OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	OVPE 法で作製したGaN 単結晶のフォトルミネッセンス評価
Author(s)	今西, 正幸; 宇佐美, 茂佳
Citation	大阪大学低温センターだより. 2022, 172, p. 9-12
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/87688
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

研究ノート

OVPE 法で作製したGaN 単結晶のフォトルミネッセンス評価

工学研究科　今西　正幸，宇佐美　茂佳
E-mail：imanishi@eei.eng.osaka-u.ac.jp

概　要

我々はNa フラックスポイントシード法により種GaN 結晶を作製し、OVPE法で厚膜成長させる試みを行っている。結晶中の不純物や転位といった欠陥評価のためにはカソードルミネッセンスやフォトルミネッセンスといった発光スペクトルによる評価が必要である。特に低温でのスペクトル解析は電子状態の熱的攪乱を防ぐことができ、より正確な欠陥評価が可能となる。本稿ではOVPE法で作製した透明なGaN 結晶表面において室温PL 観察を行った内容について報告する。

１．はじめに

我々は、Na フラックス法やOxide Vapor Phase Epitaxy（OVPE）法を用いて低転位バルクGaN結晶成長を行っている[1-4]。結晶に含まれる不純物やひずみの解析にはカソードルミネッセンスやフォトルミネッセンスといった発光スペクトルによる評価が有用である。発光のスペクトルによる結晶評価では、評価対象である電子状態の熱的攪乱を防ぐために、極低温での測定が重要とされている。そこで、本研究ではHe-Cd レーザー装置を光源とした325 nm 励起のフォトルミネッセンス（PL）装置を作製し、GaN 結晶における不純物発光について調査している。本稿では１．OVPE 法により、200 um/h の高速成長条件において500 um 厚のGaN 結晶を得ることに成功した、また、２.二次元成長により、平坦かつ透明性の高い結晶が得られることも明らかになった、一方、３．平坦な結晶表面にはヒロックもされたため、不純物濃度の違いをフォトルミネッセンスにより評価を行った内容について説明する。

２．OVPE 法で作製したGaN 結晶の室温におけるPL 発光

近年我々は図1 に示す成長模式図の様に、酸化ガリウム（Ⅰ）をⅢ属原料とし、Ⅴ属源であるアンモニアと反応させる気相成長法、oxide vapor phase epitaxy（OVPE）法に取り組んでいる[4]。当該手法では、結晶成長の過程で転位が収束し、転位密度が10^4 cm^{-2} 台と高品質の結晶が得られる。加えて、酸素を10^{20} cm^{-3} 程度までハイドープすることが可能であり、電気抵抗率が7.75×10^{-4} Ω cm 程度と低抵抗の結晶が得ることができ、縦型デバイス作製の際には有利になる。一方、図2(a)に示す様に酸素不純物の影響で黒色の着色も見られ、光が吸収されてしまう影響もあることから、PL 等による光学特性評価が困難であった。

これまでの取り組みにおいて低温PL により発光強度を増大させ、低温PL 発光スペクトルを得ることに成功している。近年、成長速度の小さい条件においては二次元成長が支配的となり、黒色化

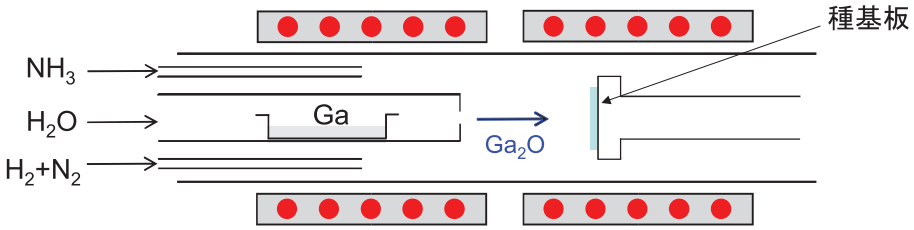

図1.OVPE 法による GaN 結晶成長に用いる装置模式図

を抑制可能であることが分かった。実際に二次元成長で得られた結晶像を図2(b) に示している。従来法で作製した結晶に比べ、透明性が極めて高いことが分かる。しかしながら、結晶表面を微分干渉顕微鏡により観察したところ、図3 に示す様に突起部、即ちヒロックが多数見られることが分かった。そこで、PL 発光よりヒロックが多数存在する原因についての考察を試みた。

