



Title	GaNバルク結晶における貫通転位の構造と電気特性に関する研究
Author(s)	濱地, 威明
Citation	大阪大学, 2022, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/88097
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

GaN バルク結晶における
貫通転位の構造と電気特性に関する研究

令和 4 年 3 月

濱地 威明

GaN バルク結晶における
貫通転位の構造と電気特性に関する研究

博士(工学)論文提出先
大阪大学大学院基礎工学研究科

令和4年3月

濱地 威明

本論文の要旨

本論文では、GaN パワーデバイスの実用化に向けた最重要課題の一つである、貫通転位を起源とした逆方向リーク電流発生メカニズムを解明することを目的とし、単一貫通転位箇所への微細ショットキー接触形成並びに定量電気測定技術を確立した上で、個々の貫通転位について、そのショットキー接触の電気特性と、バーガースペクトル (**b**) や種類等の微細構造、伝播形態、周辺の結晶成長様式の関連性を複合的に評価した。特に、高品質 GaN バルク結晶成長手法として期待される Na フラックス成長法をベースとした GaN 基板を評価対象とし、GaN 基板毎にリークしやすい転位を見出した上で、そのショットキー接触におけるリーク電流特性やマルチスケールな構造を解析することにより、転位でリーク電流が生じる本質的メカニズムを探索した。

第 2 章では、エッチピット法、集束イオンビーム加工プロセス、電流検出型原子間力顕微鏡の組み合わせにより、単一の貫通転位直上にショットキー接触を形成し、その電気特性を定量計測できる新しい技術を開発した。これを基軸に、エッチピット法、多光子励起顕微鏡法、透過電子顕微鏡法を有機的に併用し、単一転位のショットキー接触の電気特性、微細構造、伝播形態、転位周辺結晶成長様式を多角的に解析する包括的なアプローチを確立した。

第 3 章では、Na フラックス GaN 基板を用い、不均一な結晶成長様式が転位伝播形態や転位構造、並びにショットキー界面の電気特性に及ぼす影響を調査した。転位部のリーク電流特性が、結晶成長様式に応じて取り込み量が異なる酸素不純物の存在に強く依存することを明らかにした。また、Na フラックス GaN の大部分を占める *c* 面成長領域中にファセットを出しながら成長する結晶領域が突発的かつ局所的に生じることにより、転位の伝播挙動や、転位直上に形成したショットキー界面のリーク特性に多大な影響を及ぼすことが明らかとなり、転位起因のリーク現象を調査する上では、結晶成長履歴にも着目すべきであることを提示した。

第 4 章では、Na フラックス法の発展技術である HVPE on Na フラックス法で育成したハイブリッド GaN 基板を主な対象として、次章からの転位直上ショットキー接触の電気測定に先立ち、転位の **b** と伝播挙動及びこれらと結晶成長用式の関連性を探索した。エッチピット法、透過電子顕微鏡法、多光子励起顕微鏡法を組み合わせた系統的かつ精密な構造解析からエッチピットサイズと **b** の一対一対応関係を見出し、これを基盤に、転位の **b** と伝播形態の関連性を統計解析した。この結果、貫通転位は **b** に依存した一様な形態でバルク結晶中を伝播することが明らかとなり、特に、GaN 結晶中貫通

転位の 90%以上を占める 3 つの **b** を有する転位については、**b=1a** 及び **1a+1c** の刃状及び混合転位が、結晶成長モホロジー、**b**、転位線方向で決まる弾性エネルギーを最小化する方向に傾きながら伝播すること、並びに **b=1c** のらせん転位が点欠陥との反応を介して蛇行しながら伝播することを実験的かつ理論的に示した。これらの貫通転位の起源についても探索し、抑制指針を提示した。

第 5 章では、第 4 章で調査したハイブリッド基板を対象に、複数の転位部エッチピット箇所、及び貫通転位のない表面領域に形成した微小ショットキー接触部において、室温における電流-電圧測定と電流-電圧-温度測定を行い、転位がショットキー接触の電気伝導に及ぼす影響を解析した。その結果、**b** に **c** 成分を有する大多数の転位部ショットキー接触においては、順方向及び逆方向電気特性が **b** に依らずほぼ同様であり、ショットキー障壁の減少や逆方向リーク電流特性にほとんど影響しないことが明らかとなった一方で、異常に大きなリーク電流を生じる転位が極少数存在することが明らかとなった。また、比較的小さなリーク特性を示した転位部では、そのピットサイズ（すなわち **b**）に依らず、転位のない表面に作製したショットキー接触と同様の順方向及び逆方向電気伝導機構であった一方で、異常に大きなリーク電流が生じたピット電極では、順方向・逆方向共に、小さなリーク電流が生じた他のピット電極とは異なる電気伝導機構となり、特に、特異なトラップ準位を介した電気伝導が、過量の逆方向リーク電流及び特異な順方向電気特性の主原因であることを示した。

第 6 章では、第 5 章にて電気測定を実施したピット電極直下における貫通転位の伝播形態や微細構造を解析し、各転位部ショットキー界面における電気特性との相関性を探索した。各転位についてショットキー接触の障壁高さ及びリーク電流と伝播形態の相関を統計的に解析した結果、伝播形態はこれらの電気特性にほぼ影響しないことが示された。一方、第 5 章にて見出された異常に大きなリーク電流を示した転位は **b=1c** を有するらせん転位と判明し、さらに、その **b** や伝播形態がその他大多数の標準的なリーク特性を示したらせん転位と同様であることが明らかとなった。故に、一部のらせん転位で異常に大きなリーク電流が生じた原因は、結晶成長過程でらせん転位が点欠陥と反応する過程で、極少数のらせん転位芯でのみ原子構造が特異的に変化したことに由来する可能性が高いと結論付けた。

これらの結果より、GaN パワーデバイスにおけるキラ欠陥の完全抑制を果たす上では、結晶成長様式の突発的な乱れを抑制すること、らせん転位密度を低減すること、らせん転位と点欠陥との反応を制御することが鍵であり、バルク結晶成長プロセスとデ

バイス開発プロセスの両輪の技術向上が不可欠であることが示唆された。同時に、極一部のらせん転位を除く大多数の貫通転位は、バーガースベクトルや伝播形態に依らず、ショットキー界面の電気伝導にほとんど影響しないというポジティブなフィードバックも提示された。また、本研究の中で確立された、ピットサイズ、**b**、伝播様式の対応関係は、GaN結晶中の非破壊・簡易的欠陥識別技術や、GaN結晶成長過程における転位伝播制御技術の基礎的なデータベースとして有用である。これらの成果は、GaNパワーデバイス分野の発展に貢献する重要なフィードバックとなる。

目次

第 1 章 序論	1
1.1. 地球温暖化とエネルギー問題	1
1.2. 化合物パワー半導体	3
1.3. 炭化ケイ素 (SiC: Silicon carbide)	8
1.3.1. SiC の特徴とパワーデバイス開発動向及び一般的課題	8
1.3.2. SiC パワーデバイスに及ぼす格子欠陥の影響	9
1.4. 窒化ガリウム (GaN: Gallium nitride)	13
1.4.1. 発光デバイス	14
1.4.2. 横型パワーデバイス	16
1.4.3. 縦型パワーデバイス	21
1.4.4. GaN バルク結晶成長法	24
1.4.5. GaN パワーデバイス実用化に向けた主要課題	32
1.5. GaN 結晶中の転位	35
1.5.1. 転位の分類	35
1.5.2. 逆方向リーク電流源となる貫通転位構造に関する研究動向と課題	37
1.6. 本研究の目的と本論文の構成	49
参考文献	52
第 2 章 貫通転位の包括的物性解析アプローチの構築	63
2.1. はじめに	63
2.2. 単独貫通転位における定量的電気特性評価技術の構築	63
2.2.1. ウェットエッチング及び FIB を用いた貫通転位部ショットキー接触形成 ...	65
2.2.2. C-AFM による電気測定	69
2.3. 転位の微細構造及び伝播形態と結晶成長様式の評価	72
2.3.1. エッチピット法	72
2.3.2. 多光子励起顕微鏡 (MPPL) 法による転位伝播及び結晶状態の観察	76
2.3.3. 透過電子顕微鏡 (TEM) 法	77

2.4. 小括	81
参考文献	82
第 3 章 結晶成長様式が貫通転位の電気特性に及ぼす影響	85
3.1. はじめに.....	85
3.2. MPS 法による Na フラックス GaN バルク結晶中の貫通転位の評価	86
3.2.1. MPS 法による Na フラックス GaN バルク結晶	86
3.2.2. 結晶領域別貫通転位の電気特性解析	88
3.2.3. 転位種の同定	96
3.3. MPS 法及び FFC 法による Na フラックス GaN バルク結晶中の貫通転位の調査	98
3.3.1. MPS 法及び FFC 法による Na フラックス GaN バルク結晶	98
3.3.2. C-AFM による貫通転位の電気特性評価.....	99
3.3.3. 貫通転位の TEM 観察	102
3.3.4. MPPL による貫通転位周辺結晶状態の解析	105
3.3.5. μ -FGS における貫通転位のリーク特性.....	108
3.3.6. μ -FGS における貫通転位の構造解析	112
3.3.7. 転位構造とリーク特性の関連性	114
3.3.8. 転位のバーガースベクトルとリーク特性の関連性	116
3.3.9. μ -FGS における貫通転位の伝播挙動	120
3.4. 小括	123
参考文献	125
第 4 章 HVPE-GaN バルク結晶における転位の伝播挙動	127
4.1. はじめに.....	127
4.2. 評価サンプルと実験アプローチ	128
4.2.1. 評価サンプル	128
4.2.2. 実験アプローチ	128
4.3. 貫通転位のエッチピットサイズとバーガースベクトルの対応関係	129
4.3.1. エッチピット形状と分布	129

4.3.2. ピット形状別の微細転位構造及び転位種の解析	131
4.3.3. LACBED による転位のバーガースベクトル解析	134
4.3.4. Lピット直下における貫通転位芯の平面 STEM 観察	138
4.4. HVPE-GaN バルク結晶における転位の伝播挙動	140
4.4.1. ヒロックの存在	140
4.4.2. エッチピットサイズと転位伝播挙動の関連性	142
4.4.3. 蛇行転位の形態的特徴	144
4.4.4. 蛇行転位のヘリカルメカニズム	147
4.4.5. 直線的転位の傾斜特性とヒロックが転位傾斜に及ぼす影響	153
4.4.6. $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 及び $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ 転位の傾斜方位とバーガースベクトルの関係	156
4.4.7. 弾性論に基づく転位傾斜の理論計算	159
4.4.8. 他の転位傾斜メカニズムの検討	164
4.5. Na フラックス基板上 HVPE-GaN バルク結晶における転位の起源	168
4.6. 小括	176
参考文献	178
第 5 章 ハイブリッド基板の単独貫通転位における電気伝導機構	181
5.1. はじめに	181
5.2. 評価サンプルと実験アプローチ	183
5.2.1. 評価サンプル	183
5.2.2. 実験アプローチ	183
5.3. ピット電極及び flat 電極における室温下の電気特性	185
5.4. ピット電極及び flat 電極における順方向 I - V - T 特性の解析	188
5.5. flat 電極における逆方向 I - V - T 特性の解析	199
5.6. ピット先端電界強度の算定	206
5.6.1. シミュレーションによる電界強度の計算	206
5.6.2. 逆方向 I - V - T 特性解析によるピット先端電界強度の算定	212
5.7. ピット電極における逆方向 I - V - T 特性の解析	214
5.7.1. 低温領域(A)	214

5.7.2. 高温領域(B)	215
5.7.3. #M66 における高温領域(C)	218
5.8. トラップ準位の起源	220
5.9. 貫通転位における順及び逆方向電気伝導メカニズムの統一的議論	223
5.10. 異なるサイズを有するピット電極間のリーク電流度合いの比較	225
5.11. ピット電極と flat 電極間のリーク電流の差異	227
5.12. ピット電極と flat 電極間のショットキー障壁高さの違いの原因	229
5.13. 小括	231
参考文献	235
第 6 章 貫通転位の伝播形態及び微細構造と電気特性の関係	239
6.1. はじめに	239
6.2. 貫通転位の伝播形態とショットキー接触における電気特性の相関性	239
6.2.1. S ピット	239
6.2.2. M ピット	241
6.2.3. L ピット	246
6.3. TEM による微細構造解析	248
6.3.1. S ピット	250
6.3.2. L ピット	250
6.3.3. M ピット	253
6.4. $\mathbf{b=1c}$ らせん転位のキラ欠陥化メカニズム	259
6.5. 小括	266
参考文献	269
第 7 章 総括	271
7.1. 本研究で得られた成果	271
7.2. 残された課題と今後の展望	276
参考文献	283
謝辞	285

業績一覧	287
Appendix	295
A.1. flat-Na-GaN における貫通転位の TEM 解析結果.....	295
A.2. flat-Sa-GaN における貫通転位の TEM 解析結果	298
A.3. FNT 機構に基づく電界補正係数 p_F の算出.....	303
A.4. ハイブリッド基板における貫通転位の LACBED 解析	307

略語表

略語

完全表記

AFM	Atomic force microscopy
BEEM	Ballistic electron emission microscopy
BPD	Basal plane dislocation
BR	Boundary region between the c-plane growth sector and faceted growth sector
b	Burgers vector
C-V	Capacitance-voltage
CARE	Catalyst-referred etching
CL	Cathodoluminescence
CMP	Chemical mechanical polish
CBR	Coalescence boundary region between faceted growth sectors
C-AFM	Conductive atomic force microscopy
CBED	Convergent-beam electron diffraction
<i>c</i> GS	<i>c</i> -plane growth sector
DLTS	Deep level transient spectroscopy
DEEP	Dislocation elimination by the epitaxial-growth with inverse-pyramidal pits
DA	Double apex
EELS	Electron energy loss spectroscopy
EM	Emission microscopy
EDS	Energy dispersive x-ray spectroscopy
EP	Etch pit
ehp	Extra half plane
FGS	Faceted growth sector
FinFET	Fin field effect transistor
FOLZ	First-order Laue zone
FFC	Flux-film-coated
FIB	Focused ion beam
FNT	Fowler-Nordheim tunneling

GaN	Gallium nitride
GIT	Gate injection transistor
HFET	Hetero structure field effect transistor
HEMT	High electron mobility transistor
HOLZ	Higher-order Laue zones
HIG	High-inclination-group
HVPE	Hydride vapor phase epitaxy
In	Indium
IGBT	Insulated gate bipolar transistor
IC	Integral circuit
<i>I-V</i>	Current-voltage
<i>I-V-T</i>	Current-voltage-temperature
JBS	Junction barrier diode
LACBED	Large-angle convergent-beam electron diffraction
LD	Laser diode
LEO	Lateral epitaxial overgrowth
LED	Light emission diode
LIG	Low-inclination-group
MP	Mechanical polishing
MIG	Medium-inclination-group
MOVPE	Metalorganic vapor phase epitaxy
MOS	Metal-oxide-semiconductor
MOSFET	Metal-oxide-semiconductor field effect transistor
μ -FGS	Microscale faceted growth sector
MBE	Molecular beam epitaxy
MPPL	Multi photon excitation photoluminescence
MPS	Multipoint-seed
MPSC	Multipoint-seed-coalescence
nanoXRD	Nanobeam x-ray diffraction
PL	Photoluminescence
Pt	Platinum
PND	PN diode

PF	Poole-Frenkel
r-FIELO	Random-island facet-initiated epitaxial lateral overgrowth
RTA	Rapid thermal annealing
SEM	Scanning electron microscopy
SPM	Scanning probe microscopy
STEM	Scanning transmission electron microscopy
STM	Scanning tunneling microscopy
SWLIM	Scanning white light interference microscope
SBD	Schottky barrier diode
SIMS	Secondary ion mass spectrometry
SOLZ	Second-order-Laue zone
Si	Silicon
SiC	Silicon carbide
SCLC	Space charge limited current
s-FIELO	Stripe facet-initiated epitaxial lateral overgrowth
TE	Thermionic emission
TFE	Thermionic filed emission
TED	Threading edge dislocation
TMD	Threading mixed dislocation
TpSD	Threading pure screw dislocation
TSD	Threading screw dislocation
TEM	Transmission electron microscopy
TAT	Trap-assisted tunneling
2DEG	Two-dimensional electron gas
VAS	Void-assisted separation
V_{Ga}	Gallium vacancy
$(V_{\text{Ga}}\text{-O})$ complex	Complex defect consisting of gallium vacancies and oxygen atoms
ZOLZ	Zeroth-order Laue zone

第1章 序論

1.1. 地球温暖化とエネルギー問題

産業革命以降、地球の温度は上昇の一途を辿り、とりわけ、ここ数十年でその進行度は加速している(図 1-1)¹。このような地球温暖化現象は、ここ数年、世界中で多くの異常気象を巻き起こしている。気温上昇による熱中症や、海水温上昇に伴う記録的豪雨、巨大ハリケーン等により世界で多くの人命が失われた。日本でも 2021 年 7 月、静岡県での集中豪雨に伴う土砂災害により、甚大な被害が生じたことも記憶に新しい。温暖化の被害は人類社会に留まらない。気温上昇により世界中で多くの生物が絶滅の危機に瀕しており、生態系の崩壊が危惧されている。近年の記録的な高温によってアメリカや、カナダ、オーストラリアなどで生じた大規模な山火事でも、実に多くの動植物の命が奪われた。もはや、地球温暖化は人類が避けては通れない喫緊の社会課題である。

2015 年、国連気候変動枠組条約締約国会議(COP21)にて、地球温暖化防止の法的合意「パリ協定」が合意された。その中では、世界の平均気温上昇を産業革命以前の気温+2°C以下に保ち、かつ 1.5°C以下に抑える努力をすることが目標に掲げられ、全ての参加国に 2020 年以降の温室効果ガス削減・抑制目標を定めることが義務付けられた²。その後、2018 年に国連の気候変動に関する政府間パネル(IPCC)が作成した「Global warming of 1.5°C」特別報告書において、産業革命以降の人為的な温室効果ガスによって既に 1°Cの温度上昇が生じており、現状の進行速度では、2030 年～2050 年に+1.5°Cに到達すると明記された。気候変動を 1.5°C以下に抑制するためには、2010 年と比べて、2030 年までに CO₂ 排出量を約 45%削減し、2050 年までに、正味ゼロにする必要があると指摘されている³。

CO₂ 排出量の削減には、まず創エネルギー分野の技術革新が重要である。長年、我々の経済や生活は石炭、石油、天然ガスといった化石エネルギーに依存してきたが、これらの発電には大量の CO₂ 排出を伴う。温暖化の課題解決に向けて、これら化石燃料による発電を、CO₂ 排出が伴わない太陽光や水力、地熱などを利用した再生可能エネルギーに代替することが強く求められる。さらに、化石燃料の資源はあと数十年で枯渇すると言われており、この観点からも、化石エネルギーに頼った電力構成を再生エネルギーに置き換えていくことが急がれる。再生可能エネルギーの技術発展は、

第1章 序論

温室効果ガス削減の観点のみならず、化石燃料枯渇問題の観点からも重大な課題である⁴。

一方、生成されたエネルギーを限りなく効率的に利用すること、すなわち省エネルギー分野の技術革新も重要な課題である。発電所で生成された電力は、送電線、変電所を経て我々の身の回りから工場や鉄道のようなインフラに供給され、利用される。その間、電力は様々な電圧、電流、周波数等に変換されており、省エネルギーのためにはこの電力変換時の損失を出来る限り抑えることが重要となる。このような電力変換を行う電力変換機器の中でその根幹的機能を担う素子が、半導体を基材としたパワーデバイスである。つまり、超低消費電力社会を実現するにはこのパワーデバイスのより一層の高効率化を果たすことが不可欠であり、そのためには半導体材料(パワー半導体)の更なる発展、すなわち、次世代の化合物パワー半導体技術の躍進がカギを握る。

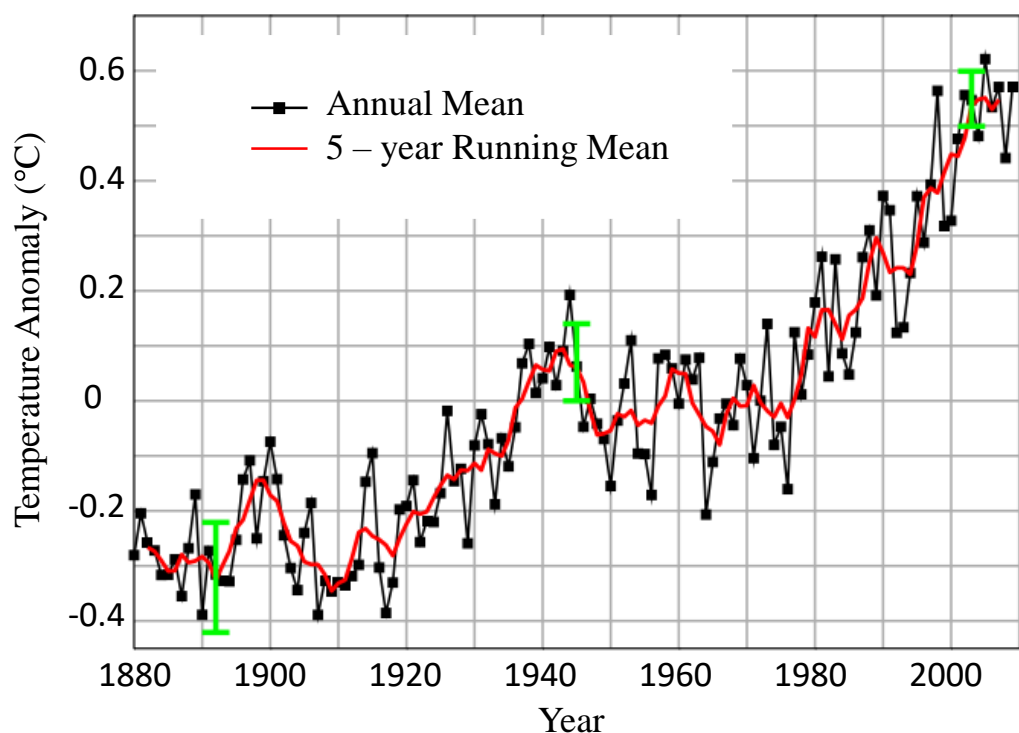


図 1-1 地球の温度変動¹。参考文献[1]を一部改変して掲載。

1.2. 化合物パワー半導体

パワーデバイスとは、素子を流れるキャリアが電子もしくは正孔のみか、電子正孔両方なのかによって、ユニポーラデバイスとバイポーラデバイスに分類される。基本的に、MOSFET (Metal-oxide-semiconductor field effect transistor) や SBD (Schottky barrier diode) に代表されるユニポーラデバイスは、スイッチオンになる閾値電圧が低く、高周波動作に強いが、キャリアが電子・正孔のいずれか一方であるために、オン抵抗は高い。一方で、バイポーラデバイスは、閾値電圧が高いものの、電子・正孔キャリアに依る伝導度変調効果によって低オン抵抗を実現できるため、大きな電力変換に向く。しかし、オンからオフへの切り替え時にはリカバリー電流によるスイッチング損失が発生するため、高周波動作には弱い。

電力変換技術は、情報通信、家電、自動車、産業、鉄道、発電、電力系統装置等、実に幅広い分野で求められ、その定格電圧・電流範囲は数十～数千 V、数百 mA～数 kA にまで及ぶ(図 1-2)⁵。故に、電力容量や周波数に関わる各種デバイスの強み弱みを考慮したうえで、用途に応じて適切にパワーデバイスを選定する必要がある。現状では、比較的小さな電力で高周波動作が求められる PC などにはパワー MOSFET、数百 V 以上の耐圧が求められる自動車や鉄道などには絶縁ゲート型バイポーラトランジスタ (IGBT : Insulated gate bipolar transistor)、送配電設備のような大電力を扱うデバイスには数 kV 以上の耐圧を実現できるサイリスタや GTO (Gate turn-off thyristor) が主に使用されている(図 1-3)。

従来、これらパワーデバイスの基板材料にはシリコン (Si: Silicon) が用いられてきた。Si は現存する半導体結晶の中で、転位と呼ばれる線状欠陥のないウェハを実現できる唯一の半導体である。高品質かつ大口径面積を有するウェハ作製技術を土台に、数十年に渡るデバイスプロセスの研究がなされている。現在では圧倒的なコストパフォーマンスを誇る種々のパワーデバイスが実用化され、長らくパワー半導体市場を席卷している。しかしながら、Si 製パワーデバイスを基盤とする現状の電力変換機器の電力変換効率は、一般的に 85-95%と言われている。この値は一見高効率にも感じ得るが、約 10%のエネルギーが熱として失われていることを考えると、十分に高い効率であるとは言えない⁵。高効率化のため、さらなる低損失化が求められるが、Si 製パワー半導体技術は既に成熟しており、今後の飛躍的な性能・効率の向上は見込みづらくなっている。このような状況を打破すべく、Si の物性を上回る新たなパワー半導体候補として、炭化ケイ素 (SiC: Silicon carbide) や窒化ガリウム (GaN: Gallium nitride) のような化合

物パワー半導体に白羽の矢が立っている。

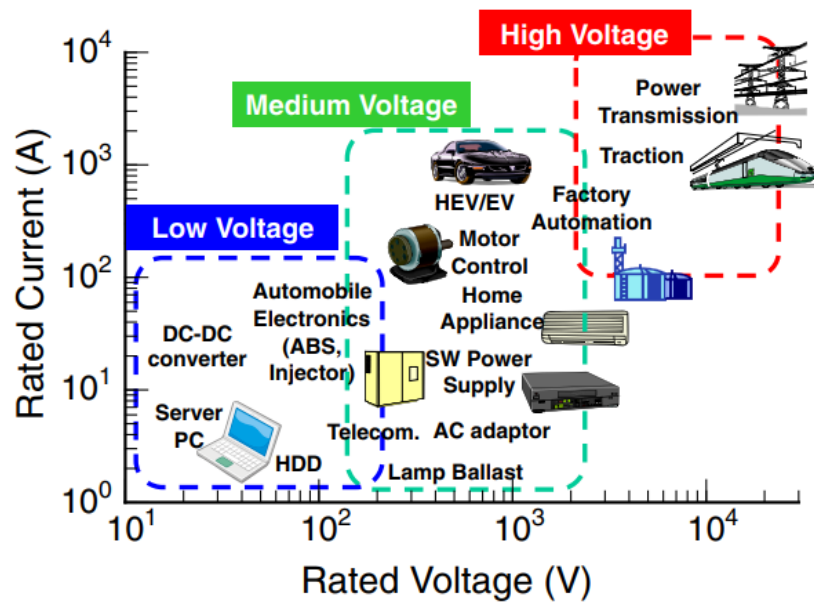


図 1-2 パワーデバイスの定格電圧別応用領域⁵。

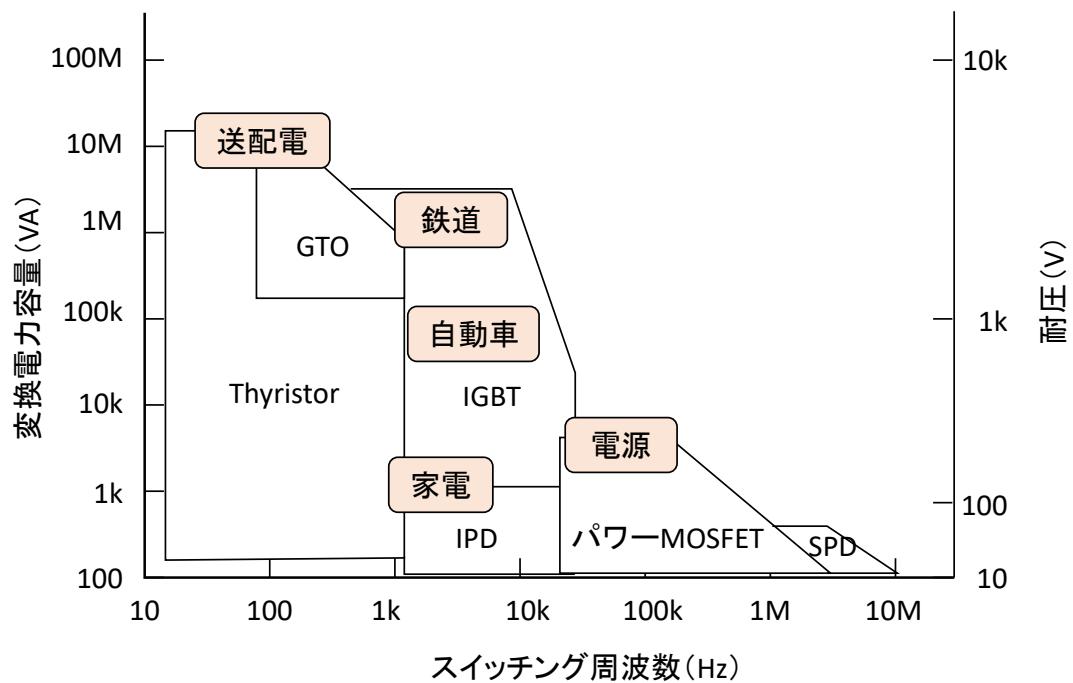


図 1-3 変換電力容量とスイッチング周波数別のパワーデバイス用途。

第1章 序論

表 1-1 に Si、4H-SiC (以下、SiC と呼ぶ)、GaN の諸物性値を示す。SiC や GaN は Si よりも約 3 倍も広いバンドギャップを有している。これらの化合物パワー半導体はワイドバンドギャップ半導体とも呼ばれ、Si の約 10 倍の絶縁破壊電界強度 (E_c) を誇っている。この特徴は、パワーデバイスにおいて一般的に問題視される「耐圧とオン抵抗のトレードオフ関係」の解消に繋がる。ドリフト層を含む非パンチスルーユニポーラデバイスにおいて、ドリフト層にかかる電界は、図 1-4 のようにドナー濃度 (N_D) で決まる傾きを持った分布となる。ドリフト層膜厚を、アノード界面電界強度が E_c となる際の空乏層幅 (W_D) と同じ厚さとなるよう設計した場合、ドリフト層におけるオン抵抗 (R_{on}) 及びデバイスの絶縁破壊電圧 (V_B) は

$$R_{on} = \frac{W_D}{q\mu_n N_D} \quad (1.1)$$

$$V_B = \frac{W_D E_c}{2} \quad (1.2)$$

で表される。ここで、 q 、 μ_n はそれぞれ電荷素量と電子移動度である。これらの式から、下記の関係式が導かれる。

$$R_{on} = \frac{4V_B^2}{\varepsilon_s \mu_n E_c^3} \quad (1.3)$$

ε_s は半導体の誘電率である。図 1-5 は、式 (1.3) で求まる Si と GaN の絶縁破壊電圧とオン抵抗の関係で、別名ユニポーラリミットと呼ばれるグラフである。どちらも右肩上がりになっているが、これは、耐圧を稼ぐために絶縁破壊電圧の高いデバイスを作ろうとすると、オン抵抗が増加し電力消費が大きくなってしまうことを意味し、いわゆる「耐圧とオン抵抗のトレードオフ関係」を示している。しかしながら、GaN の曲線は Si の理論値よりもかなり低い位置に存在することがわかる。つまり、同じ絶縁破壊電圧値で比べた場合、GaN の方が、約 1/1000 も低いオン抵抗を実現できる。故に、GaN や SiC のようなワイドバンドギャップ半導体を用いれば、Si デバイスで顕著なトレードオフ関係を解消し、より高耐圧かつ低消費電力なデバイスの実現が可能となる。

また、ワイドバンドギャップ半導体は、高温でもキャリアが熱的励起されづらく、高温動作が可能となる。そのため、電力変換システムの冷却装置を簡素化でき、消費電力削減だけでなく省スペース化も達成できる。また、これら化合物パワー半導体は Si よりも 2~3 倍の電子飽和速度を有することから、高速動作も可能である。この特徴は、パワーデバイスのスイッチング損失を低減し、電力変換効率を高めるのみならず、インダクタやキャパシタ等の受動素子の小型化にも繋がる。このように、化合物パワー半導体の魅力は、パワーデバイス自体の性能向上をもたらすだけでなく、周辺機器をも含む

パワーエレクトロニクスシステム全体としての高効率化に期待できる点にある。

表 1-1 Si、4H-SiC、GaN の物性値。

	Si	4H-SiC	GaN
Crystal structure	Diamond	4H	Wurtzite
Lattice constant (Å)	5.43	a = 3.09 c = 10.08	a = 3.19 c = 5.19
Bandgap (eV)	1.12	3.26	3.42
Electron mobility (cm ² /Vs)	1500	1000 (⊥ c) 1200 (∥ c)	1300 (bulk) 2000 (2DEG)
Hole mobility (cm ² /Vs)	450	120	20
Electron saturation velocity (cm ² /Vs)	1	2.2	2.7
Critical electric field (MV/cm)	0.3	2.8	3
Thermal conductivity (W/Kcm)	1.5	4.9	1.3
Relative dielectric constant	11.9	9.7 (⊥ c) 10.2 (∥ c)	9.5 (⊥ c) 10.4 (∥ c)

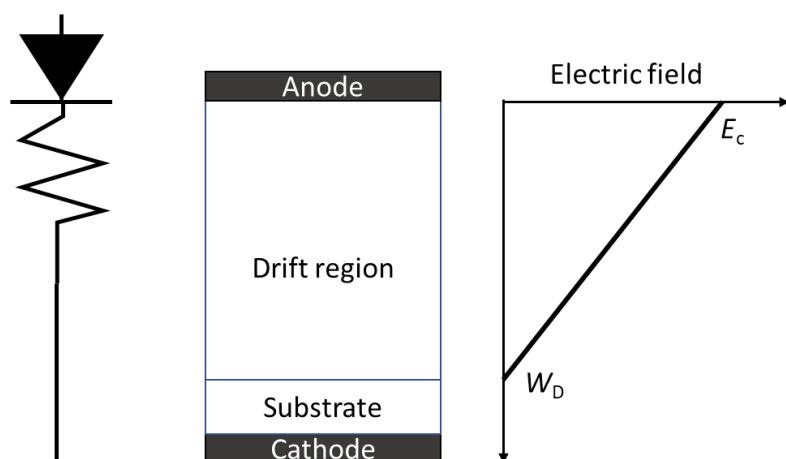


図 1-4 理想的なドリフト層を持つユニポーラデバイスと電界分布。

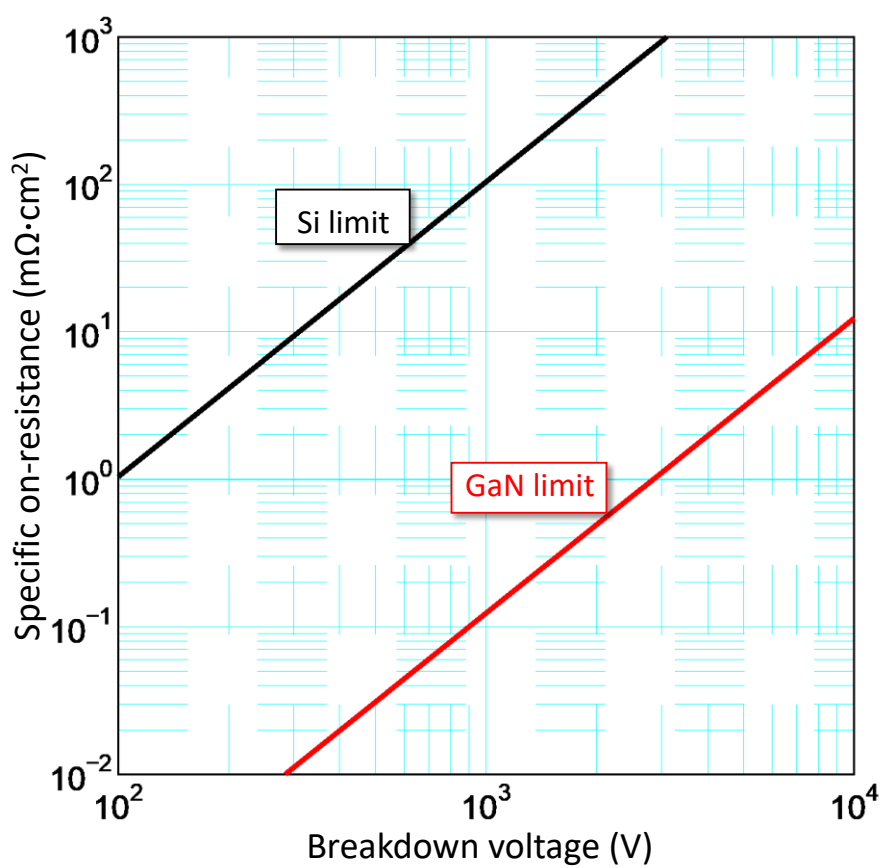


図 1-5 ユニポーラリミット: 絶縁破壊電圧とオン抵抗の関係。

1.3. 炭化ケイ素 (SiC: Silicon carbide)

1.3.1. SiC の特徴とパワーデバイス開発動向及び一般的課題

SiC は IV-IV 族の化合物半導体であり、結晶多形を有することが知られている。代表的な構造には 3C-SiC、6H-SiC、4H-SiC が挙げられ、パワーデバイスとして現在主流に用いられている構造は 4H-SiC である⁵。4H-SiC のバンドギャップは 3.26 eV であり、絶縁破壊電界強度も約 2.8 MV/cm と高く、高温下でも安定した材料であることから、Si 製パワーデバイスを代替する次世代パワー半導体候補として、GaN に先行して研究開発が進んできた。SiC パワーデバイスが期待される応用領域は、図 1-2 及び図 1-3 中の特に数百 V 以上の中～高耐圧領域といわれている。例えば、600~6500 V 領域においては現状バイポーラデバイスである Si-IGBT が使用されている。SiC を用いれば、同耐圧領域を SiC-MOSFET でカバーできる。SiC-MOSFET はユニポーラデバイスではあるものの、Si-IGBT よりもオン抵抗が低く、ユニポーラ故にリカバリー電流が無くスイッチング損失も少ない。そのため、Si-IGBT を SiC-MOSFET で代替できれば、より高効率かつ高周波動作が可能となり、それに伴い周辺機器の小型化も実現できる。

1990 年台に 35 mm 径であったウェハは、約 30 年に渡るバルク結晶及びエピタキシャル(エピ)成長の技術進展により、現在では貫通転位密度が 10^3 cm^{-2} 台にまで低減された 4~6 インチの大口径なウェハが市販されている⁷⁻¹⁶。2001 年に耐圧 600 V 以下、定格電流が数アンペアの SiC-SBD が初めて市販され¹⁷、その後 2010 年台に入って SiC-MOSFET が市場に投入された¹⁸。現在ではさらに耐圧が向上しており、SBD では 600~1200 V 級、MOSFET では 650~1700 V 級の製品が展開されている¹⁹。近年は、これら SiC 製パワーデバイスの社会実装が着々と進み、2014 年には日本の小田急線の鉄道にフル SiC インバータが搭載された²⁰。自動車業界でも SiC 製パワーデバイスの実装が始まっており、2019 年にはアメリカの TESRA が電気自動車に SiC を本格採用し、2020 年にはトヨタ自動車も SiC 製パワーモジュールを搭載した燃料電池自動車 MIRAI の販売を開始している。6500 V 以上の高耐圧用途に期待される SiC-PIN や SiC-IGBT の研究開発も進んでおり、研究開発レベルでは 10 kV 以上の耐圧を誇るデバイスも実証されており、実用化に期待がかかっている²¹⁻²⁷。

SiC パワーデバイスが抱える大きな課題には、電子・正孔対再結合エネルギー誘起積層欠陥による順方向特性劣化現象²⁸⁻³⁰、MOS 界面での低いチャネル移動度^{31,32}、ゲート電圧印可に伴う閾値シフト現象³³などが挙げられる。また、無転位の Si ウェハと

比較すると、基板中には貫通転位等の格子欠陥がまだまだ多く残存している。これが SiC パワーデバイスの性能や信頼性を揺るがしていることは間違いなく、結果的にチップコストの高止まりに繋がっている。今後の SiC の更なる普及には、デバイス性能の土台となるバルク結晶成長技術の革新的な進展が不可欠であると言える。

1.3.2. SiC パワーデバイスに及ぼす格子欠陥の影響

基板結晶中やエピ成長層に存在する格子欠陥は、デバイスの性能に多大な影響を与え、中でも、デバイス特性の致命的劣化を引き起こす欠陥をキラ欠陥と称する。基板中に多くの格子欠陥が残存する化合物パワー半導体においては、デバイスの信頼性を高めて実用化に繋げるためには、キラ欠陥の種類・構造や起源を解明し、それを抑制していくことが不可欠である。GaN に先行してパワーデバイス開発が進んできた SiC においては、基板結晶・エピ成長で発生する格子欠陥の構造や発生メカニズム、各欠陥がデバイスに及ぼす影響がかなり明確になっている。近年では SiC パワーデバイスの信頼性が向上し、社会実装を進める段階にまで到達したが、この SiC 半導体技術の発展は、キラ欠陥とデバイス動作に関する数多くの研究データと、それに基づくプロセス技術の進化によって支えられていると言っても過言ではない。本節では、SiC パワーデバイスにおける、格子欠陥とデバイス特性の関係性について簡単にまとめる。

表面欠陥

4H-SiC 基板上エピ成長層表面にはマクロな表面欠陥が形成されることが知られている。代表的な表面欠陥には、バーガースベクトル \mathbf{b} が単位格子の c 軸方向の基本格子ベクトル \mathbf{c} の 3 倍の大きさである $\mathbf{b}=3\mathbf{c}$ 以上の大きなバーガースベクトルを持ち、中空状芯構造を持つ直線的貫通らせん転位の一種であるマイクロパイプ³⁴ や、多結晶 SiC パーティクルであるダウンフォール³⁵、ステップフロー成長時に生じる Carrot³⁵、Comet³⁵、Triangular 欠陥³⁷ などが挙げられる(図 1-6)。これらは、4H-SiC の SBD や JBS (Junction barrier diode) などのパワーデバイスにおいて、逆方向の耐圧低下やリーク電流の増大を引き起こすキラ欠陥となることが知られている³⁴⁻³⁸。現在では、マイクロパイプが全く存在しないウェハ作製技術が確立され、市販化されている³⁹。また、ダウンフォールについても、結晶成長時にパーティクルが混入しないような装置開発やプロセス開発などの対策が進んでいる。Carrot、Comet、Triangular 欠陥はウェハ表面の研磨ダメージや貫通転位を起因として発生するため、化学機械研磨(CMP:

Chemical mechanical polish) や触媒基準エッチング法 (CARE: Catalyst-referred etching)⁴⁰ のようなダメージレスな表面平坦化プロセス開発が進んでいる。

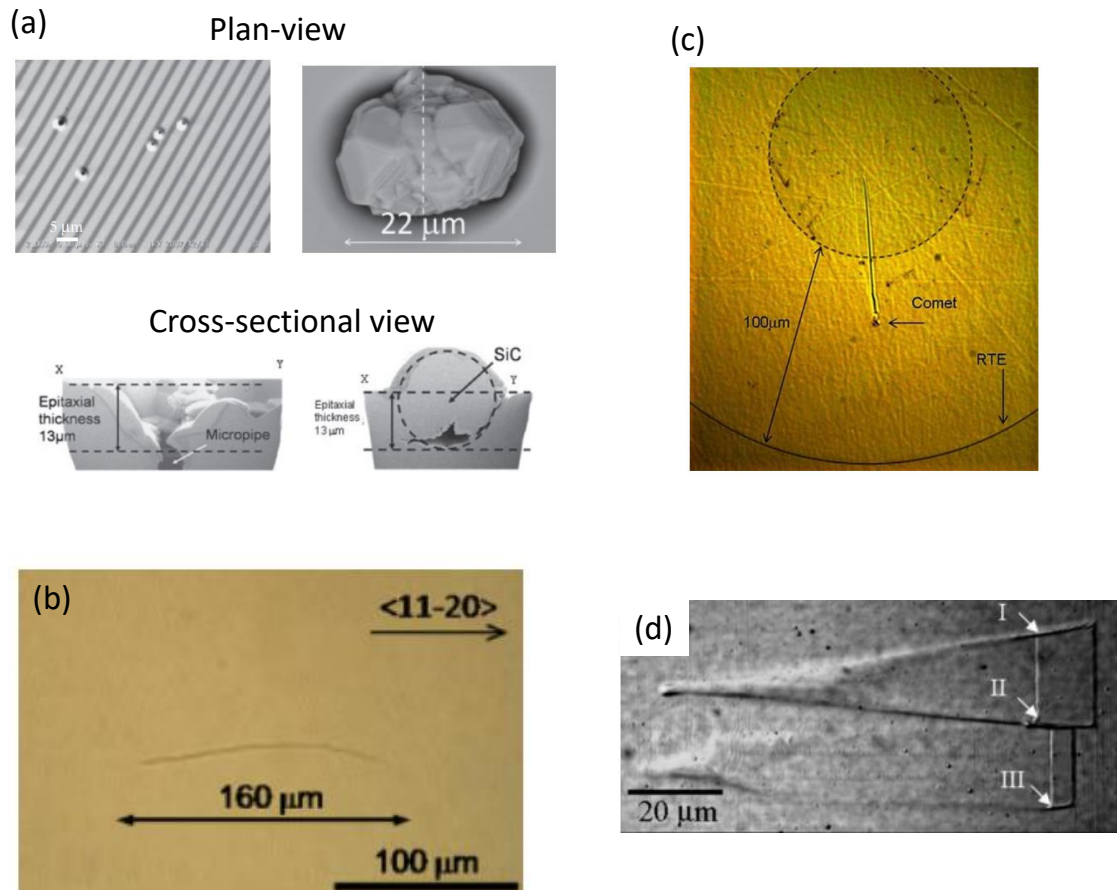


図 1-6 SiC 結晶の表面欠陥 (a) マイクロパイプとダウンフォール³⁵、(b) Carrot³⁵、(c) Comet³⁶、(d) Triangular 欠陥³⁷。

積層欠陥

SiC 結晶には、多様な積層欠陥が形成されることが知られており、基底面内で部分転位を伴うショックレー型積層欠陥や、8H-SiC スタックが挿入された積層欠陥、3C-SiC インクルージョン積層欠陥などが存在する。これらも、パワーデバイスのショットキー障壁やブレークダウン電圧の低下、リーク電流の増大を招くことが報告されている⁴¹⁻⁴⁶。また、PIN 等のバイポーラデバイスでは、電子・正孔対再結合エネルギーによる基底面転位の拡張で形成された積層欠陥が通電時の抵抗成分として寄与し、順方向特性を劣化させることが知られており、今なお未解決の課題となっている²⁸⁻³⁰。

転位

現状の市販 4H-SiC には今なお $10^2 \sim 10^4 \text{ cm}^{-2}$ の貫通転位が存在し、その内の幾つかの転位がデバイス動作に悪影響を及ぼすこと知られている。4H-SiC の主要な貫通転位は貫通刃状転位 (TED: Threading edge dislocation)、貫通らせん転位 (TSD: Threading screw dislocation)、基底面転位 (BPD: Basal plane dislocation) の 3 つに分けられる。特に c 軸方向に対して伸びるらせん転位については、さらに詳細な種類分けがされており、バーガースベクトルが $\mathbf{b}=0001$ の貫通転位は TpSD (Threading pure screw dislocation)、 $\mathbf{b}=1/3\langle 11\bar{2}3 \rangle$ の転位は TnSD (Threading near screw dislocation) と呼ばれる。さらに近年、これらのバーガースベクトルよりも大きな $\mathbf{b}=\langle 01\bar{1}1 \rangle$ をもつ異質な転位の存在も確認されており、TMD (Threading mixed dislocation) と呼ばれている (図 1-7)。これらの内、ほとんどの割合を占めるのが $\mathbf{b}=1/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$ を持つ TED や BPD である。TED に関しては、これ自体がデバイス特性に悪影響を及ぼしている例はほとんど報告されていない。しかし、BPD は順方向特性劣化に寄与する積層欠陥の起源となることが明らかになっている²⁸⁻³⁰。その対策として、ウェハ内の BPD を抑制する結晶成長技術開発が進んでおり、近年では BPD 密度の大幅低減に成功した例も報告されている^{44,45}。他方、TSD については、デバイス耐圧の低下原因となることや、高濃度イオン注入によって一部の転位がリークパスとなることが報告されており、キラ欠陥として認識されている (図 1-8)^{34,43}。また、貫通転位の影響度合いはデバイス構造によって異なることや、貫通転位表面にあるナノサイズピット部の電界集中によってリークが増大することも示されている^{47,48}。近年になってその存在を確認された TMD も、デバイス内でリークパスとなることが報告されている^{49,50}。このように貫通転位は、それ自身が直接的にデバイス特性を劣化させることもあれば、表面形態や拡張欠陥への変換を通じて間接的に悪影響を及ぼすこともある。近年はウェハ内の貫通転位密度が低減され、小さなチップ面積の場合は転位の影響もかなり抑制されてきた。しかしながら、大電力を扱う大面積チップの場合では、転位の影響が顕著になり、信頼性はまだまだ低い現状である。デバイスの信頼性を高め、チップコストの更なる低減を目指す上でも、転位伝播の抑制は重要な課題とされている。

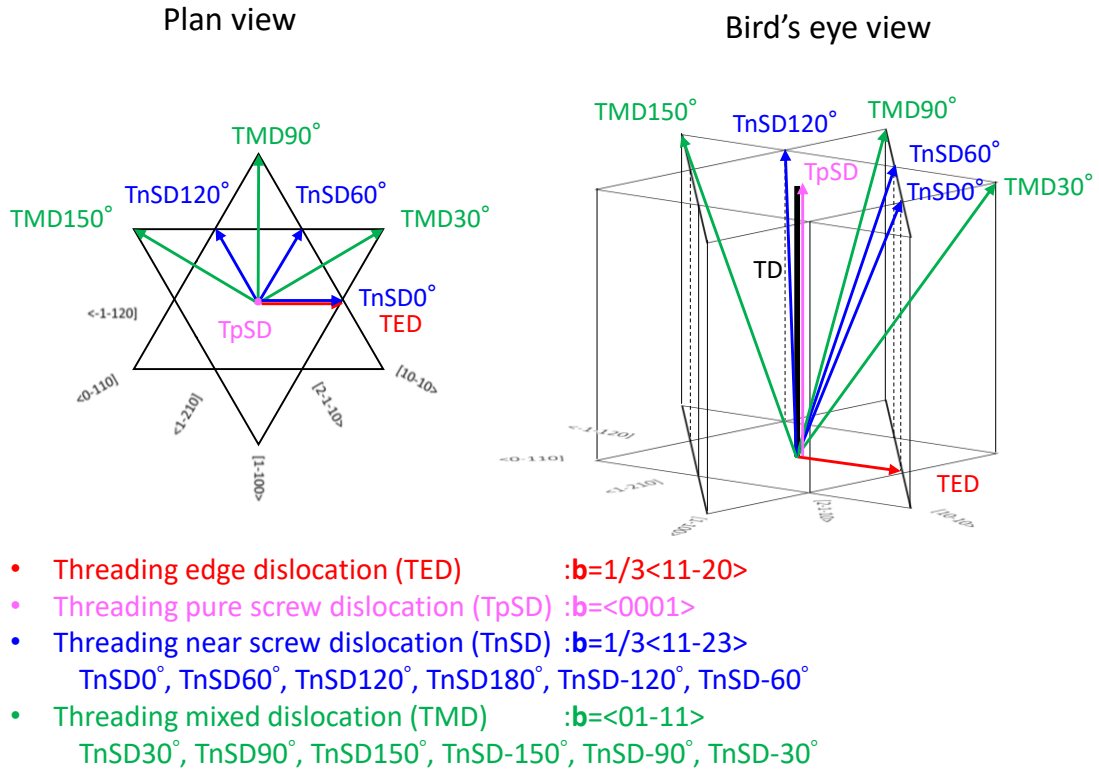


図 1-7 4H-SiC 結晶における貫通転位のバーガースベクトルと種類の関係。

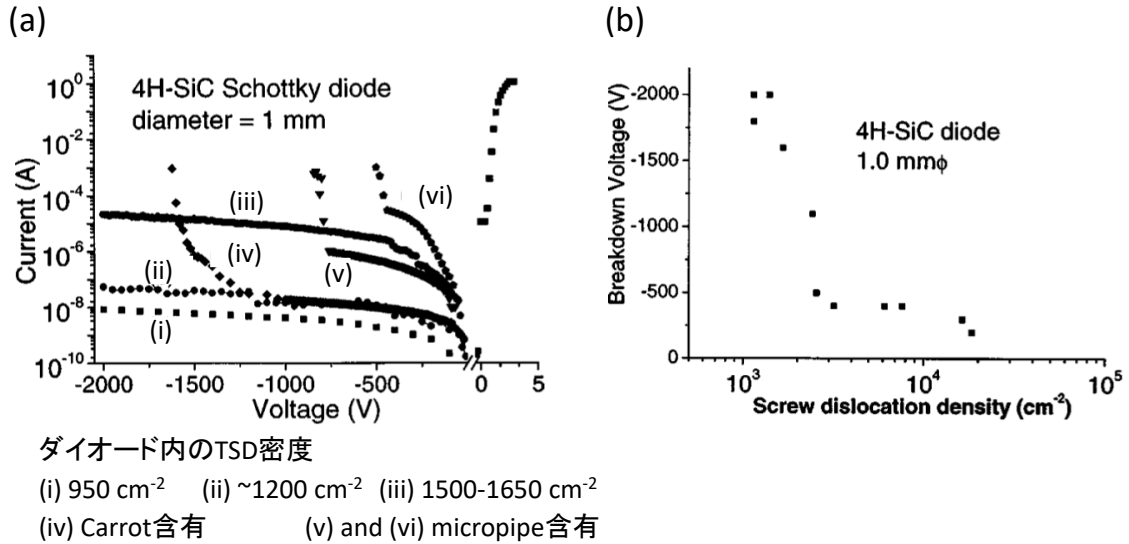


図 1-8 SiC-SBD の電気特性に及ぼす TSD の影響。(a) TSD 密度と電流-電圧特性、(b) TSD 密度とブレイクダウン電圧の関係³⁴。参考文献[34]の図を一部改変して掲載。

1.4. 窒化ガリウム(GaN: Gallium nitride)

GaN は III-V 族の化合物半導体であり、表 1-1 から分かる通り、Si よりも大きなバンドギャップと飽和電子速度を有する。また、GaN は AlN や InN と同じ III 族窒化物半導体に分類される。これら III 族窒化物系は全て、図 1-9 に示すような六方晶系のウルツ鉱構造をとることから、混晶やヘテロ構造を比較的容易に作製することができる。例えば、GaN に Al を加えた AlGaN は、GaN とヘテロ接合させると AlGaN/GaN 界面に高濃度の二次元電子ガス(2DEG: two-dimensional electron gas)を形成し、これを利用すれば超高速な電子デバイスを作製することができる。このような III 族窒化物系特有の特徴により、これまで多様な特性をもつ発光／電子デバイスが作製されてきた。

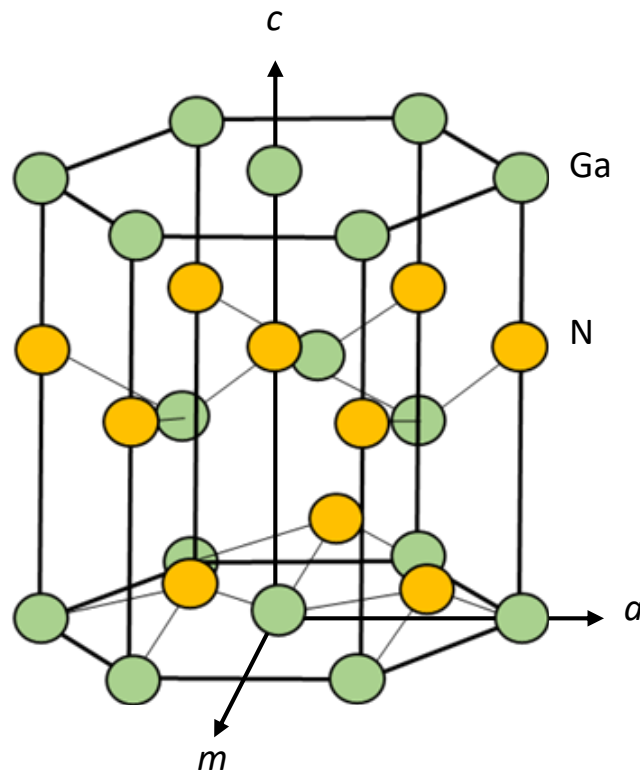


図 1-9 GaN の結晶構造。

1.4.1. 発光デバイス

同じ III 族窒化物半導体である GaN、AlN、InN は、それぞれ、3.42 eV、6.2 eV、0.6 eV のバンドギャップを有し、同族系で深紫外から赤外まで非常に幅広い波長領域をカバーしている(図 1-10)。混晶によってバンドギャップを自在に変調することもできるという魅力から、GaN は発光デバイス材料、とりわけ青色 LED を実現し得る材料として古くから期待されていた。GaN には格子整合する基板が存在せず、そもそも GaN 結晶を作ること自体が非常に困難だったが、1969 年、Marusuka と Tientjen はハイドライド気相成長法 (HVPE: Hydride vapor phase epitaxy) によって、世界で初めてサファイヤ基板上への GaN 単結晶を成長させることに成功した⁵¹。その後、1986 年に Amano らは、サファイヤ上に AlN の低温堆積緩衝層(バッファ層)を挿入することにより、有機金属化合物気相成長法 (MOVPE: Metalorganic vapor phase epitaxy) で高品質かつクラックフリーの GaN 結晶を成長できることを報告し⁵²、1989 年には、Mg ドープによる p 型化に成功した⁵³。これにより GaN で pn 接合の LED を作製したところ、高い輝度のバンド端発光が計測され、世界で初めて GaN 製 LED を実証することに成功した。1994 年には Nakamura らが InGaN/AlGaIn ダブルヘテロ構造を導入することで、高輝度・高量子効率な青色 LED を実現した⁵⁴。その後、Nakamura らによって、立て続けに深紫外 LED、緑色 LED、黄色 LED、InGaIn ベースの青紫色 LD が実証された⁵⁵⁻⁵⁷。青色の LED の実現によって、固体光源で光の三原色を作り出すことが出来るようになり、その後、白色 LED が実現された。従来の白熱電球に比べて長寿命・省エネであることから、社会に広く普及した。この功績により、Akasaki、Amano、Nakamura らに 2014 年にノーベル物理学賞が授与された。

これら InGaIn ベースの LED には $10^8 \sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ もの高密度貫通転位が存在するにも拘らず、非常に高い発光効率を示した。これは、キャリア拡散長が短いことと、InGaIn 層における組成の揺らぎに起因した nm スケールでのポテンシャル揺らぎによって、キャリアが局在化するというメカニズムに由来すると言われている⁵⁸。しかし、より大きな電流密度が求められる LD においては、この高い貫通転位密度が短寿命の原因となることが示された⁵⁹。これを契機に GaN 自立基板の開発が進み、高品質かつ長寿命な LD が実現されたことで市販化に至った。

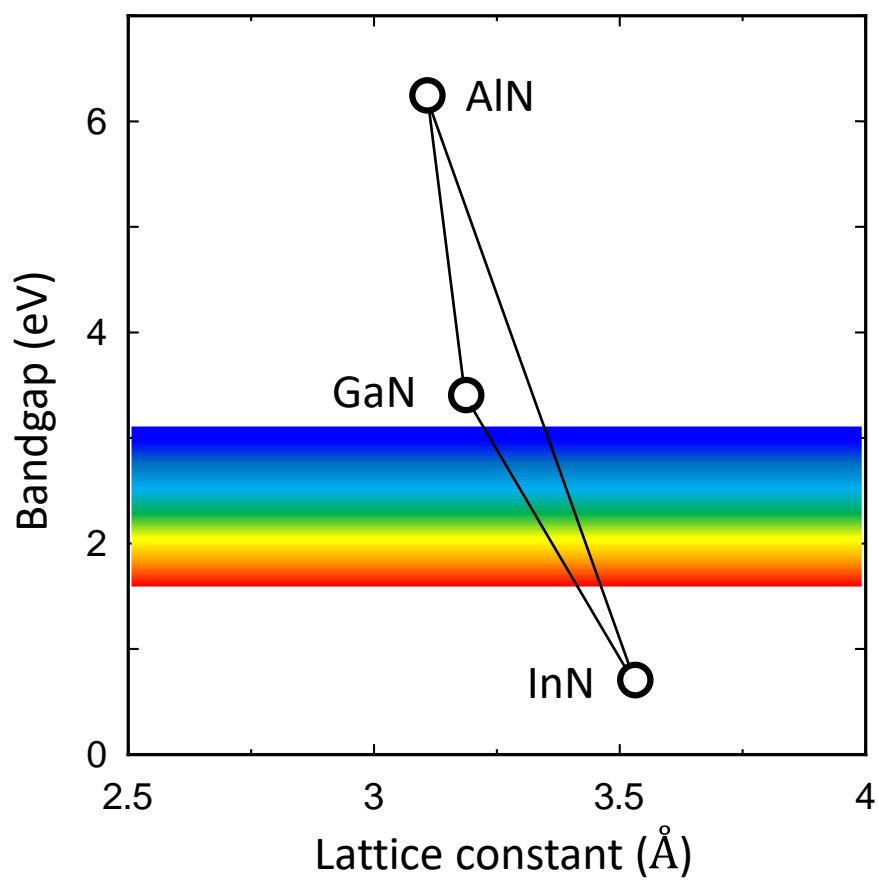


図 1-10 III 族窒化物材料のバンドギャップと a 軸格子定数。

1.4.2. 横型パワーデバイス

歴史的に、発光デバイスとしての応用研究開発が先行した GaN だが、Si を圧倒する物性値を有することから、古くからパワーデバイス応用への期待も高かった。特に、AlGaIn/GaN 界面に形成される高濃度 2DEG を利用すれば、他のパワー半導体よりも高速な電子移動度を実現できる点は、GaN 系デバイス特有のメリットである。GaN パワーデバイス研究においては、AlGaIn/GaN を応用した横型デバイスである高電子移動度トランジスタ (HEMT: high electron mobility transistor) の開発が 2000 年台前半から活発化し、これまで数多くの研究がなされている⁶⁰⁻⁶⁷。図 1-11(a)は一般的な横型 AlGaIn/GaN HEMT 構造である。2DEG は、図 1-11(b)に示すように、AlGaIn・GaN が有する自発分極と AlGaIn/GaN ヘテロ接合で生じる AlGaIn 膜内のピエゾ分極に起因した強い内部電界により形成されるため、このような単純構造の場合、HEMT はゲート電圧が 0 V でも電流が生じるノーマリーオン動作となる。しかしながら、回路の簡素化やフェイルセーフの観点からはノーマリーオフ動作が求められ、これまでに、リセスゲート構造⁶⁸、p-(Al)GaIn ゲート構造⁶⁴、F イオン注入ゲート構造⁶⁹、フローティングゲート構造⁷⁰のようなゲート構造が提案されている(図 1-12)。また、これ以外にも、ノーマリーオン動作の AlGaIn/GaN HEMT と低電圧 Si-MOSFET のカスコード接続により、ゲート構造の作り込みなしにノーマリーオフデバイス化したものもある⁷¹。日本では、Panasonic が p-AlGaIn ゲート構造を採用した GIT (Gate Injection Transistor)⁶⁴を開発し、GaN 系 HEMT の量産化を果たしている。AlGaIn/GaN HEMT は GaN 系電子デバイスとして実用化されている数少ないデバイスの一つである。現在は、Panasonic や GaN Systems、Transphorm 社などから耐圧 600 V～650 V、電流数 A～150 A の AlGaIn/GaN HEMT が市販され⁷²⁻⁷⁴、これらは AC アダプター等の電力変換機器に応用されている⁷⁵。高周波用途でも既に実用化が進んでおり、携帯電話や衛星通信の基地局等に応用されている⁷⁶。近年では、高速・大容量、低遅延の第 5 世代通信「5G」や、その次世代版「+5G」向けに GaN 系 HEMT デバイスの量産・開発が進んでいる⁷⁷。

横型 GaN パワーデバイスの主要課題には、ダイナミックオン抵抗の増加(電流コラプス現象)が挙げられる。これは、オフ時の大電圧やスイッチング時の大電流で電子がゲート表面や界面にトラップされ、2DEG 濃度が減少することによってドレイン電流が徐々に減少し、チャネルが高抵抗化する現象である。これに対しては、フィールドプレート構造によるゲート端電界緩和⁷⁸や、AlGaIn 上 GaN キャップ形成による表面トラップ低減⁷⁹などの対策がとられ、市販の 600 V 級ではほとんど無視できる程度に解消さ

れているが、それ以上の耐圧においては、まだ完全に抑制できていない。また、ゲートへの大電圧印可は、ドレイン側ゲート端にピット形状欠陥を誘発することも報告されており^{80,81}、詳細なメカニズムはまだ分かっていない。近年は、ナノビーム X 線回折 (nanoXRD) を用いたデバイス動作下での時分割格子変形測定によるメカニズム解明が試みられている⁸²。その他、デバイス内に p 領域を持たないためにアバランシェ耐量が小さい、電子トラップにより閾値がシフトする、汎用ゲートドライバーとの親和性が低いなどの課題が挙げられ、AlGaIn/GaN HEMT 特有のサージ電流耐性や電子トラップのメカニズム調査、HEMT に適したゲートドライバー開発、デバイスと駆動回路の IC 化を目指した研究がなされている⁸³⁻⁸⁶。

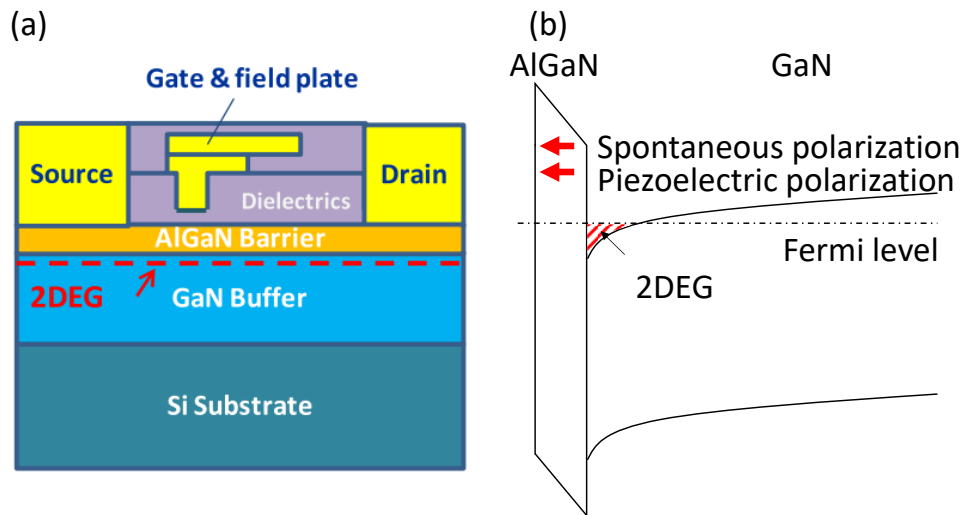


図 1-11 (a) ノーマリーオン AlGaIn/GaN HEMT 構造⁶⁷と、(b) AlGaIn/GaN ヘテロ界面におけるバンド構造。

第1章 序論

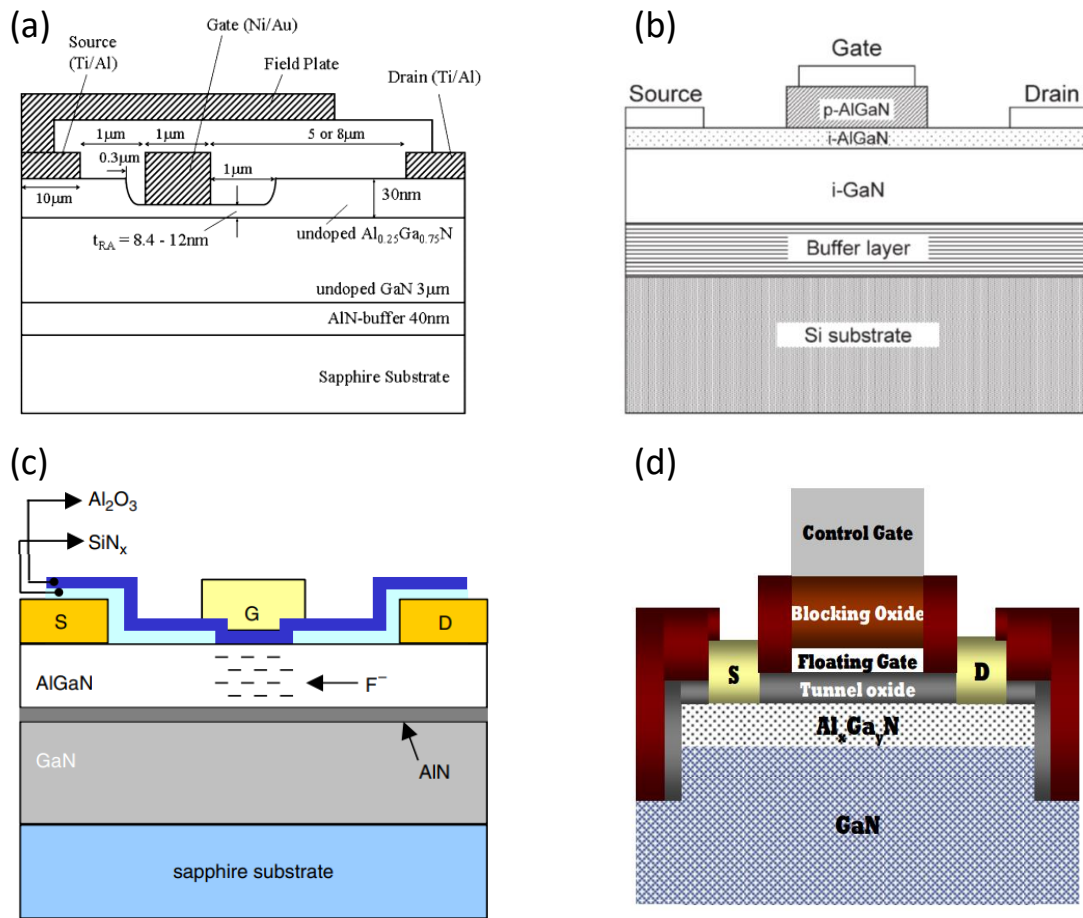


図 1-12 ノーマリーオフ HEMT 構造 (a) リセスゲート構造⁶⁸、(b) p-(Al)GaIn ゲート構造⁶⁴、(c) F イオン注入ゲート構造⁶⁹、(d) フローティングゲート構造⁷⁰。

第1章 序論

現在の横型 HEMT は、コストの観点から Si ウェハ基板上に作られるのが一般的である。このようなヘテロエピ系の場合、往々にして、基板と成長層の格子定数及び熱膨張係数の差に起因した高密度の貫通転位やクラックの発生が主要な問題となる。GaN エピ成長には、Si の(111)面を用いるが、表 1-2 に示す通り、Si(111)面内における Si 原子間距離は 3.839 Å となっており、GaN の a 軸方向格子定数 3.189 Å との格子定数差は約 17%にも及ぶ。また、熱膨張係数も GaN の方が約 2 倍大きい。その結果、GaN on Si もまた例に漏れず、高密度の貫通転位(図 1-13)、クラック(図 1-14)の問題を避けては通れない^{87,88}。一般的に、異種基板との格子定数・熱膨張係数差によるミスマッチ緩和には、基板と成長層との間にバッファ層を挿入する手法がよく採られる。GaN on Si においては、1990 年代初期に、Si 上に AlN バッファ層を挟むことで品質の良い GaN 膜を成長できることが報告され⁸⁹、それ以降、GaN/AlN の歪超格子構造⁹⁰、AlGaIn/AlN 積層構造⁹¹、これら GaN/AlN 歪超格子と AlGaIn/AlN 積層構造の融合層⁹²、Si/初期 AlN バッファ層界面への Al₂O₃ コーティング層の挿入⁹³など、様々なバッファ層が報告されている。これらエピ成長技術の改良により、Si 上 GaN 成長は着実に進化を遂げ、近年では 6 インチサイズのクラックフリーかつ鏡面 Si 上 AlGaIn/GaN ウェハが報告されている⁹²。しかしながら、それでもなお現状の GaN on Si ウェハには 10⁸ cm⁻²程度の貫通転位が存在している。貫通転位は、電子トラップの生成源としてダイナミックオン抵抗増大を誘発することが報告されている^{94,95}。AlGaIn/GaN HEMT の性能・信頼性を更に向上させていく上では、貫通転位密度を低減することもまた重要な課題と言える。

表 1-2 Si、GaN、AlN の格子定数と熱膨張係数。

	Si (Si(111))	GaN	AlN
Lattice constant (Å)	5.43 (3.839)	3.189	3.11
	a		
	c	5.185	4.98
Thermal expansion coefficient (×10 ⁻⁶ K ⁻¹)	2.59	5.59	6.43

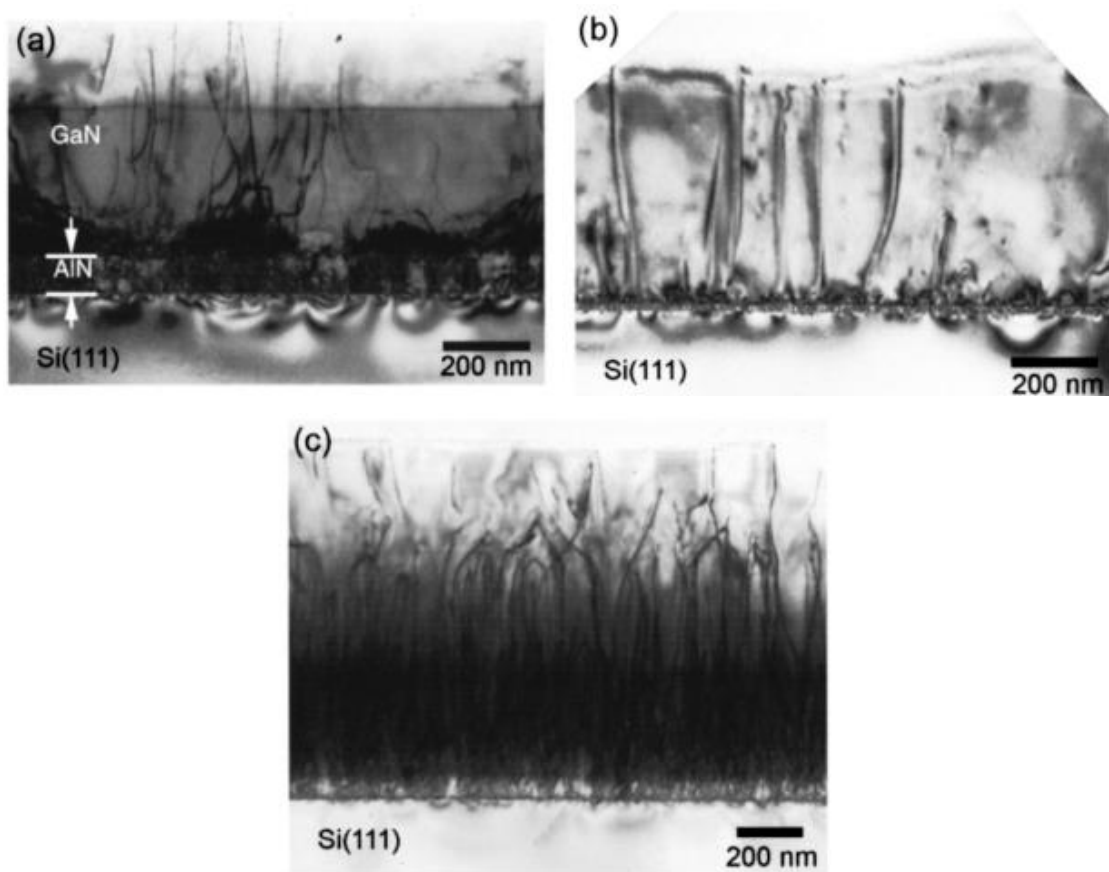


図 1-13 (a) 約 180 nm (b) 25 nm (c) (Al 組成傾斜) 800 nm 厚さの AlN バッファ層を挿入した Si(111) 上 GaN 成長層における貫通転位の透過電子顕微鏡 (TEM: transmission electron microscopy) 像⁸⁷。

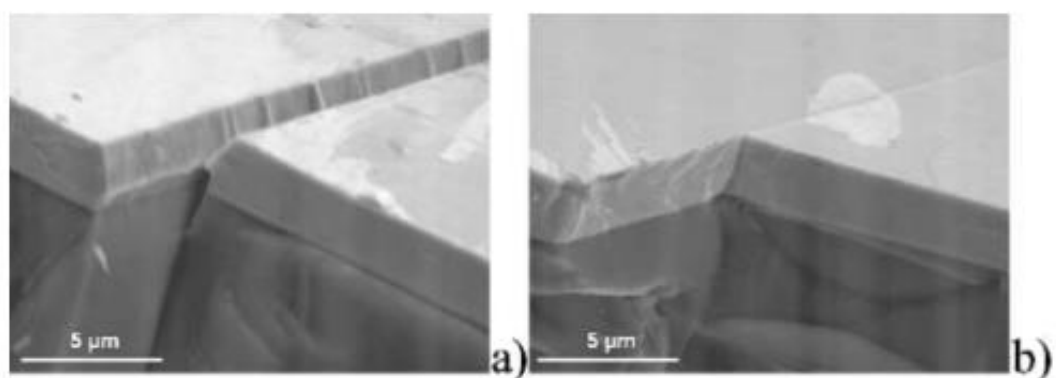


図 1-14 Si(111) 上 GaN ヘテロエピ膜のクラック (a) 成長過程で生じた溝状オープンクラック (b) 成長後冷却過程で生じたクローズクラック⁸⁸。

1.4.3. 縦型パワーデバイス

電流経路が縦方向となる縦型構造では、チップ全体に電流を流すことが出来る(図 1-15)。そのため表面付近で横方向にしか電流が流れない横型構造に比べて、容易に大電流密度化でき、同時に低オン抵抗化も可能となる。また横型で耐圧を稼ぐには、ゲート・ドレイン間距離を確保するためにチップサイズを巨大化せざるを得ないが、縦型構造の場合、ドリフト層の膜厚を増やすことで高耐圧化を図れるため、小さいチップサイズでも耐圧を稼ぐことが出来る。デバイスの大電流低オン抵抗化・高耐圧化・小型化を一挙に達成できることから、大電力を扱うパワーデバイスにおいては一般的に縦型構造が望ましい。

現状バイポーラデバイスの Si-IGBT や Si-PIN が主流となっている中～高耐圧領域を、GaN を基板とする縦型 SBD や MOSFET のようなユニポーラデバイスで代替できれば、スイッチング損失の低減や高周波動作に伴う周辺機器の小型化が可能となる。また GaN は、先行する SiC や、次々世代パワー半導体材料と称される Ga_2O_3 と比べても、応用範囲が最も広い 600~1500 V 耐圧領域において、最も低いオン抵抗を実現出来る可能性があり、非常に高効率なパワーデバイスを実現し得るともいわれている⁹⁶。GaN の縦型構造化は、GaN 自立基板が無かったことから横型デバイス開発に遅れをとったが、高品質な GaN 自立基板が作製できるようになった 2000 年台中頃から、急速な発展を遂げている。図 1-16 には、近年報告されている GaN 自立基板上に作製された各種パワーデバイスの絶縁破壊電圧に対する特性オン抵抗の報告値をプロットしている⁹⁷⁻¹¹³。既に Si の理論限界値を大幅に上回っており、GaN の理論限界値に徐々に近づいてきていることが分かる。

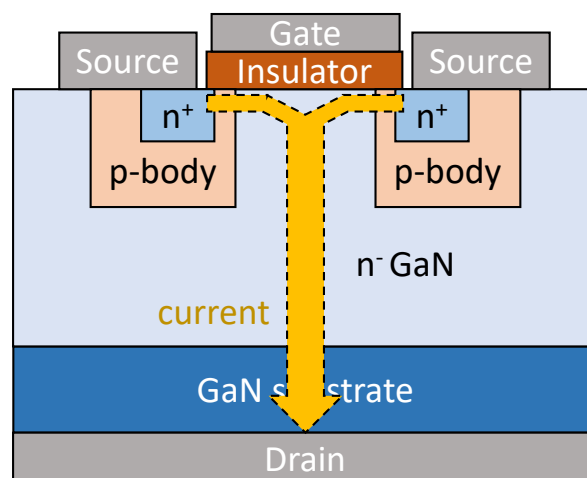


図 1-15 GaN 縦型パワーデバイス(プレーナゲート型 MOSFET)構造。

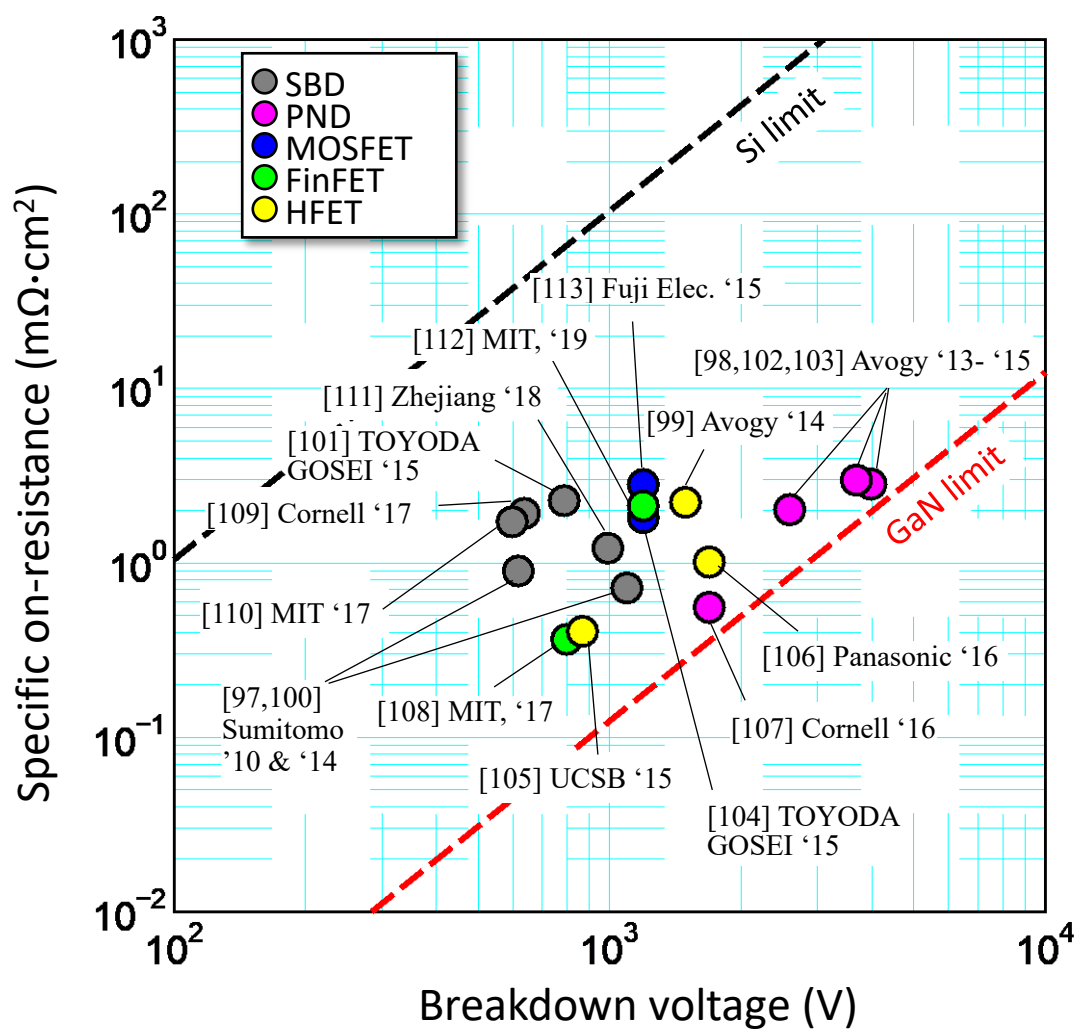


図 1-16 GaN 基板上に作製した SBD、pn diode (PND)、MOSFET、FinFET (Fin field effect transistor)、HFET (hetero structure field effect transistor) における絶縁破壊電圧に対する特性オン抵抗のベンチマーク⁹⁷⁻¹¹³。

一方で、GaN 縦型パワーデバイス応用が期待される中～高耐圧領域においては、現状、高いコストパフォーマンスを誇る Si-MOSFET や Si-IGBT が市場を席巻している。そのため、今後 GaN パワーデバイスが実用化され広く普及されていくためには、デバイス性能で勝るだけでなく、コストの点でも Si に追いつくことが重要である。図 1-17 は化合物パワー半導体におけるウェハサイズとウェハ作製及びエピ成長コストの現状と予測値である¹¹⁴。GaN on GaN は同じ GaN ウェハの中で最も高価でかつウェハ直径が小さいが、サファイヤや Si のような異種基板上へのヘテロエピ系は、SiC のような他の化合物パワー半導体材料と比較しても、コストがかなり抑制されている。とりわけ、GaN on Si の場合、大口径かつ安価な Si ウェハを種基板として用いることから、低価格で大口径な GaN ウェハを実現できる。この圧倒的なコストパフォーマンスの観点から、GaN on Si の縦型パワーデバイスについても、現在精力的に研究開発がなされている。しかしながら、ヘテロエピ故に、GaN 結晶中には 10^8 cm^{-2} 以上の密度で貫通転位が残存しており、GaN on GaN に比べて耐圧が低く、リーク電流も大きいことが主要な問題となっている¹¹⁴。低価格・高性能・高信頼性な GaN on Si パワーデバイスの実用化に向けては、結晶品質の向上が最重要課題の一つと言える。

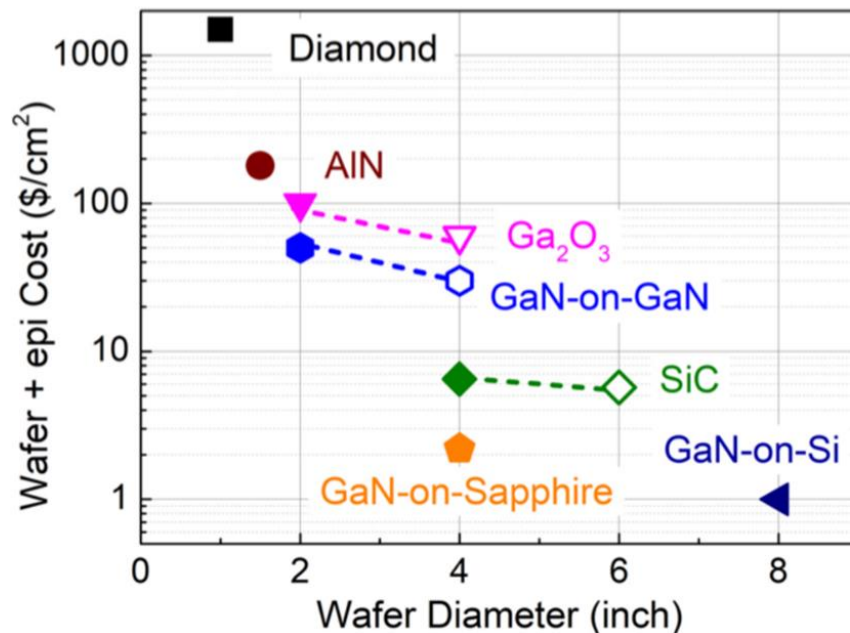


図 1-17 各種パワー半導体材料におけるウェハ作製及びエピ成長に係るコストとウェハサイズの現状及び予測値。塗色有シンボルが現在値、塗色無シンボルが予測値を示す¹¹⁴。

1.4.4. GaN バルク結晶成長法

GaN バルク結晶基板開発は、LD 高寿命化にとって必要であるという背景から、2000 年台になって活発化してきた。後に、パワーデバイスの高性能・高信頼化の観点からも高品質基板の需要が高まり、これまでに幾つかのバルク結晶成長法が考案され、発展を遂げてきた。本節では、主要な GaN のバルク結晶成長手法である、HVPE 法、Ammonothermal 法、Na フラックス法を取り上げ、それぞれの特徴を説明する。

HVPE 法

HVPE 法は GaN 結晶成長法の中で最も歴史が長い手法である。他の結晶成長法よりも結晶成長レートが速く(数 100 $\mu\text{m/h}$ ~1 mm/h)、常圧下での成長であるため、低コストで厚膜化できる結晶成長手法として、長年に渡って研究開発が進んできた。バルク化における主要な課題は貫通転位密度の低減とクラックの抑制にあった。1997 年に Usui らは、GaN/サファイヤテンプレート上にストライプ状 SiO_2 マスクを配置させることで、マスク開口部上での選択的なファセット成長を誘発させる技術(s-FIELO: stripe facet-initiated epitaxial lateral overgrowth)を開発した。開口部から伝播してきた転位をファセット成長で曲げることによって、 10^7 cm^{-2} 台にまで転位密度を低減させ、20 μm を超える厚膜化に成功している^{115,116}。その後、同グループはサファイヤ表面の TiC コーティングにより GaN の 3 次元成長を誘発させ、転位の対消滅を促進させる技術(r-FIELO: random-island FIELO)を開発し、貫通転位密度 $\sim 3 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ 、 $\sim 200 \mu\text{m}$ の厚膜化、サファイヤ基板からの自発的剥離を達成した。同技術により、4 インチ GaN 基板を作製することに成功している。Motoki らは、ラウンド状に開口した SiO_2 マスクによって 3 次元成長を誘発させ、逆ピラミッド形状の growth pits を意図的に導入することで転位密度を減少させる技術(DEEP: dislocation elimination by the epitaxial-growth with inverse-pyramidal pits)を開発し、面内分布はあるものの部分的に $2 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ にまで貫通転位密度を低減させることに成功している¹¹⁸。後に、Advanced-DEEP 法によってさらなる転位密度の低減が報告されている^{119,120}。Oshima らは void-assisted separation (VAS) 法を考案し、低転位密度の 45 mm 径 GaN 基板作製に成功している¹²¹。この手法では、TiN ナノネットを導入した GaN/サファイヤ基板上を新たに開発し、この上に GaN 厚膜成長させることで自発的なボイド形成を促し、面内均一な転位密度の減少($5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$)、自発的な GaN/サファイヤ分離を実現している(図 1-18)。後に、Fujikura らは HVPE 成長条件の最適化により結晶硬度をコントロールすることによって、

VAS 法で作られるバルク結晶のマクロ欠陥フリー化かつ大口径化(2~6 インチ)に成功している¹²²。このような長年に渡る改良によって、HVPE-GaN バルク結晶は着実に大口径化・高品質化を遂げ、現在では市販化に至っている。現在市場に出回る GaN ウェハは、主に HVPE 法で作製されている。今後の課題は、貫通転位密度の更なる低減と、長尺成長などが挙げられる。

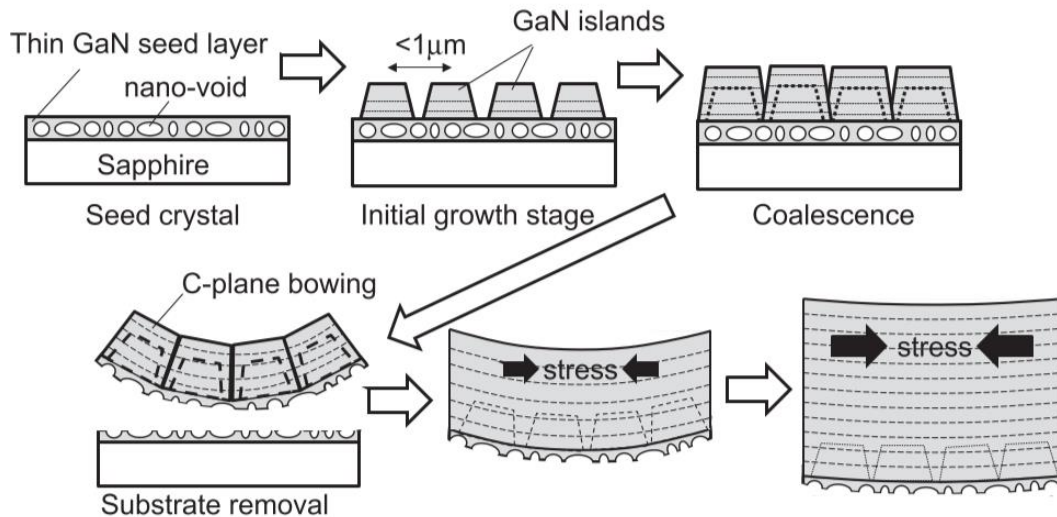


図 1-18 VAS 法による HVPE 結晶成長の流れ¹²²。

Ammonothermal 法

本手法は、100~300 MPa、600°C前後の環境下の中で、種々の鉱化剤を添加した超臨界状態の NH_3 溶媒中で種結晶上に GaN を成長させる液相成長の一種であり、1995 年に初めて本手法による GaN 結晶成長が報告されている¹²⁴。鉱化剤は NH_3 への GaN の溶解度を高める役割を担い、アルカリ金属アミド (LiNH_2 、 NaNH_2) を用いる塩基性 ammonothermal とハロゲン化アンモニウム (NH_4Cl 、 NH_4I 、 NH_4F 、 NH_4Br) を用いる酸性 ammonothermal がある。高压高温に耐える特殊なオートクレーブ内の NH_3 溶媒の中で、GaN を含む原料(多結晶 GaN)を高温側に、種結晶を低温にセットし、溶媒内の温度勾配によって種結晶上に GaN を結晶化させる(図 1-19)¹²⁶。本手法は、成長速度が $\sim 300 \mu\text{m/day}$ と他の手法よりもかなり遅く、バルク化させるのに数日を要する。しかし結晶品質は高く、長年の研究開発によって貫通転位密度 10^4 cm^{-2} 以下という非常に高品質なウェハが市販化されるに至っている¹²⁵⁻¹²⁹。ammonothermal 法では、 a 及び m 軸方向の結晶成長速度が早く、非極性面のバルク成長も可能である。ammonothermal 法の今後の課題には、結晶に混入する酸素不純物の低減¹³²、大口

