



Title	水素化物原料を用いた窒化ガリウム単結晶成長プロセスの研究
Author(s)	今出, 完
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48509
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	い ま 出 ま も る 今 出 完
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 2 1 2 0 6 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 19 年 3 月 23 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科電気工学専攻
学 位 論 文 名	水素化物原料を用いた窒化ガリウム単結晶成長プロセスの研究
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 佐々木孝友 (副査) 教 授 伊瀬 敏史 教 授 熊谷 貞俊 教 授 辻 毅一郎 教 授 伊藤 利道 教 授 杉野 隆 教 授 中塚 正大 教 授 西村 博明 教 授 斗内 政吉

論 文 内 容 の 要 旨

GaN は、直接遷移型のワイドギャップ (3.4 eV) 半導体材料であり、高い熱伝導率 (1.3 W/cm)、飽和ドリフト速度 (2.7×10^{-7} cm/V)、絶縁破壊電圧 (2×10^6 V/cm)、移動度 (900 cm²/V) を示すことから、高効率短波長 LED、LD といった発光デバイスや、ハイパワーデバイス、高周波デバイスへの応用が期待される。このようなデバイス実現のためには、ホモエピタキシャル成長用基板として使用できる高品質バルク GaN 単結晶が必要であるが未だ実現していない。本研究では、GaN 単結晶成長法として昇華法に着目し、本手法をバルク GaN 単結晶成長技術として確立させることを目的とした。

従来の昇華法における主な問題点は(1)成長速度が遅い、(2)成長が途中で停止し、大型単結晶が得られない、である。

第 2 章では、昇華法において初めて基板ヒーターを導入し、原料温度、基板温度の独立制御を可能にした。(1)成長速度が遅い原因を調べるため、成長速度の基板温度依存性を調査した。その結果、結晶性の良好な GaN が得られる高温 (>1,000℃) では、育成部において GaN の熱分解速度が速いため成長速度が低下することが明らかになった。また、(2)GaN 粉末原料中に含まれる GaN_xHy が枯渇すると成長が途中で停止するという従来の知見についても、本章の実験において、高純度の GaN 粉末のみからでも成長が可能であることを実証し、成長の停止には別のメカニズムが働いていることを示唆した。

第 3 章では、昇華法による GaN 結晶成長を高圧 (N₂ : 500 kPa) 下で行い、結晶の成長速度・結晶性に対する高圧化の効果を検証した。その結果、高圧下では成長速度が大幅に増加し、常圧下では成長しない高温条件においても結晶が成長することを実証した。高温で成長した GaN は優れた結晶性を有し、高圧・高温育成の有用性を示した。

第 4 章では、熱力学的な手法を用いて昇華法で初めて水素化ガリウム (GaH) の存在を明らかにし、これまで未解明であった GaN の昇華法原理の仮説を提案した。その原理は、『成長が途中で停止する』という従来の問題をうまく説明しており、成長の停止が起こらない新しい GaN 単結晶成長 (GaH-VPE) 法の開発に至った。

GaH-VPE 法で得られる結晶は優れた結晶性を示し、また、成長速度も実用化に必要とされる 50 μm/h 以上を達成し、本手法がバルク GaN 単結晶成長技術として有用であることを示した。

第 5 章では、研究全体の総括を行い、結論とした。

論文審査の結果の要旨

本論文は、申請者が課程在学中に実施した、昇華法における窒化ガリウム (GaN) 単結晶成長と、Gallium Hydride Vapor Phase Epitaxy (GaH-VPE) 法の開発に至る研究成果をまとめたものである。将来の高効率白色 LED、高周波、高出力電子デバイスの実現には、安価な低転位 GaN 基板が必要である。安価に GaN 基板を作製するためには、現行のようにウエハ毎に作製するのではなく、Si のようにバルク単結晶から基板を切り出せばよい。しかし、現在、バルク GaN 単結晶成長は実現していない。本研究では、バルク GaN 単結晶成長技術の確立を目標に、昇華法を用いた GaN 単結晶成長を行っている。

第1章において、本研究の目的と意義を明確にしている。

第2章では、従来の昇華法装置に新たに基板ヒーターを導入し、GaN 結晶成長を行っている。従来の昇華法では、結晶性の優れた GaN 単結晶が得られるものの『成長速度が遅い』、『成長が途中で停止する』という問題がある。『成長速度が遅い』原因を調べるため申請者は、結晶の成長速度、結晶性の基板温度依存性を詳細に調べている。その結果から、昇華法では成長と同時に起こる熱分解の影響で速い成長速度が得られないことを明らかにしている。また、昇華法では、GaN 粉末原料中に含まれる GaN_xH_y 不純物が原料であると考えられているが、申請者は、不純物を含まない高純度の GaN 粉末のみから、GaN 結晶の成長が可能であることを実証している。これにより、昇華法における『成長の停止』は、従来報告されている GaH_xH_y 不純物の枯渇によるものではなく、別のプロセスが働いていることが示されている。

第3章では、昇華法による GaN 結晶成長を高圧下で行い、成長速度と結晶性に対する高圧化の効果を検証している。高圧化 (500 kPa) により、結晶の成長速度は大幅に上昇し、最大で $130\ \mu\text{m/h}$ を達成している。これは、現在主流となっている Hydride Vapor Phase Epitaxy (HVPE) 法に匹敵する値である。申請者は、GaN 熱分解速度の圧力依存性を測定することで、高圧下における成長速度の増加は、育成部における GaN 熱分解反応の抑制によるものと結論付けている。また、得られた結晶の (0002) 対称反射の X 線ロックアップカーブ半値幅を測定しているが、高圧で得られた結晶は結晶性が良好であり、高圧昇華法は、成長速度のみならず結晶性の向上に向けても有用であることを示している。

第4章では、昇華法における GaN 結晶成長プロセスの検証と、GaH-VPE 法の開発に至る経緯を述べている。本章において申請者は、 NH_3 中における GaN 粉末重量減少速度の温度依存性を測定し、その活性化エネルギーを文献値と比較することで、昇華法において初めて水素化ガリウム (GaH_x : $x=1, 2$) の存在を明らかにしている。その知見をもとに申請者は、昇華法は GaH_x と NH_3 による CVD 成長法であると結論付けている。またその仮説により、従来問題であった『成長の停止』メカニズムをうまく説明している。

申請者は提案した仮説をもとに、出発原料として GaH_x を用いることで成長の停止が起こらない新たな GaN 単結晶成長 (GaH-VPE) 法を開発している。その方法で得られる GaN は結晶性が優れており、原理的に成長の停止が起こらないため、長時間成長による大型 GaN 単結晶成長が期待できる。また、高効率に GaH_x を生成する“Ga 吸着ビーズ充填カラムユニット”の開発により、 $63\ \mu\text{m/h}$ という実用化レベルの成長速度を達成し、本手法がバルク GaN 単結晶成長技術として有用であることを示している。

以上のように、本論文は昇華法による GaN 成長プロセスの検証を通し、昇華法を応用した新たなバルク GaN 単結晶成長技術として“GaH-VPE”法を開発し、その有用性を示している。他の半導体材料を見ても、バルク単結晶成長技術として確立させるためには、速い成長速度と安定な長時間成長が必須条件であり、それらを満たす本手法は GaN 系半導体デバイスを担う単結晶成長技術として更に発展することが期待される。また、原料として水素化物原料を用いるという本研究の着想点は、GaN 単結晶成長にとどまらず、結晶成長分野に対し新しい概念を導入し得るものである。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。