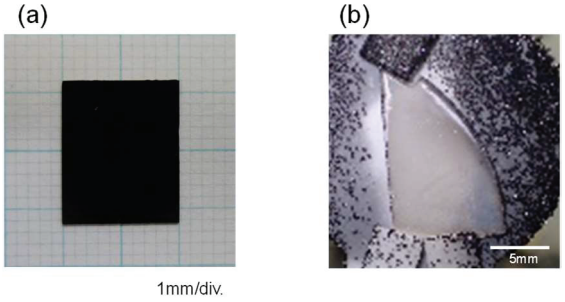

図2.(a) 従来の三次元成長及び (b) 二次元成長により得られた OVPE GaN 結晶像

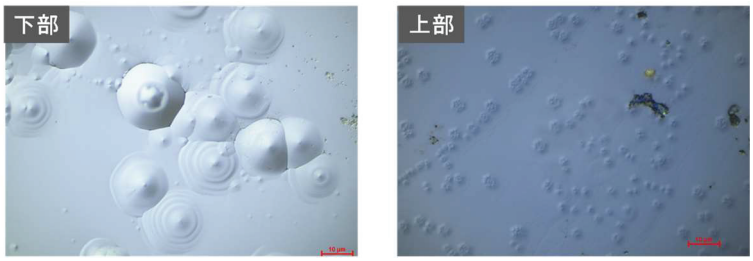

図3. OVPE GaN 結晶表面における微分干渉顕微鏡像

図4 に PL 発光スペクトルを示している。透明性の高い GaN 結晶は従来の黒色 GaN 結晶と異なり、室温でも十分な発光強度を得ることができ、スペクトルも問題なく取得することに成功した。比較として、halide vapor phase epitaxy (HVPE) 法で作製した市販 GaN 結晶の評価も行った。測定は結晶の上部、中部、下部の3 点で実施した。スペクトルにおいて400 nm～450 nm 付近に注目したところ、HVPE 結晶に比べて OVPE GaN 結晶の発光が大きいことが分かる。これは酸素不純物濃度に起因していると考えている。OVPE 法で作製した GaN 結晶の酸素濃度は10^{19}～10^{20} cm^{-3} 台程度であり、10^{16} cm^{-3} 台の HVPE GaN 結晶に比べて極めて高い。530 nm 付近の波長に注目したところ、OVPE GaN 結晶に比べて HVPE GaN 結晶の方が発光強度が高いことも分かった。当該発光波長はイエローミネッセンスと呼ばれ、点欠陥や炭素不純物に起因すると考えられている。すなわち、OVPE GaN 結晶は HVPE GaN 結晶に比べて点欠陥或いは炭素不純物濃度が小さいことを示唆している。