径化やコストを考慮した大型圧力装置の開発¹³³などが挙げられる。

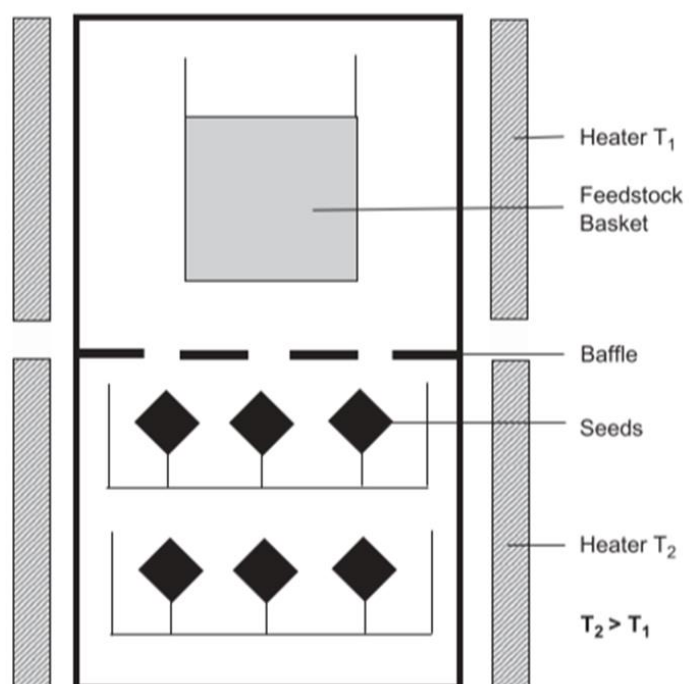


図 1-19 Ammonothermal 法の概略模式図¹²⁶。

Na フラックス法

本手法は、Na を添加した金属 Ga 融液に窒素を溶解させ、種結晶上に GaN を成長させる液相成長であり、1997 年に Yamane らによって考案された手法である。Na 添加による窒素溶解度の上昇により、数十気圧程度で結晶成長がおきるので、比較的簡便な装置で大口径化が可能となる。ammonothermal 法と同様、非極性面の成長速率が速いため、小口径の種結晶からでも大口径化が可能である。Yamane らの最初の報告では、結晶サイズは 1~2 mm 程度であったが、その後、2000 年台半ばから大阪大学 Mori らのグループが改良を続け、劇的な進化を遂げている¹³⁵⁻¹⁴²。近年では、マルチポイントシード法 (MPS: multi-point seed) と flux-film-coated (FFC) 法を組み合わせた独創的な技術によって、低転位密度 ($10^3 \sim 10^4 \text{ cm}^{-2}$) かつ大口径 (~6 in) な GaN バルク結晶の育成に成功している¹⁴¹。

図 1-20 は、その成長概略図を示している。MOVPE 法でサファイヤ基板上に複数の円形種結晶を配列させた MPS テンプレートを Ga-Na 融液に浸漬させると、各種結晶上で $\{10\bar{1}1\}$ ファセット面で構成された 3 次元ピラミッド GaN 成長が始まる (1st growth、図 1-20(a)-(c))。30 時間後、テンプレートを引き上げ、ピラミッド間の溝に残ったフラックスによる自発的な結晶成長を起こす (図 1-20(d))。この工程は、残留フラックスの気液界面における窒素過飽和度を上昇させ、溝内での thin flux film 状成長を促進させる効果がある。成長に伴い残留フラックス内の Ga 源が枯渇するので、基板を Ga-Na 融液に浸漬し Ga を補充する。再び基板を引き上げ成長、再度浸漬…という工程を継続的に繰り返すことで、徐々にピラミッド間の溝が埋まり、100 時間後には平坦な *c* 面が形成される (2nd growth、図 1-20(e))。最後に、基板を長時間融液内に浸漬し、*c* 軸方向へ厚膜成長させることでバルク結晶が得られる (3rd growth、図 1-20(f))。図 1-21(b)、(c) の結晶断面カソードルミネッセンス (CL: cathodeluminescence) 像及び模式図から、この結晶が、ピラミッド状に成長する 1st growth、ピラミッド間の溝を埋める 2nd growth、最後に *c* 面を厚膜化する 3rd growth から構成されていることが分かる。

この成長手法の強みは、まず、MPS を採用していることから、サファイヤ/GaN ポイントシード界面の接触面積が小さく、冷却過程でサファイヤが自発分離するため、クラックが生じにくいという点にある。また、従来、Na フラックス成長には成長過程で生じるファセット面に過量の酸素不純物を取り込まれてしまう課題がある。実際に、図 1-21(b) の CL コントラストが各成長ステージで異なっているが、これは各層の酸素不純物の違いを反映しているものと考えられている。しかし、FFC を取り入れた 2nd growth でピラミッド間の溝を埋めて *c* 面を出すことによって、続く 3rd growth 層における残留酸素不純

物濃度を約 2 桁低減できていることが、図 1-21(d)の二次イオン質量分析 (SIMS: secondary ion mass spectrometry) プロファイルから分かる¹⁴²。

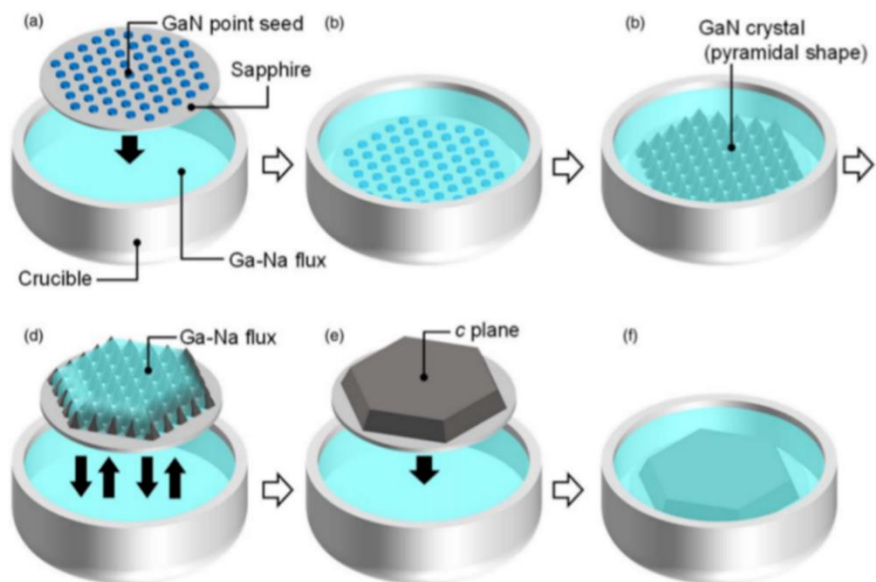


図 1-20 MPS 法及び FFC 法 による Na フラックス成長の概略模式図¹⁴¹。

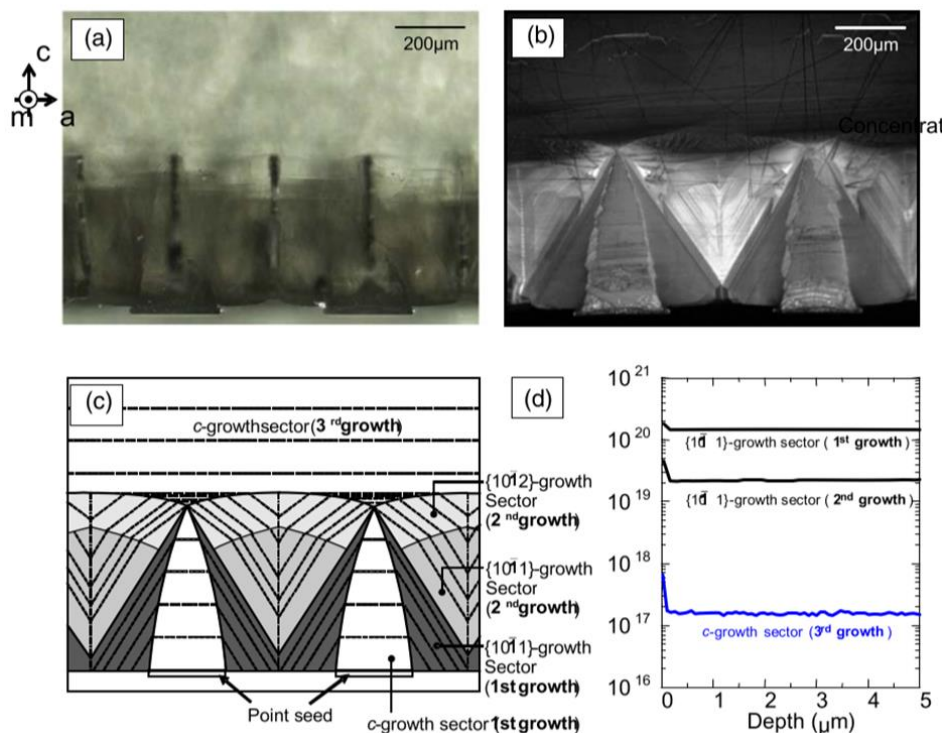


図 1-21 Na フラックス法による GaN 結晶の断面 (a) 光学顕微鏡像、(b) CL 像、(c) 断面模式図、及び、(d) 各成長ステージにおける酸素不純物濃度の SIMS プロファイル¹⁴¹。

Na フラックス成長における転位密度低減については、主に成長過程で生じるステップバンチング端に転位が集約されることで、膜厚と共に徐々に転位密度が減少していくメカニズムが提唱されている(図 1-22)¹⁴³。また、ポイントシード状のピラミッド成長においても、 c 面エリアが成長に伴って小さくなる過程で転位群がピラミッド中心領域に集約されることで、結果的に転位密度が減少することが報告されている(図 1-23)¹⁴⁰。MPS 上の 2nd growth では隣り合う 3 つのピラミッド結晶領域同士が結合する際に、その界面で高密度($>10^6 \text{ cm}^{-2}$)の転位が生じることがあるが、3rd growth 過程で、互いに逆方向のバーガースベクトルを有する a 転位(バーガースベクトル \mathbf{b} が単位格子の a 軸方向の基本格子ベクトル \mathbf{a} の大きさを持つ転位)が m 面内をすべり、対消滅することによって転位密度が再度減少する様子が観測されている¹⁴⁴。

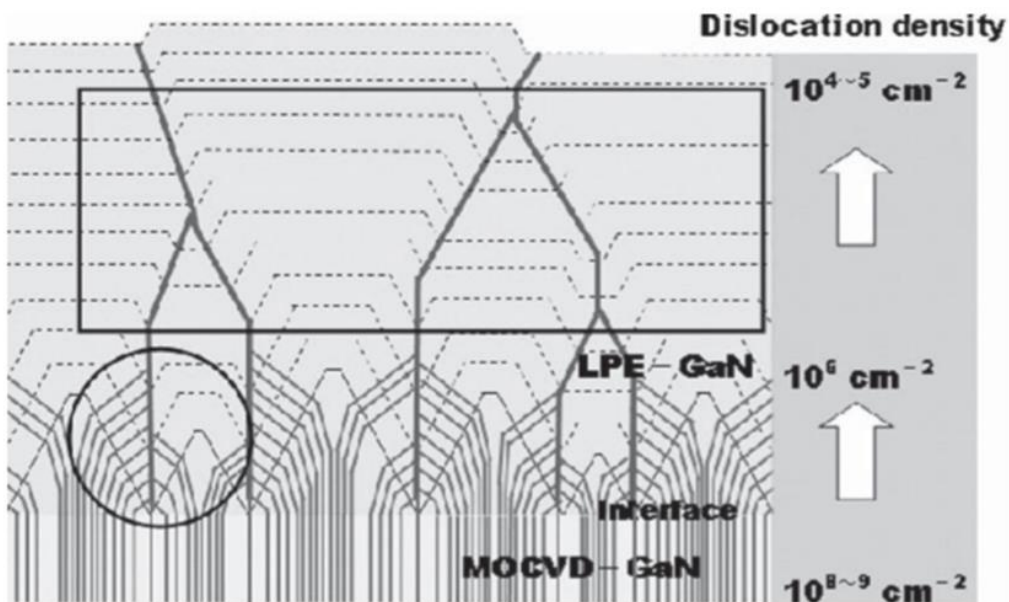


図 1-22 Na フラックス法によるバルク成長過程での転位密度減少メカニズム¹⁴³。

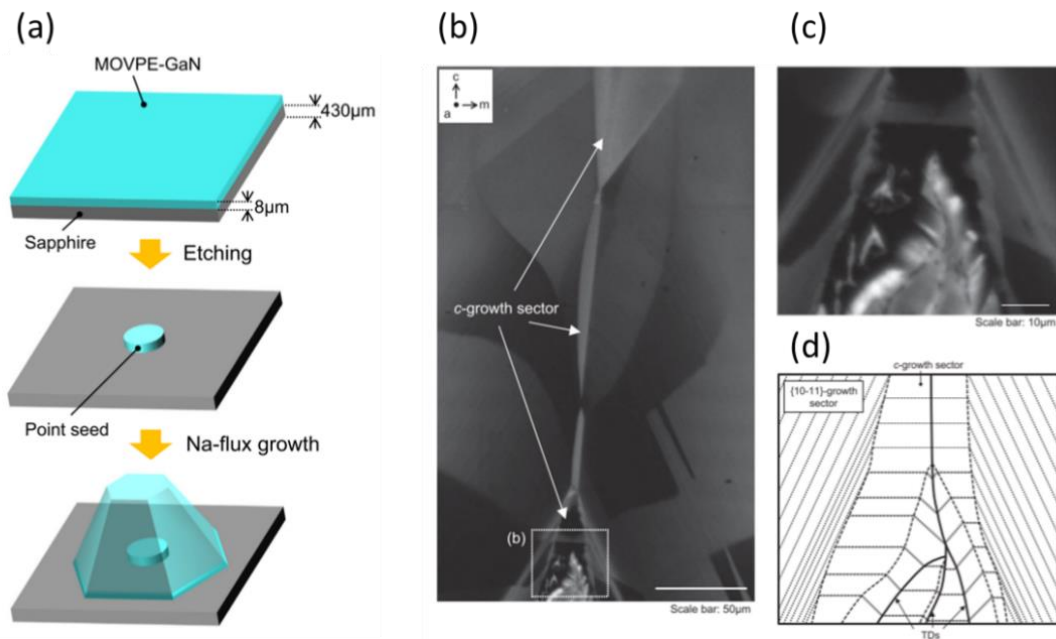


図 1-23 ポイントシード上ピラミッド成長の(a) 模式図、(b) 結晶断面 CL 像、(c) ポイントシード近傍の拡大像、及び、(d) ピラミッド成長過程の転位伝播様式¹⁴⁰。

Naフラックス法は、現在主流の HVPE 法と比べて格段に高品質且つ大口径な GaN 結晶が得られるが、成長速度が遅いという短所がある。そこで近年は、Na フラックス法による高品質な GaN を種結晶として使用することも検討されている¹⁴⁵。低転位密度の Na フラックス GaN 上に HVPE 法でホモエピタキシャル成長させることで、高品質なハイブリッド GaN 結晶を高速に作製することが可能となる¹⁴⁶。これら HVPE 法、Ammonothermal 法、Na フラックス法の特徴を表 1-3 にまとめている。

表 1-3 GaN バルク結晶成長手法の比較。

	HVPE			Ammonothermal		Na フラックス
	FIELO	DEEP	VAS	Basic	Acidic	
速度 ($\mu\text{m/h}$)		>100		~10	~10	~30
圧力 (MPa)		0.1 (大気圧)		100 – 300	80 – 300	~3
温度 ($^{\circ}\text{C}$)		1000 – 1060		400 – 600	500 – 650	870
転位密度 (cm^{-2})	~3 $\times 10^6$	$3 \times 10^4 - 10^7$	$1 - 4 \times 10^6$	~ 5×10^4	$10^2 - 10^4$	$10^3 - 10^5$
Refs.	117	118-120	121,123	127,130,131	128,129	136,141, 142

1.4.5. GaN パワーデバイス実用化に向けた主要課題

GaN 自立基板の登場によりホモエピ成長が可能となり、縦型デバイスが実現できるようになって以降、GaN パワーデバイス性能は着実に向上し続け、いよいよその実用化が視野に入ってきた。しかしながら、現状の GaN パワーデバイスにはデバイス作製プロセスや基本的な材料物性に関して幾つか主要な課題が数多く残っており、本格的な実用化を目指す上では、これらをクリアすることが必要とされている。図 1-24 にはその代表的な課題を示しており、①ドリフト層のドーピング精密制御技術、②局所 p 領域形成技術、③バルク結晶成長技術、④格子欠陥の影響調査などが挙げられる。

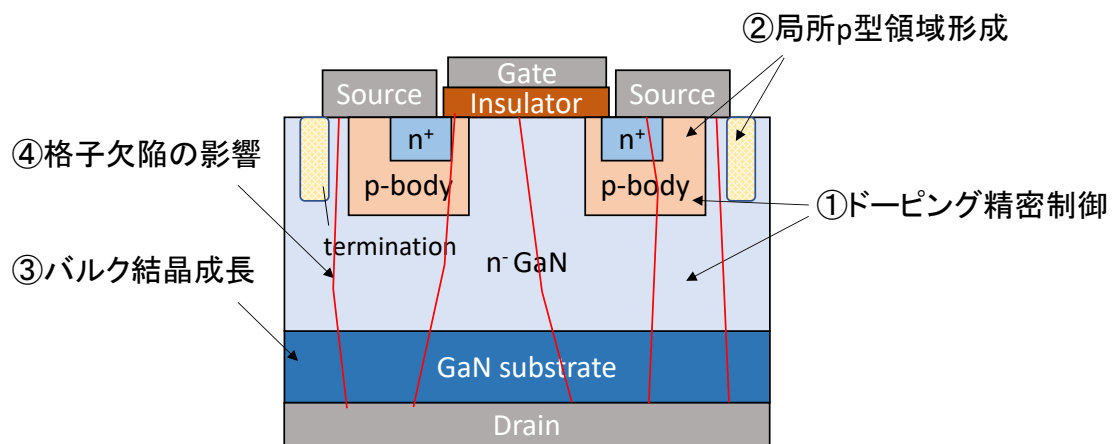


図 1-24 GaN パワーデバイスが抱える主要な課題。

① ドリフト層のドーピング精密制御技術

パワーデバイスの耐圧を稼ぐには膜厚を厚くするか、ドリフト層のキャリア濃度を低く制御する必要がある。図 1-25 はドリフト層膜厚毎のブレイクダウン電圧とドーピング濃度の関係性である¹⁴⁷。1 kV を超える高耐圧デバイスを作るためには、ドーピング濃度を約 10^{16} cm^{-3} に制御してエピ成長させる必要があることが分かる。10 kV 級の耐圧を稼ぐ場合にはさらにドーピング濃度を 10^{14} cm^{-3} 台にまで抑えなければならない。多くの場合、エピ成長には MOVPE 法が用いられるが、その際に、Ga 原料ガスであるトリメチルガリウム ($\text{Ga}(\text{CH}_3)_3$) の炭素原子がエピ結晶に取り込まれる。この残留炭素不純物は、Si ドープ n-GaN において深いアクセプタ準位の形成源となり、キャリアを補償してドナーを不活性化させてしまう¹⁴⁸。Si 濃度を変えても炭素不純物は $\sim 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 程度残留することが報告されており¹⁴⁹、MOVPE では 10^{15} cm^{-3} 台の精密ドーピング制御が難しい。この打開策として、近年は、原理的に炭素混入が生じない HVPE 法をドリフト層のエピ成長に用いることが提案されており、実際に、石英部材を使わずに作られた

成長炉で HVPE 成長させることにより、炭素濃度を 10^{14} cm^{-3} 台にまで抑制することに成功したという報告がなされている^{150,151}。

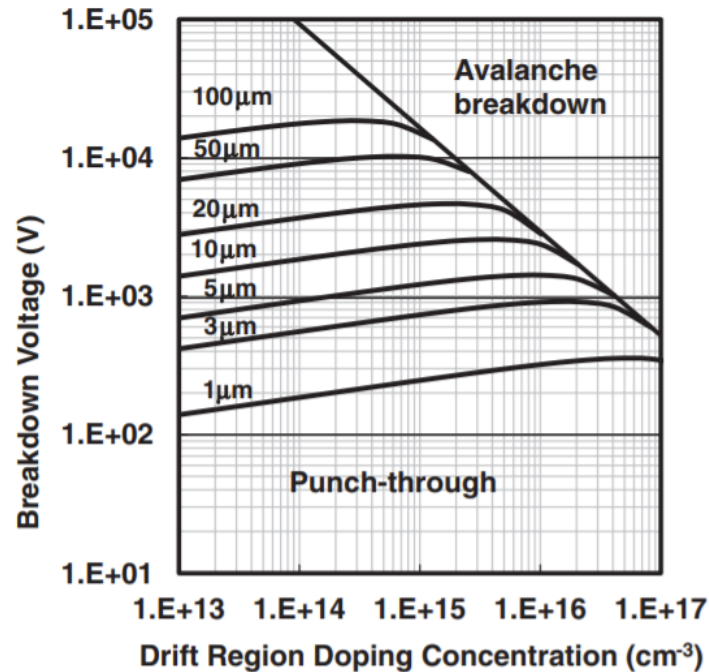


図 1-25 厚さ 1~100 μm の各ドリフト層 におけるブレイクダウン電圧とドーピング濃度の関係性¹¹⁵。

② 局所 p 領域形成技術

パワーデバイスの性能や信頼性を向上させる上では、図 1-24 に示すような局所の p-body 領域や電界集中緩和のための終端構造の作り込みが不可欠であり、それにはイオン注入による選択的 p 型領域形成技術が必須となる。n 型及び p 型化はそれぞれ Si と Mg を用いることが一般的であり、Si イオン注入に関しては、注入後 1400°C のアニールによってほぼ 100% 活性化されることが報告されている¹⁵²。しかし p 型注入に関しては、アニール後でも過量に存在する空孔型欠陥がキャリアを補償してしまい、Mg を安定的に活性化させることが困難であった¹⁵³。これまで、数秒間のパルス状 RTA (rapid thermal annealing) を数十回繰り返す手法や、SiN 保護膜や AlN キャップをした状態での RTA、N 面側から注入した後に RTA する手法などが報告されており、Mg の活性化が確認されているが、活性化率は僅か数%と非常に低いものであった¹⁵⁴⁻¹⁵⁷。しかし近年、1GPa という超高压 N_2 下で 1400°C 以上のアニールを行うことによって、キャップ無しでも 70% 以上という高い Mg 活性化率を実現したとの報告があり、遂に Mg イオン注入技術がデバイスプロセスに組み入れられる可能性が出てきた¹⁵⁸。

③ バルク結晶成長

上述したように、これまでいくつかのバルク結晶成長手法が考案され、改良が進んできたことにより、近年では、比較的高品質な GaN ウェハが手に入るようになった。しかし、無転位ウェハが市販化されている Si や、貫通転位密度が 10^3 cm^{-2} 台に抑制されている SiC に比べると、GaN 基板にはまだ多くの貫通転位が残存しており、価格も非常に高価である。今後、GaN パワーデバイスが信頼性を勝ち取り、市場に流通していくためには、より大口径・低転位密度な自立 GaN 基板を低コストで作製できる技術が求められる。

④ 格子欠陥の影響

多くの市販 GaN ウェハには、 10^6 cm^{-2} 台の貫通転位が残存するほか、不純物等の点欠陥も存在し、デバイス特性に多大な影響を与える。特に貫通転位は、GaN パワーデバイスにおいては耐圧の減少や逆方向リーク電流^{114,159}、キャリア散乱やダイナミックオン抵抗劣化^{94,95}の原因となることが知られている。1.3.2 節で説明した通り、先行する SiC においては格子欠陥とデバイス特性の関係性についてかなり詳細に調べられ、一つ一つ課題がクリアされてきたことにより、近年の社会実装に繋がったという経緯がある。GaN については、1990 年代から貫通転位の影響について研究されてきたが、当時はヘテロエピ成長した高密度の転位を含む GaN 結晶の調査だったために、転位構造毎にデバイスへの影響を調べるのが困難であった。ここ数年で自立基板の転位密度が徐々に減ってきたことにより、ようやく個々の貫通転位の影響に照準できるフェーズになってきた。それ故、デバイス特性に及ぼす転位の影響についてはまだまだ議論の最中である。GaN パワーデバイスのいち早い実用化に向け、貫通転位とデバイス特性の関連性を明らかにすることが急がれる。

ここまで示してきたように、GaN パワーデバイスの実用化に向けては未だ多くの課題を抱えている状態である。本論文では、特に④に照準し、貫通転位がリーク電流を誘発するメカニズムを解明すべく、貫通転位の伝播挙動や構造と電気特性の関連性を調査した。次節からは、GaN 結晶における転位の一般的な分類と、貫通転位起因のリーク電流に関する研究動向について説明し、本論文研究のモチベーションを示す。

1.5. GaN 結晶中の転位

1.5.1. 転位の分類

転位は、図 1-26(a)に示すように、基底面内を伝播する基底面転位と、結晶内を膜厚方向に貫通する貫通転位に大別できる。さらに転位は、図 1-26(b)に示す刃状転位、らせん転位、混合転位の 3 種類に分類される。これらはバーガースベクトル (\mathbf{b}) と転位線の方
向で決定され、基底面転位、貫通転位を問わず、転位線と \mathbf{b} が垂直の場合は刃状転位、平行の場合はらせん転位、いずれにもあてはまらない場合は混合転位に分類される。六方晶構造を有する GaN の場合、転位のバーガースベクトルは、多くの場合、 \mathbf{a} を単位格子の a 軸方向の基本格子ベクトルとして、 $\mathbf{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle = 1\mathbf{a}$ 、 $\mathbf{b} = \langle 0001 \rangle$ 又は $\langle 000\bar{1} \rangle = \pm 1\mathbf{c}$ 、 $\mathbf{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle$ 又は $1/3 \langle 11\bar{2}\bar{3} \rangle = 1\mathbf{a} \pm 1\mathbf{c}$ のいずれかで、例えば c 軸方向に伝播する貫通転位を想定した場合、 $\mathbf{b} = 1\mathbf{a}$ が刃状、 $\mathbf{b} = \pm 1\mathbf{c}$ がらせん、そして $\mathbf{b} = 1\mathbf{a} \pm 1\mathbf{c}$ が混合となる。また、 c 軸方向に伝播するらせん転位は、その転位芯構造に応じてさらに分類されることもある。芯が原子で埋まっているものを closed-core らせん転位または full-core らせん転位、芯部分の原子が幾つか抜け、中空状になっているものを open-core らせん転位、別名ナノパイプと呼ぶ。図 1-27(a)に示すように、plan-view TEM 観察をすると、芯が埋まっている通常の転位 (B、C) とは異なり、ナノパイプ (A) の転位芯は明らかに空洞になっていることが分かる¹⁶⁰。パイプは $\{1\bar{1}00\}$ 面で囲まれた構造をとり、概ね数 nm ～ 数十 nm の直径を有する (図 1-27(b))¹⁶⁰。以後、本論文では、特に断りのない限り closed-core らせん転位を‘らせん転位’、open-core らせん転位を‘ナノパイプ’と称する。

結晶成長面 (c 面) まで到達する貫通転位の内、らせん転位と混合転位は c 成分の \mathbf{b} を有するので、図 1-26(b)のように、転位を起点に c 成分に対応したユニット分のステップを作ったり、転位を中心としたスパイラル成長を誘発したりする。すなわち、らせん転位や混合転位は、結晶表面のステップやヒロックの形成起点となる。実際、原子間力顕微鏡 (AFM: atomic force microscopy) など表面モホロジーを観察した際、ステップ終端部やヒロック中心には、貫通転位の線張力で形成される nm スケールのピットがよく見られる¹⁶¹。後述するように、バリスティック電子放射顕微鏡法 (BEEM: ballistic electron emission microscopy) や電流検出型原子間力顕微鏡法 (C-AFM: conductive atomic force microscopy) を用いたリークスポット箇所における転位の種類同定には、このような表面モホロジー上の特徴に基づいて行われることが多い。

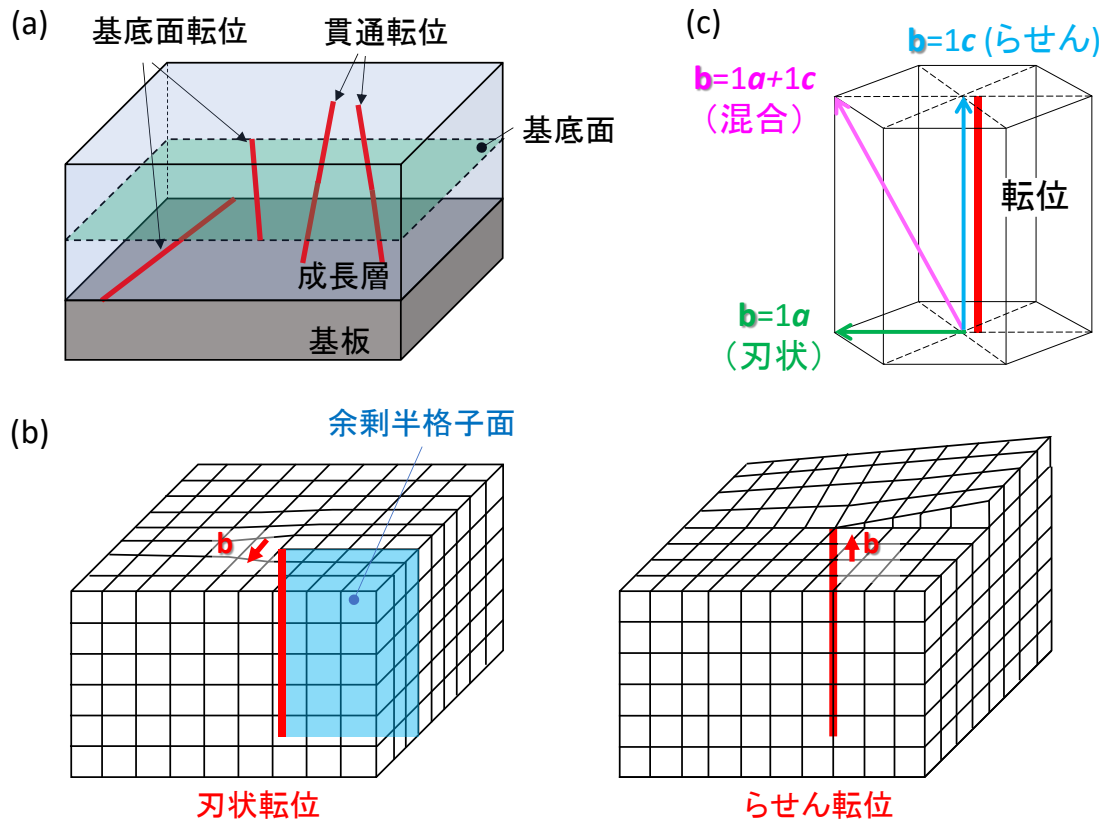


図 1-26 (a) 基底面転位と貫通転位、(b) 刃状転位とらせん転位、(c) 六方晶構造における転位のバーガースベクトルと種類の関係を示す模式図。

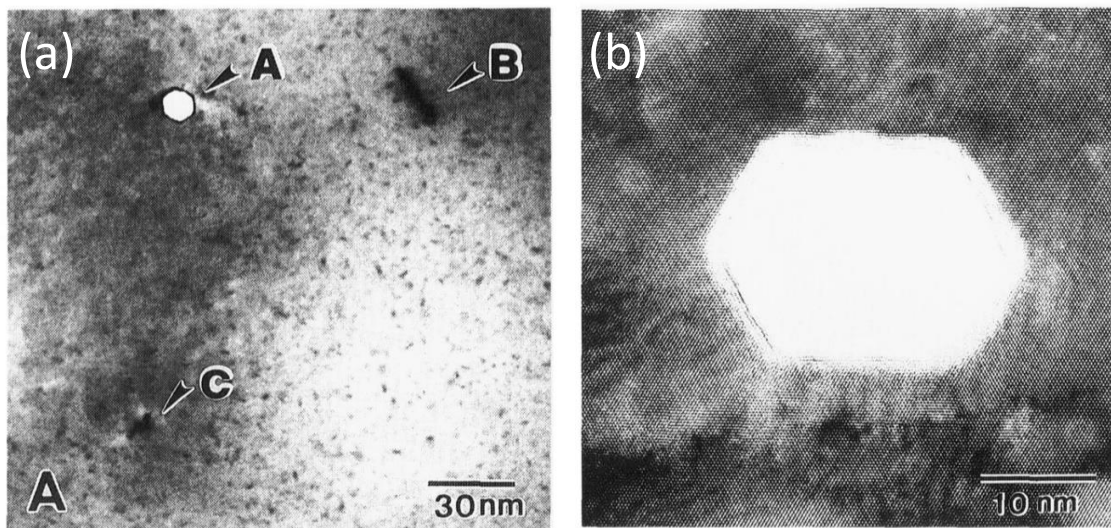


図 1-27 [0001]方位から観察したナノパイプの(a) plan-view TEM 像及び、(b) 高分解能 TEM 像¹⁶⁰。

1.5.2. 逆方向リーク電流源となる貫通転位構造に関する研究動向と課題

GaN のパワーデバイス応用研究が始まった 1990 年台後半から、貫通転位がリーク電流に及ぼす影響に関して調査が始まっている。転位とデバイスリーク特性の実験的評価法には大きく分けて 2 つのアプローチがあり、一つが、デバイスの貫通転位密度と電流リーク量の相関関係から、リークに及ぼす転位の影響を間接的に評価する方法、もう一つが、デバイス内の電流リークスポットを直接検出し、リークスポットにおける貫通転位の有無やその結晶構造を評価する方法である。歴史的には前者の評価から始まった。転位密度とリークの相関を明確に示した最初の報告は、1997 年に発表された UCSB のグループの研究である¹⁶²。Kozodoy らは横方向エピタキシャル成長 (LEO: lateral epitaxial overgrowth、ELO と同義) で成長させた同一 GaN 膜内に高貫通転位密度領域と低転位密度領域が分布することを利用し、各領域上に作製した pn diode (PND) のリーク電流量を比較したところ、高転位密度領域のリーク電流量が大きいことを明らかにした (図 1-28)¹⁶²。明瞭な相関関係が示されたことによって、貫通転位がデバイスのリークパスになっている可能性が高いことが示唆され、この報告を契機に、リークスポット直接同定法に依る評価が始まった。ユニポーラパワーデバイスとして期待される SBD についても、後に Hashimoto らが、低転位密度 GaN on GaN 縦型 SBD と、高転位密度 GaN on サファイヤ横型 SBD の比較により、リーク電流に及ぼす転位の影響を間接的に示している¹⁶³。

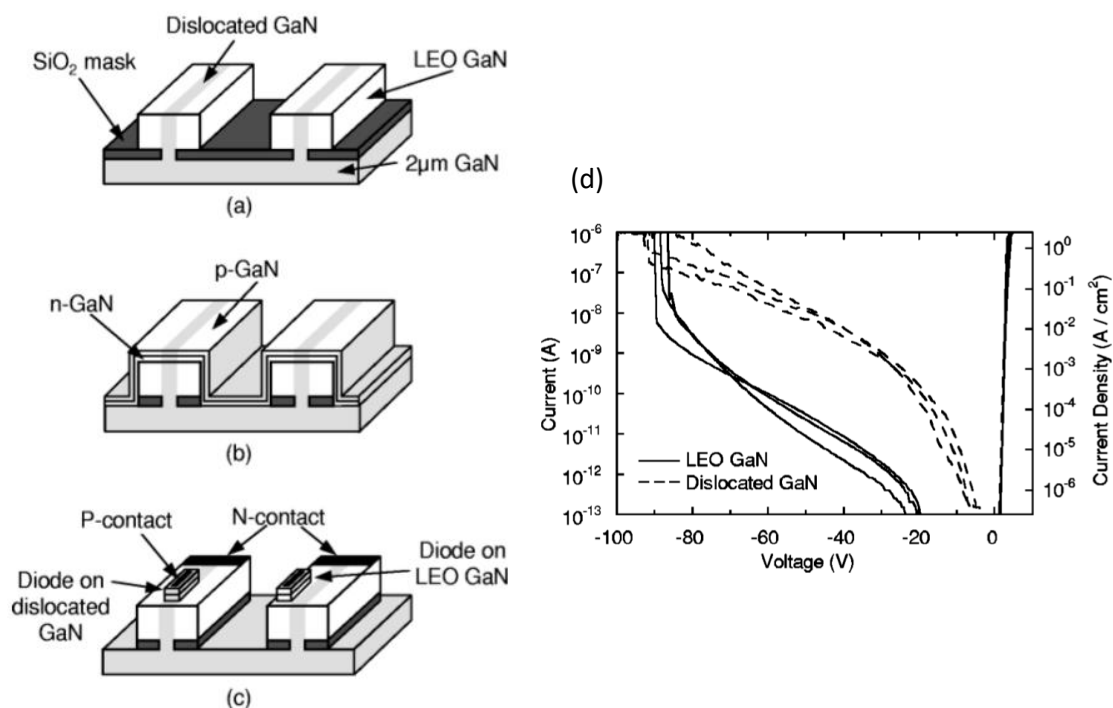


図 1-28 LEO 成長させた GaN 膜の高転位密度領域 (Diode on dislocated GaN) と低転位密度領域 (Diode on LEO GaN) に形成された PND の(a-c) 模式図及び、(d) 電気特性。参考文献[162]を一部改変して掲載。

GaN におけるリークスポットの同定には、BEEM や C-AFM、エミッション顕微鏡法 (EM: emission microscopy) がよく使用される。図 1-29 は、これらの測定原理を示した模式図である。BEEM と C-AFM は共に走査型プローブ顕微鏡 (SPM: scanning probe microscopy) の一種で、それぞれ走査型トンネル顕微鏡 (STM: scanning tunneling microscopy) と AFM の応用である。BEEM は、探針から放たれたトンネリング電子の内、金属層とショットキー界面を超えて GaN 側に流れ込んだ電子を検出し、形状像と共に電流検出量をマップ化する。貫通転位等の存在によりショットキー障壁が局所的に低下している領域では周囲より電子が過剰に検出されるため、**conductive spot** として検出される。すなわち、BEEM により得られる像は、本質的にはショットキー障壁高さの二次元分布を意味する (図 1-29(a))。C-AFM では、電圧印可した導電性カンチレバーを試料表面で走査させることにより、電流像と表面形状像を同時取得する。その際、カンチレバーを Pt や Au 等の仕事関数の大きい金属でコーティングすれば、探針先端と GaN 表面がナノスケールのショットキーコンタクトとなるため、逆バイアスを印可して走査することにより、局所的なリークスポットを特定できる (図 1-29(b))。また、C-AFM では、任意の定点で電流-電圧 (I - V) 測定も行うことができる。EM では、リークの発生と共に

生じる熱や赤外線等の発光を検出し、マップ化する。SBD や PND など実デバイス表面の光学顕微鏡像と、逆バイアス印可時の発光像を正確に重ね合わせることでリークスポット位置を同定することが可能となる(図 1-29(c))。

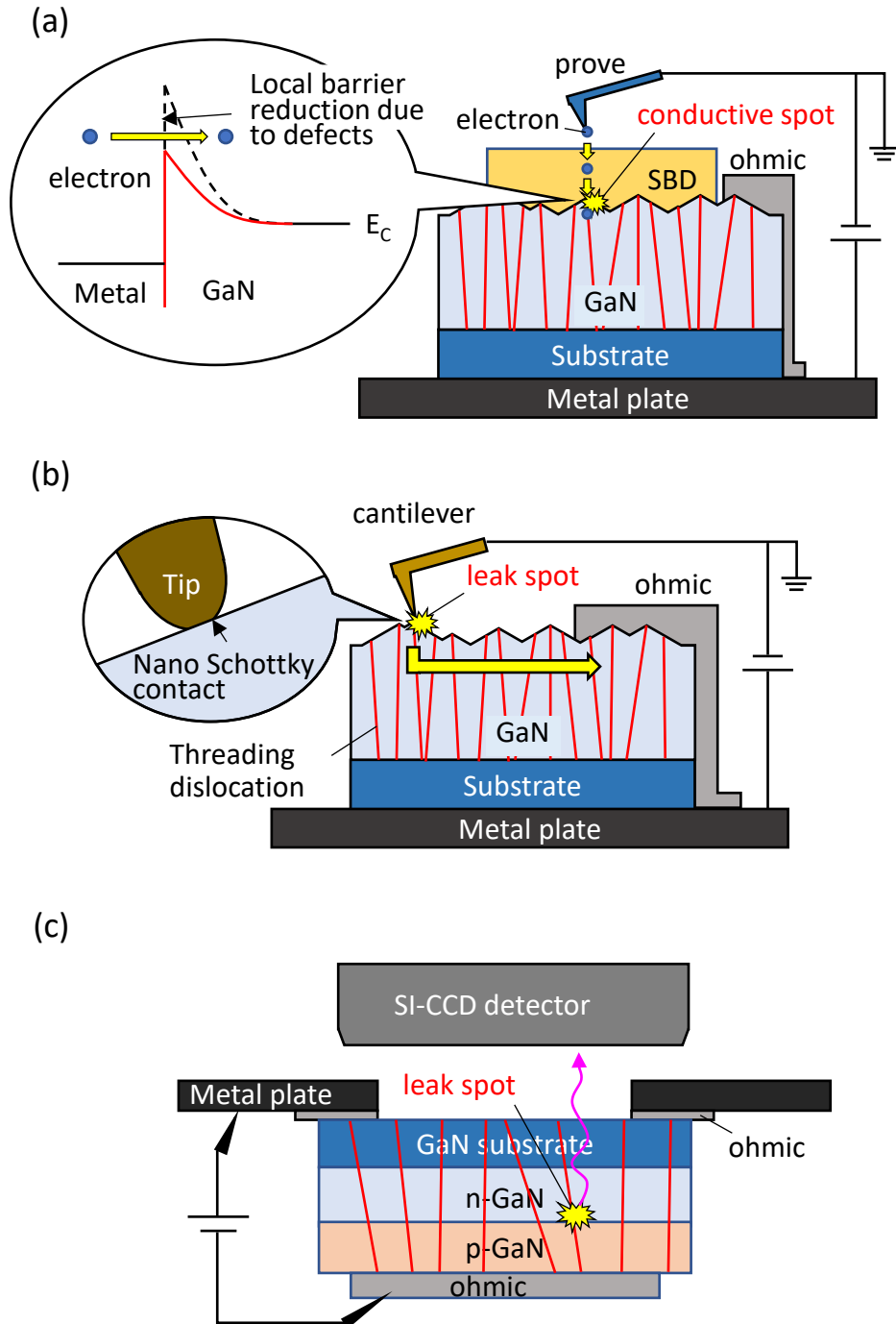


図 1-29 各種リークスポット同定手法の模式図。(a) BEEM、(b) C-AFM、(c) EM。

リークスポット直接同定法により、リーク電流が生じる貫通転位の構造を研究している報告例を表 1-4 にまとめている。リークする貫通転位の構造に言及した最初の報告は、1999 年の Brazel らによる BEEM を用いた研究である¹⁶⁴。彼らはサファイヤ基板上に MOVPE で成膜した n-GaN 膜に Au/GaN ショットキーダイオードを作り、BEEM 観察を行った。その結果、局在する過剰電子検出スポットがあることを見出し、このスポットがステップ終端部のピット箇所と合致したことから、らせん転位や混合転位がデバイスリーク源となる可能性を示した。この報告以降は、C-AFM によるリークスポット調査結果が数多く報告されている。Hsu らは 2001 年に、サファイヤ上 HVPE-GaN テンプレート上に分子線エピタキシー法 (MBE: molecular beam epitaxy) で成膜した GaN を C-AFM で調査している¹⁶⁵。その中で、一部のヒロック中心でリークが生じることを見出し、らせん転位や混合転位がリークパスとなっていることを示した (図 1-30)。同時に、全転位の内 20%しかリークしていないことも判明し、必ずしも全ての転位がリーク源となるわけではないことが示された。また、彼らは転位でリークスポットが観測される際の逆バイアス電圧値が MBE 成長条件 (Ga-rich/Ga-lean) によって異なることにも言及し、後の報告にて TEM 解析を行い、これがらせん転位の結晶表面終端部に付着した Ga-droplet に起因することを示した¹⁶⁶。同報告では、転位部への過剰な Ga 原子吸着が転位芯構造を変化させ、結果的にリーク電圧値の違いをもたらしていると指摘し、転位の電気特性は種類のみならず、成長条件によっても変化し得ると結論付けている。一方、同グループは、2002 年に、全転位密度に対するらせん転位の比率が異なる 2 つの MBE サンプルにおけるリークスポット密度を比べ、らせん転位密度比が大きいサンプルでリークスポット密度が高いことを見出し、らせん転位が優先的にリークパスになっていると報告している¹⁶⁷。2003 年に報告された Simpkins らの研究 (サファイヤ上 MOVPE-GaN 薄膜) でも、同様の結論が導かれている¹⁶⁸。しかしながら、これら Hsu と Simpkins らの報告における転位種同定は、TEM による直接的解析ではなく、表面モロロジーや、過去の TEM 観察結果から推定される全転位密度とらせん転位の比率に基づいた間接的手法によって行われていることに注意されたい。

表 1-4 リーク電流を生じる転位構造に関する報告例一覧。

Year	Author	Sample structure	TDD [cm ⁻²]	Leakage spots	Leakage evaluation	Identification of TD types
1999	Brazel	MO UID-GaN on sap	5.0×10^8	Lowered SBH at screw and/or mixed TDs	BEEM	Surface and ratio
2001	Hsu	MBE UID-GaN on HVPE/sap	1.0×10^9	Screw and/or mixed	C-AFM	Surface and ratio
2001	Hsu	MBE UID-GaN on HVPE/sap	$5.0 \times 10^8 \sim$ 1.0×10^9	Screw and/or nanopipes with Ga- droplet	C-AFM	Surface and ratio (TEM only for other screw TDs)
2001	Shiojima	MO n-GaN	$> 3.0 \times 10^8$	No effects of TDs on leakage (screw and/or nanopipes possibly affect leakage)	C-AFM	Surface (TEM only for other mixed TDs)
2002	Hsu	•MBE UID-GaN on HVPE/sap •MBE UID-GaN on MO/sap	1.0×10^9	Screw and/or nanopipes with Ga- droplet	C-AFM	Surface and ratio
2003	Simpkins	MBE UID-GaN on MO/sap	1.0×10^9	Screw	C-AFM	Surface and ratio
2007	Moore	MBE UID-GaN on MO/sap	$> 2.0 \times 10^8$	Screw, and mixed and edge at the higher bias	C-AFM	Surface and ratio
2014	Kim	MO n-GaN on MO/sap	$> 3.0 \times 10^8$	Nanopipes > screw and/or mixed	C-AFM	Surface and ratio for screw/mixed TDs and TEM for nanopipes
2017	Sang	Vertical GaN on GaN SBD	5.0×10^6 in F-GaN sub.	Screw and/or mixed (segregation of C impurities)	EM	EP and STEM for the mixed TD
2017	Usami	•MO p-GaN on UID-GaN/n- GaN/F-GaN •MO p-GaN on UID-GaN/n- GaN/sap	5.0×10^6 for on F- GaN 5.0×10^8 for on GaN/sap	No leakage at nanopipes or leakage at other TDs	EM	EP and STEM only for nanopipes
2018	Usami	Vertical GaN on GaN PND	1.3×10^7	Screw with b=1c	EM	EP and TEM (LACBED only for b=1c TD)
2019	Usami	Vertical GaN on GaN PND	$3.7 \sim$ 3.8×10^6	Nanopipes	EM	EP and STEM for nanopipes

Abbreviation; MO: MOVPE, UID: unintentionally-doped, sap: sapphire, F-GaN: free-standing GaN, EP: etch pit

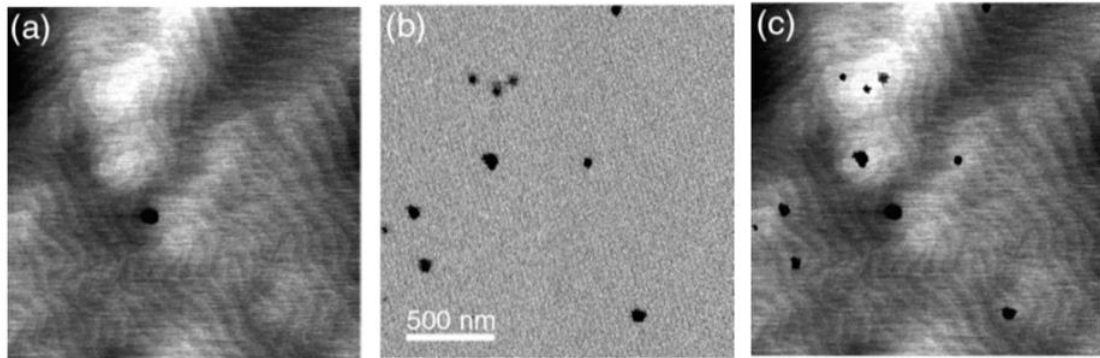


図 1-30 HVPE-GaN／サファイヤテンプレート上 n-GaN 薄膜の-6 V 印可 C-AFM 観察結果。(a) 表面形状、(b) 電流像、(c) それらの重ね合わせ¹⁶⁵。

Moore らは、逆バイアス電圧 12 V 印可時には、全ヒロックの約 10%と刃状転位起因のホールの一部でしかリークしなかったものの、逆バイアス電圧値と共にリークスポット密度は増加し、25 V 時にはヒロックとホール共に約 50%がリークすることを見出した。このリークスポット密度は推定されるらせん転位密度よりも高いことから、刃状転位や混合転位もリーク源となり得ることを示した¹⁶⁹。一方で、転位がショットキー接触におけるリークにはほとんど寄与しないと主張する報告も存在する。Shiojima らは、サファイヤ上 MOVPE-GaN 膜上に 350 nm 径の円形 Ni/Au を十数個蒸着し、サブミクロンスケールのショットキーコンタクトを形成した。各電極下にはゼロ～数個の貫通転位が存在するにも拘らず、C-AFM で得られた各 I - V 特性はほぼ一様な特性を示したことから、上記の結論に至っている。しかし、径の大きなショットキー接触においては、幾つかでリークの増大が見られたため、密度の低いナノパイプやらせん転位がリークパスとなっている可能性を示唆している¹⁷⁰。

2014 年、Kim らはエッチピット法と TEM 観察を組み合わせた直接的な転位構造解析を試みている¹⁷¹。後に詳述するが、エッチピット法とは、ウェットエッチングで貫通転位部に形成される微孔(エッチピット)サイズから転位の有無や種類を決定する手法である。2000 年代から様々なエッチャントを GaN に適用し、エッチピットサイズと転位種の対応関係を調べる研究がなされており、概ねサイズと種類が対応すると報告されている¹⁷²⁻¹⁷⁵(ただし、この対応関係には例外も多く、現在もなお継続して研究されている)。Kim らは、サファイヤ上 MOVPE-GaN において、C-AFM で最大のリークを検知した転位箇所には最も大きなエッチピットが形成されることを見出した上で(図 1-31)、TEM 観察により、これがナノパイプであることを明らかにした¹⁷¹。ナノパイプでのリークは表面ピット部の縁でのみ生じていたことから(図 1-31(a-b))、パイプ側壁に集積した

第1章 序論

酸素不純物がリーク誘発因子となっている可能性を指摘した。また、表面ステップ終端部のピットでも微弱なリークが検出されたが、これについては、Hsu や Simpkins らの報告を参照し、らせん転位や混合転位もナノパイプに次いでリークしやすいと推察しているだけに留まっている。

以上、2000 年～2010 年台初期までの研究では、転位構造について曖昧性を残していたが、リーク電流は全ての転位ではなく一部の転位でのみ生じることがほぼ確定的となった。当時はヘテロエピ成長させた 10^{8-9} cm^{-2} という高貫通転位密度の GaN 結晶評価が主流で、リークする転位箇所を特定できても、それらを狙って TEM 試料を作製することが技術的に難しく、TEM で直接構造観察することは困難であった。それ故に、ほとんどの報告では、転位構造についてはリークスポットの表面モロロジーや、TEM 観察している他文献で概算された転位種別存在比率と実際のリークスポット密度との比較評価に基づいた、‘転位種の推定’に留まっており、決定的な証拠に欠けていた。

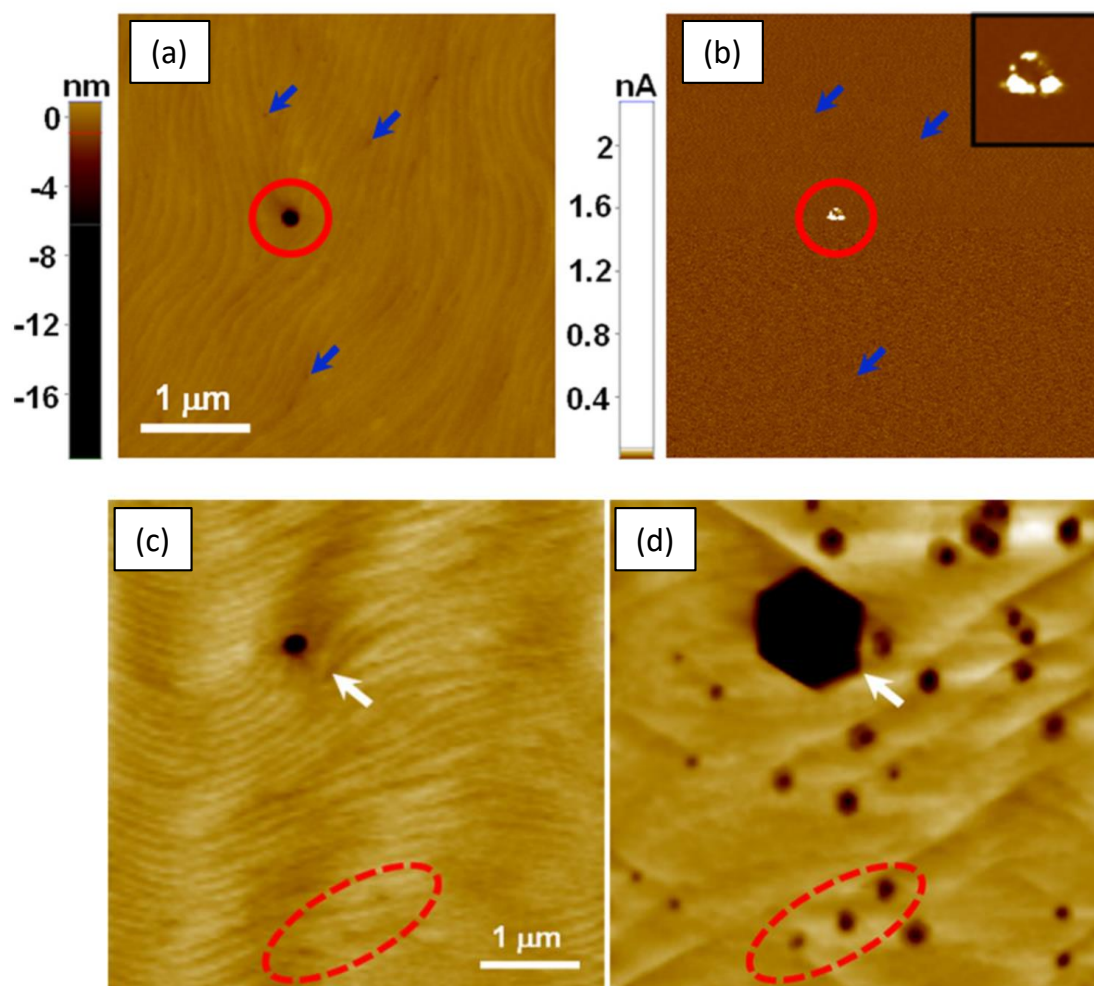


図 1-31 6 V 逆バイアス電圧印可時の(a) 表面形状像及び、(b) 電流像。ナノパイプ終端部ピットの縁でリークが生じている。ナノパイプ部の (c) エッチング前及び、(d) エッチング後の表面形状像。参考文献[171]の図を一部改訂して掲載。

2010 年台後期に入り、GaN 基板の高品質化によって縦型パワーデバイス開発が熱を帯び、キラ欠陥がデバイス性能に及ぼす影響が顕著化してきたことを受け、キラ欠陥となる転位構造は一体どのようなものなのかということが、より一層重要視されてきた。この時代になると、デバイス内の貫通転位密度も 10^{6-7} cm^{-2} 台にまで減少しており、一つ一つの転位を狙って構造解析することが可能となってきた。2017 年、Sang らは、EM とエッチピット法で GaN on GaN 縦型 SBD のリークスポットが一部の転位で生じていることを確かめたうえで、スポット直下の転位を走査型 TEM (STEM: scanning transmission electron microscopy) 及びエネルギー分散型 X 線分光法 (EDS: energy dispersive X-ray spectroscopy) で解析した¹⁷⁶。その結果、転位種は混合転位であり、リークの直接的な原因は、MOVPE 成長中に貫通転位に集積した炭素不純物が表面ピット部で露呈したことによるものと結論付けている。Usami らは 2017 年から 2019 年にかけて GaN on GaN 縦型 PND についてかなり詳細なリーク解析結果を報告している。2017 年、サファイヤ基板と GaN 自立基板上に作製した PND の EM 観察及び、断面 STEM 観察の比較から、ナノパイプはリークパスにはなっておらず、ナノパイプ以外の貫通転位がリーク源となっていることを示した¹⁷⁷。2018 年には、EM で特定したリークスポットの転位構造解析アプローチに、エッチピット法、STEM、そして TEM を用いた大角度収束電子線回折法 (LACBED: large-angle convergent-beam electron diffraction) を複合的に用いている¹⁷⁸。後に詳述するが、LACBED 法は転位のバーガースベクトルを一義的に決定できる、高度な TEM 解析手法の一つである。解析には TEM 試料内に転位が独立して存在している必要があるため、低転位密度 GaN 基板が出回ってきた近年になって、GaN に適用され始めてきている。その報告では、エッチピットサイズが明瞭に 3 つ (S/M/L) に分類され、このうち素子内の M サイズエッチピットが全てリークスポットと合致していたことから、M サイズピットを作る同一種類の転位がリーク源となっている可能性を示した (図 1-32)。そして、LACBED と STEM によって、M エッチピット及び L エッチピット直下の転位は、それぞれ $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ のらせん転位、ナノパイプであることを突き止めた。この結果によって、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ という特定のバーガースベクトルを持つらせん転位がリークパスとなり得ることが決定的となった。ただし、ナノパイプでリークが発生しないという結果は、先の Kim らの報告とは異なる結果となっていた。しかしながら、続く 2019 年の報告では、MOVPE 成長圧力を変えた複数の PND を同様の方法で評価したところ、どの素子においてもらせん転位は一つもリークパスとはならず、リークした転位のほとんどがナノパイプ (極稀に刃状転位と混合転位でもリーク) であること

を発見した¹⁷⁹。さらに、どの素子内においてもリークするナノパイプとリークしないナノパイプが共存することも言及しているが、その原因は不明としている。

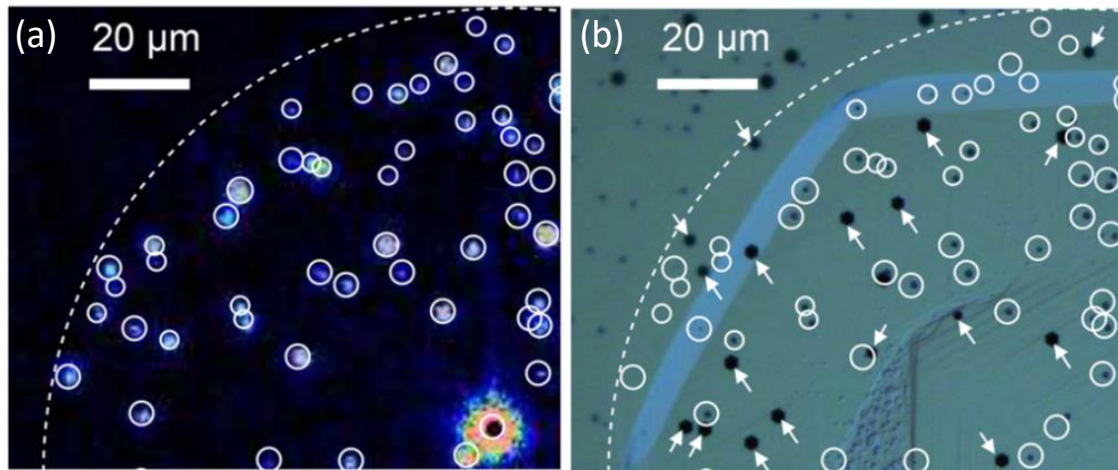


図 1-32 同領域の(a) 逆バイアス EM 像と(b) エッチピットの光学顕微鏡像。参考文献[178]の図を一部改訂して掲載。リークスポット(白丸)箇所は M サイズエッチピットと完全合致し、L エッチピット(矢印)とは合致していない。

以上、これまでの研究で明確になったことを以下にまとめる。

- 素子内の全ての貫通転位ではなく、一部の貫通転位がリークパスとなる
- 刃状転位がリークパスとなる報告はほぼ無く、らせん成分を持つ転位、すなわち、らせん転位、ナノパイプ、混合転位がリークしやすい傾向にある
- 実デバイスでは **b=1c** らせん転位、ナノパイプ、混合転位がリークパスとなっていた
- リークする転位の種類は報告によって異なる
- 同一素子の中の同一種類の転位でも、リークするものとリークしないものが共存するが、原因は不明

簡単に言い換えると、「リークしやすい転位の構造的特徴は徐々に分かってきたが、リークを決定づける因子は未だに不明」ということである。特に、上記の後半 2 つが意味することは重要である。すなわち、リークする転位構造に関する過去の研究では、転位密度が高かったことや構造解析技術の簡便性等の理由から、そのほとんどが‘転位の種類’に照準してきたが、過去 20 年間に渡る研究の末に、ようやく、「転位でのリーク特性は単なる種類だけでは決まらない」という事実が浮き彫りになってきた。結晶成

長条件の僅かな違いによって成長表面モロロジーや不純物濃度の面内分布等が変化すれば、それらに応じて転位の伝播様式や点欠陥との相互作用、芯の原子構造や歪なども多様に変化し得る。とすれば、同じ種類の転位であっても、電子構造は多様化し、リーク特性も様々に変化することが予想される。しかしながら、リークが生じる転位構造を、このような複合的な観点で調査している例は非常に少ない。この根本的な原因を考えると、

- ① 貫通転位で生じるリーク電流自体を定量計測することは難しく、転位のリーク評価に関する過去の研究では、貫通転位でリークするかしないかの二値的評価に留まっていた
- ② それ故、転位毎の原子構造や電子構造の僅かな違いを実験的・理論的に示せても、それらを転位のリーク特性と定量的に紐づけることが困難であった

という2点に帰着する。①について、例えば C-AFM の場合、探針/GaN 表面のナノスケールショットキー接触における電界強度は探針の接触状態に敏感なため¹⁸⁰、探針接触面積が増大するような凹部や段差部では、過剰な電流値が検出されやすい傾向がある。従って、実際にリークが検出されたピット部やパイプ側壁、ステップエッジ等におけるリーク電流の定量性については、議論の余地を残している。実際、Shiojima らが行っているようなショットキー電極の形成¹⁷⁰をせずに、結晶表面に直接探針を接触させる形で C-AFM スキャンしている研究では、リークしているのか、していないのかという二値的な議論しか展開しておらず、リークしている転位同士の僅かな電流量の差異については言及できていない。EM に関しても、一見リークスポットの発光強度の違いでリーク電流度合いを議論できそうだが、各スポットにおける電界強度が一樣であるとは言い切れず、転位間でのフェアな比較が難しい。個々の転位構造の差異を見出せたとしても、それと定量的に対応付けられるリーク電流データがないため、EM を用いた最新の研究でも、発光の有無と転位種の関連性に議論が留まっている。一方、理由②として示しているように、GaN 結晶中の転位芯における原子構造や電子構造については、TEM や STEM による電子エネルギー損失分光法 (EELS: electron energy loss spectroscopy) 等を用いた実験的研究が幾つか報告されており、種類間での違いや、同一種類の中での違いについても議論されている¹⁸¹⁻¹⁸⁶。その他、転位の電子構造が、転位の傾斜方位¹⁸⁷、転位芯の原子構造や歪、不純物原子の存在に応じて変

化し得ること¹⁸⁸⁻¹⁹²、そしてまた、このような転位構造や点欠陥との相互作用が成長条件に依って変化し得ること¹⁶⁶は、数々の実験的及び理論的研究によって断片的に指摘されている。しかしながら、①の理由から、このような転位毎にわずかに異なる結晶構造・電子構造の違いを検出できたとしても、これらを個々のリーク特性と関連付けて議論することは実質不可能であった。

以上、GaN 結晶における貫通転位のリーク特性に関して、その結晶構造と電気特性の関連性が未だに不明確である根本的な原因について述べた。長年の先行研究結果を踏まえると、図 1-33 に示す通り、転位で生じるリーク特性は、もはや種類という枠組みを超え、バーガースベクトルや傾斜等の微細な結晶構造やバルク結晶中の伝播様式、転位芯の原子構造に応じた歪や、転位芯に集積する不純物や点欠陥が複合的に寄与していると推察される。そして、これらは結晶成長様式によって大いに変化し得る。従って、転位でのリーク特性を決定付ける因子やそのメカニズムを解明するためには、個々の転位における電気特性を定量計測し、転位間のリーク特性の違いを明らかにした上で、それらを転位の伝播形態や微細構造、転位周辺での結晶成長様式まで含む多角的な特徴と紐づけ、解析することが必要であると考えられる。

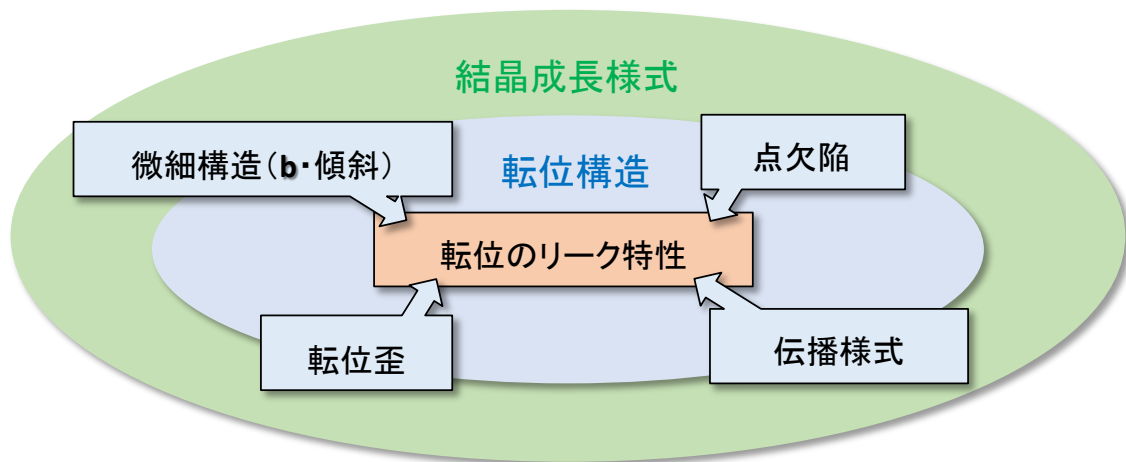


図 1-33 転位のリーク特性に寄与し得る因子。

1.6. 本研究の目的と本論文の構成

本研究は、GaN パワーデバイスの実用化に向けた最重要課題の一つである、貫通転位における逆方向リーク電流発生メカニズムを解明することを目的とする。リーク電流を引き起こす転位構造に関して、刃状／らせん／混合／ナノパイプといった様な種類のみの議論に留まっていた従来の研究を打破して、さらに詳細な転位の構造と電気特性の関連性を解明すべく、まず、貫通転位の電気特性を個々に定量計測できる技術を確立する。その上で、転位の電気物性と、バーガースベクトルや微細構造、伝播形態、周辺の結晶成長様式までを含む多角的かつマルチスケールな転位構造とを対応付け、リークしやすい転位の特徴を見出す。この包括的アプローチを種々の手法で作製された GaN 結晶に適用し、それぞれの結晶において転位構造と電気特性の関連性を体系化することにより、過剰なリーク電流を生じる転位構造の特徴、そして、転位でリーク電流が発生する本質的なメカニズムを解明することを目指す。

本論文における研究内容と構成を図 1-34 に示す。本論文は、本章を含む全 7 章と、謝辞及び研究業績リストで構成されている。第 2 章では、本論文の研究基盤となる、転位物性解析アプローチを説明する。特に、上記研究目的を達成すべく、本論文の筆者らが独自に開発した、エッチピット法と集束イオンビーム (FIB: focused ion beam)、C-AFM を組み合わせた単独貫通転位の電気特性評価技術を詳しく述べ、その後、種々の構造解析に用いた装置や手法について説明する。続く第 3 章から第 6 章にて本研究の結果を示す。本論文では、図 1-34 内の右上挿入図に示す通り、GaN パワーデバイス用の高品質 GaN バルク結晶成長手法として期待される Na フラックス法をベースとした GaN バルク結晶基板を評価対象とし、第 3 章では、Na フラックス法で育成した GaN 基板、第 4 章以降では、その発展技術として研究開発が進む HVPE on Na フラックスのハイブリッド GaN 基板を中心に調査した。Na フラックス法では、結晶成長過程で生じる *c* 面成長とファセット面成長という結晶成長様式の違いが結晶に取り込まれる不純物量や転位の伝播挙動に影響することが指摘されており、第 3 章では、このような成長様式の違いや不均一に起因した転位構造の特異化や結晶内の不純物濃度分布が、貫通転位直上に形成されたショットキー接触のリーク電流特性にどのような影響を及ぼすのかという点に注目し、調査を行う。第 4 章から第 6 章では、結晶成長様式や転位伝播挙動が Na フラックス GaN よりも一様であることが予想される HVPE on Na フラックスのハイブリッド基板を用いることで不均一な結晶成長様式の影響を極力排除し、バーガースベクトルや伝播形態のような転位自体の構造的差異が転位部ショ

第 1 章 序論

ットキー接触の電気特性に及ぼす影響を評価する。第 4 章では、転位部ショットキー接触の電気測定に先立ち、ハイブリッド基板における貫通転位の伝播形態や微細構造を、市販 HVPE 基板 (HVPE on サファイヤ) と比較しながら詳細に調査する。エッチピット法、TEM、MPPL を用いた系統的評価により、HVPE 法で育成した GaN バルク結晶におけるエッチピットサイズとバーガースベクトルの一対一対応関係データベースを構築し、これを基盤として転位のバーガースベクトルと伝播挙動の関連性を明らかにする。第 5 章では、ハイブリッド基板の単一貫通転位箇所に形成したショットキー接触部の I - V 特性、並びにその温度依存性 (I - V - T) を評価し、電気特性のピットサイズ依存性やピット先端電界強度等を考慮した精密且つ定量的な解析を実施することで、異常に大きなリーク電流を生じる貫通転位を統計的に見出すと同時に、転位がショットキー界面の電気伝導機構に及ぼす影響を明らかにする。第 6 章では、第 5 章で調査した貫通転位の伝播形態や微細構造を解析し、電気特性との関連性を統計的かつ系統的に評価した。さらに、異常リーク特性を示した貫通転位の形態、構造を詳細解析し、貫通転位のキラ欠陥化メカニズムに言及する。最後の第 7 章にて、本研究で得られた成果を総括した上で、残された課題と今後の展望を述べ、本論文の結論とする。

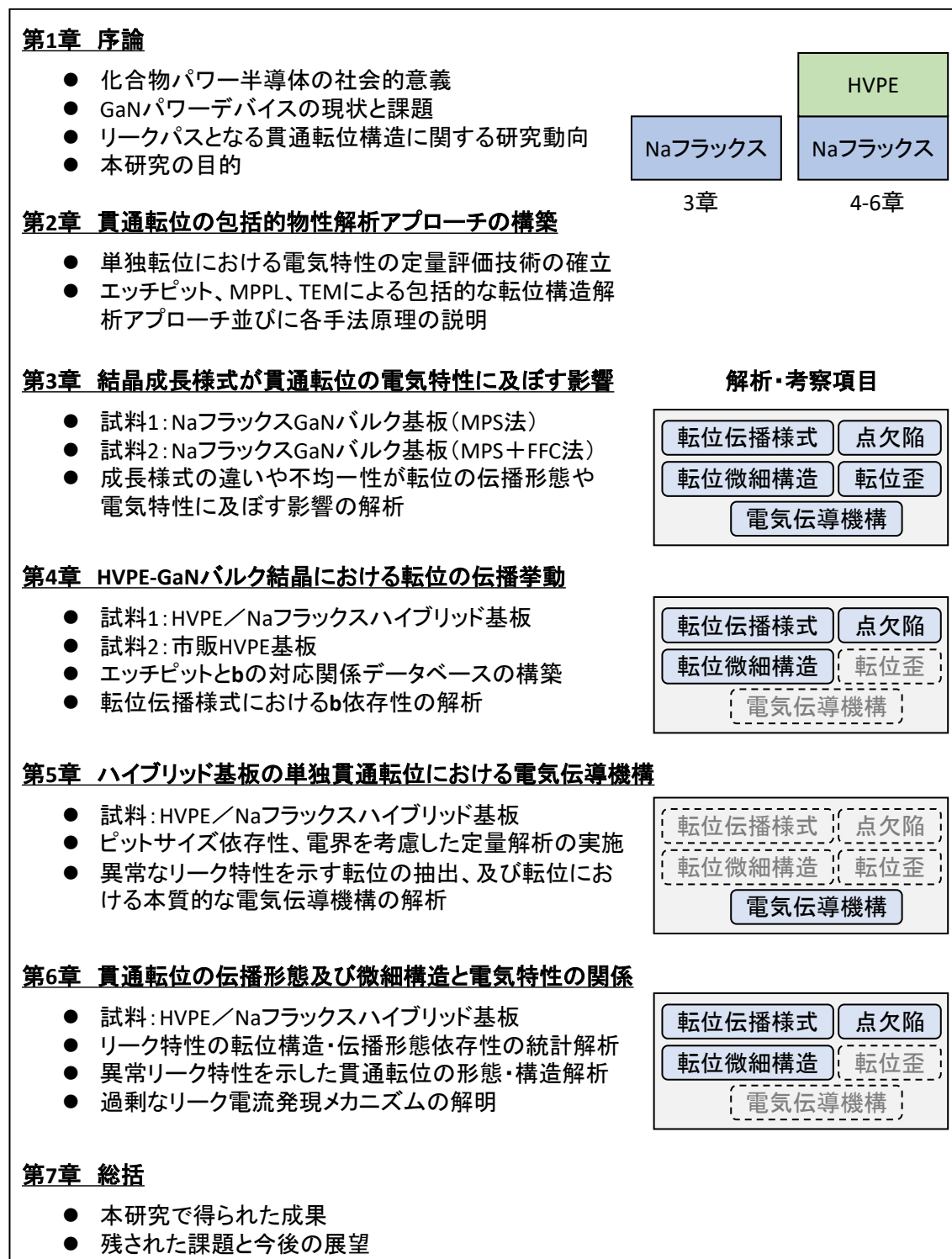


図 1-34 本論文の研究内容と構成。右上挿入図は、各章で主に評価した Na フラックス法ベースの GaN バルク基板模式図を示す。

参考文献

- ¹ J. Hansen, R. Ruedy, M. Sato, and K. Lo, Rev. Geophys. **48**, RG4004 (2010).
- ² 外務省「気候変動に関する国際枠組 パリ協定」、
https://www.mofa.go.jp/mofaj/ic/ch/page1w_000119.html
- ³ 公益財団法人 地球環境戦略研究機関 (IGES)「IPCC1.5°C特別報告書」ハンドブック: 背景と今後の展望」、(2019)
- ⁴ Sustainable Japan「世界各国の発電供給量割合[2019年版]」、
<https://sustainablejapan.jp/>
- ⁵ T. Kimoto, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 040103 (2015).
- ⁶ B. J. Baliga, *Wide Bandgap Semiconductor Power Devices*, (Woodhead Publishing, Duxford, 2019).
- ⁷ Y. M. Tairov and V. F. Tsvetkov, J. Cryst. Growth **52**, 146 (1981).
- ⁸ D. Chaussende, P. J. Wellmann, and M. Pons, J. Phys. D: Appl. Phys. **40**, 6150 (2007).
- ⁹ S. I. Nishizawa, T. Kato, Y. Kitou, N. Oyanagi, F. Hirose, H. Yamaguchi, W. Bahng, and K. Arai, Mater. Sci. Forum **457-460**, 29 (2004).
- ¹⁰ D. Nakamura, I. Gunjishima, S. Yamaguchi, T. Ito, A. Okamoto, H. Kondo, S. Onda, and K. Takatori, Nature **430**, 1009 (2004).
- ¹¹ C. Basceri, I. Khlebnikov, Y. Khlebnikov, P. Muzykov, M. Sharma, G. Stratiy, M. Silan, and Cengiz M. Balkas, Mater. Sci. Forum **527-529**, 39 (2006).
- ¹² CREE「Materials Products」<https://www.wolfspeed.com/products/materials/>
- ¹³ A. Burk, Chem. Vapor Deposition **12**, 465 (2006).
- ¹⁴ H. Tsuchida, M. Ito, I. Kamata, and M. Nagano, Phys. Status Solidi B **246**, 1553 (2009).
- ¹⁵ H. Pedersen, S. Leone, O. Kordina, A. Henry, S. Nishizawa, Y. Koshka, and E. Janzen, Chem. Rev. **112**, 2434 (2012).
- ¹⁶ F. La Via, M. Camarda, and A. La Magna, Appl. Phys. Rev. **1**, 031301 (2014).
- ¹⁷ Infineon Technologies「Silicon Carbide」
<https://www.infineon.com/cms/jp/product/technology/silicon-carbide-sic/>
- ¹⁸ ROHM「SiC パワーデバイス」、<https://www.rohm.co.jp/products/sic-power-devices>
- ¹⁹ CREE「SiC Power & GaN RF Solutions」<https://www.wolfspeed.com/>
- ²⁰ NEDO「実用化ドキュメント」、
<https://www.nedo.go.jp/hyoukabu/articles/201706sic/index.html>
- ²¹ Y. Sugawara, Proc. ISPSD2003, 245 (2003)
- ²² H. Niwa, J. Suda, and T. Kimoto, Appl. Phys. Express **5**, 064001 (2012).

- ²³ D. Okamoto, Y. Tanaka, T. Mizushima, M. Yoshikawa, H. Fujisawa, K. Takenaka, S. Harada, S. Ogata, T. Hayashi, T. Izumi, T. Hemmi, A. Tanaka, K. Nakayama, K. Asano, K. Matsumoto, N. Ohse, M. Ryo, C. Ota, K. Takao, M. Mizukami, T. Kato, M. Takei, Y. Yonezawa, K. Fukuda, and H. Okumura, *Mater. Sci. Forum* **778-780**, 855 (2014)
- ²⁴ S. Ryu, C. Capell, C. Jonas, L. Cheng, M. O. Loughlin, A. Burk, A. Agarwal, and J. Palmour, *Proc. ISPSD2012*, 257 (2012).
- ²⁵ Y. Yonezawa, T. Mizushima, K. Takenaka, H. Fujisawa, T. Kato, S. Harada, Y. Tanaka, M. Okamoto, M. Sometani¹⁾, D. Okamoto, N. Kumagai, S. Matsunaga, T. Deguchi, M. Arai T. Hatakeyama, Y. Makifuchi, T. Araoka, N. Oose, T. Tsutsumi, M. Yoshikawa, K. Tatera, M. Harashima, Y. Sano, E. Morisaki, M. Takei, M. Miyajima, H. Kimura, A. Otsuki, K. Fukuda, H. Okumura, and T. Kimoto, *Tech. Digest. 2013 Int. Electron Device Meeting*, 6.6.1 (2013).
- ²⁶ E. V. Brunt, L. Cheng, M. J. O'Loughlin, J. Richmond, V. Pala, J. W. Palmour, C. W. Tipton, and C. Scozzie, *Mater. Sci. Forum* **821-823**, 847 (2015).
- ²⁷ K. Nakayama, T. Mizushima, K. Takenaka, A. Koyama, Y. Kiuchi, S. Matsunaga, H. Fujisawa, T. Hatakeyama, M. Takei, Y. Yonezawa, T. Kimoto, and H. Okumura, *Proc. ISPSD2018*, 395 (2018).
- ²⁸ J. P. Bergman, H. Lendenmann, P. A. Nilsson, U. Lindefelt, and P. Skytt, *Mater. Sci. Forum* **353-356**, 299 (2001).
- ²⁹ H. Lendenmann, P. Bergman, F. Dahlquist, and C. Hallin, *Mater. Sci. Forum* **433-436**, 901 (2003).
- ³⁰ M. Skowronski and S. Ha, *J. Appl. Phys.* **99**, 011101 (2006).
- ³¹ N. S. Saks, S. S. Mani, and A. K. Agarwal, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2250 (2000).
- ³² T. Hatakeyama, Y. Kiuchi, M. Sometani, S. Harada, D. Okamoto, H. Yano, Y. Yonezawa, and H. Okumura, *Appl. Phys. Express* **10** 046601 (2017).
- ³³ A. J. Lelis, R. Green, D. B. Habersat, and M. El, *IEEE Transactions on Electron Devices* **62**, 316 (2015).
- ³⁴ Q. Wahab, A. Ellison, A. Henry, E. Janzén, C. Hallin, J. D. Persio, and R. Martinez, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2725 (2000)
- ³⁵ T. Katsuno, Y. Watanabe, H. Fujiwara, M. Konishi, T. Yamamoto, and T. Endo, *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** 04DP04 (2011).
- ³⁶ K.-Y. Lee and M. A. Capano, *J. Electron. Mater.* **36**, 272 (2007).
- ³⁷ R. A. Berechman, M. Skowronski, and Q. Zhang, *J. Appl. Phys.* **105**, 074513 (2009).
- ³⁸ I. Kamata, H. Tsuchida, T. Jikimoto, and K. Izumi, *Mater. Sci. Forum* **389-393**,

- 1137 (2002).
- ³⁹ R. T. Leonard, Y. Khlebnikov, A. R. Powell, C. Basceri, M. F. Brady, I. Khlebnikov, J. R. Jenny, D. P. Malta, M. J. Paisley, V. F. Tsvetkov, R. Zilli, E. Deyneka, H. McD. Hobgood, V. Balakrishna, and C. H. Carter, Jr. *Mater. Sci. Forum* **600-603**, 7 (2009).
- ⁴⁰ T. Okamoto, Y. Sano, H. Hara, K. Arima, K. Yagi, J. Murata, H. Mimura, and K. Yamauchi, *Mater. Sci. Forum* **600-603**, 835 (2009).
- ⁴¹ H. Fujiwara, *APL* **87**, 051912 (2005).
- ⁴² K. Kojima, T. Ohno, T. Fujimoto, M. Katsuno, N. Ohtani, J. Nishio, Y. Ishida, T. Takahashi, T. Suzuki, T. Tanaka, and K. Arai, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2974 (2002).
- ⁴³ T. Tsuji, S. Izumi, A. Ueda, H. Fujiwara, K. Ueno, H. Tsuchida, I. Kamata, T. Jikimoto, and K. Izumi, *Mater. Sci. Forum* **389-393**, 1141 (2002).
- ⁴⁴ K. Wada, T. Terao, H. Itoh, T. Hori, H. Doi, M. Furumai, and T. Tanabe, *Mater. Sci. Forum* **924**, 72 (2018).
- ⁴⁵ J. J. Sumakeris, P. Bergman, M. K. Das, C. Hallin, B. A. Hull, E. Janzén, H. Lendenmann, M. J. O'Loughlin, M. J. Paisley, S. Y. Ha, M. Skowronski, J. W. Palmour, and C. H. Carter Jr, *Mater. Sci. Forum* **527-529**, 141 (2006)
- ⁴⁶ H. J. Jung, S. B. Yun, I. -H. Kang, J. H. Moon, W. -J. Kim, and W. Bahng, *Mater. Sci. Forum* **821-823**, 563 (2015).
- ⁴⁷ H. Fujiwara, T. Katsuno, T. Ishikawa, H. Naruoka, M. Konishi, T. Endo, Y. Watanabe, and K. Hamada. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 242102 (2012).
- ⁴⁸ H. Fujiwara, H. Naruoka, M. Konishi, K. Hamada, T. Katsuno, T. Ishikawa, Y. Watanabe, and T. Endo, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 042104 (2012).
- ⁴⁹ S. Onda, H. Watanabe, Y. Kito, H. Kondo, H. Uehigashi, N. Hosokawa, Y. Hisada, K. Shiraishi, and H. Saka, *Philos. Mag. Lett.* **93**, 439 (2013).
- ⁵⁰ K. Konishi, Y. Nakamura, A. Nagae, N. Kawabata, T. Tanaka, N. Tomita, H. Watanabe, S. Tomohisa, and N. Miura *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, 011001 (2020).
- ⁵¹ H. P. Maruska and J. J. Tietjen, *Appl. Phys. Lett.* **15**, 327 (1969).
- ⁵² H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Toyoda, *Appl. Phys. Lett.* **48**, 353 (1986)
- ⁵³ H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, and I. Akasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, L2112 (1989).
- ⁵⁴ S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1687 (1994).
- ⁵⁵ S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, and S. Nagahama, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1868 (1995).
- ⁵⁶ S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, and S. Nagahama, *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, L797 (1995).

- ⁵⁷ S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, L74 (1996).
- ⁵⁸ S. F. Chichibu, A. Uedono, T. Onuma, B. A. Haskell, A. Chakraborty, T. Koyama, P. T. Fini, S. Keller, S. P. DenBaars, J. S. Speck, U. K. Mishra, S. Nakamura, S. Yamaguchi, S. Kamiyama, H. Amano, I. Akasaki, J. Han, and T. Sota, *Nature materials* **5**, 810 (2006).
- ⁵⁹ S. Nagahama, N. Iwasa, M. Senoh, T. Matsushita, Y. Sugimoto, H. Kiyoku, T. Kozaki, M. Sano, H. Matsumura, H. Umemoto, K. Chocho and T. Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, L647 (2000).
- ⁶⁰ I. P. Smorchkova, L. Chen, T. Mates, L. Shen, S. Heikman, B. Moran, S. Keller, S. P. DenBaars, J. S. Speck, and U. K. Mishra, *J. Appl. Phys.* **90**, 5196 (2001).
- ⁶¹ U. K. Mishra, P. Parikh, and Y. -F. Wu, *Proc. of IEEE* **90**, 1022 (2002).
- ⁶² W. Saito, Y. Takada, M. Kuraguchi, K. Tsuda, I. Omura, T. Ogura, and H. Ohashi, *IEEE Trans. Electron Devices* **50**, 2528 (2003).
- ⁶³ Y. Dora, A. Chakraborty, L. McCarthy, S. Keller, S. P. DenBaars, and U. K. Mishra, *IEEE Electron Devices Lett.* **27**, 713 (2006).
- ⁶⁴ Y. Uemoto, M. Hikita, H. Ueno, H. Matsuo, H. Ishida, M. Yanagihara, T. Ueda, T. Tanaka, and D. Ueda, *IEEE Trans. Electron Devices* **54**, 3393 (2007).
- ⁶⁵ Y. Wang, M. Wang, B. Xie, C. P. Wen, J. Wang, Y. Hao, W. Wu, K. J. Chen, and B. Shen, *IEEE Electron Device Lett.* **34**, 1370 (2013).
- ⁶⁶ M. Kuzuhara, J. T. Asubar, and H. Tokuda, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55** 070101 (2016).
- ⁶⁷ K. J. Chen, O. Häberlen, A. Lidow, C. L. Tsai, T. Ueda, Y. Uemoto, and Y. Wu, *IEEE Trans. Electron Devices* **64**, 779 (2017).
- ⁶⁸ W. Saito, Y. Takada, M. Kuraguchi, K. Tsuda, and I. Omura, *IEEE Transactions on Electron Devices* **53**, 356 (2006).
- ⁶⁹ C.-T. Chang, T.-H. Hsu, E.Y. Chang, Y.-C. Chen, H.-D. Trinh, and K.J. Chen, *Electron. Lett.* **46**, 1280 (2010).
- ⁷⁰ B. Lee, C. Kirkpatrick, X. Yang, S. Jayanti, R. Suri, J. Roberts, and V. Misra, *IEDM2010*, 20.6 (2010).
- ⁷¹ X. Huang, Z. Liu, Q. Li, and F. C. Lee, *IEEE Transactions on Power Electronics*, **29**, 2453 (2014).
- ⁷² Panasonic「X-GaN パワートランジスタ」、
<https://www.mouser.jp/new/panasonic/panasonic-pga26e-x-gan-power-transistors/>
- ⁷³ GaN Systems「GaN Power Transistor」、<https://gansystems.com/gan-transistors/>
- ⁷⁴ Transphorm「All products」、<https://www.transphormusa.com/ja/products/>
- ⁷⁵ ANKER「Products」、<https://us.anker.com/>

- ⁷⁶ 佐野 征吾、蛸原 要、山本 高史、佐藤 富雄、宮沢 直行、SEI テクニカルレビュー第 192 号、69 (2018).
- ⁷⁷ ニュースイッチ「5G がさらに進化、住友電工が「5G+」向け GaN デバイス量産へ」、<https://newswitch.jp/p/22352>
- ⁷⁸ W. Saito T. Nitta, Y. Kakiuchi, Y. Saito, K. Tsuda, I. Omura, and M. Yamaguchi, IEEE Transactions on Electron Devices, **54**, 1825 (2007).
- ⁷⁹ S. Arulkumaran, T. Egawa, and H. Ishikawa, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 2953 (2005).
- ⁸⁰ U. Chowdhury, J. L. Jimenez, C. Lee, E. Beam, P. Saunier, T. Balistreri, S. -Y. Park, T. Lee, J. Wang, M. J. Kim, J. Joh, and J. A. del Alamo, IEEE Electron Device Lett. **29**, 1098 (2008).
- ⁸¹ S. Y. Park, C. Floresca, U. Chowdhury, J. L. Jimenez, C. Lee, E. Beam, P. Saunier, T. Balistreri, and M. J. Kim, Microelectron. Reliab. **49**, 478 (2009).
- ⁸² H. Shiomi, A. Ueda, T Tohei, Y. Imai, T. Hamachi, K. Sumitani, S. Kimura, Y. Ando, T. Hashizume, and Akira Sakai, Appl. Phys. Express **14**, 095502 (2021).
- ⁸³ R. Zhang, J. P. Kozak, M. Xiao, J. Liu, and Y. Zhang, IEEE Transactions on Power Electronics, **35**, 13409 (2020).
- ⁸⁴ H. Wang, J. Wei, R. Xie, C. Liu, G. Tang, and K. J. Chen, IEEE Transactions on Power Electronics, **32**, 5539, (2017).
- ⁸⁵ Y. Long, W. Zhang, D. Costinett, B. B. Blalock, and L. L. Jenkins, IEEE APEC2015, 1961 (2015).
- ⁸⁶ G. Tang, M.-H. Kwan, Z. Zhang, J. He, J. Lei, R.-Y. Su, F.-W. Yao, Y.-M. Lin, J.-L. Yu, T. Yang, C. -H. Chern, T. Tsai, H. C. Tuan, A. Kalnitsky, and K. J. Chen, Proc. ISPSD2018, 76 (2018).
- ⁸⁷ H. Marchand, L. Zhao, N. Zhang, B. Moran, R. Coffie, U. K. Mishra, J. S. Speck, and S. P. DenBaars, J. Appl. Phys. **89**, 7846 (2001).
- ⁸⁸ A. Krost and A. Dadgar, Mat. Sci. Eng. B **93**, 77 (2002).
- ⁸⁹ A. Watanabe, T. Takeuchi, K. Hirose, H. Amano, K. Hiramatsu, and I. Akasaki, J. Cryst. Growth **128**, 391 (1993).
- ⁹⁰ A. Ubukata, K. Ikenaga, N. Akutsu, A. Yamaguchi, K. Matsumoto, T. Yamazaki, and T. Egawa, J. Cryst. Growth **298**, 198 (2007).
- ⁹¹ D. Visalli, M. V. Hove, J. Derluyn, S. Degroote, M. Leys, K. Cheng, M. Germain, and G. Borghs, Jpn. J. Appl. Phys. **48**, 04C101 (2009).
- ⁹² M. Yanagihara, Y. Uemoto, T. Ueda, T. Tanaka, and D. Ueda, Phys. Status Solidi A **206**, 1221 (2009).
- ⁹³ T. Narita, H Iguchi, K. Horibuchi, N. Otake, S. Hoshi, and K. Tomita, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 05FB01 (2016).

