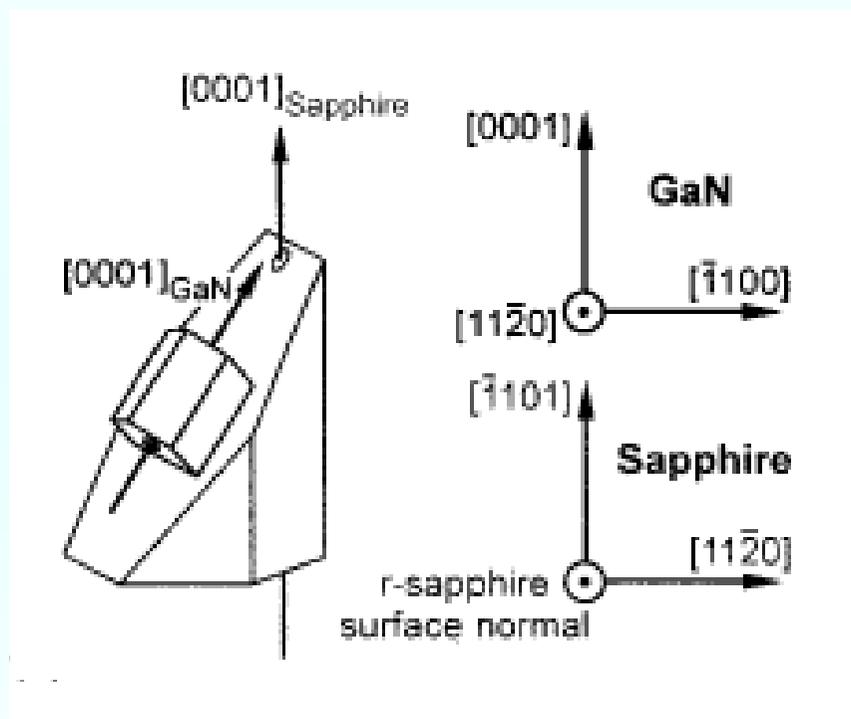


発光効率: 低

発光効率: 高



サファイア_r面基板上への成長

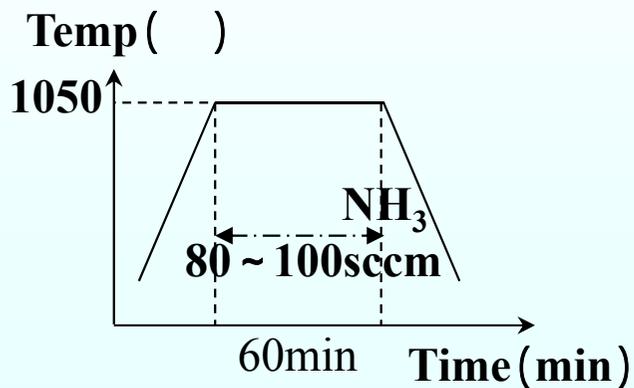


サファイア_r面上にa-GaNが成長



サファイア_r面上への成長

アンモニア流量[sccm]

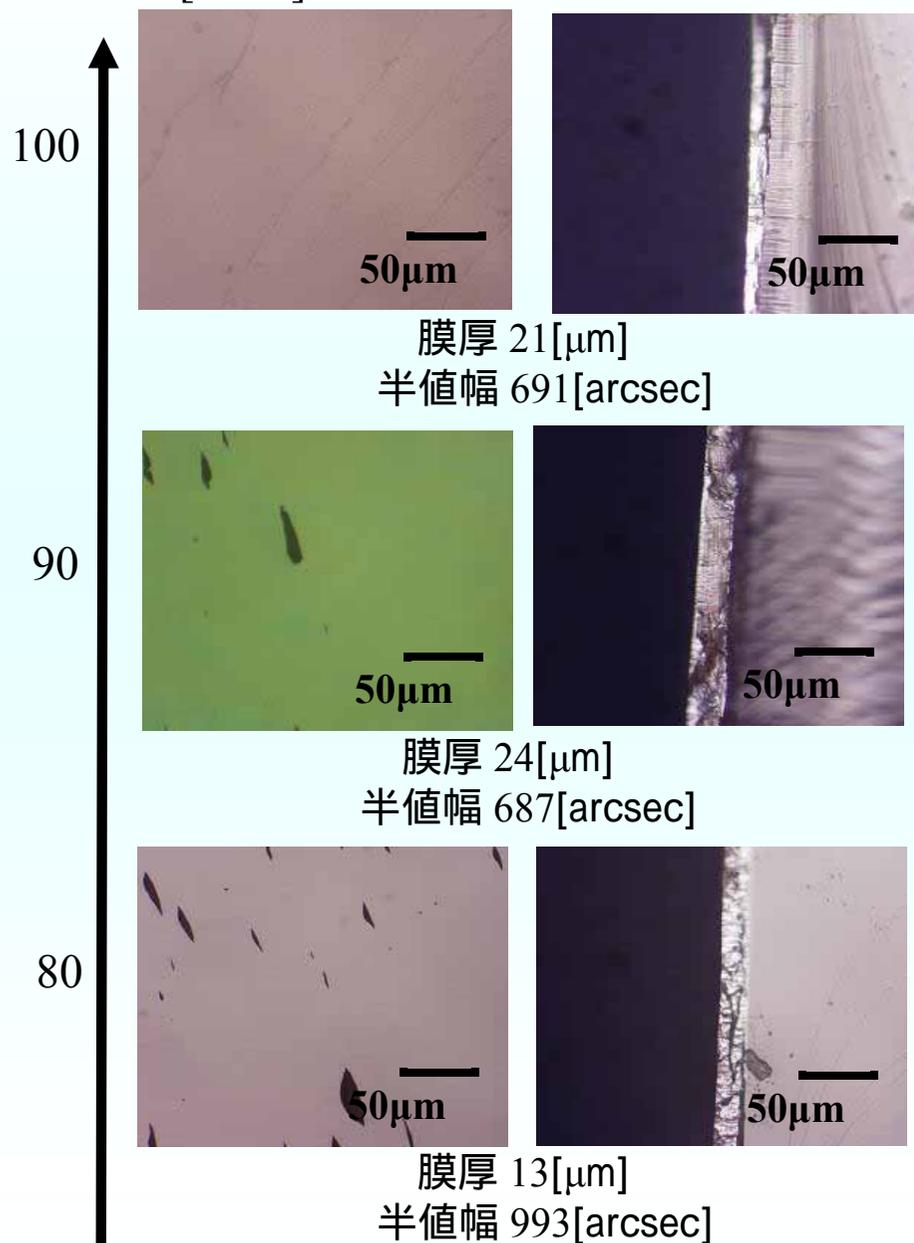


・HT

温度 : 1050°C

NH₃流量 : 80 ~ 100sccm

時間 : 60min





直接合成法によるGaNバルク成長のまとめ

- c面サファイア上へのc-GaNの成長
 - 最大1時間で厚さ70 μm の結晶が成長
 - 成長層は比較的高品質
- r面サファイア上へのa-GaNの成長
 - 1時間で厚さ20 μm の結晶が成長
 - 成長層の品質はそれほど悪くはない