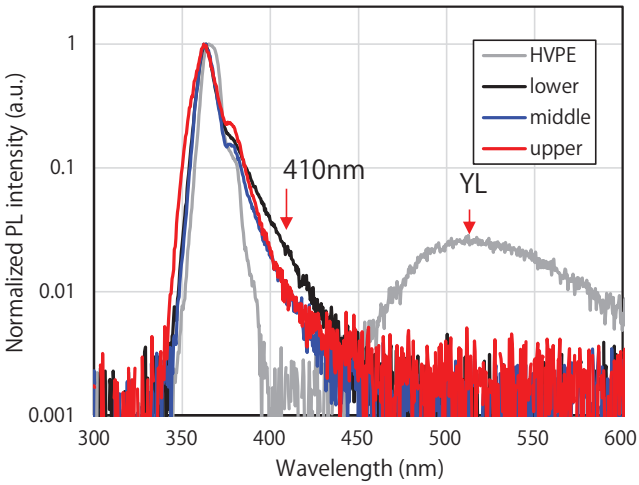

図4. OVPE GaN 結晶及びHVPE GaN 結晶におけるPL 発光スペクトル

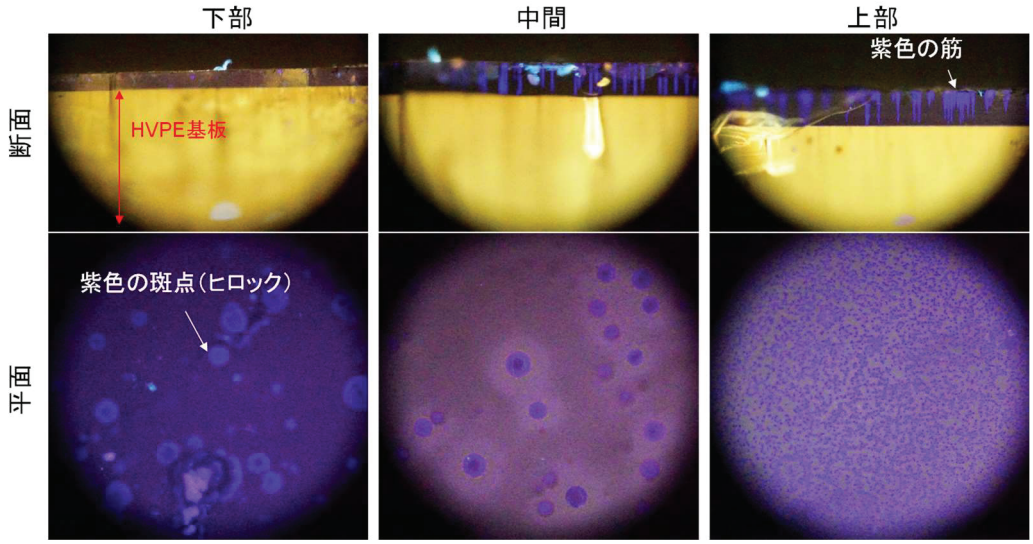

図5. OVPE GaN 結晶における蛍光像

次に、OVPE GaN 結晶の上部、中部、及び下部において蛍光観察を行った。励起光源は上述と同じであるが、紫外光に感度を持たないカメラによりバンド端発光以外の不純物発光像を取得することができる。図5 に示す蛍光像より、ヒロックが他の領域に比べて紫色に発光することが分かった。このことから、ヒロック近傍では酸素といった不純物濃度が他の領域と異なることが明らかになった。断面観察より、ヒロックの紫色発光は種結晶と成長層の界面から発生しており、成長初期に原因があることも分かった。

３．多光子PL によるヒロックの原因分析

ヒロックの形成要因を分析するため、フォーカスの変化により基板表面から裏面にかけてのPL 発光像を取得可能な多光子PL 顕微鏡観察を行った。多光子PL 像を図6 に示している。結晶表面においてヒロックは白色の輝点として観測された。種結晶領域までフォーカスを変化させ。輝点下部を評価したところ、種結晶中に暗点が見られた。暗点は転位における非輻射再結合によるものであり、ヒロックはこの種結晶中の転位を起点として発生したと考えられる。ヒロック抑制の手法としては、

低転位密度の種結晶を使用することが有用であるが、現状転位のない結晶は存在しない。今後は原理的にヒロックを抑制可能な成長条件を探索していく予定である。

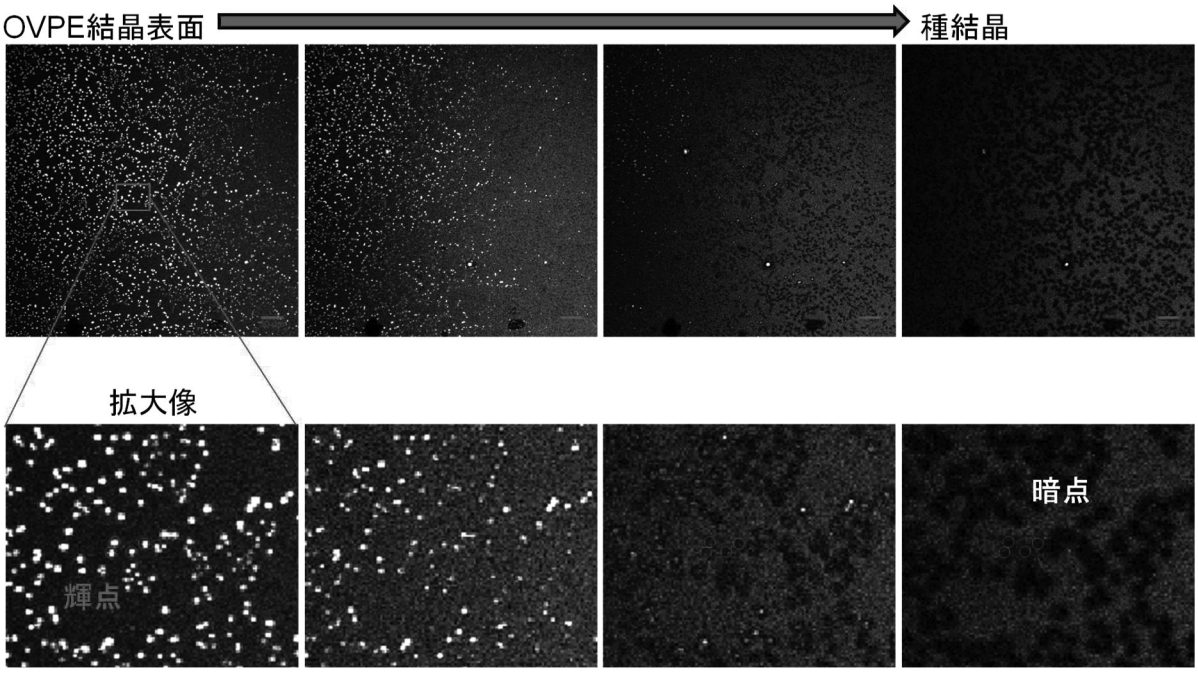

図6. OVPE GaN 結晶表面から種結晶との界面までフォーカスを変化させることで得られた多光子PL 像

参考文献

[1] M. Imade et al., Appl. Phys. Express 7, 035503 (2014).

[2] M. Imanishi et al., Cryst. Growth Des. 17, 2806 (2017).

[3] M. Imanishi et al., Appl. Phys. Express 12, 045508 (2019).

[4] J. Takino et al., Jpn. J. Appl Phys 58, SC1043 (2019).

共同研究者

村上航介（技術職員）、久保等（特任研究員）