- ⁹⁴ M. Meneghini, D. Bisi, D. Marcon, S. Stoffels, M. V. Hove, T. -L. Wu, S. Decoutere, G. Meneghesso, and E. Zanoni, *IEEE Transactions on Power Electronics*, **29**, 2199 (2014).
- ⁹⁵ M. Ćapajna, S. W. Kaun, M. H. Wong, F. Gao, T. Palacios, U. K. Mishra, J. S. Speck, and M. Kuball, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 223501 (2011)
- ⁹⁶ 加地 徹, 電子情報通信学会論文誌, **J103–C**, 331 (2020).
- ⁹⁷ Y. Saitoh, K. Sumiyoshi, M. Okada, T. Horii, T. Miyazaki, H. Shiomi, M. Ueno, K. Katayama, M. Kiyama, and T. Nakamura, *Appl. Phys. Express* **3**, 081001 (2010).
- ⁹⁸ I. C. Kizilyalli, A. P. Edwards, H. Nie, D. Disney, and D. Bour, *IEEE Transactions on Electron Devices*, **60**, 3067(2013).
- ⁹⁹ H. Nie, Q. Diduck, B. Alvarez, A. P. Edwards, B. M. Kayes, M. Zhang, G. Ye, T. Prunty, D. Bour, and I. C. Kizilyalli, *Electron Device Lett.* **35**, 939(2014).
- ¹⁰⁰ M. Ueno, S. Yoshimoto, K. Ishihara, M. Okada, K. Sumiyoshi, H. Hirano, F. Mitsuhashi, Y. Yoshizumi, T. Ishizuka, and M. Kiyama *Proc. ISPSD and IC's*, 309 (2014).
- ¹⁰¹ N. Tanaka, K. Hasegawa, K. Yasunishi, N. Murakami, and T. Oka, *Appl. Phys. Express* **8**, 071001 (2015).
- ¹⁰² I. C. Kizilyalli, T. Prunty, and O. Aktas, *IEEE Electron Device* **36**, 1073 (2015).
- ¹⁰³ I. C. Kizilyalli, A. P. Edwards, O. Aktas, T. Prunty, and D. Bour, *IEEE Transactions on Electron Devices* **62**, 414 (2015).
- ¹⁰⁴ T. Oka, T. Ina, Y Ueno, and J. Nishii, *Appl. Phys. Express* **8** 054101 (2015).
- ¹⁰⁵ R Yeluri, J. Lu, C. A. Hurni, D. A. Browne, S. Chowdhury, S. Keller, J. S. Speck, and U. K. Mishra, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 183502 (2015).
- ¹⁰⁶ D. Shibata, R. Kajitani, M.Ogawa, K. Tanaka, S. Tamura, T. Hatsuda, M. Ishida, and T. Ueda, *IEDM2016*, 10.1 (2016).
- ¹⁰⁷ K. Nomoto, B. Song, Z Hu, M. Zhu, M. Qi, N. Kaneda, T. Mishima, T. Nakamura, D. Jena, and H. G. Xing, *IEEE Electron Device Lett.* **37**, 161 (2016).
- ¹⁰⁸ M. Sun, Y. Zhang, X. Gao, and T. Palacios, *IEEE Electron Device Lett.* **38**, 509 (2017).
- ¹⁰⁹ W. Li, K. Nomoto, M. Pilla, M. Pan, X. Gao, D. Jena, and H. G. Xing, *IEEE Transactions on Electron Devices*, **64**,1635 (2017).
- ¹¹⁰ Y. Zhang, Z. Liu, M. J. Tadjer, M. Sun, D. Piedra, C. Hatem, T. J. Anderson, L. E. Luna, A. Nath, A. D. Koehler, H. Okumura, J. Hu, X. Zhang, X. Gao, B. N. Feigelson, K. D. Hobart, and T. Palacios, *IEEE Electron Device Lett.* **38**, 1097 (2017).
- ¹¹¹ S. Han, S. Yang, and K. Sheng, *IEEE Electron Device Lett.* **39**, 572 (2018).

- 112 Y. Zhang, M. Sun, J. Perozek, Z. Liu, A. Zubair, D. Piedra, N. Chowdhury, X. Gao, K. Shepard, and T. Palacios, *IEEE Electron Device Lett.* **40**, 75 (2019).
- 113 R. Tanaka, S. Takashima, K. Ueno, H. Matsuyama, and M. Edo, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, SGGD02 (2020).
- 114 Y. Zhang, A. Dadgar, and T. Palacios, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51**, 273001 (2018).
- 115 A. Usui, H. Sunakawa, A. Sakai, and A. Yamaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, L899 (1997).
- 116 A. Sakai, H. Sunakawa, and A. Usui, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2259 (1997).
- 117 A. Usui, *ECS J. Solid State Sci. Tech.* **2**, N3045 (2013).
- 118 K. Motoki, T. Okahisa, S. Nakahata, N. Matsumoto, H. Kimura, H. Kasai, K. Takemoto, K. Uematsu, M. Ueno, Y. Kumagai, A. Koukitu, and H. Seki, *J. Cryst. Growth* **237**, 912 (2002).
- 119 K. Motoki, T. Okahisa, R. Hirota, S. Nakahata, K. Uematsu, and N. Matsumoto, *J. Cryst. Growth* **305**, 377 (2007).
- 120 元木 健作、SEI テクニカルレビュー 第 181 号、40 (2012).
- 121 Y. Oshima, T. Eri, M. Shibata, H. Sunakawa, K. Kobayashi, T. Ichihashi, and A. Usui, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, L1 (2003).
- 122 H. Fujikura, T. Konno, T. Suzuki, T. Kitamura, T. Fujimoto, and T. Yoshida, *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 065502 (2018).
- 123 SCIOCS「GaN 基板」、https://www.sciocs.com/products/GaN_substrate.html
- 124 R. Dwilinski, A. Wyszomolek, J. Baranowski, M. Kaminska, R. Doradzinski, J. Garczynski, L. Sierzputowski, *Acta Phys. Pol.* **88**, 833 (1995).
- 125 T. Hashimoto, F. Wu, J. S. Speck, and S. Nakamura, *Nature materials* **6**, 568 (2007).
- 126 R. Dwilinski, R. Doradzinski, J. Garczynski, L. P. Sierzputowski, A. Puchalski, Y. Kanbara, K. Yagi, H. Minakuchi, and H. Hayashi, *J. Cryst. Growth* **311**, 3015 (2009).
- 127 R. Dwilinski, R. Doradzinski, J. Garczynski, L. P. Sierzputowski, A. Puchalski, Y. Kanbara, K. Yagi, H. Minakuchi, and H. Hayashi, *J. Cryst. Growth* **310**, 3911 (2008).
- 128 Q. Bao, M. Saito, K. Hazu, K. Furusawa, Y. Kagamitani, R. Kayano, D. Tomida, K. Qiao, T. Ishiguro, C. Yokoyama, and S. F. Chichibu, *Cryst. Growth Des.* **13**, 4158 (2013).
- 129 Y. Mikawa, T. Ishinabe, S. Kawabata, T. Mochiduki, A. Kojima, Y. Kagamitani, and H. Fujisawa, *Proc. SPIE* **9363**, 936302 (2015).
- 130 S. Pimputkar, S. Kawabata, J. S. Speck, and S. Nakamura, *J. Cryst. Growth* **403**, 7 (2014).

- 131 Institute of High Pressure Physics「Ammono-GaN wafers sales」、
<https://www.unipress.waw.pl/growth/index.php/ammono-gan-wafers-sales>
- 132 D. Tomida, Q. Bao, M. Saito, K. Kurimoto, F. Sato, T. Ishiguro, and S. F. Chichibu, *Appl. Phys. Express* **11**, 091002 (2018).
- 133 D. Tomida, Q. Bao, M. Saito, R. Osanai, K. Shima, K. Kojima, T. Ishiguro, and S. F. Chichibu, *Appl. Phys. Express* **13**, 055505 (2020).
- 134 H. Yamane, M. Shimada, S. J. Clarke, and F. J. DiSalvo, *Chem. Mater.* **9**, 413 (1997).
- 135 M. Imade, Y. Hirabayashi, Y. Konishi, H. Ukegawa, N. Miyoshi, M. Yoshimura, T. Sasaki, Y. Kitaoka, and Y. Mori, *Appl. Phys. Express* **3**, 075501 (2010).
- 136 Y. Mori, Y. Kitaoka, M. Imade, F. Kawamura, N. Miyoshi, M. Yoshimura, and T. Sasaki, *Phys. Status Solidi A* **207**, 1283 (2010).
- 137 M. Imade, Y. Hirabayashi, N. Miyoshi, M. Yoshimura, Y. Kitaoka, T. Sasaki, and Y. Mori, *Cryst. Growth Des.* **11**, 2346 (2011).
- 138 M. Imanishi, K. Murakami, H. Imabayashi, H. Takazawa, Y. Todoroki, D. Matsuo, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Appl. Phys. Express* **5**, 095501 (2012).
- 139 M. Imade, M. Imanishi, Y. Todoroki, H. Imabayashi, D. Matsuo, K. Murakami, H. Takazawa, A. Kitamoto, M. Maruyama, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Appl. Phys. Express* **7**, 035503 (2014).
- 140 M. Imanishi, Y. Todoroki, K. Murakami, D. Matsuo, H. Imabayashi, H. Takazawa, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *J. Cryst. Growth* **427**, 87 (2015).
- 141 Y. Mori, M. Imanishi, K. Murakami, and M. Yoshimura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SC0803 (2019).
- 142 M. Imanishi, K. Murakami, T. Yamada, K. Kakinouchi, K. Nakamura, T. Kitamura, K. Okumura, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Appl. Phys. Express* **12**, 045508 (2019).
- 143 F. Kawamura, M. Tanpo, N. Miyoshi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, Y. Kitaoka, and T. Sasaki, *J. Cryst. Growth* **311**, 3019 (2009).
- 144 M. Imanishi, K. Okumura, K. Nakamura, T. Kitamura, K. Kakinouchi, K. Murakami, M. Yoshimura, Y. Fujita, Y. Tsusaka, J. Matsui, and Y. Mori, *Appl. Phys. Express* **13**, 085510 (2020).
- 145 M. Imanishi, T. Yoshida, T. Kitamura, K. Murakami, M. Imade, M. Yoshimura, M. Shibata, Y. Tsusaka, J. Matsui, and Y. Mori, *Cryst. Growth Des.* **17**, 3806 (2017).
- 146 T. Yoshida, Y. Oshima, K. Watanabe, T. Tsuchiya, and T. Mishima, *Phys. Status Solidi C* **8**, 2110 (2011).

- ¹⁴⁷ T. Kachi, Jpn. J. Appl. Phys. **53** 100210 (2014).
- ¹⁴⁸ Y. Tokuda, ECS Trans. **75**, 39 (2016).
- ¹⁴⁹ N. Sawada, T. Narita, M. Kanechika, T. Uesugi, T. Kachi, M. Horita, T. Kimoto, and J. Suda, Appl. Phys. Express **11**, 041001 (2018).
- ¹⁵⁰ H. Fujikura, T. Konno, T. Yoshida, and F. Horikiri, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 085503 (2017).
- ¹⁵¹ K. Kanegae, H. Fujikura, Y. Otoki, T. Konno, T. Yoshida, M. Horita, T. Kimoto, and J. Suda, Appl. Phys. Lett. **115**, 012103 (2019).
- ¹⁵² Y. Irokawa, O. Fujishima, T. Kachi, and Y. Nakano, Appl. Phys. **97**, 083505 (2005).
- ¹⁵³ A. Uedono, S. Takashima, M. Edo, K. Ueno, H. Matsuyama, H. Kudo, H. Naramoto, and S. Ishibashi, Phys. Status Solidi B **252**, 2794 (2015).
- ¹⁵⁴ T. J. Anderson, B. N. Feigelson, F. J. Kub, M. J. Tadjer, K. D. Hobart, M. A. Mastro, J. K. Hite, and C. R. Eddy, Jr., Electron. Lett. **50**, 197 (2014).
- ¹⁵⁵ T. Oikawa, Y. Saijo, S. Kato, T. Mishima, and T. Nakamura, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **365**, 168 (2015).
- ¹⁵⁶ T. Niwa, T. Fujii, and T. Oka, Appl. Phys. Express **10**, 091002 (2017).
- ¹⁵⁷ T. Narita, T. Kachi, K. Kataoka, and T. Uesugi, Appl. Phys. Express **10**, 01650 (2017).
- ¹⁵⁸ H. Sakurai, M. Omori, S. Yamada, Y. Furukawa, H. Suzuki, T. Narita, K. Kataoka, M. Horita, M. Bockowski, J. Suda, and T. Kachi, Appl. Phys. Lett. **115**, 142104 (2019).
- ¹⁵⁹ Y. Sun, X. Kang, Y. Zheng, J. Lu, X. Tian, K. Wei, H. Wu, W. Wang, X. Liu, and G. Zhang, Electronics **8**, 575 (2019).
- ¹⁶⁰ W. Qian, M. Skowronski, and G. R. Rohrer, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. **423**, 475 (1996).
- ¹⁶¹ B. Heying, E. J. Tarsa, C. R. Elsass, P. Fini, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, J. Appl. Phys. **85**, 6470 (1999).
- ¹⁶² P. Kozodoy, J. P. Ibbetson, H. Marchand, P. T. Fini, S. Keller, J. S. Speck, S. P. DenBaars, and U. K. Mishra, Appl. Phys. Lett. **73**, 975 (1998)
- ¹⁶³ S. Hashimoto, Y. Yoshizumi, T. Tanabe, and M. Kiyama, J. Cryst. Growth **298**, 871 (2007).
- ¹⁶⁴ E. G. Brazel, M. A. Chin, and V. Narayanamurti, Appl. Phys. Lett. **74**, 2367 (1999).
- ¹⁶⁵ J. W. P. Hsu, M. J. Manfra, D. V. Lang, S. Richter, S. N. G. Chu, A. M. Sergent, R. N. Kleiman, L. N. Pfeiffer, and R. J. Molnar, Appl. Phys. Lett. **78**, 1685 (2001).
- ¹⁶⁶ J. W. P. Hsu, M. J. Manfra, S. N. G. Chu, C. H. Chen, L. N. Pfeiffer, and R. J. Molnar, Appl. Phys. Lett. **78**, 3980 (2001)

- ¹⁶⁷ J. W. P. Hsu, M. J. Manfra, R. J. Molnar, B. Heying, and J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 79 (2002).
- ¹⁶⁸ B. S. Simpkins, E. T. Yu, P. Waltereit, and J. S. Speck, *J. Appl. Phys.* **94**, 1448 (2003).
- ¹⁶⁹ J. C. Moore, J. E. Ortiz, J. Xie, H. Morkoc, and A. A. Baski, *J. Phys.: Conf. Ser.* **61**, 90 (2007).
- ¹⁷⁰ K. Shiojima, T. Suemitsu, and M. Ogura, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3636 (2001).
- ¹⁷¹ B. Kim, D. Moon, K. Joo, S. Oh, Y. K. Lee, Y. Park, Y. Nanishi, and E. Yoon, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 102101 (2014).
- ¹⁷² K. Shiojima, *J. Vac. Sci. Technol. B* **18**, 37 (2000).
- ¹⁷³ T. Hino, S. Tomiya, T. Miyajima, and K. Yanashima, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3421 (2000).
- ¹⁷⁴ J. L. Weyher, S. Lazar, L. Macht, Z. Liliental-Weber, R. J. Molnar, S. Müller, V. G. M. Sivel, G. Nowak, and I. Grzegory, *J. Cryst. Growth* **305**, 384 (2007).
- ¹⁷⁵ L. Lu, Z. Y. Gao, B. Shen, F. J. Xu, S. Huang, Z. L. Miao, Y. Hao, Z. J. Yang, G. Y. Zhang, X. P. Zhang, J. Xu, and D. P. Yu, *J. Appl. Phys.* **104**, 123525 (2008).
- ¹⁷⁶ L. Sang, B. Ren, M. Sumiya, M. Liao, Y. Koide, A. Tanaka, Y. Cho, Y. Harada, T. Nabatame, T. Sekiguchi, S. Usami, Y. Honda, and H. Amano, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 122102 (2017).
- ¹⁷⁷ S. Usami, R. Miyagoshi, A. Tanaka, K. Nagamatsu, M. Kushimoto, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Phys. Status Solidi A* **214**, 1600837 (2017).
- ¹⁷⁸ S. Usami, Y. Ando, A. Tanaka, K. Nagamatsu, M. Deki, M. Kushimoto, S. Nitta, Y. Honda, H. Amano, Y. Sugawara, Y.-Z. Yao, and Y. Ishikawa, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 182106 (2018).
- ¹⁷⁹ S. Usami, A. Tanaka, H. Fukushima, Y. Ando, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58** SCCB24 (2019).
- ¹⁸⁰ R. A. Oliver, *Rep. Prog. Phys.* **71**, 076501 (2008).
- ¹⁸¹ Y. Xin, E. M. James, I. Arslan, S. Sivananthan, N. D. Browning, S. J. Pennycook, F. Omnès, B. Beaumont, J. P. Faurie, and P. Gibart, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 466 (2000).
- ¹⁸² I. Arslan and N. D. Browning, *Phys. Rev. B* **65**, 075310 (2002).
- ¹⁸³ I. Arslan and N. D. Browning, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 165501 (2003).
- ¹⁸⁴ I. Arslan, A. Bleloch, E. A. Stach, and N. D. Browning, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 025504 (2005).
- ¹⁸⁵ M. K. Horton, S. L. Rhode, and M. A. Moram, *J. Appl. Phys.* **116**, 063710 (2014).
- ¹⁸⁶ S. L. Rhode, M. K. Horton, W. Y. Fu, S.-L. Sahonta, M. J. Kappers, T. J. Pennycook, C. J. Humphreys, R. O. Dusane, and M. A. Moram, *Appl. Phys. Lett.*

- 107**, 243104 (2015).
- ¹⁸⁷ Y. Yao, Y. Ishikawa, M. Sudo, Y. Sugawara, and D. Yokoe, *J. Cryst. Growth* **468**, 484 (2017).
- ¹⁸⁸ T. Nakano, K. Chokawa, M. Araidai, K. Shiraishi, A. Oshiyama, A. Kusaba, Y. Kangawa, A. Tanaka, Y. Honda, and H. Amano, *Compound Semiconductor Week*, 1 (2019).
- ¹⁸⁹ T. Nakano, Y. Harashima, K. Chokawa, K. Shiraishi, A. Oshiyama, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, Y. Honda, and H. Amano, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 012105 (2020).
- ¹⁹⁰ R. Jone, J. Elsner, M. Haugk, R. Gutierrez, Th. Frauenheim, M. I. Heggie, S. Öberg, and P. R. Briddon, *Phys. Status Solidi B* **171**, 167 (1999).
- ¹⁹¹ J. E. Northrup, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2288 (2001).
- ¹⁹² J. Wang, H. You, H. Guo, J. Xue, G. Yang, D. Chen, B. Liu, H. Lu, R. Zhang, and Y. Zheng, *Appl. Phys. Lett.* **116**, 062104 (2020).

第2章 貫通転位の包括的物性解析アプローチの構築

2.1. はじめに

GaN パワーデバイスの実用化を目指す上では、貫通転位でリーク電流が生じる本質的メカニズムを解明し、デバイスプロセスにフィードバックすることが重要である。従来の研究では、転位は同一種類でも異なる芯構造を形成すること、そして種類や芯構造、転位周囲の不純物分布等で転位の電子構造が変化することが、それぞれ個々に報告されている。しかし、転位のリーク特性評価においては、従来のアプローチでは「リークするのか、しないのか」という二値的な評価しか出来なかったため、転位毎に僅かに異なる結晶構造や電子構造を反映したリーク特性の差異を解析できず、本質的なリーク電流メカニズムにまで議論が至っていない。本研究では、ウェットエッチング、FIB、C-AFM を有機的に組み合わせることによって、個々の貫通転位における電気特性を定量的に評価できる新しい技術を確立し、この課題をクリアした。本章では、この単独貫通転位の定量電気測定アプローチを説明する。そして、エッチピット法や TEM、MPPL 等によるマルチスケールな構造評価手法を紹介し、本研究基盤となる、この構造解析と電気特性解析を組み合わせた貫通転位の包括的物性解析アプローチを説明する。

2.2. 単独貫通転位における定量的電気特性評価技術の構築

本節の初めに、本研究で構築した転位の電氣的及び構造的特性解析アプローチの概略模式図を図 2-1 に示す。まず初めに、バルク結晶表面における貫通転位の位置を特定するため、化学薬液を用いたウェットエッチングで貫通転位部にエッチピットを形成する。続いて、個々に電気測定を行うため、転位一個に対して一つのショットキー接触を形成すべく、エッチピットの中に FIB により白金 (Pt: platinum) を埋めこむ。その後、結晶裏面にオーミック接触を形成したうえで、C-AFM によって Pt 電極部で電気測定を行い、縦方向に流れる電気特性を取得する。電気測定終了後、転位構造及び、周辺結晶状態等の解析に移行する。MPPL により、照準する貫通転位のバルク結晶中における伝播形態や周辺の結晶状態、結晶成長様式を評価する。その後、FIB により所望の貫通転位を含む薄片試料を作製し、最後に TEM により、エッチピット直下

での転位の傾斜やバーガースベクトル等の微細構造を解析した。以下で、各工程における詳細を説明する。

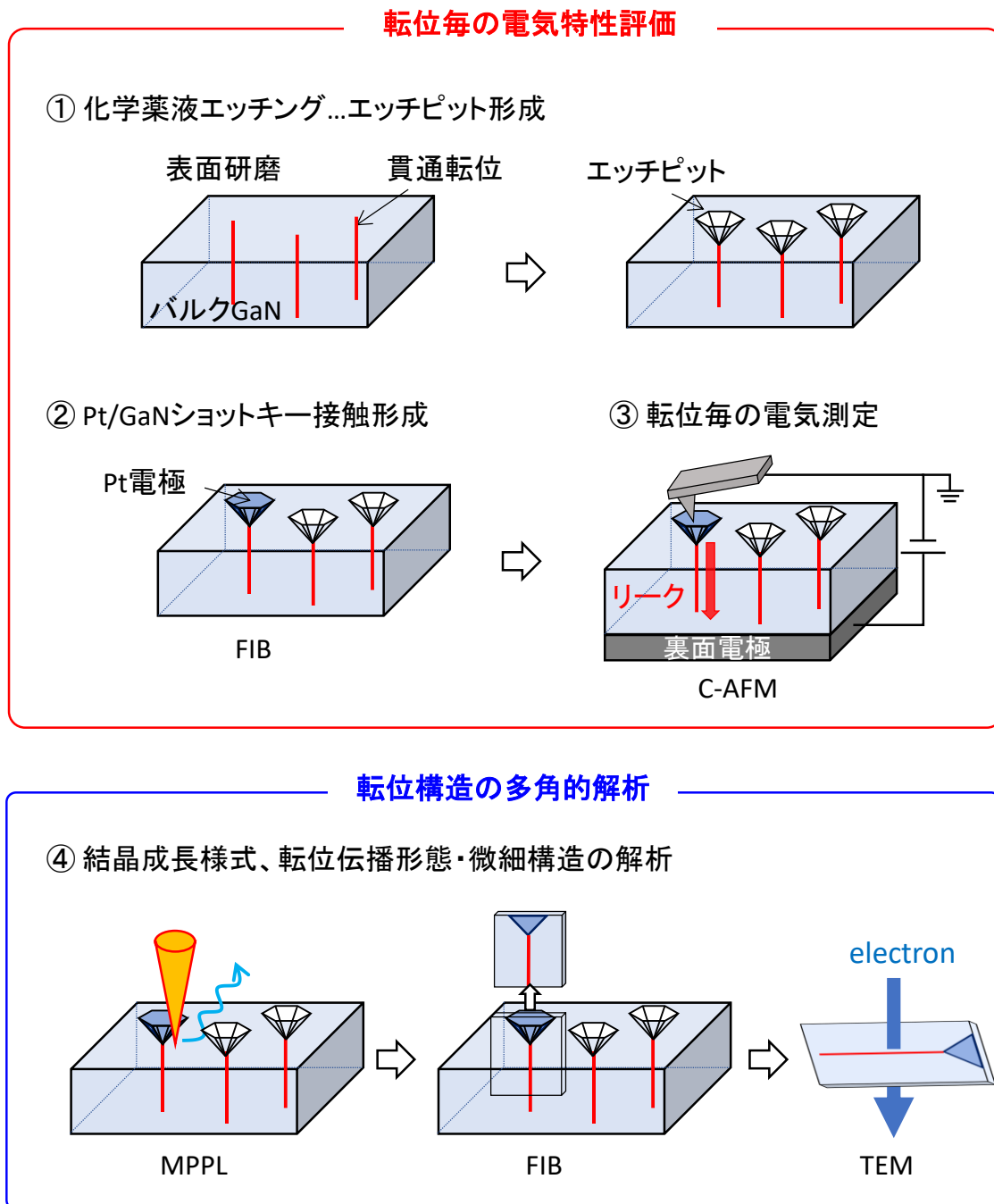


図 2-1 貫通転位の包括的物性解析アプローチ概略模式図。

2.2.1. ウェットエッチング及び FIB を用いた貫通転位部ショットキー接触形成

As-grown 結晶表面を直接 C-AFM スキャンする手法や EM でデバイス中のエミッション発光を検知する従来の手法では、貫通転位間でのリーク電流量をフェアに比較し、構造と紐づけた議論をすることは困難を極める。例えば、図 2-2(a)と(b)は、実際に C-AFM を用いて、同じエッチピットに対してスキャン方向を変えて取得した電流像である。スキャン方向に依って電流が流れる領域が異なっているだけでなく、どちらにおいてもピットエッジで電界集中による顕著な電流増加が見られ、電流値の再現性を得ることは難しい。個々の貫通転位における電気特性を定量的に計測するためには、転位一本のみを含む素子を作製し、電気測定する手法が適していると言える。このようなアプローチを実現する方法としては、まず、as-grown 結晶表面箇所にランダムに、あるいはカソードルミネッセンス法 (CL: cathodoluminescence) やフォトルミネッセンス法 (PL: photoluminescence) 等によって、予め転位箇所を同定した上で微小電極をパターン蒸着し、C-AFM 測定する方法が挙げられる。特に、微小電極のランダム配置は Shiojima らが用いた手法である¹。この手法のメリットは、電子ビーム蒸着法やリソグラフィー技術などを駆使した一般的かつ信頼性の高い電極蒸着法によって、高品質な金属/GaN 接触界面を形成できる点にある。しかしながら、転位同士のフェアな比較のためには、どの転位も出来るだけ電極中央部に位置している状況が望ましく、ランダム配置の場合は難しい。また、転位箇所を予め同定したとしても、電極内の中心位置に転位を捉えるプロセスが律速となる。正確に電極を配置するためには、CL や PL 等で観測した転位分布に対応するパターンを電子線リソグラフィーによって描画し、電極蒸着するといった様な、電気測定工程に移行するまでに数段階のプロセスと高度な技術が求められる。仮に、プロセスを簡略化するために FIB による蒸着法を用いたとしても、結局、貫通転位箇所が見えない状態で電極形成するということの不確実性が、プロセスの低再現性や困難性に繋がる。

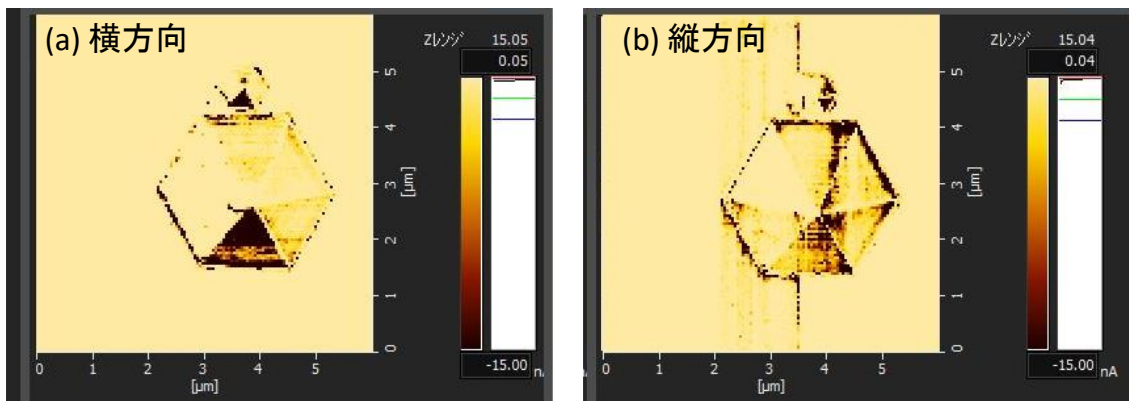


図 2-2 -0.7 V 印可時の(a) 横方向及び、(b) 縦方向スキャン電流像。

そこで本研究では、図 2-1 の工程①～②で示すように、ウェットエッチングによって貫通転位箇所をエッチピットとして露呈させた状態で電極を形成する手法を考案した。2.3.1 項で詳述するが、GaN におけるエッチピット形状は化学薬液(エッチャント)の種類や温度、時間に依存する²⁻⁹。また、as-grown 結晶に対してエッチングを行った場合、表面モロロジーによってエッチピット形状が変わる可能性がある。そこで本研究では、全てのバルク結晶サンプルに対して、表面を化学的機械研磨法(CMP: chemical mechanical polish)により研磨した上で、同一条件のエッチングを行うことによって、サンプル間でエッチピット形状を統一させた。表 2-1 にエッチング条件を示す。エッチャントには KOH+NaOH (50%+50%) を用い、温度と時間はそれぞれ 450℃、20 分で統一した。図 2-3(a)-(c)に、本条件で形成された典型的なエッチピットの走査型電子顕微鏡(SEM: scanning electron microscopy)像を示す。図 2-3(a)に散在する白いコントラストがエッチピットであり、各ピット直下に貫通転位が存在することは MPPL で確認している(図 2-4)。本条件で形成されたエッチピットはサイズに違いはあるものの、そのほとんどが図 2-3(b)及び図 2-3(c)に示すような直径数 μm の逆六角錐形状を有していた。

表 2-1 本研究におけるウェットエッチング条件。

Etchant	Time	Temperature
KOH+NaOH (50%+50%) eutectic mixture	20 min	450℃

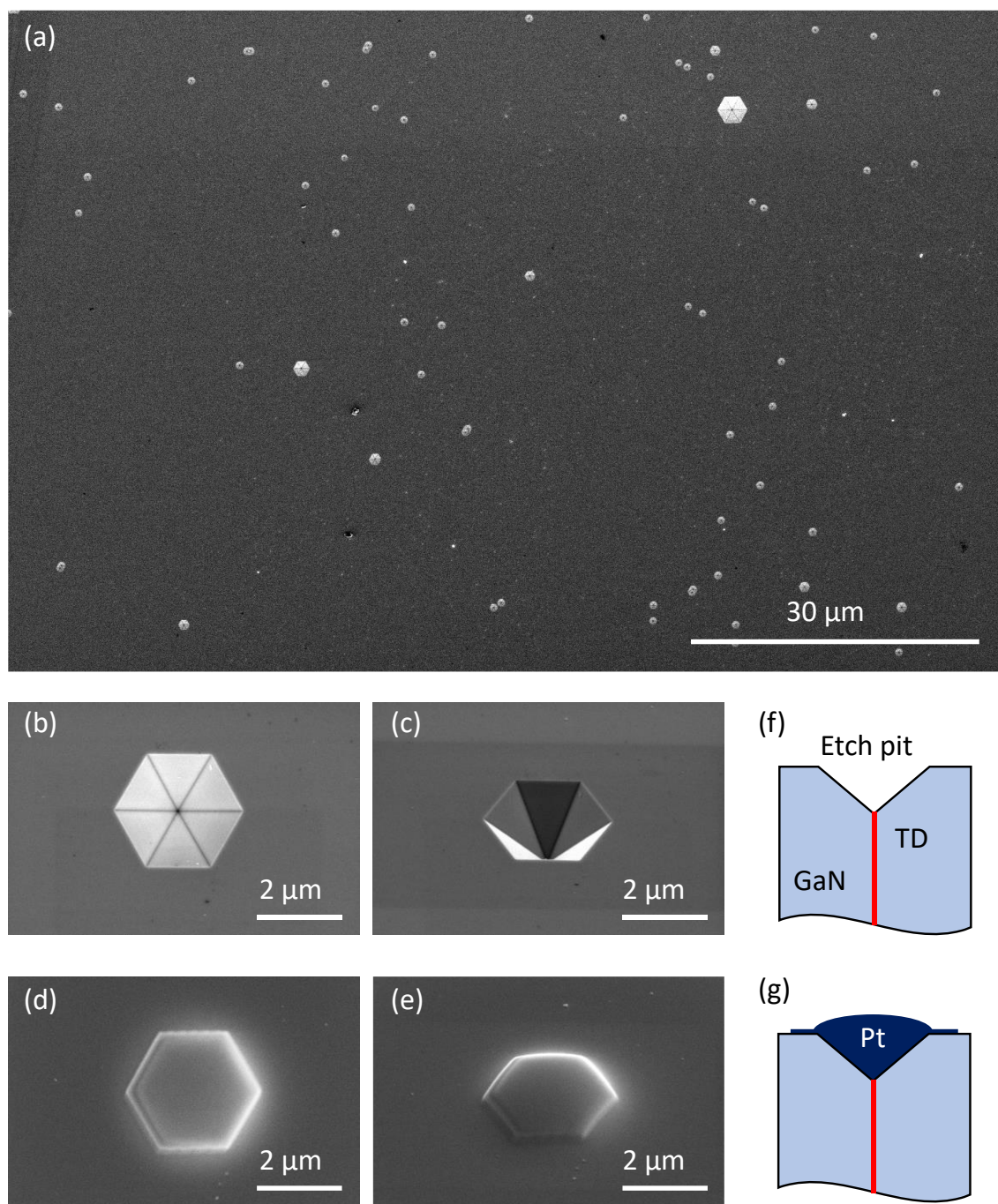


図 2-3 エッチピット形成後の(a) 結晶表面と、エッチピットの(b) 平面及び、(c) 鳥瞰 SEM 像。Pt 電極形成後のエッチピットの(d) 平面及び、(e) 鳥瞰 SEM 像。電極形成(f) 前 (g) 後のエッチピット周辺断面模式図。

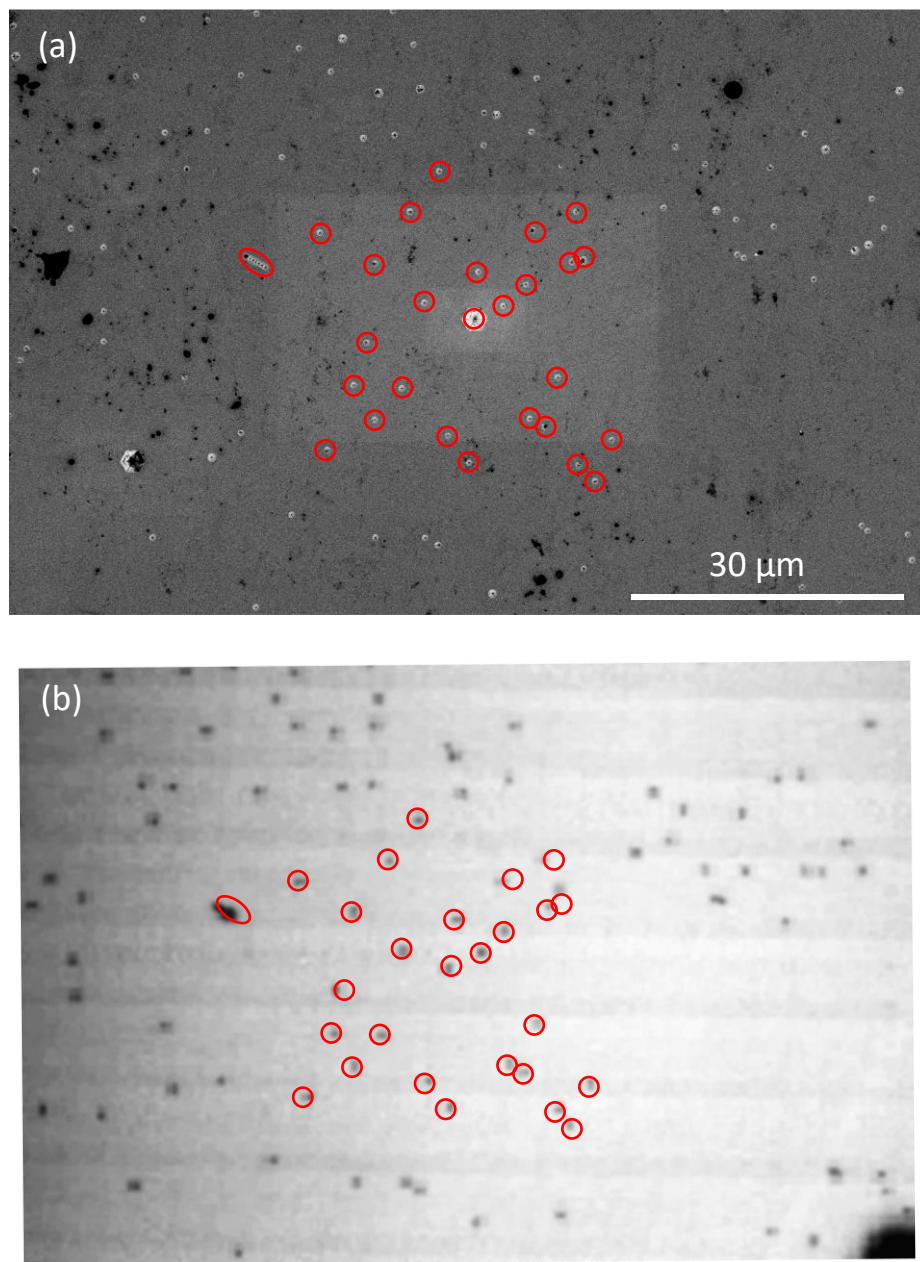


図 2-4 同一領域における(a) エッチピットの SEM 像と、(b) CMP によるエッチピット除去後の MPPL 像。赤丸で一部示すように、エッチピット箇所と貫通転位が合致している。

第2章 貫通転位の包括的物性解析アプローチの構築

エッチピット出し後、酸性水溶液（弗化水素酸、ピラニア水）による表面洗浄、超純水リンス、窒素ブローを行った後、FIB 装置 (FEI Versa™ 3D DualBeam™) の電子ビームアシスト蒸着法により Pt をエッチピット内部に埋めるように蒸着した (図 2-3(d) 及び (e))。このエッチピットと FIB の組み合わせアプローチにより、図 2-3(f) 及び (g) の断面模式図に示すように、貫通転位直上のエッチピット表面に 1 つの Pt/GaN の安定なショットキー的界面を形成した。本 FIB 装置は SEM と FIB 機能が一体化したデュアルビーム型 FIB であるため、SEM で視認した領域を狙って電極蒸着することができる。電極作製手法として FIB を採用した理由は、この所望の位置に正確に電極蒸着できる点、そして電極蒸着形状の自由度が高く、ピットに Pt を埋めるといったような高度な加工も比較的容易にできる点が挙げられる。一方、本 FIB 装置の電子ビームアシスト蒸着原理は、 $(\text{CH}_3)_3\text{Pt}(\text{CpCH}_3)$ 前駆体ガスを結晶表面に噴出し、電子ビームによって化合物間の結合を断ち切ることで Pt を所望の位置に蒸着させるというものである。この原理上、as-deposited の Pt には炭化物が残留してしまい、結果として Pt 純度が低く、電極内の抵抗率も高くなることが報告されている¹⁰。しかし、これはポストアニールによって改善されることも報告されている。本研究においては、Pt 蒸着後に、200°C のホットプレート上で、大気下 2 分のアニールを行うことで、電極内部の電気伝導性が向上し、ショットキー接触の整流性も向上することを確かめた。第 3 章の MPS 法による Na フラックス GaN のみアニールを行っておらず、それ以外の試料に対する実験では全てアニール処理を行った。

2.2.2. C-AFM による電気測定

エッチピット部に埋め込んだ Pt 電極サイズは直径数 μm と非常に微小なため、通常の電気測定用プローブでは針を落とすことが出来ない。そこで、本研究では、C-AFM (Hitachi AFM5300E) の金属コート導電性カンチレバーで Pt 電極をプローブし、形状像、電流像、局所 I - V 測定を行った。図 2-1 の工程③に、C-AFM の測定系を示している。貫通転位部のショットキー界面を介した縦方向の電気特性を取得するため、結晶裏面はオーミック接触を形成し、C-AFM 測定用メタルプレートと導通している。オーミック接触は、第 3 章ではインジウム (In: Indium)¹¹、第 5 章では高周波スパッタ装置で作製した Ti/Al/Au 積層構造¹²⁻¹⁴によって形成した。この測定系では、裏面オーミック接触 (GaN 結晶) 側に電圧を印可し、カンチレバー側が接地されているため、正 (負) 電圧を印可した場合が、Pt/GaN ショットキー接触における逆 (順) 方向バイアス状態に

対応する。

図 2-5 は、C-AFM によって得られる形状像、電流像、局所 $I-V$ 特性の一例である。図 2-5(a)-(c)はアニール無し、図 2-5(d)-(f)はアニール有りの電極の結果である。図 2-5(a)及び(d)から、どちらも六角形の電極が形成されているが、電流像に顕著な違いが見られる。図 2-5(b)のアニール無し電極における電流像は、電極内部で電流値がばらついており、電極内で不均一な電気伝導性となっている。一方で、図 2-5(e)のアニール有り電極においては、電流値がほぼ一様であり、電極内部の電気伝導性が一様となっていることが分かる。実際、アニール無し電極では $I-V$ カーブが電極内部の測定位置に依って異なっているが、アニール有り電極ではどの位置においても同様なカーブとなっている。この違いは、2.2.1 節で述べたように、大気下ポストアニールによって Pt 内部の残留炭化物が除去され、Pt 純度が向上したことによるものと考えられる。また、図 2-5(e)で電流検出エリアが円形になっているのは、電子ビームアシスト蒸着時に、Pt が所望の六角形状から円状に僅かに拡がって蒸着されたからである。

第2章 貫通転位の包括的物性解析アプローチの構築

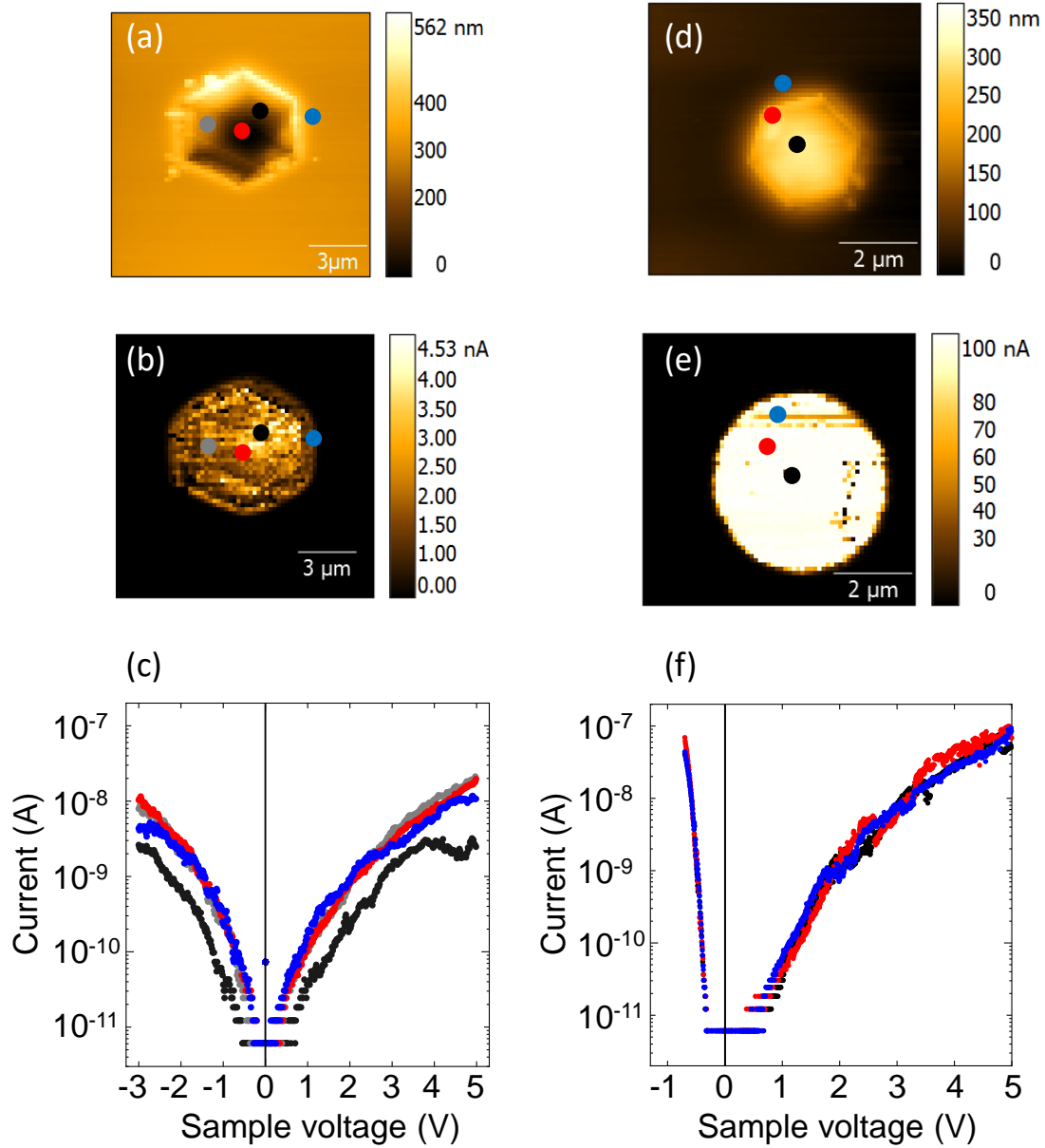


図 2-5 C-AFM で得られた(a-c) アニール処理無し及び、(d-f) アニール処理有り電極における形状像 (a,d)、逆バイアス印可時電流像(b,e)、局所 $I-V$ 特性(c,f) それぞれの $I-V$ カーブは各形状及び電流像において同色ドットで表す位置で得られた。

2.3. 転位の微細構造及び伝播形態と結晶成長様式の評価

2.3.1. エッチピット法

エッチピット法とは、特定の化学薬液に結晶を浸漬すると、完全結晶部よりも貫通転位部分で優先的にエッチングが進行し、微小なエッチピットが形成されることを利用して、貫通転位の分布や密度、伝播挙動の評価や、転位種の推定に用いられる手法である¹⁵。TEMなどに比べて転位構造を簡易かつ統計的に評価できるため、種々の半導体結晶の転位評価に古くから用いられている¹⁶⁻¹⁸。転位部におけるエッチピット形成メカニズムは熱力学に基づくCabrera's理論で説明され⁴、これによると、結晶表面転位部でのピット形成はポテンシャルエネルギー差 $\Delta\mu$ に依存し

$$\Delta\mu = \frac{2\pi\Omega\zeta^2}{E_{el}} \quad (2.1)$$

で表される(ζ , Ω はそれぞれエッジの自由エネルギー、分子の体積)。つまり、転位の弾性エネルギー E_{el} が大きい程 $\Delta\mu$ は小さく、ピットは開きやすくなる。 E_{el} は転位種によって異なり、刃状転位、らせん転位、混合転位ではそれぞれ、 $E_{el}^e = G|\mathbf{b}|^2\kappa$ 、 $E_{el}^s = G|\mathbf{b}|^2\kappa(1/1-\nu)$ 、 $G|\mathbf{b}|^2\kappa(1-\nu\cos^2\theta/1-\nu)$ と表される(G , κ , ν , θ はそれぞれ剛性率、幾何学的因子、ポアソン定数、混合転位線とバーガースベクトルとのなす角度)。GaN結晶における貫通転位のうち、刃状転位、らせん転位、混合転位、ナノパイプが有する典型的なバーガースベクトルは、それぞれ

$$\begin{aligned} \mathbf{b}_e &= \frac{1}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle \quad (\mathbf{b}_e = 1\mathbf{a}, |\mathbf{b}_e|^2 = |\mathbf{a}|^2) \\ \mathbf{b}_s &= [0001] \quad (\mathbf{b}_s = 1\mathbf{c}, |\mathbf{b}_s|^2 = |\mathbf{c}|^2 = 2.66|\mathbf{a}|^2) \\ \mathbf{b}_m &= \frac{1}{3}\langle 11\bar{2}3 \rangle \quad (\mathbf{b}_m = 1\mathbf{a} + 1\mathbf{c}, |\mathbf{b}_m|^2 = |\mathbf{a}|^2 + |\mathbf{c}|^2 = 3.66\mathbf{a}^2) \\ \mathbf{b}_{nano} &= l \times \mathbf{b}_s \quad (l=1, 2, \dots) \end{aligned} \quad (2.2)$$

である。従って、この理論に基づくと、ピットサイズは転位のバーガースベクトルが大きい程大きくなり、刃状転位($1\mathbf{a}$) < らせん転位($1\mathbf{c}$) (=ナノパイプ($1\mathbf{c}$)) < 混合転位($1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$) < ナノパイプ($2\mathbf{c}$ 以上)となる。

GaNにおいては、2000年台から種々のエッチャントに関して転位種とエッチピット形状の関係性が調査されている²⁻⁹。表2-2にGaNのエッチピットに関する先行研究結果をまとめている。GaNのエッチャントにはKOHをベースとした強アルカリ融液(KOH、KOH+NaOH、KOH+Na₂O₂)が用いられることが多い。2007年、Weyherらは、KOH+NaOHを用いて様々なサンプル、エッチング温度・時間でピットを形成した結果、逆六角錐ピットサイズがLarge、Medium、Smallの3水準に分類され、それぞれらせん、

混合、刃状転位であることを TEM の $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 解析によって明らかにしている ($\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 解析法については 2.3.3 項で詳述)⁴。KOH 融液によるエッチピットと転位種の関連性は、ピット形状⁵で分類される報告もあるが、多くの報告が、逆六角錐形ピットのサイズが種類と関連することを示している^{2,7-9}。2018 年の Usami らの報告によると、市販 HVPE-GaN 基板上の n 型 MOVPE エピ層を 470°C で KOH エッチングした結果、Large、Medium、Small サイズの 3 水準に分類され、Large ピット直下の転位がナノパイプ、Medium ピット直下の転位は $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ のらせん転位であることが TEM 観察及び LACBED 解析により同定されている⁷。Small に関しては直接 TEM 観察されていない(2020 年の論文にて、実は Small よりも小さい Very small が存在していたが、2018 年の報告ではそのピットをカウントしていなかったとしている)。2019 年と 2020 年の一連の報告では、ピットサイズが 4 水準に分類でき、Large ピットがナノパイプ、Medium と Small ピットが混合転位、Very small ピットが刃状転位であることが $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 解析で確認されており、Medium 及び Small サイズで混合転位と判定された転位はバーガースベクトルが異なっている可能性が示唆されている^{8,9}。これらの結果から分かる通り、実際のエッチピットサイズは、刃状転位 < 混合転位 < らせん転位 < ナノパイプとなっており、らせん転位が混合転位よりも大きい点は、Cabrera's 理論に基づく予想と食い違っている。この理論を前提とするならば、結晶中のほとんどのらせん転位のバーガースベクトルが $\mathbf{b}=m\mathbf{c}$ ($m=2,3,\dots$) となっていなければならないが、このようなバーガースベクトルを持つらせん転位の報告例は極めて少ないことから、その可能性は低い。実験結果が Cabrera's 理論から逸脱する真因は未だ不明であるが、Weyher らは、刃状転位と混合転位の持つ \mathbf{a} 成分バーガースベクトル起因の歪に誘起された、転位芯への不純物集積の関与を指摘している⁴。いずれにしても、ピットサイズに基づいた統計的な議論をする上では、 $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 解析だけでは不十分であり、LACBED 等によって転位のバーガースベクトルを定量的に決定する必要がある。

近年、Yao らによって、KOH+Na₂O₂ エッチングで形成されたピットについて系統的な調査が行われている⁶。これによると、Large ピット直下の転位のバーガースベクトルは $\mathbf{b}=3\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 、Small は $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 、そして Medium はピット中心に 1 つの頂点を有するピットと、2 つの頂点を有するピットに大別され、 $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ と $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ の転位が単一頂点ピットを作り、二頂点ピット直下はバーガースベクトルの和が $\mathbf{b}=2\mathbf{c}$ となる、2 つの平行に走る転位ペアによって形成されていた。この結果より、KOH+Na₂O₂ では $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ と $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ と異なるバーガースベクトルであっても同一形状・サイズの Medium ピットを形成し得ること

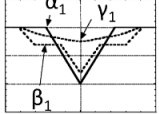
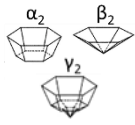
第 2 章 貫通転位の包括的物性解析アプローチの構築

が判明している。

これら先行研究結果を踏まえると、エッチピットサイズとバーガースベクトルの対応関係を系統調査された唯一のエッチャントである $\text{KOH}+\text{Na}_2\text{O}_2$ では、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ と $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ の転位をピットサイズだけでは判別できないことが判明した。一方、 KOH や $\text{KOH}+\text{NaOH}$ は、転位種とピットサイズが対応していることが凡そ判明しているが、 LACBED 等によるバーガースベクトル調査はまだ未完了である。本論文第 4 章では、 $\text{KOH}+\text{NaOH}$ により形成したピットサイズとバーガースベクトルの対応関係を系統的に調査し、ピットサイズを基にした転位伝播挙動統計的解析のためのデータベース構築を実施した。

第2章 貫通転位の包括的物性解析アプローチの構築

表 2-2 GaN のエッチピットに関する報告一覧²⁻⁹。

Year	Author	Sample (carrier concentration [cm ⁻³])	Etching	TD type or b	Analysis technique
2000	Shiojima	n-type MO/sap (5.8×10^{17})	KOH 360°C, 1 min	Only mixed TDs terminate to pits	<i>g</i>·<i>b</i>
2000	Hino	n-type MO/sap (2.0×10^{18})	HCl (vapor-phase) 600°C, 30 min	Shape α_1 : screw β_1 : mixed γ_1 : edge	 <i>g</i>·<i>b</i>
2007	Weyher	HVPE/GaN or sap (variable doping condition)	KOH+NaOH 260~460°C, 10 min	Size Large : screw Medium: mixed Small : edge	<i>g</i>·<i>b</i>
2008	Lu	MO/sap (no description about doping)	KOH 220 or 240°C, 2~8 min	Shape α_2 : screw β_2 : edge γ_2 : mixed	 <i>g</i>·<i>b</i>
2018	Usami	GaN on GaN PND (n-layer: 3×10^{16})	KOH for n-layer, 470°C, 3 min	Size Large : nanopipe Medium : <i>b</i> = 1<i>c</i> Small : not analyzed	<i>g</i>·<i>b</i> and LACBED
2019	Usami	GaN on GaN PND (n-layer: 2×10^{16})	KOH for n-layer, 450°C, 1~3 min	Size Large : nanopipe Medium : not analyzed Small : not analyzed	<i>g</i>·<i>b</i>
2020	Usami	GaN on GaN PND (n-layer: 2×10^{16})	KOH for n-layer, 450°C, 1 min	Size Large : not analyzed Medium : mixed Small : mixed Very small: edge	<i>g</i>·<i>b</i>
2020	Yao	UID HVPE/commercially available GaN	KOH+Na ₂ O ₂ 510°C, 6 min	Size Large: <i>b</i> = 3<i>a</i> + 1<i>c</i> Medium (single apex) : <i>b</i> = 1<i>c</i> <i>b</i> = 1<i>a</i> + 1<i>c</i> Medium (double apex) : <i>b</i> = 2<i>c</i> (sum of two TDs) Small: <i>b</i> = 1<i>a</i>	<i>g</i>·<i>b</i> and LACBED

2.3.2. 多光子励起顕微鏡(MPPL)法による転位伝播及び結晶状態の観察

MPPL は複数の光子により半導体結晶内の電子正孔対を生成(多光子励起)させ、再結合時に発生するルミネッセンスを検出する PL 法の一つである。本装置の簡略模式図を図 2-6(a)に示す。波長 700~800 nm の Ti:Sapphire レーザを対物レンズの焦点面に集光させて光子密度を高めることによって、焦点位置で多光子励起過程を引き起こす。この焦点位置をガルバノスキャナによって面内スキャンさせることにより、面内 PL 強度マップを取得できる。半導体のバンドギャップよりも長波長の光源を使うことから、焦点以外で励起光子が吸収されないため、試料内部の任意の位置で電子を励起させることが可能である。従って、サンプルステージを深さ方向にシフトさせながら面内 PL マッピングを行うことで、断層的な 3 次元 PL イメージングが可能となる。結晶中の転位は非発光中心となるため、PL 強度マップにおいては暗点として観測される。断層イメージングにより得られる面内 PL マップをつなぎ合わせることで、図 2-6(b)のように、結晶内部の転位の 3 次元的形態を可視化することが出来る。また、結晶の PL 応答はドーパント原子や点欠陥にも影響を受けるため、原理的には結晶内部の点欠陥や不純物濃度分布を観測することもできる。本論文においては、これを応用して、GaN 結晶中の場所に依って異なる結晶成長様式の違いを観測した。

MPPL は、従来の TEM 観察では困難であった $\mu\text{m}\sim\text{cm}$ スケール範囲で、結晶内部の欠陥を非破壊かつ短時間で観察できる強力なツールとして近年急速な発展を遂げており、2014 年に SiC に適用された例を皮切りに、2018 年に Tanikawa らによって GaN の転位評価にも適用可能であることが示された^{19,20}。近年では、MPPL を駆使した、GaN 結晶成長とマクロな転位伝播挙動の関連性調査が始まっている²¹⁻²⁴。

本研究では Nikon A1MP instrument を用い、励起レーザ波長 800 nm (三光子励起)、PL 検出波長域 352~388 nm、室温大気下という条件で、結晶成長様式や転位伝播挙動を観察し、転位の電気特性との関連性を調査した。また、MPPL、TEM、エッチピット法の組合せによって、バーガースベクトルに応じた転位伝播挙動評価も実施した。

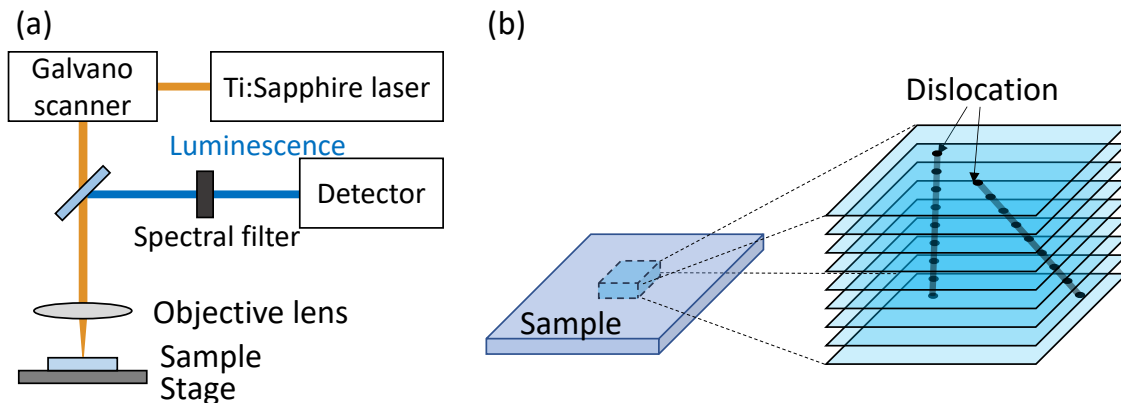


図 2-6 MPPL の (a) 簡略模式図、及び (b) 転位の 3 次元イメージング概念図。

2.3.3. 透過電子顕微鏡(TEM)法

ここでは、TEM を用いた主要な観察手法である、 $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 法及び(LA)CBED 法について説明する。 $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 法とは、転位の種類を同定するために用いられ、転位のコントラスト消滅測を利用した評価法である。コントラスト消滅測は、回折ベクトル \mathbf{g} と転位のバーガースベクトル \mathbf{b} の間に $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ の関係が成立するとき転位コントラストは消滅する一方で、 $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\neq 0$ の場合には転位コントラストが現れる現象のことであり、1 つの転位を異なる \mathbf{g} によって観察した際のコントラストの有無の組み合わせによって、転位の \mathbf{b} 方向を同定できる。GaN 結晶における刃状転位、らせん転位、混合転位の主要な \mathbf{b} は、それぞれ $\mathbf{b}=1/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 、 $\mathbf{b}=\langle 0001 \rangle$ 、 $\mathbf{b}=1/3\langle 11\bar{2}3 \rangle$ であるため、例えば、 c 軸方向に走る貫通転位を観察した際、回折ベクトルとして $\mathbf{g}=0002$ と $\mathbf{g}=11\bar{2}0$ を選択した場合、 $\mathbf{g}=11\bar{2}0$ のみコントラストが現れ、 $\mathbf{g}=0002$ で消滅する転位は刃状転位、 $\mathbf{g}=11\bar{2}0$ で消滅し、 $\mathbf{g}=0002$ で現れた場合らせん転位、 $\mathbf{g}=0002$ と $\mathbf{g}=11\bar{2}0$ の両方でコントラストが現れたら混合転位と分類できる。ただし、 $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 法では、 \mathbf{b} の絶対値までは決定できないことに注意されたい。例えば $\mathbf{b}=1/3\langle 11\bar{2}3 \rangle = 1\mathbf{a} + 1\mathbf{c}$ と $\mathbf{b}=1/3\langle 22\bar{4}3 \rangle = 2\mathbf{a} + 1\mathbf{c}$ のような転位があった場合、これらの違いを判別することは原理的に不可能である。

\mathbf{b} の絶対値まで決定できる手法が LACBED 法である。LACBED 法は CBED 法の一つであり、これらの観察手法では、平行電子線を照射する通常の制限視野電子回折法に対して、ある程度の開き角度をもって収束された電子線を試料に照射することによって、位置情報を犠牲にする代わりに結晶内局所 ($\sim 10 \text{ nm}\phi$) における結晶面角度の歪みを敏感に検出できる。LACBED の場合は、特に大きな開き角度の収束電子線をデフォーカスさせ、敢えて広範囲の領域 (数 $100 \text{ nm}\phi$) に照射することで、角度情

報と位置情報の両方を含んだ像を取得できる(図 2-7(a))。この特徴により、転位周囲の歪に起因した結晶面角度の変位を敏感に反映した像が得られ、 \mathbf{b} を定量解析することが可能となる²⁶。図 2-7(b)に示すように、大角度収束電子線によって得られる LACBED 像には、零次ラウエ(ZOLZ: zeroth-order Laue zone)線のみならず、一次以上の高次ラウエ(HOLZ: higher-order Laue zones)線が多数見られる。図 2-8(a)には、HOLZ を説明するために、エバルド球が各ラウエ帯における回折スポットを横切る様子を描いている。電子入射線方向に垂直な逆格子面をラウエ帯と呼び、さらに原点(入射点である逆格子点)を含むラウエ帯を ZOLZ、電子入射方向と逆方向に原点から数えて m 番目のラウエ帯を m 次ラウエ帯と呼ぶ。ZOLZ 以外のラウエ帯を総じて HOLZ と呼ぶ。図 2-8(a)には一次ラウエ帯(FOLZ: first-order Laue zone)と二次ラウエ帯(SOLZ: second-order Laue zone)を示している。エバルド球は、入射電子線の波長に応じた有限の曲率を有するため、原点付近の ZOLZ に属する逆格子点だけでなく、一つ外側で FOLZ、更に外側で SOLZ に属する逆格子点を横切る。図 2-8(b)には、実際に TEM で観測された回折パターンを示している³⁴。中心領域、一つ外側、更に外側のパターンが、それぞれ ZOLZ、FOLZ、SOLZ に属する逆格子点である。LACBED 像には、特に HOLZ 反射からの細い線、すなわち HOLZ 線が多数観測され、LACBED 解析では、主にこれを利用して転位のバーガースベクトル \mathbf{b} を同定する。ある \mathbf{b} を持つ転位線と任意の \mathbf{g} に対応する HOLZ の一つであるラウエ線が交錯すると、ラウエ線は分裂し、 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = n$ を満たす n の数だけ節を形成する。GaN の場合、少なくとも 3 つの一次独立な関係にある \mathbf{g} で n を分析し、 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = n$ から成る連立方程式を解くことによって、 \mathbf{b} を一義的に決定できる²⁷。図 2-7(b)では、実際に HOLZ 線が転位線と交錯した際に分裂した様子を示しており、節数 n が 10 であることが分かる。このような転位歪を反映したラウエ線の明瞭な分裂を観測するには、転位を薄片試料の厚み方向中心付近に含ませることが重要であり、高度な TEM 試料加工技術が要求されるため、 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$ 法に比べて LACBED 法で転位の構造解析をしている報告数は圧倒的に少ない。また、そもそも転位同士が重ならない程度に低転位密度であることが必須である。GaN 結晶が高転位密度だった頃、LACBED 解析を行った報告は少なかったが^{28,29}、GaN 結晶高品質化に伴い、近年では LACBED で転位解析をしている報告例が増えてきている^{6,7,30-33}。

本論文では、ピット直下の転位を FIB により薄片試料としてピックアップし、Weak beam 条件に依って転位の全体像と微細形態を観察した後、 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$ 法によって種類を同定した。その後、必要に応じて LACBED 解析を行い、バーガースベクトルの絶対値を

同定した。これらの結果を用いて、電気特性との関連性や、エッチピットサイズとの対応関係等を調査した。

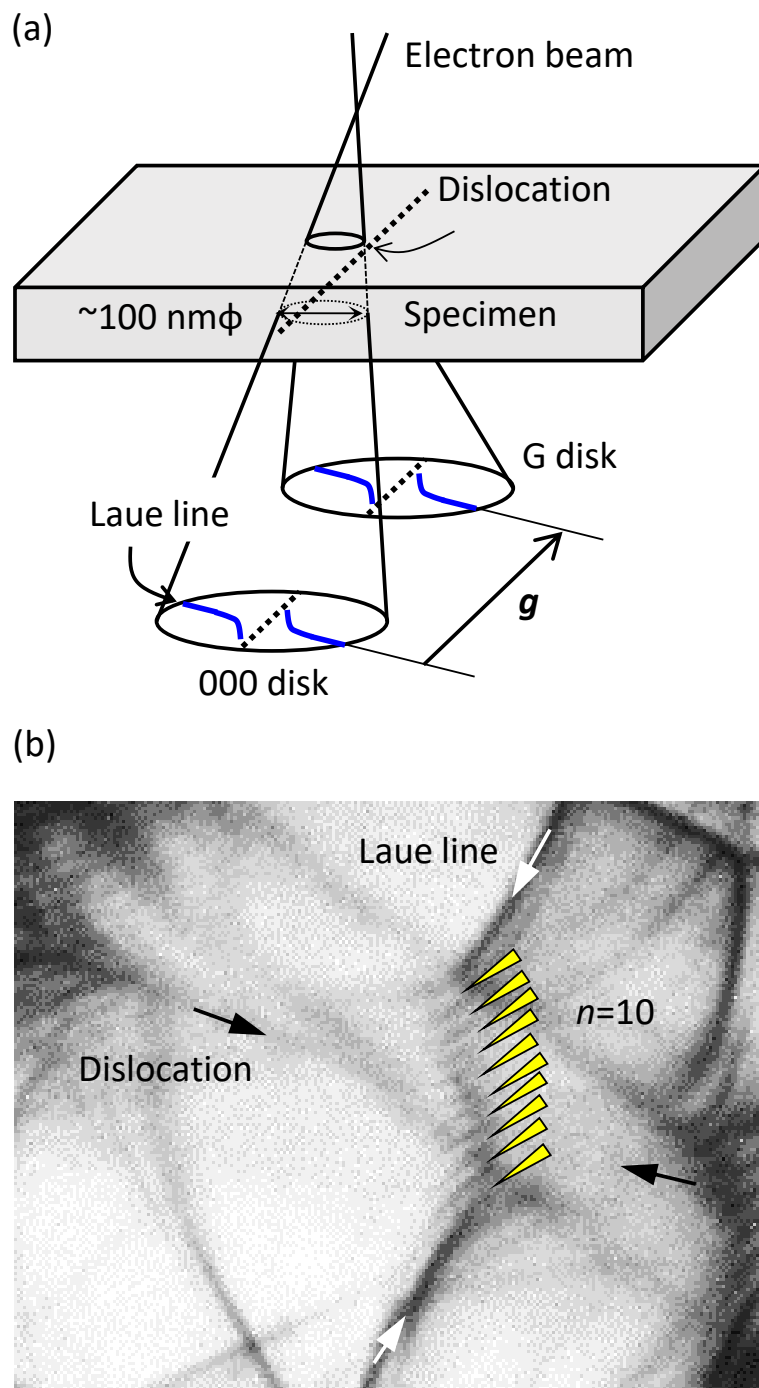


図 2-7 LACBED 法の (a) 模式図と(b) 観察例。

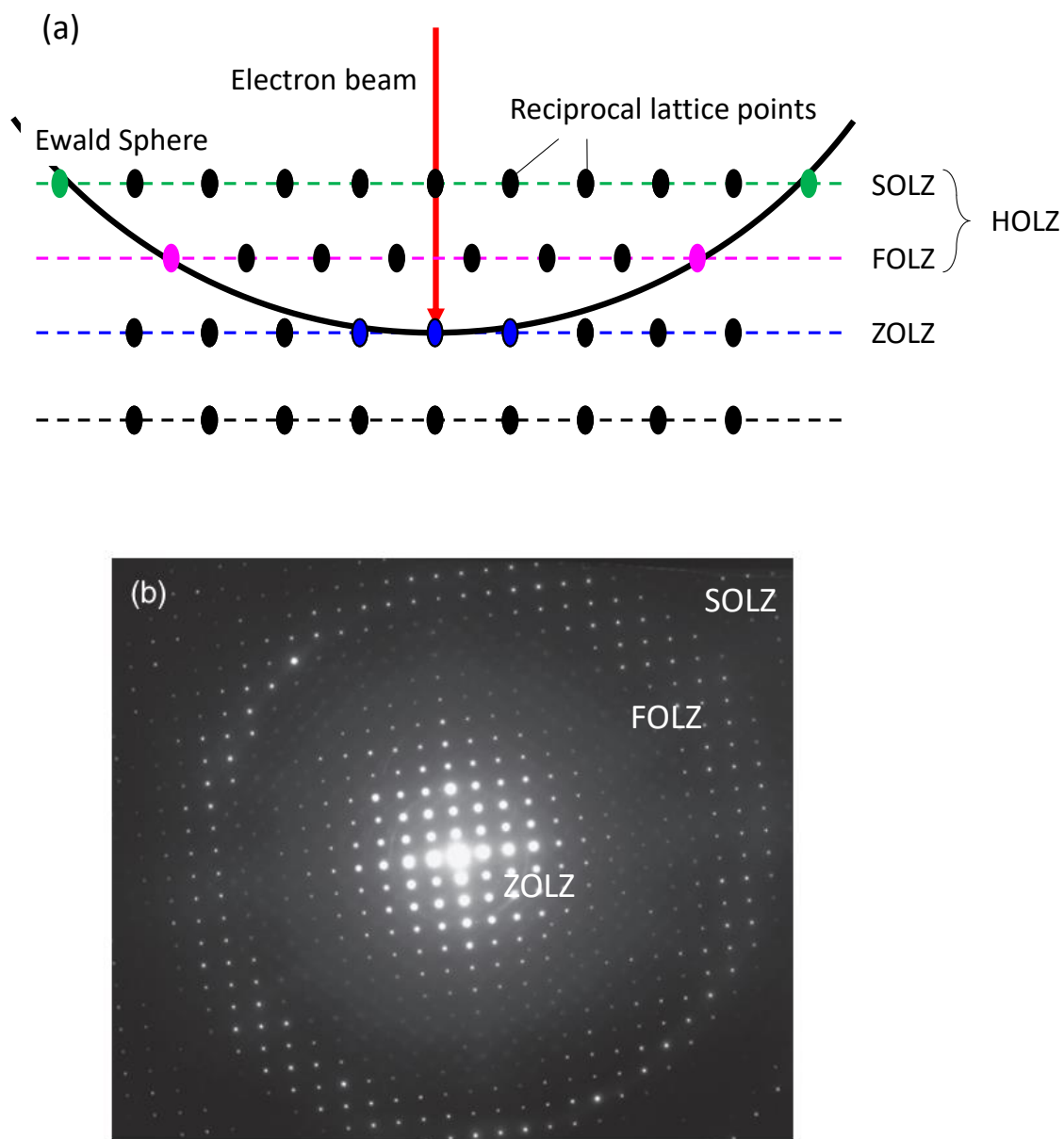


図 2-8 ZOLZ 及び HOLZ の説明。(a) エバルド球が各ラウエ帯における逆格子点を横切る様子を示した模式図。(b) TEM で得られる実際の回折パターン³⁴。(b) では中心に ZOLZ、一つ外側に FOLZ、一番外側に SOLZ に属するパターンが見られる。

2.4. 小括

本章では、初めに本研究の基軸となる、個々の貫通転位に照準した包括的な物性解析アプローチの全体的な流れを説明した。その後、まず、貫通転位一本の電気特性を定量的に計測できる新しい評価技術の必要性を示し、本研究で構築したエッチピットと FIB を駆使した微小ショットキー接触作製アプローチを説明した。そして、転位構造・伝播形態、及び転位周辺の結晶成長様式の多角的解析アプローチを構成する、エッチピット法、MPPL 法、TEM 法について、各手法の測定原理から GaN への適用報告例等を示しながら、本研究における各手法の役割を明確にした。本論文では、これら単独貫通転位の「電気測定＋多角的・マルチスケール構造解析」を実施し、貫通転位におけるリークメカニズムの系統的な調査を行った。

参考文献

- ¹ K. Shiojima, T. Suemitsu, and M. Ogura, Appl. Phys. Lett. **78**, 3636 (2001).
- ² K. Shiojima, J. Vac. Sci. Technol. B **18**, 37 (2000).
- ³ T. Hino, S. Tomiya, T. Miyajima, and K. Yanashima, Appl. Phys. Lett. **76**, 3421 (2000).
- ⁴ J. L. Weyher, S. Lazar, L. Macht, Z. Liliental-Weber, R. J. Molnar, S. Müller, V. G. M. Sivel, G. Nowak, and I. Grzegory, J. Cryst. Growth **305**, 384 (2007).
- ⁵ L. Lu, Z. Y. Gao, B. Shen, F. J. Xu, S. Huang, Z. L. Miao, Y. Hao, Z. J. Yang, G. Y. Zhang, X. P. Zhang, J. Xu, and D. P. Yu, J. Appl. Phys **104**, 123525 (2008).
- ⁶ Y. Yao, Y. Sugawara, D. Yokoe, K. Sato, Y. Ishikawa, N. Okada, K. Tadatomo, M. Miyoshi, and T. Egawa, CrystEngComm. **22**, 8299 (2020).
- ⁷ S. Usami, Y. Ando, A. Tanaka, K. Nagamatsu, M. Deki, M. Kushimoto, S. Nitta, Y. Honda, H. Amano, Y. Sugawara, Y. Yao, and Y. Ishikawa, Appl. Phys. Lett. **112**, 182106 (2018).
- ⁸ S. Usami, A. Tanaka, H. Fukushima, Y. Ando, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, Jpn. J. Appl. Phys. **58** SCCB24 (2019).
- ⁹ S. Usami, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, Appl. Phys. Lett. **114**, 232105 (2019).
- ¹⁰ A. Botman, J. J. L. Mulders, R. Weemaes, and S. Mentink, Nanotechnology **17**, 3779 (2006).
- ¹¹ S. Y. Moon, J. H. Son, K. J. Choi, J. -L. Lee, and H. W. Jang, Appl. Phys. Lett. **99**, 202106 (2011).
- ¹² Z. X. Qin, Z. Z. Chen, Y. Z. Tong, X. M. Ding, X. D. Hu, T. J. Yu, and G. Y. Zhang, Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process. **78**, 729 (2004).
- ¹³ J. S. Park, J. Han, and T. Y. Seong, J. Alloys Comp. **652**, 167 (2015).
- ¹⁴ G. Greco, F. Iucolano, and F. Roccaforte, Appl. Surf. Sci. **383**, 324 (2016).
- ¹⁵ K. Sangwal, *Etching of crystals*, North-Holland, Amsterdam (1987).
- ¹⁶ F. Secco d'Aragona, J. Electrochem. Soc. **119**, 948 (1972).
- ¹⁷ M. S. Abrahams and C. J. Buiocchi, J. Appl. Phys. **36**, 2855 (1965)
- ¹⁸ D. Zhuang and J. H. Edgar, Mater. Sci. Eng. R **48**, 1 (2005).
- ¹⁹ R. Tanuma, M. Nagano, I. Kamata, and H. Tsuchida, Appl. Phys. Express **7**, 121303 (2014).
- ²⁰ T. Tanikawa, K. Ohnishi, M. Kanoh, T. Mukai, and T. Matsuoka, Appl. Phys. Express **11**, 031004 (2018).
- ²¹ S. Inotsume, N. Kokubo, H. Yamada, S. Onda, J. Kojima, J. Ohara, S. Harada, M.

- Tagawa, and T. Ujihara, *Phys. Status Solidi B* **257**, 1900527 (2020).
- ²² A. Tanaka, K. Nagamatsu, S Usami, M. Kushimoto, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, M. Bockowski, and H. Amano, *AIP Adv.* **9**, 095002 (2019).
- ²³ M. Tsukakoshi, T. Tanikawa, T. Yamada, M. Imanishi, Y. Mori, M. Uemuka, and R. Katayama, *Appl. Phys. Express* **14**, 055504 (2021).
- ²⁴ Q. Liu, N. Fujimoto, J. Shen, S. Nitta, A. Tanaka, Y. Honda, Z. Sitar, M. Boćkowski, Y. Kumagai, and H. Amano, *J. Cryst. Growth* **539**, 125643 (2020).
- ²⁵ 坂 公恭、結晶電子顕微鏡額、内田老鶴圃、東京(1998)。
- ²⁶ 田中道義、日本結晶学会誌 **44**, 150 (2002)。
- ²⁷ M. Tanaka, M. Terauchi, and T. Kanayama, *Microsc.* **40**, 211 (1991).
- ²⁸ D. Cherns, W. T. Young, J. W. Steeds, F. A. Ponce, S. Nakamura, *J. Cryst. Growth* **178**, 201 (1997).
- ²⁹ F. A. Ponce, D. Cherns, W. T. Young, and J. W. Steeds, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 770 (1996).
- ³⁰ Y. Ishikawa, Y. Yao, K. Sato, Y. Sugawara, D. Yokoe, 2019 IEEE Int. Meeting for Future of Electron Devices, 63 (2019).
- ³¹ Y. Sugawara, Y. Ishikawa, A. Watanabe, M. Miyoshi, T. Egawa, *J. Cryst. Growth* **468**, 536 (2017).
- ³² Y. Yao, Y. Ishikawa, Y. Sugawara, D. Yokoe, M. Sudo, N. Okada, and K. Tadatomo, *Mater. Sci. Forum* **897**, 707 (2016).
- ³³ N. Kokubo, Y. Tsunooka, F. Fujie, J. Ohara, S. Onda, H. Yamada, M. Shimizu, S. Harada, M. Tagawa, and T. Ujihara, *Appl. Phys. Exp.* **11**, 111001 (2018).
- ³⁴ 今野豊彦、顕微鏡 **43**, 212 (2008)。

第2章 貫通転位の包括的物性解析アプローチの構築

第3章 結晶成長様式が貫通転位の電気特性に及ぼす影響

3.1. はじめに

Na フラックス法は GaN バルク結晶成長手法の一つであり、Mori らのグループにより導入された MPS 法と FFC 法を組み合わせた斬新な技術によって、非常に低転位密度でかつ大口径なバルク結晶を育成できることが報告されている¹⁻⁴。MPS テンプレート上では GaN は c 面、 $\{10\bar{1}1\}$ 面、 $\{10\bar{1}2\}$ 面を出しながらピラミッド状に成長し、ピラミッド同士が合体しながらバルク化が進行していく成長様式をとる²⁻⁵。一般的に GaN 結晶中の転位伝播は結晶成長様式に非常に敏感で、その違いによって多様な伝播形態をとることが知られている。例えば、HVPE 法によって ELO 成長させた GaN 結晶の場合、ストライプ状 SiO₂ マスク間開口部からの $(10\bar{1}1)$ ファセット面成長フロントの影響で、もともと c 面と垂直方向に伝播していた転位が平行方向に曲げられることが報告されている⁶。また、Na フラックス成長においても、ファセット成長フロントが貫通転位表面を横切ると、転位はそのままファセットについていくように曲がって伝播していくことが報告されている⁷。さらに、成長過程での結晶面方位の違いは、結晶内部に取り込まれる不純物量にも影響する⁵。つまり、同一結晶内においても局所的に結晶成長様式が異なれば、転位伝播形態や、その周辺の不純物濃度を含む結晶状態は多様に変化し、それに伴い、転位の電気特性もまた多分に変化し得る。しかしながら、転位の電気特性について、転位の伝播形態や周辺の結晶状態、引いては結晶成長履歴までを包括的に調査した報告はほぼ皆無である。

本章では、MPS 法のみ、及び MPS 法と FFC 法の組み合わせによって Na フラックス成長させた2つの GaN バルク結晶をサンプルとして、転位の電気特性評価を行った後、エッチピット法、MPPL、TEMを用いた解析を行うことによって、結晶成長様式の違い、あるいは意図せず生じた成長様式の不均一性によってもたらされた、不純物濃度や転位伝播形態の違いが、その転位自体のリーク特性に及ぼす影響を調査した。

3.2. MPS 法による Na フラックス GaN バルク結晶中の貫通転位の評価

3.2.1. MPS 法による Na フラックス GaN バルク結晶

本節で用いた、MPS 法による Na フラックス GaN バルク結晶の作製方法について説明する。図 3-1 は、MPS 法を用いた Na フラックス成長の模式図である。最初に、サファイヤ基板上に MOVPE 法で成長させた GaN 薄膜のレーザー加工か、もしくは MOVPE 法の選択成長により、マルチポイントシード GaN (Multipoint-seed-GaN: MPS-GaN) を作製する。これを種基板として Ga-Na 融液に入れると、各ポイントシード上で GaN がピラミッド状に成長していく。成長が進むにつれて、隣り合うポイントシード上の結晶同士が合体し、単一のバルク GaN 結晶ができる。その後、自然冷却過程においてポイントシード GaN とサファイヤ基板が自然剥離し、自立基板が得られる。以後、この手法によって成長した GaN を MPSC-GaN (Multipoint-seed-coalescence-GaN) と呼称する。

図 3-2 は、MPSC-GaN 結晶の断面模式図である。MPSC-GaN には、 c 面を出しながら c 方向に成長する領域 (c -plane growth sector: c GS) と、 $\{10\bar{1}1\}$ 面 (条件によっては $\{10\bar{1}2\}$ 面も) のファセットを出しながら成長する領域 (Faceted growth sector: FGS) が含まれる^{2,5}。その結果、成長後の結晶には c GS と FGS に加え、これら異成長領域の境界 (Boundary region between the c GS and FGS: BR)、そして隣り合うポイントシード状に成長したファセット領域同士の結合界面 (Coalescence boundary region between FGSs: CBR) が存在する。 c GS と FGS では、その成長過程で取り込む酸素不純物量が異なることが報告されており、 c GS 中の酸素不純物濃度は約 $1.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 、FGS では約 $1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ と報告されている⁵。これらの違いは、それぞれの面を構成する原子配列の違いに起因していると指摘されている⁸。図 3-3 に (0001) 面と $\{10\bar{1}1\}$ 面の原子配列を示す。O 原子は GaN 結晶中へは N 原子と置換して取り込まれるため、結晶表面の N 原子密度が多い程、O 原子との置換が生じやすい。 (0001) 面は Ga 原子で終端するため、この面における N 原子密度は 0 cm^{-2} である。一方 $\{10\bar{1}1\}$ 面表面における N 原子密度は $1.07 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ である。また、酸素が Ga と結合する際の結合手は、 (0001) 面では 1 本であるのに対し、 $\{10\bar{1}1\}$ 面では 2 本または 3 本であるので、一度結合すると酸素の脱離が困難になる。従って、酸素不純物は (0001) 面よりも $\{10\bar{1}1\}$ 面により容易に取り込まれ、かつより強固に結合するため、 c GS よりも FGS の酸素不純物濃度が高くなると考えられる。

第3章 結晶成長様式が貫通転位の電気特性に及ぼす影響

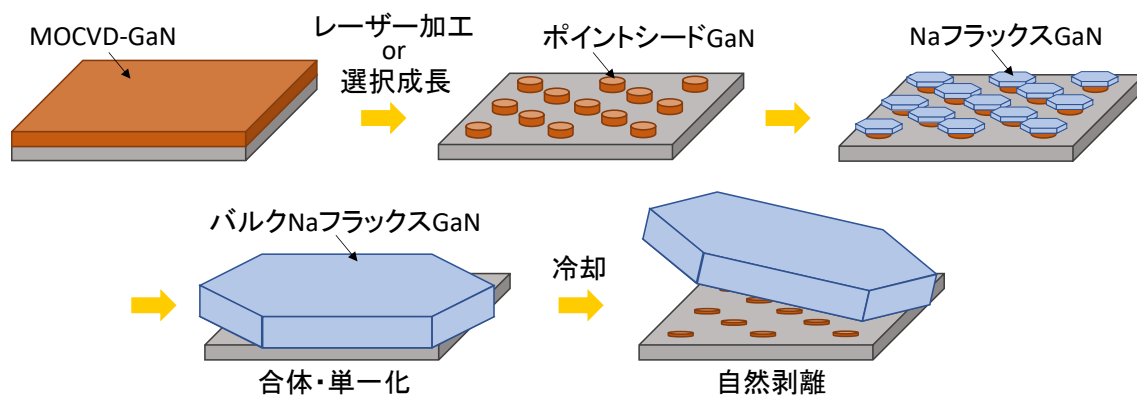


図 3-1 MPS 法を用いた Na フラックス成長の模式図。

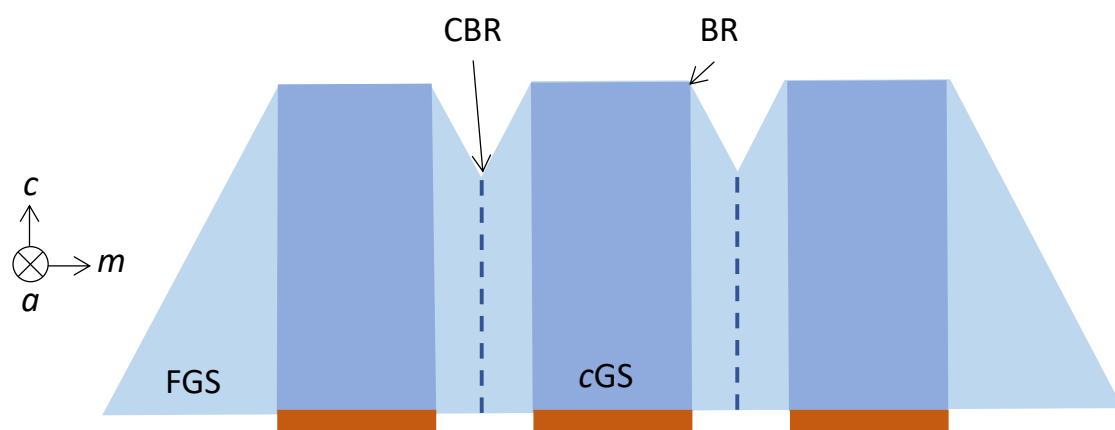


図 3-2 MPSC-GaN 結晶の断面模式図。

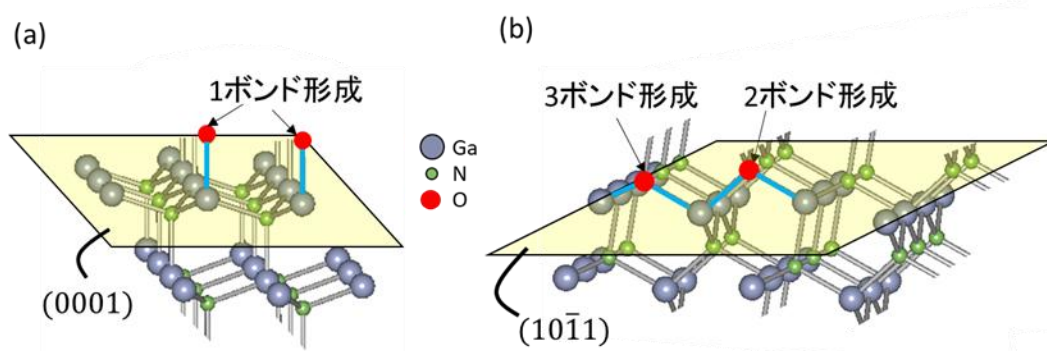


図 3-3 (a) (0001)面と(b) (10 $\bar{1}$ 1)面の原子配列とボンド数。

3.2.2. 結晶領域別貫通転位の電気特性解析

図 3-4 は CMP により表面を研磨した後、エッチング処理を施した MPSC-GaN の広域 SEM 像である。表面に見られる六角形に並ぶ白いコントラストは、隣接したポイントシード上で成長した GaN 結晶同士の界面 CBR に位置するエッチピット列である(赤点線がその一例を示す)。図 3-5(a)と(b)に、特定のポイントシード上に成長した GaN 結晶表面の SEM 像とその模式図を示す。明るいコントラスト領域が cGS、暗い領域が FGS、それらの境界が BR、FGS 同士の境界が CBR である。図 3-4 と同様、白い点の样に見えるコントラストがエッチピットである。特に CBR 上に多く分布しており、その他の領域にも転位が点在していた。本研究では、図 3-5(a)と(b)中の赤丸で示している、各結晶領域上の 4 つのエッチピットに着目した。それらの拡大 SEM 像を図 3-5(c)~(f) に示す。

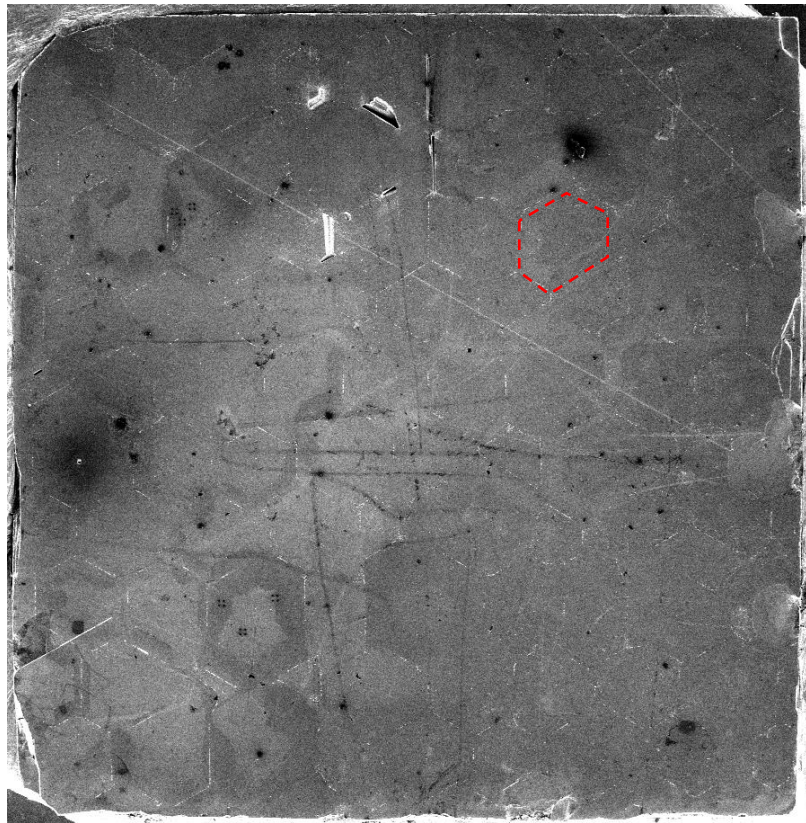


図 3-4 MPSC-GaN 結晶表面の SEM 像。

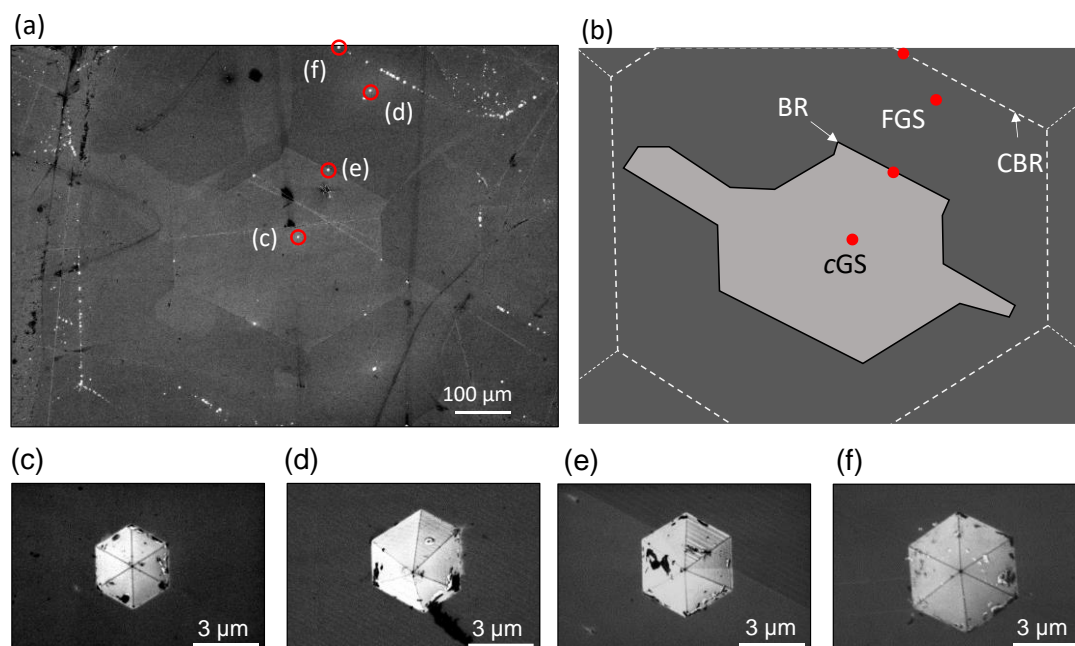


図 3-5 ポイントシード上の(a) 全体 SEM 像と(b) 模式図、及び(c) *cGS* (d) *FGS* (e) *BR* (f) *CBR* に形成されたエッチピットの SEM 像。(a)、(b)に(c)~(d)の位置を示す。