昇華法によるAINのバルク結晶成長



GaNとAlN

AlGaN/GaN

3.4 [eV]

熱膨張係数差



クラック発生

格子不整合:大



貫通転位密度増加

紫外光を吸収



AlGaN/AlN

バンドギャップ

6.2 [eV]

格子不整合:小
熱伝導率:高

紫外光吸収
ほとんどなし



	熱膨張係数		格子定数		熱伝導率[W/cm·K] (at 400)
	a	c	a	c	
sapphire (六方晶)		5.3	4.763	13.003	0.1
GaN (六方晶)	5.59	3.17	3.189	5.185	1.7
AlN (六方晶)	4.15	5.27	3.112	4.982	1.8



研究目的

昇華法によりLED用基板として用いることが可能な
高品質かつ厚膜のAlN単結晶を成長させる

昇華法...AlN粉末を加熱し昇華させ再析出させる

昇華法による主な利点

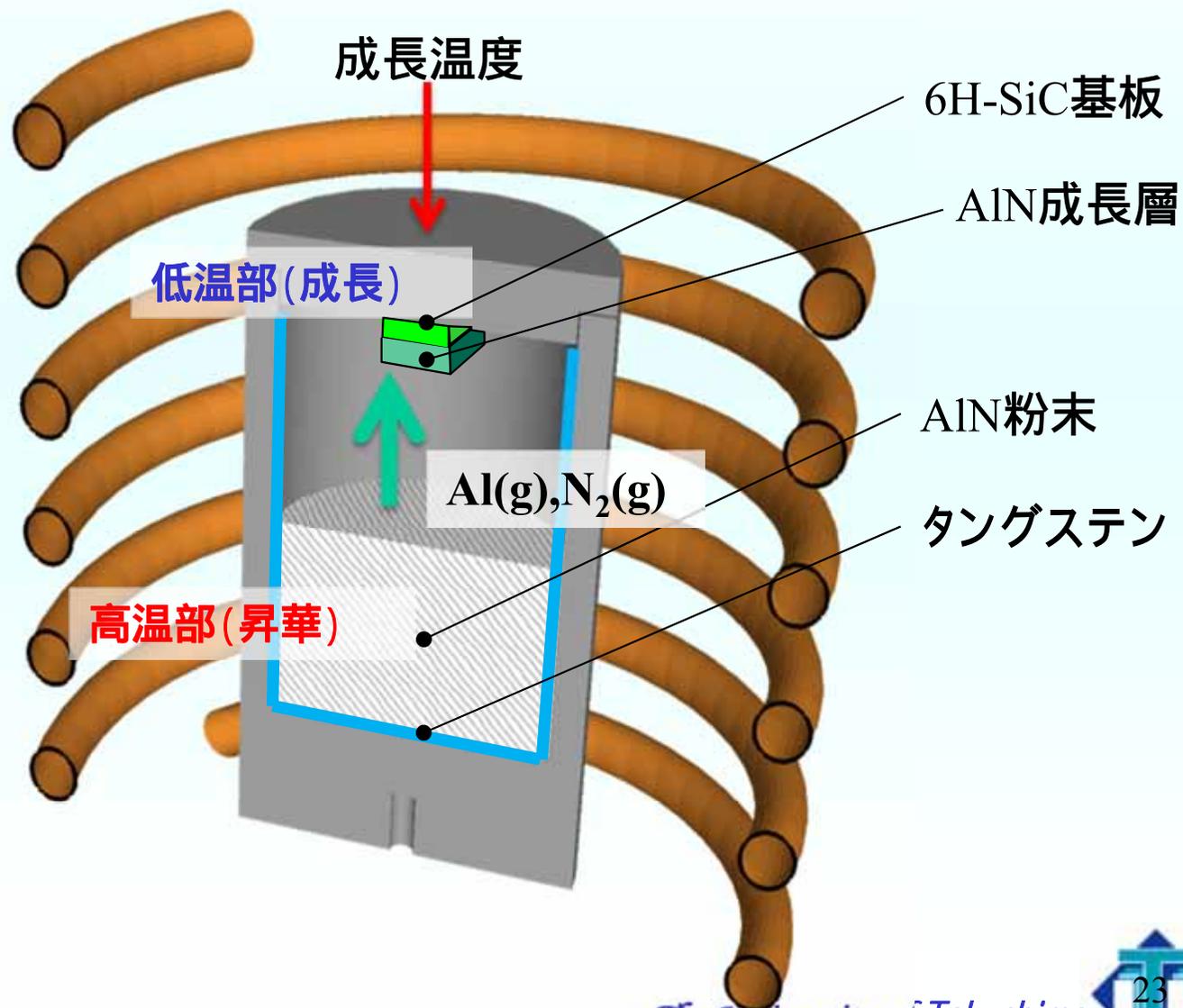
- 高速成長が可能
- 装置が簡便



実験方法

• 昇華法を用いてAlNを成長

- 誘導加熱を用いる
- AlN粉末を昇華させ、SiC基板上に再結晶させる
- 成長温度はるつぼのフタの表面温度

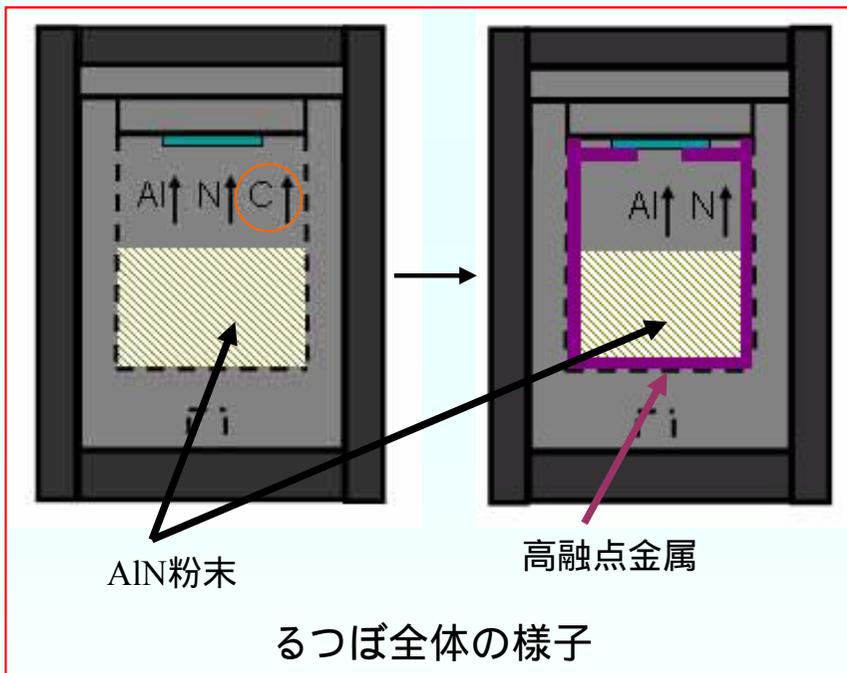


るつぼ構造に関する比較検討

実験目的

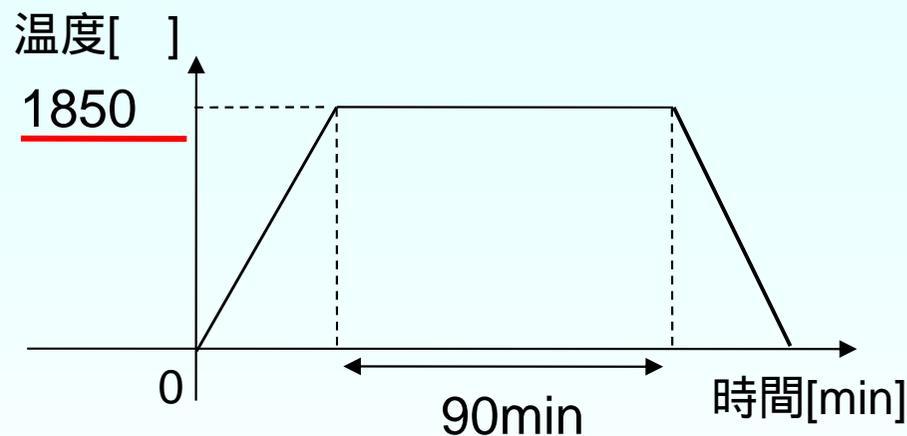
成長に適したるつぼの構造を模索し、その成長結果を比較検討

構造の違うるつぼによる成長の結果を比較検討



成長条件

成長温度	1850
成長時間	<u>90分</u>



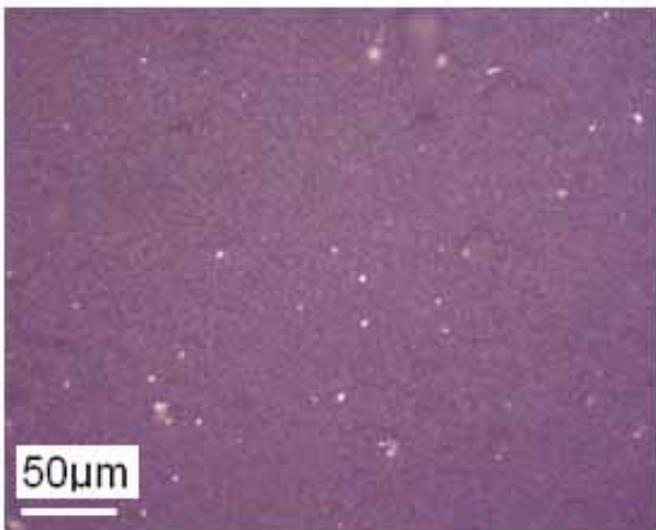
成長温度と時間の推移

評価

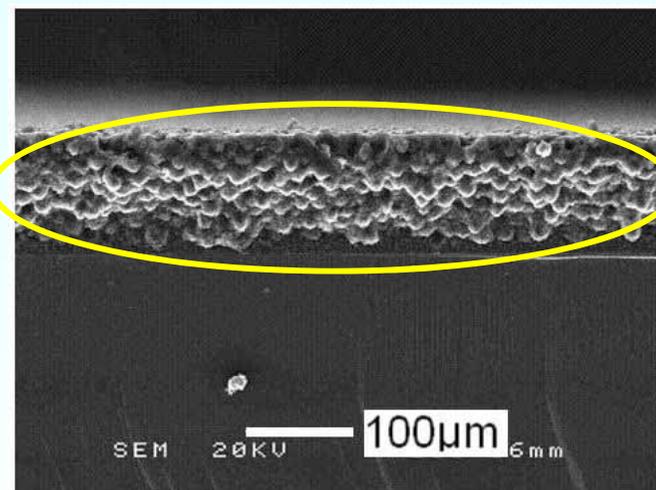
光学顕微鏡、SEM、XRD



結晶表面及び断面の観察

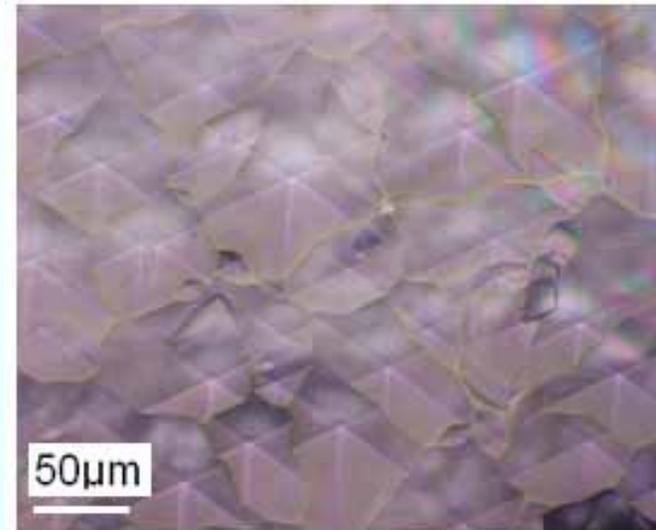


結晶表面光学顕微鏡像

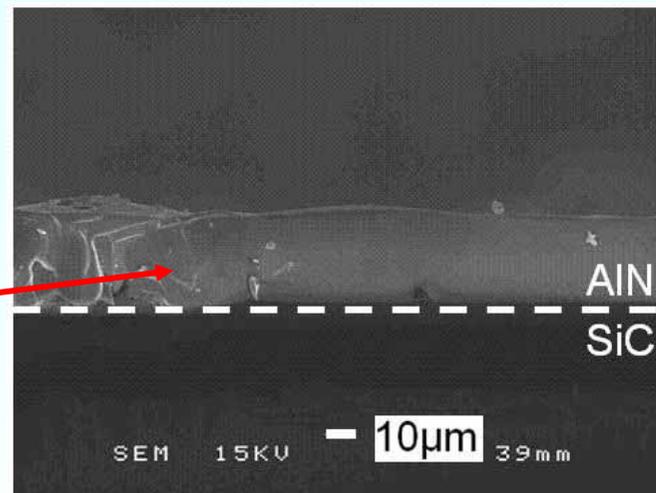


結晶断面SEM像

高融点金属カバー無し



結晶表面光学顕微鏡像



結晶断面SEM像

高融点金属カバー有り



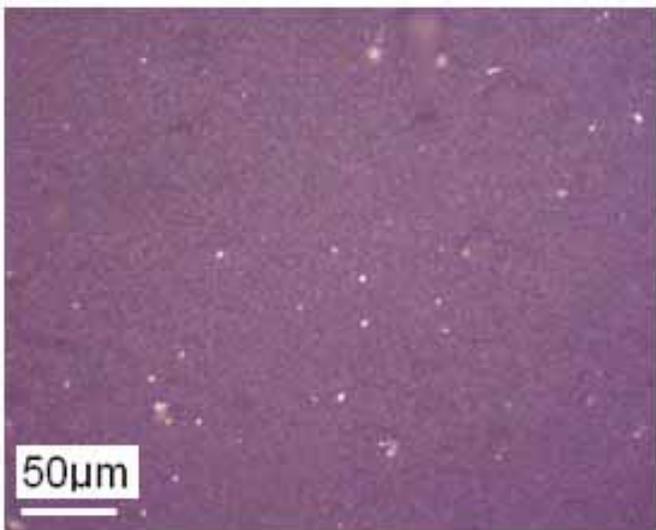
不純物が
多量に混入

膜厚は
~35µm

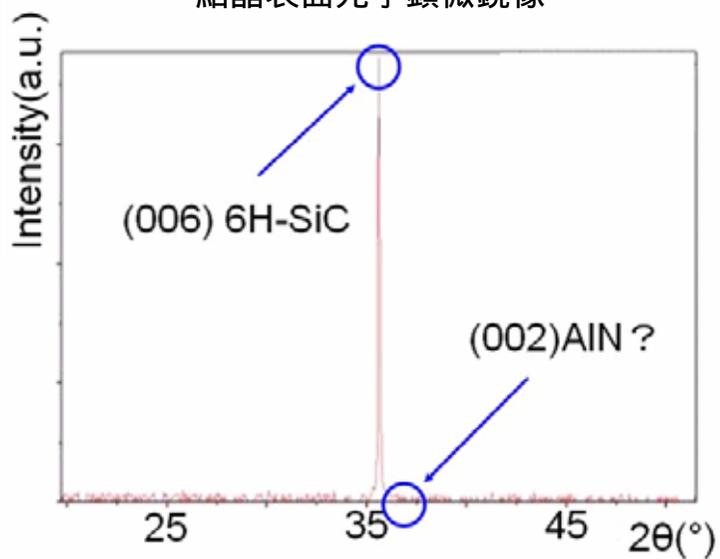
るつぼ内部を高融点金属を用いて保護したことにより、六角形状の結晶が連なっている様子を確認