FIB 加工装置により各エッチピットに Pt を埋め込み、各電極周辺で C-AFM 測定を行った。なお、この実験においては Pt 電極のアニール処理を行っていない。図 3-6 は 3 V 印加時の *cGS* (a, e)、*FGS* (b, f)、*BR* (c, g)、*CBR* (d, h) 上の Pt 電極周辺で得られた形状像(上列)と、同一領域の電流像(下列)である。全領域のエッチピットにおいて、六角形の Pt 電極部分で電流が検出されていることが分かる。各電極内での電流値のばらつきは、アニール処理を行っていないために、Pt 蒸着中に取り込まれた炭化物が除去されておらず、電極内部の導電性が不均一であることが原因と考えられる。そこで、各電流像における最大電流値を比較し、結晶領域間の電流の流れやすさを比較した。表 3-1 に各電極部で得られた ± 3 V 印加時電流像の最大電流値を示している。正負電圧共に *cGS* の転位における電流値が他の領域の転位に比べ約 2~3 桁小さく、逆方向バイアス(正電圧)印可時のリーク電流が最も小さいことが分かった。

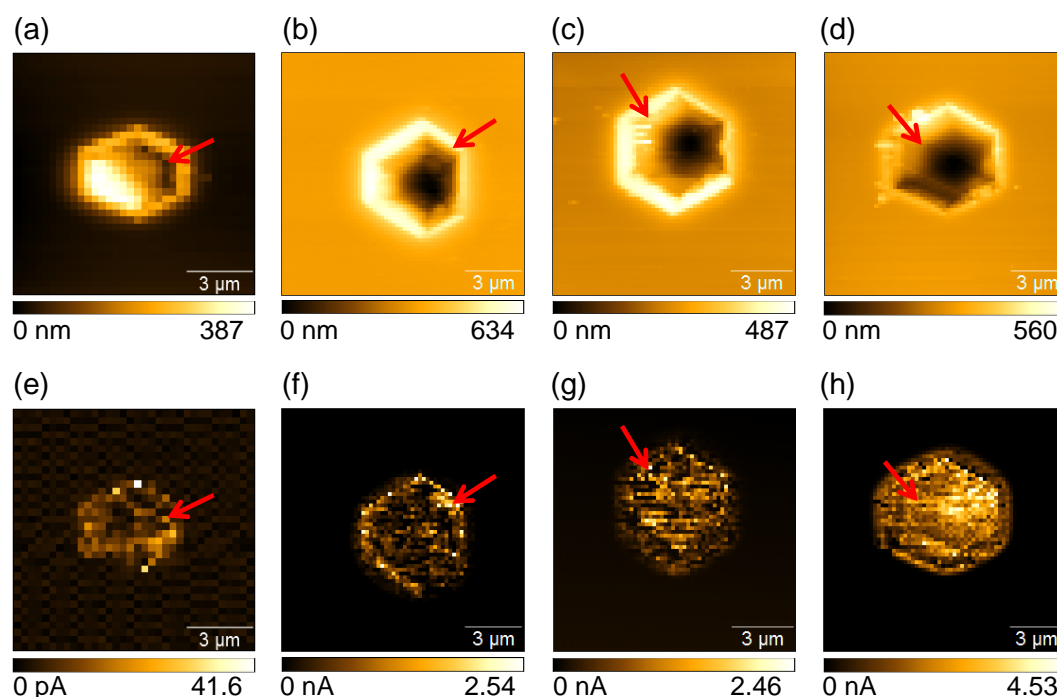


図 3-6 (a, e) *cGS*、(b, f) *FGS*、(c, g) *BR*、(d, h) *CBR* 上のエッチピット部 Pt 電極周辺における 3 V 印加時の形状像 (上列) と電流像 (下列)。赤矢印は I - V 測定箇所を示す。

表 3-1 各領域エッチピット部における ± 3 V 印加時の最大電流値。

Sample voltage	Current value			
	<i>cGS</i>	<i>FGS</i>	<i>BR</i>	<i>CBR</i>
+3 V	41.6 pA	2.54 nA	2.46 nA	4.53 nA
-3 V	-73.0 pA	-1.37 nA	-10.1 nA	-33.9 nA

続いて、各電極部で局所 I - V 測定を行った。なお、アニール処理を行っていないために生じた Pt 電極内導電性の不均一性に起因して、同一電極でも探針を落とす場所に依って I - V 特性が異なる結果となったため (2.2.2 項参照)、各電極で得られた全ての I - V 特性の内、最大電流を示す I - V 特性に着目した。図 3-7 に、各電極部で最大電流を示した I - V 特性を示す。それぞれの I - V 特性は、図 3-6 中の赤矢印箇所 で得られた。電気特性は領域毎に異なっており、そのエッチピットが存在する結晶領域に依存していることが分かる。*cGS* と *BR* の I - V 特性に着目すると、順バイアス (負電圧) に比べ逆バイアス (正電圧) 印加時に電流が抑制されており、整流性を示していることが分かる。故に、*cGS* と *BR* のエッチピット部 Pt/n-GaN 界面には空乏層が存在していると考えられる。ただし、*cGS* と *BR* のエッチピット部いずれの順方向 I - V 特性も、ショットキー接

の一般的な電気伝導モデルである熱電子放出モデル (TE: Thermionic emission、 $I_{TE} = I_{0,TE} \{\exp(qV/nkT) - 1\}$; I_{TE} 、 $I_{0,TE}$ 、 q 、 k 、 T 、 n はそれぞれ総電流、飽和電流、電荷素量、ボルツマン定数、温度、理想係数)⁹に基づき算出された理想係数が 1 よりも大きな値となったことから、いずれの界面でも順方向の電気伝導には理想的な TE 以外のメカニズムも寄与することが示唆された。一方、FGS と CBR のエッチピット部での整流性は比較的弱く、さらに 2 V 付近を境に急峻な I - V カーブ形状の変化が見られた。故に、FGS と CBR の転位部でもまた、TE モデルのような単純な整流性を示す機構のみならず、別の機構も電気伝導に多大に寄与していると考えられる。

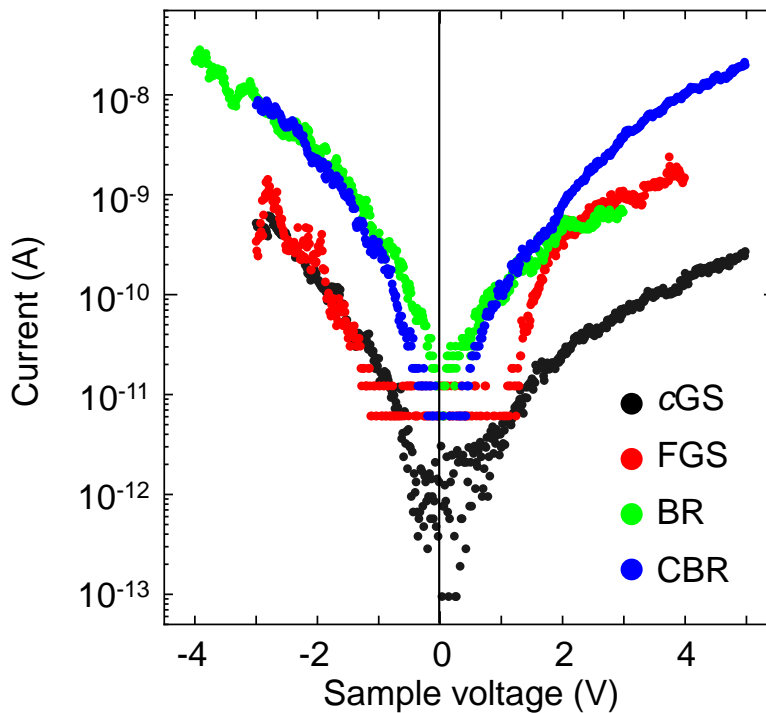


図 3-7 各結晶領域上エッチピット部で得られた最大電流を示す I - V 特性。

各エッチピット部における逆方向リーク電流の電気伝導機構を明らかにするために、 I - V 特性を詳細に解析した。図 3-8 は、図 3-7 に示す逆方向 I - V 特性の両対数プロットである。橙色と紫色の実線はそれぞれオーミック電流と空間電荷制限電流 (SCLC: space charge limited current)¹⁰の理論曲線を示している。BR の特性は、低電圧域ではオーミック特性と重なっているが、約 1 V を境に、それ以上の高電圧域では SCLC の理論曲線と重なっている。つまり、BR のエッチピット部では、印加電圧が増加するに従い、Pt/n-GaN 界面における電気伝導機構がオーミック電流から SCLC へ変化していることが明らかとなった。cGS と、FGS の高電圧域、CBR の低電圧域も、SCLC の理論曲

線と概ね合致しており、これらの電圧領域において支配的な電気伝導機構が SCLC であることが判明した。CBR における 2V 以上の高電圧域で見られる急勾配な I - V 特性も、欠陥準位がすべて埋まった後に電気伝導率が急激に上昇する SCLC 伝導の特徴と合致している。これらの結果を踏まえると、全ての成長領域の転位で、リーク電流の電気伝導に欠陥準位が寄与していることが強く示唆された。

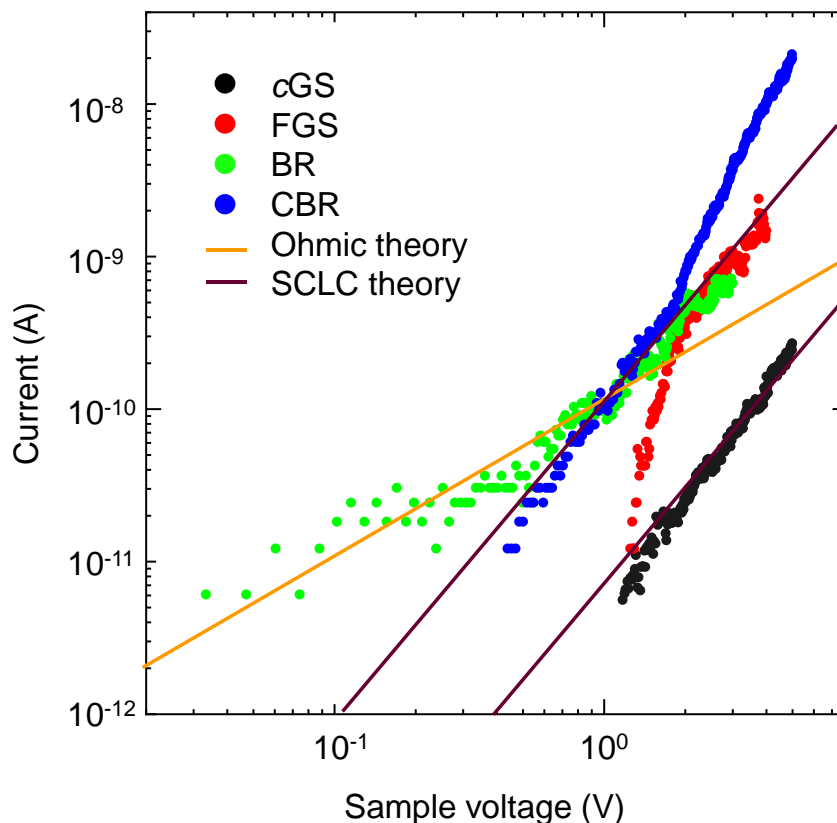


図 3-8 図 3-7 に示す逆方向 I - V 特性の両対数プロット。

図 3-7 において整流性が見られた cGS と BR の逆方向 I - V 特性について、さらに解析する。先述の通り、これら二つのピット部電極の界面では空乏層が形成されていると考えられる。逆方向 I - V 特性解析に先立ち、この空乏層幅にかかる電界強度 E を算定する必要がある。まず印可した逆方向電圧の内、実際に空乏層にかかっている電圧を推定する。 GaN の電子親和力と Pt の仕事関数の差として定義される理想的な拡散電位 (約 1.55 eV) よりも大きい順バイアス電圧領域では、界面の拡散電位が消失するため、 I - V 特性には GaN バルク部分の直列抵抗が支配的に寄与するはずである。従って、その電圧領域の I - V 特性から、 V/I により GaN バルク部分の直列抵抗成分 R_{bulk} を見積もることができる。その結果、 cGS では $10^9 - 10^{10} \Omega$ 、 BR では $10^8 - 10^9 \Omega$ と求めら

れた。各印加電圧 V における電流とバルク抵抗の積 $I \times R_{\text{bulk}}$ がバルク部分での電圧降下 V_{bulk} に相当するので、印加電圧との差 ($V - V_{\text{bulk}}$) から空乏層にかかる電圧 V_{dep} を求めることが出来る。実際に V_{dep} を見積もると、cGS では印加電圧の 45%~85%、FGS では 65%~95% の割合の電圧が空乏層に印加されていることが推定された。

続いて、空乏層幅 W を求める。空乏層幅は、平行平板型ショットキー接触を想定して下記の式によって算出した⁹。

$$W = \sqrt{\frac{2\varepsilon_0\varepsilon_r}{qN_D} \left(V_{\text{bi}} - V_{\text{dep}} - \frac{kT}{q} \right)} \quad (3.1)$$

ε_0 は真空での誘電率、 ε_r は GaN の比誘電率 (9.5)、 N_D はドナー密度、 V_{bi} は拡散電位である。本試料においては、ドナー密度 N_D はドーパントとして振る舞う酸素不純物濃度と等しいと考え、cGS では約 $1.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 、BR では約 $1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ とした。拡散電位 V_{bi} は理想的なショットキー界面が形成されていると仮定し、Pt の仕事関数 5.65 eV と GaN の仕事関数 (4.1 eV) の差 (1.55 eV) と定義した。これらの値と算出した V_{dep} を式 (3.1) に代入することにより、Pt/GaN 界面における空乏層幅 W が、cGS では 100~300 nm、BR では 10~20 nm と見積もられ、この値から、空乏層にかかる電界 E が算定された。

これを踏まえて、cGS と BR の転位部で得られた正電圧印加時の I - V 特性 (図 3-7) をいくつかの電子伝導モデルに基づいたプロットを行った。図 3-9(a)-(d) に Poole-Frenkel (PF) emission モデルおよび Schottky emission モデルに則ったプロット結果を示している¹¹。PF emission 機構は、電子がバンドギャップ中のトラップ準位を介して電気伝導に寄与するモデルで、一方 Schottky emission 機構は、ショットキーバリア障壁を超えるエネルギーを持つ電子が金属側から半導体側に流れることで電流が生じるモデルである。図 3-9(e) 及び (f) にそれぞれの電気伝導の模式図を示している。PF 及び Schottky emission プロットは、それぞれのモデル式

$$I \propto E \exp \left[\frac{-q(\phi_b - \sqrt{qE/\pi \varepsilon_0 \varepsilon_r})}{kT} \right], \quad (3.2)$$

$$I \propto \exp \left[\frac{-q(\phi_b - \sqrt{qE/4\pi \varepsilon_0 \varepsilon_r})}{kT} \right], \quad (3.3)$$

(ϕ_b は接触界面における障壁高さ) より、 $\ln(I/E)$ vs \sqrt{E} 、 $\ln(I)$ vs \sqrt{E} で得られる。cGS においてはどちらのモデルも線形性を示している (図 3-9(a) 及び (b))。BR においては、Schottky emission プロット (図 3-9(d)) が明瞭な線形性を示す一方、PF プロットはやや

ばらついており、線形とは言い難い((図 3-9(c))). 図 3-9(a)、(b)、(d)に示すフィッティング直線(赤実線)の傾きから比誘電率 ϵ_r を算出し、GaN の理論値(9.5)と比較することにより、電気伝導機構を同定する。まず、BR の Schottky emission フィッティング結果からは $\epsilon_r=16$ と算出され、比較的理論値に近い値となった。しかしながら、先述の通り、BR における順方向 I - V 特性を TE モデルで解析した場合の理想係数は、1 に比べて非常に大きな値となっていたことから、逆方向において Schottky emission 機構が支配的になっている可能性は低いと言える。従って、本解析では、BR の転位部におけるリーク電流電気伝導機構を特定することは出来なかった。一方、cGS の転位では Schottky emission 及び PF のフィッティング結果から、それぞれ $\epsilon_r=0.8$ 、 $\epsilon_r=8$ と算定された。この結果より、理論値 $\epsilon_r=9.5$ と良い合致を示した PF 機構が、cGS の貫通転位におけるリーク電流の支配的な電気伝導機構であると考えられる。

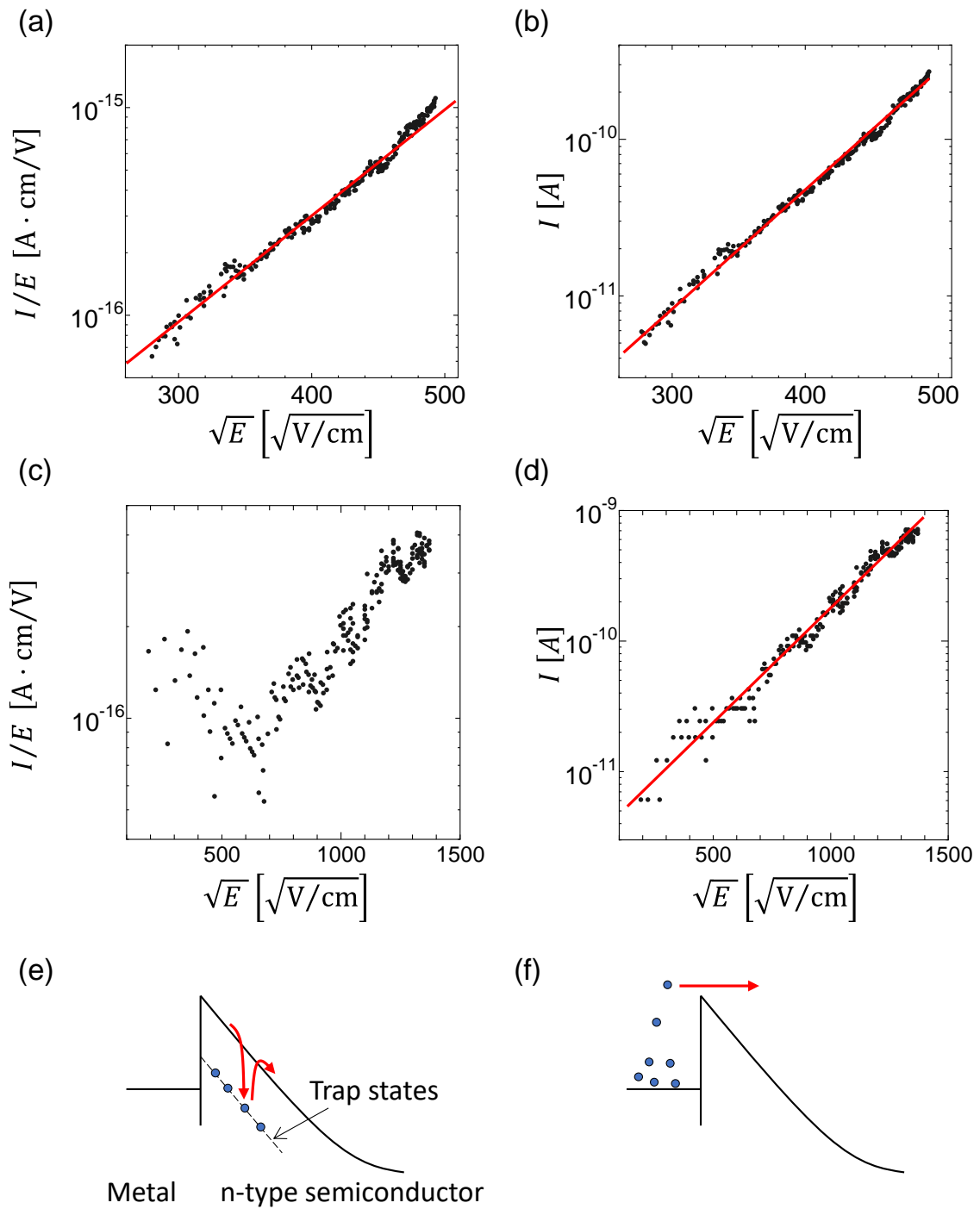


図 3-9 (a,b) cGS、(c,d) BR の転位部における正電圧印加時 I - V 特性の PF emission プロット(左列) 及び Schottky emission プロット(右列)。(e) PF emission 機構及び(f) Schottky emission 機構の模式図。(a)、(b)、(d)中の赤実線は最小二乗法で得られた近似直線を示す。

3.2.3. 転位種の同定

電気測定を行った *c*GS 中エッチピット直下の転位部を FIB により薄片加工し、TEM 観察を行った。図 3-10(a)及び(b)は、それぞれ $g=0002$ 及び $g=11\bar{2}0$ で観察した転位の断面暗視野像である。*c* 方向にまっすぐ伝播する転位コントラストが $g=0002$ でのみ見られることから、この転位は *c* 成分のバーガースベクトルを持つらせん転位であることが分かった。FGS、BR、CBR の転位は薄片 TEM 試料内に転位を捉えることができず、本研究では転位種を同定するは出来なかった。

PF による電気伝導を引き起こすトラップ準位の起源には、らせん転位の構造に起因した準位¹²⁻¹⁵の他、酸素不純物も関連している可能性がある。実際、酸素不純物が転位周囲に集積すること¹⁶⁻¹⁸、転位と酸素の複合欠陥がバンドギャップ中に準位を形成すること¹³が過去に報告されている。

以上、MPSC-GaN における実験結果から、一つ一つの転位における電気特性が、それが存在する結晶成長領域に強く依存すること、*c*GS 中転位部のリーク電流特性の解析結果から、その電気伝導に転位のみならず酸素不純物も関与している可能性が示唆された。結晶中の酸素不純物濃度は、成長過程での結晶面方位に依存し、特に $\{10\bar{1}1\}$ 面や $\{10\bar{1}2\}$ 面には、(0001)面に比べて1～2桁多くの酸素不純物を取り込まれる。実際、本実験結果においても *c*GS 中の貫通転位で最もリーク電流が抑制されていた。これらの結果より、*c*GS を優先的に成長させ、過量の酸素不純物を取り込まれる FGS を排除することが、MPSC-GaN の更なる高品質化にとって重要であることが示された。

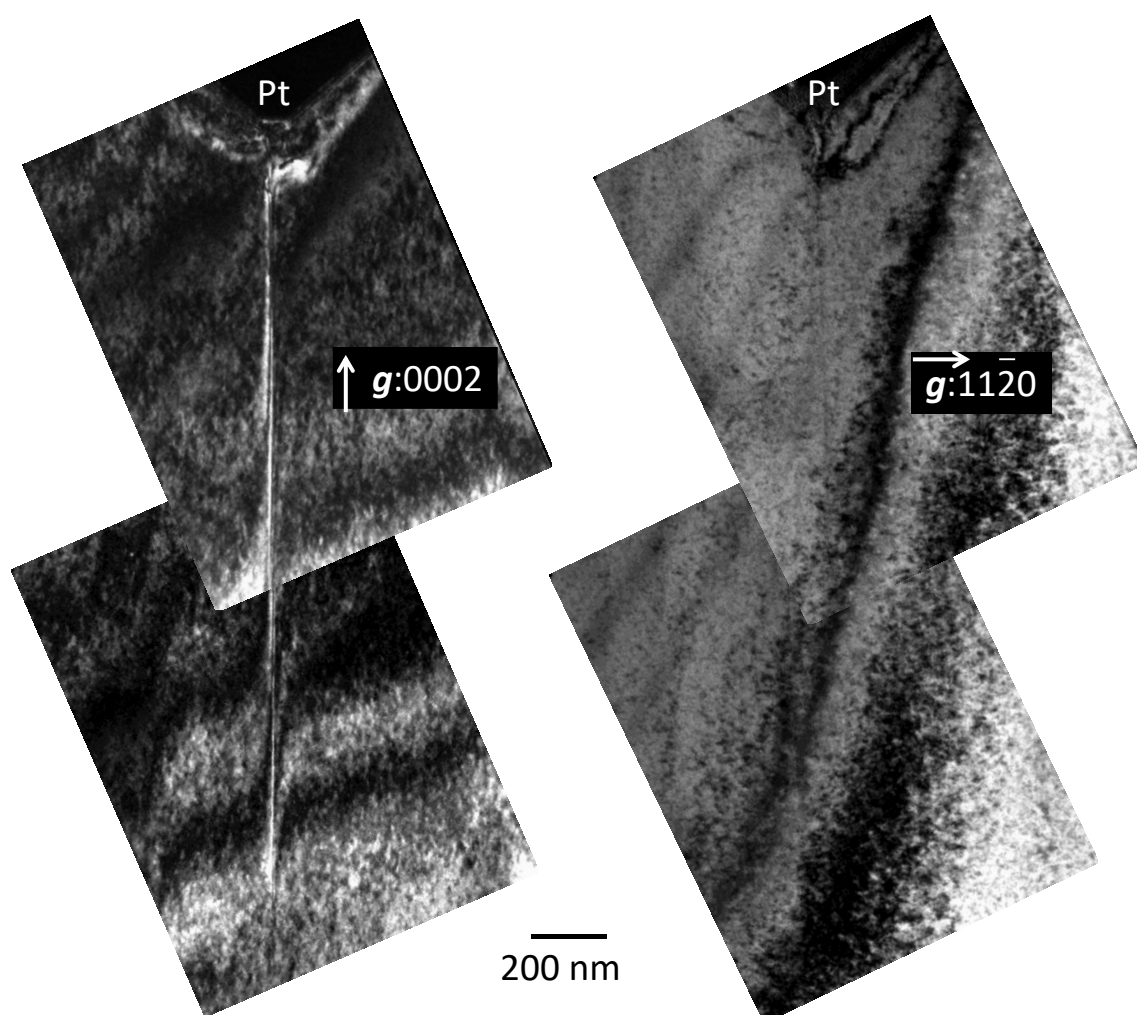


図 3-10 cGS のエッチピット直下貫通転位の 断面暗視野 TEM 像。(a) $g=0002$ 、(b) $g=11\bar{2}0$ 。

3.3. MPS 法及び FFC 法による Na フラックス GaN バルク結晶中の貫通転位の調査

MPS テンプレート上の GaN 結晶成長過程で FGS を抑制する手法として、近年、Na フラックス成長法に FFC 法が導入されている²⁻⁴。本節では、MPS 法及び FFC 法の組み合わせによって育成された Na フラックス GaN 結晶を対象に、転位におけるリーク電流調査を行った。

3.3.1. MPS 法及び FFC 法による Na フラックス GaN バルク結晶

図 3-11 は、MPS 法と FFC 法を併用して作製された GaN バルク結晶の断面模式図である⁴。各ポイントシード上で GaN をピラミッド状に成長させた後、Ga-Na 融液からの MPS テンプレートの引き上げ→待機（ピラミッド間溝でのみ結晶成長）→浸漬（Ga 源補充）→引き上げ→…、を繰り返すことによって自発的な thin flux film の形成を促し、ピラミッド同士の溝を $\{10\bar{1}1\}$ 面及び $\{10\bar{1}2\}$ 面のファセット成長によって埋める。溝が埋まり表面が平らになった後、成長条件を変えて c 面成長を優先的に引き起こすことにより、厚膜化させる。結晶上層部ではマクロな FGS は抑制され、 c GS のみで構成された改良型の GaN バルク結晶が得られる。以降、この種の GaN 結晶を FFC-GaN と呼称する。

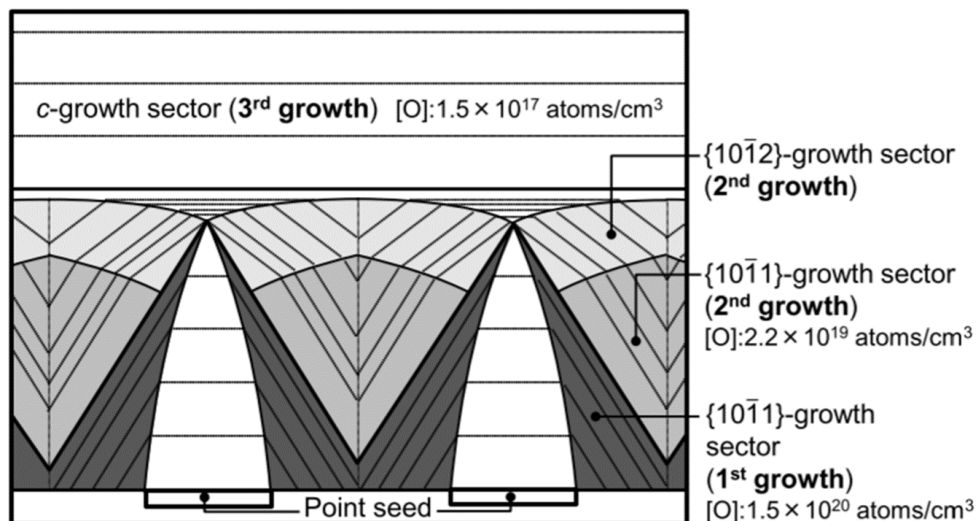


図 3-11 MPS 法と FFC 法を併用した Na フラックス法によって成長させた GaN バルク結晶の断面模式図⁴。

3.3.2. C-AFM による貫通転位の電気特性評価

図 3-12 は GaN 結晶表面の写真と SEM 像である。SEM 像中に①、②で示した領域に存在する多数のエッチピットの中から無作為に 6 つを選んだ。図 3-13(a)-(b)には 6 つのエッチピット (No.1~No.6) の SEM 像、直径、深さと、各エッチピット周辺の SEM 像を示している。No.1、No.2、No.5、No.6 は図 3-12 (b)の領域①に、No.3、No.4 は領域②に位置している。No.1~No.6 周辺のエッチピット密度はそれぞれ、 $1.1 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ 、 $2.2 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ 、 $6.7 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ 、 $9.4 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ 、 $1.1 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ 、 $1.8 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ であった。これら 6 つのピット内と、ピットが形成されていない近傍の領域に Flat な電極を蒸着した後、アニール処理を施し、局所電気測定を行った。

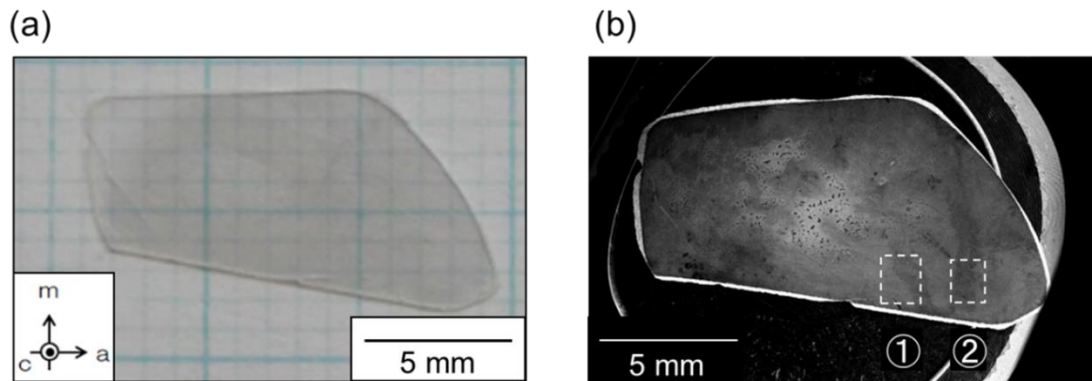


図 3-12 GaN 結晶表面の(a) 写真及び(b) SEM 像。

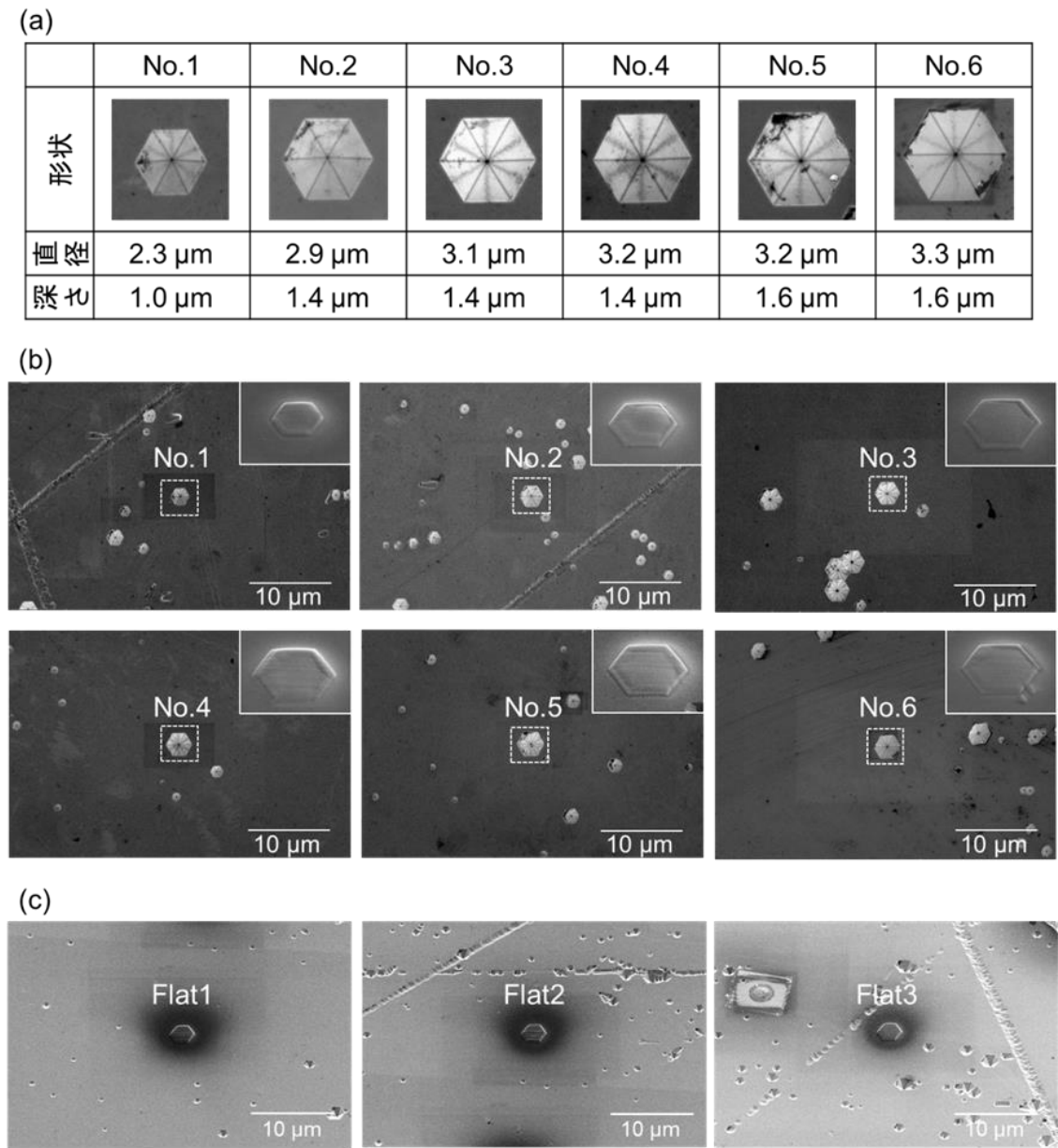
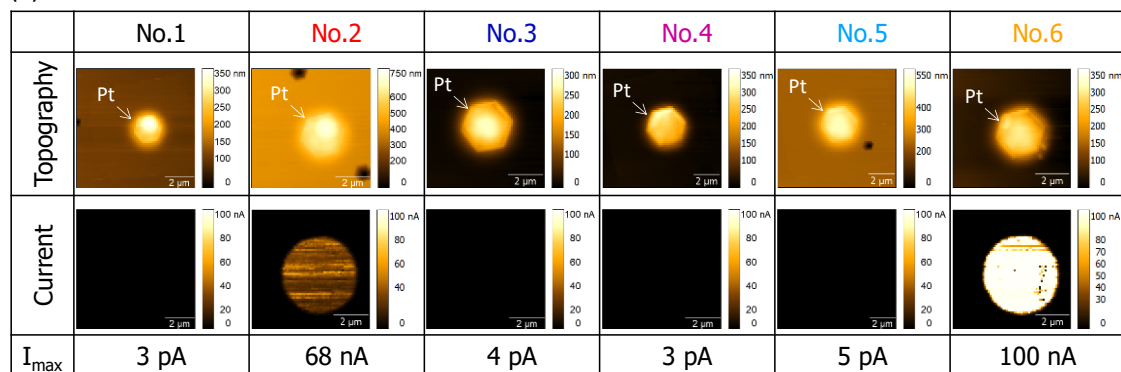


図 3-13 (a) エッチピットの SEM 像および形状、直径、深さと(b) その周辺の SEM 像。(b)の挿入図は Pt 電極埋込後の鳥瞰 SEM 像。(c) ピットのない表面に形成した Pt 電極周辺の鳥瞰 SEM 像。

第3章 結晶成長様式が貫通転位の電気特性に及ぼす影響

エッチピットに埋めた No.1~No.6 の電極と、ピットのない表面に蒸着した 3 つの Flat タイプの電極周辺で 5 V の電圧を印加しながら C-AFM 測定を行った結果を図 3-14 に示す。全ての表面形状像(上段)で六角形の Pt 電極を確認できるが、一方で、電流像(下段)の結果は電極によって明らかに異なっている。No.1、No.3、No.4、No.5、Flat1 では検出電流値は本 C-AFM 装置の検出限界以下であった。一方、No.2、No.6、Flat2、Flat3 では Pt 電極部分周辺でそれぞれ最大 68 nA、100 nA、139 pA、140 pA のリーク電流が検出された。ちなみに、リーク電流検出領域が六角形ではなく円形であるのは、FIB によって蒸着された Pt が意図せず円形に広がっているためである。

(a)



(b)

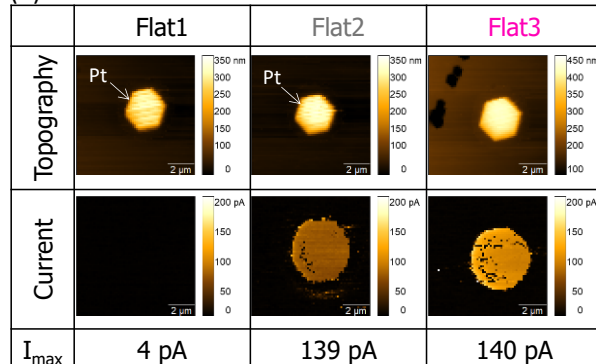


図 3-14 (a) ピット部電極と(b) ピット無し表面 Flat 電極部で得られた 5 V 印加時の形状像(上段)と電流像(下段)。それぞれの電流像における最大電流値を I_{\max} として示す。

続いて、各電極で I - V 測定を行った結果を図 3-15 に示す。本実験では FIB による Pt 電極蒸着後に、200℃、2 分の条件でアニール処理を行っていることから、非常に明

瞭な整流性が現れた。順方向バイアスにおいては、エッチピットサイズが大きくなるほど閾値電圧が高くなる傾向が見られる。一方、逆方向バイアスでは、No.2 と No.6、Flat2 と Flat3 でのみリーク電流が発生し、その他の電極では 10 V 以下では検出限界以下の電流値であった。これら C-AFM 測定の結果、ピット部電極とピット無し Flat 電極の両方で、逆方向リークが生じやすいものと生じにくいものが存在することが明らかとなった。

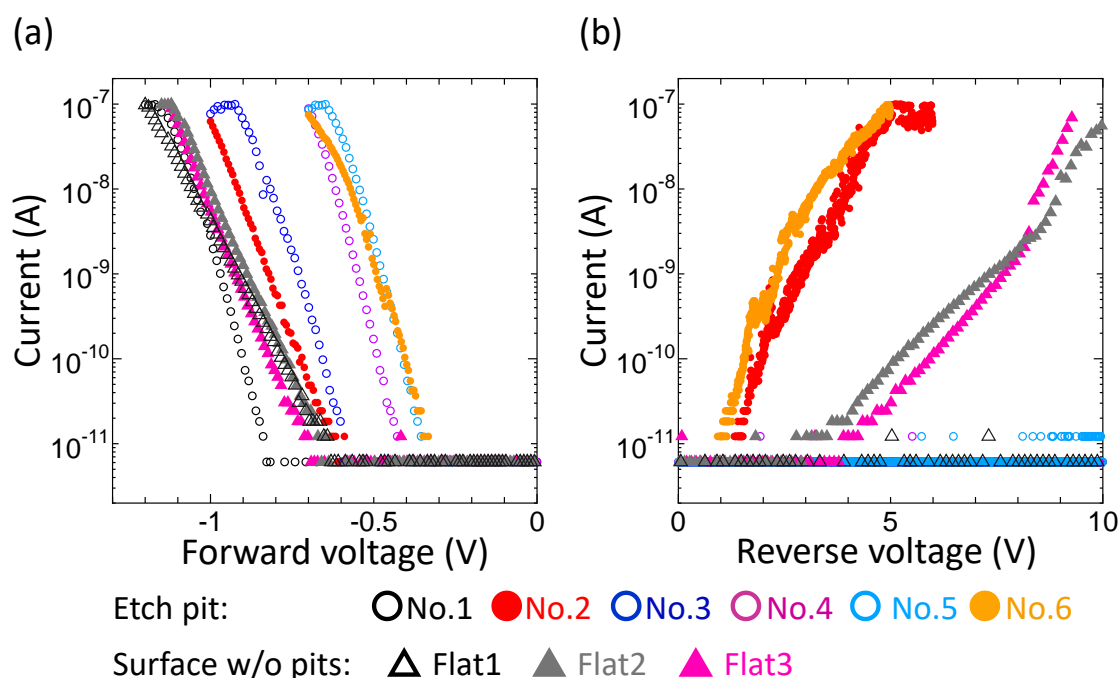


図 3-15 各電極部で得られた(a) 順、(b) 逆方向バイアス電圧印加時の I - V 特性。丸シンボルがエッチピット部、三角シンボルがピット無し結晶表面部の電極。

3.3.3. 貫通転位の TEM 観察

エッチピットによる電気特性の違いの起源を突き止めるため、各エッチピット直下の転位を含むように FIB 加工を施し、断面 TEM 観察を行った。図 3-16 は、Weak beam 条件下で観察された $g=0002$ 及び $g=11\bar{2}0$ の暗視野像である。No.2 以外の 5 つのエッチピットは 1 本の単独転位によって形成されている一方(図 3-16(a)、(c)-(f))、No.2 直下には 4 つの転位が束状にまとまって存在していた(図 3-16(b))。また、No.4 のピット直下の単独転位は、ピット先端部から約 $2\ \mu\text{m}$ 下の部分で二つの転位が合体して形成されており、さらにその下部領域では、複数の転位が反応している様子が観察された。

図 3-16(a)、(c)、(e)、(f)では、各単独転位のコントラストが $g=0002$ と $g=11\bar{2}0$ の両方で見られることから、これら No.1、No.3、No.5、No.6 の転位のバーガースベクトルは a 及び c 成分の両方を有する混合転位に分類できる。(ただし、消滅測に基づく判別では、バーガースベクトルの絶対値までは決定できないことに注意されたい) 図 3-16(d)の No.4 においては、ピット直下の転位部については $g=0002$ と $g=11\bar{2}0$ 共に視認できるので、同様に a 及び c 成分を含む混合転位である。ピット先端から約 $2\ \mu\text{m}$ 下の合体部以下の 2 つの転位については、稲妻状に伝播する転位は $g=11\bar{2}0$ のみ、 c 方向にまっすぐ伝播する転位は $g=0002$ と $g=11\bar{2}0$ の両方で見られることから、それぞれ a 成分のみを有する刃状転位*、 a と c 成分の両方を含む混合転位と判定できる。さらにその下領域で複雑に反応する複数の転位のバーガースベクトルについては図 3-16(d)に示す通りである。4 つの束状転位が存在していた No.2 については、4 つの内 1 つの転位のみが $g=0002$ と $g=11\bar{2}0$ の両方で見られ、他の 3 つの転位は $g=11\bar{2}0$ でのみ見られたことから、前者の 1 本が混合転位、残りの 3 本が刃状転位である。

上記の転位構造とリーク特性との関連性に着目する。顕著なリークが検出された No.2 と No.6 の転位は、それぞれ束状転位、 a 及び c 成分を持つバーガースベクトルを有する単独混合転位であった。他方、10 V 以下でリークが検出されなかった No.1、No.3、No.4、No.5 は、いずれも a 及び c 成分のバーガースベクトルを有する単独混合転位であった。これらリーク無し転位の種類は、リークした No.6 と同様の混合転位であり、特に、No.3 と No.5 については、 c 方向にまっすぐ伝播する形態的特徴も No.6 と酷似している。これらの結果から、逆方向リーク特性の違いは、転位の種類や伝播形態では明確に説明できず、他の因子が支配的にリーク特性に寄与していることが示唆された。

*転位の伝播方向が c 方向から傾いているので、厳密には混合転位に分類されるが、多くの先行研究に倣い、本論文でも、以下、特に記載のない限り、 a 成分(c 成分)のみのバーガースベクトルを有し、概ね c 方向に貫通している転位の場合、刃状(らせん)転位に分類することとする。

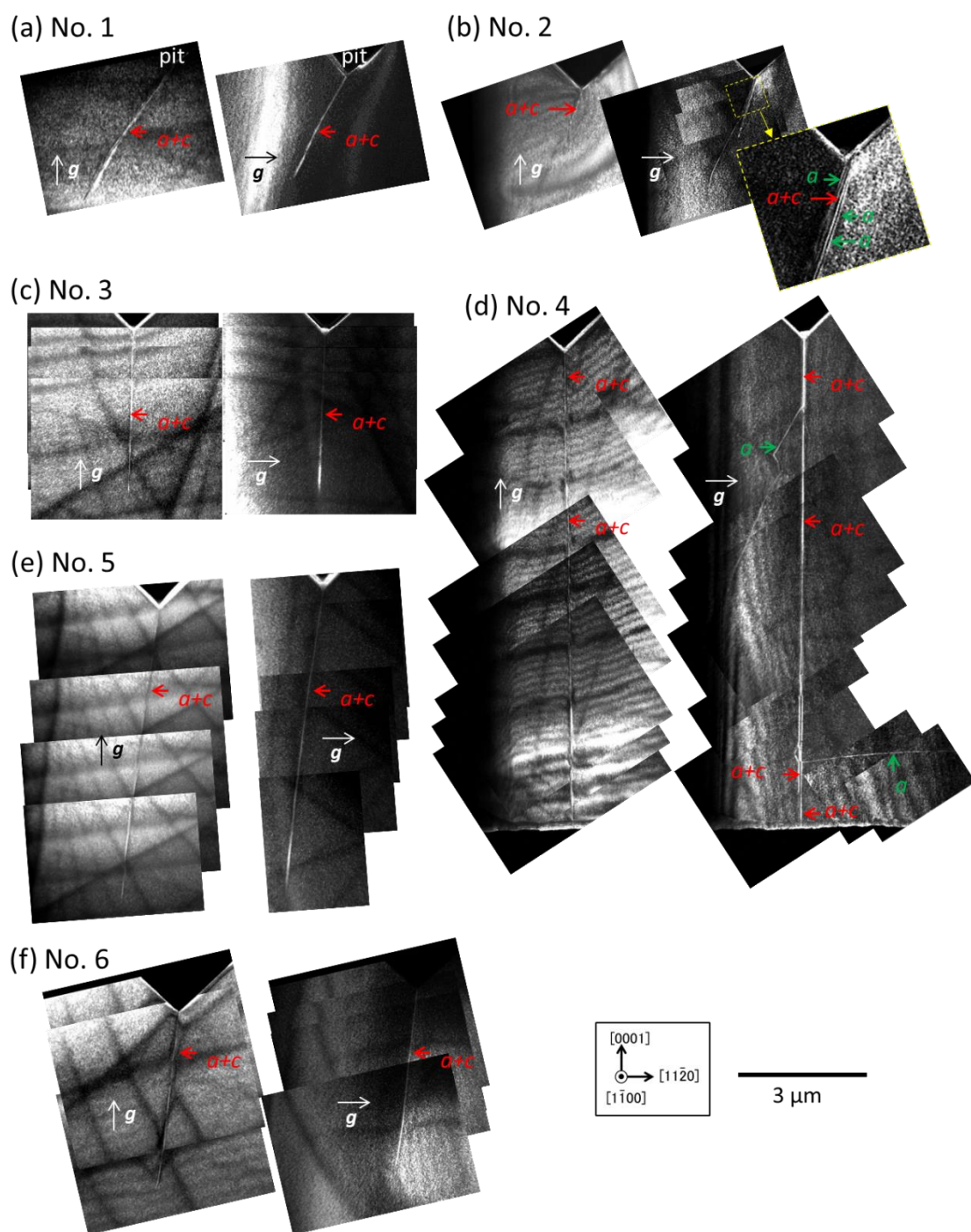


図 3-16 (a) No.1、(b) No.2、(c) No.3、(d) No.4、(e) No.5、(f) No.6 のエッチピット直下における $g=0002$ 及び $g=11\bar{2}0$ の断面暗視野 TEM 像。

3.3.4. MPPL による貫通転位周辺結晶状態の解析

リーク電流の起源を明らかにするために、続いて各貫通転位の周囲で MPPL 観察を行った。以下の MPPL 観察像は、FIB による TEM 薄片試料作製前に得られたものである。図 3-17 は No.1、No.2、No.3、No.5、No.6 のピット周辺で得られた結晶表面近傍の MPPL 像である。各像に多数見られる黒点は、転位箇所形成されたエッチピットである。図 3-17 (a)には Flat 電極の位置も赤丸で示している。図 3-17 (a)、(c)、(d)において、明瞭な帯状の直線／波型のコントラスト領域が観察された。これらの領域は SEM では明確に観測されず、MPPL によって初めてその存在が判明した。

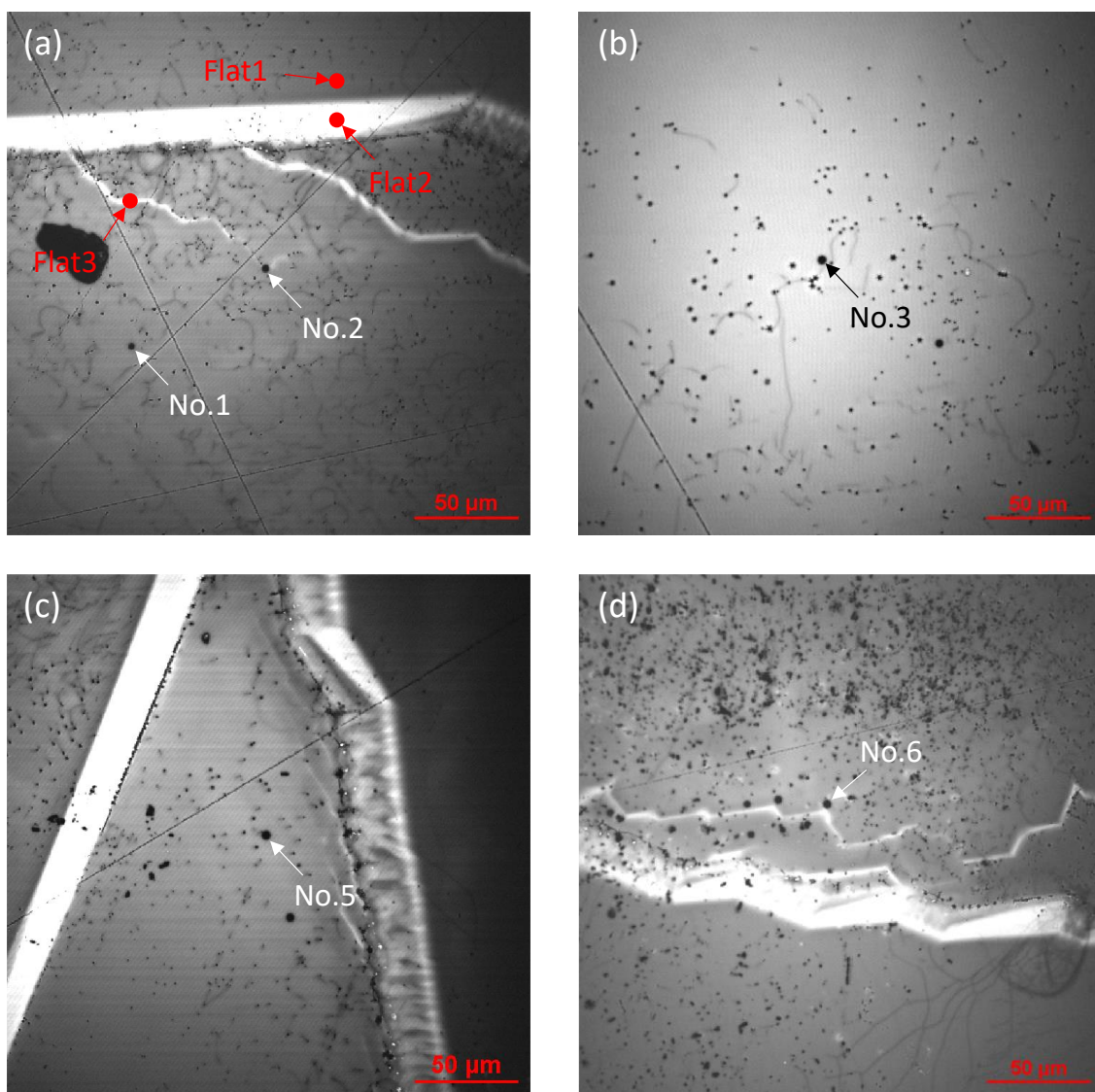


図 3-17 (a) No.1 と No.2、(b) No.3、(c) No.5、(d) No.6 周辺の表層 MPPL 像。

第3章 結晶成長様式が貫通転位の電気特性に及ぼす影響

これらの明コントラスト領域は、主に以下の 2 つの根拠から、酸素不純物濃度が局部的に高濃度に取り込まれた、 μm スケールの FGS ($\mu\text{-FGS}$) であると考えられる。まず、MPPL 結果より考えられる $\mu\text{-FGS}$ の描像を示したい。図 3-18 は $\mu\text{-FGS}$ を含む FFC-GaN 結晶の断面模式図である。結晶の大部分は $c\text{GS}$ 方向に成長する $c\text{GS}$ で構成されている。しかしながら、その過程で、局所的かつ突発的に微小なファセット面が生じ、そのままファセット面を露呈させたまま厚膜化が進行すると、この微小ファセット成長領域、すなわち $\mu\text{-FGS}$ は、断面から見た場合、結晶大部分の $c\text{GS}$ 中に筋状形態で含まれていることになる。本 GaN サンプルの場合、表面研磨が施されているため、平坦な c 面表面に露呈した $\mu\text{-FGS}$ が図 3-17 のような MPPL コントラストとして検出されたと考えられる。

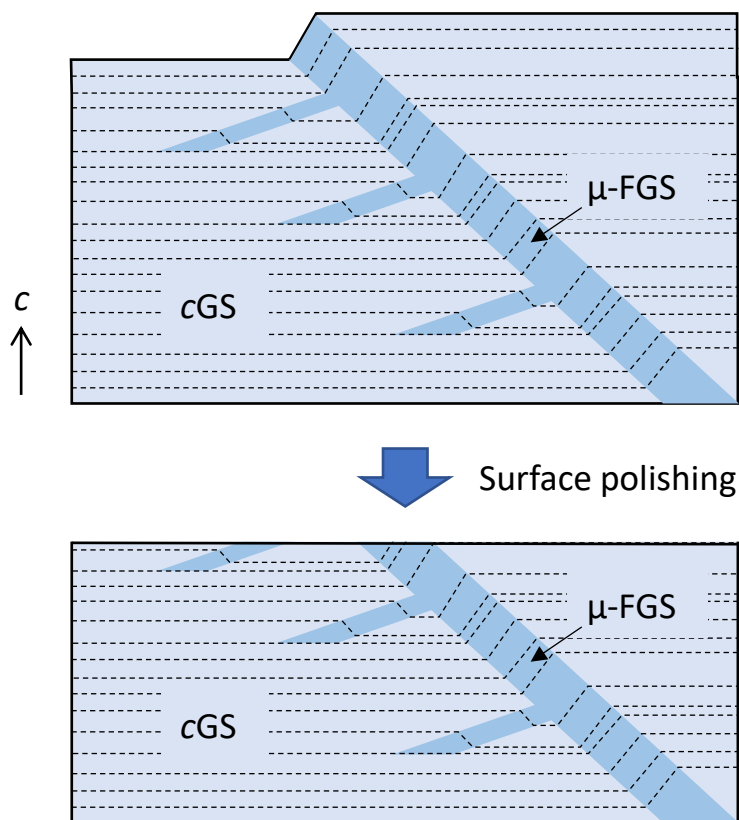


図 3-18 $\mu\text{-FGS}$ を含む FFC-GaN 結晶の断面模式図。 $c\text{GS}$ 中で生じた $\mu\text{-FGS}$ が表面研磨によって平坦な表面に露呈している様子を表す。

改めて、MPPL で見られたこの特異な領域が、上で述べた $\mu\text{-FGS}$ である根拠を示したい。1 つ目はその形態にある。図 3-19 は図 3-17(d) 中に見られる明コントラスト領域を、表面から深さ $46.7\ \mu\text{m}$ まで $5.8\ \mu\text{m}$ 刻みで観察した MPPL 像である。結晶内部から

第3章 結晶成長様式が貫通転位の電気特性に及ぼす影響

結晶表面に向かうにつれて、ジグザグ形態を有する太い帯状のコントラスト領域は上方から下方に進行していることが分かる。また、表面で見られる細い筋状コントラスト領域のように、ある深さで突発的に発生するタイプの明コントラスト領域も観察された。これらの領域は規則的なジグザグ形態を有しており、筋状コントラストのジグザグ角度は108度と、その方位は概ね m 方向と合致していた。つまり、これらの領域は結晶成長に伴って局所的に生じた特異な結晶成長領域である可能性が高い。過去には、ポイントシード加工の施されていないサファイヤテンプレート上に GaN を Na フラックス成長させた際、mm 級とかなりスケールが大きいものの、今回見られたジグザグ形態と非常によく似たファセット面成長フロント(図 3-20)¹⁹が観測されている。故に、本結晶における μm スケールの明コントラスト領域も、微小なファセット面を出しながら成長した結晶領域である可能性が高いと言える。

もう一つの根拠は、この領域の MPPL 強度に関連する。先行研究では、酸素不純物に関連した PL エミッションピークは約 3.47 eV に位置し、酸素不純物濃度が高い程 PL 強度が増大することが報告されている^{20,21}。本 MPPL 装置の検出領域は 3.19-3.51 eV であり、酸素不純物由来のピーク値を含んでいる。一方、Na フラックス GaN の FGS に取り込まれる酸素不純物濃度は BR では約 $1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ と、cGS の酸素不純物濃度約 $1.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ に比べて2桁高いことが報告されている⁵。以上のことより、本測定で見られたジグザグ領域は cGS 中に局在する μm スケールの FGS、すなわち $\mu\text{-FGS}$ であると考えられる。より厳密には、結晶成長後の研磨加工によって表面に露呈した $\mu\text{-FGS}$ が MPPL によって観測されたと考えられる。これらの結果より、当初は cGS のみで構成されていると思われていた FFC-GaN 結晶に、実際には、酸素不純物が高濃度に取り込まれた特異的な $\mu\text{-FGS}$ が局在すること、そして、この微小な特異領域がショットキーコンタクトの電気特性に多大な影響を及ぼし得ることを示すことが出来た。 $\mu\text{-FGS}$ におけるリーク電流の増大は、高濃度酸素不純物ドナーによって Pt/GaN 界面の空乏層幅が減少したことが主原因と考えられる。

また、図 3-15(b)で、 $\mu\text{-FGS}$ 上のピット部電極(No.2 及び No.6)と Flat 電極(Flat2 及び Flat3)の逆方向 $I\text{-}V$ カーブ形状が、かなり異なることが分かる。このことから、 $\mu\text{-FGS}$ の影響に重畳して、貫通転位自体もリーク電流特性に影響している可能性が示唆される。次項以降では、転位構造自体の寄与について調査を行った。

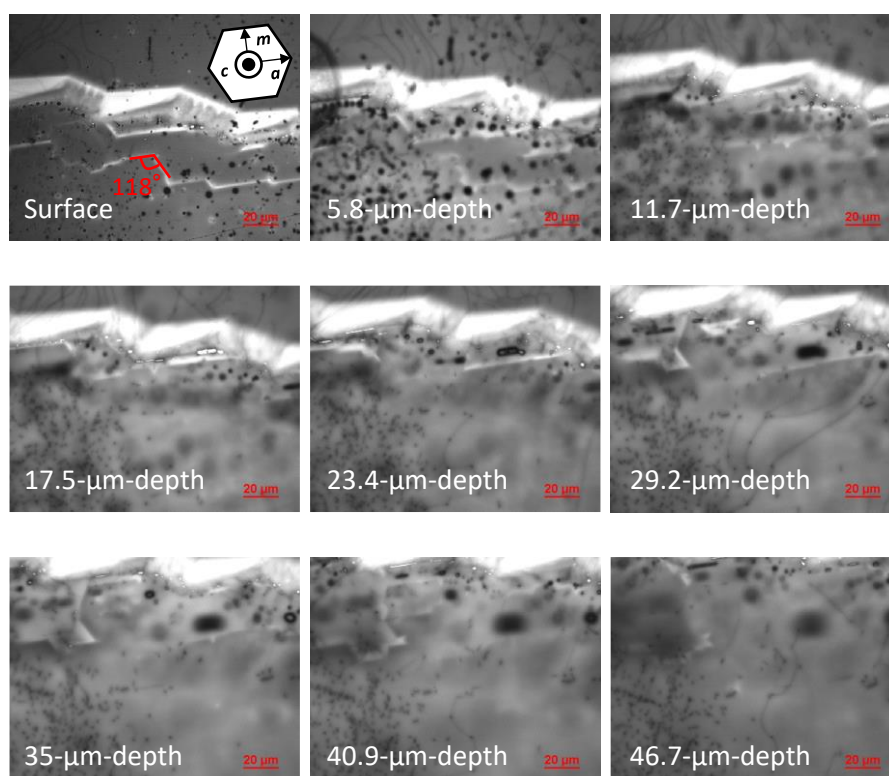


図 3-19 明コントラスト領域の深さ方向に伴う変化。

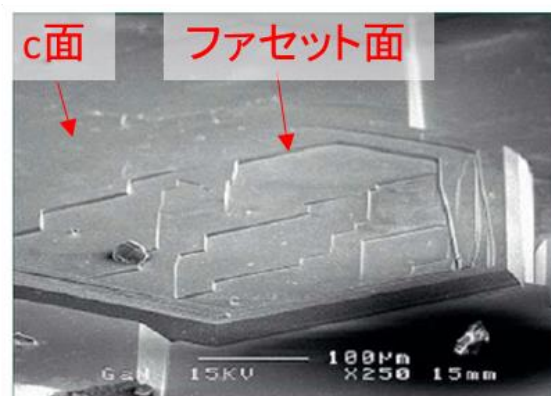


図 3-20 Na フラックス成長時の c 面及びファセット面¹⁹。参考文献[19]を一部改変して掲載。

3.3.5. μ -FGS における貫通転位のリーク特性

図 3-21 に示すように、MPPL 観察によっていくつかの μ -FGS (μ -FGS1、 μ -FGS2、 μ -FGS3、 μ -FGS4a、 μ -FGS4b) を特定し、各 μ -FGS 上で、エッチピット内部及びピットのな

第3章 結晶成長様式が貫通転位の電気特性に及ぼす影響

い表面にPt電極(エッチピット部:EP1、EP2a、EP2b、EP3、EP4a-1、EP4a-2、ピット無表面:Flat2、Flat3、Flat4a、Flat4b)を作製した。(EP1とEP2aは前節のピット部電極No.6とNo.2である。)電極作製前のエッチピットと、作製したFlatタイプ電極のSEM像を図3-22に示す。アニール処理を施した後、C-AFM測定により各電極における電気的特性を取得した。

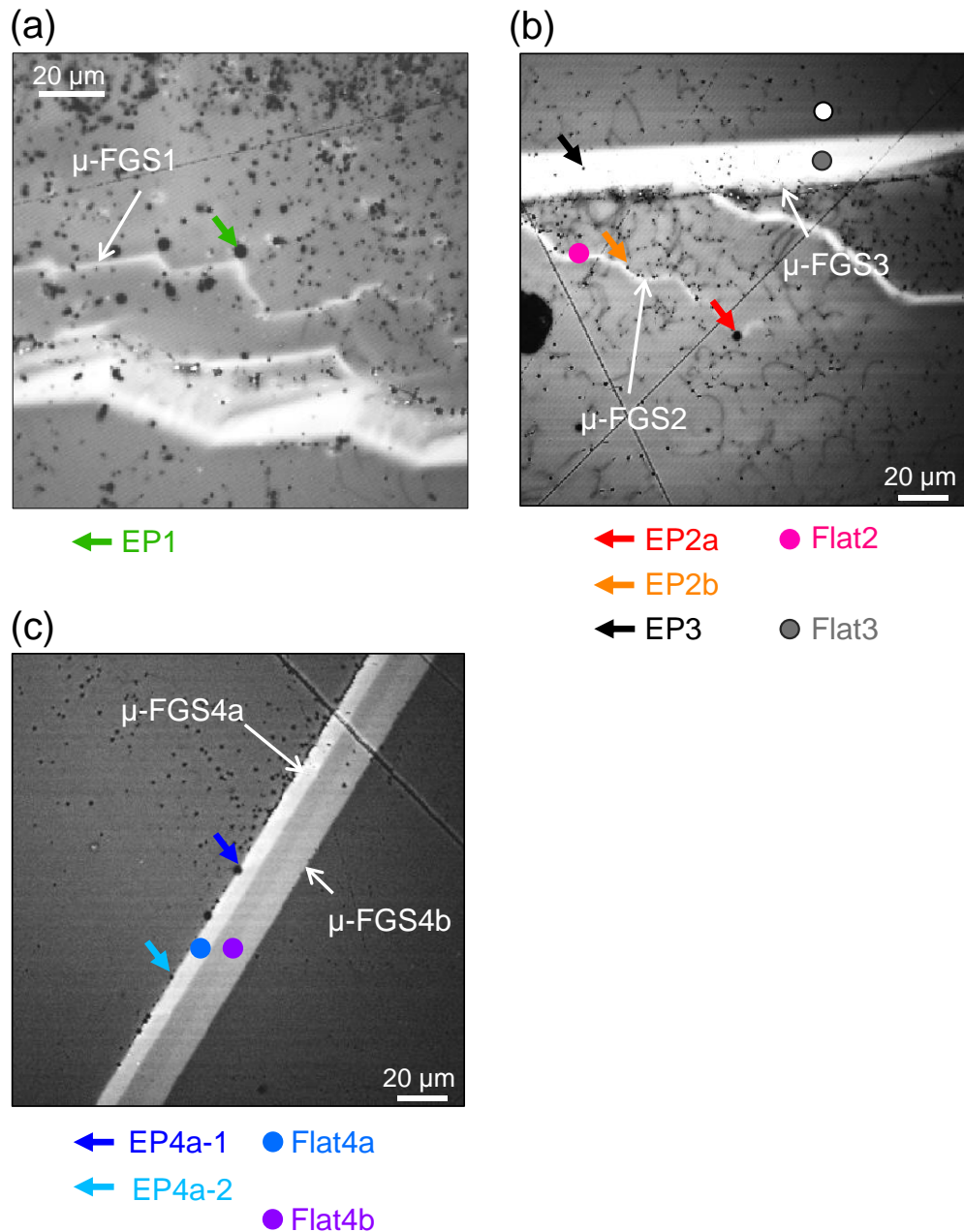


図 3-21 試料表面近傍の MPPL 像と電極位置。(a) μ -FGS1、(b) μ -FGS2、 μ -FGS3、(c) μ -FGS4a、 μ -FGS4b。各電極名称に含まれる英数字はそれらが作製されている μ -FGS 名称と一致している。

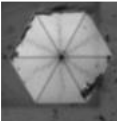
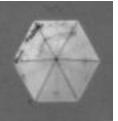

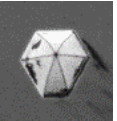
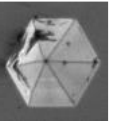
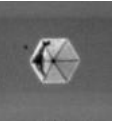
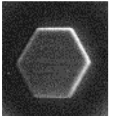
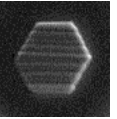
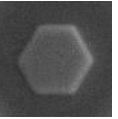
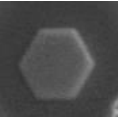
	μ -FGS1	μ -FGS2		μ -FGS3	μ -FGS4a		μ -FGS4b
	EP1	EP2a	EP2b	EP3	EP4a-1	EP4a-2	
EP							
		Flat2		Flat3	Flat4a		Flat4b
Flat電極							

図 3-22 着目したエッチピットと Flat 電極の SEM 像。

各電極部で得られた I - V 特性を図 3-23 に示す。順・逆方向共に、電極間での I - V 特性がかなり異なることが分かる。図 3-24 には、図 3-23 から μ -FGS2、 μ -FGS3、 μ -FGS4a、 μ -FGS 4b 上に作製した Flat 電極のみの逆方向 I - V 特性を抜粋して示している。Flat 電極の特性もまた、 μ -FGS に依って大きく異なり、Flat4a が最も大きなリーク電流となっている。5 V 印加時のリーク電流値を比較すると、Flat4a は Flat2、Flat3 よりも約 3 桁、隣り合う μ -FGS4b 上の Flat4b に対しては約 4 桁大きい。この結果は空乏層幅の違いに起因すると考えられ、 μ -FGS によって酸素不純物濃度が異なっている可能性を示唆している。GaN 結晶成長過程における酸素不純物取り込み量は成長フロントの面方位に依存すると言われ²²、Na フラックス GaN においても、 $\{10\bar{1}1\}$ ファセット面の酸素不純物濃度は $\{10\bar{1}2\}$ ファセット面や c 面よりも 2 桁高いことが報告されている⁵。また、顕著な酸素不純物濃度の違いはルミネッセンス発光強度の違いをもたらす⁴。実際、図 3-21(c)の μ -FGS4a と μ -FGS 4b は隣り合う一続きの μ -FGS であるにも拘らず、 μ -FGS4a のほうが高い MPPL 強度を示しており、これは両ファセット面がそれぞれ異なる面方位を出しながら成長していたことを示している。つまり、Flat 電極の逆方向リーク特性のばらつきは、酸素不純物濃度の μ -FGS 依存性を示していると考えられる。

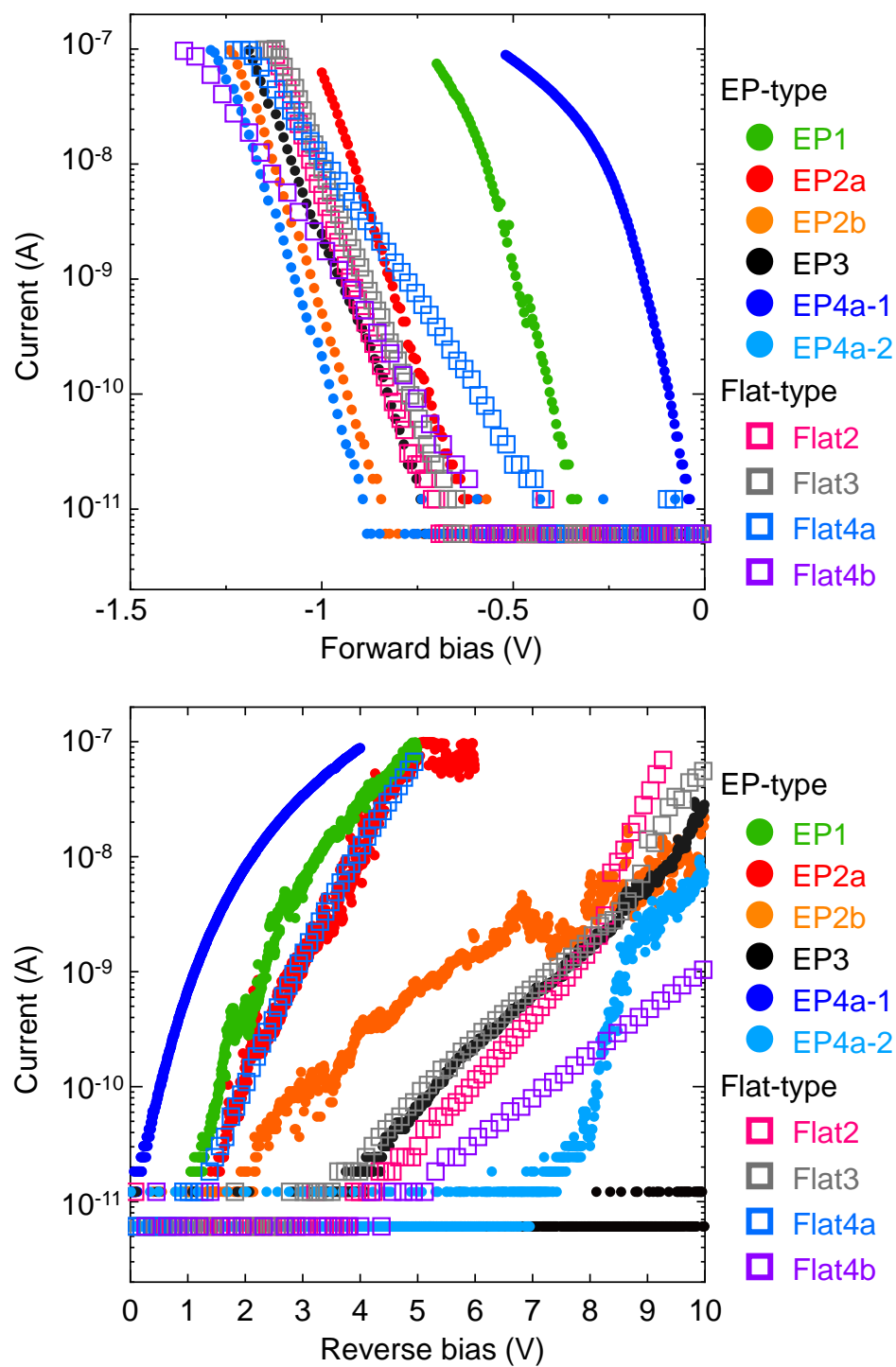


図 3-23 全ての電極で得られた順方向(上)及び逆方向(下) I - V 特性。

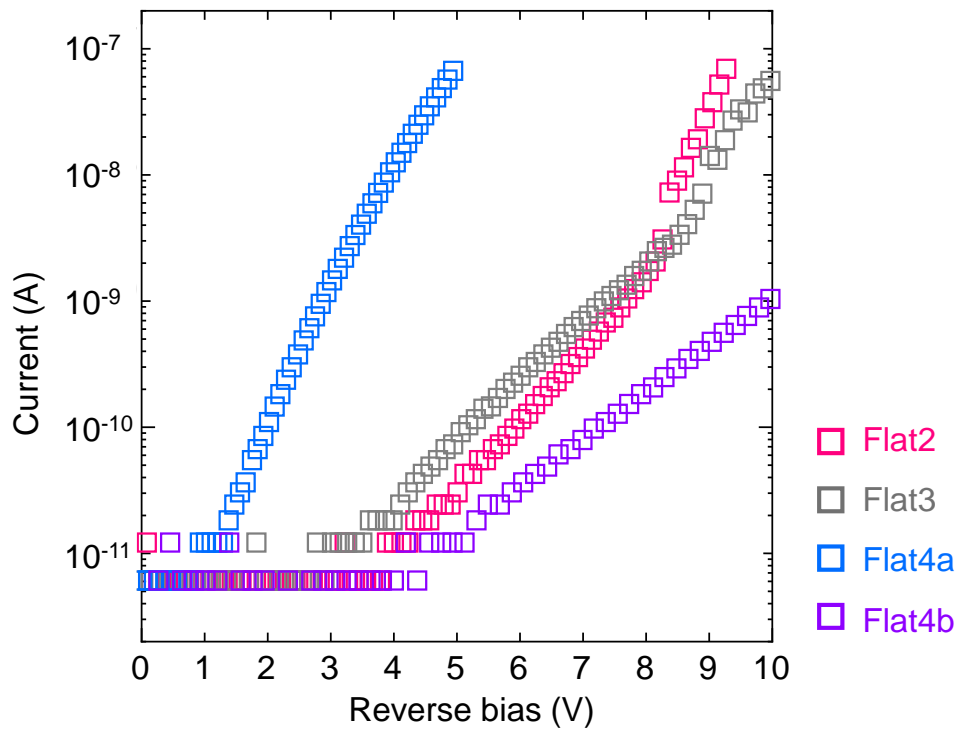


図 3-24 ピット無し表面に形成した Flat 電極における逆方向 I - V 特性。

3.3.6. μ -FGS における貫通転位の構造解析

各ピット直下における転位の TEM 観察結果を図 3-25 に示す。EP4a-1 の $g=11\bar{2}0$ のみ明視野像で、それ以外は暗視野像である。各転位のバーガースベクトル成分は $g \cdot b$ 解析のコントラスト消滅則により同定した。観察結果より、EP1、EP3、EP4a-2 直下の転位は 1 本の単独転位であり、EP1、EP3 では a 成分及び c 成分、EP4a-2 では a 成分のみを有することが分かった。一方で EP2a、EP2b、EP4a-1 の直下には、 a 成分と a 成分及び c 成分両方を有する複数の転位から成る束状転位が存在していた。EP2a と EP4a-1 直下には 4 本から成る束状転位、特に EP4a-1 については、側面から伸びる 2 本の a 転位も確認された。EP2b 直下の 2 本の転位は、TEM 観察においてはエッチピット先端に貫通している様子を捉えられなかったが、MPPL 観察により、これらの 2 つの転位がエッチピット先端に貫通していることを確認した。

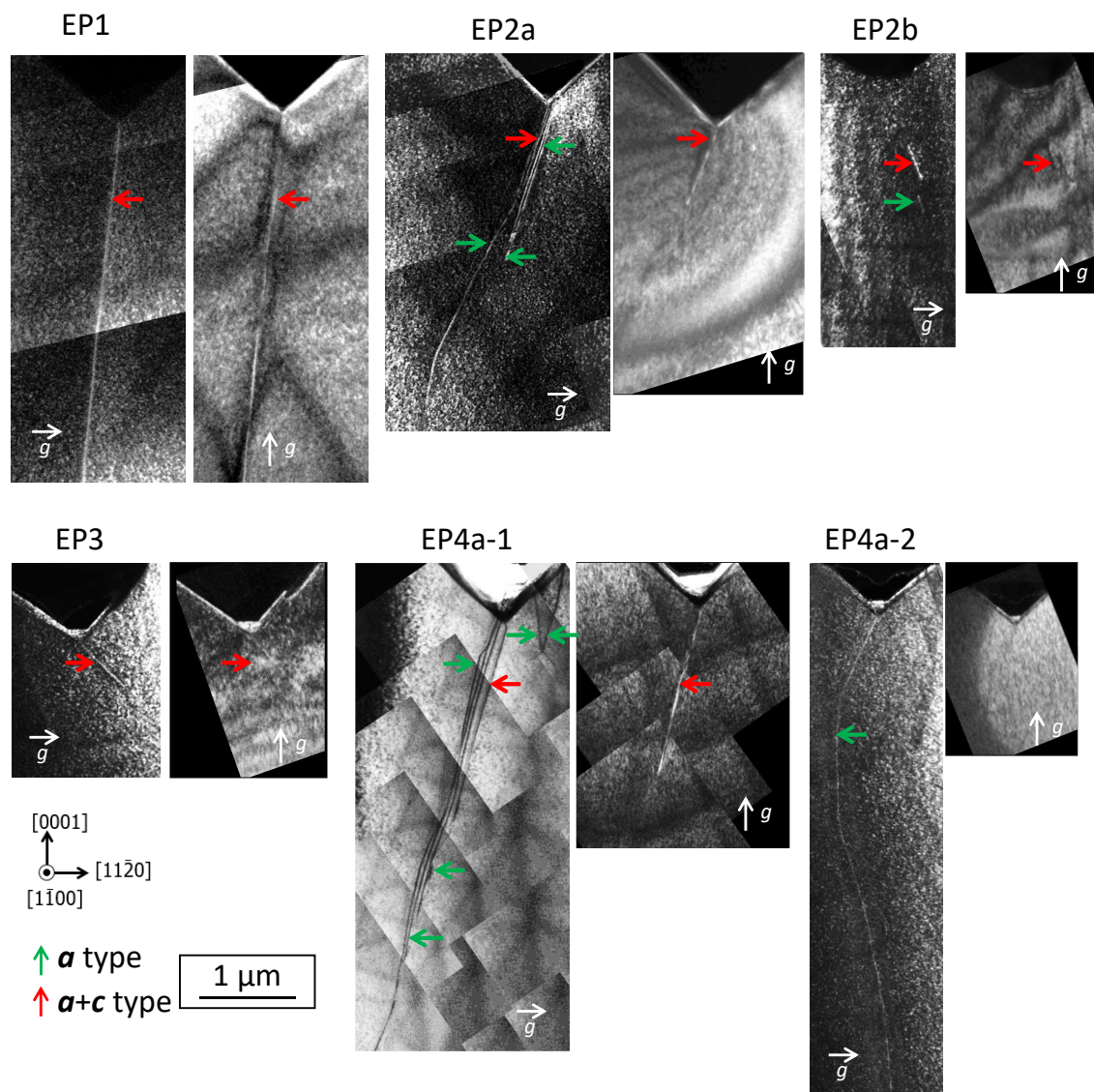


図 3-25 エッチピット直下における転位の断面 TEM 像。エッチピット直下における転位の断面 TEM 像。各ピット左図が $g=11\bar{2}0$ 、右図が $g=0002$ に対応。EP4a-1 の $g=11\bar{2}0$ のみ明視野像でそれ以外は暗視野像。

3.3.7. 転位構造とリーク特性の関連性

酸素不純物濃度に μ -FGS 依存性が見られたため、同一の μ -FGS に形成したピット部電極と Flat 電極の結果に基づき、転位構造の影響を考察する。図 3-26 は、図 3-23 の逆方向 I - V 特性を μ -FGS 毎に示した結果である。 μ -FGS2 上の EP2a と EP2b (図 3-26 (a))、 μ -FGS4a 上の EP4a-1 (図 3-26 (c)) は、それぞれの領域の Flat タイプ電極 Flat2 と Flat4a の逆方向 I - V カーブと異なっている。これらのエッチピット直下の転位は全て束状転位であったことから、高濃度酸素不純物による空乏層幅の減少効果に重畳して、束状という特異構造自体もリーク特性に寄与している可能性が高い。これについては次項で考察する。一方で、EP4a-2 での逆方向リーク電流は、測定を行った全てのピット部電極の中で最小値を示し (図 3-23)、その値は Flat4a よりも小さい (図 3-26 (c))。これはすなわち、EP4a-2 と EP4a-1 直下の転位は同じ μ -FGS4a に存在するにも関わらず、リーク電流特性に及ぼす効果が大きく異なっていることを示唆している。図 3-25 に示す TEM 解結果から、EP4a-2 直下の転位は a 成分を有する単独刃状転位であった。先行研究において、刃状成分を有する貫通転位表面では、周囲よりも静電ポテンシャルが増大することが報告されている²³。これらの現象は、転位が作るアクセプターライクの準位に電子が捕獲されて転位がマイナスチャージすることにより、その転位周囲で局所的に仕事関数が増大 (フェルミレベルが価電子帯側にシフト) した結果であると解釈されている^{24,25}。これを踏まえると、マイナスチャージした転位部分のショットキー障壁高さは周囲よりも高くなることが予想され、実際にこのモデルを TE の理論式に組み込むことにより、転位密度が異なる GaN 結晶上に作製した実 SBD の電気特性がうまく説明されることが報告されている²⁶。EP4a-2 の転位部ショットキー接触においても、直下の刃状転位に同様の帯電現象が生じた結果、他の転位よりも高い障壁高さが形成され、リーク電流が抑制された可能性が挙げられる。

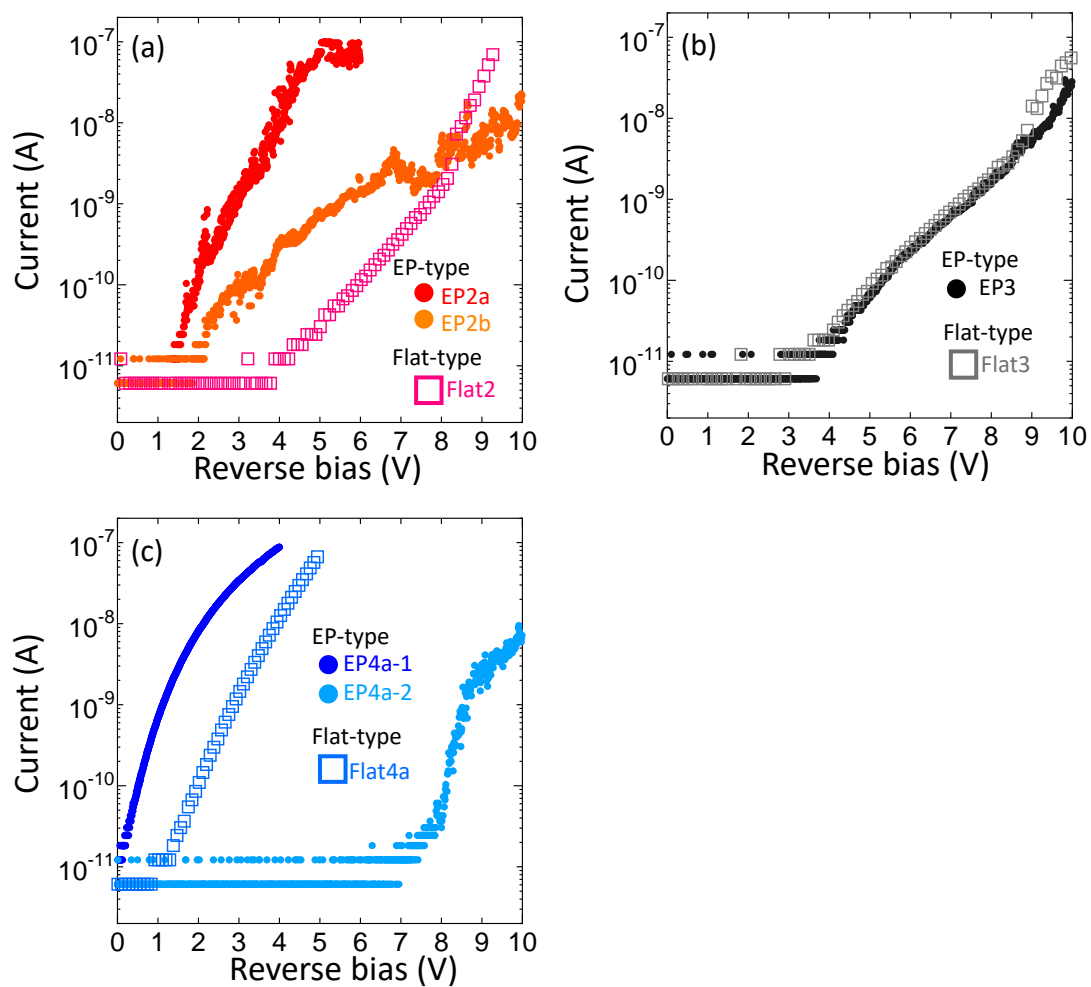


図 3-26 (a) μ -FGS2、(b) μ -FGS3、(c) μ -FGS4a における各電極部での逆方向 I - V 特性。

3.3.8. 転位のバーガースベクトルとリーク特性の関連性

図 3-25 の TEM 観察結果より、EP1 と EP3 直下には共に $a+c$ 成分を有する単独混合転位が存在するが、図 3-23 に示されたこれらの逆方向 $I-V$ 特性は大きく異なる。図 3-26(b)より、EP3 は同じ μ -FGS3 上の Flat3 電極と非常に似た $I-V$ 特性を示していることから、EP3 直下の混合転位がリーク電流特性に及ぼす効果は比較的小さいと考えられる。一方、図 3-23 より、EP1 は束状転位の EP2a に匹敵する程大きなリーク電流を示し、逆方向 $I-V$ カーブ形状も明らかに異なる。また、共に単独混合転位を有する。この結果より、リーク電流特性は転位の数や種類だけでは決まらないことが示唆される。

リーク電流特性に影響を及ぼし得る他の因子として、少なくとも以下の 2 つが考えられる。一つは、バーガースベクトルの成分である。 $g \cdot b$ 解析の結果、EP1 と EP3 はともに a 及び c 成分の両方を有する混合転位と決定されたが、バーガースベクトルの絶対値が同じであるとは限らない。そこで、定量的なバーガースベクトルを決定するために、転位の LACBED 解析を試みた。図 3-27(a)は EP1 における貫通転位の LACBED 像を示している。 $g=000\bar{8}$ 、 $g=11\bar{2}\bar{6}$ 、 $g=10\bar{1}9$ の HOLZ 線と転位線の交差点に形成された節数 n は、それぞれ、8、8、-11 であった。バーガースベクトルを $b=[uvwz]$ とした場合、 $g \cdot b=n$ より下記の連立方程式が構築できる。

$$\begin{aligned} 0u + 0v + 0(\overline{u+v}) + 8w &= -8, \\ 1u + 1v - 2(\overline{u+v}) - 6w &= 8, \\ 1u + 0v - 1(\overline{u+v}) + 9w &= -11. \end{aligned} \tag{3.4}$$

この連立方程式を解くことにより、この転位のバーガースベクトルは $b=1/3[4\bar{2}\bar{2}3]=2a+1c$ と決定された。その他、LACBED によってバーガースベクトルを同定できたものについて、LACBED パターンを図 3-27(b)及び(c)に示している。この結果より EP4a-2 の単独刃状転位は $b=1a$ 、 c GS 上の No.3 の混合転位は $b=1a+1c$ と決定された。EP3 を含む他の転位については、明瞭な節が形成されず n をカウントできなかったため、バーガースベクトルを同定できなかった。EP1 の $b=2a+1c$ は GaN で報告されているバーガースベクトルの中では異質的に大きい。この大きなバーガースベクトルを反映するように EP1 のピットサイズは全てのエッチピットの中でも最大級に大きい(図 3-22)。一方、EP3 の混合転位については LACBED 解析できなかったが、ピットサイズがやや小さいため、 $b=2a+1c$ よりも小さい $b=1a+1c$ であると推測される。これらバーガースベクトルの違いが、EP1 と EP3 のリーク特性の違いをもたらした可能性がある。