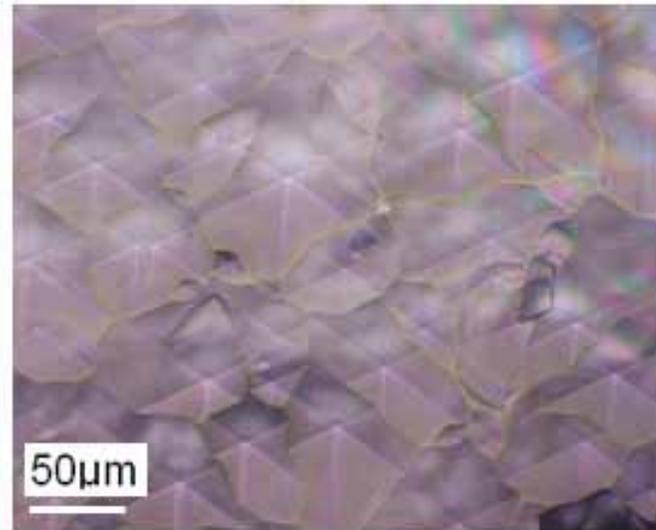
XRD測定



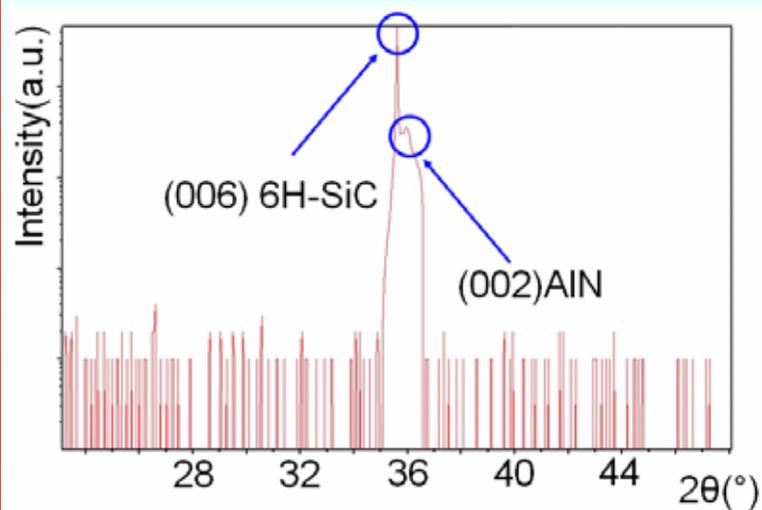
結晶表面光学顕微鏡像



高融点金属カバー無し



結晶表面光学顕微鏡像



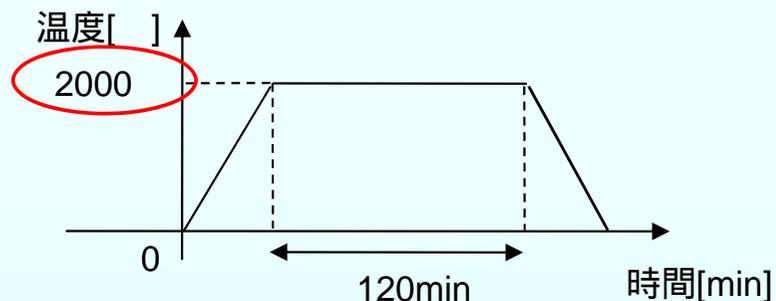
高融点金属カバー有り

るつぼ内部を高融点金属を用いて保護したことにより、(002)AlNのピークを確認

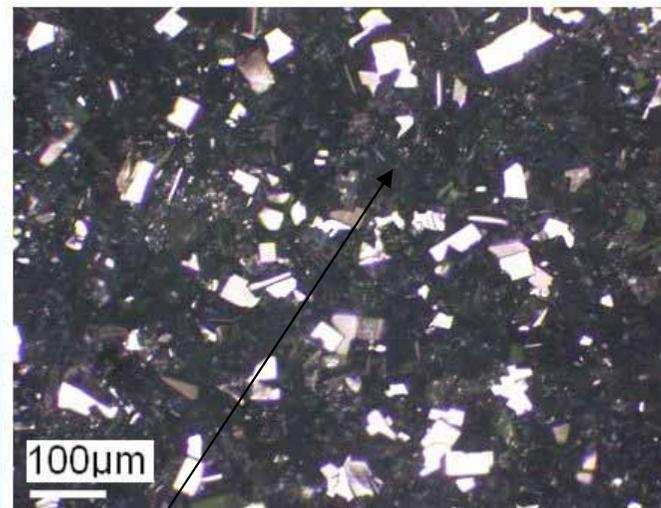


成長条件

成長温度	2000
成長時間	<u>120分</u>



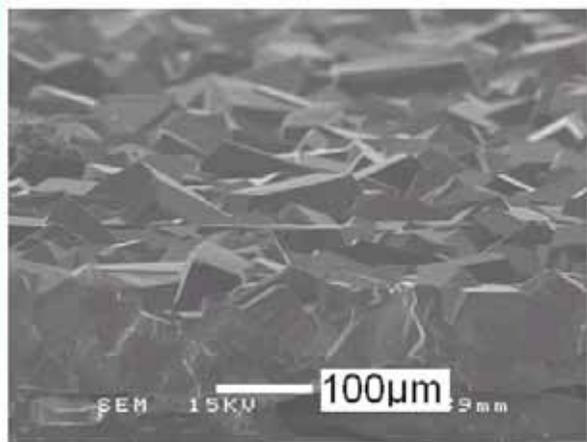
成長温度と時間の推移



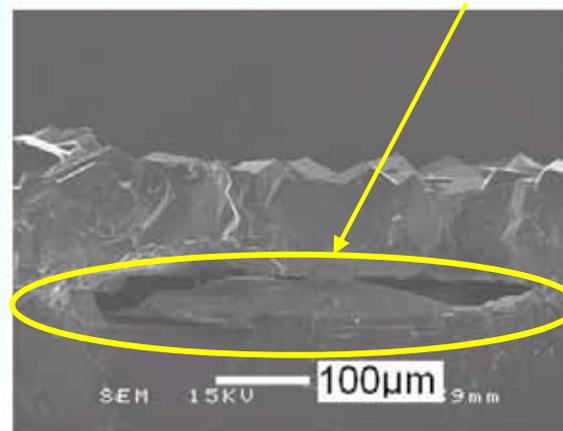
結晶表面光学顕微鏡像

成長層表面全体に金属片らしきものが観察される

結晶と基板の界面がエッチングされている



結晶鳥瞰SEM像



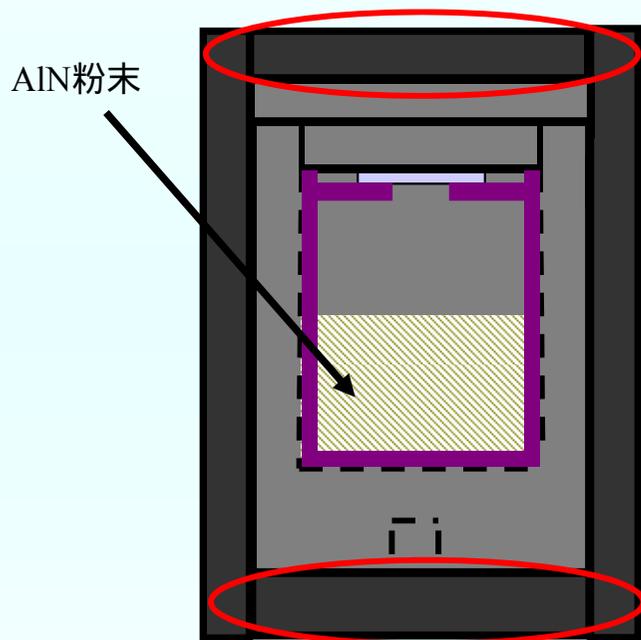
結晶断面SEM像



2段階成長の検討

実験目的

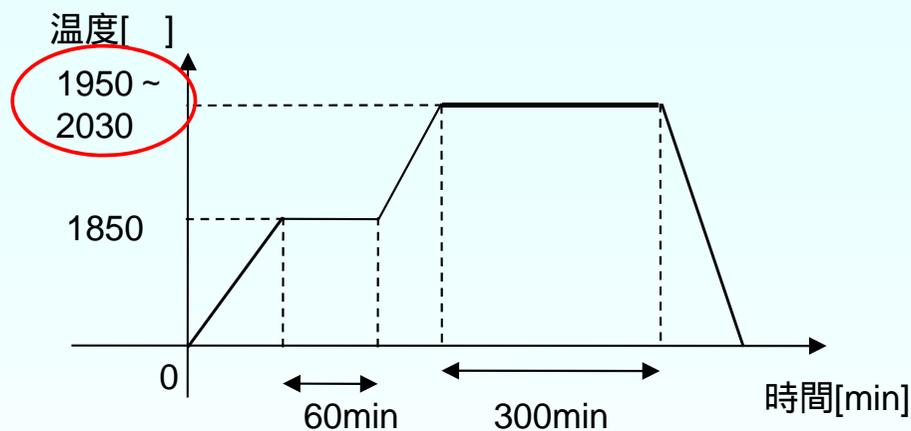
成長温度2段階に変化させることによる膜厚と結晶品質の変化についての比較検討



るつぼ全体の様子

成長条件

成長温度	1850 ~ 2030
成長時間	<u>360分</u>

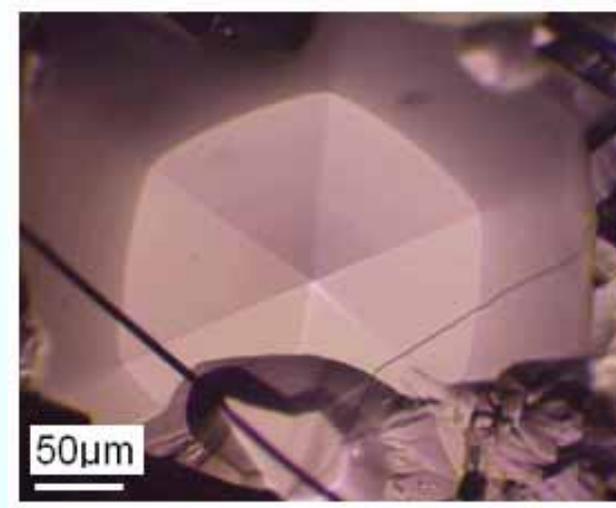
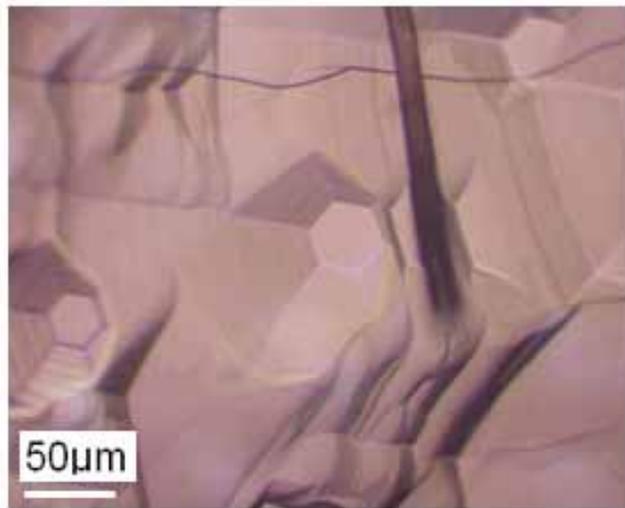
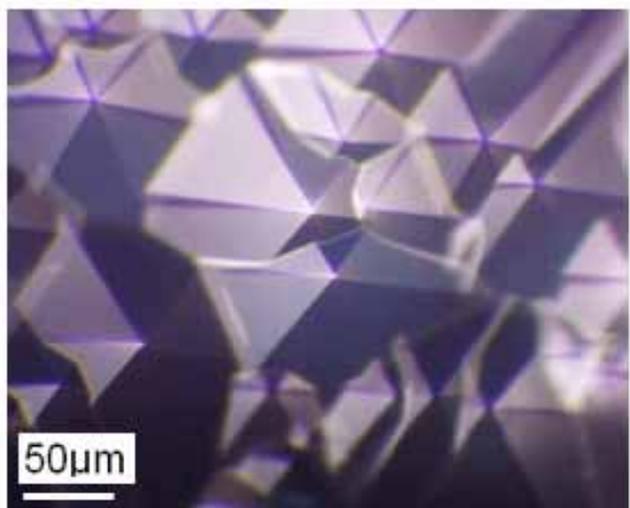


成長温度と時間の推移

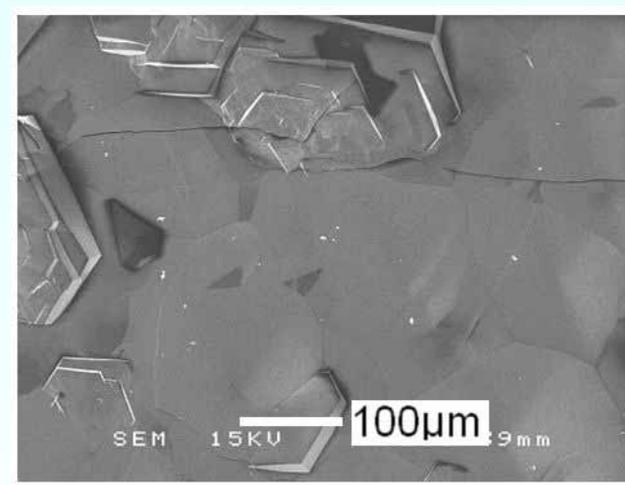
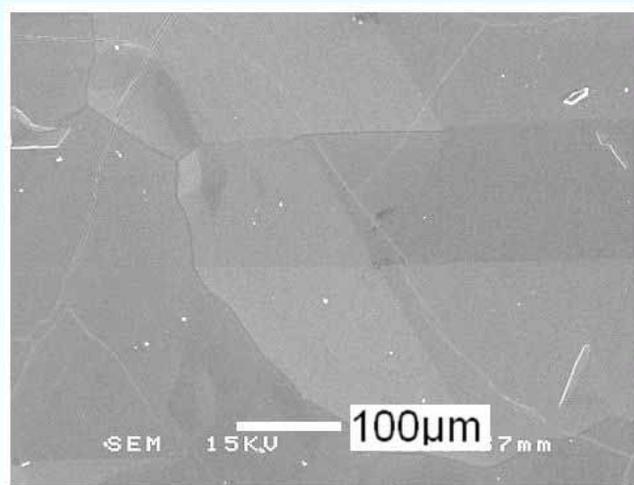
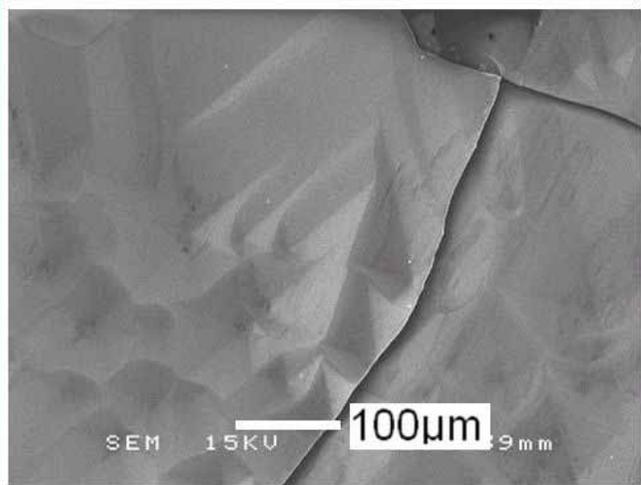
評価