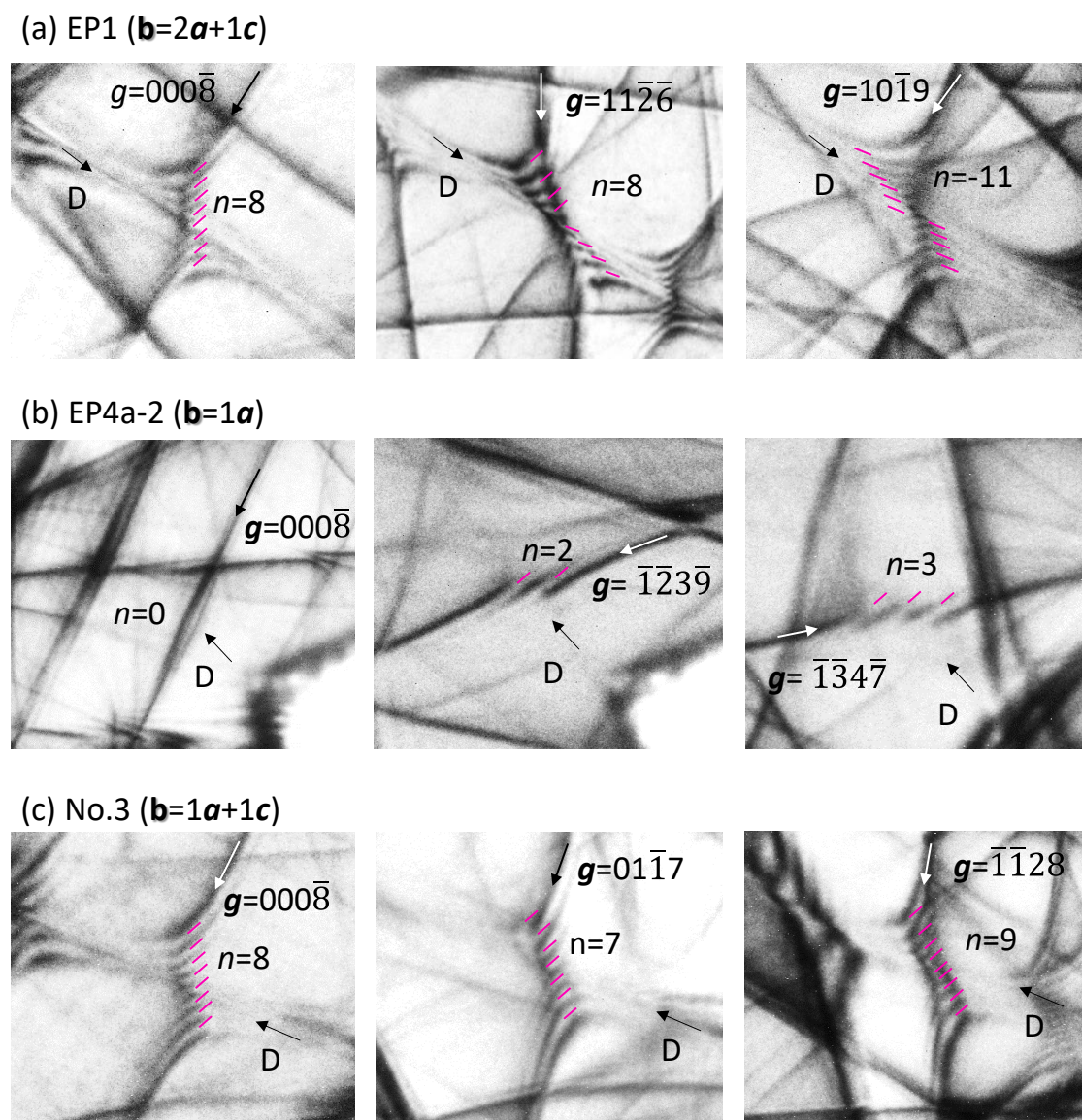


図 3-27 (a) EP1、(b) EP4a-2、(c) No.3 直下貫通転位の LACBED パターン。各図中には、節数 n 、HOLZ 線の回折ベクトル \mathbf{g} 、転位('D')を示している。

リーク特性に影響を及ぼし得る 2 つ目の因子として、転位周辺における酸素不純物を含む点欠陥集積が挙げられる。転位はその周辺に歪場を形成するため、転位部では成長過程で酸素不純物等の点欠陥が捕獲され、酸素原子と Ga 空孔との複合体が形成されやすい²⁷⁻²⁹。実際、転位芯に酸素不純物が集積することは、古くから TEM で確認されており^{16,17}、近年では、エッチピットサイズの大きい転位周囲に選択的に酸素不純物が集積することも報告されている¹⁸。EP1 直下の $\mathbf{b}=2\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 転位周囲には、その大きなバーガースベクトルに起因して EP3 直下の $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ 転位よりも大きな歪み場が形

成され、転位周辺に過量の酸素不純物やGa空孔、及びそれらの複合体が集積し、大きなリーク電流に寄与した可能性がある。この点欠陥集積に関する仮説は、以下に示すように、図 3-23 の電気測定結果からも裏付けられる。図 3-23 の逆方向 I - V 特性において、 μ -FGS2 上 EP2a の束状転位部で得られた I - V 特性が、異なる μ -FGS4a 上の Flat4a の I - V 特性とほぼ一致している。すなわち、図 3-24 の結果から μ -FGS2 は μ -FGS4a よりも低酸素不純物濃度であると考えられるにも拘らず、 μ -FGS2 の束状転位では、高酸素不純物濃度領域上でかつ電極下に転位が無い Flat4a と非常に似たリーク特性を示していた。これは、複数の転位が連なる束状転位周囲に大きな歪み場が形成され、そこに酸素不純物等が高濃度集積したことによって、リーク電流量が Flat4a と同等までに増大したと解釈でき、上記の仮説と整合する。

歪場に起因した転位への点欠陥集積と電気特性の関連性を更に検証するため、エッチピットサイズに着目した。図 3-28 には、 μ -FGS の全エッチピット部電極でリーク電流が検出された 5 V 印加時の電流値に着目し、それをエッチピット直径に対してプロットした結果を示している。図には c GS のエッチピット電極における結果も示している。また、各ピット直下の転位種、束本数及びバーガースベクトルも記している。(2.1) 式に示すように、一般的に、エッチピットサイズは転位の弾性歪が大きい程大きくなる。本結果においても、単独転位間ではバーガースベクトルが大きい程、また、束状転位間では本数が多い程ピットサイズが大きく、この原理を反映していると言える。 μ -FGS 上のピット部電極に注目すると、リーク電流値はピット直径が大きくなるほど大きくなる傾向が見られる。対照的に、 c GS 上の電極ではエッチピットサイズへの依存性は見られず、大きな直径を有するエッチピットにおいても本測定条件でリーク電流値は検出限界以下に抑えられていた。この結果より、 μ -FGS 領域では、転位による歪み場が大きい程リーク電流量が増加することが強く示唆された。すなわち、 μ -FGS においては、バーガースベクトルが特異的に大きい転位や、複数の転位が連なった束状転位ほど大きな歪場を形成し、これによって酸素不純物等の点欠陥が転位芯に高濃度集積し、Pt/GaN ショットキー界面で空乏層が一層薄くなったことにより電子のトンネリングが増長され、その結果、より大きなリーク電流が発生したと考えられる。

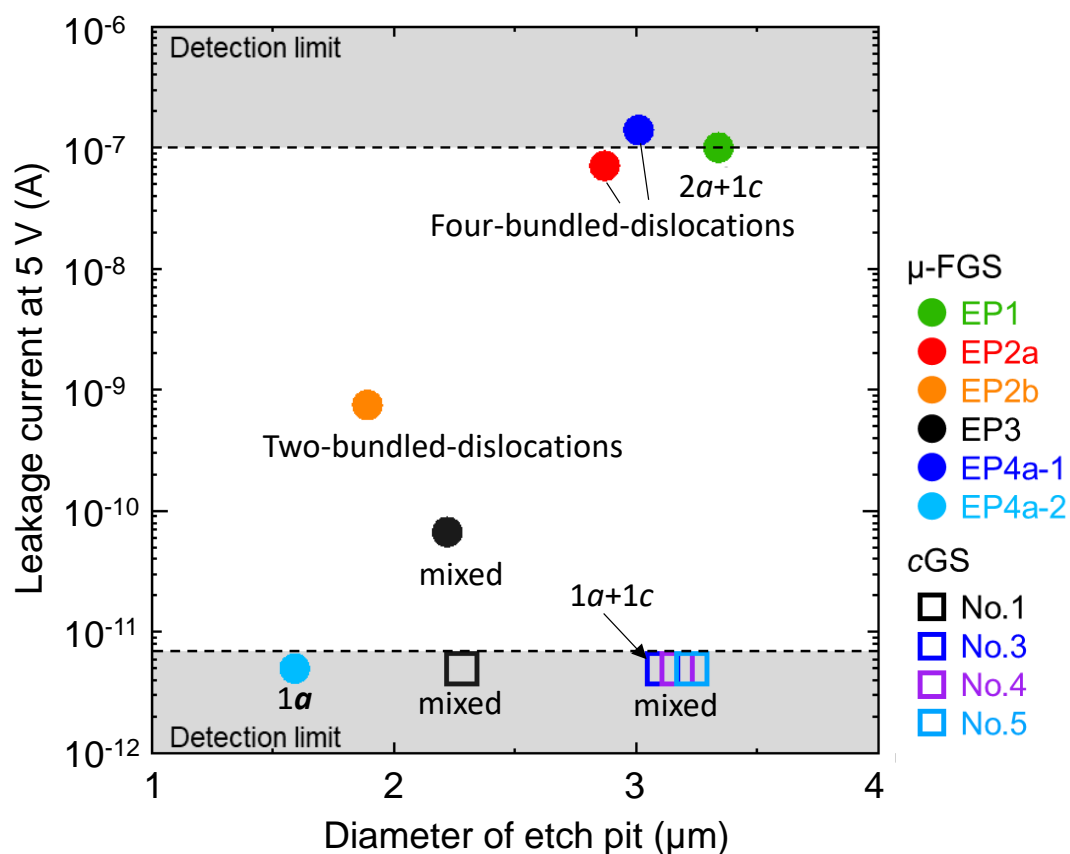


図 3-28 エッチピットの直径と各ピット部電極における 5 V 印加時リーク電流値の関係性。LACBED を行った転位はそのバーガースベクトルを、 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$ 解析まで行った転位はその種類を、束状転位は本数と共に 'bundled-dislocation' として示す。

3.3.9. μ -FGS における貫通転位の伝播挙動

MPPL により、 μ -FGS 周辺における貫通転位の伝播挙動を観察した。図 3-29 は μ -FGS4a と μ -FGS4b 周辺で特定の深さで MPPL 観察を行った結果を示している。図 3-29(a)の広域像から、直線的かつ帯状の μ -FGS が表層に向かうにつれて左上方向に進行し、多くの転位がファセット端に押しやられるように進行している様子が見られる。実際、表面では、ファセット端にエッチピット列が形成されていることから、転位は、 μ -FGS によってファセット端に集められやすいことが判明した。図 3-29(a)の 3 次元的な模式図を図 3-30(a)に示している。Na フラックス成長過程のマクロなファセット成長フロントに転位が並びやすいことは既に報告されているが⁷、今回の観測により、FFC 過程で発生する微小なファセット領域でも同様の現象が生じることが明らかとなった。

また、 μ -FGS 内にも c GS 内にも基底面転位が多数見られ、転位自体の動きが激しく転位間の反応性も非常に高い。図 3-29(b)は EP4a-1 周辺の拡大 MPPL 像である。EP4a-1 のピット直下に見られた 4 つの転位(図 3-25)の位置を赤矢印で示している。4 つの転位のうち、2 つの転位はファセット端に位置し、ファセット成長に伴って伝播している一方で、他の 2 つの転位は元々 c GS に位置し、そのうち 1 つの転位は深さ 17.5 μm で白矢印の方向へ基底面内で移動している。最終的に、 μ -FGS 進行と共に伝播してきた 2 つの転位と c GS の 2 つの転位が集まり、EP4a-1 に貫通している。図 3-30(b)には、図 3-29(b)で見られた転位挙動の 3 次元的な模式図を示している。 μ -FGS によって転位が寄せ集められている顕著な例を図 3-31 に示す。深さ 43.2 μm で見られる転位群(赤矢印)周囲にて、転位を囲うように MPPL 強度がやや高く、突発的にファセットが形成され始めていることが分かる。24.5 μm 深さまでほぼ変わらない分布であった転位群が、深さ 21 μm 、17.5 μm 、12.9 μm にかけて転位群を囲うファセットの成長に伴い転位同士が互いに近づき、合体している。

このように、FFC-GaN 結晶中の転位は、特に μ -FGS の存在により、高頻度で合体・集合しやすく、結果的に、リークしやすい特異的な束状転位や異質的に大きなバーガースベクトルを有する転位も形成されやすいことが明らかとなった。一般的な気相結晶成長法である HVPE 法で育成された GaN 結晶中での転位挙動については本論文第 4 章でも詳細に解析しているが、先行研究でも、HVPE バルク基板では一つ一つの転位は単独で伝搬する傾向が示されていることから³¹⁻³³、高頻度・高密度・広域での転位の合体は μ -FGS が生じる Na フラックス成長特有の現象であると言える。

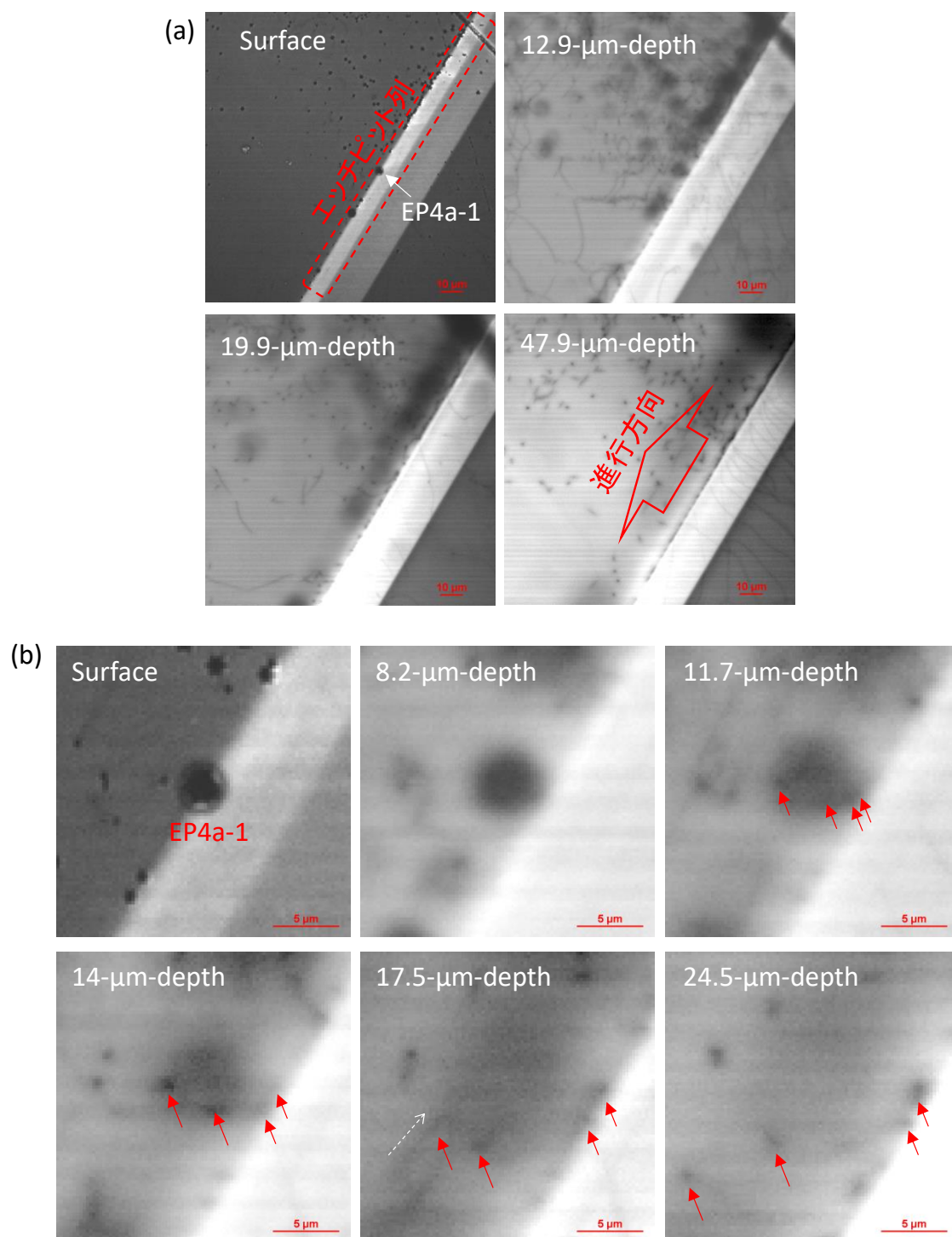


図 3-29 μ -FGS4a 及び μ -FGS4b 周辺における深さ方向の MPPL 観察像。(a) 広域像、及び(b) EP4a-1 周辺拡大像。(b)の赤矢印は TEM で観測されたピット直下に貫通する 4 つの転位を示す。

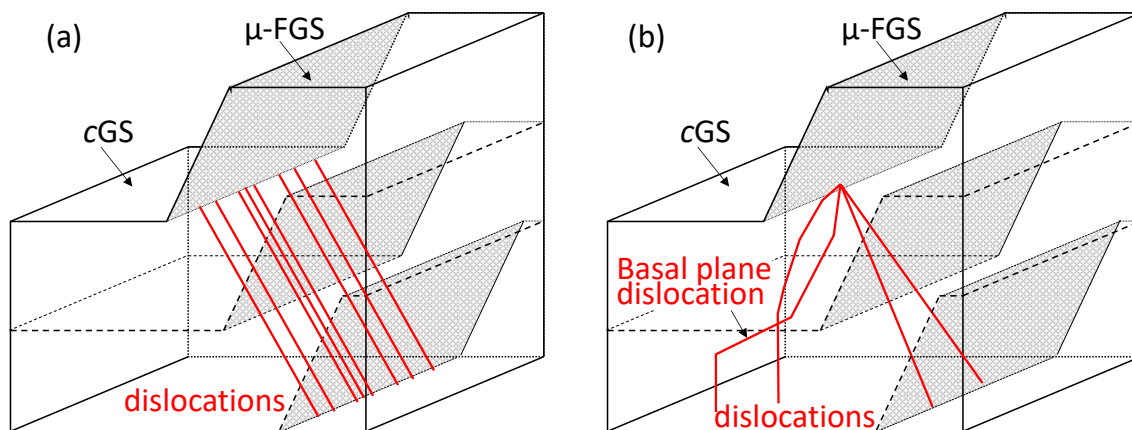


図 3-30 (a) 転位がファセット端で列状に並び伝播する様子、及び(b) 4つの転位が合体する様子を示す模式図。(a)と(b)は、それぞれ図 3-29(a)と(b)の MPPL データで着目している転位の 3 次元的な描像。

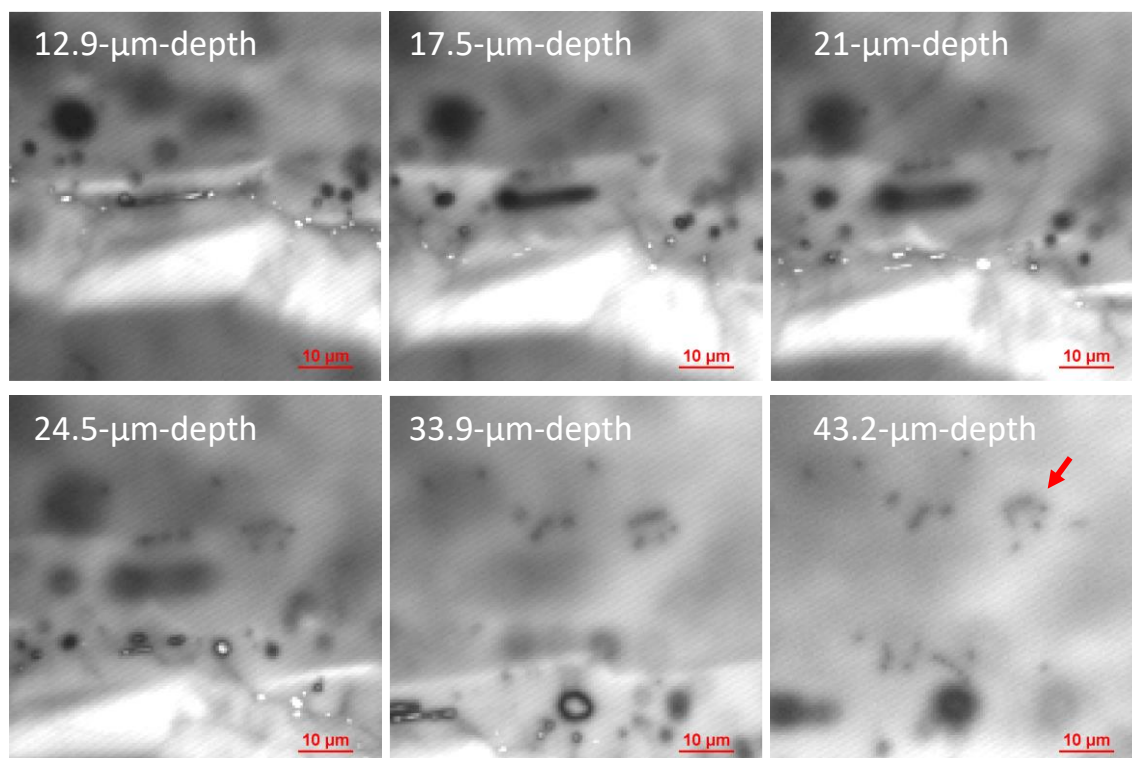


図 3-31 μ -FGS によって転位が寄せ集められている様子を示す MPPL 像。

3.4. 小括

本章では MPS 法によって Na フラックス成長させた MPSC-GaN バルク結晶と、MPS 法と FFC 法を併用して育成した FFC-GaN を対象に、貫通転位の電気特性を計測し、転位間で見られたリーク特性の違いを、転位構造や、その転位周辺の結晶成長様式の観点から解析した。以下に、本章で得られた知見を示す。

MPSC-GaN

- 貫通転位における電気特性が、その転位の存在する結晶成長様式に強く依存し、 cGS で最もリーク電流量が少なかった。結晶成長領域によって桁で異なるリーク電流量は、各領域の酸素不純物濃度の違いに起因すると考えられる。
- どの領域においても転位のリーク電流には SCLC 機構が関与し、欠陥準位が関与していることが明らかとなった。特に、最小リークであった cGS のらせん転位では、PF 機構がリーク電流の電気伝導に支配的に寄与していることが明らかとなった。らせん転位やその転位芯に集積した酸素不純物起因の欠陥準位が直接的なリーク原因である可能性が示された。

FFC-GaN

- cGS のみで構成されていると思われていた FFC-GaN に、微小なファセット成長領域、すなわち μ -FGS が局在することを明らかにした。当該領域では、転位の有無にかかわらず顕著なリーク電流が検出され、 μ -FGS がショットキーダイオードに多大な影響を及ぼすことが示された。
- μ -FGS の転位の中でも、束状の転位や、 $\mathbf{b}=2\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ という極めて大きなバーガースベクトルを有する特異な転位で過剰なリーク電流が生じることが明らかとなった。ピットサイズとリーク量の相関関係から、転位の歪場とリーク電流量の関連性が見出され、歪場によって転位芯に集積した酸素不純物がドーパントや欠陥準位形成源として振る舞うことによって、トンネルリーク電流を増長させる可能性が示された。
- FFC-GaN 中の転位は反応性が高く、特に μ -FGS によって転位同士の集合や合体が促進されていた。その結果、リークを誘発しやすい束状転位や特大 \mathbf{b} のような特異構造を有する転位が形成されやすいことが示された。

ドリフト層作製のためのホモエピプロセスで新たな欠陥が生じないようにするためには、基板とエピ膜の格子不整合をゼロにすることが理想である。高濃度の酸素不純物を取り込まれる $\{10\bar{1}1\}$ 面では a 軸格子定数が膨張することが報告されていることから、

第3章 結晶成長様式が貫通転位の電気特性に及ぼす影響

μ -FGS が表層に露呈している場合、ホモエピ層との格子不整合原因となり得る⁵。また、電気特性の異なる μ -FGS と c GS の混在は、デバイスの耐圧やオン抵抗特性にも影響し得る。表層に束状転位も誘発しやすいことも踏まえ、更なる Na フラックス GaN 基板の高品質化・高信頼化のためには、ファセット成長が生じない最適な結晶成長条件を見出し、結晶の完全 c GS 化を果たす、HVPE などによる FFC-GaN 基板上へのホモエピ成長によって μ -FGS 成長を抑止する方法等が挙げられ、両技術共に現在研究開発が進んでいる^{4,5}。

従来、転位におけるリーク電流調査に関しては、その転位自体の構造、特に種類にのみ照準した報告が主流だった。しかしながら、本章の結果より、転位自体の構造やそのリーク特性は、その転位が含まれる結晶領域がどのような様式で成長してきたのかということが多大に影響することが明らかとなった。本章の結果は、転位起因のリーク現象を調査する上で、結晶の成長履歴にも着目すべきことを提示した重要な知見として位置づけられる。

参考文献

- ¹ M. Imade, M. Imanishi, Y. Todoroki, H. Imabayashi, D. Matsuo, K. Murakami, H. Takazawa, A. Kitamoto, M. Maruyama, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Appl. Phys. Express* **7**, 035503 (2014).
- ² M. Imanishi, Y. Todoroki, K. Murakami, D. Matsuo, H. Imabayashi, H. Takazawa, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *J. Cryst. Growth* **427**, 87 (2015).
- ³ Y. Mori, M. Imanishi, K. Murakami, and M. Yoshimura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SC0803 (2019).
- ⁴ M. Imanishi, K. Murakami, T. Yamada, K. Kakinouchi, K. Nakamura, T. Kitamura, K. Okumura, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Appl. Phys. Express* **12**, 045508 (2019).
- ⁵ M. Imanishi, T. Yoshida, T. Kitamura, K. Murakami, M. Imade, M. Yoshimura, M. Shibata, Y. Tsusaka, J. Matsui, and Y. Mori, *Cryst. Growth Des.* **17**, 3806 (2017).
- ⁶ A. Sakai, H. Sunakawa, and A. Usui, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2259 (1997).
- ⁷ F. Kawamura, M. Tanpo, N. Miyoshi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, Y. Kitaoka, and T. Sasaki, *J. Cryst. Growth* **311**, 3019 (2009).
- ⁸ S. C. Cruz, S. Keller, T. E. Mates, U. K. Mishima, and S. P. DenBaars, *J. Cryst. Growth* **311**, 3817 (2009).
- ⁹ S. M. Sze and K. K. Ng, *Physics of Semiconductor Devices*, 3rd ed. (Wiley, Hoboken, 2007).
- ¹⁰ C.-P. Kwan, M. Street, A. Mahmood, W. Echtenkamp, M. Randle, K. He, J. Nathawat, N. Arabchigavkani, B. Barut, S. Yin, R. Dixit, U. Singiseti, Ch. Binek, and J. P. Bird, *AIP Advances* **9**, 055018 (2019).
- ¹¹ J. G. Simmons, *Phys. Rev.* **155**, 657 (1967).
- ¹² J. Wang, H. You, H. Guo, J. Xue, G. Yang, D. Chen, B. Liu, H. Lu, R. Zhang, and Y. Zheng, *Appl. Phys. Lett.* **116**, 062104 (2020).
- ¹³ R. Jone, J. Elsner, M. Haugk, R. Gutierrez, Th. Frauenheim, M. I. Heggie, S. Öberg, and P. R. Briddon, *Phys. Status Solidi B* **171**, 167 (1999).
- ¹⁴ J. E. Northrup, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2288 (2001).
- ¹⁵ T. Nakano, K. Chokawa, M. Araidai, K. Shiraishi, A. Oshiyama, A. Kusaba, Y. Kangawa, A. Tanaka, Y. Honda, and H. Amano, *Compound Semiconductor Week*, 1 (2019).
- ¹⁶ I. Arslan and N. D. Browning, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 165501 (2003).
- ¹⁷ M. E. Hawkrige and D. Cherns, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 221903 (2005).
- ¹⁸ P. P. Michałowski, S. Złotnik, and M. Rudziński, *Chem. Commun.* **55**, 11539

- (2019).
- ¹⁹ F. Kawamura, M. Tanpo, N. Miyoshi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, Y. Kitaoka, T. Sasaki, J. Cryst. Growth **311**, 3019 (2009).
- ²⁰ B. -C. Chung and M. Gershenzon, J. Appl. Phys. **72**, 651 (1992).
- ²¹ R. Y. Korotkov, F. Niu, J. M. Gregie, and B. W. Wessels, Physica B **308-310**, 26 (2001).
- ²² S. C. Cruz, S. Keller, T. E. Mates, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, J. Cryst. Growth **311**, 3817 (2009).
- ²³ B. S. Simpkins, E. T. Yu, P. Waltereit, and J. S. Speck, J. Appl. Phys. **94**, 1448 (2003).
- ²⁴ B. S. Simpkins, D. M. Schaadt, E. T. Yu, and R. J. Molnar, J. Appl. Phys. **91**, 9924 (2002).
- ²⁵ P. J. Hansen, Y. E. Strausser, A. N. Erickson, E. J. Tarsa, P. Kozodoy, E. G. Brazel, J. P. Ibbetson, U. Mishra, V. Narayanamurti, S. P. Denbaars, and J. S. Speck, Appl. Phys. Lett. **72**, 2247 (1998).
- ²⁶ A. R. Archart, B. Moran, J. S. Speck, U. K. Mishra, S. P. DenBaars, and S. A. Ringel, J. Appl. Phys. **100**, 023709 (2006).
- ²⁷ J. Elsner, R. Jones, M. Haugk, R. Gutierrez, T. Frauenheim, M. I. Heggie, S. Öberg, and P. R. Briddon, Appl. Phys. Lett. **73**, 3530 (1998).
- ²⁸ J. Elsner, R. Jones, P. K. Sitch, V. D. Porezag, M. Elstner, Th. Frauenheim, M. I. Heggie, S. Öberg, and P. R. Briddon, Phys. Rev. Lett. **79**, 3672 (1997).
- ²⁹ J. Elsner, R. Jones, M. I. Heggie, P. K. Sitch, M. Haugk, Th. Frauenheim, S. Öberg, and P. R. Briddon, Phys. Rev. B **58**, 12571 (1998).
- ³⁰ J. L. Weyher, S. Lazar, L. Macht, Z. Liliental-Weber, R. J. Molnar, S. Müller, V. G. M. Sivel, G. Nowak, and I. Grzegory, J. Cryst. Growth **305**, 384 (2007).
- ³¹ T. Tanikawa, K. Ohnishi, M. Kanoh, T. Mukai, and T. Matsuoka, Appl. Phys. Express **11**, 031004 (2018).
- ³² Y. Yao, Y. Sugawara, D. Yokoe, K. Sato, Y. Ishikawa, N. Okada, K. Tadatomoto, M. Miyoshi, and T. Egawa, CrystEngComm. **22**, 8299 (2020).
- ³³ M. Tsukakoshi, T. Tanikawa, T. Yamada, M. Imanishi, Y. Mori, M. Uemukai, and R. Katayama, Appl. Phys. Express **14**, 055504 (2021).

第4章 HVPE-GaN バルク結晶における転位の伝播挙動

4.1. はじめに

第3章において、Na フラックス法によって育成した MPSC-GaN 及び FFC-GaN 結晶中の貫通転位の構造や電気特性は、 μ -FGS のような結晶成長様式の僅かな揺らぎで突発的に形成される特異領域の影響を強く受けることが明らかとなった。その課題解決策の一つとして、低貫通転位密度且つ大口径の Na フラックス GaN を HVPE バルク成長用の種基板として用いることが検討されている¹。この技術は、 μ -FGS の抑制に留まらず、Na フラックス基板と同程度の低貫通転位密度バルク基板を高速に厚膜化できることから非常に有望視されている。本章以降では、この HVPE on Na フラックス法で育成された、いわゆるハイブリッド基板を対象に、貫通転位の構造とリーク電流の関係性を探索する。第3章にて、転位のリーク特性には、転位構造のみならず、結晶成長様式を含むマクロな転位伝播挙動も影響し得る可能性が示された。これを踏まえ、本章では、リーク特性調査に先立ち、このハイブリッド基板中の貫通転位の伝播挙動に関して調査を行った。

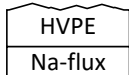
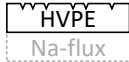

過去、(Al)GaN 結晶中の転位挙動については、TEM を用いた調査が数多くなされている²⁻⁹。しかし、TEM の観察スケールは高々十数 μm であり、数百 μm ～数 mm の膜厚を有するバルク結晶中の転位伝播を解析するには限界があった。MPPL が登場した近年になって、GaN バルク結晶やホモエピ薄膜結晶中の転位伝播観察結果が徐々に報告され始めている¹⁰⁻¹³。特に、転位種とリーク電流の関連性が示唆されていることから、転位の種類と伝播形態の関連性を解明することは重要な課題として認識されているものの、これに関する調査結果は少ない。極近年、Tsukakoshi らによって転位種と伝播挙動の関係性調査が試みられているが、転位種はエッチピットサイズに基づいた推定に留まっている¹⁴。ピットサイズと転位種の対応関係は、エッチング条件や結晶の不純物濃度等に依って異なり得ることを踏まえると¹⁵、転位種と伝播挙動の関連性について確かな知見を得るためには、TEM を用いた厳密な構造解析まで行う必要がある。そこで、本章では、エッチピット法、MPPL、TEM ($\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 解析及び LACBED 解析)の組み合わせによる統計的かつ定量的な解析を行うことによって、「エッチピット形状とバーガースベクトルの対応関係に関するデータベース構築」及び、これをベースとした「転位のバーガースベクトルと伝播挙動の関連性探索」を実施した。

4.2. 評価サンプルと実験アプローチ

4.2.1. 評価サンプル

本章では、評価サンプルとして 3 つの HVPE-GaN バルク結晶を用いた。一つ目が Na フラックス GaN 基板上に育成した Si-doped n 型 HVPE-GaN、二つ目が Na フラックス GaN 基板上に育成した undoped HVPE-GaN 結晶、三つ目がサファイヤを基板として育成された市販 Si-doped n 型 HVPE-GaN 結晶である。Na フラックス基板上に育成した Si-doped 及び undoped の 2 つのハイブリッド HVPE サンプルについては、どちらも MPS 法と FFC 法によって育成された Na フラックス GaN (すなわち、FFC-GaN) を種基板に用いて、別々にホモエピ成長して作製した^{16,17}。Na フラックス GaN 基板上の undoped HVPE-GaN は成長後、表面研磨等の加工を施しておらず、as-grown サンプルとして用いた(以下、as-grown-Na-GaN と呼称する)。Na フラックス GaN 上の Si-doped HVPE-GaN 結晶および市販 Si-doped HVPE-GaN 結晶については、(0001) 面および(000 $\bar{1}$) 面を化学機械研磨(CMP: chemical mechanical polishing)および機械研磨(MP: mechanical polishing)によって平坦化し、それぞれ厚さ 200 μm の自立 GaN 基板とした(以下、それぞれ flat-Na-GaN および flat-Sa-GaN と呼称する)。本研究で利用した三つのサンプル情報を表 4-1 にまとめている。

表 4-1 評価サンプルと各表面処理。

Sample name	Sample structure	Doping	Surface treatment	Schematic
As-grown -Na-GaN	HVPE-grown GaN on Na-flux-grown GaN	Un- doped	As-grown	
Flat-Na-GaN	HVPE-grown GaN (grown on Na-flux-grown GaN)	Si	Surface: CMP and chemical etching Back surface: MP	
Flat-Sa-GaN	Commercially-available HVPE- grown GaN (grown on sapphire)	Si	Surface: CMP and chemical etching Back surface: MP	

4.2.2. 実験アプローチ

flat-Na-GaN と flat-Sa-GaN に対して、KOH(50%) + NaOH 融液(50%)を用いた 450°C、20 分のウェットエッチングを行い、エッチピットを形成した。表 4-1 に、各サンプ

ルに施した表面処理と、サンプルの模式図を示している。全バルク結晶内の転位伝播形態や結晶成長様式を MPPL で観察し、ピットを形成したサンプルではエッチピットサイズと転位挙動の関連性を統計的に調査した。その後、ピットサイズと転位のバーガースベクトルとの間の相関を明らかにするため、FIB 装置によりエッチピットの下に転位を含む薄片 TEM 試料を作製し、断面 TEM 観察を行った。転位の微細構造を Weak beam 法により暗視野観察した後、 $g\cdot b$ 法により転位種を同定し、最後に LACBED によりバーガースベクトルを決定した。これらの断面 TEM 観察は、JEOL JEM-2100 を用いた 200 kV の加速電圧下で行った。一部の転位に対しては、転位芯の原子構造解析も行った。原子構造解析は、JEOL ARM-200F による 200 kV の加速電圧化での明視野 STEM 観察により行った。as-grown-Na-GaN では、転位伝播挙動と結晶モホロジーの関係を調査するために、MPPL による転位伝播挙動解析後、結晶表面のモホロジーを走査型白色光干渉顕微鏡 (SWLIM: scanning white light interference microscope、日立 VS1800) と AFM によって観察した。

4.3. 貫通転位のエッチピットサイズとバーガースベクトルの対応関係

4.3.1. エッチピット形状と分布

図 4-1(a)は flat-Na-GaN に形成された典型的なエッチピットの SEM 像である。ほとんどのピットは、その中心に一つの頂点を有する逆六角錐形状であった。これらピットの大きさは、図 4-1(b)のヒストグラムに示すように、明らかに 4 水準に分類される分布を有していた。ここでは小さいものから、Extra small (XS)、Small (S)、Medium (M)、Large (L) サイズとする。flat-Sa-GaN においても、同様に 4 水準に分類できる同形状ピットが形成されていた (図 4-2)。そして flat-Na-GaN には、中央に二つの頂点 (DA: double apex) を持つエッチピットも観測された。この DA ピットは flat-Sa-GaN では見られなかった。表 2 には、2 つの結晶における、各エッチピットの密度と割合をまとめている。XS および S ピットは、2 つの結晶共に、全エッチングピットの 96% 以上を占め、M、L、および DA ピット (flat-Na-GaN の場合のみ) は数パーセントを占めていた。flat-Na-GaN のトータルエッチピット密度は flat-Sa-GaN よりも 1 桁低かった。これは flat-Na-GaN の種基板に低転位密度の Na フラックス GaN 結晶を用いているのに対し、flat-Sa-GaN はサファイヤを基板として用いていることに起因する。

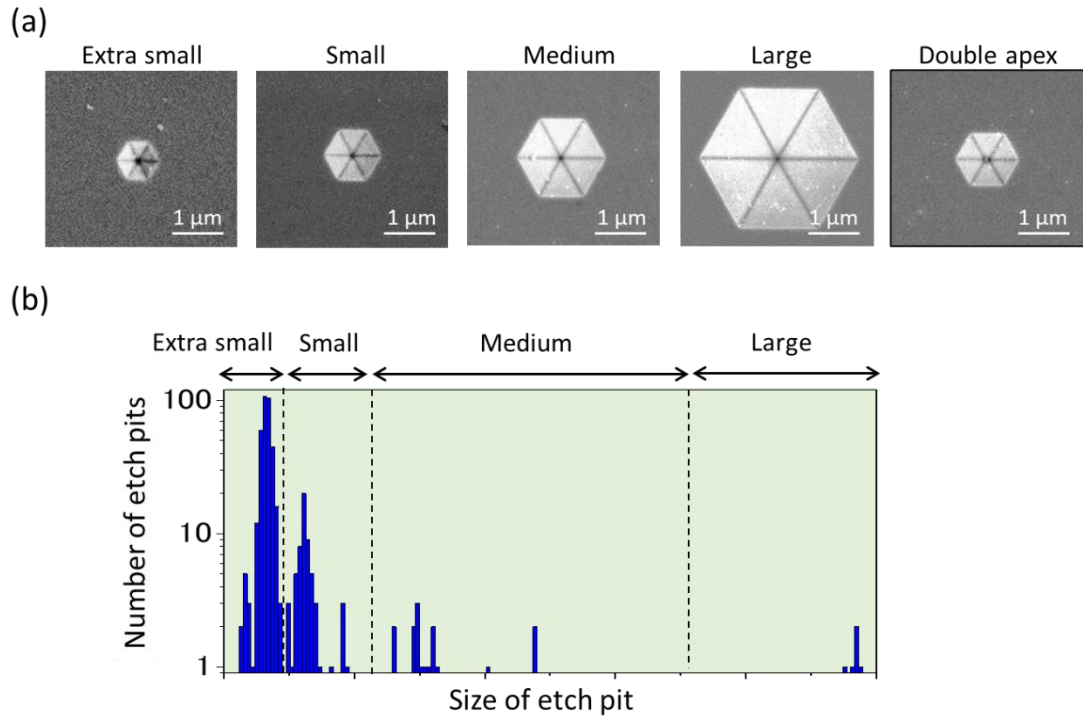


図 4-1 flat-Na-GaN における(a) XS、S、M、L サイズエッチピット及び DA エッチピットの SEM 像と (b) エッチピットサイズのヒストグラム。

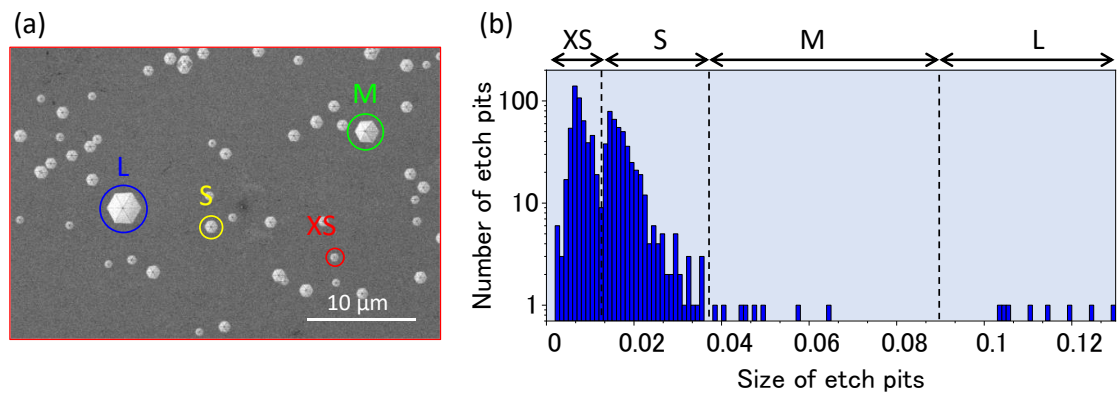


図 4-2 flat-Sa-GaN における(a) XS、S、M、L サイズエッチピットの SEM 像、及び(b) エッチピットサイズのヒストグラム。

表 4-2 flat-Na-GaN 及び flat-Sa-GaN における各種エッチピットの密度と割合。

Sample	Etch pit density [/cm ²]					
	Extra small	Small	Medium	Large	Double apex	Total
Flat-Na-GaN	5.6×10 ⁵ (85%)	7.4×10 ⁴ (11%)	2.0×10 ⁴ (3%)	3.6×10 ³ (0.5%)	3.2×10 ³ (0.5%)	6.6×10 ⁵
Flat-Sa-GaN	1.7×10 ⁶ (52%)	1.5×10 ⁶ (46%)	2.4×10 ⁴ (1%)	2.8×10 ⁴ (1%)	—	3.3×10 ⁶

4.3.2. ピット形状別の微細転位構造及び転位種の解析

続いて、ピット形状(サイズ)と転位構造の対応関係を明らかにするために、TEM 観察を行った。図 4-3 は flat-Na-GaN で見られた各種ピット直下における貫通転位の断面暗視野 TEM 像である。DA ピットを除く XS、S、M、L ピット直下には単独で伝播する一つの転位が存在していた。これらの転位種を **g·b** 法に基づいて同定していく。XS ピットの転位は、**g=1 $\bar{1}$ 00**でのみコントラストが確認できるので刃状転位(図 4-3(a-1)及び(a-2))、S ピット及び L ピットでは **g=0002**と **g=11 $\bar{2}$ 0**の両方でコントラストが見られるので混合転位(図 4-3(b-1)及び(b-2)、図 4-3(d-1)及び(d-2))、そして、M ピットでは **g=0002**でのみコントラストが見られるのでらせん転位(図 4-3(c-1)及び(c-2))と判定された。

一方、DA ピットの下には互いに平行な 2 つの転位が存在し、**g=0002**と **g=11 $\bar{2}$ 0**の両方で確認できることから、どちらの転位も混合転位と同定された(図 4-3(e-1)及び(e-2))。図 4-4(a)及び(b)は、それぞれ **g=11 $\bar{2}$ 0**と **g= $\bar{1}\bar{1}$ 20**を用いて観察された DA ピット直下における貫通転位の高倍率 TEM 像である。**g=11 $\bar{2}$ 0**像の 2 つの転位線間の距離が、**g= $\bar{1}\bar{1}$ 20**像におけるそれよりも長いことが判明した。これは、これら 2 つの混合転位のバーガスベクトルに互いに反対向きの **a** 成分が含まれているためと考えられる。図 4-4(c)は、この状況を模式した概略図である。ここでは、互いに反対方向を向く **a** 成分バーガスベクトルを持つ 2 つの転位周囲で、格子配列が歪んでいる様子を描いている。この領域に、Weak beam 暗視野観察条件で電子線を入射する状況を考えると、原理的には、**g=11 $\bar{2}$ 0**と **g= $\bar{1}\bar{1}$ 20**では、それぞれ 2 つの転位の外側(緑線)と内側(赤線)の歪んだ(11 $\bar{2}$ 0)平面で励起された回折波が結像に寄与する。この結果、各転位の外側の強度が増す **g=11 $\bar{2}$ 0** 像では転位間の距離が長く見え、逆に、各転位の内側の強度が増す **g= $\bar{1}\bar{1}$ 20**像では転位間の距離が短く見えることになる。一方で、幾つか

の先行研究では、このようにある程度の幅を持った柱状の欠陥が、inversion domain であることが報告されている¹⁸⁻²⁰。本研究でも、この混合転位ペア間の領域が Inversion domain か否かを確かめるため、CBED による極性判定を試みた。図 4-4(d-1)及び(d-2)は、それぞれ(d-3)の明視野 TEM 像内に示す A 点(混合転位ペア間の領域)と B 点(バルク領域)に収束電子線を照射し、得られた CBED パターンである。A 点と B 点の CBED パターンが反転していないことから、混合転位間の領域では極性反転は生じていないことが確かめられた。

近年、別の研究グループから、同様の DA ピットの存在、同様の混合転位ペアが報告されており、これらの転位のバーガースベクトルの合計が $\mathbf{b}=2\mathbf{c}$ であることが LACBED によって確かめられている¹³。エッチピット形状や転位の種類、平行かつ直線的な 2 本のペアであること、[0001]方向に沿った直線的伝播形態を有する点(4.4.5 項で述べる)は、参考文献[13]で報告されている特徴と同様であることを踏まえると、本実験で観測された DA ピットの下での混合転位ペアもまた、合計が $\mathbf{b}=2\mathbf{c}$ のバーガースベクトルを有する可能性が高い。

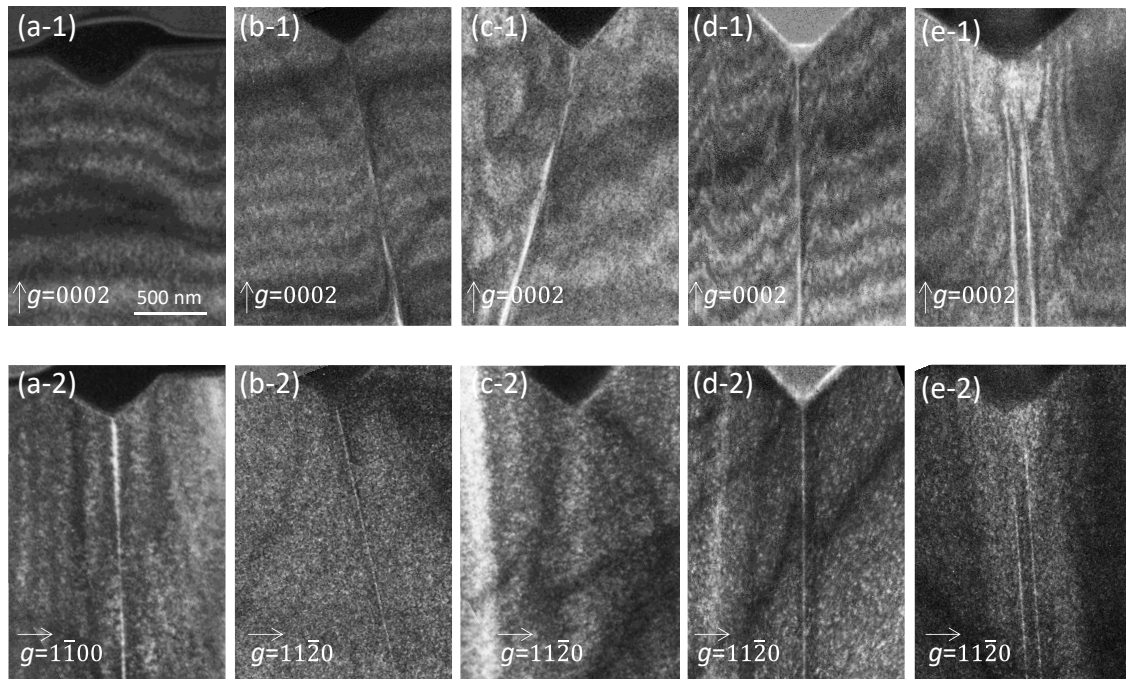


図 4-3 flat-Na-GaN の(a-1)、(a-2) XS、(b-1)、(b-2) S、(c-1)、(c-2) M、(d-1)、(d-2) L、(e-1)、(e-2) DA ピット直下における貫通転位の Weak beam 暗視野 TEM 像。上段の像は $\mathbf{g}=0002$ 、下段の像は $\mathbf{g}=11\bar{2}0$ 又は $\mathbf{g}=1\bar{1}00$ を用いて観察した。

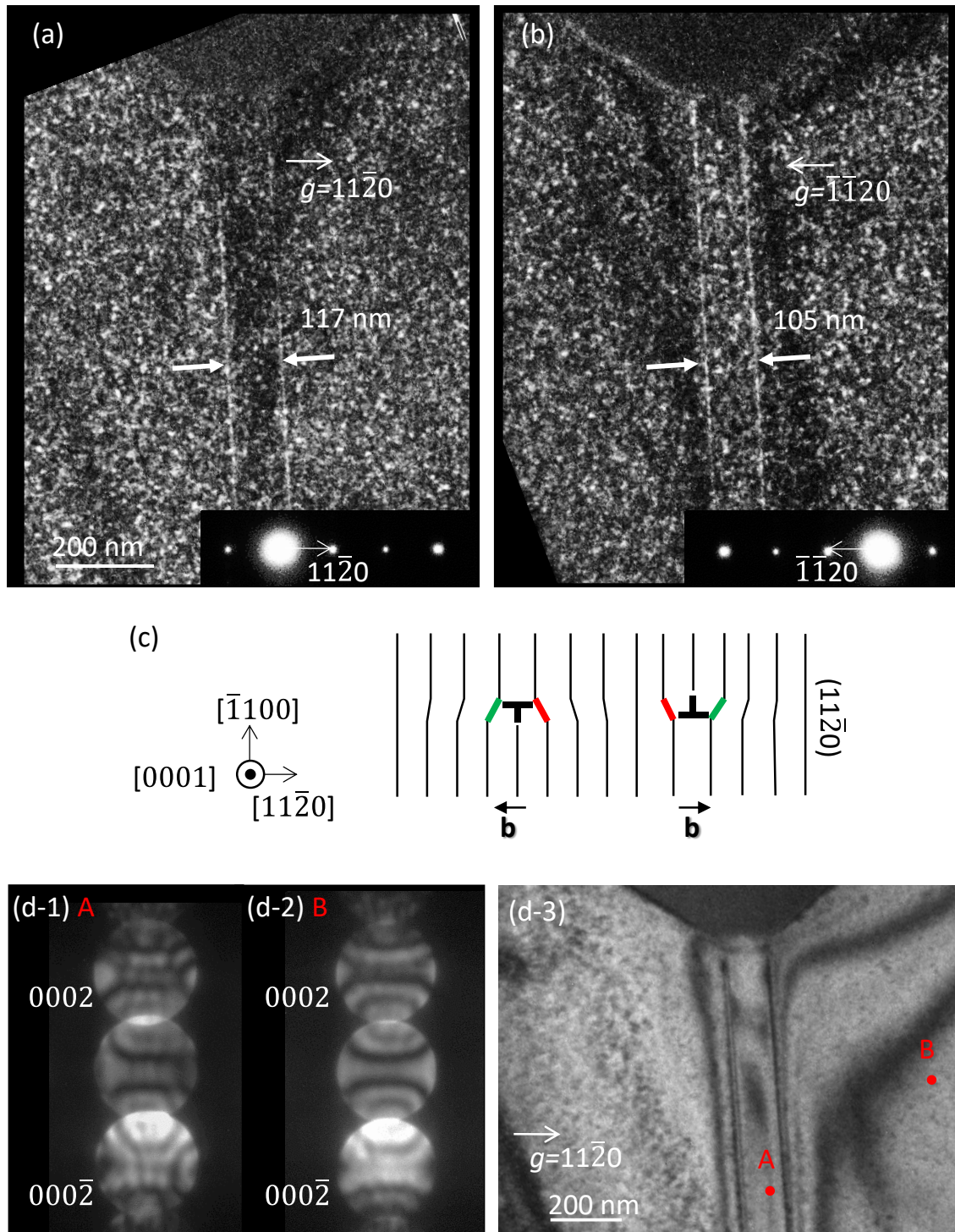


図 4-4 (a) $g=11\bar{2}0$ 及び (b) $g=\bar{1}120$ を用いて観察した DA ピット直下における貫通転位の Weak beam 暗視野 TEM 像。(a) と (b) の挿入図は、各像取得時の回折パターン。(c) バーガースベクトルの a 成分が互いに対をなす二つの転位ペア周辺における格子配列の歪を示した概略模式図。(d-1)、(d-2)、(d-3) DA ピット直下の明視野 TEM 像 ($g=11\bar{2}0$) 中の A 点及び B 点で取得された CBED パターン。

4.3.3. LACBED による転位のバーガースベクトル解析

S ピットと L ピットはサイズが異なるものの、 $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 解析では同様の混合転位と判定された。しかしながら、エッチピットサイズは原理的には転位のバーガースベクトルを反映することから、これら S ピットと L ピットの転位では異なるバーガースベクトルを有している可能性がある。そこで本研究では、全サイズのピット直下の転位に対して LACBED 解析を行い、バーガースベクトルを一義的に決定した。図 4-5 には、図 4-3 と同じ転位を LACBED 解析した結果を示している。各像で、転位線(“D”)及び特定の回折ベクトル \mathbf{g} に対応した HOLZ 線(“Lr”)の交差点に、 n の数だけ節が形成されている。 $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b} = n$ の式に基づいて、ピットサイズ毎に連立方程式を立式し、転位のバーガースベクトル \mathbf{b} を算出した結果を表 4-3 にまとめている。この結果、各ピット直下の転位について、XS ピットが $\mathbf{b}=1/3 [\bar{2}110]$ 、S ピットが $\mathbf{b}=1/3 [\bar{1}2\bar{1}3]$ 、M ピットが $\mathbf{b}=[000\bar{1}]$ 、L ピットが $\mathbf{b}=[1\bar{1}0\bar{1}]$ のバーガースベクトルを有する転位であることが明らかとなった。以下、特に言及しない限り、それぞれのバーガースベクトルを $1\mathbf{a}$ 、 $1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 、 $1\mathbf{c}$ 、 $1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ と表記する。過去、LACBED と $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 解析結果に食い違いが生じ得ることが指摘されていたが²¹、本研究における LACBED による判定結果は、図 4-3 の $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 解析の判定結果と完全に整合していた。DA エッチピットの下 の 2 つの混合転位ペアのバーガースベクトルは、HOLZ 線の分裂が入り組み、 n を確定できなかったためバーガースベクトルを決定できなかった。上記のピットその他、3 つの L、5 つの M、1 つの S、および 5 つの XS エッチピットに対して LACBED 分析を実施し、全てが上記と同様の結果となることを確かめた(これら L、M、S ピット直下の TEM 像及び LACBED 像は Appendix の A.1 節に掲載している。5 つの XS ピット直下貫通転位の LACBED 解析結果は 4.4.6 項にて述べる)。これらの結果により、flat-Na-GaN においてはエッチピットサイズとバーガースベクトルの間に 1 対 1 対応関係があることを明らかにした。flat-Sa-GaN においても、4 つの L、7 つの M、1 つの S、および 1 つの XS エッチピットに対して LACBED 分析を実施し、ほぼ同じ対応関係があることを確認した(L: $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ 、M: $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ 、S: $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 、XS: $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 、Appendix の A.2 節に掲載)。M ピットに関しては 7 つの内 2 つが $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ とは異なる結果となった(一つが $\mathbf{b}=2\mathbf{a}$ の単独転位(Appendix A.2 節の #M16)、もう一つがピット直下に複数の混合転位(Appendix A.2 節の #M18)が存在していた)。エッチピットサイズとバーガースベクトルの関係について、Yao らの先行研究[13]と比較すると、やや異なる結果となっていた。Yao らの報告では、サファイヤ上 HVPE-GaN 基板(un-doped)を対象に、KOH と Na_2O_2 の混合溶融によってエッチピットを形成した結果、ピットサイ

ズが3水準(L/M/S)に分類された。Lは $\mathbf{b}=3\mathbf{a}+\mathbf{1c}$ 、Mは $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ 、 $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ および2つの混合転位ペア、Sは $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ に対応する結果となり、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ 、 $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ が同一のMピットを形成していた点は本章実験結果と食い違っていた。これは、エッチャントや基板のキャリア濃度等の違いが原因と推測される。しかしながら、 $\mathbf{b}=3\mathbf{a}+\mathbf{1c}$ という比較的大きなバーガースベクトルが最大のピットを形成し、 $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ の最小のバーガースベクトルが最小のピットを形成する傾向は、本実験結果と共通していた(本実験では最大バーガースベクトル $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ が最大Lピットを形成、最小のバーガースベクトル $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ が最小XSピットを形成)。従って、HVPE ハイブリッド基板及び市販 HVPE のという異なる二つのHVPE-GaN 基板において、同様の一対一対応関係が再現性良く成り立つことを示した本実験データは、GaN基板におけるピットサイズとバーガースベクトルの関係性に関する汎用的なデータベースとなり得ることを示すと同時に、エッチピット法で転位のバーガースベクトル同定を実施するで、KOH+NaOH が信頼性の高いエッチャントであることを担保する、重要な知見として位置づけられる。

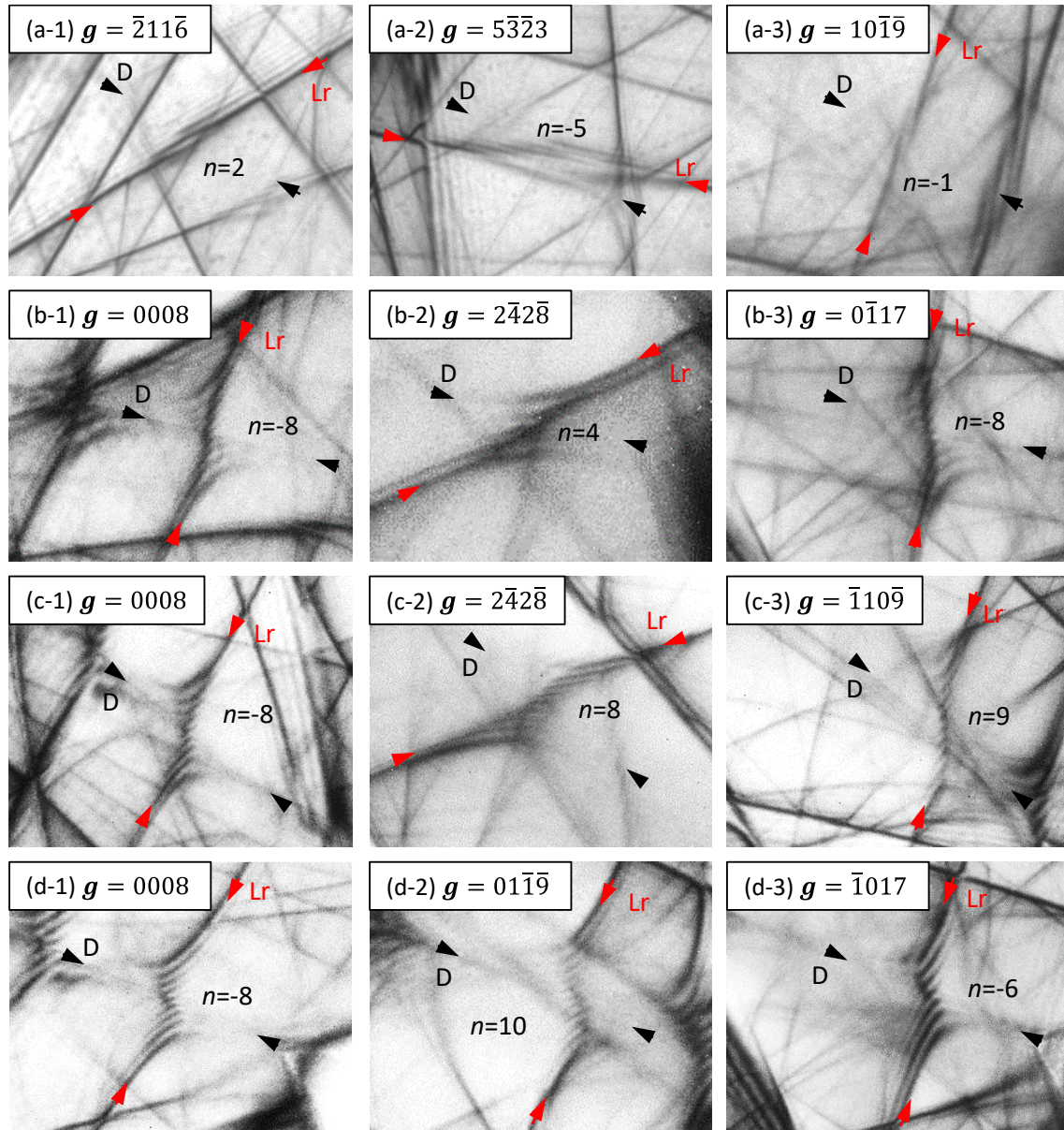


図 4-5 flat-Na-GaN の(a-1)-(a-3) XS、(b-1)-(b-3) S、(c-1)-(c-3) M、(d-1)-(d-3) L ピット直下における貫通転位周辺の明視野 LACBED パターン。各転位は図 4-3 に示す転位と同じものである。黒及び赤矢印は、それぞれ転位(“D”)と特定の g に対応する HOLZ 線(“Lr”)を表している。また、HOLZ 線と転位線の交差点に形成された節数(“n”)も表記している。

表 4-3 図 4-5 の LACBED 観察結果と、立式された連立方程式、算出されたバーガースベクトルのまとめ。 $\mathbf{b}=[uvw]$ と定義している。一部、図 4-5 には示していない HOLZ 線で得られた結果も記している。

Etch pit size	Type of Lr	g	n	$g \cdot \mathbf{b} = n$	\mathbf{b}
Extra small	Lr ₁	0008	0	$0u + 0v + 0s + 8w = 0$	$1/3 [\bar{2}110]$
	Lr ₂	$\bar{2}11\bar{6}$	2	$-2u + 1v + 1s - 6w = 2$	
	Lr ₃	$\bar{2}116$	2	$-2u + 1v + 1s + 6w = 2$	
	Lr ₄	$5\bar{3}\bar{2}3$	-5	$5u - 3v - 2s + 3w = -5$	
	Lr ₅	$5\bar{3}\bar{2}5$	-5	$5u - 3v - 2s + 5w = -5$	
	Lr ₆	$10\bar{1}\bar{9}$	-1	$1u + 0v - 1s - 9w = -1$	
Small	Lr ₁	0008	-8	$0u + 0v + 0s + 8w = -8$	$1/3 [\bar{1}2\bar{1}\bar{3}]$
	Lr ₂	$1\bar{2}1\bar{6}$	4	$1u - 2v + 1s - 6w = 4$	
	Lr ₃	$2\bar{4}2\bar{8}$	4	$2u - 4v + 2s - 8w = 4$	
	Lr ₄	$2\bar{4}28$	-12	$2u - 4v + 2s + 8w = -12$	
	Lr ₅	$0\bar{1}17$	-8	$0u - 1v + 1s + 7w = -8$	
Medium	Lr ₁	0008	-8	$0u + 0v + 0s + 8w = -8$	$[000\bar{1}]$
	Lr ₂	$2\bar{4}2\bar{8}$	8	$2u - 4v + 2s - 8w = 8$	
	Lr ₃	$1\bar{2}1\bar{6}$	6	$1u - 2v + 1s - 6w = 6$	
	Lr ₄	$\bar{2}5\bar{3}\bar{3}$	3	$-2u + 5v - 3s - 3w = 3$	
	Lr ₅	$\bar{2}5\bar{3}\bar{5}$	5	$-2u + 5v - 3s - 5w = 5$	
	Lr ₆	$\bar{2}5\bar{3}5$	-5	$-2u + 5v - 3s + 5w = -5$	
	Lr ₇	$\bar{1}10\bar{9}$	9	$-1u + 1v + 0s - 9w = 9$	
	Lr ₈	$0\bar{1}17$	-7	$0u - 1v + 1s + 7w = -7$	
Large	Lr ₁	0008	-8	$0u + 0v + 0s + 8w = -8$	$[1\bar{1}0\bar{1}]$
	Lr ₂	$01\bar{1}\bar{9}$	10	$0u + 1v - 1s - 9w = 10$	
	Lr ₃	$\bar{1}\bar{1}28$	-8	$-1u - 1v + 2s + 8w = -8$	
	Lr ₄	$\bar{1}017$	-6	$-1u + 0v + 1s + 7w = -6$	

4.3.4. Lピット直下における貫通転位芯の平面 STEM 観察

ここで、Lピット直下の $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ の転位に注目したい。GaN 結晶において転位が \mathbf{m} 成分のバーガースベクトルを有することは極めて珍しい。最近、マイクロラマン分光法と X 線トポグラフィーの組み合わせによって HVPE-GaN バルク結晶に \mathbf{m} 成分のバーガースベクトルを有する貫通転位が存在することが示唆されているものの²²、TEM などによってその構造を直接観測した例は未だ報告されていない。そこで、 $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ 転位の存在を実証するため、LACBED 解析により $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ と判定した転位を含む断面 TEM 試料を FIB により平面 TEM 試料に再加工した後(図 4-6)、転位芯の原子構造を STEM で観察した。図 4-7(a)に、平面明視野 STEM 観察像を示す。図 4-7 (b)は、ノイズ除去するために、図 4-7(a)をフーリエ変換したパターンにフィルター処理を施し、再度逆フーリエ変換した像を示している。転位芯周辺でバーガースサーキットを描いた結果、 $1\mathbf{m}$ 分だけ格子配列にズレがあることが明らかとなり、この転位が $1\mathbf{m}$ 成分のバーガースベクトルを有することが確認された。本結果をもって、 $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ のバーガースベクトルを持つ転位が GaN 結晶中に存在することが初めて実証された。これらの実験事実に基づくと、KOH+NaOH エッチングを用いれば、この特異的なバーガースベクトルを持つ転位をも非破壊で識別可能であることが示された。転位芯の原子構造については、転位芯周辺の歪場が大きく、TEM 試料がかなり厚かったために、今回は明らかにすることが出来なかった。 $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ 転位の原子構造の解明には、別途調査を要する。

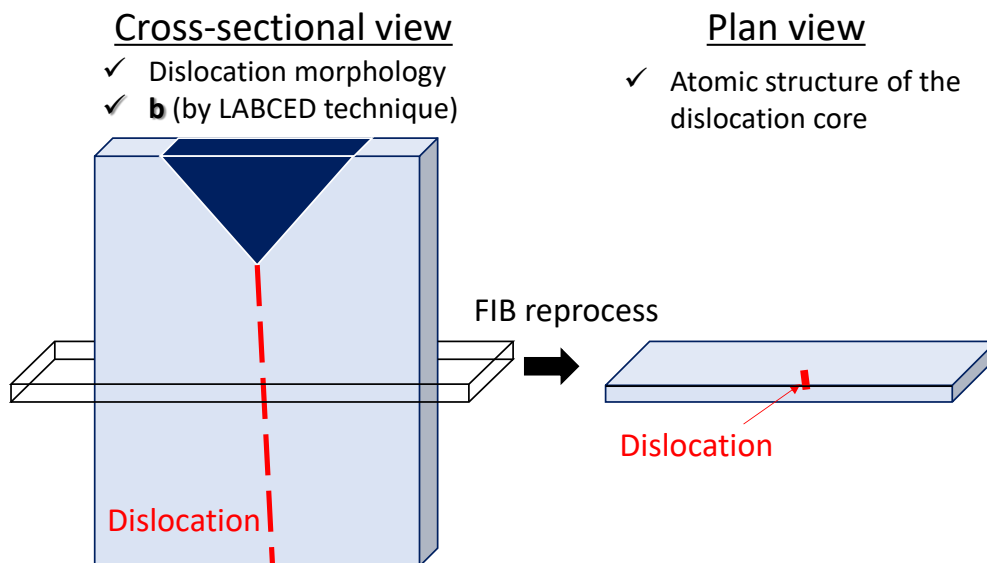
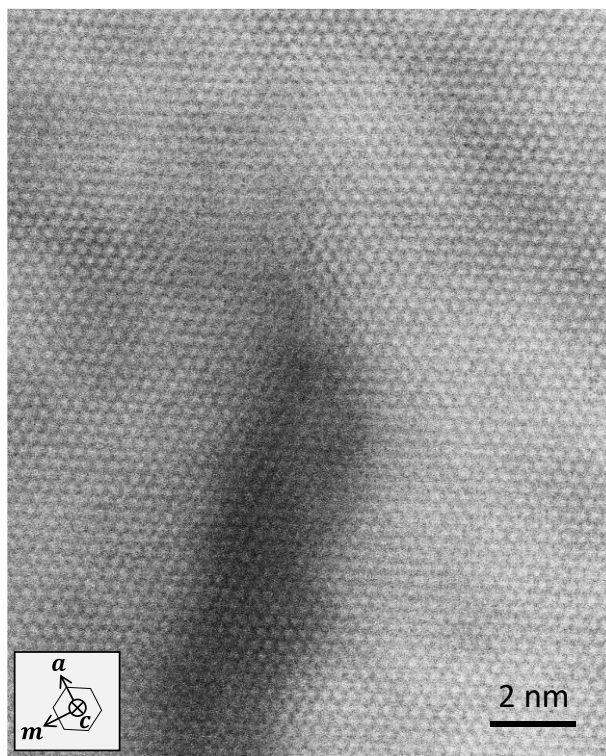


図 4-6 転位を含む断面 TEM 試料から平面 TEM 試料への再加工イメージ。

(a)



(b)

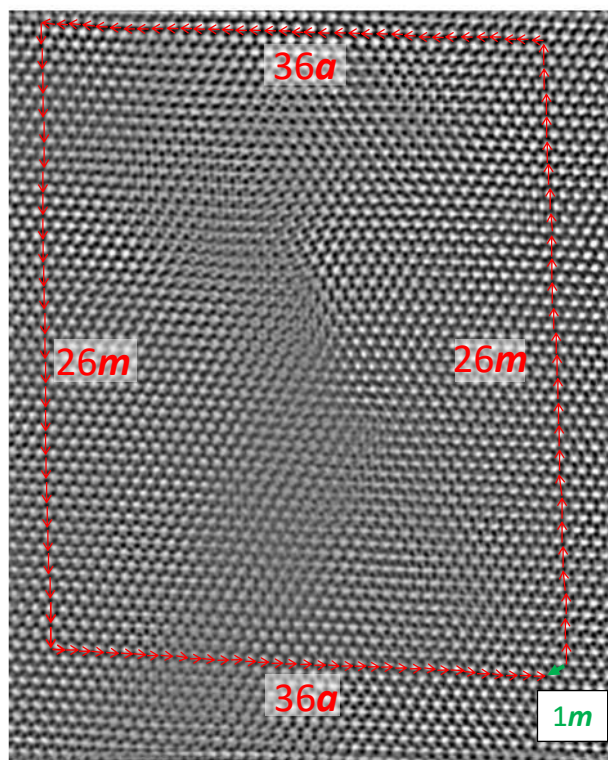


図 4-7 (a) Lピット直下の貫通転位の平面明視野 STEM 像と、(b) フーリエフィルター処理を施した像。

4.4. HVPE-GaN バルク結晶における転位の伝播挙動

4.4.1. ヒロックの存在

図 4-8(a)-(c)は、それぞれ flat-Sa-GaN、flat-Na-GaN、および as-grown-Na-GaN の表面 MPPL 像を示している。図 4-8(a)と(b)の暗点はエッチピット、図 4-8(c)の暗点は貫通転位に対応する。Na フラックス基板上的 HVPE-GaN 結晶 (flat-Na-GaN 及び as-grown-Na-GaN) には、MPPL 発光強度の高い、六角形対角線状の筋 (中心付近を青点線アスタリスクで示している) と、V 字状の領域 (頂点位置を赤矢印で示している) が観察された (図 4-8(c)の V 字状コントラストについては、図 4-28(a)にてさらに明瞭なコントラストが確認できる)。これらの特徴的な MPPL コントラストの起源を as-grown-Na-GaN 表面の AFM 観察により調査した結果、結晶表面のモホロジーと密接に関連することが判明した。図 4-8(d)は図 4-8(c)のアスタリスクマーク近傍で取得した AFM 微分像である。アスタリスクマークと赤矢印は、図 4-8(c)と同じ位置に配置している。AFM の結果より、六角形対角線状のコントラストは対称性の高い六角錐ピラミッド状ヒロックの陵線に対応し、V 字状コントラストはこのピラミッド状ヒロックの斜面に形成された非対称的なヒロックと上記六角錐ヒロックの谷部分と合致することが明らかとなった。したがって、このような特徴的な MPPL コントラストが見られた場合、そこにはヒロックが存在する、ということを示す証拠となる。つまり、flat-Na-GaN は表面を研磨しているため表面形状からはヒロックの有無を判別できないが、MPPL 像から、上記コントラスト位置にはヒロックが存在していた、と結論付けることが出来る。対照的に、flat-Sa-GaN (図 4-8(a)) にはこのコントラストが見られなかったため、おそらく、この結晶にはヒロックが形成されていなかったと推察できる。図 4-8(b)及び(c)の結果より、赤矢印で示す全てのヒロック頂点にエッチピットまたは貫通転位が存在していた。図 4-8(b)の領域にてヒロック頂点のピット形状を確認したところ、興味深いことに、全て DA エッチピットであった。すなわち、図 4-3(e-1),(e-2)、及び図 4-4(a)、(b)、(d-3)に示したような 2 つの平行な混合転位ペアが、それを中心とするヒロックの形成源であることが明らかとなった。この結果は、これらの転位が c 成分のバーガースベクトルを持ち、らせん成分を有することを示した $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ 解析結果、及びバーガースベクトルの合計が $\mathbf{b}=2\mathbf{c}$ になっているとした推察と整合する。一般的に、らせん成分を持つ純らせん転位や混合転位はそれを起点としたスパイラル成長を促しヒロックの形成源となりやすいことが知られており、GaN においても多くの実験的証拠が示されている²³⁻²⁵。

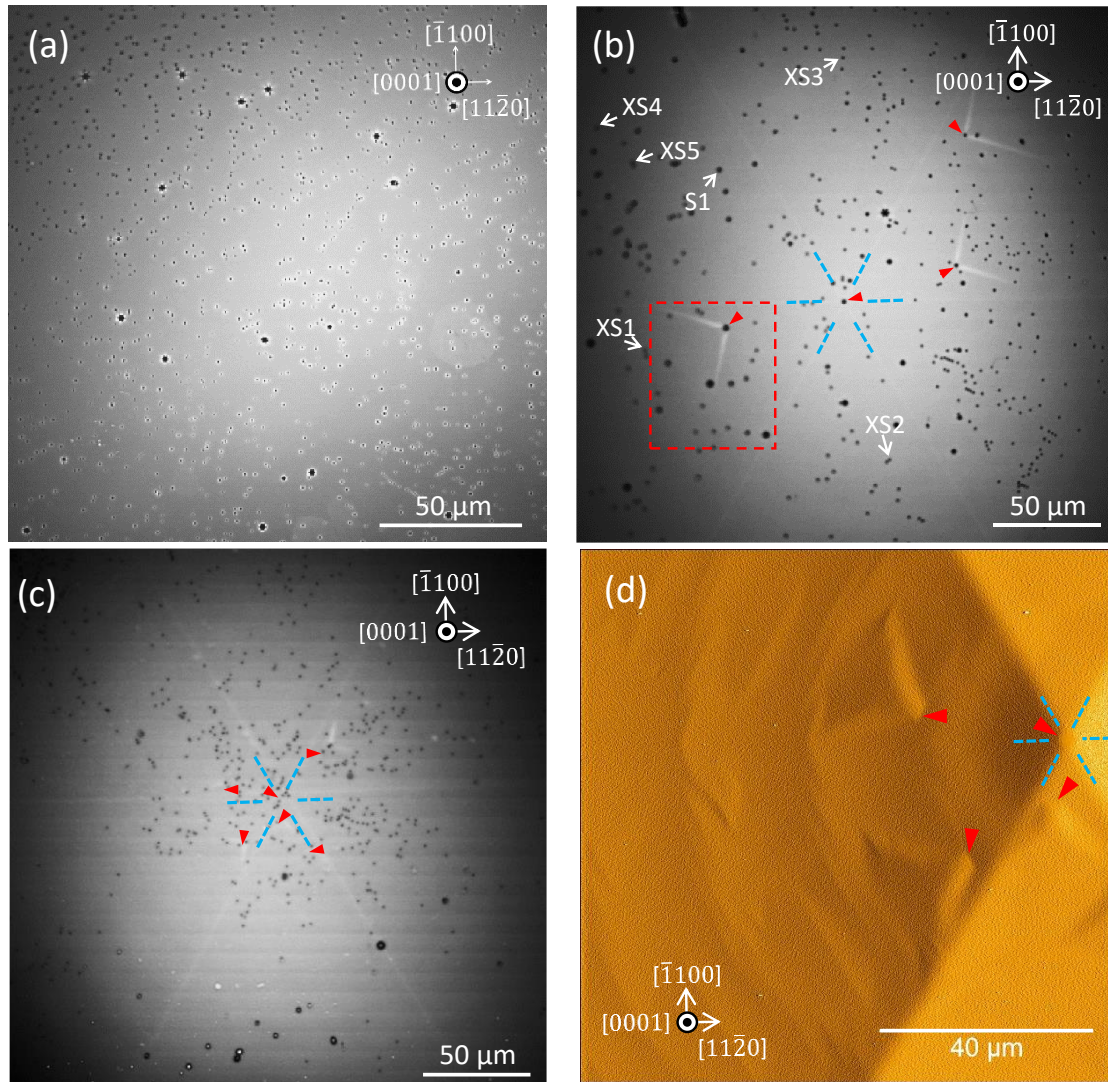


図 4-8 (a) flat-Sa-GaN、(b) flat-Na-GaN、及び(c) as-grown-Na-GaN 表面 MPPL 像。赤矢印は六角形対角線状明コントラストと V 字型の明コントラスト領域の頂点にあるエッチピット又は転位位置を示す。(d) (c)の六角形対角線コントラスト頂点周囲の AFM 微分像。赤矢印と青点線アスタリスクは(c)と同じ位置に配置されている。

4.4.2. エッチピットサイズと転位伝播挙動の関連性

図 4-9(a)は、flat-Na-GaN の深さ 111 μm から表面まで、 c 軸方向に沿って深さ 1.2 μm 間隔で得られた一連の MPPL マップの投影像である。この観測領域は、図 4-8(b)の赤点線囲みで示す領域である。また、図 4-9 (b)は同領域における 3 次元 MPPL 像をコントラスト反転することによって得られた、転位の 3 次元像である。これら図 4-9(a)と (b)の結果より、S、XS、および DA ピット下の転位は直線性が高い一方で、M ピット下の転位は数十 μm のスケールで蛇行する特徴的な形態を有していることが分かる(図 4-9(b)では M ピットを矢印で示す)。flat-Na-GaN の分析では、全ての M ピットが蛇行転位上に形成されており、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ のらせん転位が GaN バルク結晶内で蛇行しやすいことが明らかとなった。同様の $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ の蛇行転位は、as-grown-Na-GaN でも M ピット下に観察された。flat-Sa-GaN の場合、M ピット下の転位で LACBED により $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ と同定した転位 5 つのうち、4 つが蛇行形態を有していた(残り 1 つの転位は基本的に直線的で、途中で一度斜めに屈曲した形態を有していた)。蛇行するらせん転位は、ヘリカル転位という名称で古くから知られており、Si や GaAs 等の半導体結晶においては幾つか報告されている²⁶⁻²⁸。図 4-10(a)及び(b)には、Si 結晶と GaAs 結晶で観測されたヘリカル転位の報告例を示している^{26,27}。蛇行周期が数~数十 μm スケールとなっており、本 HVPE-GaN の蛇行転位とよく似ている。一方、GaN 結晶内でのヘリカル転位の観測例は少ない。唯一、ammonothermal 法によって育成された GaN バルク結晶内で、転位が高温アニールプロセスによりヘリカル形態へと変形することが Horibuchi らによって報告されているが、図 4-10(c)に示す通り、その蛇行周期はサブ μm スケールと非常に小さい²⁹。GaN 結晶において、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ を有する転位が数十 μm スケールで蛇行すること、そしてこの現象が種基板に依らず生じ得ることが、本研究により初めて明らかとなった。さらに、KOH+NaOH エッチングと MPPL を組み合わせて評価することによって、このような特異的な転位を高精度で識別できることも実証された。このデータは、エッチピット法及び MPPL を用いた簡易的転位種識別技術のデータベースとして、非常に有用な知見となる。

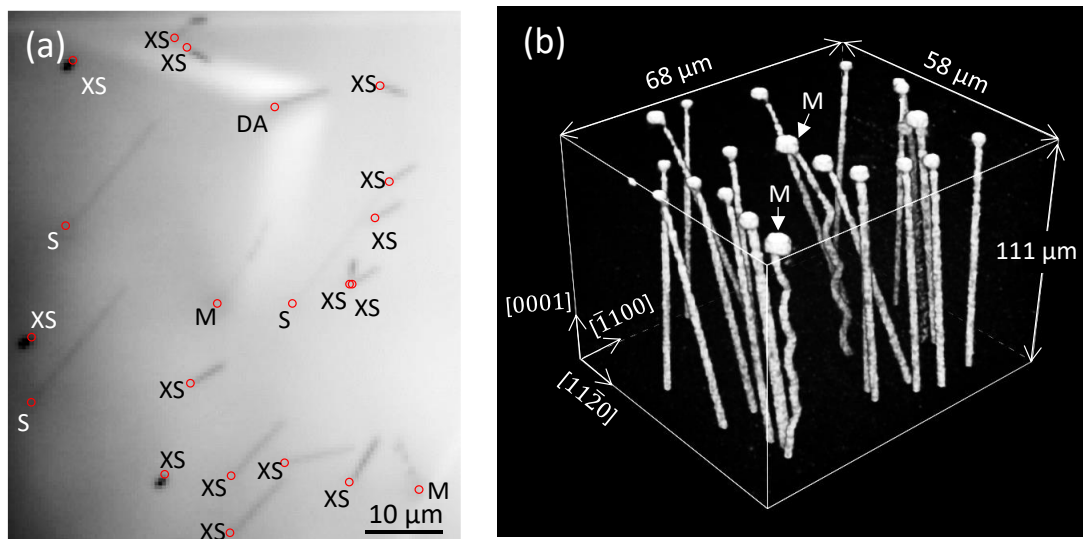


図 4-9 (a) flat-Na-GaN 表面から深さ 111 μm まで 1.2 μm 間隔で観察した一連の MPPL マップの c 軸方向投影像。(b) (a)と同領域の転位の 3 次元像。(a) 中の暗コントラスト線(転位)のエッチピット位置はサイズと共に赤円で示している。(b)中の白矢印は M ピット直下の転位を示す。(a)及び(b)は、図 4-8 (b)中の赤点線囲み領域で得られた。

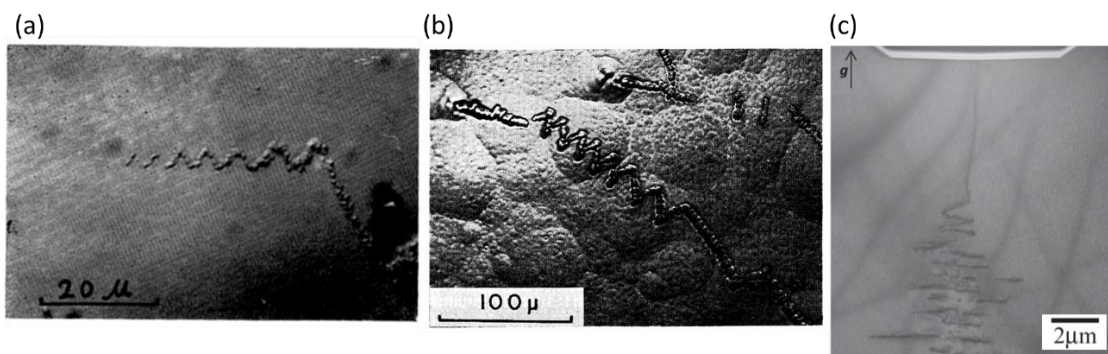


図 4-10 (a) Pt-diffused Si 単結晶²⁷、(b) Highly-Te-doped GaAs 単結晶²⁶、(c) 高温エピタキシャル成長後の Higly-oxygen-doped ammonothermal-GaN 単結晶基板²⁹中に観測されたヘリカル転位の報告例。(a)及び(b)はウェットエッチングにより表面の貫通転位部に形成されたエッチピットの光学顕微鏡像、(c)は $g=0002$ を用いて観察された断面明視野 TEM 像。

4.4.3. 蛇行転位の形態的特徴

図 4-11 には、MPPL で観察された幾つかの代表的な M サイズピット直下の転位形態を示している。いずれの転位も蛇行しながら伝播しているものの、各転位におけるスパイラル周期や振幅、転位の全体的な傾斜角度・方向は非常に多様であった。スパイラル周期も十～数十 μm まで多岐に渡り、一つの転位の中でもスパイラル毎に周期は異なっていた。

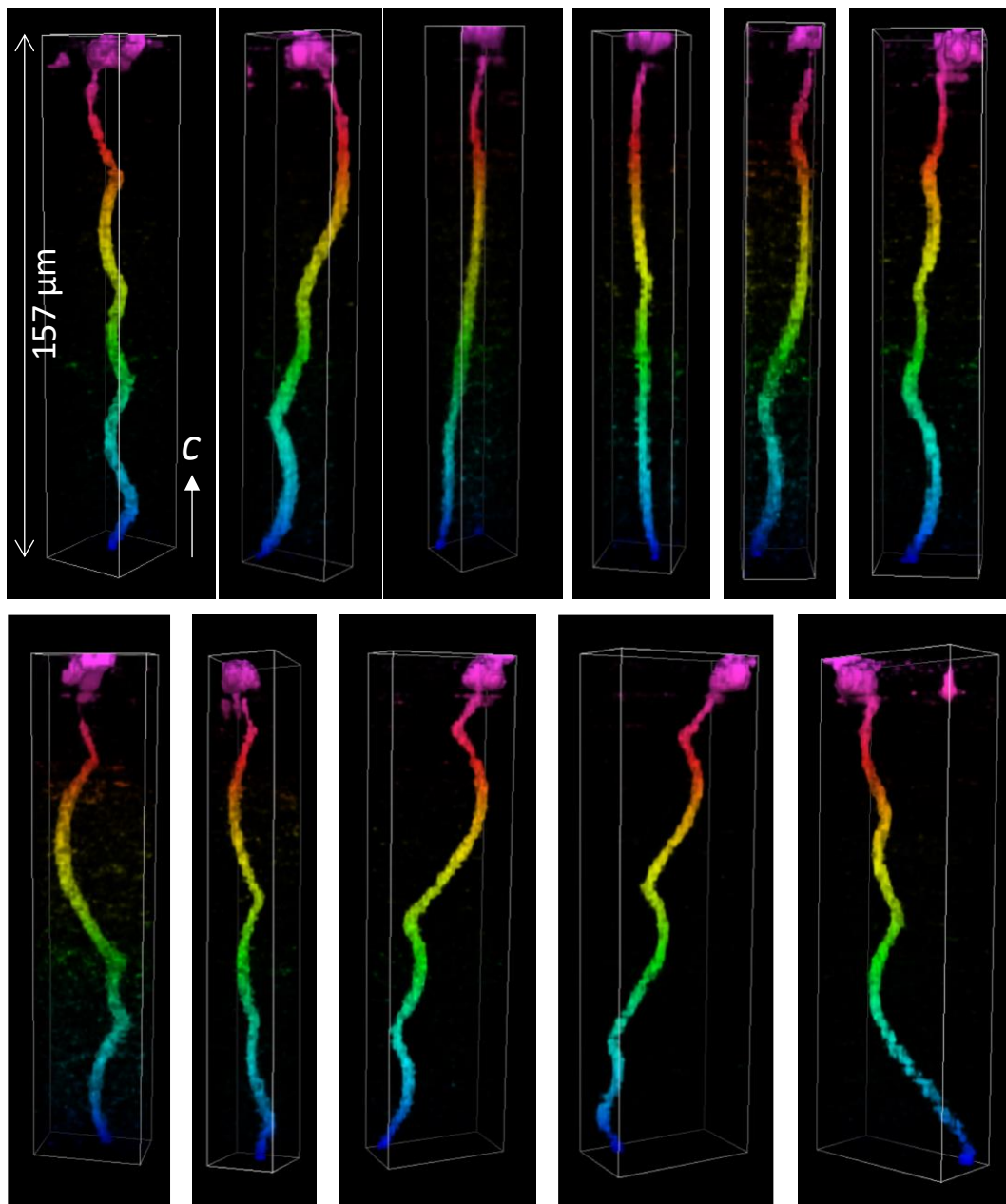


図 4-11 代表的な M ピット直下における蛇行転位の 3 次元的形態。

図 4-12(a-1)及び(b-1)は、LACBED 解析によりそれぞれのバーガースベクトルが $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ 及び $\mathbf{b}=-\mathbf{1c}$ と決定された、2つの蛇行転位の3次元 MPPL 像である。図 4-12(a-2)と(b-2)はこれらの3次元像を+c軸方向から観た像である。これらの転位は、一つ一つのスパイラルが非常に細長い渦巻き形態であり、一見 c 面に垂直なある特定の面内で蛇行していることから、縦波の様相で伝播しているように見える。32個のMピット直下貫通転位を解析した結果、9割の転位がこのような細長い渦巻き形態を有していた。

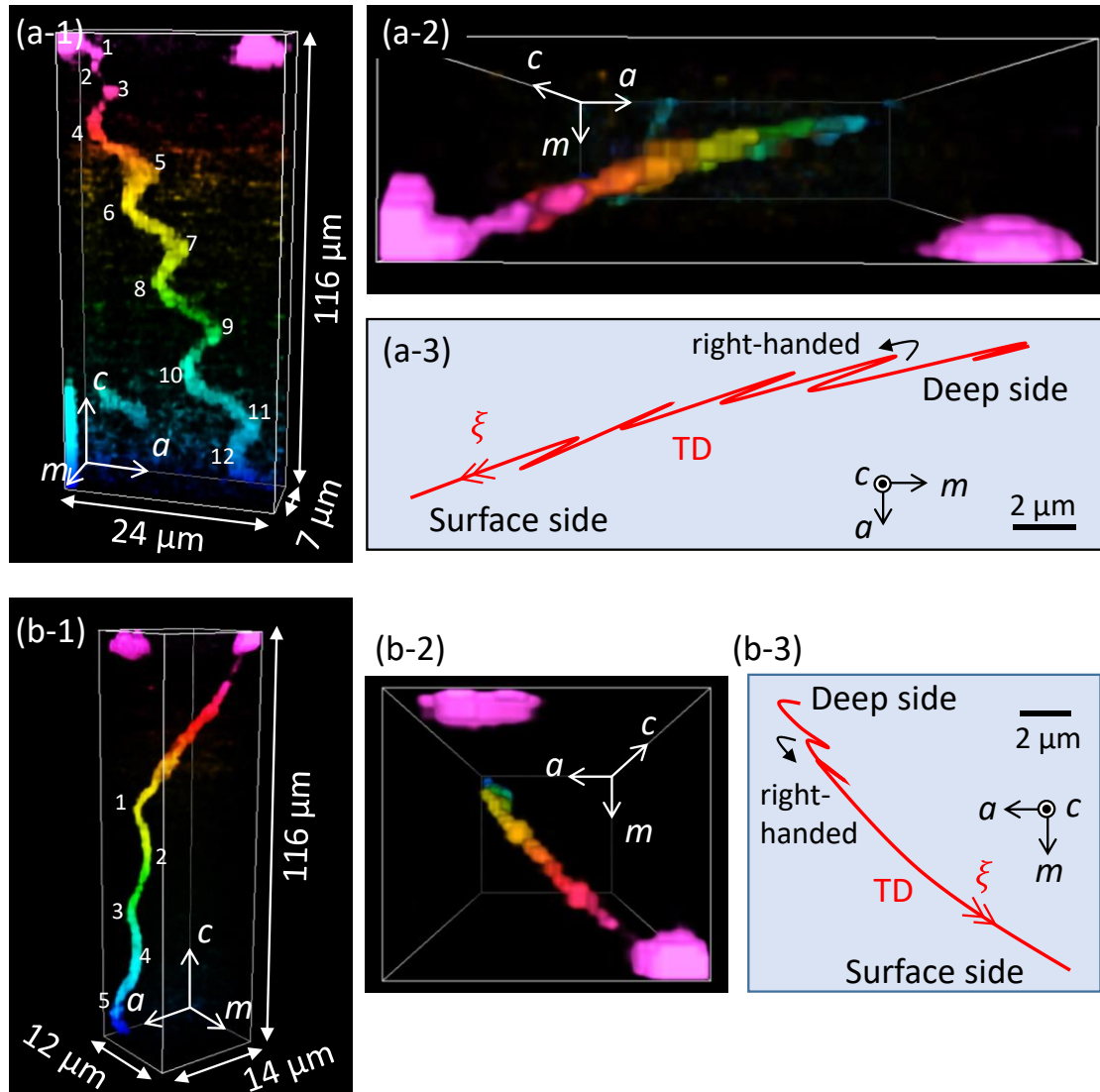


図 4-12 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ を有するヘリカル転位の(a-1) 3 次的形態と、(a-2) それを c 軸方向から観た像、及び(a-3) その模式図。 $\mathbf{b}=-\mathbf{1c}$ を有するヘリカル転位の(b-1) 3 次的形態と、(b-2) それを c 軸方向から観た像、及び(b-3) その模式図。