光学顕微鏡、SEM、XRD

結晶表面の観察



結晶表面光学顕微鏡像



結晶表面SEM像

高温高速成長の設定

← 1950

2000

→ 2030

結晶表面に六角形状の特徴的なヒロックの連なりを確認、凹凸が目立つ

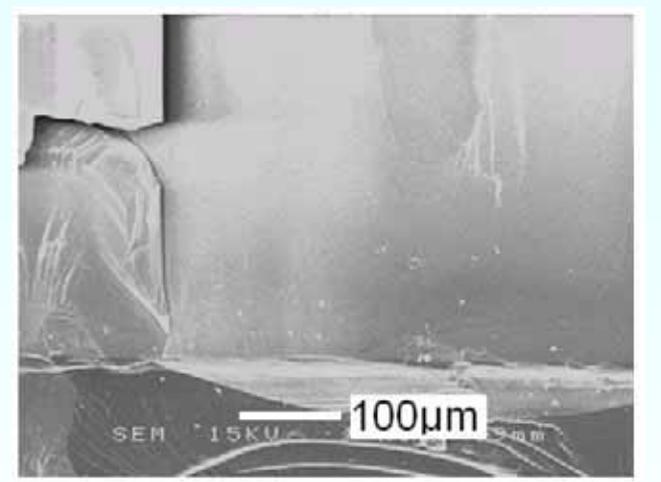
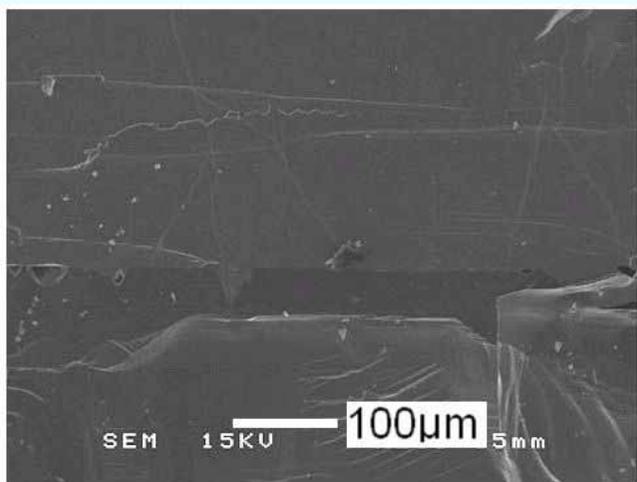
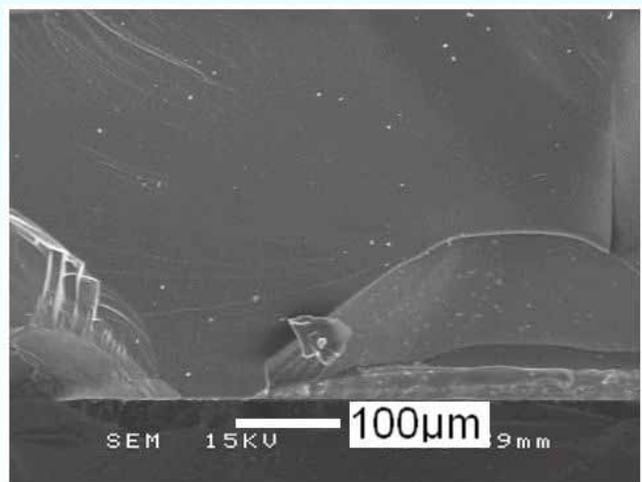
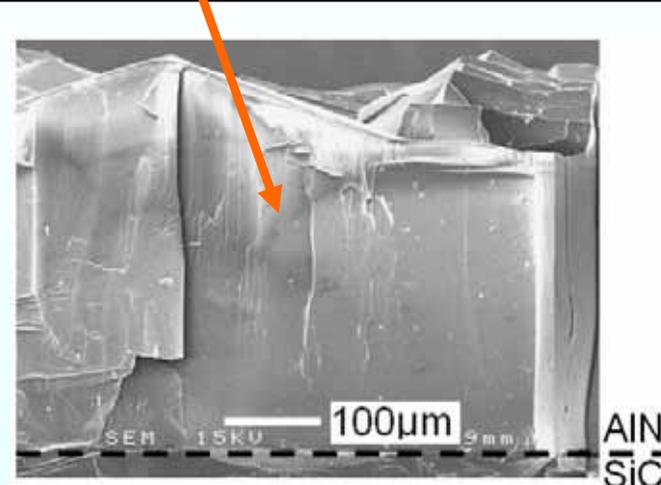
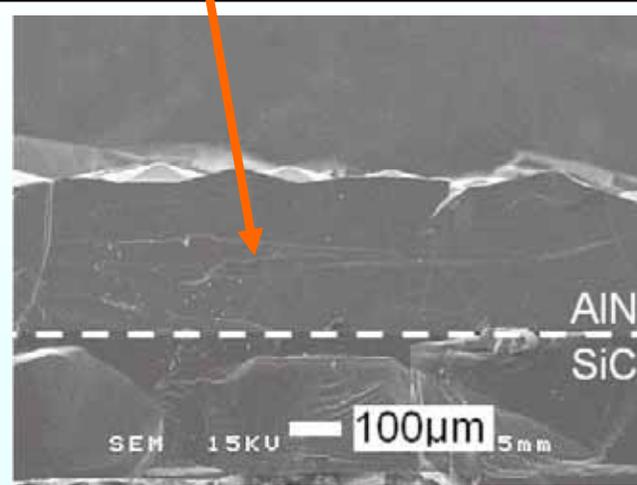
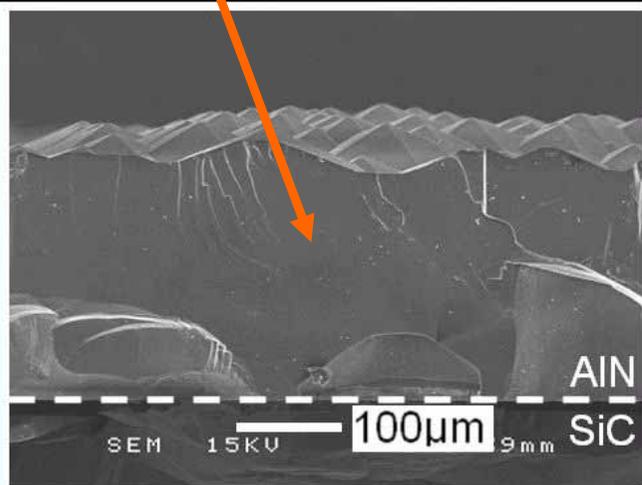


結晶断面の観察

膜厚は ~ 250 μ m (成長速度は46 μ m/h)

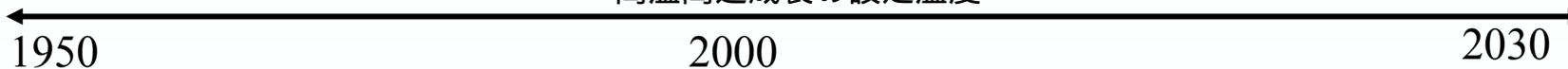
膜厚は ~ 300 μ m (成長速度は54 μ m/h)

膜厚は ~ 380 μ m (成長速度は70 μ m/h)



結晶断面SEM像

高温高速成長の設定温度

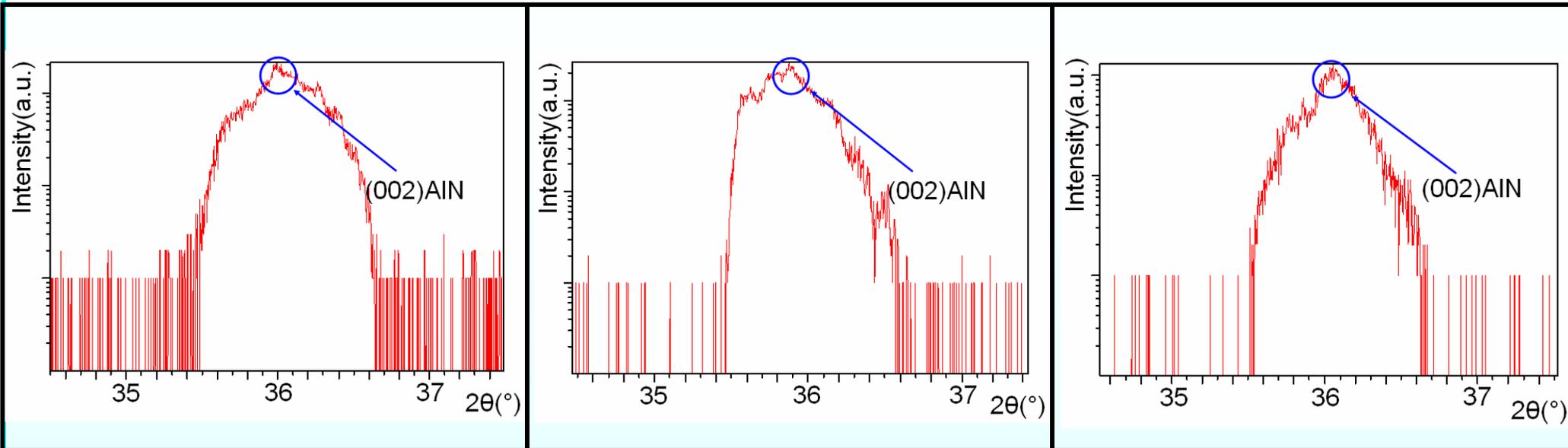


高速成長層の成長温度を上げると膜厚が増大

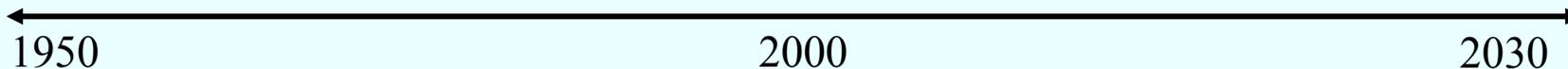




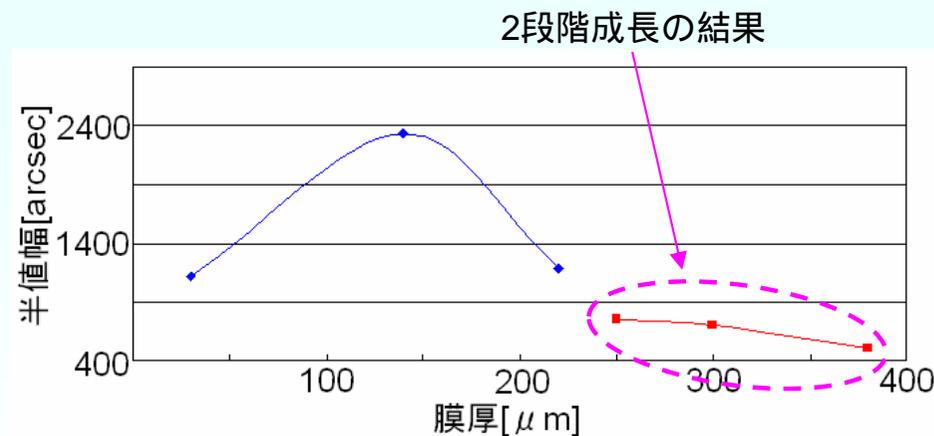
XRD測定



高温高速成長の設定温度



膜厚[μm]	(002) 半値幅[arcsec]
250	748
300	705
380	507



厚膜と半値幅の推移

高速成長層導入の結果膜厚は増大し、半値幅は減少傾向





昇華法によるAlNのバルク結晶成長のまとめ

るつぼ構造の改善、成長方法の検討

- るつぼ内部を高融点金属で保護
- 低温成長層と高温高速成長層の組み合わせを検討



比較的速い成長速度で高品質なAlN結晶が得られた



LED用基板として用いることが可能なAlN単結晶の成長に成功

- 膜厚・・・400 μ m
- 半値幅・・・507arcsec