これら蛇行転位の全体的な傾斜方位や、ヒロックとの関連性については目立った特徴は見られなかったものの、転位のスパイラル数と全体的な傾斜角度の間には関連が見出された。図 4-13 は、MPPL で観測された 32 個の M ピット直下の蛇行転位それぞれについて、結晶表面と深さ $116\ \mu\text{m}$ における転位スポット間の距離 (D_d) と、スパイラル半周期の数 (N_h) を解析し、それらの関係性をプロットした結果である。スパイラル半周期数 N_h について、図 4-12(a-1) 及び (b-1) の転位を例にすれば、それぞれ 12 と 5 となる (図には半周期毎に数を表記している)。 D_d は、図 4-13 の挿入図に示す通り、 c 軸に対する蛇行転位全体の傾き (青破線) と概ね等価である。図 4-13 中の回帰直線 (赤破線) が示すように、 D_d が増加するにつれて N_h が増加する傾向が見られた。この結果より、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ または $\mathbf{b}=-\mathbf{1c}$ を持つ転位は、 c 軸から傾くほどスパイラル数が増加しやすいことが判明した。

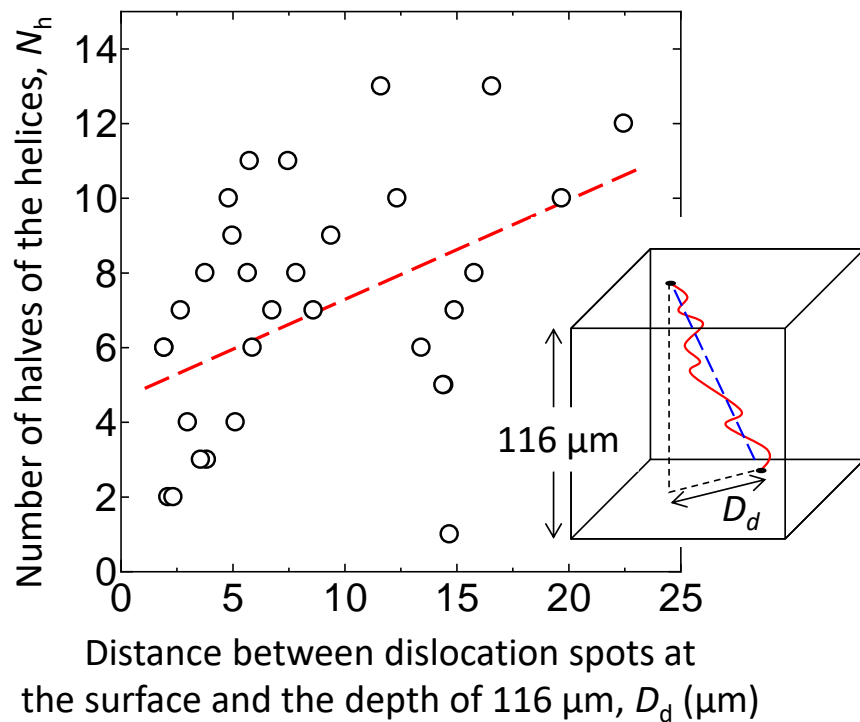


図 4-13 MPPL データに基づく、蛇行転位のスパイラル半周期数 (N_h) と深さ $116\ \mu\text{m}$ と表面における転位スポット間の距離 (D_d) の関係性。赤破線は最小二乗法で算出した回帰直線を示す。挿入図は D_d の定義を示す模式図。

4.4.4. 蛇行転位のヘリカルメカニズム

蛇行転位のヘリカルメカニズムを考察する上で、まず代表的な転位の運動である、climb 運動と slip 運動について説明する。図 4-14 にはこれら転位運動の概略模式図を示している。slip 運動とは、刃状転位がすべり面（転位線とバーガースベクトルの両方を含む面）の中で動くことである。slip は余剰半格子面 (extra half plane) を構成する原子数に変化を伴わないことから、保存運動と呼ばれる。一方、転位芯に空孔（あるいは格子間原子）が取り込まれた場合、図 4-14 のように余剰半格子面の原子が減り（増え）、その分だけ転位線がすべり面から逸脱する。空孔（格子間原子）が取り込まれた箇所転位線が元の位置から上昇（下降）するように動き、この現象が転位線方向に連鎖的に生じると転位は曲がっていく。この様に、余剰半格子面の原子数に変化が伴う climb 現象は、保存運動である slip 現象に対して、転位の非保存運動と呼ばれる。

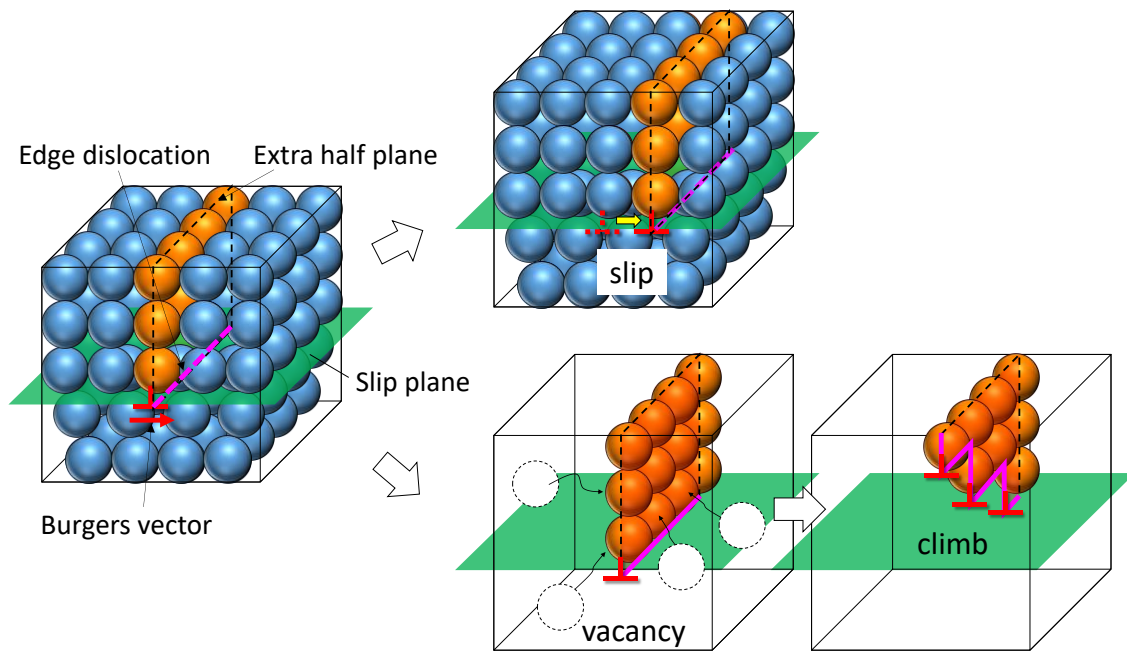


図 4-14 刃状転位の slip と climb の概略模式図。climb 運動については空孔吸収型を示している。

ヘリカル転位の形成メカニズムについては、幾つかのモデルが提唱されており、らせん転位にそれと同じバーガースベクトルを持つプリズマティック転位（バーガースベクトルがその面内から突出するループ型の転位）が組み込まれることでヘリカル構造化するモデル（図 4-15(a)）、転位の熱振動等で互いに逆方向の刃状成分を持つジグザク形状の転位が形成され、その部分で climb 運動が生じてヘリカル構造化するモデル

ル(図 4-15(b))、不純物原子等によってピン止めされた混合転位が climb 運動によって少しずつ湾曲することでヘリカル構造化するモデルなどがある(図 4-15(c))³⁰。プリズマティック転位とらせん転位の合体モデル以外では、基本的に転位の刃状成分で空孔、または格子間原子吸収を介した climb 運動によって転位が湾曲し、ヘリカル転位が形成される。一般的に、不純物原子濃度が高いと、溶質原子による転位のピン止めが生じやすくなり、ヘリカル構造化も生じやすくなると言われている²⁶。また、高温下で空孔や転位ループが形成されやすくなることも、ヘリカル転位形成を促進する一因として考えられている²⁸。

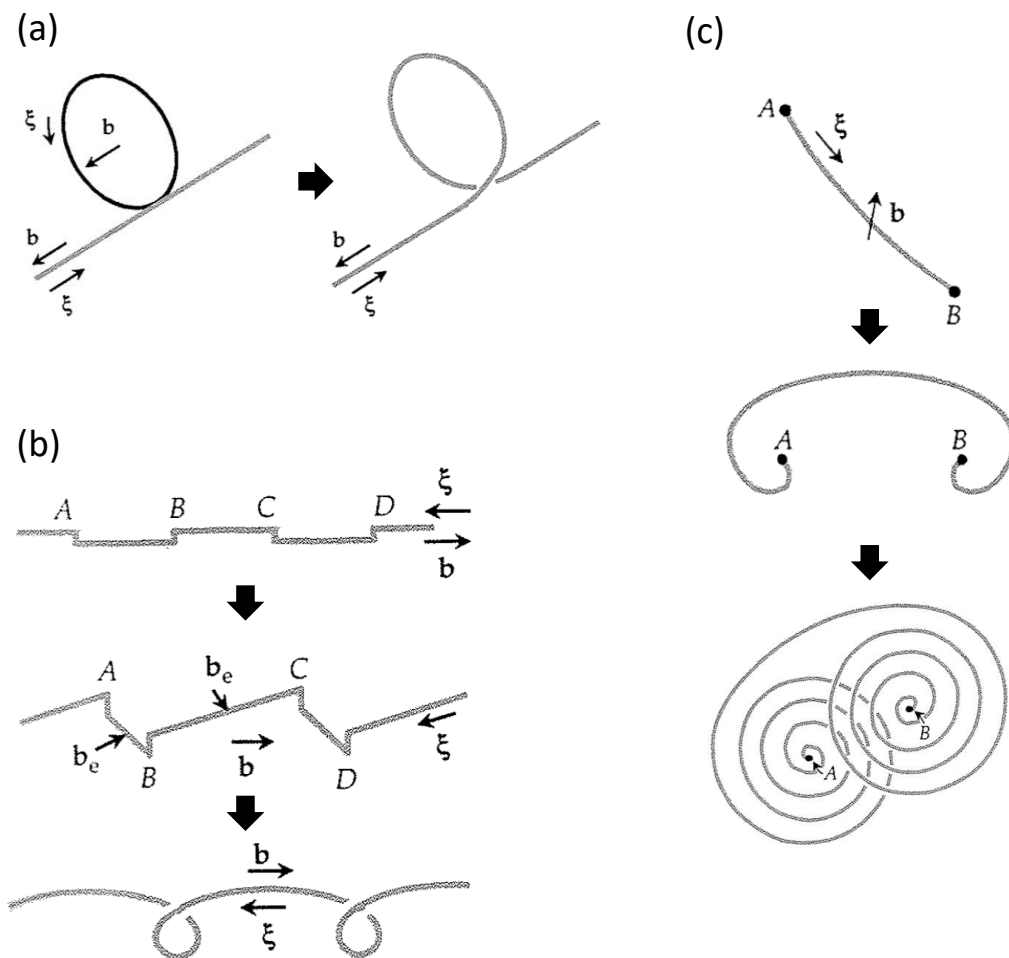


図 4-15 提唱されているヘリカル転位の形成モデル³⁰。(a)プリズマティック転位とらせん転位の合体モデル、(b)ジグザグ転位の climb 運動モデル、(c)ピン止めされた混合転位(AB 点でピン)の climb 運動モデル。 ξ 、 b_e はそれぞれ転位線の方
向、バーガースベクトル中で転位と垂直方向の関係にある成分(すなわち刃状成
分)を示す。(c)はピン止めされた転位がヘリカル構造化する様子を真上から見下
ろしている。

図 4-10(a)-(c)に示した Si 結晶²⁷、GaAs 結晶²⁶、及び ammonothermal-GaN バルク結晶²⁹には、それぞれ Pt 不純物、テルル (Te: Tellurium)、酸素不純物が意図的に高濃度ドーピングされていた (キャリア濃度; GaAs 結晶: $1.6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、ammonothermal-GaN 結晶: $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)。故に、これらのヘリカル転位は、転位が高濃度の不純物、あるいは高温下で発生した空孔を吸収し、climb 運動によって形成されたと主張されている。特に、参考文献[29]の ammonothermal-GaN 結晶中のヘリカル転位は、バルク結晶成長後の高温アニール (1100 °C) プロセス後に観測されたもので、ヘリカル転位芯部分には空孔偏析によって形成されたボイドが TEM によって多数観察されていた。故に、もともと直線形態だった転位芯に、高温アニールで生じた高濃度の空孔を吸収したことでヘリカル構造化したと考察されている。本研究で用いた HVPE-GaN 結晶については、Si-doped 結晶 (キャリア濃度: $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) と undoped 結晶のいずれのサンプルも、ammonothermal-GaN の報告とほぼ同様に、1050°C という高温下で成長された。いずれの HVPE-GaN サンプルでもヘリカル転位が見られたことから、不純物濃度はヘリカル構造化にあまり影響がなく、高温成長下で空孔形成や母体原子の移動が活発化し、これらが転位に吸収され climb 運動が起きたことで転位がヘリカル構造化した可能性が高い。実際、図 4-13 で見られた転位の傾斜とスパイラル半周期数の間位に見られた正の相関関係は、climb 運動を組み入れたモデルを用いて、直線的らせん転位の傾斜角度がヘリカル構造化した後の転位形態に及ぼす影響を数値計算により調査した先行研究結果と、定性的ではあるが合致していた³¹。すなわち、本研究で評価した HVPE-GaN 結晶においては、 $\mathbf{b} = \pm 1\mathbf{c}$ の転位は、多くの点欠陥との反応を経ながら結晶内を伝播してきたと言える。

この場合、バーガースベクトルの方向 ($1\mathbf{c}$ または $-1\mathbf{c}$) とヘリカル転位の回転方向 (right-handed または left-handed) の関係に基づいて、climb 運動過程で転位が空孔を吸収したのか、格子間原子を吸収したのかを決定できる。図 4-16 はらせん転位が right-handed もしくは left-handed ヘリカル形態に変化する様子を模式した図である。転位線の方法 ξ とバーガースベクトル \mathbf{b} が平行の場合、何らかの機構で刃状転位が形成され、その余剰半格子面に空孔 (格子間原子) が吸収された場合、転位は right-handed (left-handed) 方向に回転するヘリカル転位を形成する。対照的に、 ξ と \mathbf{b} が反平行の場合、刃状転位の余剰半格子面が図とは逆方向に形成されるため、空孔 (格子間原子) 吸収によって形成されるヘリカル転位の回転方向は、left-handed (right-handed) 方向となる。つまり、転位線の方法を $+\mathbf{c}$ の方向にとるように定義した場合、ヘリ

カル転位の回転方向、 \mathbf{b} 、空孔・格子間原子の関係性に、表 4-4 に示す法則が成り立つ。MPPL データからはヘリカル回転方向、LACBED からはその転位の \mathbf{b} を同定し、表 4-4 の法則により、空孔吸収型なのか、格子間原子吸収型なのかを決定できる。例えば、図 4-12(a-1)及び(b-1)に表す flat-Na-GaN 中 M ピット直下の転位は、それぞれ $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ と $\mathbf{b}=-\mathbf{1c}$ であることを LACBED により確認しており、その回転方向は図 4-12(a-3) 及び(b-3)の模式図に示す通り、どちらも right-handed 方向であった。故に、図 4-12(a-1)及び(b-1)の蛇行転位はそれぞれ空孔吸収、格子間原子吸収によって形成されたと考えられる。MPPL によって回転方向を判定できた 24 個の蛇行転位の内、right-handed ヘリカル及び left-handed ヘリカルはちょうど半数ずつ確認された。さらにその中で、4 つの right-handed 転位を LACBED 解析した結果、二つの転位が $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ (A.1 節に示す#32 及び#34)、残り二つが $\mathbf{b}=-\mathbf{1c}$ (A.1 節に示す#36 及び#37)であった。この結果より、前者二つは空孔吸収型、後者二つが格子間原子吸収型と決定され、flat-Na-GaN 中の蛇行転位形成には、空孔吸収型、格子間原子型のいずれのメカニズムも関与することが明らかとなった。

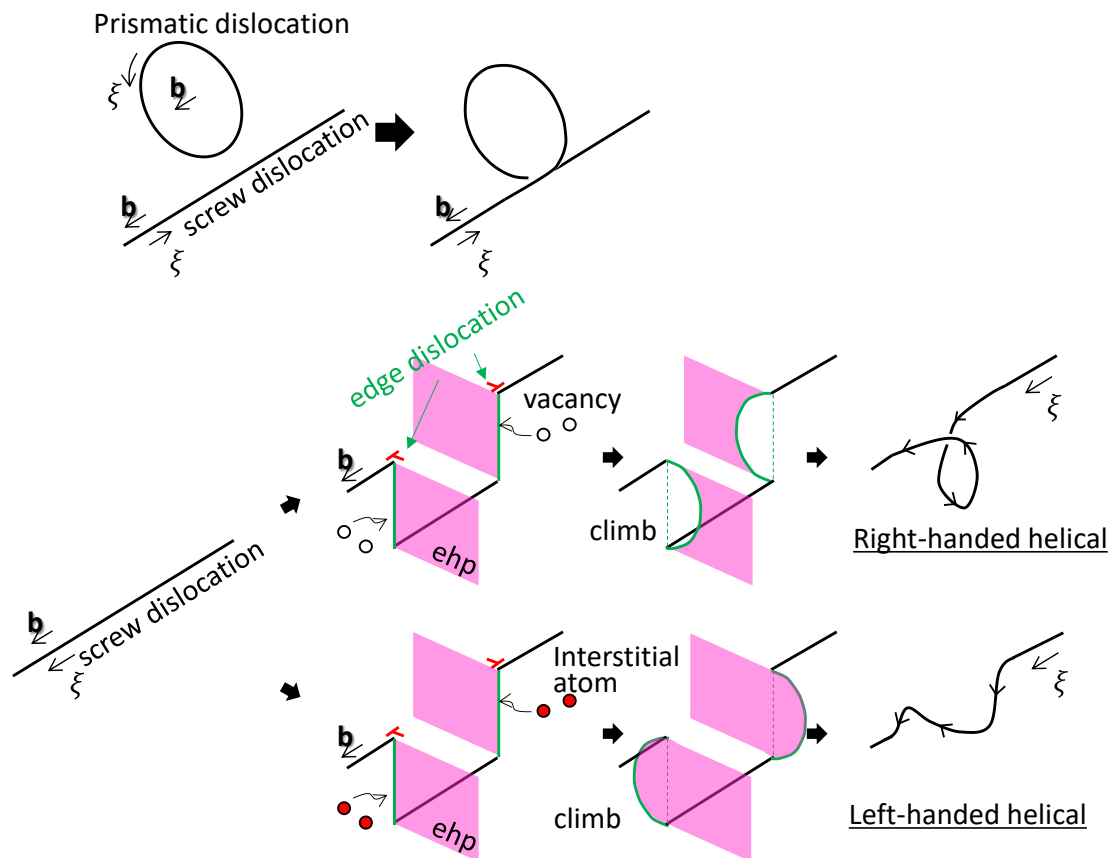


図 4-16 らせん転位の right-handed (上段) 及び left-handed (下段) ヘリカル構造化を表す模式図。

表 4-4 ヘリカル転位の回転方向、 \mathbf{b} 、空孔・格子間原子の関係。

	Right-handed	Left-handed
$\mathbf{b}=\mathbf{1c}$	Vacancy	Interstitial atom
$\mathbf{b}=-\mathbf{1c}$	Interstitial atom	Vacancy

最後に、本研究で観測された $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ (または $\mathbf{b}=-\mathbf{1c}$) を有する蛇行転位のヘリカル構造化モデルを示す。図 4-17 は、その概略模式図である。このモデルは、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ を持つ傾斜した直線転位、すなわち混合転位の状態から始まる (図 4-17(a))。各スパイラルが一見縦波の様相で非常に細長い渦巻形態となっていたことを踏まえると、元の混合転位を含む面に垂直な方向に、jog 運動等によって新たならせん転位セグメントと短い刃状転位セグメントが形成され (図 4-17(b)、図中の刃状転位セグメントは便宜上長めに描いている)、その後、刃状転位の余剰半格子面への空孔吸収による climb 運動を介して、刃状転位が元の混合転位傾斜方位と同方位に張り出すように湾曲していったと考えられる (図 4-17(c))。climb と同時並行的に、湾曲した刃状転位セグメントで転位のすべり (glide) 運動も生じ、徐々にらせん転位セグメントは消失していく (図 4-17(c))。その結果、最終的に全体として傾きを持ち、かつ各スパイラルが非常に細長い形態を有する、right-handed ヘリカル転位が形成される (図 4-17(d))。図 4-17 では $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ の空孔吸収型で説明したが、 $\mathbf{b}=-\mathbf{1c}$ や格子間原子吸収型の場合も、本質的には同じモデルで説明できる。このモデルに基づくと、各スパイラルの振幅には、元々の混合転位の傾斜角度だけでなく、刃状転位セグメントに吸収される空孔 (または格子間原子) 量も影響する。つまり、本研究で見られた蛇行転位形態の多様性は、 $\mathbf{b}=\pm\mathbf{1c}$ の転位間でも、さらには単一の転位の中でも、点欠陥との反応様式が非常に多様であったことを強く示唆している。

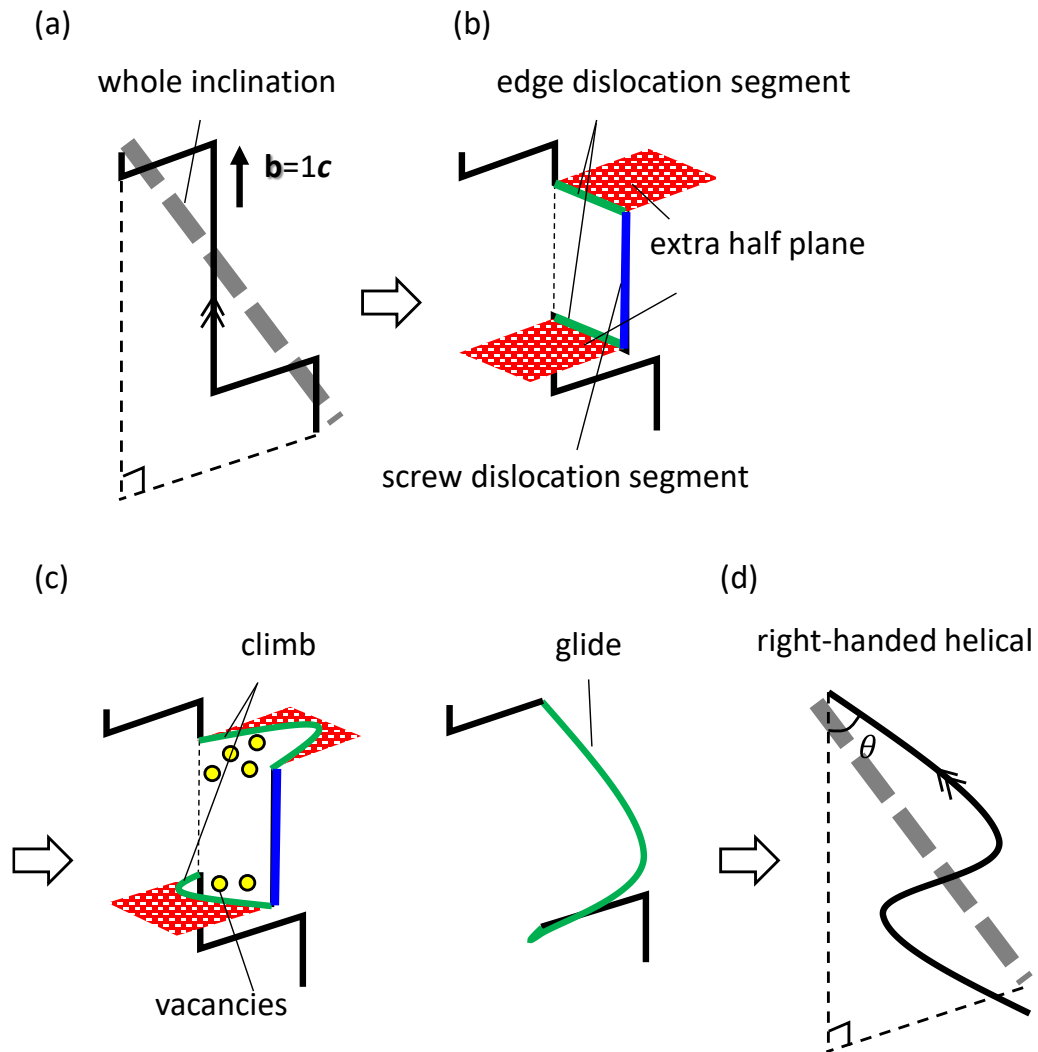


図 4-17 HVPE-GaN 結晶中に見られた蛇行転位のヘリカルモデル。(a) 傾斜した直線的な転位;(b) jog 運動で新たに刃状転位が形成;(c) 刃状転位の余剰半格子面に空孔が吸収され転位が湾曲し、かつ glide によってらせん転位部分が徐々に減少;(d) 全体的に傾斜した right-handed ヘリカル転位が形成。

4.4.5. 直線的転位の傾斜特性とヒロックが転位傾斜に及ぼす影響

図 4-9(a)中の 3 つの S ピットの転位に注目すると、全てが同様の方向に同様の距離だけ直線的に伝播している一方で、XS ピット下の直線転位の伝播方向・移動距離は多様である。このことから、転位傾斜挙動がこれらの転位のバーガースベクトルに依存している可能性がある。これら直線的転位の傾斜特性について洞察を深めるべく、各転位の c 軸から傾斜角度(極角)と傾斜方位、及びそれらのバーガースベクトルとの関連性を詳細に解析した。図 4-18(a)-(c)は、それぞれ図 4-8(a)-(c) (flat-Sa-GaN、flat-Na-GaN、as-grown-Na-GaN)の MPPL データから、直線的貫通転位の結晶成長方向に伴う移動距離と方位を抽出し、 c 軸からの傾斜角度と傾斜方位に変換した結果を極座標にプロットした結果である。これら 3 つの極座標の原点は、それぞれ深さ 47 μm 、111 μm 、100 μm における各貫通転位の位置と定義している。また、flat-Sa-GaN と flat-Na-GaN については、エッチピットサイズに基づいて各転位挙動をバーガースベクトルと紐づけた。図 4-8(a)-(c)のプロットでは、上記所定の深さから表面に至るまでの間に、曲がったり合体・分裂したりしていた転位は解析から除外していることに注意されたい。

flat-Na-GaN のプロットに注目すると、エッチピットサイズに応じて明らかに傾斜特性が異なっている(図 4-18(b))。L ($\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$) および DA ピット(混合転位ペア)下の転位の傾斜角度は約 4.5° 未満で、ほぼ c 軸方向と平行に伝播していた。他の領域においても L および DA ピットの転位は同様の伝播挙動を示した。S ピット($\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$)の場合、転位は大きな角度($6.6^\circ\sim 15.1^\circ$)で a 軸方向に傾斜していた。対して、XS ピット下($\mathbf{b}=\mathbf{1a}$)では小さい傾斜角度($0^\circ\sim 6.1^\circ$)で、点対称的な傾斜方位分布となっていた。続いて、flat-Sa-GaN に注目する(図 4-18(a))。L ピット($\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$)の転位については、flat-Na-GaN と同様で、他のピットサイズよりも小さな傾斜角($<6^\circ$)であった。しかしながら、S ピット($\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$)と XS ピット($\mathbf{b}=\mathbf{1a}$)の傾斜特性は、flat-Na-GaN とは明らかに異なり、S 及び XS ピット間で明瞭な違いを見出せなかった。S、XS ピットのどちらにおいても、一部の転位はある特定の方向に傾斜しやすい傾向があるものの(典型例を青矢印で示している)、転位のバーガースベクトルと傾斜特性の間に明確な相関関係は見られなかった。flat-Na-GaN と flat-Sa-GaN における S 及び XS ピット直下転位傾斜傾向の違いは、後に示すが、ヒロックの有無に起因していると考えられる。

図 4-18(c)の as-grown-Na-GaN の全体的な傾斜傾向は、flat-Na-GaN のそれと非常によく似ている。よって、as-grown-Na-GaN にはエッチピットはないものの、flat-Na-GaN の結果に基づくと、as-grown-Na-GaN における転位のバーガースベクトルを伝播挙動

から大方類推することが出来る。flat-Na-GaN では、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ の転位は a 軸方向に大きな角度で傾斜、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ の転位は小さな傾きで全方位 (点対称的な方位) に傾斜する傾向があった。これに基づくと、as-grown-Na-GaN では黒色のプロットが $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 、それ以外のプロット (橙、グレー、緑色) が $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ と推定される。後者の $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ (橙、グレー、緑色) のプロットには $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ の転位がいくつか含まれる可能性があるが、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位の数は、 $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ の数よりもはるかに多いと考えられるため、これらのプロット分布は $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位の特徴を反映していると考えられる。図 4-18(d) に示す $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位の c 軸からの傾斜角度ヒストグラムから、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位はさらに 3 つのグループ ($0\sim 1.1^\circ$ 、 $1.1\sim 2.5^\circ$ 、 $1.1\sim 2.5^\circ$) に分類できる。ここでは、 $0\sim 1.1^\circ$ の転位群を LIG (low-inclination-group)、 $1.1\sim 2.5^\circ$ を MIG (medium-inclination-group)、そして $1.1\sim 2.5^\circ$ を HIG (high-inclination-group) と称する。 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 転位については、 6.8° 以上の傾斜角度で、flat-Na-GaN と同様で、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ よりも大きな角度で傾斜していた。

図 4-8(b) 及び (c) で示されたように、図 4-18(b) 及び (c) (flat-Na-GaN 及び as-grown-Na-GaN) の分析領域には大きな六角錐ピラミッド状ヒロックが存在していた。これらヒロック傾斜面が転位の傾斜特性に与える影響を評価するために、ヒロック頂点位置に対する各転位の空間分布と傾斜方位・角度を解析した。その結果を図 4-18(e) に示している。ここでは、ヒロック頂点を xy 座標の原点とし、深さ $100\ \mu\text{m}$ から結晶表面までの各転位の動きを矢印で示している (矢印先端が結晶表面での転位の位置を示す)。矢印の色は図 4-18(c) で定義した配色に対応している。MIG 及び HIG に属する $1\mathbf{a}$ 転位の大部分が、明らかに六角形状ヒロック頂点に対して放射状に傾斜している。これは、 $1\mathbf{a}$ 転位がヒロック斜面と同方位に傾きやすい、ということを意味する。従って、図 4-8 (c) で見られた MIG 及び HIG 転位傾斜プロットの対称的な分布は、ヒロック斜面の存在に起因していると結論付けられる。対照的に、黒矢印で表す $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ の転位は、同じヒロック斜面上でも多様な a 軸方向に傾斜している。すなわち、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 転位の傾斜特性は、ヒロック斜面の“傾斜方位”の影響をほとんど受けないといえる (ただし、ヒロック斜面の“傾斜角度”は $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 転位の“極角”に影響する。これについては 4.4.7 項で詳述する)。

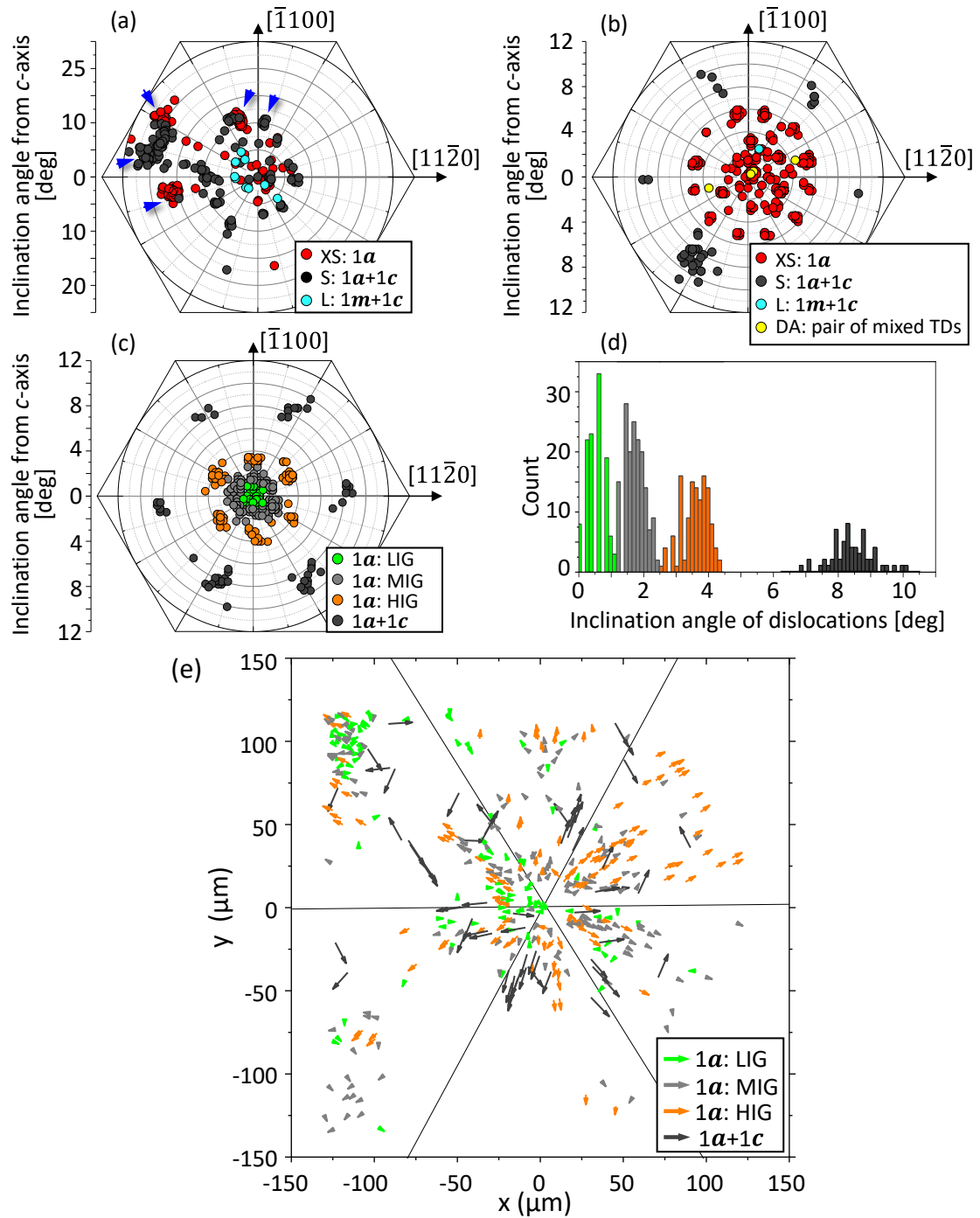


図 4-18 (a) flat-Sa-GaN、(b) flat-Na-GaN、(c) as-grown-Na-GaN における直線的貫通転位の傾斜方位及び c 軸からの傾斜角度の極座標プロット。(a)-(c)の結果は、それぞれ図 4-8(a)-(c)の MPPL データから抽出した。(d) (c)中の転位傾斜角度のヒストグラム。(e) as-grown-Na-GaN 表面における貫通転位の空間分布、及び深さ $100 \mu\text{m}$ から表面までの直線転位の動き。(e)の原点は、図 6(c)の対称六角形状ヒロックの頂点とし、稜線を黒実線で示している。矢印の長さで各転位の移動距離と方向を表している。

4.4.6. $\mathbf{b=1a}$ 及び $\mathbf{b=1a+1c}$ 転位の傾斜方位とバーガースベクトルの関係

前項では、 $\mathbf{b=1a}$ 及び $\mathbf{b=1a+1c}$ 転位の傾斜特性にヒロックが影響することを示した。本項では、これらの転位傾斜特性にバーガースベクトルの方向も影響するのかどうか、flat-Na-GaN における転位の LACBED および MPPL データをより詳細に解析することによって評価した。図 4-19(a)-(f)は、flat-Na-GaN の MPPL データ(図 4-8(b))から抽出した 5 つの XS ピット(XS1~XS5)と 1 つの S(S1)ピット直下の転位の c 面投影像である。図 4-8(b)には、これら 6 つの転位位置を示している。転位の傾斜角度に基づくと、XS1 は LIG、XS2 と XS3 は MIG、そして XS4 と XS5 は HIG の $\mathbf{b=1a}$ 転位に分類される。図 4-20 に、XS1~XS5 と S1 ピットの転位周囲で観察された LACBED 像と解析の結果算出されたバーガースベクトルをまとめている。この結果、XS1 は $\mathbf{b=1/3 [2\bar{1}\bar{1}0]}$ 、XS2 は $\mathbf{b=1/3 [\bar{1}2\bar{1}0]}$ 、XS3 は $\mathbf{b=1/3 [1\bar{2}10]}$ 、XS4 は $\mathbf{b=1/3 [\bar{2}110]}$ 、XS5 は $\mathbf{b=1/3 [11\bar{2}0]}$ 、S1 は $\mathbf{b=1/3 [\bar{1}2\bar{1}\bar{3}]}$ と決定された。図 4-19(a)-(f)には、算出されたバーガースベクトルの \mathbf{a} 方位を青矢印で示している。図 4-19(f)より、S1 ピットの転位は、バーガースベクトルの \mathbf{a} 成分と反平行な方向に傾斜していることが分かる。この“反”平行の関係は、4.4.7 項で説明するように、バーガースベクトルの $[000\bar{1}]$ 成分に起因する。この LACBED 結果と、 $\mathbf{b=1a+1c}$ の転位が \mathbf{a} 軸方向にのみ傾斜していた MPPL 解析結果を統合すると、 $\mathbf{b=1a+1c}$ の転位は自身のバーガースベクトルの \mathbf{a} 成分に平行または反平行に傾斜しているものと考えられる。これについては、ホモエピタキシャル GaN 薄膜でも同様の結果が報告されている¹¹。S1 ピットとは対照的に、XS1~XS5 ピット直下の 5 つの $\mathbf{b=1a}$ 転位については、バーガースベクトル方向とは関係なく、多様な方位に且つ多様な傾斜角度で傾いており、バーガースベクトルと傾斜特性間の相関はあまり見られなかった(図 4-19(a)-(e))。例えば、XS4 及び XS5 ピットの転位の比較からは転位の傾斜方位とバーガースベクトル方向の関係性が弱いことが読み取れる。これらの転位は六角形状ヒロックの同一斜面の下で、 $[\bar{2}110]$ と $[\bar{1}\bar{1}20]$ 間の同様の方位に傾斜しているが、バーガースベクトル方向は全く異なっている。また、XS4 および XS5 ピットの転位は共に HIG に属し、同様の角度で傾斜するものの、バーガースベクトルと傾斜方位の成す角度は大きく異なることから、傾斜角度とバーガースベクトルの相関も弱いことが分かる。これは、XS2・XS3 (MIG)ピットと XS5 (HIG)ピットの比較からも分かる。これらはバーガースベクトルと傾斜方位の成す角度がほぼ同じであるにも拘らず、異なる傾斜角度で傾いている。

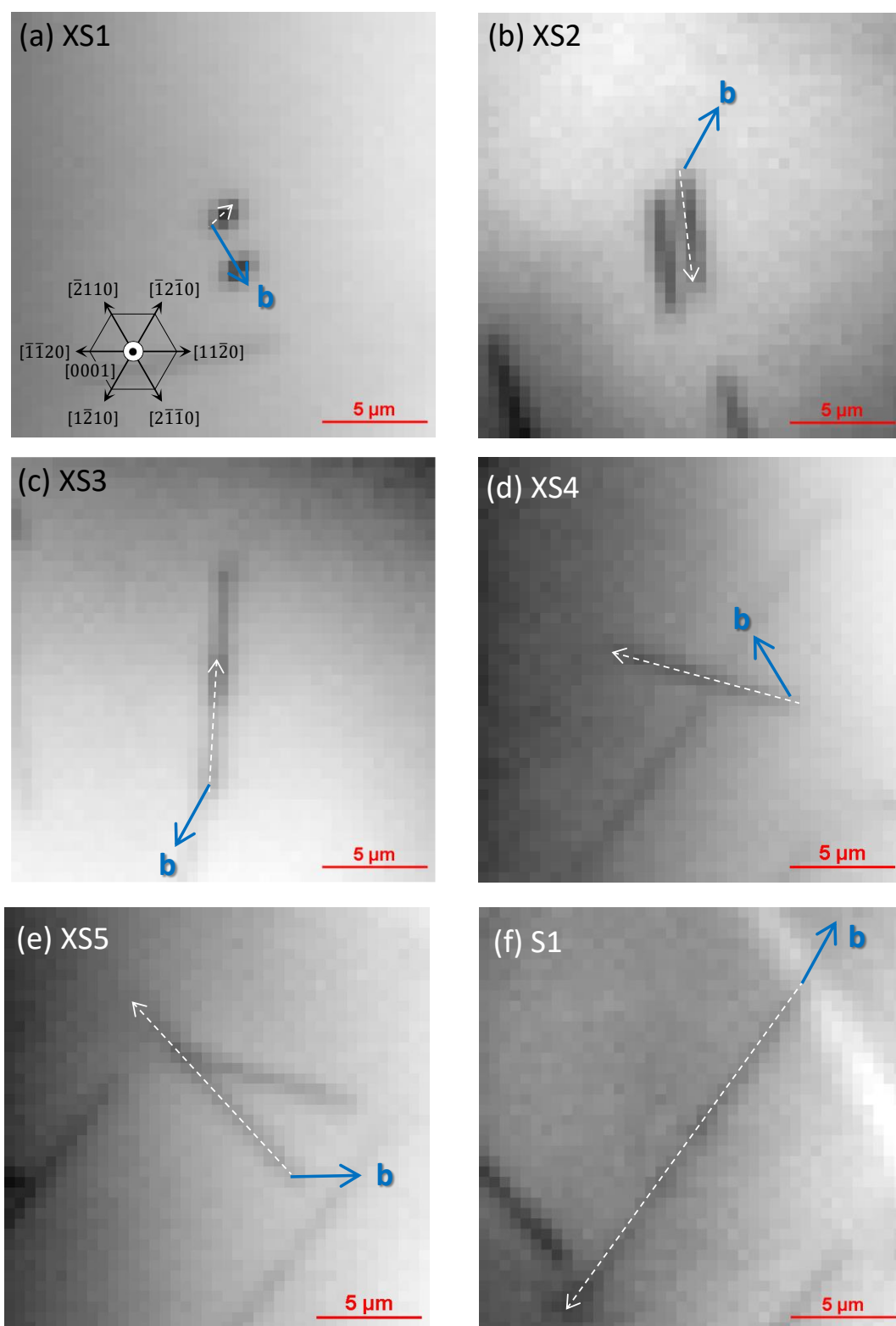


図 4-19 図 4-8(b)の MPPL 像に示す(a) XS1、(b) XS2、(c) XS3、(d) XS4、(e) XS5 (f) S1 エッチピット直下の転位の面内投影像。

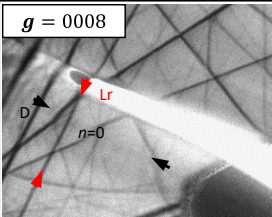
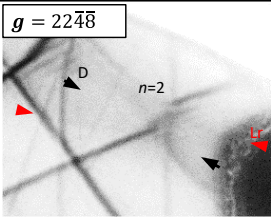
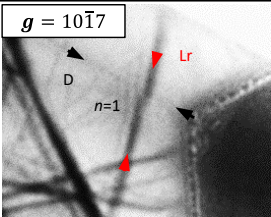
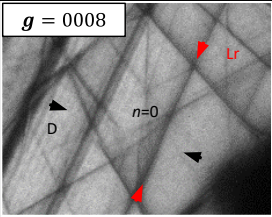
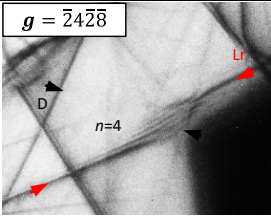
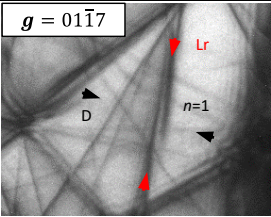
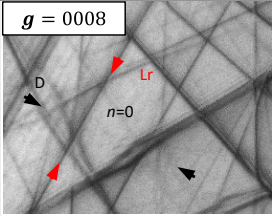
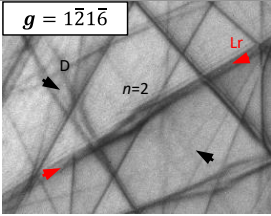
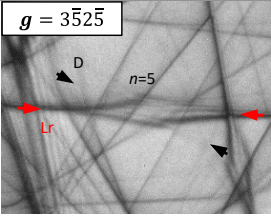
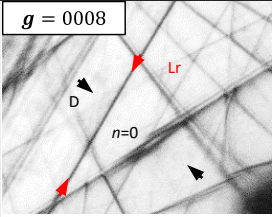
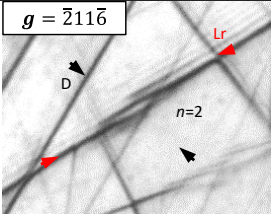
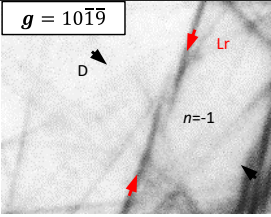
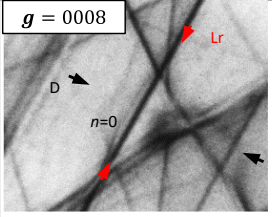
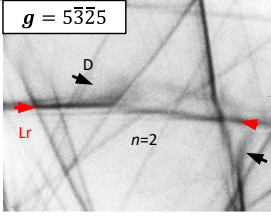
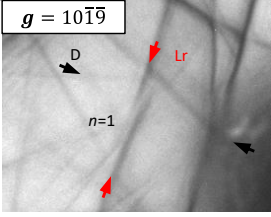
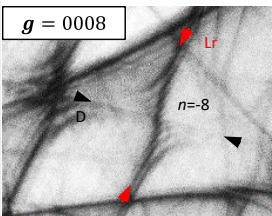
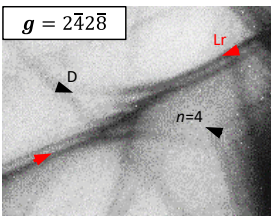
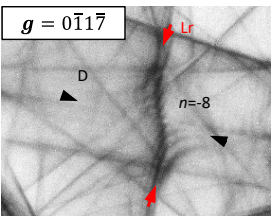
	LACBED patterns			b
XS1				$1/3 [2\bar{1}\bar{1}0]$
XS2				$1/3 [\bar{1}2\bar{1}0]$
XS3				$1/3 [1\bar{2}10]$
XS4				$1/3 [\bar{2}110]$
XS5				$1/3 [11\bar{2}0]$
S1				$1/3 [\bar{1}2\bar{1}\bar{3}]$

図 4-20 XS1、XS2、XS3、XS4、XS5、S1 ピット直下の転位周囲で観察された明視野 LACBED 像と算出されたバーガースベクトル。図の g 、 D 、 Lr 、 n は図 4-5 と同義。

$\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 及び $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ の転位の傾斜特性について纏める。MPPL にてヒロックが見出されなかった flat-Sa-GaN においては、 $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 及び $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ の転位で、明確な傾斜特性の違いは見られなかった。一方で、Na フラックス基板上的 HVPE サンプルである flat-Na-GaN と as-grown-Na-GaN における $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 及び $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ の転位傾斜特性は六角形状ヒロックと密接に関連していた。 \mathbf{c} 軸からの傾斜角度に基づく $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 転位は LIG、MIG、HIG の 3 グループに分類された。LIG グループの転位は \mathbf{c} 軸とほぼ平行に伝播する一方、MIG と HIG グループの転位は、バーガースベクトルとは無関係にヒロック斜面の傾斜方位に傾きながら伝播していた。対照的に、 $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ 転位は、ヒロック斜面の傾斜方位に依らず、自身の \mathbf{a} 成分バーガースベクトル成分と平行又は反平行方向に傾いて伝播していた。

4.4.7. 弾性論に基づく転位傾斜の理論計算

$\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ と $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ の転位がそれぞれ異なる傾斜挙動を示す原因を明らかにするため、等方性弾性論に基づいた転位傾斜の理論計算を行った。図 4-21(a)は六角形状ヒロックと傾斜する貫通転位の模式図である。ここで、ヒロック面成長方向、バーガースベクトル、転位傾斜方向をそれぞれベクトル \mathbf{G} 、 \mathbf{b} 、 $\boldsymbol{\xi}$ として定義すると、これらの関係は、図 4-21(b)に示すような極座標系 $(1, \theta, \varphi)$ で表すことができる。図 4-21(b)ではさらに簡易的に円座標系 (θ, φ) で表記している。等方性弾性理論に基づく、転位の弾性エネルギー E は、 $\mathbf{G}=(\theta_G, \varphi_G)$ 、 $\mathbf{b}=(\theta_b, \varphi_b)$ 、 $\boldsymbol{\xi}=(\theta_\xi, \varphi_\xi)$ を用いて次のように表される³²。

$$E \propto \frac{1}{\cos\alpha} \left(\cos^2\beta + \frac{\sin^2\beta}{1-\nu} \right), \quad (4.1)$$

ν はポアソン比である。 α 及び β はそれぞれ $\boldsymbol{\xi}$ と \mathbf{G} 及び $\boldsymbol{\xi}$ と \mathbf{b} のなす角度であり、 (θ_b, φ_b) 、 $(\theta_\xi, \varphi_\xi)$ 、 (θ_G, φ_G) を用いて

$$\cos\alpha = 1 - \frac{1}{2} \left\{ \left(\sin\theta_G \cos\varphi_G - \sin\theta_\xi \cos\varphi_\xi \right)^2 + \left(\sin\theta_G \sin\varphi_G - \sin\theta_\xi \sin\varphi_\xi \right)^2 + \left(\cos\theta_G - \cos\theta_\xi \right)^2 \right\} \quad (4.2)$$

$$\cos\beta = 1 - \frac{1}{2} \left\{ \left(\sin\theta_b \cos\varphi_b - \sin\theta_\xi \cos\varphi_\xi \right)^2 + \left(\sin\theta_b \sin\varphi_b - \sin\theta_\xi \sin\varphi_\xi \right)^2 + \left(\cos\theta_b - \cos\theta_\xi \right)^2 \right\} \quad (4.3)$$

と表せる。従って、弾性エネルギー E は (4.1) 式において任意の (θ_b, φ_b) 、 $(\theta_\xi, \varphi_\xi)$ 、 (θ_G, φ_G) を与えることで計算できる。理論的な転位の傾斜角度及び傾斜方位は、最小

の弾性エネルギー E を与える $(\theta_{\xi, \min}, \varphi_{\xi, \min})$ を求める形で得られる。ここで、 $(\theta_{\mathbf{b}}, \varphi_{\mathbf{b}})$ は、GaN の結晶学的な構造から決まり、 $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ については $(\theta_{\mathbf{b}}, \varphi_{\mathbf{b}}) = (90^\circ, 0^\circ)$ 、 $(90^\circ, \pm 60^\circ)$ 、 $(90^\circ, \pm 120^\circ)$ 、 $(90^\circ, 180^\circ)$ 、 $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ については $(\theta_{\mathbf{b}}, \varphi_{\mathbf{b}}) = (31.6^\circ, 0^\circ)$ 、 $(31.6^\circ, \pm 60^\circ)$ 、 $(31.6^\circ, \pm 120^\circ)$ 、 $(31.6^\circ, 180^\circ)$ で与えられる。上記の $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ の対称ベクトルである $(148.4^\circ, 0^\circ)$ 、 $(148.4^\circ, \pm 60^\circ)$ 、 $(148.4^\circ, \pm 120^\circ)$ 、 $(148.4^\circ, 180^\circ)$ は、それぞれの対称ベクトルと全て等価なため、本項の計算では省略する。ヒロック面の垂直方向である $\mathbf{G}=(\theta_{\mathbf{G}}, \varphi_{\mathbf{G}})$ は、ヒロック形状を実験的に観察して得た。図 4-22(a)及び(b)は as-grown-Na-GaN に存在する六角形状ヒロックの SWLIM 像、及びヒロック斜面の c 面からの傾斜角度のヒストグラムである。この結果から、ヒロック斜面の方位 $\varphi_{\mathbf{G}}$ は $\pm 30^\circ$ 、 $\pm 90^\circ$ 、 $\pm 150^\circ$ 、斜面傾斜角度 $\theta_{\mathbf{G}}$ は 0.5° 前後であることが判明した。計算では、 $\varphi_{\mathbf{G}}$ については $\pm 30^\circ$ のみを用い、 $\theta_{\mathbf{G}}$ は 0.5° 近傍の値をパラメータとして用いて計算を行った。ポアソン比には報告値 $\nu = 0.198$ を用いた³³。

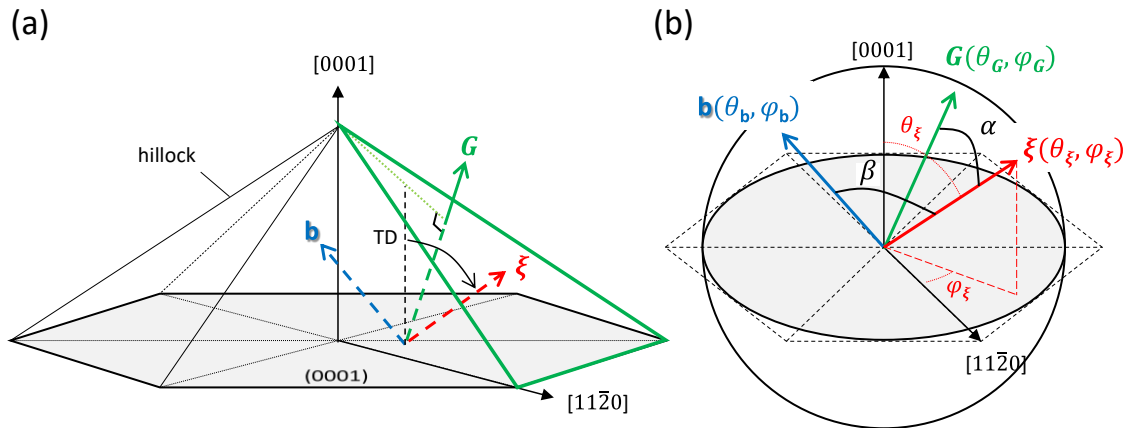


図 4-21 (a) 六角形状ヒロックと傾斜する貫通転位(図中 TD で表示)の模式図。ヒロック面成長方向、バーガースベクトル、転位傾斜方向をそれぞれベクトル \mathbf{G} 、 \mathbf{b} 、 ξ で示す。(b) 球面座標系 $(1, \theta, \varphi)$ における \mathbf{G} 、 \mathbf{b} 、 ξ の関係。 θ と φ はそれぞれ $[0001]$ からの極角と $[11\bar{2}0]$ からの方位角として定義している。(b)では、極座標系を簡易的に円極座標系 (θ, φ) で表し、 \mathbf{G} 、 \mathbf{b} 、 ξ をそれぞれ $(\theta_{\mathbf{G}}, \varphi_{\mathbf{G}})$ 、 $(\theta_{\mathbf{b}}, \varphi_{\mathbf{b}})$ 、 $(\theta_{\xi}, \varphi_{\xi})$ と表記している。

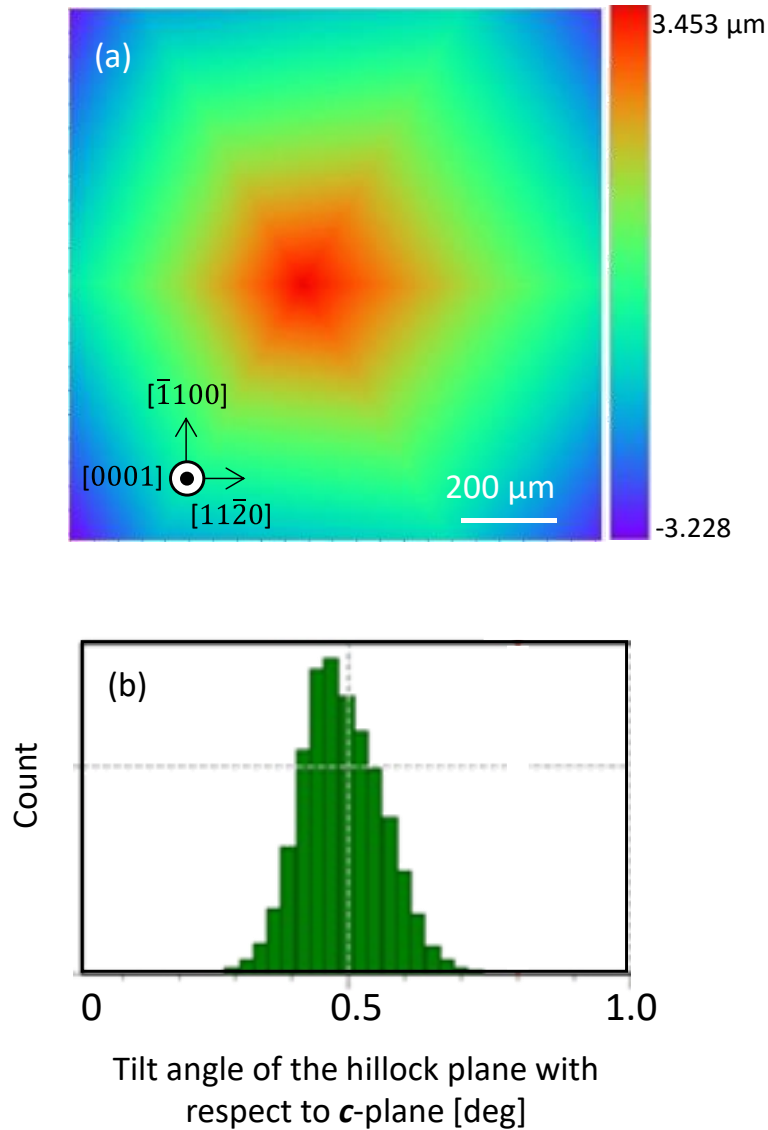


図 4-22 SWLIM によって得られた(a) ヒロック表面の形状像と(b) ヒロック斜面の c 面からの傾斜角度のヒストグラム分布。

斜面方位 $\varphi_G = \pm 30^\circ$ 及び斜面傾斜角度 $\theta_G = 0^\circ, 0.5^\circ, 1^\circ, 2^\circ, 3^\circ$ とした際の、計算結果 $(\theta_{\xi, \min}, \varphi_{\xi, \min})$ を円座標プロットとして図 4-23 に示す。 $\mathbf{b} = \mathbf{1a} + \mathbf{1c}$ 転位の結果が図 4-23(a) 及び (b)、 $\mathbf{b} = \mathbf{1a}$ 転位の結果が図 4-23(c) 及び (d) であり、ヒロック斜面方位 $\varphi_G = 30^\circ$ と $\varphi_G = -30^\circ$ の結果は、それぞれ図 4-23(a) と (c)、及び図 4-23(b) と (d) に対応する。各プロット左下挿入図に、各 φ_G に対応するヒロック面をハッチ模様で示している。また、右下挿入図は計算で用いたバーガースベクトルを示し、矢印配色はプロットの配色と対応する。

図 4-23(a)及び(b)より、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ の場合、斜面方位 $\varphi_{\mathbf{G}}=30^\circ$ と $\varphi_{\mathbf{G}}=-30^\circ$ 共に、バーガースベクトルの \mathbf{a} 成分と同じ \mathbf{a} 軸方向に傾き、ヒロック斜面傾斜角度 $\theta_{\mathbf{G}}$ が $0-3^\circ$ の範囲で顕著な違いは見られない。ここでは計算結果を省略しているが、 $(\theta_{\mathbf{b}}, \varphi_{\mathbf{b}})=(148.4^\circ, 180^\circ)$ 、 $(148.4^\circ, \mp 120^\circ)$ 、 $(148.4^\circ, \mp 60^\circ)$ 、 $(148.4^\circ, 60^\circ)$ 、 $(148.4^\circ, 0^\circ)$ の場合(すなわちバーガースベクトルの \mathbf{c} 成分が $[000\bar{1}]$)は、転位はバーガースベクトルの \mathbf{a} 成分と反対の \mathbf{a} 軸方向に傾く結果となった。これらの結果より、理論的に、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 転位はバーガースベクトルの \mathbf{a} 成分と平行または反平行方向に傾きやすく、さらに、ヒロック斜面方位の影響をあまり強く受けないことが明らかとなった。この計算結果は、LACBED 及び MPPL で得られた実験結果と合致する。さらに、 $\theta_{\mathbf{G}}=0.5^\circ$ の際の理論転位傾斜角度 $\theta_{\xi, \min}$ (星形プロット)は $9.1\sim 9.8^\circ$ であり、MPPL 観察値 $6.8-10.1^\circ$ (図 4-18(c) 及び(d))と数値的にも合致する。対して、図 4-23(c)及び(d)より、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位は概ね $\varphi_{\mathbf{G}}$ と同様の方位に傾斜する計算結果となった。この結果 180 は、図 4-18(c)及び(e)に示した MIG 及び HIG の MPPL 分析結果と合致する。 $(\varphi_{\mathbf{b}}=180^\circ, -120^\circ, -60^\circ)$ のプロット結果はそれぞれ $\varphi_{\mathbf{b}}=0^\circ, 60^\circ, 120^\circ$ と全く同じであり、図では重なっているため見えていない。) $\varphi_{\mathbf{G}}=30^\circ$ と $\varphi_{\mathbf{G}}=-30^\circ$ 共に、 $\theta_{\mathbf{G}}=0.5^\circ$ の際の理論転位傾斜 $\theta_{\xi, \min}$ (星形プロット)は $0.5-0.8^\circ$ となった。この値は MIG と HIG の実験値 ($1.1\sim 4.4^\circ$) よりもやや小さく、LIG ($0\sim 1.0^\circ$) の実験値と概ね合致した。逆に、転位傾斜 $\theta_{\xi, \min}$ が MIG と HIG の実験的な傾斜角度 ($1.1\sim 4.4^\circ$) となるようなヒロック斜面傾斜 $\theta_{\mathbf{G}}$ を計算したところ、 $\theta_{\mathbf{G}}$ が $0.7\sim 4.4^\circ$ 程度であればよいことが分かった。

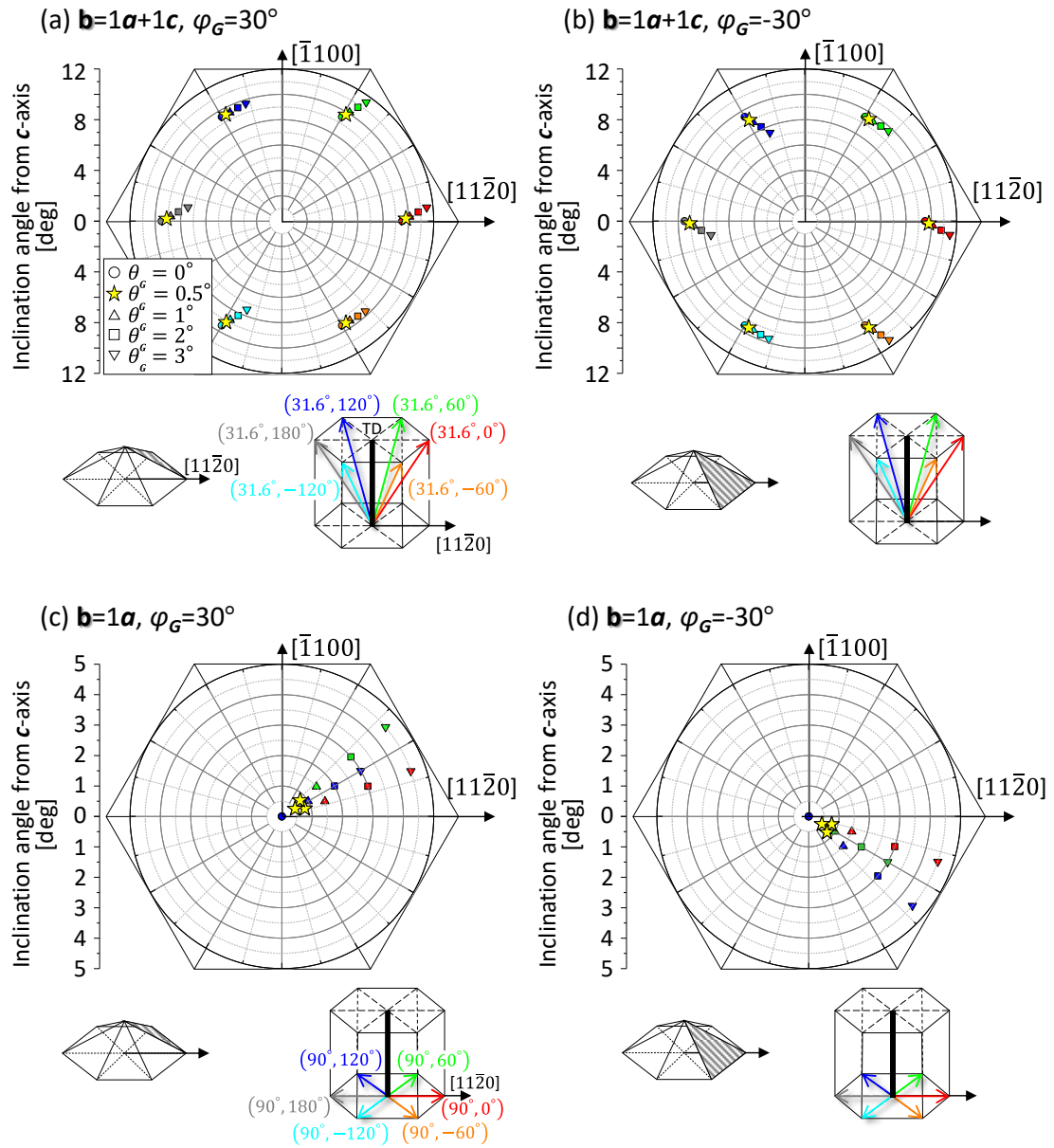


図 4-23 等方弾性論に基づく理論的な転位傾斜($\theta_{\xi,\min}$, $\varphi_{\xi,\min}$)の計算結果。(a) $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$, $\varphi_G=30^\circ$ 、(b) $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$, $\varphi_G=-30^\circ$ 、(c) $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$, $\varphi_G=30^\circ$ 、(d) $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$, $\varphi_G=-30^\circ$ における計算結果を円座標系で示す。(a)-(d)の左下図には計算に用いた各 φ_G に対応するヒロック面をハッチ模様で示している。(a)-(d)の右下図には、計算で用いたバーガスベクトルを示しており、各矢印の配色は極座標プロットの配色に対応する。

4.4.8. 他の転位傾斜メカニズムの検討

LACBED 及び MPPL で観察された $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 及び $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 転位の傾斜挙動に関与している可能性のある、他のメカニズムについても検討する。過去に報告されている、主要な転位傾斜メカニズムには、転位芯に形成された SiN_x 起因の anti-surfactant 効果アシストによる転位の climb 運動³⁴、転位傾斜によるエピ／基板間のミスマッチ応力緩和^{8,9}、結晶成長表面における転位及び空孔間の相互作用である surface-mediated dislocation climb 運動^{5,6}が挙げられる。1つ目のモデルは、刃状成分(すなわち \mathbf{a} 成分のバーガースベクトル)を有する転位芯に形成された SiN_x が、その anti-surfactant 効果³⁵によって Ga 原子等の吸着を阻害し、転位芯に空孔が優先的に取り込まれるようになった結果、転位の climb 運動が生じて転位が傾斜する、というメカニズムである³⁴。異種基板上 GaN エピ成長時の引っ張り応力が Si ドーピングによって増大する現象を説明するモデルとして提唱されている。しかしながら、as-grown-Na-GaN はそもそも undoped サンプルである。また、図 4-18(b)と(c)で示したように、Si-doped サンプルの flat-Na-GaN と undoped サンプルの as-grown-Na-GaN で同様の転位傾斜傾向が見られたことから、Si の影響は小さいと考えられ、 SiN_x 形成による転位芯マスク効果は、転位の傾斜にほとんど寄与していないと考えられる。

2つ目に挙げた、エピ層／基板間のミスマッチ応力を緩和するために転位が傾斜するというモデルも、flat-Na-GaN と as-grown-Na-GaN で見られた $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 及び $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 転位の傾斜にはあまり影響していないと考えられる。なぜならば、図 4-19(a)-(e)で示したように、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位の実験的な傾斜方位 φ_ξ とバーガースベクトル方位 φ_b の間にほとんど相関が見られなかったからである²。図 4-24 に示すように、一般的に、刃状成分を有する貫通転位は climb 起因の傾斜により余剰半格子面積を増加または減少させる形で応力を緩和させる⁶。もし、ミスマッチ応力を緩和するために転位が傾いているのであれば、転位はバーガースベクトルの \mathbf{a} 成分と垂直の方向(つまり m 軸方向)に傾いているはずである^{8,9}。しかしながら、図 4-19(a)-(e)で $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位は \mathbf{b} 方向に依らず多様な方向に傾斜していた。さらに $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 転位もバーガースベクトルの \mathbf{a} 成分と平行に傾いていたため、余剰半格子面の増減には寄与し得ない。このように、ミスマッチ応力緩和モデルの可能性は限りなく低いものの、念のため定量的な解析も行い、このモデルの妥当性を評価した。Foronda らによると、エピ／基板間のミスマッチ応力に起因した GaN バルク結晶の反り κ は、バーガースベクトルの \mathbf{a} 成分と垂直方向に傾く貫通転位の密度 ρ とその平均傾斜角度 $\bar{\theta}_\xi$ を用いて以下の様に表せる⁸。

$$\kappa = \frac{1}{4} |\mathbf{b}| \rho \tan(\bar{\theta}_{\xi}), \quad (4.4)$$

まず、LACBED 及び MPPL 結果から、バーガースベクトルの \mathbf{a} 成分と(反)平行に傾くことが判明している $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ 転位は応力緩和に寄与し得ないため、本定量解析では除外する。また、LIG に属する $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 転位もほとんど傾いていないため、応力緩和への寄与は小さい。故に、応力緩和モデル解析では、MIG と HIG に属する $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 転位のみを考えればよい。図 4-19(a)-(e)では、これらの $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 転位は必ずしも \mathbf{b} と垂直に傾いているわけではなかったが、ここでは、全ての MIG 及び HIG の転位が \mathbf{b} と垂直方向に傾斜していると仮定する。as-grown-Na-GaN の MIG 及び HIG 貫通転位の実験的な傾斜角度 θ_{ξ} (図 4-18(d)より、MIG:1.2~2.7°、HIG:2.8~4.5°) と反り ($1/\kappa \sim 17$ m with concave bowing、基板製造元からの提供データ)を(4.4)式に代入した結果、MIG 及び LIG の貫通転位密度 ρ が、それぞれ $1.6 \sim 3.5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ 、 $9.4 \times 10^5 \sim 1.5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ と算出された。これらの値は実際の貫通転位密度 (MIG: $2.4 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ 、HIG: $1.9 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$) よりも約一桁大きい。さらに、この算定貫通転位密度は、MIG と HIG の転位が \mathbf{b} と垂直方向に傾くことを前提とした値であり、実際よりも過小評価した上での結果である。厳密に計算すれば、算定転位密度は実測値よりも更に大きくなり、かけ離れた値となる。従って、ミスマッチ応力緩和モデルは、転位の傾斜にほとんど寄与していないと結論付けられる。

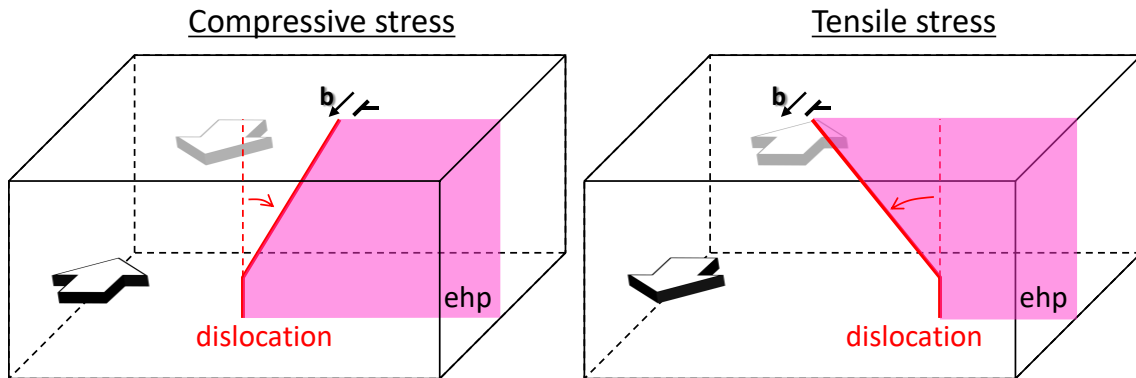


図 4-24 刃状転位の傾斜と余剰半格子面 (ehp: extra half plane) の増減の関係。

最後に、三つ目の surface-mediated dislocation climb process による転位傾斜の可能性を考察する。このモデルは、転位の非保存運動である climb 現象が、結晶成長時の結晶表面で生じるとするモデルである。図 4-25 に、このモデルの概略模式図を示す。

結晶成長表面における貫通転位終端部とステップフロントの交錯点に空孔が吸着することで、転位が jog 運動によって折れ曲がる。このプロセスが厚膜方向に断続的に生じると、結果的に転位全体が傾きをもつ⁵。このモデルの可能性を調査すべく、AFM によって as-grown-Na-GaN 結晶表面を観察した。図 4-26 は図 4-8(c)及び(d)で見られた六角形状ヒロック頂点付近の表面形状像である。フラットな頂点領域周辺のヒロック斜面は、非常にラフネスが小さく (root mean square 値: 1.16 nm) ステップモホロジーもかなり均一であった。よって、もし surface-mediated climb が生じていたならば、結晶成長過程で各貫通転位は結晶表面でそれぞれ一様に点欠陥との相互作用があったはずである。最終的に形成される貫通転位の傾斜様式も転位間で大きな違いは生じにくいと考えられる。しかしながら、実際は LIG、MIG、HIG のように、同じ $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位間に傾斜様式の違いが生じていた。従って、転位が傾く現象自体に surface-mediated dislocation climb process が関与している可能性はゼロとは言い切れないものの、このモデルだけでは実験結果を十分に説明できない。

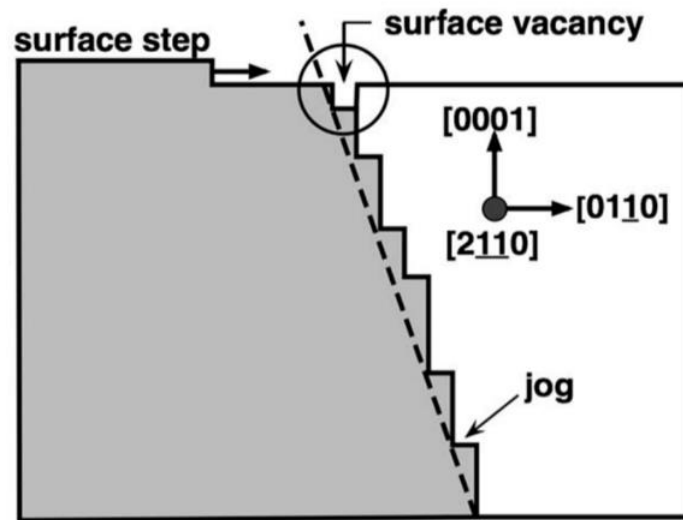


図 4-25 surface-mediated climb process の概略模式図⁵。

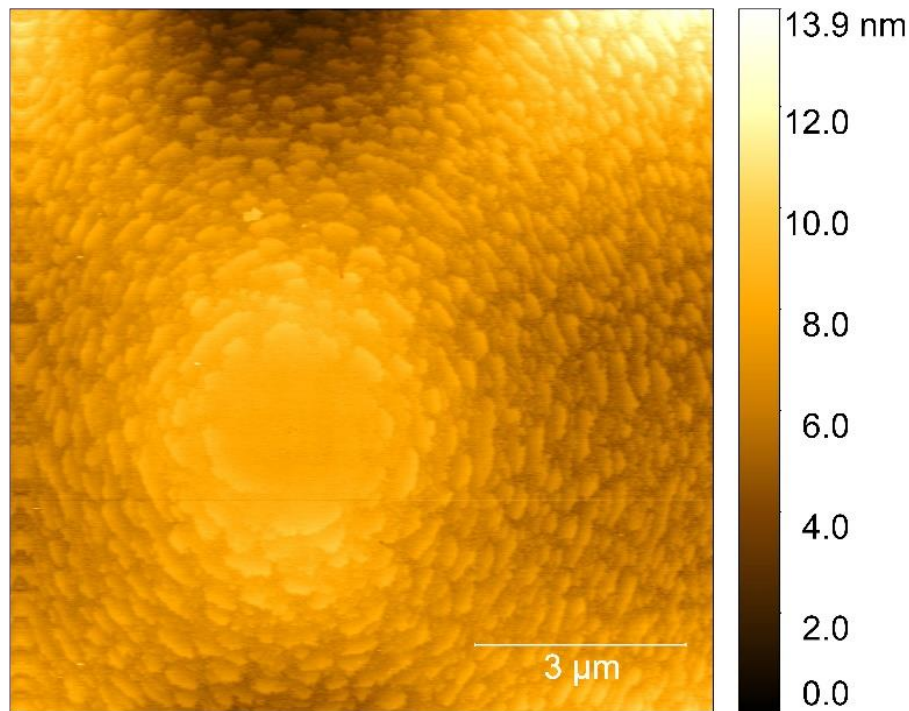


図 4-26 as-grown-Na-GaN における六角形状ヒロック頂点周辺の形状像。

これらの考察をもって、as-grown-Na-GaN と flat-Na-GaN で見られた $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 及び $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ 転位の傾斜は、転位の弾性エネルギーに起因して生じたと結論付けられる。この弾性論の観点から考えると、MIG 及び HIG の転位傾斜の理論計算結果と実験結果が食い違っていた問題も、結晶成長過程でヒロック斜面傾斜角度に揺らぎがあったとすれば説明がつく。既に述べたように、MIG 及び HIG 転位の実測傾斜角から想定される理論上のヒロック斜面の傾斜角度は $0.7\sim 4.4^\circ$ であり、SWLIM 観測結果 ($0.3\sim 0.8^\circ$) との差は僅か数度である。結晶成長過程でこの程度のモホロジーの変化は十分生じ得る³⁶。実際、図 4-8(d)の結晶表面 AFM 像でもヒロック斜面上に一部波打つ領域が存在し、結晶成長後期でさえヒロック斜面が完全に一様な形態とはなっていないことが分かる。転位の傾斜が MIG、HIG のような明らかな違いとして観察されたことを踏まえると、結晶成長初期で、安定的なヒロック斜面角度が場所によって異なる状態となり、それぞれの場所で、ヒロック面傾斜角度に応じて弾性エネルギーを最小化する角度に転位が傾き、その後の成長で斜面傾斜が一様に 0.5° 前後になっても各転位がその傾きを保持し続けたものと推察される。よって、Na フラックス基板上的 HVPE-GaN バルク結晶における $\mathbf{b}=\mathbf{1a}$ 及び $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ 転位の傾斜は、等方弾性論によって、非常によく説明されると言える。

4.5. Na フラックス基板上 HVPE-GaN バルク結晶における転位の起源

MPPL のデータに基づき、flat-Na-GaN 及び as-grown-Na-GaN における貫通転位の起源を調査した。図 4-27 は、図 4-8(b)の flat-Na-GaN における MPPL 観察領域内で見られた、典型的な転位の 3 次元形態を示している。flat-Na-GaN は裏面研磨によって HVPE-GaN と Na フラックス基板界面は除去されているものの、HVPE 成長層内の貫通転位形態から転位の起源を推測できる。線形、蛇行、および屈形態を有する転位は(図 4-27(a)-(c))は約 200 μm もの厚さの中を、他の転位と反応(合体・分裂)せずに単独に伝播している。このことから、これらの転位は Na フラックス基板から界面を貫通して HVPE 層表面まで到達してきた可能性が高い。一方、合体及び分裂を経て形成された貫通転位(図 4-27(d)及び(e))は、HVPE 成長過程で形成されたことを意味する。図 4-8(b)の MPPL データ中の全ての転位について、形態とエッチピットサイズを紐づけ、バーガースベクトルと転位形態の関連性を調べた。その結果を表 4-5 にまとめている。ここで、バーガースベクトル(又は種類)は、エッチピットサイズ(形状)から推定し、L 及び DA ピットに関しては、サンプリング数を増やすために他の領域も調査した。XS ($\mathbf{b}=1\mathbf{a}$)、S ($\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$)、M ($\mathbf{b}=1\mathbf{c}$)ピットの転位については、約 90%が単独伝播タイプ(直線、蛇行、屈曲)であった。表 4-2 に示した通り、これら XS、S、M サイズピットは flat-Na-GaN に存在するエッチピットの約 99%を占めていたことも踏まえると、flat-Na-GaN 中の貫通転位の約 9 割が、元々Na フラックス基板に存在していた転位がそのまま界面を貫通し、HVPE 表層まで到達してきたと考えられる。一方で、L ピットの転位 ($\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$)については、その7割が合体タイプであった。よって、この特異的なバーガースベクトルを持つ転位は、Naフラックス基板からの貫通というよりも、HVPE 成長過程で異なるバーガースベクトルを持つ転位同士の合体によって形成されたと考えられる。

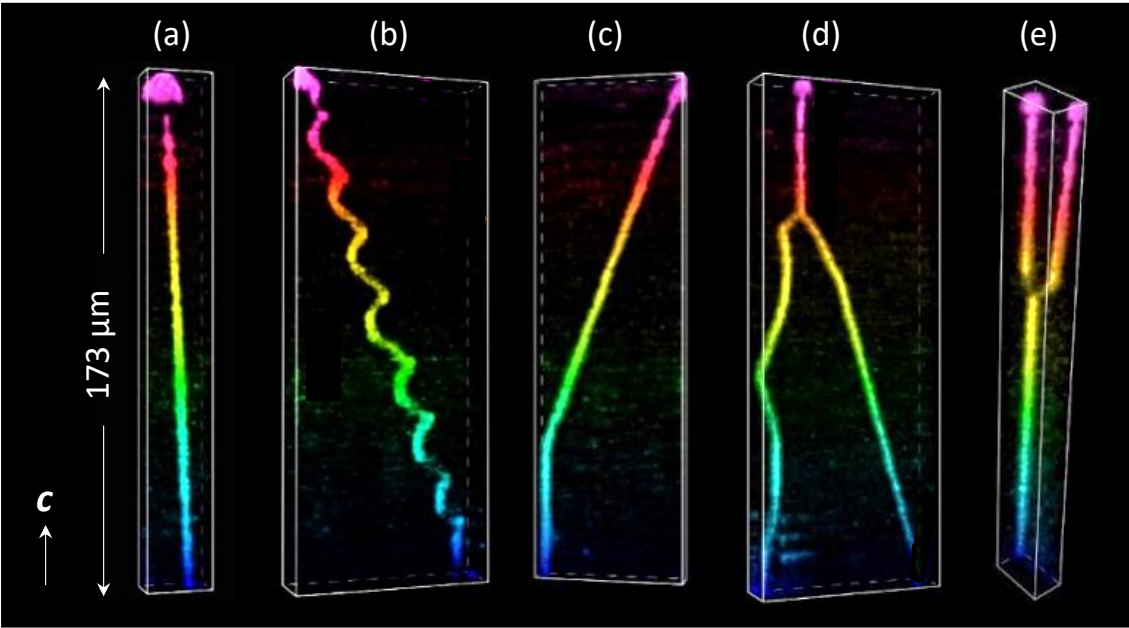


図 4-27 図 4-8(b)の flat-Na-GaN における MPPL 観察領域内で見られた、典型的な転位の 3 次元形態。(a) 直線タイプ、(b) 蛇行タイプ、(c) 屈曲タイプ、(d) 合体タイプ、(e) 分裂タイプ。

表 4-5 図 4-8(b)の flat-Na-GaN における MPPL 観測領域内のエッチピットサイズ、バーガースベクトル(または種類)、転位形態の関連性。バーガースベクトル(又は種類)はエッチピットサイズ(形状)から推定した。

Etch pit	b or type	Individual propagation			Formed by bunching or branching	
		Linear	Meandering	Bent	Bunched	Branched
Extra small	1a	84% (292/349)	0% (0/349)	8% (28/349)	2% (7/349)	6% (22/349)
Small	1a + 1c	85% (39/46)	0% (0/46)	2% (1/46)	2% (1/46)	11% (5/46)
Medium	1c	0% (0/13)	85% (11/13)	0% (0/13)	0% (0/13)	15% (2/13)
Large	1m + 1c	33% (3/9)	0% (0/9)	0% (0/9)	67% (6/9)	0% (0/9)
Double-apex	Pair of mixed TDs	100% (6/6)	0% (0/6)	0% (0/6)	0% (0/6)	0% (0/6)

DAピットの転位(平行に伝播する二つの混合転位ペア)の場合、観測した6つの転位全てが裏面から表面までヒロックの頂点で直線的に伝播していた。これらの転位の起源を調査するため as-grown-Na-GaN のヒロック周辺における MPPL データを詳細に解析した。as-grown-Na-GaN ではエッチピットを形成していないものの、ヒロック箇所は MPPL で特定可能なので、その頂点を伝播する転位伝播挙動を追うことで起源を探索できる。図 4-28 は、as-grown-Na-GaN の六角形状ヒロック近傍において、Na フラックス基板から界面を経て HVPE-GaN 表面に至るまでの、特定の深さで取得した MPPL 像である。観測領域は図 4-8(c)で見られた六角形状ヒロック周辺の領域である。矢印で示すヒロック頂点の暗点が、ヒロック成長起点となる混合転位ペアと考えられる。このうち黒矢印で示す転位を除く5つの転位(赤矢印)は、HVPE-GaN 表面から界面に近づくにつれて互いに接近し(図 4-28(a)-(c))、界面近傍で突如発生した輝点コントラスト(点線囲み)に集約した(図 4-28(d))。図 4-28(d)-(f)より、この輝点コントラスト(点線囲み)は、Na フラックス基板から界面にかけて三方向から押し寄せる明るい帯状又は筋状のコントラスト領域中心で発生している。特に、図 4-28(f)で見られる MPPL コントラストは、Imanishi らによって報告された、MPS テンプレートの隣り合う三つのポイントシード上で成長したピラミッド状 GaN 結晶のファセット領域同士が徐々に会合する際の MPPL 像と酷似している(図 4-29)³⁷。このことから、図 4-28(d)-(f)の三方向からの明コントラストの動きはファセット同士が会合している状況を示していると考えられる。図 4-28(f)では、このファセット成長フロントに沿って、図 4-28(d)でみられた輝点と同様のコントラストが見られる(黄色矢じり)。これらは、ファセットフロントに取り込まれた Na-Ga 合金から成るインクルージョンに起因した輝点と考えられる。このようなインクルージョンは、Na フラックス成長表面の凹状領域やファセット同士の会合点に取り込まれやすいことが報告されている³⁸。これらを踏まえると、図 4-28(d)で見られた三つのファセット会合点における輝点コントラスト(点線囲み)もまた、インクルージョン起因である可能性が高い。この輝点下のファセット会合領域の周囲では多数の転位が密集しており、これらは各ファセット成長フロントに伴って会合点に集約してきたものと考えられ^{37,39}、この中の幾つかの転位が、DAピット起源の混合転位ペア形成源となっていると考えられる。

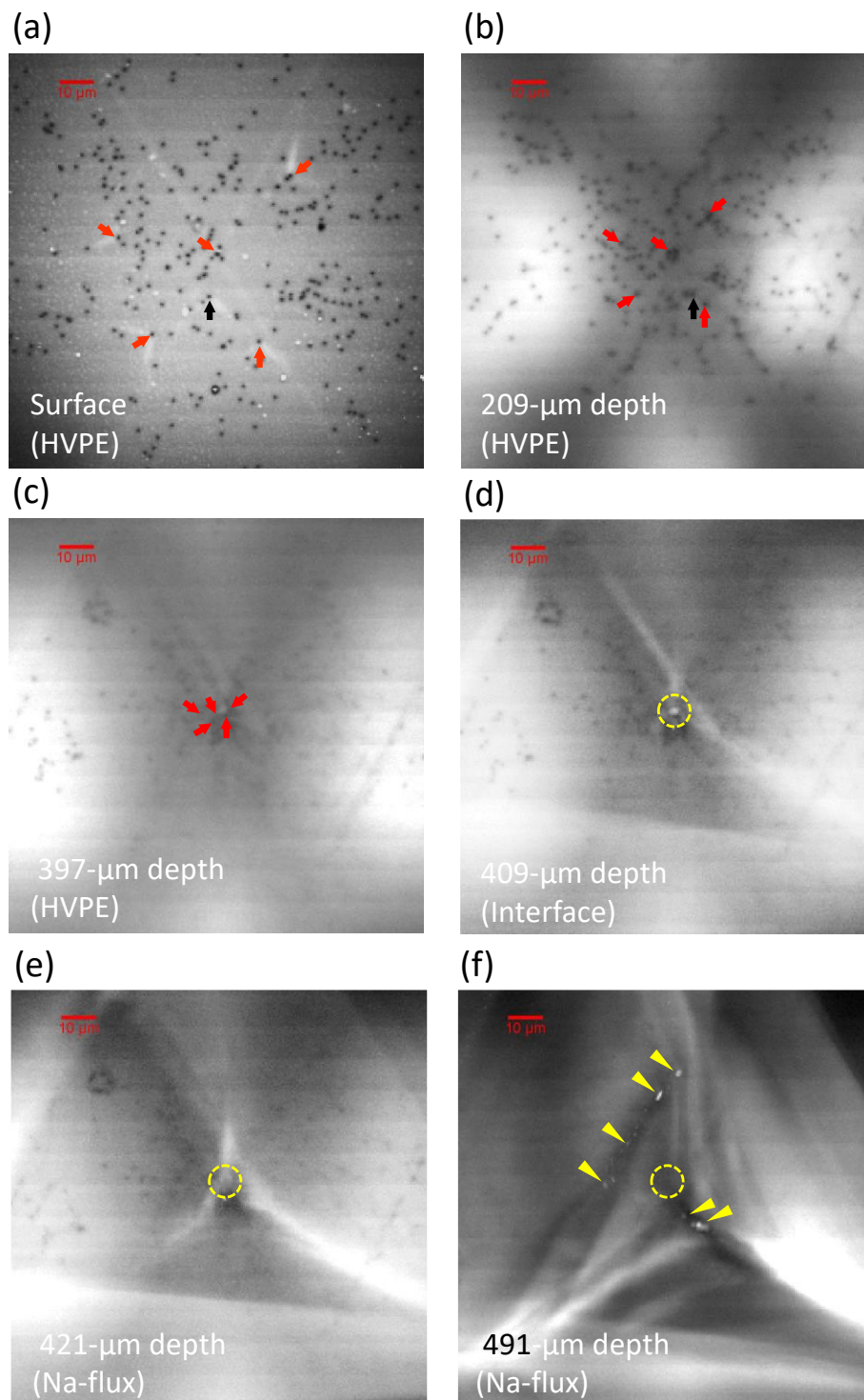


図 4-28 図 4-8(c)内の六角形状ヒロック頂点近傍の(a) 表面、深さ (b) 209、(c) 397、(d) 409、(e) 421、(f) 491 μm における MPPL 像。(a)-(c)、ヒロック頂点に位置する暗点を矢印で示している。(d)-(f)における点線囲みは界面周辺で観測された輝点コントラスト位置を示し、(f)の矢じりは Na フラックス基板中のファセット成長フロントで見られた輝点コントラストを示す。

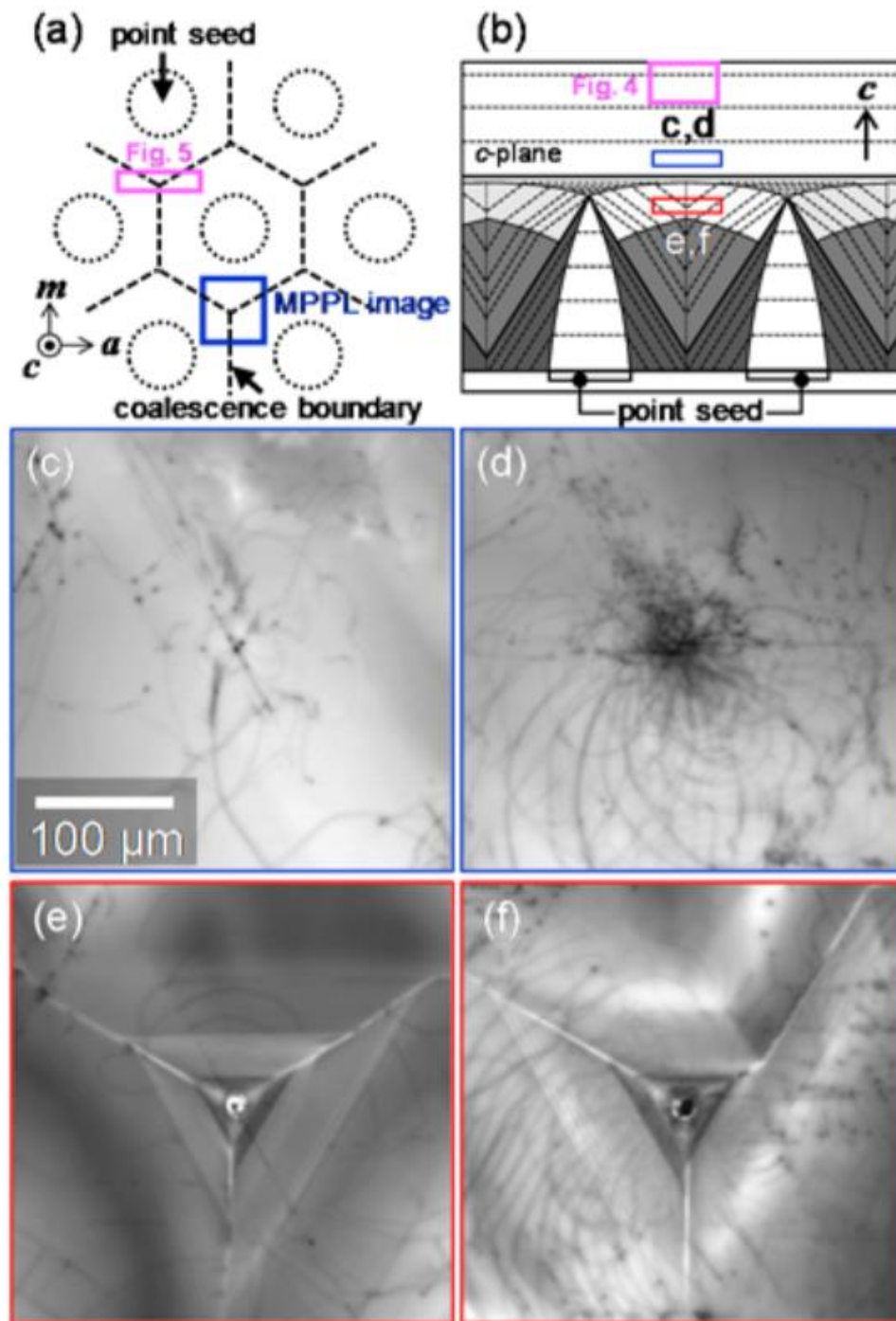


図 4-29 MPS 法及び FFC 法による Na フラックス GaN 結晶の、MPS テンプレートにおけるポイントシード配列及び MPPL 観測領域を示す(a) 平面及び、(b) 断面模式図。(c), (d) c 面厚膜成長領域(3rd growth stage) 及び(e), (f) FFC 法による成長領域(2nd growth stage) の MPPL 像。(e), (f)において、隣り合う3つのポイントシードで成長したピラミッド状 GaN 結晶のファセットが会合する様子が観測されている³⁷。

図 4-30(a)は別領域における MPPL 像である。Na フラックス基板内のファセット会合領域で、一つの転位(赤矢印)が界面の輝点コントラストを介して HVPE 層に貫通し、一つのヒロックを形成する様子が観測された。また、更に別の領域(図 4-30(b))では、Na フラックス基板のファセット会合領域に転位が存在しないにも拘らず、会合領域直上で輝点が生じた後、さらにその直上の HVPE 層で転位(赤矢印)が新たに形成されている様子も観測されたが、その転位周囲にヒロックコントラストは見られなかった。これらの結果から考えられるヒロック形成メカニズムの概略模式図を図 4-31 に示す。Na フラックス基板中の c 成分バーガースベクトルを有する単一転位が輝点(すなわちインクルージョン)を介することによって、互いに反対方向の a 成分バーガースベクトルを持つ混合転位ペアに変形し、その後、このペア混合転位が有する c 成分(すなわち、らせん成分)に起因して周囲でヒロック成長が生じたと考えられる。インクルージョンは、単一転位からペア転位への特異な構造変化をアシストする役割を担っていると推察される。インクルージョンを介した HVPE/Na フラックス界面における転位の構造変化メカニズムについては別途詳細な解析を要する。

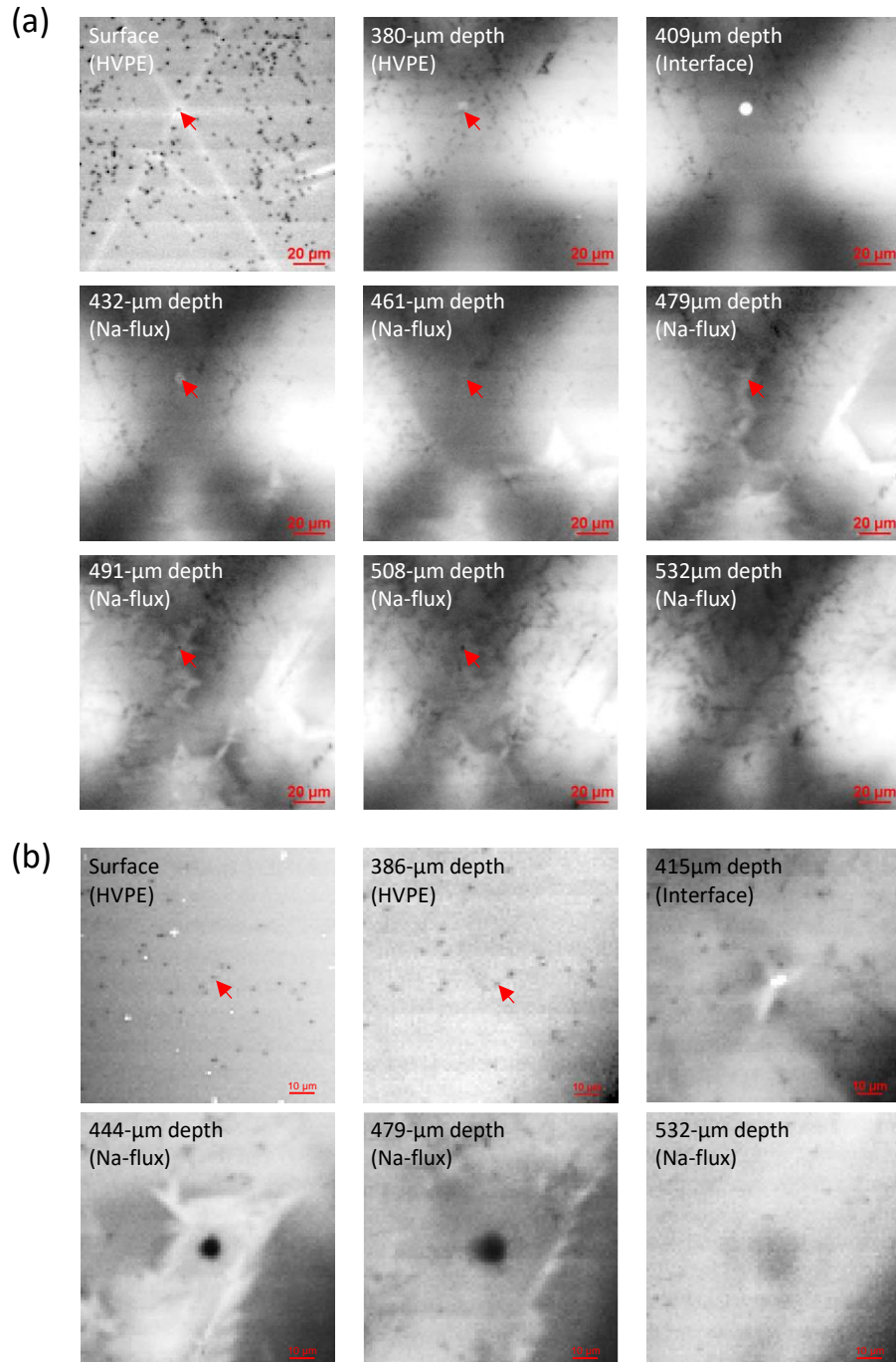


図 4-30 Na フラックス基板界面から HVPE-GaN 表面に至るまで、特定の深さで取得した MPPL 像。HVPE 層に六角形状ヒロックが(a) 形成されている領域と(b) 形成されていない領域。(a)では、赤矢印で示す暗点(転位)が、ファセット会合領域の輝点コントラストを介して Na フラックス基板から HVPE 成長層に貫通し、その周囲にヒロックが形成されている。(b)では、(a)と同様にファセット会合領域に輝点が存在するものの、HVPE 層内の赤矢印で示す暗点はヒロックを形成していない。(b)の輝点コントラスト下の Na フラックス基板内に暗点(転位)は見られない。

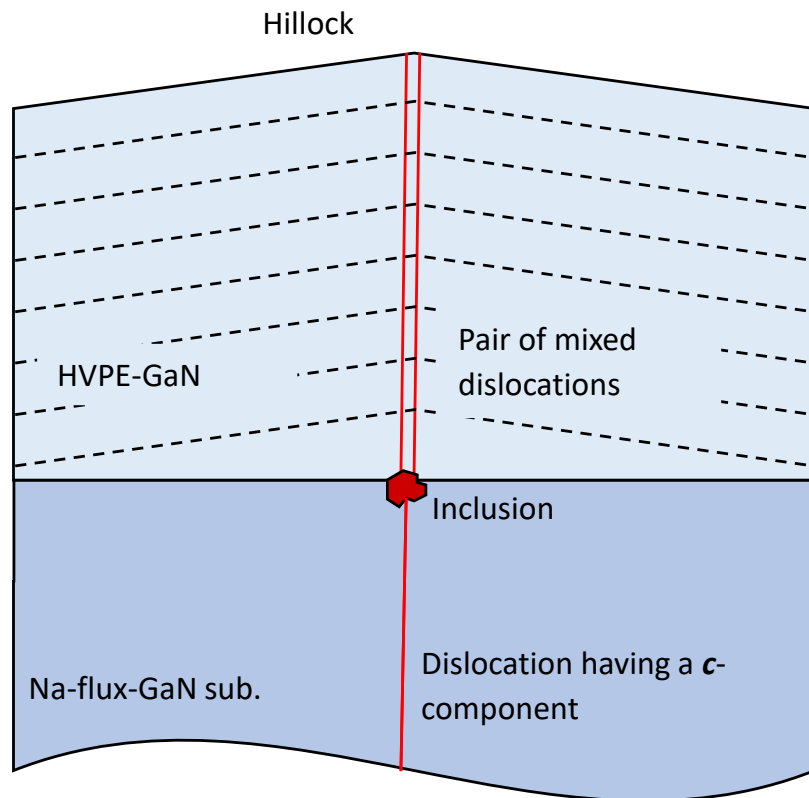


図 4-31 ヒロック形成メカニズムを表す概略模式図。

上記の TEM 及び MPPL 解析結果より、as-grown-Na-GaN 及び flat-Na-GaN に見られた六角形状ヒロックは、Na フラックス GaN 基板のファセット会合領域でかつインクルージョンが取り込まれた場所で発生しやすいことが示された。ヒロックはその面方位に応じた不純物取り込み量の違いに起因して、キャリア濃度の面内分布に不均一性をもたらし、デバイス特性に悪影響を及ぼし得る⁴⁰。ヒロック形成を抑制し HVPE/Na フラックスのハイブリッド基板の更なる高品質化を図るには、界面でのインクルージョン取り込みを制御することが重要である。

4.6. 小括

本章では、Na フラックス GaN を種基板とする HVPE/Na フラックスのハイブリッド基板と、サファイヤを種基板とした市販 HVPE 基板を対象に、エッチピット法、TEM、MPPL による統計的かつ定量的な評価を実施することで、GaN バルク結晶における、転位のバーガースベクトルと伝播挙動の関連性を調査した。本章で得られた新しい知見を以下に示す。

- KOH+NaOH エッチングによるエッチピット形状と転位のバーガースベクトルの間に明確な一対一対応関係が存在することを明らかにし、この対応関係のデータベースを構築した。
- GaN 結晶において報告例のない、極めて珍しい $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ というバーガースベクトルを持つ転位が、種基板の違いに依らず一定の割合で存在することを実証した。
- $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ 、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位は直線的に伝播する一方で、 $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ 転位は蛇行伝播しやすい傾向がハイブリッド基板及び市販基板で見られ、転位の伝播挙動がバーガースベクトルと関連すること、この関連性が種基板を跨いで同様であることが明らかとなった。
- $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ 蛇行転位は転位と点欠陥との相互作用である climb 運動を介したヘリカルモデルにより形成されたと考えられ、バーガースベクトルの向きとスパイラル回転方向の関連性から、空孔吸収型と格子間原子介入型の両方のメカニズムでヘリカル構造化が生じることが明らかとなった。
- 両基板の比較より、六角形状ヒロックが $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位の傾斜に多大な影響を及ぼすことが明らかとなり、ヒロック成長下で $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 及び $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 転位はそれ自身の弾性エネルギーを最小化するメカニズムで特定の角度・方位に傾斜することを示した。
- ヒロックが互いに逆方向の \mathbf{a} 成分バーガースベクトルを持つ二つの平行な混合転位ペアを中心として形成されていること、及びこのペア転位が HVPE/Na フラックス基板界面に取り込まれたインクルージョンに起因することが明らかとなった。
- 貫通転位の起源について、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ の転位の大部分が種基板から引き継がれて HVPE 層を貫通してきた一方、 $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ 転位は HVPE 成長中に二つの転位が合体するメカニズムで形成される傾向にあることが明らかとなった。

これらの知見は、「①HVPE/Na フラックスハイブリッド GaN 基板の更なる高品質化技術」、「②GaN 結晶中貫通転位種の非破壊・簡易識別技術」、「③キラ欠陥となる転位の伝播抑制技術」を発展させるための重要なフィードバックとなり得る。①について、ハイブリッド基板中の貫通転位の大半が Na フラックス種基板由来であったことから、必然的に Na フラックス基板中の貫通転位密度低減がハイブリッド基板の低転位密度化に直結することが明確となった。また、ヒロックの抑制にはインクルージョン制御が重要であることが判明した。界面へのインクルージョン取り込みメカニズム調査と共に、HVPE ホモエピ前の Na フラックス種基板の表面処理、ホモエピ成長初期のメルトバック(種基板 GaN 結晶の融解)制御等、ヒロック抑制に有効な技術開発が進むことで、ハイブリッド基板の更なる高品質化に繋がる。また、 $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ のような大きなバーガースベクトルを持つ転位は、SiC パワーデバイスにおいてリーク電流源となることが報告されている^{41,42}。本結晶の $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ 転位のリーク特性については第5章で詳述するが、デバイスプロセスによってはキラ欠陥と化す可能性がある。その観点で、この特異転位の存在と発生メカニズムを解明したことは意義深い。

②及び③について、GaN パワーデバイスに致命的な影響をおよぼす貫通転位が、その種類やバーガースベクトルと関連することが示唆されている報告を受け、特に近年、非破壊で簡易的に転位種を同定する評価方法が強く求められている。簡易的な評価手法として古くから用いられているエッチピット法や、近年導入された MPPL 法を転位種識別の基盤技術として用いるためには、GaN 結晶における転位の「エッチピット形状・バーガースベクトル・伝播形態」に関する確固たるデータベースが求められていた。統計的かつ定量的な評価に基づき実施された本章の研究により、MPPL 及びエッチピット法のための信頼できるデータベースが初めて構築されたと言える。特に、MPPL を用いれば、基板からエピ層まで一貫した転位挙動が可視化できるため、このデータベースに基づくことで、デバイスキラとなる転位だけに照準した選択的伝播抑制技術の開発も実現し得る。

参考文献

- ¹ M. Imanishi, T. Yoshida, T. Kitamura, K. Murakami, M. Imade, M. Yoshimura, M. Shibata, Y. Tsusaka, J. Matsui, and Y. Mori, *Cryst. Growth Des.* **17**, 3806 (2017).
- ² M. Hawkrige, D. Cherns, and T. Myers, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 251915 (2006).
- ³ P. Cantu, F. Wu, P. Waltereit, S. Keller, A. E. Romanov, U. K. Mishra, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 674 (2003).
- ⁴ P. Cantu, F. Wu, P. Waltereit, S. Keller, A. E. Romanov, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *J. Appl. Phys.* **97**, 103534 (2005).
- ⁵ D. M. Follstaedt, S. R. Lee, A. A. Allerman, and J. A. Floro, *J. Appl. Phys.* **105**, 083507 (2009).
- ⁶ J. Weinrich, A. Mogilatenko, F. Brunner, C. T. Koch, and M. Weyers, *J. Appl. Phys.* **126**, 085701 (2019).
- ⁷ M. Lee, D. Mikulik, M. Yang, and S. Park, *E. Sci. Rep.* **7**, 8587 (2017).
- ⁸ H. M. Foronda, A. E. Romanov, E. C. Young, C. A. Robertson, G. E. Beltz, and J. S. Speck, *J. Appl. Phys.* **120**, 035104 (2009).
- ⁹ A. E. Romanov and J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 2569 (2003).
- ¹⁰ T. Tanikawa, K. Ohnishi, M. Kanoh, T. Mukai, and T. Matsuoka, *Appl. Phys. Express* **11**, 031004 (2018).
- ¹¹ S. Inotsume, N. Kokubo, H. Yamada, S. Onda, J. Kojima, J. Ohara, S. Harada, M. Tagawa, and T. Ujihara, *Phys. Status Solidi B* **257**, 1900527 (2020).
- ¹² Q. Liu, N. Fujimoto, J. Shen, S. Nitta, A. Tanaka, Y. Honda, Z. Sitar, M. Boćkowski, Y. Kumagai, and H. Amano, *J. Cryst. Growth* **539**, 125643 (2020).
- ¹³ Y. Yao, Y. Sugawara, D. Yokoe, K. Sato, Y. Ishikawa, N. Okada, K. Tadatomo, M. Miyoshi, and T. Egawa, *CrystEngComm* **22**, 8299 (2020).
- ¹⁴ M. Tsukakoshi, T. Tanikawa, T. Yamada, M. Imanishi, Y. Mori, M. Uemukai, and R. Katayama, *Appl. Phys. Express* **14**, 055504 (2021).
- ¹⁵ J. L. Weyher, S. Lazar, L. Macht, Z. Liliental-Weber, R. J. Molnar, S. Müller, V. G. M. Sivel, G. Nowak, and I. Grzegory, *J. Cryst. Growth* **305**, 384 (2007).
- ¹⁶ Y. Mori, M. Imanishi, K. Murakami, and M. Yoshimura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SC0803 (2019).
- ¹⁷ A. Yoshikawa, E. Ohshima, T. Fukuda, H. Tsuji, and K. Oshima, *J. Cryst. Growth* **260**, 67 (2004).
- ¹⁸ L. T. Romano, J. E. Northrup, and M. A. O’Keefe, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2394 (1996).
- ¹⁹ F. Liu, R. Collazo, S. Mita, Z. Sitar, S. J. Pennycook, and G. Duscher, *Adv. Mater.*

- 20, 2162 (2008).
- ²⁰ J. L. Rouviere, M. Arlery, R. Niebuhr, K. H. Bachem, and O. Briot, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **1**, 33 (1996).
- ²¹ 宇佐美 茂佳、博士学位論文(2019).
- ²² N. Kokubo, Y. Tsunooka, F. Fujie, J. Ohara, S. Onda, H. Yamada, M. Shimizu, S. Harada, M. Tagawa, and T. Ujihara, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, SCCB06 (2019).
- ²³ A. R. Smith, V. Ramachandran, R. M. Feenstra, D. W. Greve, M.-S. Shin, M. Skowronski, J. Neugebauer, and J. E. Northrup, J. Vac. Sci. Technol. A **16**, 1641 (1998).
- ²⁴ B. Heying, E. J. Tarsa, C. R. Elsass, P. Fini, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, J. Appl. Phys. **85**, 6470 (1999).
- ²⁵ A. Parkhomovsky, A. M. Dabiran, B. Benjaminsson, and P. I. Cohen, Appl. Phys. Lett. **78**, 2315 (2001).
- ²⁶ T. Iizuka and M. Kikuchi, Jpn. J. Appl. Phys. **7**, 175 (1968).
- ²⁷ Y. Tokumaru and M. Kikuchi, Jpn. J. Appl. Phys. **5**, 847 (1966).
- ²⁸ W. C. Dash, J. Appl. Phys. **31**, 2275 (1960).
- ²⁹ K. Horibuchi, S. Yamaguchi, Y. Kimoto, K. Nishikawa, and T. Kachi, Semicond. Sci. Technol. **31**, 034002 (2016).
- ³⁰ P. M. Anderson, J. P. Hirth, and J. Lothe, *Theory of dislocations (third edition)*, (Cambridge university press, Cambridge, 2017).
- ³¹ F. Liu, Z. Liu, P. Lin, and Z. Zhuang, Int. J. Plast. **92**, 2, (2017).
- ³² H. Saka, H. Watanabe, Y. Kitou, H. Kondo, F. Hirose, and S. Onda, Jpn. J. Appl. Phys. **53**, 111302 (2014).
- ³³ A. Polian, M. Grimsditch, and I. Grzegory, J. Appl. Phys. **79**, 3343 (1996).
- ³⁴ A. Dadgar, J. Bläsing, A. Diez, and A. Krost, Appl. Phys. Express **4**, 011001 (2011).
- ³⁵ S. Tanaka, M. Takeuchi, and Y. Aoyagi, Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L831 (2000).
- ³⁶ T. Paskova, E. B. Svedberg, L. D. Madsen, R. Yakimova, I. G. Ivanov, A. Henry, and B. Monemar, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res., **4**, 197 (1999).
- ³⁷ M. Imanishi, K. Okumura, K. Nakamura, T. Kitamura, K. Kakinouchi, K. Murakami, M. Yoshimura, Y. Fujita, Y. Tsusaka, J. Matsui, and Y. Mori, Appl. Phys. Express **13**, 085510 (2020).
- ³⁸ Y. Song, F. Kawamura, T. Taniguchi, K. Shimamura, and N. Ohashi, Cryst. Res. Technol. **55**, 2000042 (2020).
- ³⁹ F. Kawamura, M. Tanpo, N. Miyoshi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, Y. Kitaoka, and T. Sasaki, J. Cryst. Growth **311**, 3019 (2009).
- ⁴⁰ A. Tanaka, O. Barry, K. Nagamatsu, J. Matsushita, M. Deki, Y. Ando, M.

Kushimoto, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Phys. Status Solidi A* **214**, 1600829 (2017).

⁴¹ S. Onda, H. Watanabe, Y. Kito, H. Kondo, H. Uehigashi, N. Hosokawa, Y. Hisada, K. Shiraishi, and H. Saka, *Philos. Mag. Lett.* **93**, 439 (2013).

⁴² K. Konishi, Y. Nakamura, A. Nagae, N. Kawabata, T. Tanaka, N. Tomita, H. Watanabe, S. Tomohisa, and N. Miura *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, 011001 (2020).

第5章 ハイブリッド基板の単独貫通転位における電気伝導機構

5.1. はじめに

従来、直径数十 μm ～サブ mm スケールの metal/GaN-SBD については、電気特性やその温度特性について非常に多くの研究がなされてきた¹⁻¹³。比較的理想的な SBD 特性が観測された一例として、Suda らの報告が挙げられる¹。Suda らは、ドーピング濃度 (N_D) を変えた HVPE-GaN 自立基板 (貫通転位密度: $2-3 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$) 上に作製した複数の縦型 Ni/n-GaN SBD のほとんどが、理想的な TE モデルに従う順方向電気特性を示すこと、及び、逆方向リーク特性がフィッティングパラメーターなしに熱電界放出 (TFE: thermionic field emission) モデルの理論曲線にフィットすることを示している (図 5-1(a) 及び (b))。TFE モデルとは、ショットキー障壁以上のエネルギーを有する電子が電気伝導に寄与すると考える TE モデルに対して、熱励起された電子のエネルギー分布と、電子のトンネル確率の乗算で決まるエネルギーピーク位置で、電子がショットキー障壁内をトンネルすることによって電気伝導が生じると考えるモデルである¹⁴。高濃度ドーパされた SiC-SBD の順方向特性¹⁵や、一般的な SiC-SBD の逆方向特性をうまく説明できることが報告されており¹⁶、ワイドバンドギャップ半導体系 SBD における理想的な電気伝導機構として認識されつつある。上記の結果を踏まえ、Suda らは貫通転位密度が $2-3 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ の GaN 自立基板であれば、貫通転位起因のリーク電流量を TFE 機構によるリーク電流量よりも低いレベルに抑制できると結論付けている。

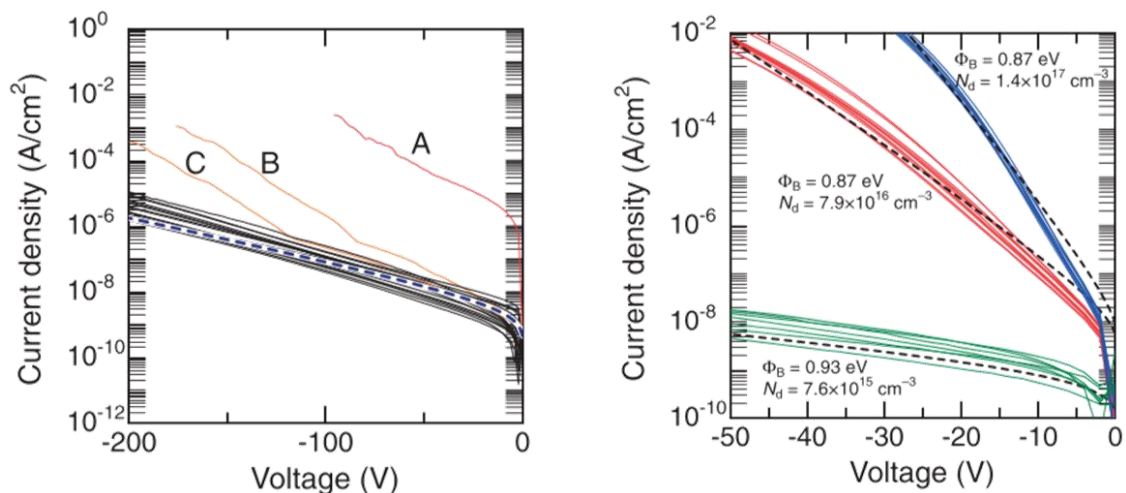


図 5-1 (a) ドナー濃度 (N_D) = $7.6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ の Ni/GaN-SBD (20 個) の室温下逆方向電気特性、及び (b) 逆方向電気特性のドナー濃度依存性。 (a) と (b) 共に、TFE モデルの理論曲線 (破線) と実験値が非常によく合致している¹。

一方、多くの報告で GaN-SBD が TE や TFE では説明できない非理想的な電気特性を示すことが示されており、別の電気伝導機構の寄与が示唆されている²⁻¹³(Suda らの報告¹でも、一部の SBD では TFE で説明し得ない過剰なリーク電流が検出されている(図 5-1(a)中の A、B、C で示されている))。このような非理想的な電気特性や別の電気伝導機構の発現に貫通転位の影響が示唆されている^{2-6,8,10,11,13}。しかしながら、GaN 結晶の高い貫通転位密度故に、これらの研究ではショットキー接触界面に多数の貫通転位が含まれており、単一の貫通転位のみを含むショットキー接触の電気特性を直接解析しているわけではない。SBD のリーク電流特性に及ぼす貫通転位の影響を明らかにする上では、ショットキー界面に含まれる個々の貫通転位で生じる電気伝導機構を解明することが重要であるものの、このような界面に多数の貫通転位を含むサブ mm スケールの SBD 特性から、単一の貫通転位、特にキラ欠陥で発現する電気伝導機構を決定することは非常に困難である。

本章の研究では、本論文第 2 章で構築した単独転位の電気測定アプローチを活かし、この課題を解決する。個々の貫通転位箇所に微細ショットキー接触を作製し、転位毎に電気特性及びその温度依存性を詳細に解析することにより、単一の貫通転位がショットキー界面の電気伝導機構に及ぼす影響を明らかにする。さらに、複数の転位を評価することで異常なリーク電流特性を示す転位を見出し、それに特有な電気伝導機構を明らかにすることにより、電流リークメカニズムを解明することを目指す。第 3 章及び第 4 章の結果より、HVPE-GaN には MPSC-GaN や FFC-GaN で見られた FGS や μ -FGS のような特異的な結晶成長領域や、それによる変則的な転位伝播様式(ファセット成長に依る転位の集合等)もほぼなく、個々の転位がバーガスベクトルに応じてかなり一様な様式でバルク中を伝播することが明らかとなった。従って、当該ハイブリッド基板の貫通転位の電気特性を評価すれば、周辺結晶状態の影響が極力排除された、転位自体がショットキー界面の電気伝導機構に及ぼす本質的な影響を解析できる。

5.2. 評価サンプルと実験アプローチ

5.2.1. 評価サンプル

本章では、Na フラックス GaN 基板上の Si-doped n 型 HVPE-GaN のハイブリッド基板を評価サンプルとして用いた^{17,18}。本サンプルは第 4 章の flat-Na-GaN と同じウェハから切り出された結晶片であり、結晶成長の詳細は 1.5.4 節を参照されたい。試料の (0001) 面および (000 $\bar{1}$) 面は CMP および MP によってそれぞれ平坦化し、厚さ 200 μm の自立 GaN 基板とした。

5.2.2. 実験アプローチ

KOH (50%) + NaOH (50%) 融液により 450°C、20 分のウェットエッチングを行い、(0001) 面にエッチピットを形成した。弗化水素酸、ピラニア水 (過酸化水素水+硫酸) による洗浄後、超純水リンス、窒素ブローを行った。高周波スパッタリングにより、(000 $\bar{1}$) 面に Ti/Al/Au (40 nm/40 nm/200 nm) 積層オーミック接触を形成した後、FIB 装置の電子ビームアシスト蒸着法によって幾つかのエッチピット内部に Pt を埋め込み、各貫通転位部分にショットキー接触を作製した。第 4 章で構築したエッチピットサイズとバーガースベクトルの対応関係に基づくと、XS、S、M、L はそれぞれ $\mathbf{b}=1\mathbf{a}$ 、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 、 $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ 、 $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ のバーガースベクトルを有する貫通転位と推定される。本研究では、先行研究でリークしやすい傾向にある、らせん成分 (すなわち \mathbf{c} 成分のバーガースベクトル) を持つ転位に照準すべく、S/M/L サイズのエッチピットに Pt 電極 (以下、ピット電極と呼称) を形成した (図 5-2)。また、ピットのない平坦な (0001) 面領域にも直径数 μm と直径 70 μm の円形 Pt (以下 flat 電極と呼称) を幾つか蒸着した。電極作製数は、S、M、L ピットそれぞれ 45 個、45 個、11 個、flat 電極は 5 個である。ピット電極个数について、各ピット密度から換算すると、S、M、L ピットそれぞれ 250 μm^2 、480 μm^2 、550 μm^2 と、一般的なパワーデバイスエリアと同等となる。これは、本章の転位評価数が、一般的な GaN パワーデバイスに含まれる程度の転位数を評価していることを意味する。その後、大気雰囲気中で 200°C、2 分のポストアニール処理を行った。ピット電極、及び直径数 μm の flat 電極部で、C-AFM によって室温下での I - V 特性を取得した後、幾つかの Pt 電極に対しては I - V - T 特性も計測した。これら C-AFM による測定は真空中で実施した。直径 70 μm の flat 電極部では、大気雰囲気、室温下で容量-電圧 (C - V : capacitance-voltage) 測定を行い、ドナー濃度と拡散電位を算出した。ピット電極にお

ける Pt/GaN 界面の電界強度計算には、有限要素法によるシミュレーションソフトウェア (COMSOL Multiphysics software) を用いた。

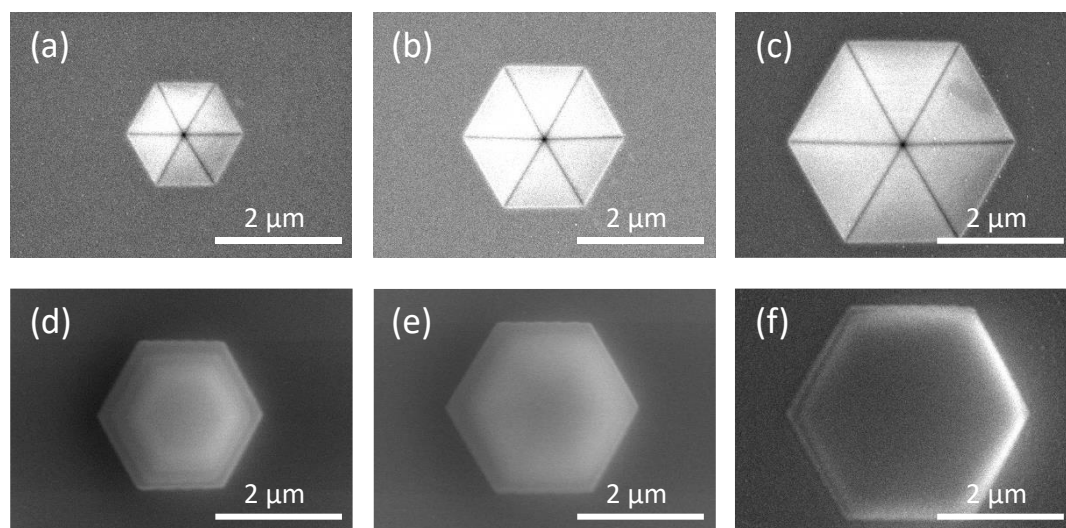


図 5-2 代表的な(a), (d) S、(b), (e) M、(c), (f) L サイズの Pt 蒸着前(上段)及び蒸着後(下段)におけるエッチピットの SEM 像。

5.3. ピット電極及び flat 電極における室温下の電気特性

図 5-3(a)-(c)は、20°Cの真空下で取得した S(45 個)、M(45 個)、L(11 個)サイズのピット電極と flat 電極(5 個)で取得した Pt/GaN ショットキー接触の J - V 特性である。ピット部のショットキー接触面積は、エッチピット側面積と電子ビームアシスト蒸着時にピット周囲に拡散して蒸着した領域面積の和として定義した。 I - V 測定は個々の電極内の異なる複数ポイントで実施し、繰り返し再現性が得られることを確認している。また、幾つかの電極においては、別電極の測定を挟んで測定しても繰り返し同様の I - V 特性が再現されることが確認されている。

図 5-3(a)-(c)より、全ての J - V 特性に整流性が見られる。そこで、熱電子放出機構 (TE: Thermionic emission) に基づき、全ての順方向 J - V 特性から理想係数 n とショットキー障壁高さ $\phi_{b,TE}$ を抽出した。TE 機構による電流密度 J_{TE} は下記の様に表される¹⁹。

$$J_{TE} = J_{0,TE} \left\{ \exp \left(\frac{qV}{nkT} \right) - 1 \right\}, \quad (5.1)$$

$$J_{0,TE} = A^* T^2 \exp \left(- \frac{q\phi_{b,TE}}{kT} \right), \quad (5.2)$$

$J_{0,TE}$ 、 q 、 k 、 T 、 A^* は、それぞれ飽和電流密度、電荷素量、ボルツマン定数、温度、有効リチャードソン定数である。 A^* は $4\pi qm^*k^2/h^3$ で与えられ (m^* 及び h はそれぞれ電子の有効質量及びプランク定数)、ここでは、GaN における電子の有効質量の報告値 $m^*=0.20m_0$ (m_0 は電子の静止質量) により算出された $A^*=24.0 \text{ A/K}^2\text{cm}^2$ を用いる²⁰。(5.1)式及び(5.2)式より、 n 及び $\phi_{b,TE}$ は、 $\ln(J_{TE})$ - V プロットの $V > 3kT/q$ 領域の線形領域における傾きと y 軸切片から算出される。図 5-4 には flat 電極及びピット電極における n 及び $\phi_{b,TE}$ の算出値を示している。 n については flat 電極で 1.25~1.29 (平均 1.27)、ピット電極では S ピットが 1.21~1.47 (平均 1.26)、M ピットが 1.22~1.50 (平均 1.29)、L ピットが 1.22~1.64 (平均 1.32) であり、flat 電極とピット電極間、及び異なるサイズのピット間で大きな差異は見られない。 $\phi_{b,TE}$ については、flat 電極で 0.81~0.94 eV (平均 0.85 eV)、ピット電極では S ピットが 0.68~0.80 eV (平均 0.75 eV)、M ピットが 0.60~0.78 eV (平均 0.72 eV)、L ピットで 0.61~0.75 eV (平均 0.70 eV) となり、異なるサイズのピット間での平均的な $\phi_{b,TE}$ 差は高々 0.05 eV と小さいが、これらピット電極の $\phi_{b,TE}$ 平均値は flat 電極の平均値よりも 0.13 eV 低かった。ただし、ピット電極と flat 電極ではショットキー接触面の面方位が異なる。先行研究において、 c 面上と m 面上に形成したショットキー接触の障壁高さが異なることが指摘されており^{21,22}、本研究のピット電極と flat 電極

間の $\phi_{b,TE}$ 差に影響を及ぼしている可能性がある。また、ピット電極においては、先端部分の Pt/GaN 界面では電界集中が生じていることも予想される。接触界面の高電界は、鏡像効果によって障壁高さを減少させることが知られ¹⁹、上記の算出 $\phi_{b,TE}$ 値は、鏡像効果によって減少した障壁高さを抽出している可能性が高い。異なるピットサイズ間、及び flat 電極とピット電極間で障壁高さをフェアに比較するためには、ピット先端に係る電界強度を決定する必要がある。本研究では、シミュレーション計算及び実験的な電気伝導機構解析の両方面からのアプローチによって、実際にピット先端にかかる電界強度を算定する。この点については、5.6 節で述べる。

続いて、逆方向リーク電流(図 5-3(a)-(d))に注目すると、ピット電極では数 V、flat 電極でも高々十数 V と、一見かなり小さな電圧でリーク電流が生じていることが分かる。これについては、本ハイブリッド基板が一般的な SBD に比べて高濃度にドーピングされていることに留意されたい(C - V 測定より有効キャリア密度は $1.66 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ と算定、5.5 節参照)。5.6 節で詳述するが、 $1.66 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の高ドーピング濃度を考慮して計算すれば、この程度の小さな電圧であっても、実際のショットキー界面には 2 MV/cm を超える非常に高い電界がかかっていることが判明しており、それゆえに比較的小さな電圧でリーク電流が発生したと考えられる。

図 5-3(a)及び(b)において、S ピットと L ピットの中での個々の J - V 特性は、電流量の違いはあるものの、そのばらつきは比較的連続的であり、カーブ形状も互によく似ている。唯一、L ピットの中で他の L ピットとはやや異なる J - V カーブ形状を示す転位が一つ存在していたのみである。一方、図 5-3(b)の M ピット内では、45 の内 43 のピットはよく似たカーブ形状を示したが、二つのピットで明らかに異常に大きなリーク電流が発生した。その中でも #M66(以降、#に続く表記は電極名を表し S/M/L/F がそれぞれ S ピット/M ピット/L ピット/flat 電極に対応)は順方向特性においても特異的に閾値電圧が低く、 $\phi_{b,TE}$ も M ピットの中でも低いことが判明した。この結果より、M ピットを形成する転位の中でのみ、極少数の割合で異常に大きなリーク電流を生じる転位が存在することが示された。異常な M ピット密度は $8.9 \times 10^2 \text{ cm}^{-2}$ と推定され、これは全 M ピットの 4.5%、全ピットの 0.14%に対応する。本章では、この異常リーク特性を示した M ピット電極と、その他の標準的なリーク特性を示した複数のピット電極、並びに flat 電極において、 I - V - T 特性を評価した。 I - V - T 特性を取得した電極については、図 5-3 では電極名と共にシンボル表記で、図 5-4 では電極名と共にピンク色のシンボルで示している。

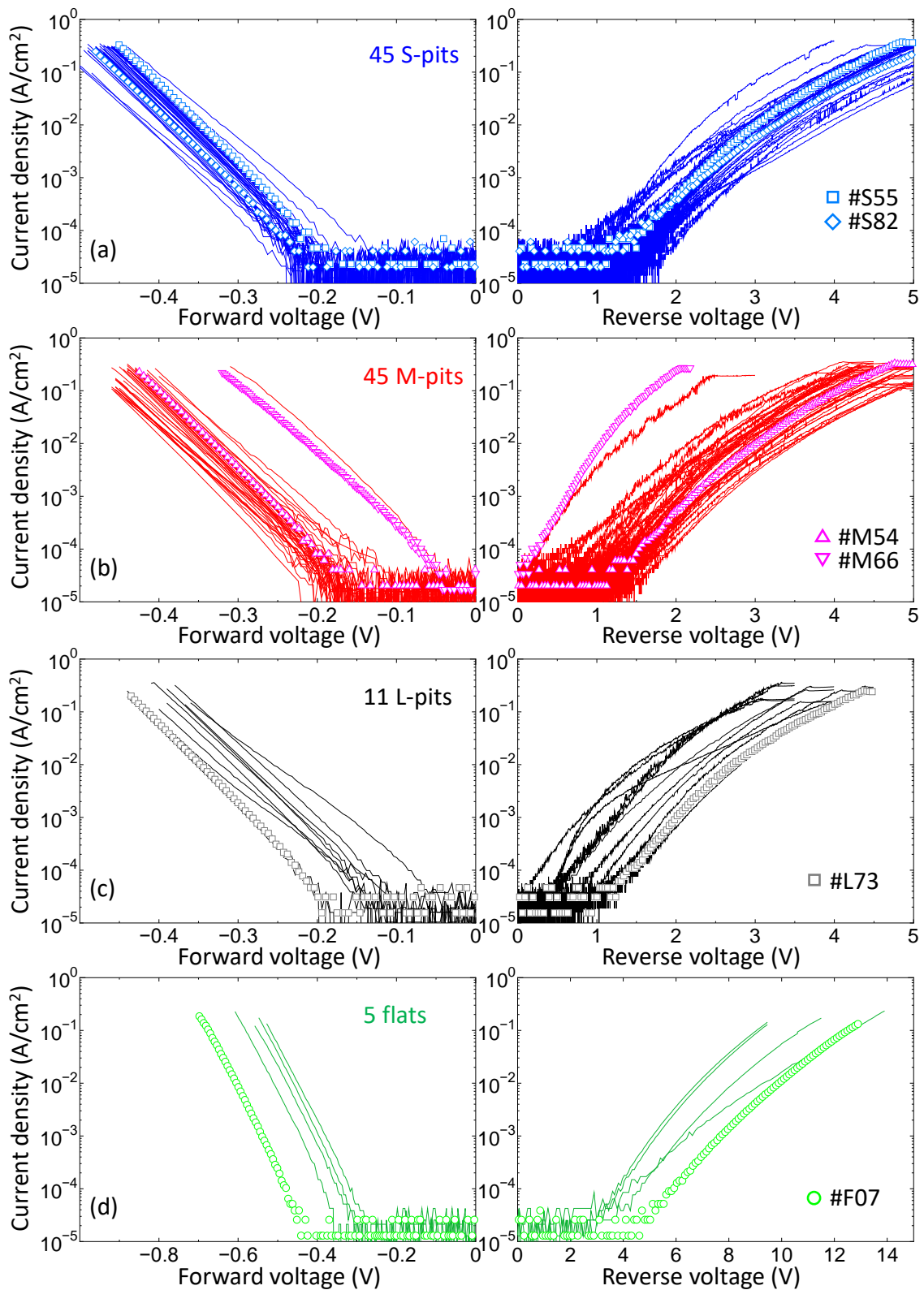


図 5-3 20°Cの真空中における(a) S、(b) M、(c) L ピット電極部、及び(d)flat 電極部における Pt/GaN ショットキー接触の J - V 特性。シンボル表記は I - V - T 測定を実施した転位の J - V 特性を示す。

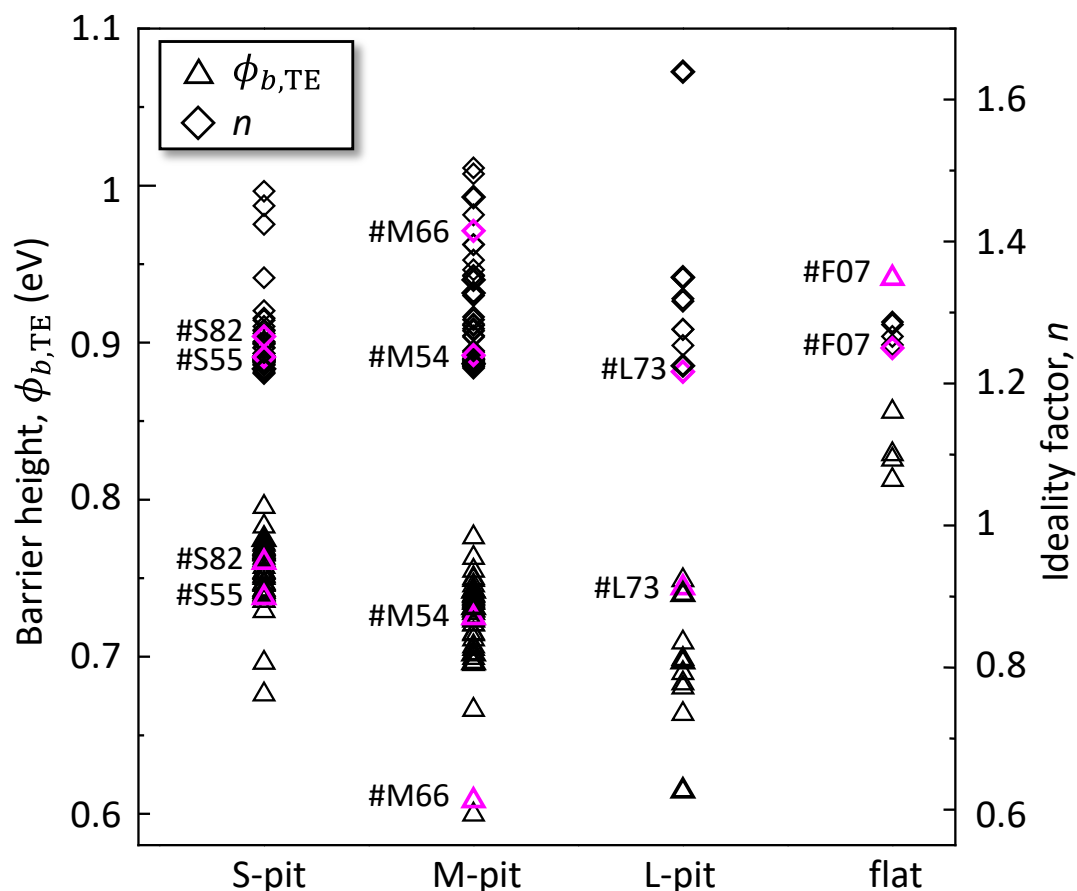
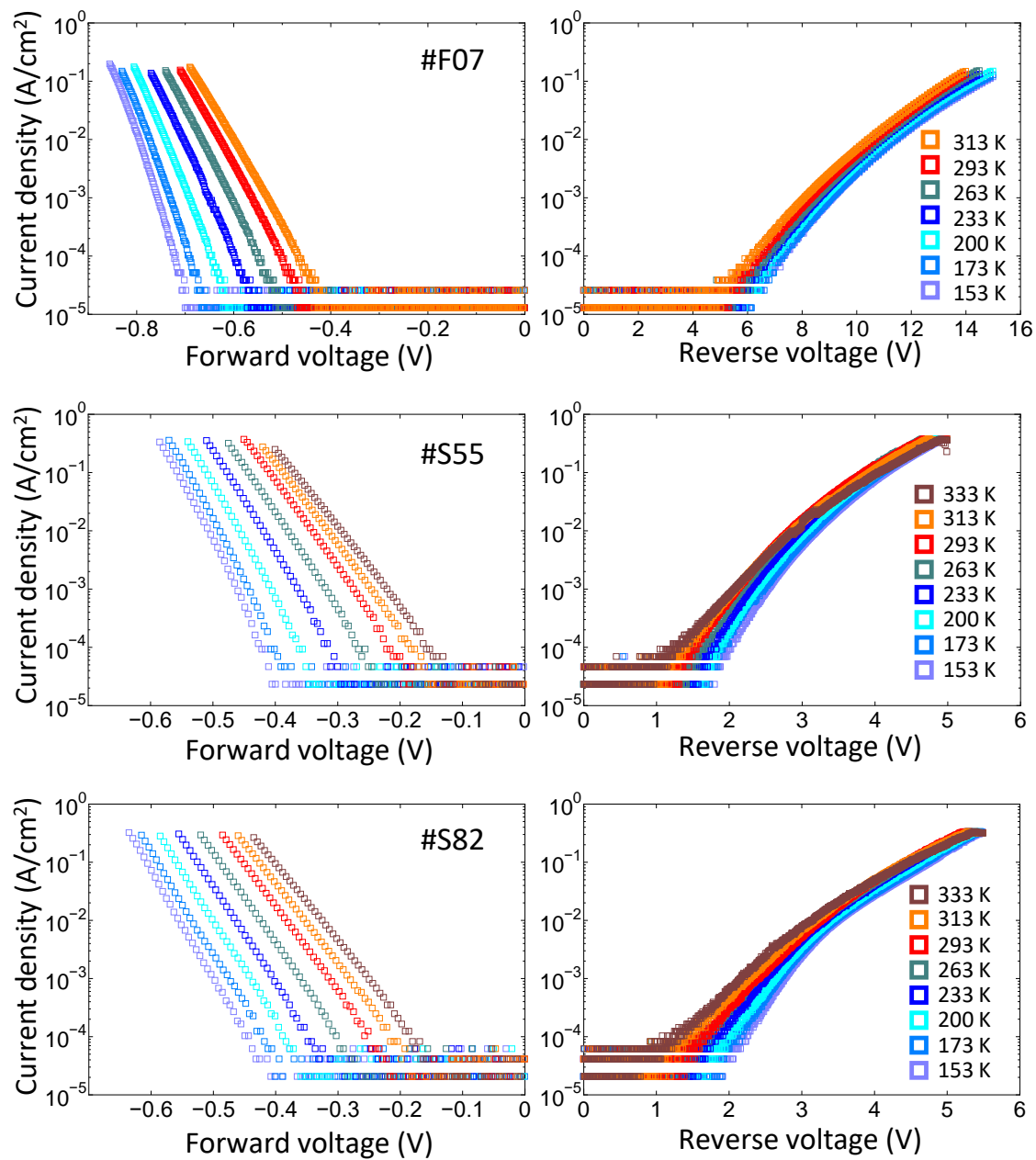


図 5-4 室温下 I - V 特性より TE モデルに従って算出された flat 電極及びピット電極における理想係数 n 及びショットキー障壁高さ $\phi_{b,TE}$ 。電極名と共にピンク色で示すプロットは I - V - T 測定を行った電極。

5.4. ピット電極及び flat 電極における順方向 I - V - T 特性の解析

図 5-5 は、室温下 I - V 測定後の幾つかのピット電極 (#S55、#S82、#M54、#M66、#L73) 及び一つの flat 電極 (#F07) で取得した I - V - T 特性である。ここに示された結果は各電極で I - V 特性の再現性を確認できた温度領域のデータであり、#F07 と #M66 がそれぞれ 153~313 K と 153~353 K で、それ以外のピット電極部 (#S55、#S82、#M54、#L73) では 153~333 K で計測された I - V - T 特性である。#M66 が図 5-3(b) の M ピット内で異常に大きなリーク電流と低 $\phi_{b,TE}$ 値を示したピットであり、その他のピット電極 (#S55、#S82、#M54、#L73) は各ピットサイズの中で小～中程度のリーク電流量と標準的～やや高めの $\phi_{b,TE}$ 値を示したピットである。図 5-5 より、flat 電極、ピット電極を問わず、順方向・逆方向特性共に温度依存性が見られる。室温 I - V 特性と同様に、#M66 ではいずれの温度でも最も大きなリーク電流が生じていた。



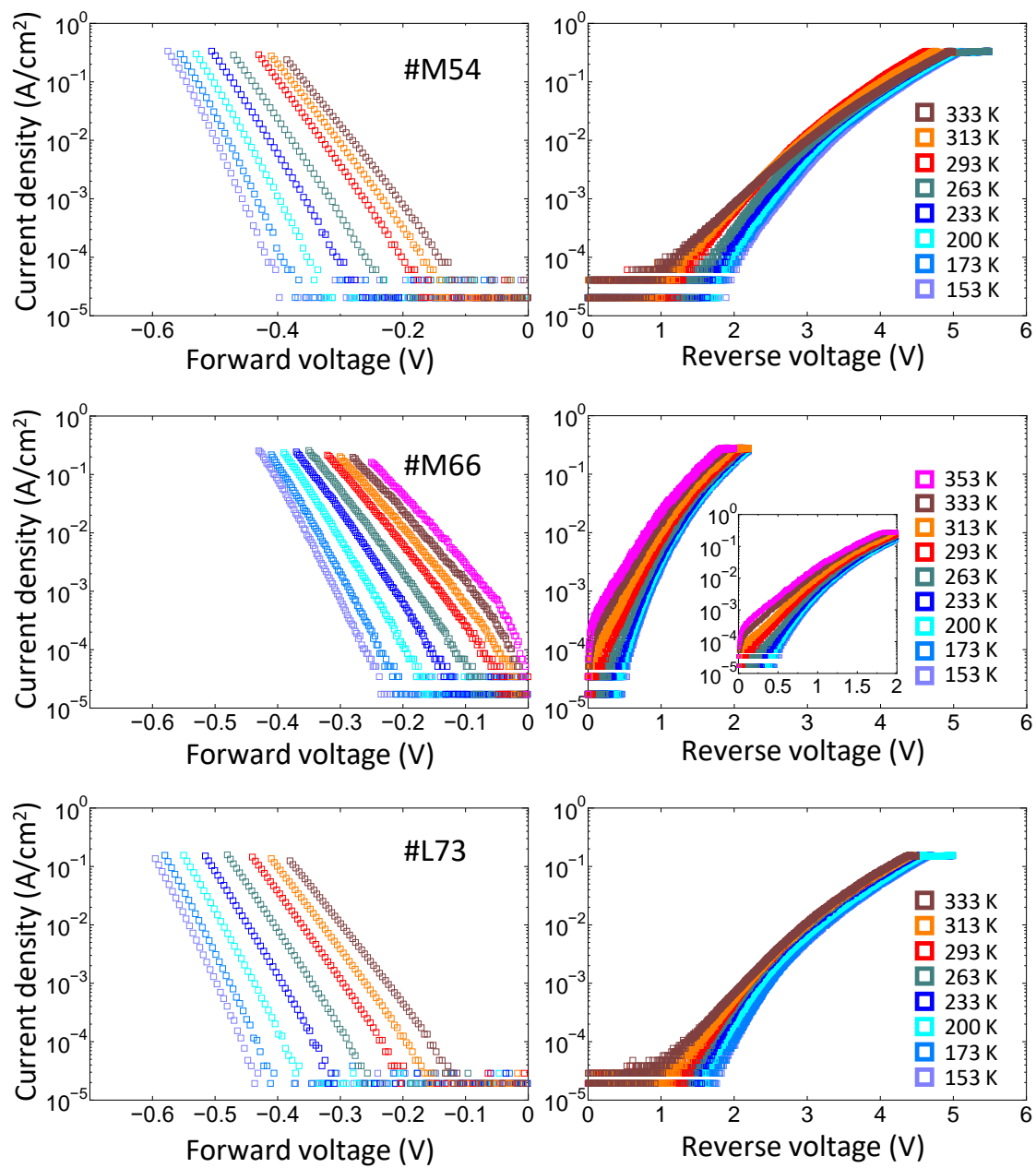


図 5-5 #F07、#S55、#S82、#M54、#M66、#L73 における I - V - T 特性。#M66 中の挿入図は低電圧域特性の拡大表示。

図 5-6 は#F07、#S55、#S82、#M54、#M66、#L73 の電極部における順方向 I - V - T 特性から抽出された $\phi_{b,TE}$ 及び n の温度依存性である。flat 電極、ピット電極ともに温度依存性があり、温度が高くなるほど $\phi_{b,TE}$ は増加し、 n は減少する傾向が見られた。図 5-7 はこれら電極部で得られた I - V - T 特性からリチャードソンプロットを行った結果である。リチャードソンプロットは、(5.2)式の変形で得られる

$$\ln\left(\frac{J_{0,TE}}{T^2}\right) = \ln(A^*) - \frac{q\phi_{b,TE}}{kT}, \quad (5.3)$$

に基づく $\ln(J_{0,TE}/T^2)$ vs $1/T$ プロットのことであり、理想的なショットキー接触の場合、フィッティング直線の y 切片及び傾きから $\phi_{b,TE}$ と A^* を算出することが出来る¹⁹。しかしながら、図 5-7 では flat 電極、ピット電極ともに低温である程プロットが湾曲し、非線形的なプロットとなった。比較的線形的となっている高温領域でフィッティングを行った結果、各電極における A^* が 112~6562 A/K²cm² の値となり、理論的な 24.0 A/K²cm² に比べて 1~2 桁大きな値となった。 $\phi_{b,TE}$ 及び n の同様な温度依存性や非線形なリチャードソンプロット結果は、GaN 系 SBD では数多く報告されている^{9,11-13}。これらの報告では、電気伝導機構が理想的な TE モデルに従っていないことが原因と考えられており、界面におけるショットキー障壁高さが空間的に均一ではなく、ガウス分布に則ったばらつきを有していると考えらることでうまく説明されている。

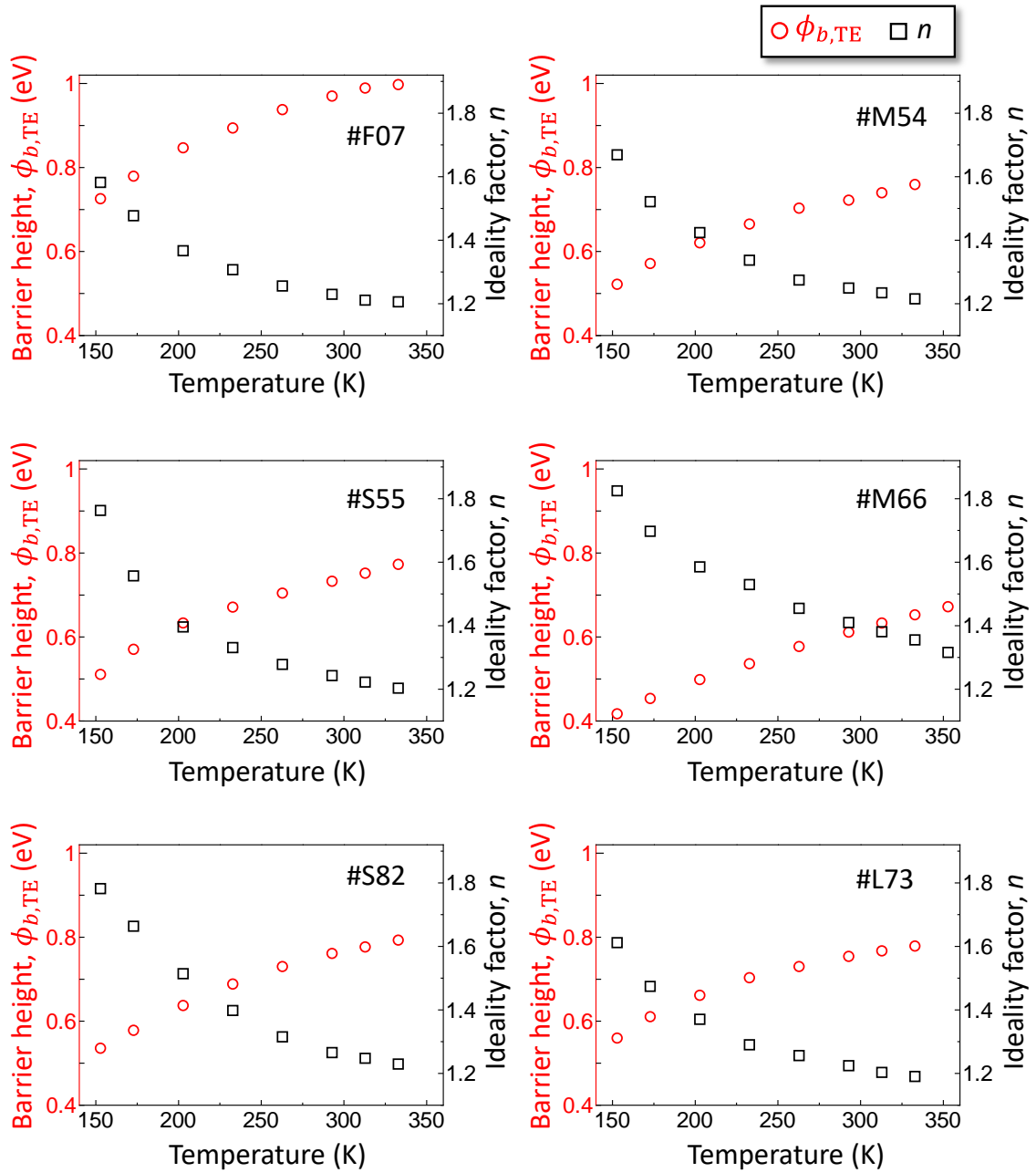


図 5-6 #F07、#S55、#S82、#M54、#M66、#L73 における理想係数 n 及びショットキ一障壁高さ $\phi_{b,TE}$ の温度依存性。

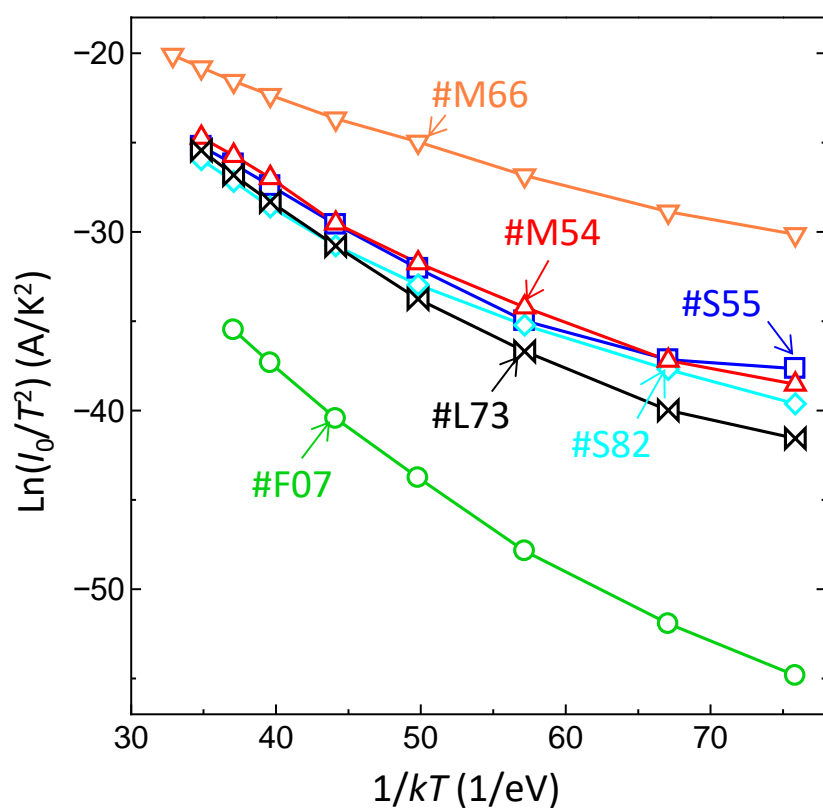


図 5-7 #F07、#S55、#S82、#M54、#M66、#L73 の I - V - T データに対して行った一般的なリチャードソンプロット。

このような「障壁高さ不均一モデル」では、ショットキー界面を介して流れる順方向の総電流が、個々に異なる障壁高さを有する界面内の微小領域それぞれにおいて、TE的に障壁を超えてきた電流を、ガウシアン分布関数で重み付けしたうえで合算した電流量であると考え(図 5-8)^{9,11-13}。このモデルにおいて、温度に依存する障壁高さ ϕ_{ap} と理想係数 n_{ap} は、それぞれ

$$\phi_{ap} = \bar{\phi}_{b0} - \frac{q\sigma_s^2}{2kT}, \quad (5.4)$$

$$\frac{1}{n_{ap}} - 1 = -\rho_2 + \frac{q\rho_3}{2kT}, \quad (5.5)$$

と表される($\bar{\phi}_{b0}$ と σ_s は、それぞれガウシアン分布に従う障壁高さ分布の平均値とゼロバイアス下での標準偏差、 ρ_2 と ρ_3 は、それぞれ平均障壁高さと標準偏差の電圧係数である)。(5.4)式の ϕ_{ap} を(5.3)式の $\phi_{b,TE}$ に代入することで下記の式が与えられる。

$$\ln\left(\frac{J_{0,TE}}{T^2}\right) - \left(\frac{q^2\sigma_s^2}{2k^2T^2}\right) = \ln(A^*) - \frac{q\bar{\phi}_{b0}}{kT}, \quad (5.6)$$

この式に基づく $\ln(J_{0,TE}/T^2) - q^2\sigma_s^2/2k^2T^2$ vs $1/T$ プロットが、障壁高さ不均一モデルにおけるリチャードソンプロットである。(5.4)式と(5.5)式に基づき ϕ_{ap} vs $1/2kT$ プロットと $1/n_{ap} - 1$ vs $1/2kT$ プロットを行い、その線形フィッティングからそれぞれ $\bar{\phi}_{b0}$ と σ_s 、 ρ_2 と ρ_3 を算出した後、 σ_s を用いて(5.6)式に基づきリチャードソンプロットを行うことにより、 $\bar{\phi}_{b0}$ と A^* を算出できる。

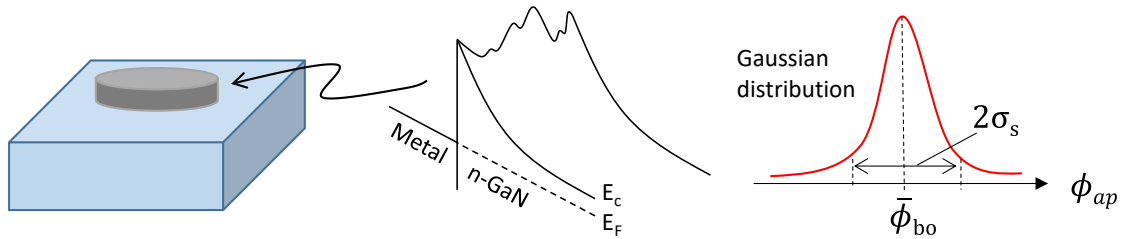


図 5-8 ショットキー障壁高さ不均一モデルを表す概念図。

図 5-9(a)に#F07、#S55、#S82、#M54、#M66、#L73 の ϕ_{ap} vs $1/2kT$ プロットと n_{ap} vs $1/2kT$ プロットを示す。#F07、#S55、#S82、#M54、#L73 のプロットが全温度領域に渡り高い線形性を有する一方で、#M66 のプロットでは、293 K を境界に高温域 (図中(i)) と低温域 (図中(ii)) で異なる傾きを有する 2 つの線形領域が表れた。#M66 については (i) 及び (ii) の各温度領域において、#F07、#S55、#S82、#M54、#L73 については全温度領域において、各プロットの線形フィッティングを行い ρ_2 、 ρ_3 、 σ_s 、 $\bar{\phi}_{b0}$ を算出した。算出値は表 5-1 に示す通りである。算出された σ_s を用いてリチャードソンプロットを行った結果を図 5-9(b) に示す。#M66 については、(i) と (ii) の算出された 2 つの σ_s を用いたリチャードソンプロット結果をそれぞれ示している (図中(i) 及び (ii) で表記)。#M66 以外の #F07、#S55、#S82、#M54、#L73 については全温度領域で線形性を有している。#M66 については、(i) 及び (ii) のそれぞれのプロットの中で、各温度域に対応した領域 ((i): 293-353 K、(ii): 153-263 K) において明確な線形性が表れている。これらの線形領域におけるフィッティングにより算出された $\bar{\phi}_{b0}$ 及び A^* を表 5-1 にまとめている。2 つの線形領域に区分された #M66 を含む、全ての電極部で算出された A^* が 8.98~12.84 A/K²cm² と概ね同様の値をとり、理論値 24.0 A/K²cm² と非常に近い値となった。この結果より、全ての flat 電極及びピット電極において、図 5-6 で見られた $\phi_{b,TE}$ 及び n の非理想的な温度依存性が、障壁高さの空間的不均一性に帰着されることが分かった。先行研究では、障壁高さのばらつきについては、表面欠陥 (点欠陥や貫通転位) の存在、界面の品質 (元素組成等を含む) や電荷チャージ等のばらつき、これらに起因して界面の一部で局所的に高電界が印加される等の要因が挙げられている^{9,11-13}。本研究の場合、特に、界面に貫通転位を含まない #F07 の flat 電極における特性もこのモデルで説明されたことを踏まえると、少なくとも、貫通転位が障壁高さばらつきに及ぼす影響は小さいと考えられる。これは、後に示す逆方向リーク電流について、#M66 を除く電極においては、その電気伝導に転位がほとんど関与していなかったことから推察される。本研究の場合、FIB システムの電子ビームアシスト蒸着プロセスに起因して障壁高さが空間的にばらついている可能性も挙げられる。第 2 章で示した通り、本プロセスによって蒸着された直後の Pt 電極には炭化物が高密度で残留している。ポストアニール処理で多くの炭化物は除去され、概ね良好なショットキー界面が形成されていると考えられるが、完全に排除しきれなかった炭化物や、Pt 蒸着時の局所的な電子ビームダメージ、アニール処理等が、Pt の仕事関数や界面の化学結合状態にばらつきをもたらし、結果的に不均一な障壁高さが形成された可能性が示唆される^{23,24}。

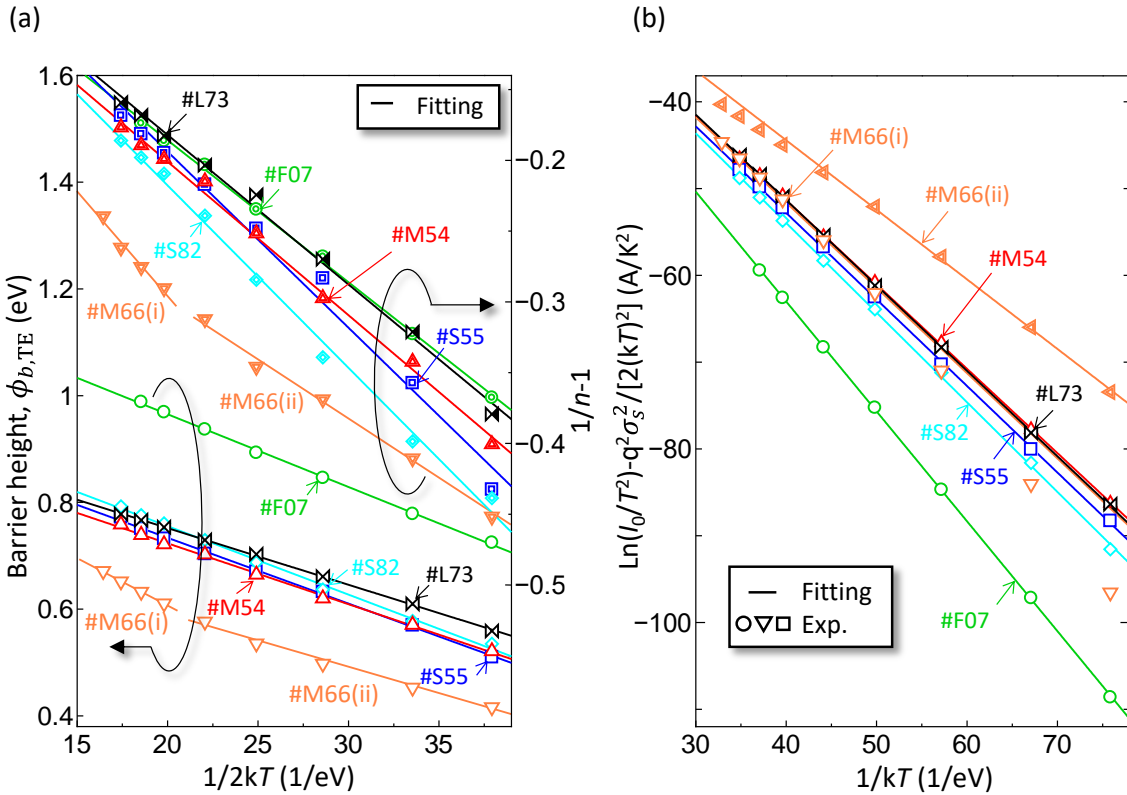


図 5-9 障壁高さ不均一モデルに基づいた、#F07、#S55、#S82、#M54、#M66、#L73 の(a) $\phi_{b,TE}$ vs $1/2kT$ プロットと n vs $1/2kT$ 、及び(b) リチャードソンプロット。

表 5-1 障壁高さ不均一モデルに基づく各種プロットの線形フィッティングにより算出された ρ_2 、 ρ_3 、 σ_s 、 $\bar{\phi}_{b0}$ 、 A^* の値。

	ρ_2	ρ_3	σ_s	$\bar{\phi}_{b0}$ [eV] (SBH vs $1/2kT$)	$\bar{\phi}_{b0}$ [eV] (Richardson plot)	A^* [A/K ² cm ²]
#F07	0.100	0.015	0.117	1.24	1.27	8.98
#S55	0.112	0.055	0.111	0.98	1.00	9.45
#S82	0.114	0.040	0.113	1.01	1.03	11.06
#M54	0.104	0.016	0.107	0.95	0.97	11.02
#M66(i)	0.121	-0.001	0.134	0.97	0.98	12.84
#M66(ii)	0.092	-0.128	0.099	0.79	0.80	11.94
#L73	0.103	0.029	0.103	0.96	0.98	10.09

表 5-1 より、障壁高さの平均値 $\bar{\phi}_{b0}$ について、全ての電極において、 ϕ_{ap} vs $1/2kT$ プロットとリチャードソンプロットの算出値が概ね同じ合致している。flat 電極の#F07 では 1.24 eV または 1.27 eV と算出された。ピット電極については、#M66 を除く全ての電極で 0.95~1.03 eV と非常に近い値となった。一方、#M66 については(i)と(ii)領域で異なる $\bar{\phi}_{b0}$ が算出された。(i) 293-353 K では 0.97 eV 又は 0.98 eV となり、他のピット電極とほぼ同じ値であったが、(ii) 153-263 K では 0.79 eV 又は 0.80 eV と(i)よりも~0.18 eV 低い値となった。

室温下 I - V 特性において、大多数のピット電極で見られた、リーク量が小~中程度の標準的な特性を示したピット(#F07、#S55、#S82、#M54、#L73)については、ピットサイズが異なるにもかかわらず、同様の障壁高さ不均一モデルで説明でき、かつ同様の $\bar{\phi}_{b0}$ 値であった。ピットサイズが転位のバーガースベクトルと一対一対応関係にあることを示した第 4 章の結果を踏まえると、大多数の貫通転位については、Pt/GaN ショットキー接触の順方向電気伝導機構がバーガースベクトルに依らずほぼ同じであると結論付けられる(本章で電気測定を行ったピット直下でも幾つか TEM 観察を行い、同様の対応関係があることを確認している。詳細は第 6 章で述べる)。一方で、#M66 でのみ見られた、温度領域に応じて異なる線形領域が生じる結果については、過去の研究でも同様の現象が幾つか報告されている^{9,11-13}。各温度領域で異なる二組の $\bar{\phi}_{b0}$ 及び σ_s が算出されることから、ショットキー界面の障壁高さが二つのガウシアン分布(Double gaussian 分布)に従い分布するとして解釈されており、これは、温度領域に応じて異なる電気伝導機構が支配的になること(例えば、低温:欠陥準位を介したトラップアシストトンネル(TAT: trap-assisted tunneling)機構等、高温:TE)に起因すると考えられている。本研究でも、他の M ピットよりも特異的に大きなリーク電流を示した#M66 については、順方向の電気伝導機構が他の大多数のピット電極とは異なり、特に 263 K 以下の低温下では貫通転位が起因したトンネル電流成分等が支配的になっていた可能性が示唆される。これについては、後述する逆方向の電気伝導機構も含めた統一的な議論を 5.9 節にて展開する。

flat 電極#F07 の $\bar{\phi}_{b0}$ はピット電極(#M66(ii)を除く)よりも~0.27 eV 高かった。先述の通り、この差異には、ショットキー障壁高さの面方位依存性^{21,22}やピット形状由来の鏡像効果¹⁹のような、転位以外の要因が寄与している可能性がある。ショットキー障壁高さに及ぼす転位の本質的な影響については 5.12 節にて考察する。一方、界面直下に貫通転位が無いにもかかわらず、#F07 の $\bar{\phi}_{b0}$ は Pt の仕事関数(5.65 eV)と GaN の電

子親和力 (4.1 eV) で決まる理想的なショットキー障壁 1.55 eV よりもやや低い値である。先行研究でも同様の結果が報告されており、低貫通転位密度 GaN 基板上に一般的なプロセス (MOVPE 法によるエピ膜成長、電子ビーム蒸着による金属蒸着プロセス等) を経て作製された縦型 SBD であっても、ショットキー障壁高さが理想通りの値となっている例はほとんどない^{1,21,25,26}。幾つかの先行研究で、種々の金属を用いて縦型 GaN-SBD を作製したうえで、各 SBD における実験的な障壁高さと金属の仕事関数から S 値 ($S = d\phi_B/d\phi_M$, ϕ_B : 実測障壁高さ、 ϕ_M : 金属の仕事関数) を算出し、フェルミレベルピンング効果が調査されている。 S 値とは、ほとんどの場合 0 から 1 の間の値をとり、その値の大きさからピンング度合いを評価する一つの指標である。 $S=1$ の場合はピンングが起こっておらず障壁高さが金属の仕事関数のみで決まっている状態 (Mott-Schottky limit)、 $S=0$ の場合は強いピンングが起こっており障壁高さが金属種に依らずに同じ値となっている状態 (Bardeen limit) と解釈される。Imadate らの報告では、 I - V 測定と内部光電子放出測定による障壁高さの計測結果から、それぞれ $S=0.542$ (I - V) と $S=0.642$ (内部光電子放出) と算出されており、非理想的なショットキー界面となっていることが示されている²⁵。Isobe らは、自然酸化膜除去を目的とした種々の化学薬液による GaN 結晶表面処理プロセスを施した後、X 線光電子分光 (XPS) 測定と SBD の I - V 測定を実施している²⁶。この結果、GaN 表面の自然酸化膜が少ない程、SBD の S 値は 1 に近づく傾向にあり、最も自然酸化膜が少なかった SBD では $S=0.25$ と求まっている。Isobe らはこれらの結果を踏まえ、酸化膜起因の GaN 表面化学結合状態の乱れが原因で界面準位 (いわゆる disorder-induced gap states) が形成されてしまい、これがフェルミレベルのピンングを引き起こしている可能性を示唆している。Segev らは、GaN 結晶表面の最安定構造及び電子状態の第一原理計算により、結晶表面ダングリングボンドを起源とした、価電子帯端より 0.6 eV 低い界面準位でピンングが生じ得ることを示している²⁷。これらを踏まえると、#F07 においても、結晶最表面の自然酸化膜や原子配列に由来した界面準位が形成されており、それによりフェルミレベルピンングが生じていたと予想される。同時に、これらの界面準位が、上述の障壁高さ不均一性に寄与していた可能性も示唆される。

5.5. flat 電極における逆方向 I - V - T 特性の解析

図 5-10 は、F07、#S55、#S82、#M54、#M66、#L73 における逆方向バイアス印可時の I vs $1000/T$ プロットである。flat 電極及び全てのピット電極において、173 K 以下の低温域の高電圧（すなわち高電界）側（図中 (A) で示す）では、温度依存性は極めて弱い一方で、温度が高くなるほど温度依存性が強くなる傾向が見られる（図中 (B) で示す）。このような温度に強く依存したリーク電流の電気伝導機構候補には PF 機構が挙げられる。PF 機構は、バンドギャップ中のトラップ準位に捕獲された電子が、外部電界によって減少した障壁を熱励起により乗り越え伝導帯に放出されることで電気伝導に寄与するモデルであり、しばしば GaN-SBD の逆方向リーク電流の電気伝導機構も PF 機構で説明されている^{2,4-7}。PF 機構による電流は

$$I = K_p E \exp \left(- \frac{q(\phi_{t,PF} - \sqrt{qE/\epsilon_r \epsilon_0})}{kT} \right), \quad (5.7)$$

で表される (K_p 、 $\phi_{t,PF}$ 、 E 、 ϵ_r 、 ϵ_0 は、それぞれ定数、伝導帯端からのトラップ準位の深さ、電界強度、GaN の比誘電率、真空の誘電率である)。

ここでは、まず flat 電極 #F07 の特性を解析する。解析時の E にはショットキー界面における最大電界強度

$$E_m = \sqrt{\frac{2qN_D}{\epsilon_r \epsilon_0} \left(\psi_{bi} - V - \frac{kT}{q} \right)}, \quad (5.8)$$

を用いる (ψ_{bi} は拡散電位)。GaN の比誘電率には $\epsilon_r=9.5$ を用い²⁸、 N_D と ψ_{bi} は FIB の電子ビームアシスト蒸着による直径 70 μm の flat 電極で実施した、室温下 C - V 測定により求めた値を用いる。ショットキー界面の空乏層容量 C とドナー濃度の間には

$$\frac{1}{C^2} = \frac{2(\psi_{bi} - V - kT/q)}{A^2 q \epsilon_r \epsilon_0 N_D}, \quad (5.9)$$

の関係式が成り立ち (A はショットキー接触面積)、計測データの $1/C^2$ vs V プロットから N_D 及び ψ_{bi} が算出される。本研究では、周波数を 10 kHz~1 MHz までの 4 通りの条件で C - V 測定を行った。図 5-11(a) 及び (b) は、それぞれ C - V 測定を実施した直径 70 μm の Pt/GaN ショットキー接触の平面 SEM 像、及び室温 C - V 特性の $1/C^2$ vs V プロットである。線形フィッティングより算出された N_D 及び ψ_{bi} の値を表 5-2 にまとめている。周波数ごとの違いはほぼなく、 ψ_{bi} は 1.52~1.55 eV、 N_D は $1.66\sim 1.76 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ と算出された。本解析では、代表して 500 kHz の値 (ψ_{bi} は 1.53 eV、 N_D は $1.66 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) を用いた。

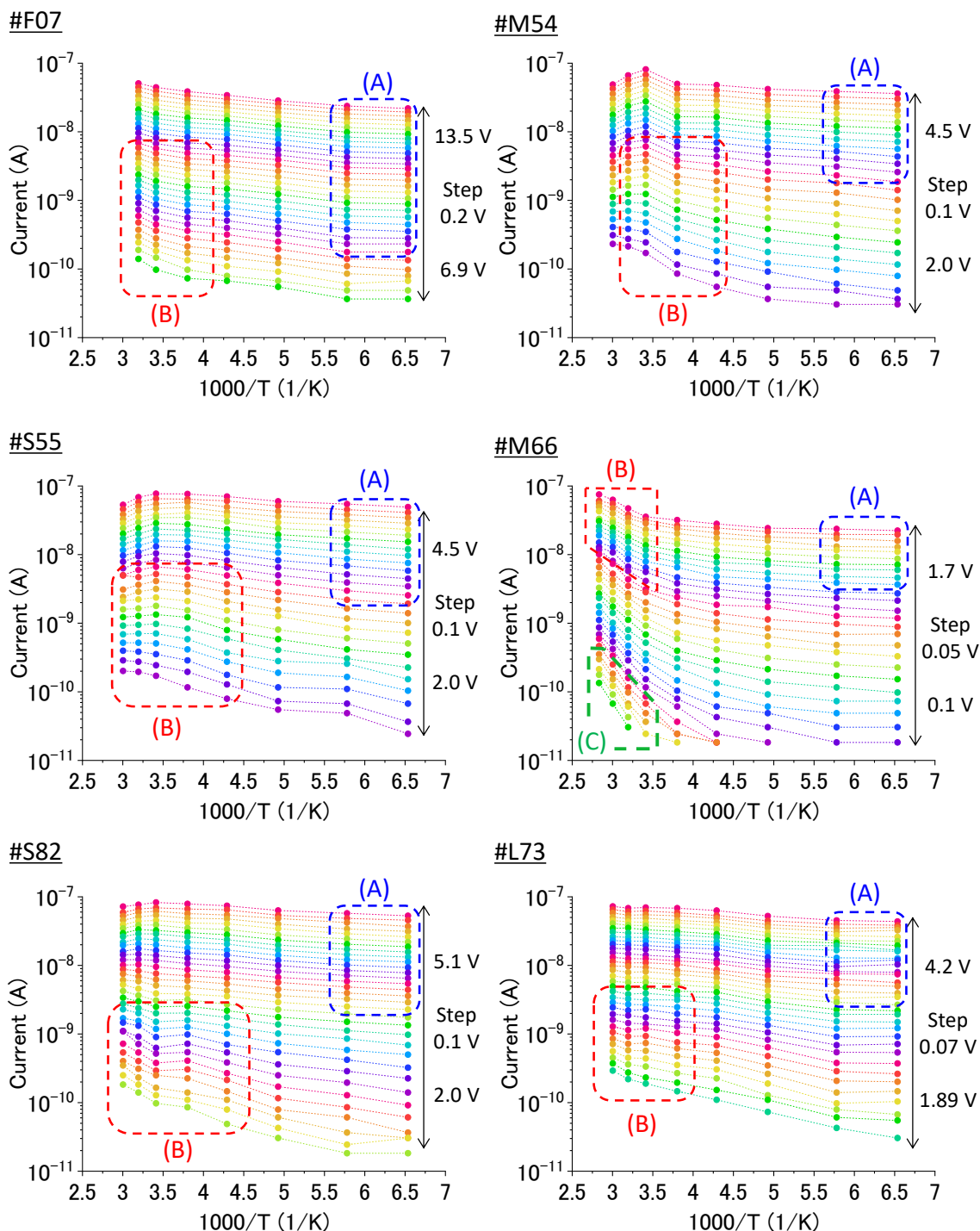


図 5-10 #F07、#S55、#S82、#M54、#M66、#L73 における逆方向バイアス印可時の I vs $1000/T$ プロット。図中(A)、(B)、(C)で示す領域は、それぞれ FNT 機構、PF 機構、TAT 機構が支配的となっている領域。

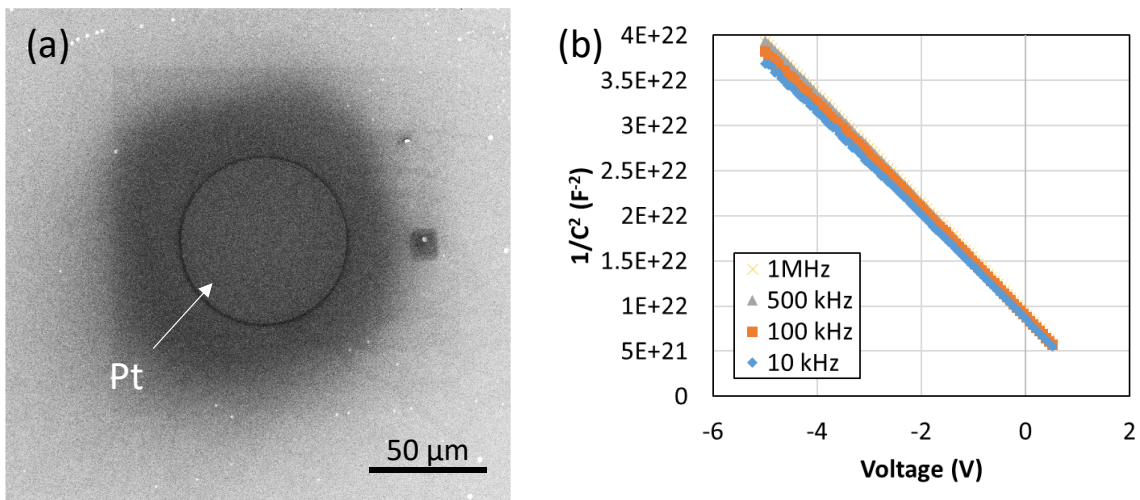


図 5-11 (a) FIB の電子ビームアシスト蒸着により形成した直径 70 μm の Pt/GaN ショットキー接触の平面 SEM 像、及び(b) 室温 C - V 特性の $1/C^2$ vs V プロット。

表 5-2 室温 C - V 特性より算出された ψ_{bi} 及び N_D の一覧。

	ψ_{bi} (eV)	N_D (cm ⁻³)
1MHz	1.52	1.66×10^{18}
500 kHz	1.53	1.66×10^{18}
100 kHz	1.55	1.72×10^{18}
10 kHz	1.53	1.76×10^{18}

リーク電流が PF 機構に従う場合、(5.7)式より $\ln(I)$ vs $1/kT$ プロットが線形となり、その傾きから $\phi_{t,PF} - \sqrt{qE/\epsilon_r\epsilon_0}$ が算出される。さらに $\phi_{t,PF} - \sqrt{qE/\epsilon_r\epsilon_0}$ vs \sqrt{E} プロットの線形フィッティングにより $\phi_{t,PF}$ 及び ϵ_r が算出される。図 5-10 に示す #F07 の高温領域(B)における $\ln(I)$ vs $1/kT$ プロットが線形性を有していることが、図 5-12 の挿入図から分かる。図 5-12 は、#F07 の高温領域における $\phi_{t,PF} - \sqrt{qE_m/\epsilon_r\epsilon_0}$ vs $\sqrt{E_m}$ プロットを示している。6.9 V から 10.5 V においてプロットに顕著な線形性が見られ、フィッティングにより、 $\epsilon_r=6.47$ 、 $\phi_{t,PF}=054$ eV を得た。算出された ϵ_r の値は GaN-SBD にて PF 解析を行う先行研究の報告値^{2,4-7}や理論値 9.5²⁸と比較的近い値であることから、#F07 の領域(B)におけるリーク電流には PF 機構による電気伝導が支配的に寄与していることが明らかとなった。

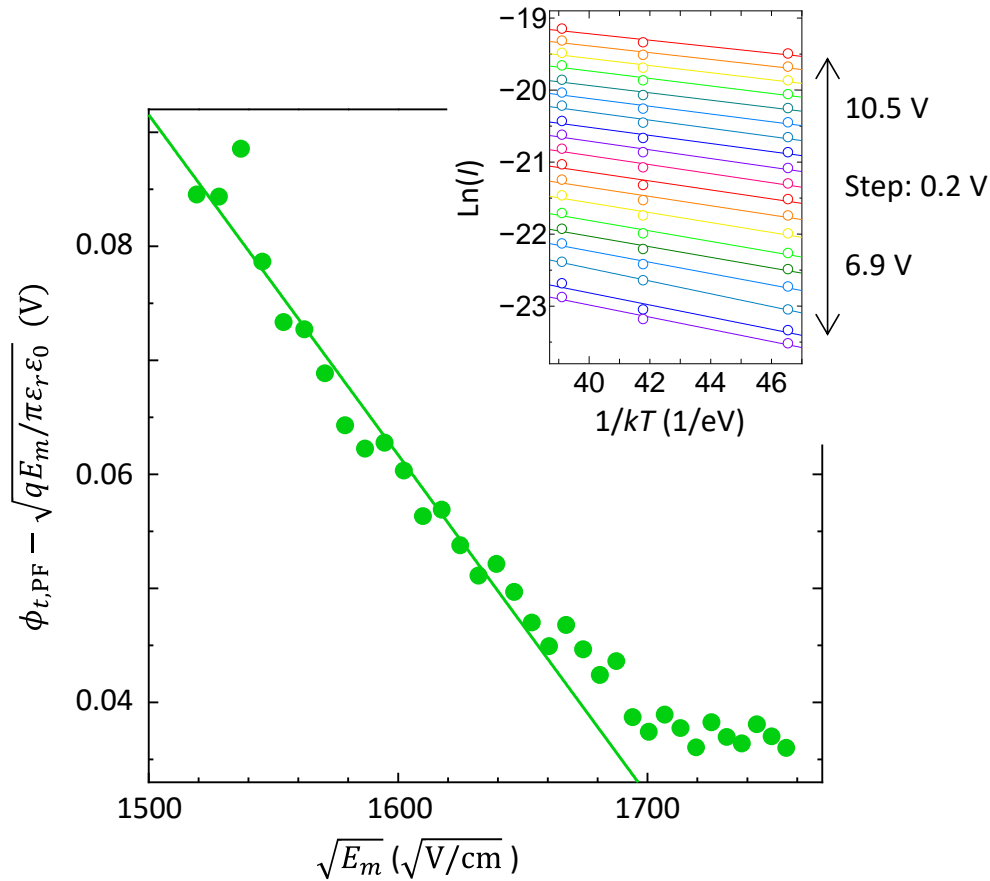


図 5-12 #F07 における $\phi_{t,PF} - \sqrt{qE_m/\epsilon_r\epsilon_0}$ vs $\sqrt{E_m}$ プロット。挿入図は、領域(B)における I vs $1/kT$ プロット。実線は線形領域におけるフィッティング曲線。

一方、図 5-10 の I vs $1000/T$ プロットにおいて、いずれの電極でもほとんど温度依存性が現れなかった低温・高電圧(高電界)領域(A)のリーク電流は Fowler-Nordheim トンネリング機構(FNT:Fowler-Nordheim tunneling)で生じている可能性が高い。FNT 機構は高電界印可された絶縁体膜におけるリークメカニズムを説明する代表的な電気伝導機構として知られる¹⁹が、ワイドバンドギャップ半導体である GaN でも、しばしばショットキー接触の逆方向リーク電流機構となることが報告されている^{2,29}。FNT 機構は、高電界印可時の三角ポテンシャルショットキーバリア障壁を、電子が金属側から半導体側へ直接トンネリングする現象であり、

$$I = K_F E^2 \exp\left(-\frac{4\sqrt{qm^*}\phi_b^{3/2}}{3\hbar E}\right), \quad (5.10)$$

で表される(ϕ_b は障壁高さ、 K_F は定数)¹⁹。図 5-13 は#F07 における $\ln(I/E_m^2)$ vs $1/E_m$ プロットである。図中(a)のプロットは室温下 C - V 測定の算出値 $N_D=1.66\times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ と 293 K を用いて求めた電界 E によりプロットした。153 K 及び 173 K のプロットが概ね重なり、高い線形性を有することから、予想された通り FNT 機構である可能性が高い。153 K の線形領域におけるフィッティングで算出された障壁高さ ϕ_b は 1.52 eV となり、順方向特性から算出された $\bar{\phi}_{b0}=1.24 \text{ eV}$ と比較的近い値となった。逆に、 $N_D=9.0\times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 、153 K と仮定して算出した E_m であれば、フィッティングによる算出値 ϕ_b が $\bar{\phi}_{b0}=1.24 \text{ eV}$ と合致することも分かった(図 5-13(b))。室温下 C - V 測定による N_D に対して、153 K における FNT 機構フィッティングから導かれた N_D は約 1.8 倍の値となった。n 型 GaN 結晶におけるキャリア濃度の温度依存性を調査した先行研究によれば、153 K と室温で概ね同等のキャリア濃度変化が生じていることから^{13,30-32}、本 HVPE-GaN 結晶においても温度低下に伴いキャリアが減少し、153 K で $N_D=9.0\times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ となったと考えられる。図 5-14 に、153 K、 $N_D=9.0\times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ として算出した#F07 のショットキー界面における最大電界強度 E_m と空乏層幅(W_D)の逆バイアス電圧依存性を示している。 W_D は下記の式で算出した。

$$W_D = \sqrt{\frac{2\varepsilon_r\varepsilon_0}{qN_D}\left(\psi_{bi} - V - \frac{kT}{q}\right)} = \frac{2[\psi_{bi} - V - (kT/q)]}{E_m}, \quad (5.11)$$

高電圧印可領域($>8 \text{ V}$)では電界強度が約 1.8 MV/cm 以上と非常に高くなっており、空乏層幅も約 100 nm とかなり薄い。以上の結果より、#F07 の低温領域(A) (図 5-10)では FNT 機構に従うリーク電流が支配的に流れていると結論付けられる。以降、153 K におけるドナー濃度は $N_D=9.0\times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ として解析を行うこととする。

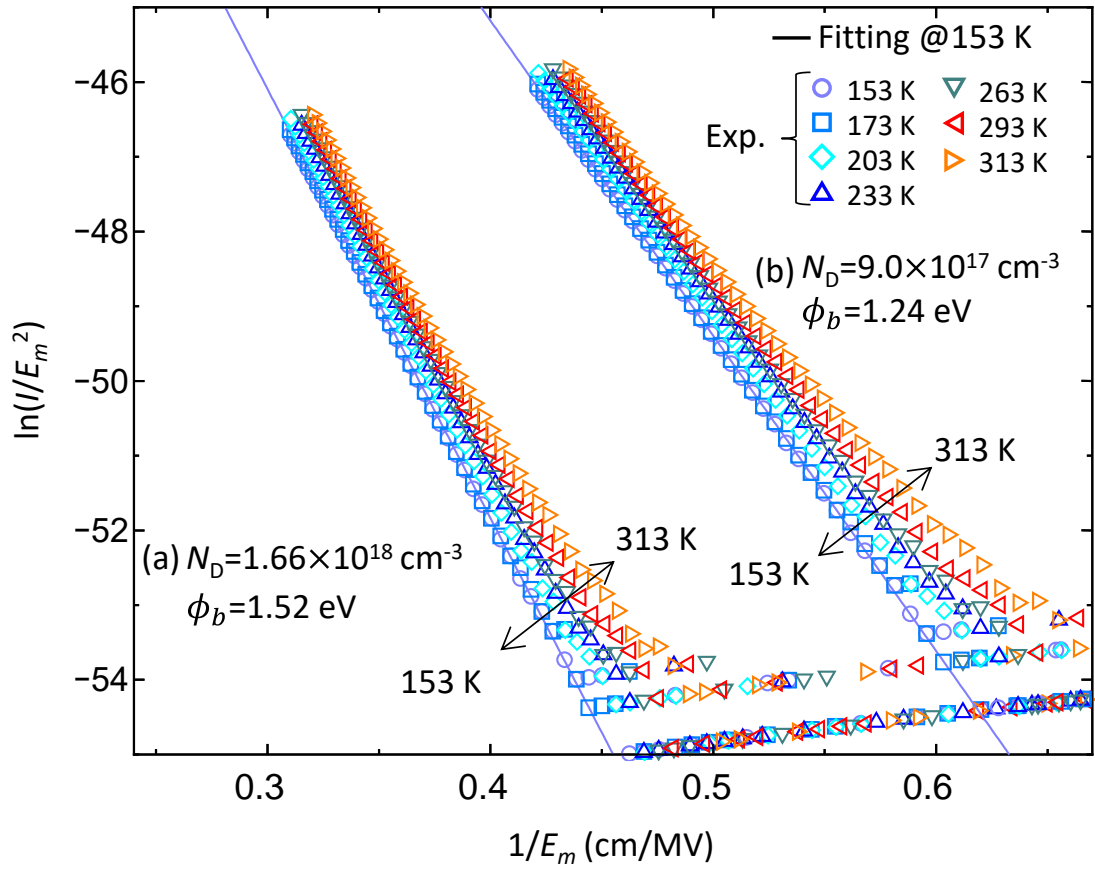


図 5-13 #F07 における $\ln(I/E_m^2)$ vs $1/E_m$ プロット。(a)では $N_D = 1.66 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、293 K、(b)では $N_D = 9.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 、153 K の条件で算出した E_m を用いてプロットを行っている。

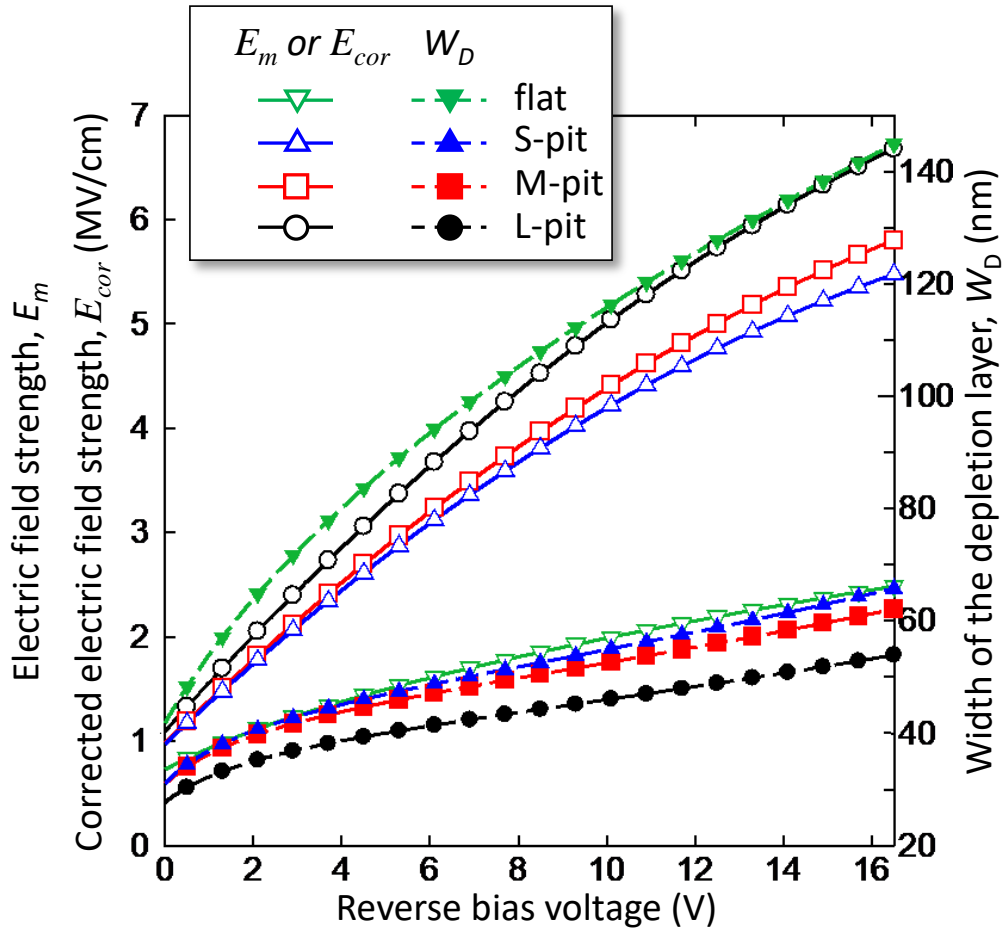


図 5-14 flat 電極界面における最大電界強度 E_m と空乏層幅 W_D の逆バイアス電圧依存性、及び S、M、L ピット電極先端部における補正電界強度 E_{cor} と W_D の電圧依存性。flat 電極の E_m 及び W_D は 153 K、 $N_D=9.0\times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ として(5.8)式及び(5.11)式よりそれぞれ算出。

5.6. ピット先端電界強度の算定

ピット電極における逆方向 $I-V-T$ 特性の解析に先立ち、ピット先端における電界強度 E を算定する。本研究では、有限要素法によるシミュレーション計算、そして、実測 $I-V-T$ 特性の解析、という二つのアプローチにより E を算定する。

5.6.1. シミュレーションによる電界強度の計算

図 5-15(a)は逆六角錐形状エッチピットの模式図である。エッチピットの SEM 観察より、ピットサイズに応じてピット先端の開き角度が異なることが明らかとなった。 m 軸方向ピット先端開き角度(α)のピットサイズ依存性を図 5-15(b)に示す。サイズに応じて明確な違いが見られ、S、M、L ピットの開き角度の平均は、それぞれ 105° 、 96° 、 91° であった。従って、ピットサイズ毎にシミュレーションを行う必要がある。また、ピット先端近傍の TEM 像より、先端部には曲率が存在することが分かった。図 5-16 に示す通り、ピットによってやや違いは見られたが、曲率半径(R_c)は概ね $40\sim 70\text{ nm}$ であった。これを踏まえ、シミュレーションでは曲率の有無及び曲率半径による違いを評価した。

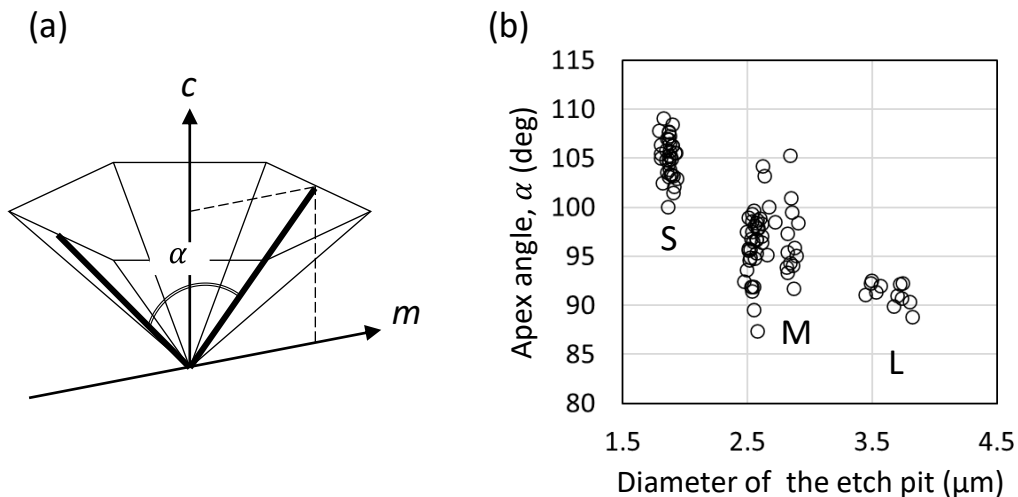


図 5-15 (a) エッチピットの模式図、及び(b) m 軸方向ピット先端開き角度のピットサイズ依存性。

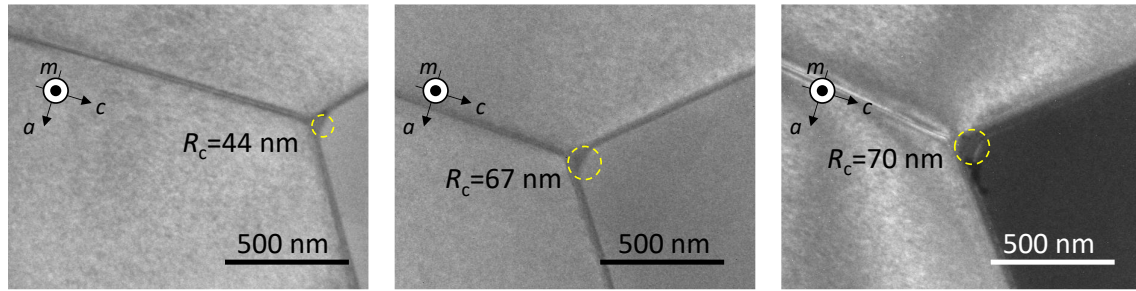


図 5-16 三つの異なるピット先端近傍の TEM 像。破線丸囲みが曲率を表す。

図 5-17(a)はシミュレーション計算のために構築したピット電極における Pt/GaN ショットキー接触モデルである。本モデルでは、先端開き角 α を持つ逆六角錐エッチピット形状を、 $\alpha/2$ 角及びピット半径 r の辺を有する直角三角形を $4 \times 2 \mu\text{m}^2$ の四辺形から取り除いた 2 次元図形を、 y 軸(図中点線)中心に回転させることで再現した。故に、図 5-17(b)の結果例が示す通り、厳密な六角錐ではなく円錐形状のピットモデルで計算を行った。ピットの開き角度 α 及びピット半径 r は、図 5-15(b)の結果より各ピットサイズ毎に算出した平均値を代表して用いた(表 5-3 にまとめている)。先端曲率は角度 $\alpha/2$ の直角三角形頂点に曲率半径 R_c のフィレット処理を施しモデル化した。図 5-17(c)と(d)に、無限大または有限の曲率を有するピット先端のジオメトリを示している。裏面側を理想的な Ohmic 接触とし、ショットキー接触面はピット側面と FIB の電子ビームアシスト蒸着時にピット周囲に拡散して円形に蒸着された領域とした(後者の Pt 拡散蒸着領域半径にピットサイズ依存性はほぼなく、C-AFM による電流像で計測した全ピット電極の平均値 $1.9 \mu\text{m}$ を用いた)(図 5-17(a))。電界は界面近傍の空乏層にかかり、空乏層以下の領域は界面の電界強度計算にほとんど影響を与えないので、GaN 結晶の膜厚は計算コスト削減のため $2.2 \mu\text{m}$ とした。計算に用いた各種物性値、その他のパラメータは表 5-4 にまとめている通りである。

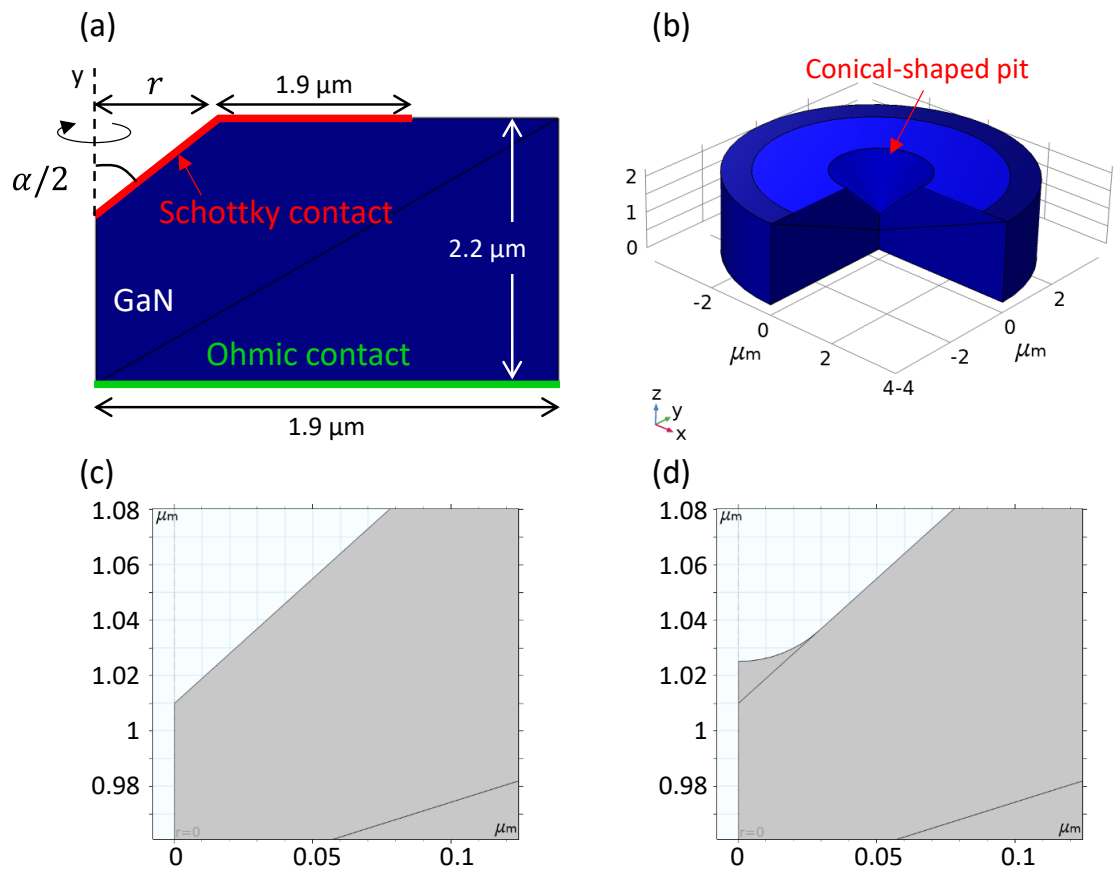


図 5-17 (a) ピット電極における Pt/GaN ショットキー接触のシミュレーションモデル、及び(b) 計算結果例。(c) 無限大の曲率及び(d) 有限の曲率を有するピット先端のジオメトリ。

表 5-3 計算に用いたエッチピットモデルの各種値。

	S	M	L
α (deg.)	105	96	91
r (μm)	0.94	1.32	1.82

表 5-4 計算に用いた物性値及びその他のパラメーター。

Work function of Pt	Electron affinity of GaN	Relative permittivity of GaN	Temperature	Donor concentration
5.65 eV	4.1 eV	9.5	293 K	$1.66 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (@293 K)
			153 K	$9.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (@153 K)

図 5-18(a)-(b)は無限大の曲率及び $R_c=44$ nm の曲率を有する M ピット電極における電圧無印加時の電界強度計算結果 ($N_D=1.66\times 10^{18}$ cm⁻³、293 K) である。図 5-18(a) 及び(b)の拡大図より、曲率によりピット先端における過度な電界集中が緩和され、最大電界強度も減少している。図 5-19(a)は無限大の曲率、及び幾つかの R_c を有する M ピット先端からの深さ方向への電界強度分布プロファイルである。曲率無限大の場合、先端部の最大電界強度は電圧無印加の時点で ~ 6.5 MV/cm である。Maeda らの報告³³に基づくと、293 K、 $N_D=1.66\times 10^{18}$ cm⁻³ における絶縁破壊電界強度は 5.39 MV/cm と推定され、シミュレーション値はこれを遥かに超えている。一方で、曲率を有する場合、ピット先端電界値は曲率半径 ($R_c=44$ 、60、100 nm) にあまり強く依存せずに同様の値となっており、その最大電界強度(電圧無印加時)は 1.2-1.4 MV/cm にまで緩和されている。図 5-19(b)には、293 K、 $N_D=1.66\times 10^{18}$ cm⁻³ 条件下での、 $R_c=44$ nm ピット先端における最大電界強度の電圧依存性を S、M、L ピット毎に示している(参考までに flat 界面の最大電界強度のデータも示す)。ピットサイズに依る差異は小さく、 I - V 測定時の最大電圧レンジ(約 3~5 V)におけるピット先端電界強度も 2.9~3.8 MV/cm と、推定絶縁破壊電界以下に緩和されていた。この結果は、室温下 I - V 測定時にアバランシェ機構による絶縁破壊が観測されなかった事実と整合する。#F07 において 153 K の FNT 解析より算出された $N_D=9.0\times 10^{17}$ cm⁻³ の値を用いた計算結果も図 5-19(b)に示している。153 K、 $N_D=9.0\times 10^{17}$ cm⁻³ における電界強度は、293 K、 $N_D=1.66\times 10^{18}$ cm⁻³ よりもさらに少し減少していた。

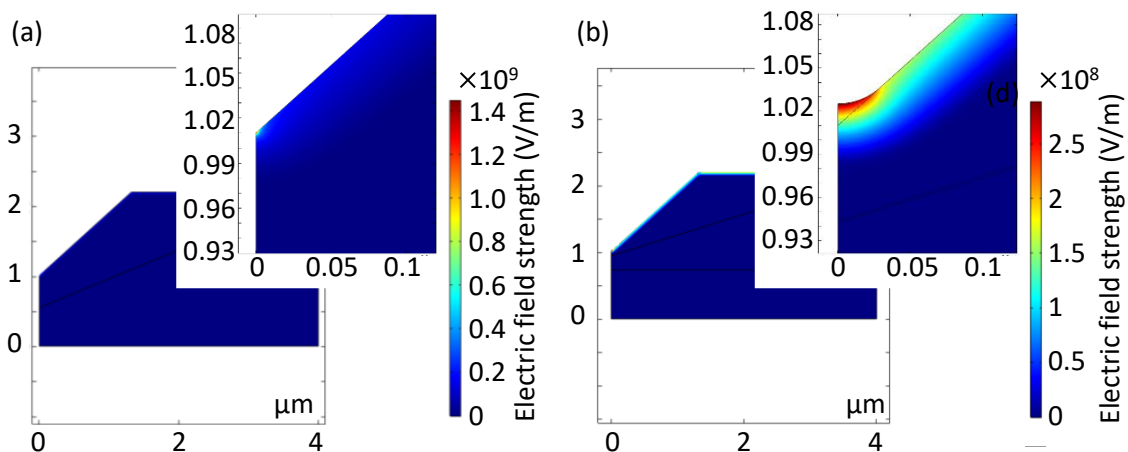


図 5-18 電圧無印可時の M ピット部ショットキー接触における電界強度分布。(a) 先端曲率無限大、及び(b) $R_c=44$ nm の先端曲率。挿入図はピット先端近傍拡大図。

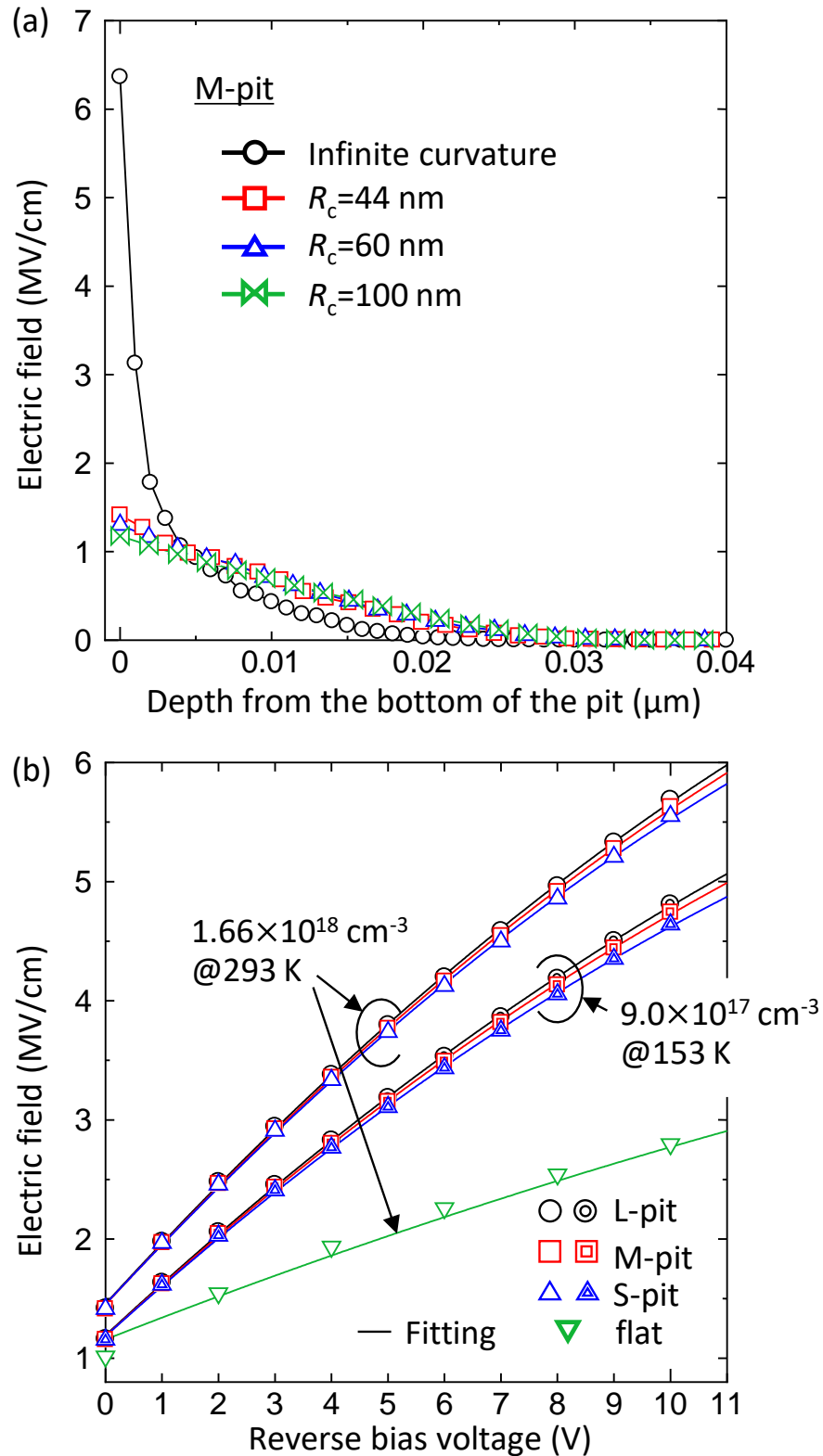


図 5-19 (a) 先端曲率毎の M ピット先端からの深さ方向への電界強度プロファイル。(b) S、M、L ピット電極先端及び flat 電極界面における電界強度の逆バイアス電圧依存性。

曲率無限大のピット先端最大電界強度と、曲率 $R_c=44$ nm のピット先端電界強度の比(すなわち曲率に依るピット先端電界強度緩和率) p_C を表 5-5 にまとめている。293 K、 $N_D=1.66\times 10^{18}$ cm⁻³の下では、0~5 V 印加領域において S、M、L それぞれの p_C が 0.297~0.328、0.197~0.222、0.175~0.199 となった。153 K、 $N_D=9.0\times 10^{17}$ cm⁻³ の下での p_C はさらに小さく、S、M、L それぞれ 0.247~0.268、0.165~0.182、0.147~0.163 となった。

表 5-5 ピットサイズ毎の p_C 及び p_F まとめ。

	p_C obtained by curvature correction in COMSOL simulation ($R_c=44$ nm, 0-5 V)		p_F obtained by FNT correction
	$N_D=1.66\times 10^{18}$ cm ⁻³ @293 K	$N_D=9\times 10^{17}$ cm ⁻³ @153 K	153 K
SEP	0.297~0.328	0.247~0.268	0.21 (#S55) 0.23 (#S82)
MEP	0.197~0.222	0.165~0.182	0.13 (#M54) 0.17 (#M66)
LEP	0.175~0.199	0.147~0.163	0.15 (#L73)

5.6.2. 逆方向 I - V - T 特性解析によるピット先端電界強度の算定

図 5-10 より、ピット電極においても低温 (153~173 K) 高電圧 (高電界) 領域 (A) の温度依存性は、#F07 と同様で、極めて弱い。#F07 における (A) 領域の電気伝導機構が FNT 機構であったことから、更に高い電界がかかっていることが予想されるピット電極でも、FNT 機構が支配的となっている可能性が高い。図 5-20(a)にはピット電極を代表して #L73 における I - V - T 特性の $\ln(I/E^2)$ vs $1/E$ プロットを示している。ここでの電界強度 E には、シミュレーションによって求めた曲率無限大ピット先端における電界値 (E_{inf} と定義する) を用いている。領域 (A) に対応した低温・高電圧 (高電界) 領域における線形性が高いことから、やはり FNT 機構であることが強く示唆される。しかしながら、フィッティングより算出された ϕ_b は 3.47 eV と、順方向特性から求めた $\bar{\phi}_{b0}=0.96$ eV に比べてかなり乖離していた (他のピット電極 #S55、#S82、#M54、#M66 でも同様であることを確認している)。これは無限大のピット先端曲率モデルで計算された電界 E_{inf} が過度に高いことに起因する。そこで、この領域 (A) の電気伝導機構が FNT になっている可能性が高いことに基づいて、 E_{inf} を補正する。図 5-20(b)中の破線は $\phi_b=\bar{\phi}_{b0}=0.96$ eV を用いて、(5.10)式に従い算出した FNT の理論曲線である。 E_{inf} を用いたプロットが、FNT 理論曲線にフィットするような電界補正係数 p_F を算出した。図 5-20(b)には、 E_{inf} による #L73 のプロット (153 K) の高電圧 (高電界) 領域が、電界補正係数 p_F によって FNT の理論曲線にフィットされている様子が示されている。他のピット電極 (#S55、#S82、#M54、#M66) でも同様の操作を行い (Appendix の A.3 に記載)、算出された電界補正係数 p_F を表 5-5 にまとめている。表 5-5 より、いずれのピットサイズについても、FNT 機構をベースとした電界補正 (FNT correction) 係数 p_F が、153 K、 $N_D=9.0\times 10^{17}$ cm⁻³ の下で計算された $R_c=44$ nm の曲率による電界強度緩和率 p_C と良く合致していることが分かる。すなわち、 E_{inf} を用いた際に見られた、 I - V - T 特性の FNT 理論からの乖離 (算出 $\phi_b \gg \bar{\phi}_{b0}=0.96$ eV) は、ピット先端曲率による電界集中緩和と低温によるドナー濃度の減少が主原因であったと結論付けられる。以降、 E_{inf} に p_F を乗算した、補正電界 $p_F E_{inf}$ をピット先端にかかる真の電界強度 E_{cor} として解析に用いる。

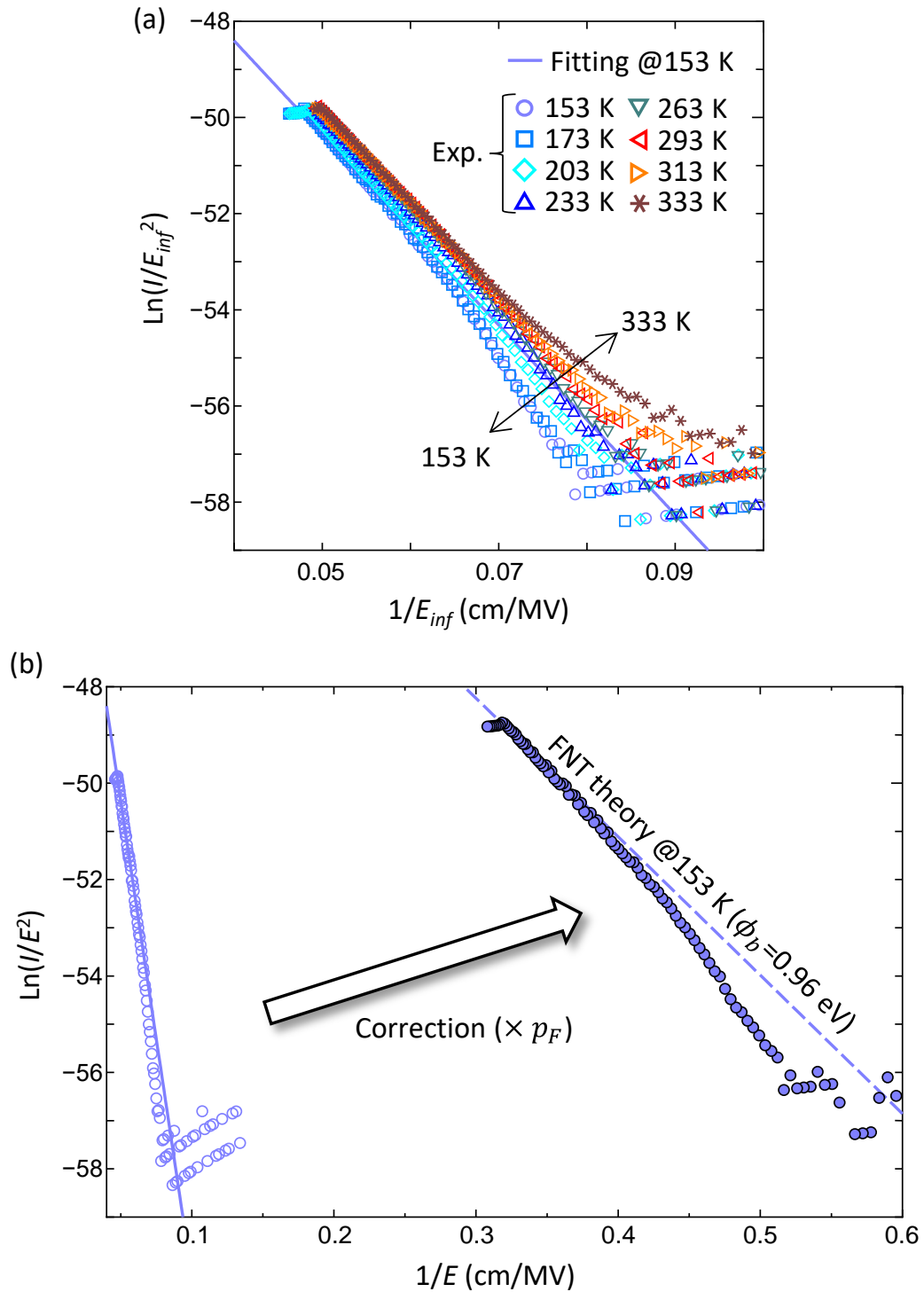


図 5-20 #L73 における I - V - T 特性の(a) E_{inf} を用いた $\ln(I/E_{inf}^2)$ vs $1/E_{inf}$ プロット、及び(b) p_F を用いた電界補正操作。(a)及び(b)中の実線はフィッティング直線。(b)中の白丸及び塗りつぶし丸プロットは、それぞれ(a)中 153 K のプロット、及びその電界補正後のプロットに対応し、破線は $\phi_b = \bar{\phi}_{b0} = 0.96$ eV の理論 FNT 曲線を表す。

5.7. ピット電極における逆方向 I - V - T 特性の解析

5.7.1. 低温領域(A)

まず、5.6.2 節にて FNT 機構である可能性が高いと考えた、極めて弱い温度依存性を示した領域(A) (図 5-10)の電気伝導機構について、改めて考察する。図 5-14 に各ピット電極先端部における E_{cor} を示している。ピット電極の I - V - T 特性の領域(A)に対応する電圧域(約 3-5V)では、S、M、L ピットの E_{cor} は約 2.1~3.3 MV/cm であった。これは、flat 電極#F07 における FNT 伝導機構の電圧域(約 8~13.5 V)の電界値 E_m (約 1.8~2.3 MV/cm) よりも高く、ピット部先端ではより高電界がかかっていることが分かる。さらに、同図には、ピット先端の最大電界値 E_{cor} から算出した空乏層幅を示している。(平行平板型ショットキー界面と仮定し、(5.11)式中の T と E_m にそれぞれ 153 K と $p_F E_{inf} = E_{cor}$ を代入して計算)。ここでの p_F にはピットサイズ毎に算出された値の平均値 (S ピット:0.22、M ピット:0.15、L ピット:0.15)を用いている。S、M、L ピット電極における領域(A)の電圧域(約 3-5V)では W_D は約 37~47 nm であったのに対し、flat 電極#F07 における FNT 伝導機構の電圧域(約 8~13.5 V)では 105~132 nm であった。平行平板ショットキー接触を想定した概算ではあるものの、この結果より、ピット電極における空乏層は flat 電極のそれよりも薄いことが示唆される。故に、改めて、全てのピット電極で領域(A)を支配する電気伝導機構が FNT 機構であると結論付けられる。表 5-6 には、flat 電極#F07 を含む I - V - T 測定を行った全ての電極について、FNT 機構が支配的な温度領域と電界領域をまとめている。

表 5-6 FNT 機構が支配的となる温度領域と電界領域一覧。

	#F07	#S55	#S82	#M54	#M66	#L73
Temperature (K)	153-173					
Electric field strength (MV/cm)	1.8~2.4	2.0~2.6	2.3~3.1	2.0~2.6	1.8~2.1	2.5~3.3

5.7.2. 高温領域(B)

5.5節における#F07の結果を踏まえると、ピット電極#S55、#S82、#M54、#M66、#L73の高温側でもPF機構が支配的になっている可能性が高い。各ピットの高温領域(B)における I vs $1/kT$ プロットの線形フィッティング(フィッティングの温度領域は表5-7に示している)により算出された $\phi_{t,PF} - \sqrt{qE_{cor}/\epsilon_r\epsilon_0}$ を用いて、 $\phi_{t,PF} - \sqrt{qE_{cor}/\epsilon_r\epsilon_0}$ vs E_{cor} プロットを行った結果を図5-21に示す。ここでは図5-12に示した#F07のプロット結果も示している。いずれのピット電極においても、約1.5~2.4 MV/cmの電界領域の中で高い線形性が見られた。各ピット電極のプロットにおいて、高い線形性が見られた電界領域(図5-10中の領域(B)に対応)と、その線形フィッティングにより抽出されたトラップ準位深さ $\phi_{t,PF}$ 及びGaNの比誘電率 ϵ_r を表5-7にまとめている(#F07も表記)。全ピット部で ϵ_r が3.78~4.55と概ね同じ値となっており、これらの値が、GaN-SBDを用いてPF解析を行う先行研究の報告値^{2,4-7}や理論値(9.5)²⁸と概ね合致していることから、PF機構がリーク電流の支配的な電気伝導機構になっていると結論付けられる。一方、各電極のより高電界側では徐々にプロットがフィッティング直線から逸脱している。図5-10の領域(B)より高電圧(高電界)側では、電圧増加に伴いリーク電流の温度依存性が徐々に弱くなっている。従って、このプロットの逸脱は、電界増加に伴い、電気伝導が徐々にPF機構からFNT機構にシフトしているためと考えられる。

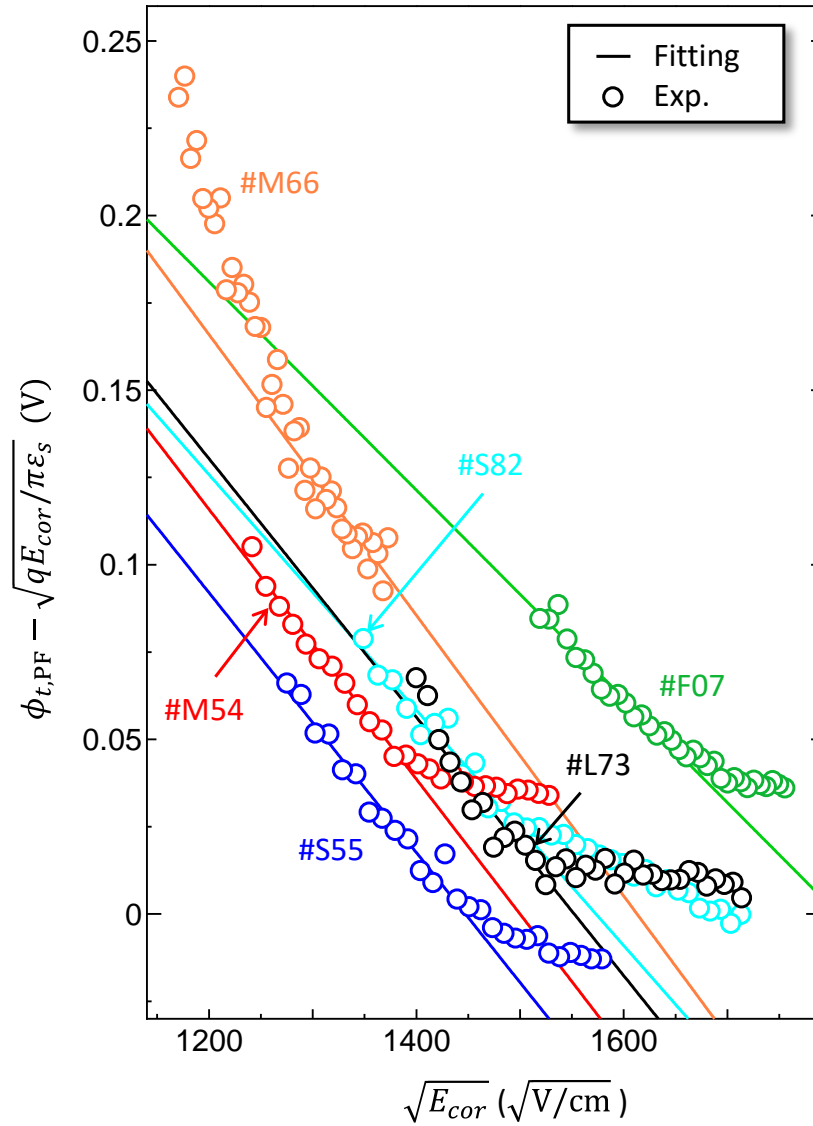


図 5-21 #S55、#S82、#M54、#M66、#L73 における $\phi_{t,PF} - \sqrt{qE_{cor}/\epsilon_r\epsilon_0}$ vs $\sqrt{E_{cor}}$ プロット。比較のため、図 5-12 に示した#F07 の $\phi_{t,PF} - \sqrt{qE/\epsilon_r\epsilon_0}$ vs \sqrt{E} プロットも示している。実線はフィッティング直線を示す。

表 5-7 PF 及び TAT 解析(#M66 のみ)によって算出された物性値と、各電気伝導機構が支配的となる温度領域と電界領域の一覧。

	#F07	#S55	#S82	#M54	#M66	#L73
ε_r	6.47	4.16	4.55	3.86	3.78	4.21
$\phi_{t,PF}$ (eV)	0.54	0.54	0.56	0.58	0.65	0.57
$\phi_{t,TAT}$ (eV)	-	-	-	-	0.64-0.68	-
Temperature (K)	263~313	233~333	233~333	233~313	293~353	263~333
Electric field strength (MV/cm)	2.3~2.8	1.6~2.0	1.8~2.2	1.5~1.9	1.6~1.9 (PF) 1.2~1.3 (TAT)	2.0~2.4

5.7.3. #M66 における高温領域(C)

図 5-21 において、#M66 では、PF 機構が支配的となる電界領域よりもさらに低電界側で、プロットがフィッティング曲線から逸脱している。この逸脱領域の線形フィッティングより算出される ϵ_r は 0.74 となり、理論値(9.5)よりも 1 桁小さい。図 5-10 からわかる通り、#M66 は他のピット電極及び#F07 に比べて、PF 機構が支配的となる電界領域以下の高温領域で過剰なリーク電流が検出されており、特に図中(C)領域の温度依存性は一層強いことがわかる。従って、#M66 の特に領域(C)においては PF 機構以外の電気伝導機構が支配的となっていると考えられる。考え得る電気伝導機構の候補として、TAT 機構が挙げられる。TAT 機構は、熱励起された金属側の電子が界面準位や半導体由来の欠陥準位にトラップされた後に、ショットキー障壁をトンネルすることによって電気伝導に寄与するモデルであり、GaN-SBD のリーク電流に寄与することがしばしば報告されている^{7,34}。TAT 機構による電流は次のように表される⁷。

$$I \propto \exp\left(-\frac{4\sqrt{qm^*}\phi_{t,TAT}^{3/2}}{3\hbar E}\right), \quad (5.12)$$

$\phi_{t,TAT}$ は伝導帯端からのトラップ準位の深さである。図 5-22 は #M66 の $\ln(I)$ vs $1/E_{cor}$ プロットである。領域(C)に対応する 293~353 K の低電界領域で、顕著な線形領域が見られることから、この領域では TAT 機構が支配的なリーク電流機構となっていると言える。温度毎に線形フィッティングして算出された $\phi_{t,TAT}$ は 0.64~0.68 eV の値となった。表 5-7 には、これらの値とともに #M66 の中で TAT 機構が支配的となる温度領域及び電界領域をまとめている。

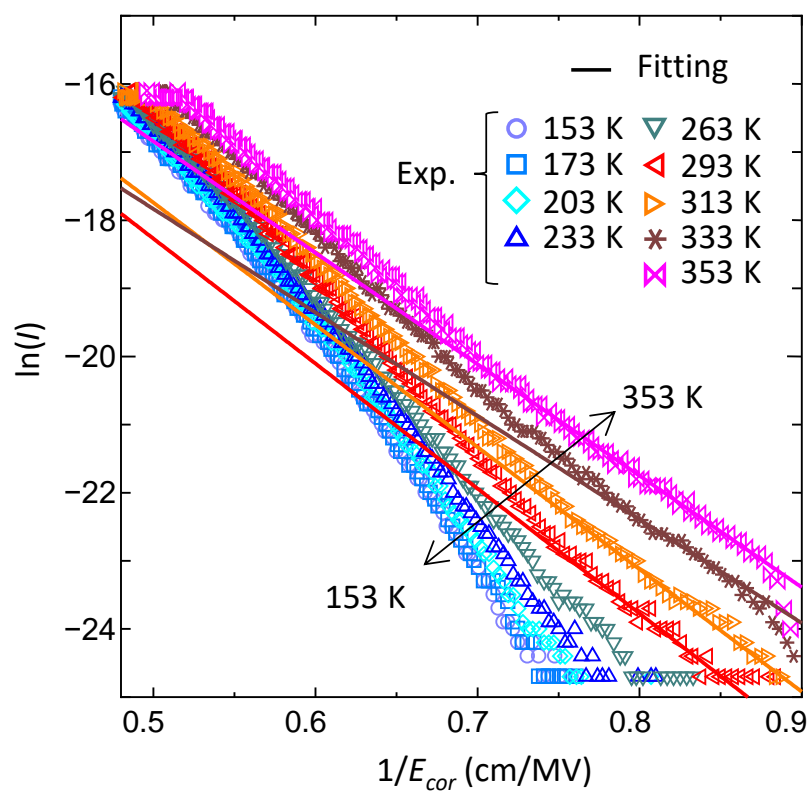


図 5-22 #M66 の $\ln(I)$ vs $1/E_{cor}$ プロット。実線はフィッティング直線。

5.8. トラップ準位の起源

表 5-7 より、#M66 を除くピット電極(#S55、#S82、#M54、#L73)では、ピットサイズに依らず PF 機構の起源となるトラップ準位 $\phi_{t,PF}$ が 0.54~0.58 eV と概ね同じ値で、#F07 におけるトラップ準位 0.54 eV と非常に近い値となっている。従って、これらピット電極と #F07 のトラップ準位の起源が同じである可能性が高い。特に、#F07 はショットキー界面に貫通転位を含まないことを踏まえると、このトラップ準位は貫通転位よりもむしろ点欠陥由来であることが示唆される。一方#M66 のトラップ準位は、これらの値に比べてやや深くなっており、興味深いことに、 $\phi_{t,PF}$ (0.65 eV)と $\phi_{t,TAT}$ (0.64-0.68 eV)が概ね合致した。大多数の M ピットに比べ、#M66 は異常にリーク電流が大きく(図 5-3(b))、低電界側で TAT が電気伝導に寄与していたことも踏まえると、このトラップ準位の起源は他のピット電極及び#F07 とは異なる可能性が高く、この特異な準位が PF 及び TAT の両方の電気伝導に寄与したと考えられる。さらに、このトラップ準位は、順方向特性において#M66 だけが Double gaussian 分布の障壁高さ分布を有していたことにも関与している可能性がある。

GaN 結晶中の深い準位については、DLTS (Deep level transient spectroscopy) による調査結果が数多く報告されている。Narita らは参考文献[35]にて、DLTS 測定によって同定された GaN エピ結晶内の主要な電子トラップ準位をまとめている。これを一部改変したものを表 5-8 に示す。これによると、#F07、#S55、#S82、#M54、#L73 の $\phi_{t,PF}$ は E3 トラップと概ね合致している。E3 トラップは、Si や SiC、サファイヤ、GaN 基板上の GaN エピ層や、HVPE 基板でも観測されており、GaN 結晶では一般的な準位と認識されている³⁵⁻⁴¹。この起源については長年調査されており、点欠陥由来である可能性が高いことが指摘されていた^{36,39,40}。近年、MOVPE による GaN エピ層内の鉄(Fe: iron)ドーパ濃度と DLTS により算定された E3 トラップ濃度の間に明確な正相関が見出され、Fe 不純物が E3 トラップの起源であることが示された⁴²。Fe 不純物は、結晶成長装置リアクター内のグラファイト製部品を発生源とすることが報告されている⁴³⁻⁴⁶。

E3 トラップが点欠陥由来であるという点は、#F07 の界面には貫通転位が含まれていないことと整合する。また、高品質な HVPE バルク基板においても同様な E3 トラップが観測されていることから⁴¹、#F07 の $\phi_{t,PF}$ 起源は E3 トラップ起源と同じ点欠陥である可能性が高いと言える。ただし、本 HVPE-GaN においても残留 Fe 不純物がその起源となっているのかという点については、別途調査を要する。また、同様の $\phi_{t,PF}$ を示した、#M66 を除くピット電極(#S55、#S82、#M54、#L73)についても、#F07 とほぼ同じ逆方

向リークメカニズム(PF 及び FNT 機構)であったこと、順方向特性も同様な障壁高さ不均一モデルで説明されたことを踏まえると、 $\phi_{t,PF}$ の起源は E3 トラップの起源と同じ点欠陥であると考えられる。すなわち、これらのピットにおける貫通転位は、もはや逆方向リーク電流の電気伝導にほとんど寄与しないと結論付けられる。一方、PF 機構のみならず TAT 機構にも寄与していた#M66 のやや深いトラップ準位は、値こそ E3 トラップに近いものの、このような単純な点欠陥に起因した準位とは考えにくい。表 5-8 に示す報告値の中では、E7 トラップが#M66 のトラップ準位(0.64~0.68 eV)に近い。E7 トラップは、GaN on SiC や GaN on Si の高貫通転位密度エピ層で検出され、低転位密度 GaN on GaN では検出されなかった上に、DLTS ピーク解析結果が貫通転位起因の際に現れる特徴を示したことから、貫通転位に由来するトラップであると指摘されている³⁶。従って、#M66 の電気伝導に寄与するトラップ準位は貫通転位に起因する可能性が高く、これが異常に大きなリーク電流に寄与したと推察される。

表 5-8 種々の種基板上に MOVPE 法でエピ成長させた n-GaN 結晶において、DLTS 測定によって同定された電子トラップ準位。最右欄の”Common”は種基板に依らず観測されたトラップ準位を意味する。参考文献[35]を一部改変して掲載。 E_c は伝導帯端のエネルギーを表す。

Label	Level (eV)	Remarks
E1	$E_c - (0.24-0.26)$	Common
E2	$E_c - (0.31-0.32)$	n-GaN on sapphire
E3	$E_c - (0.57-0.61)$	Common
E4	$E_c - \sim 1$	n-GaN on sapphire
E5	$E_c - \sim 1.3$	n-GaN on sapphire
E6	$E_c - (0.44-0.46)$	n-GaN on SiC and Si
E7	$E_c - (0.78-0.81)$	n-GaN on SiC and Si
E8	$E_c - (0.89-0.90)$	n-GaN on SiC
E9	$E_c - 1.22$	n-GaN on GaN

5.9. 貫通転位における順及び逆方向電気伝導メカニズムの統一的議論

ここまでの結果を踏まえ、最後に、順方向及び逆方向特性の両方を包括した、flat 電極(#F07)並びにピット電極(#S55、#S82、#M54、#M66、#L73)における電気伝導メカニズムについて考える。図 5-23(a)は逆方向リーク電流の電気伝導機構を示す模式図である。電気伝導機構は異常に大きなリーク電流を示した#M66 と、それ以外の大多数の電極と同等リーク電流量を示した電極(#F07、#S55、#S82、#M54、#L73)で分けられる。#F07、#S55、#S82、#M54、#L73 については、低電界領域ではリーク電流が検出限界以下に抑制されており、高温・中～高電界領域(図 5-10 の(B)領域)でリークが検出され始める。この領域は E3 トラップと同じ起源と予想される点欠陥起因のトラップ準位(0.54~0.58 eV)を介した PF 機構による電気伝導が支配的となる。低温・中～高電界領域(図 5-10 の(A)領域)では FNT 機構により障壁を直接トンネルする電子による電気伝導がリーク電流を支配する。一方、#M66 においては、高温下の低電界領域(図 5-10 の(C)領域)で過剰なリーク電流が生じる。これは#M66 直下の貫通転位に起因すると予想されるトラップ準位(0.64-0.68 eV)を介した TAT 機構で生じている。高温・中～高電界領域(図 5-10 の(B)領域)では同様のトラップ準位を介した PF 機構が支配的となる。そして、低温・中～高電界領域(図 5-10 の(A)領域)では、FNT 機構がリーク電流の支配的な電気伝導機構となる。

図 5-23(b)は順方向バイアス電圧印可時における電気伝導機構を示す模式図である。順方向についても、#M66 とそれ以外の電極で、異なる電気伝導機構となる。#F07、#S55、#S82、#M54、#L73 におけるショットキー界面の障壁高さは、平均 $\bar{\phi}_{b0}$ 、標準偏差 σ_s から成る単一のガウス分布で分布し、障壁高さの温度依存性は、この障壁高さの不均一性に起因する。低温下では、低障壁領域を流れる電子が電気伝導を支配するため ϕ_{ap} が減少し、高温下では、熱励起により高い障壁を超える電子が電気伝導を支配するので ϕ_{ap} が増大する。一方で、#M66 の障壁高さ分布は Double gaussian 分布となっており、温度領域によって異なる電気伝導機構となっていることが示唆された。高温下の $\bar{\phi}_{b0}$ は#F07、#S55、#S82、#M54、#L73と同様であったことから、高温下では TE 機構で障壁を乗り越える電気伝導が支配的であると考えられる。しかしながら、高温下での値に比べて $\bar{\phi}_{b0}$ が ~ 0.18 eVも減少する低温下では、障壁を乗り越える電子よりも、トラップ準位を介した TAT 機構の様なトンネル電流が生じていると推察される。逆方向において特異的な TAT 機構を誘発した、貫通転位起因の欠陥準位が、順方向の低温下でも TAT 機構的にトンネル電流を促進させた可能性が高いと推察される。

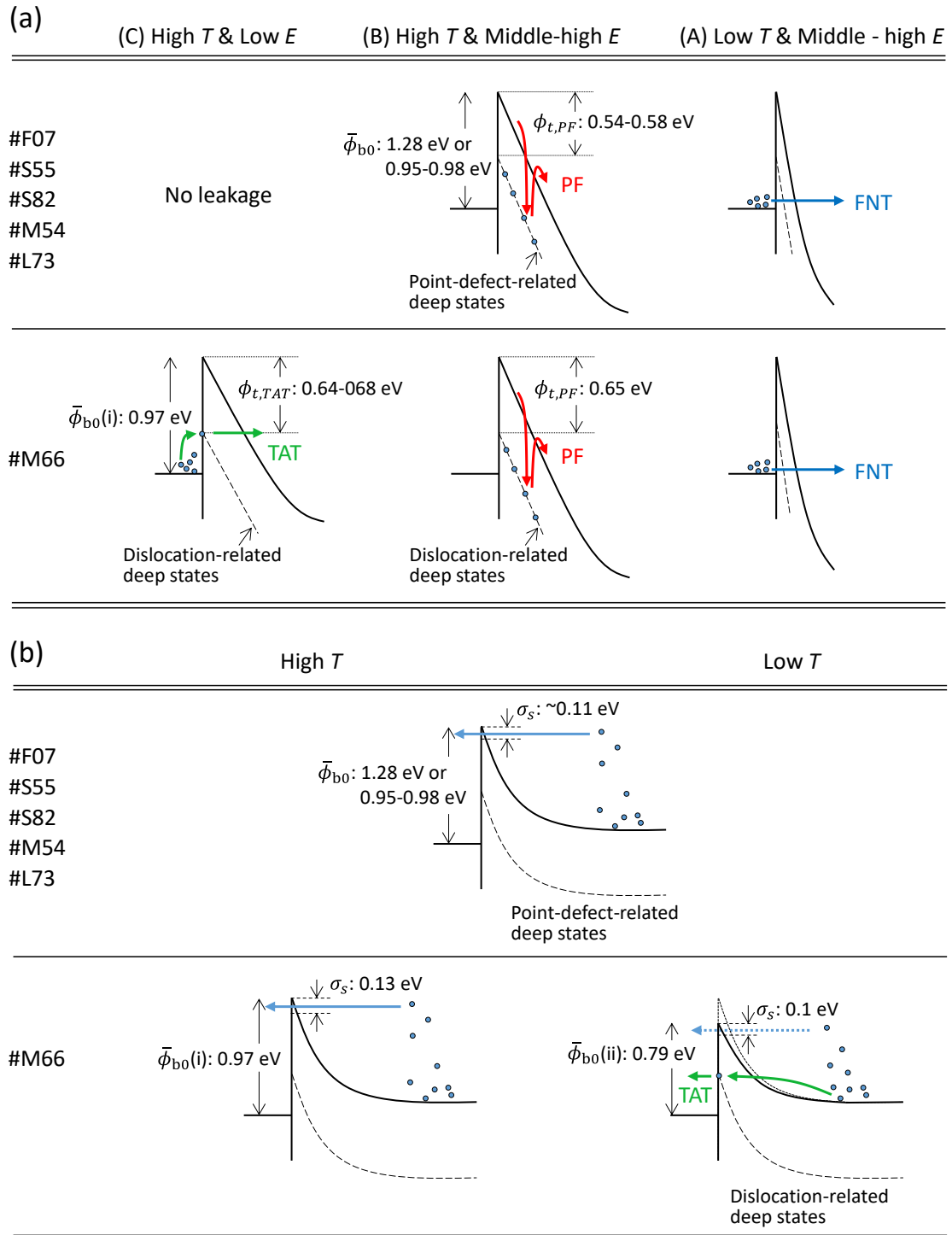


図 5-23 flat 電極(#F07)並びにピット電極(#S55、#S82、#M54、#M66、#L73)における(a) 逆方向及び(b) 順方向バイアス印可時の電気伝導機構を表す模式図。

5.10. 異なるサイズを有するピット電極間のリーク電流度合いの比較

ここで、異なるサイズのピット間でのリーク電流度合いをフェアに比較し、バーガースベクトルに依るリーク特性の違いの有無について解析する。図 5-3 の室温 J - V 特性における電圧 V を、電界 E_m (flat 電極) または補正電界 E_{cor} (ピット電極) に変換することで、異なるサイズのピット電極間、及びピット電極と flat 電極間の電気特性をフェアに比較できる。図 5-24 (a)-(c) は S、M、L ピットにおける逆方向 I vs E_{cor} 特性、及び (d) は flat 電極における逆方向 I vs E_m 特性である。flat 電極における E_m は (5.8) 式に基づく値、ピット電極の E_{cor} はサイズ毎の補正係数 p_F の平均値 (S:0.22、M:0.15、L:0.15) によって補正された値である。図 5-24 (e) では、 $I_R=10^{-8}$ A となる電界強度値を、電極の種類毎にボックスプロットで表している。異なるピットサイズ間で比較すると、大多数の転位は、ピットサイズに依らずほぼ同じ度合いの電界値を示すことが分かる。さらに、M ピットにのみ、全ピット電極の中で明らかに小さな電界値で過剰なリーク電流が生じているものが、45 の内 2 つ存在していた (図 5-24 (b) 及び (e) にて破線囲みで示している)。これらの結果と第 4 章の結果を踏まえると、バーガースベクトルに c 成分を含む大多数の転位 ($\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$, $1\mathbf{c}$, $1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$) はそのバーガースベクトルの違いに依らず、同様のリーク特性を示すこと、そして、異常なリーク特性を示す転位は M ピットを形成する転位の中でしか発現しないことが明らかとなった。第 4 章を踏まえると、M ピットは $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ 転位上に形成されていたことから、貫通転位の中で、 $\mathbf{b}=1\mathbf{c}$ を持つ転位がキラ欠陥となりやすいことが示唆される。本章にて異常に大きなリーク電流を示すことが明らかになった M ピット直下の貫通転位のバーガースベクトルや形態については、第 6 章にて TEM 解析を行い同定する。

一方で、異質的に大きなバーガースベクトル $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ 転位が起源となっていると考えられる L ピット電極のリーク度合いが、ピットサイズを跨いで他の大多数の転位とほぼ同様となっていることにも注目したい。第 4 章でも述べたように、SiC-IGBT や SiC-MOSFET では同様の \mathbf{b} を持つ貫通転位 TMD がその大きな歪に起因してリークパスとなることが指摘されている^{47,48}。本研究の GaN 結晶で見出された $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ 転位においても、過剰なリーク電流が生じると予想されたが、結果はこの予想と反していた。本 HVPE-GaN 結晶において標準的なリーク特性となったのは、結晶中のドーピング濃度が参考文献[47]ほど高くないことが一因だと考えられる。参考文献[47]では SiC-MOSFET 作製過程で Al 原子を 10^{21} cm^{-3} という高濃度でドーブしており、これが TMD の歪に誘引され、転位芯に集積したことがリークの起源となったと推察している。本

HVPE-GaN の Si ドーピング濃度は高々 10^{18} cm^{-3} とこれに比べるとかなり低い。エッチピットの大きさから他の **b** を持つ転位よりも歪が大きいと推察されるため、多少の不純物集積が生じている可能性はあるものの、ドナー濃度が比較的小さいために、致命的な変化が起こるほどの度合いで集積が起こらず、結果的に、他のピット電極と同様のリーク特性となったと考えられる。

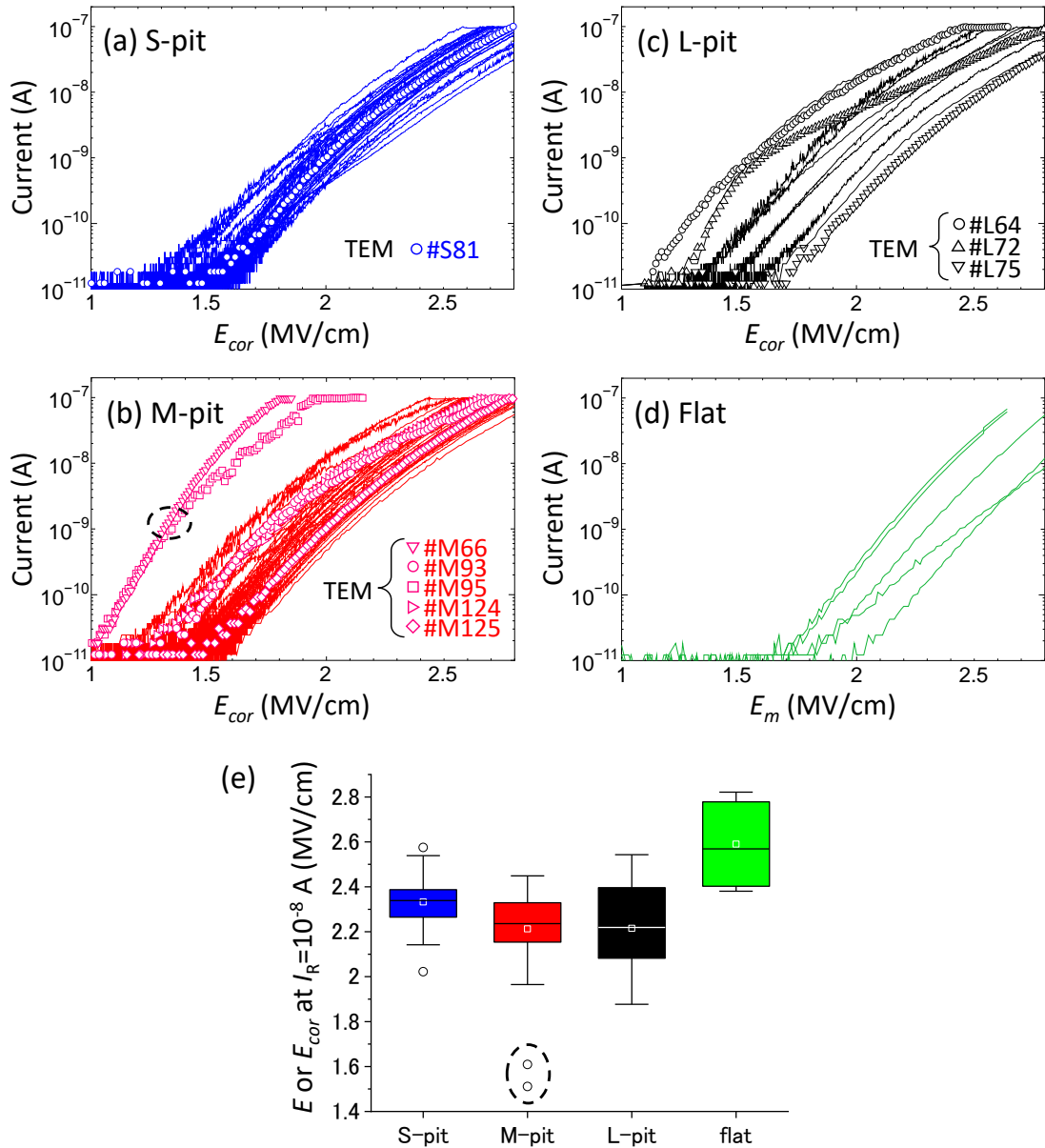


図 5-24 室温における(a) Sピット、(b) Mピット、(c) Lピット電極の逆バイアス I vs E_{cor} 特性、及び(d) flat 電極の逆バイアス I vs E 特性。これらのデータは図 5-3 の I - V 特性を基にしている。(e) 各電極部において $I_R=10^{-8} \text{ A}$ となる電界強度のボックスプロット。

5.11. ピット電極と flat 電極間のリーク電流の差異

一方、図 5-24(e)によると、ピット電極と flat 電極間では、flat 電極の方で明らかにリーク電流度合いが小さい。この違いは、ピット電極と flat 電極間の障壁高さの違いに由来する可能性が高い。ここで、この flat 電極とピット電極間の障壁高さをフェアに比較するために、ピット先端での電界集中起因の鏡像効果を考慮した障壁高さを改めて算出した。図 5-25 は、図 5-4 に示した $\phi_{b,TE}$ に、鏡像効果による障壁高さの減少分 ($\Delta\phi_{BL}$) を加えた、ピット電極及び flat 電極におけるショットキー障壁高さ ($\phi_{b,TE} + \Delta\phi_{BL}$) のボックスプロットである。鏡像効果による障壁高さの減少分は

$$\Delta\phi_{BL} = \sqrt{\frac{qE}{4\pi\epsilon_s}}, \quad (5.13)$$

で算出した¹⁹⁾。flat 電極及びピット電極の電界には、それぞれ図 5-24 と同じ値を用いている。さらに、図 5-26 には、各電極における $\phi_{b,TE} + \Delta\phi_{BL}$ と $I_R = 10^{-8}$ A 時の電界強度の関係を示している。この図をもって、全てのピット電極と flat 電極におけるリーク電流度合い及び障壁高さをフェアに比較できる。改めて、鏡像効果を考慮してもなお、flat 電極の方がピット電極よりも全体的に高い障壁高さを有し、 $I_R = 10^{-8}$ A 時の電界値も高い(リーク電流量が小さい)傾向にあることが分かる。

ここで、ピット電極と flat 電極間のリーク電流の差異が、双方のショットキー障壁高さに起因するののかについて、FNT 機構を基にして考察したい。(5.10)式に基づくと、特定のリーク電流値における電界値 E は、障壁高さ ϕ_b に依存する。もし、ピット電極及び flat 電極におけるリーク電流が FNT 機構で生じているならば、両電極におけるリーク電界値 E vs $\phi_{b,TE} + \Delta\phi_{BL}$ プロットは、FNT の E vs ϕ_b 理論曲線に乗るはずである。室温 (293 K) 領域は、図 5-10 に示す領域 (B) よりも高電界側に相当し、(B) よりも温度依存性が弱い。#M66 を除いた電極においては、この電界領域では PF 機構から徐々に FNT 機構へシフトしている段階にあり、ある程度 FNT 機構がリーク電流の電気伝導に寄与していると考えられる。 $I_R = 10^{-8}$ A のリーク電流が流れる電圧領域は概ねこの領域に属するので、図 5-26 に示した $I_R = 10^{-8}$ A 時の電界強度 vs $\phi_{b,TE} + \Delta\phi_{BL}$ のプロットは少なからず FNT 機構による影響を反映していると考えられる。図 5-26 に FNT 機構の理論的な E vs ϕ_b 曲線を示しており、ピット電極及び flat 電極のプロットが概ねこの曲線上に乗っている。従って、図 5-24 で見られた flat 電極とピット電極間のリーク電流量の差異は、これらの電極間のショットキー障壁高さの違いに起因すると結論付けられる。

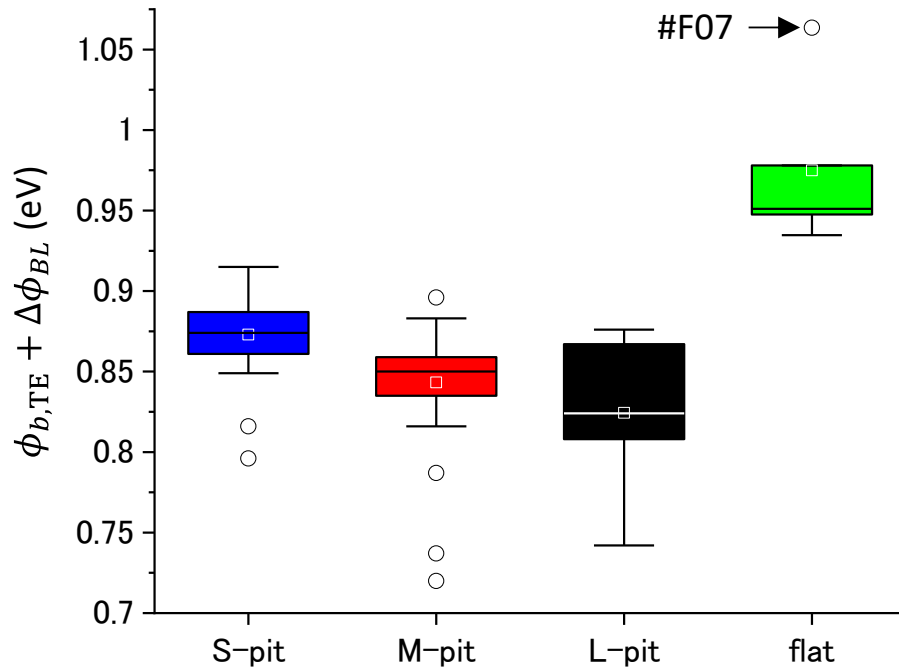


図 5-25 鏡像効果による減少分を考慮したピット電極及び flat 電極におけるショットキー障壁高さ($\phi_{b,TE} + \Delta\phi_{BL}$)。

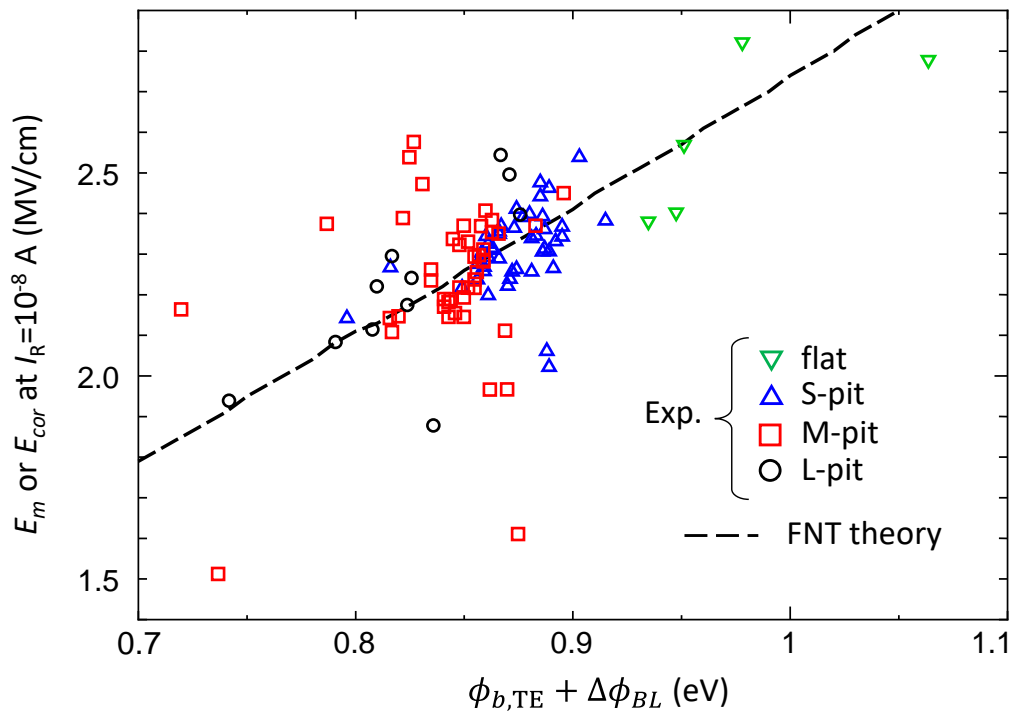


図 5-26 障壁高さ($\phi_{b,TE} + \Delta\phi_{BL}$)と $I_R=10^{-8}$ A 時の電界強度の関係性。破線は FNT 機構における E vs ϕ_b の理論曲線。

5.12. ピット電極と flat 電極間のショットキー障壁高さの違いの原因

flat 電極とピット電極間の障壁高さの違いが何に由来するのかを議論するべく、改めて図 5-25 に注目したい。図 5-25 より、S、M、L ピット電極それぞれの平均値の差異は高々 ~ 0.05 eV とかなり小さいことから、リーク電流の場合と同様、*c* 成分のバーガースベクトルを有する貫通転位においては、そのショットキー障壁高さにもバーガースベクトル依存性はほぼないと結論付けられる。対照的に、全ピット電極平均値と比べて flat 電極平均値は ~ 0.13 eV も大きくなっていた。順方向 *I-V-T* 特性から抽出された $\bar{\phi}_{b0}$ (表 5-1) においても、#F07 は他のピット電極 (#M66(ii)を除く) の平均値より ~ 0.27 eV も高かった。ただし、#F07 は flat 電極のなかでも特異的に大きな障壁高さを有していたため (図 5-25 中の矢印)、 ~ 0.27 eV という値はやや統計性に欠ける。室温下 *I-V* 特性の統計的データより得られた、 ~ 0.13 eV という値が、flat 電極とピット電極間の本質的な障壁高さの差異を示していると考えられる。

flat 電極 (#F07) とピット電極 (#S55、#S82、M54、#L73) の間に見られた、順方向及び逆方向 *I-V-T* 特性における電気伝導機構 (障壁高さ不均一分布、PF 及び FNT 機構、トラップ準位深さ等) の高い類似性を踏まえると、flat 電極とピット電極間における障壁高さの差異が貫通転位自体に起因するとは考えにくく、外在する別の因子が寄与している可能性が高い。考え得る原因として、ショットキー障壁高さの面方位依存性が挙げられる。図 5-27 は、*c* 面または *m* 面上に形成した Ni/GaN ショットキー接触における障壁高さと *n* の報告値である^{1,21,22,49}。図より明らかなように、*m* 面上ショットキー障壁高さは *c* 面上よりも低く、これらの報告を跨いで比較すると、その差は約 0.15 eV であった。単一 HVPE-GaN バルク基板の *c* 面研磨表面とへき開 *m* 面上の Ni/GaN ショットキー接触を比較している Naganawa らの調査²² では、障壁高さの差異は 0.11 eV と報告されている。同様に、HVPE-GaN 基板のスライスで準備した *c* 面及び *m* 面表面種基板上にほぼ同じドナー濃度を有するエピ GaN 層を成膜し、それらを用いた縦型 Ni/GaN-SBD の特性を比較している Yamada らの調査²¹ では、障壁高さの差異は 0.16 eV と報告されている。さらに Yamada らは、逆方向リーク電流度合いも *m* 面上 SBD の方が大きいことを明らかにし、*c* 面上及び *m* 面上 SBD 間のリーク電流度合いの差異が、障壁高さの差に起因すると結論づけている。単一 HVPE-GaN のスライス及び研磨によって作製された *a* 面並びに *m* 面の非極性面と、半極性 (10 $\bar{1}$ 1) 面のバルク結晶上 SBD の電気特性が比較されている Y. Ren らの報告⁵⁰ でも、半極性面上の SBD の方が非極性 *m* 面上の SBD よりも約 0.06 eV 高い障壁高さを有することが示されている。

障壁高さに面方位依存性が生じる根本的なメカニズムについては、GaN 結晶が有する c 軸方向の自発分極に由来するモデルが議論されているものの、未だに明確とはなっていない^{51,52}。

エッチピット側面の面方位は c 面と m 面の間の半極性面ではあるものの(図 5-15(a)を参照されたい)、本研究で抽出された flat 電極とピット電極間の障壁差 ~ 0.13 eV はこれらの報告値とかなり近いことから、この障壁高さの差異は、ショットキー接触面が flat 電極では c 面、ピット電極では半極性面と異なることが主原因である可能性が高いと言える。従って、バーガースベクトルに c 成分を含む大多数の貫通転位は、本質的に障壁高さの減少には起因せず、ショットキー界面の電気特性を劣化させる原因とはならないと結論付けられる。

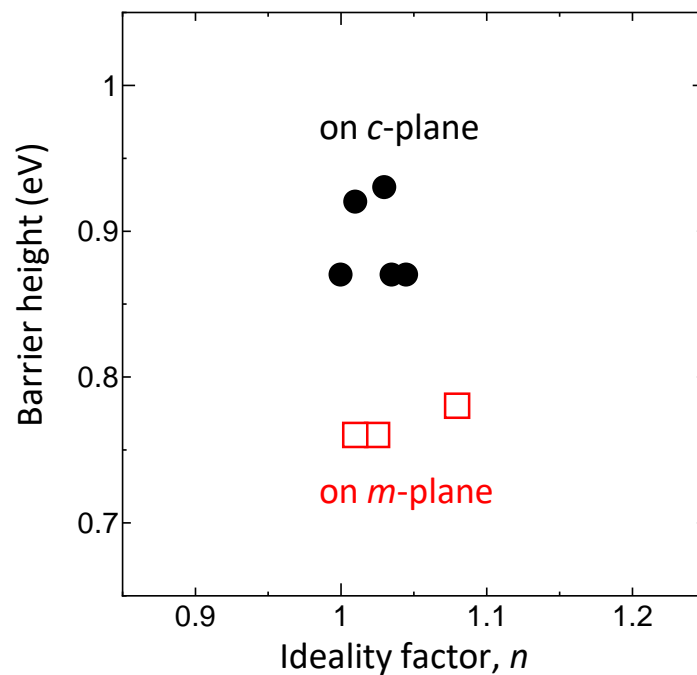


図 5-27 c 面または m 面上に形成した Ni/GaN ショットキー接触における障壁高さと n の報告値^{1,21,22,49}。

5.13. 小括

本章では、ピット電極と flat 電極において室温 I - V 特性及び I - V - T 特性を計測し、ピット形状に由来する電界集中等を考慮した精密な定量解析により、単一の貫通転位直上に形成したショットキー接触における詳細な電気伝導機構を解析した。また、サイズ毎に複数のピットで取得した電気測定データを基に、統計的解析を行うことにより、異常なリーク特性を示す転位を同定し、その転位部ショットキー界面でのみ発現する特有な電気伝導機構を探索した。本章で得られた知見を、以下に示す。

- バーガースベクトルに c 成分を有する大多数の貫通転位については、その直上に形成したショットキー接触の順方向及び逆方向電気特性がバーガースベクトルに依らずほぼ同じである。
- これら大多数の貫通転位は、本質的にショットキー障壁を低下させる要因とはならず、逆方向リーク電流特性にもほとんど影響しないと考えられる。
- 極少数の M ピットで異常に大きなリーク電流が発生し、その密度は $8.9 \times 10^2 \text{ cm}^{-2}$ と推定された。これは全 M ピットの 4.5%、全エッチピットの 0.14% に相当する。
- リーク電流の小さい、大多数の標準的ピット電極における順方向及び逆方向 I - V - T 特性は、それぞれ障壁高さの単一ガウシアン分布モデル、及び PF 機構と FNT 機構に起因したリーク電流メカニズムで説明され、flat 電極と非常に類似しているのみならず、ピットサイズ(すなわち転位のバーガースベクトル)にも依らない。
- PF 機構に寄与するトラップ準位は、これら標準的ピット電極と flat 電極間で同様の値 ($E_c - 0.54\text{-}0.58 \text{ eV}$) であることが明らかとなり、E3トラップの起源となる点欠陥由来であると考えられる。
- 異常な大リーク電流が生じた M ピットにおける順方向及び逆方向 I - V - T 特性は、それぞれ障壁高さの double gaussian 分布モデル、及び TAT 機構、PF 機構、FNT 機構に起因したリーク電流メカニズムで説明され、大多数の典型的ピット電極とは異なる電気伝導機構であった。順方向における Double gaussian 分布、及び逆方向での過剰なリーク電流が発現した原因は、それぞれ低温領域での TAT、低電界域での TAT 機構によるトンネル電流であると考えられる。
- 異常な大リークを生じた M ピットの PF 機構及び TAT 機構には同じトラップ準位 ($E_c - 0.64\text{-}0.68 \text{ eV}$) が寄与していることが明らかとなり、この準位は貫通転位に由来すると考えられる。

GaN-SBD の電気測定によりマクロなリークメカニズムを議論する従来の研究では、欠陥準位が関与した電気伝導でリーク電流が生じるモデルを提唱している^{2,3,5,6,53}。しかし、それが一部の異常な貫通転位に由来するのかを明示することは難しく、多くの場合、転位起因と結論付ける最終的な論拠は C-AFM による貫通転位箇所でのリークスポット検出結果(あるいはそのような結果を示す過去の報告)に委ねている。一方、第1章序論で述べた通り、EM や C-AFM 等を用いたマイクロなリーク評価手法ではリークしやすい転位の存在を示すことが出来るものの、リークするか否かという二値的な評価しかできない上に、特に表面モホロジーに敏感な C-AFM 結果の信頼性がやや乏しいという理由から、リーク特性の定量評価まで議論が及んでおらず、欠陥準位等を含む転位リークの詳細な電気伝導機構を特定できなかった⁵⁴⁻⁶⁴。実デバイスにおけるマクロなリーク現象と貫通転位におけるマイクロなリーク現象を紐づけている報告は、GaN on GaN 縦型 PND を EM 法で評価している Usami らのグループの報告だけに限られており⁶²⁻⁶⁴、その他多くの先行研究で報告されている一般的な GaN パワーデバイス(ホモ/ヘテロエピ、縦/横型構造問わず)については、マクロなリーク電流がマイクロな貫通転位を起源として生じているのかという点に関しては、決定的なデータが欠けていた。さらに一方で、第一原理計算や EELS を用いた原子レベルの理論的及び実験的研究では、GaN 結晶中の転位芯部分ではバルク部分とは異なる電子状態が形成されることが示されており、電子状態解析の観点からも貫通転位のリーク現象が転位の特異な電子状態に起因する可能性が指摘されている。しかし、その様な単一転位の欠陥準位が素子のリーク電流に寄与していることを実験的に直接検証する術がなく、これらの結論もまた示唆止まりであった⁶⁵⁻⁷¹。本研究成果の一つは、単一貫通転位部ショットキー界面の電気伝導機構を解明する形で、これら転位リーク現象に係る従来の断片的な研究結果の隔たり、すなわちマクロとマイクロの隔たりを繋ぐ知見を提供することが出来た点にある。「極一部の異常な貫通転位部分のショットキー界面において特異な欠陥準位を介した電気伝導メカニズムで過剰なリーク電流が流れている」という知見は、まさに、多くの先行研究で予想されていた「GaN パワーデバイスにおけるマクロなリーク電流は転位由来の欠陥準位を介して発生する」というモデルを裏付けるデータであり、従来の仮説が概ね正しかったことを示す決定的なデータであると言える。

他方、従来の C-AFM や EM 等を用いた研究^{54-64,76}では、大多数の貫通転位はリークスポットとして検出されておらず、ほとんどの貫通転位は致命的なリークパスとはならないことが示唆されていた。ただしこの結論の多くは、ある一定電圧印加時における

リークスポットの有無から導かれた予想であることに注意されたい。高い信頼性が求められるパワーデバイス分野にとっては、ある一定電圧下におけるリークの有無だけでなく、ショットキー界面や pn 界面における電気伝導に対して、転位が本質的に影響しないのかどうかという点が一層重要であり、それを示す明確なデータが求められていた。本研究により、この点に関する明瞭なデータが提示された。すなわち、**c** 成分バーガースペクトルを有する大多数の転位では、そのショットキー界面における順方向及び逆方向電流伝導機構が、転位を含まないショットキー界面と同様であり、もはや転位はショットキー接触の電気伝導にほとんど影響しないことが示された(同一 **b** の転位間で見られた室温 J - V 特性の統計的ばらつきに個々の転位形態の違いが反映されている可能性が示唆されたものの、続く第6章の統計的解析より、これらのばらつきが転位自体の構造に由来する可能性は低いことが示され、改めて、転位がショットキー特性へ及ぼす影響は非常に小さいという結論が導かれる)。定量的かつ統計的な電気特性解析を以って導かれたこの結論は、GaN パワーデバイス分野にとって重要かつポジティブなフィードバックである。

本研究はショットキー接触に照準した研究ではあるものの、これらの知見は GaN 系 PND にとっても有用なフィードバックとなり得る。基本的に、SBD と PND の電気伝導は共に、界面に形成されるポテンシャル障壁(すなわち空乏層領域)に支配されるものであり、多くの先行研究にて、GaN 結晶中の転位で生じるリーク現象は、いずれの素子においても(本章で示された通り)貫通転位由来の欠陥準位が空乏層内のトンネル伝導や hopping 伝導、PF 伝導等をアシストする形で生じていると予想されている^{2,3,5,6,53,77,78}。つまり、PND と SBD における転位リーク現象は、素子構造に依らず、転位芯の特異な電子状態(バンドギャップ間のエネルギー準位)⁶⁵⁻⁷¹に起因する可能性が高いとされている。(ただし、転位由来の欠陥準位形成メカニズムが、SBD と PND 間で全く同様であるとは限らないことに留意されたい。SBD の場合、転位における欠陥準位形成は、転位芯における Ga/N の原子配列や酸素不純物との複合欠陥化に由来する可能性が高い(第6章で詳述)が⁶⁵⁻⁶⁹、PND の場合は p 型ドーパントであるマグネシウム(Mg: magnesium)不純物が貫通転位に集積・拡散することが関与する可能性も指摘されている^{70,71,79}。)従って、「一部の貫通位でリーク電流が発現する原因がその転位由来の特異な欠陥準位にある一方で、大多数の転位は致命的な欠陥準位を有さず、空乏層領域を介した電気伝導にほぼ影響しない」という本章の結果は、SBD のみならず PND にとっても重要なフィードバックとなると考えられる。

異常なリーク電流を示すことが明らかとなった M ピット形成源の貫通転位は、改めて、デバイスキラーとなる可能性が高い。このようなキラー欠陥はデバイスの信頼性を揺るがすと同時に、デバイス製造における歩留まりの低下要因となる。デバイスの歩留まり (Yield) はポアソン分布 ($Yield = \exp(-DA)$)、 D :キラー欠陥密度、 A :デバイス面積より推定することができる⁷²⁻⁷⁴。車載用デバイスを想定した場合、定格電流が 100~400 A の大容量パワーデバイスが要求される⁷⁵。電流密度を GaN 系レーザと同様の 2 kA/cm² と仮定し、100 A/chip を実現すべく約 2 mm² のデバイスを作製する場合、歩留まり 90%以上を達成するには、キラー欠陥密度を 2 個/cm² 以下に抑制することが望まれる。しかしながら、異常リーク特性を示した M ピットの推定密度 8.9×10^2 cm⁻² に基づくと、2 mm² チップにこの欠陥が 36 個含まれることになる。上記の推定密度でキラー欠陥が存在するウェハで 2 mm² チップを作製する場合、歩留まりは 1%にも満たない。この数字を見ても明らかなように、この異常なリーク電流を示す貫通転位を抑制することは必須であると言える。第 4 章より、M ピット直下の転位は、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ の貫通転位であると考えられるが、この異常特性を示した M ピット下の貫通転位については、他の大多數の $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ 転位とは異なる特徴を有している可能性が高い。次章では、この異常 M ピットを含む複数のピット箇所での TEM 観察結果、及び MPPL 解析結果を踏まえたうえで議論する。

最後に、本論文で初めて確認された異質的かつ大きなバーガスベクトルである $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ の貫通転位 (L ピット) に関しては、上記 M ピットの様な異常に大きなリーク電流特性を示すものは存在しなかった (アブノーマルな J - V カーブ形状を示した転位については次章で TEM 解析を行う)。これは本 HVPE-GaN 結晶のドーピング濃度がそこまで高くないことが一因と推察した。ただし、これは逆に、本研究においては特に大きなリークを生じなかった $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ 転位も、将来的に GaN パワーデバイスの超高耐压化を目指す中で高濃度ドーピングを含むプロセスの複雑化に伴い、大きなバーガスベクトルによる歪が起因して過剰なリーク発生源となる可能性を秘めていることを意味する。不純物が高濃度ドーピングされた SiC パワーデバイスでは、このような異質なバーガスベクトルを持つ貫通転位がリークパスとなっていることを踏まえると^{47,48}、GaN パワーデバイスの信頼性を高める上では、異常 M ピット形成源となる貫通転位と共に、 $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ の貫通転位も完全抑制を目指すべき対象であると言える。

参考文献

- ¹ J. Suda, K. Yamaji, Y. Hayashi, T. Kimoto, K. Shimoyama, H. Namita, and S. Nagao, Appl. Phys. Express **3**, 101003 (2010).
- ² H. Zhang, E. J. Miller, and E. T. Yu, J. Appl. Phys. **99**, 023703 (2006).
- ³ E. J. Miller, E. T. Yu, P. Waltereit, and J. S. Speck, Appl. Phys. Lett. **84**, 535 (2004).
- ⁴ P. K. Rao, B. Park, S.-T. Lee, Y.-K. Noh, M.-D. Kim, and J.-E. Oh, J. Appl. Phys. **110**, 013716 (2011).
- ⁵ K. R. Peta and M. D. Kim, Superlattices Microstruct. **113**, 678 (2018).
- ⁶ K. H. Lee, S. J. Chang, P. C. Chang, Y. C. Wang, and C. H. Kuo, Appl. Phys. Lett. **93**, 132110 (2008).
- ⁷ K. Fu, H. Fu, X. Huang, T.-H. Yang, C.-Y. Cheng, P. R. Peri, H. Chen, J. Montes, C. Yang, J. Zhou, X. Deng, X. Qi, D. J. Smith, S. M. Goodnick, and Y. Zhao, IEEE J. Electron Devices Soc. **8**, 74 (2020).
- ⁸ F. Roccaforte, F. Giannazzo, A. Alberti, M. Spera, M. Cannas, I. Cora, B. Pécz, F. Iucolano, and G. Greco, Mater. Sci. Semicond. Process. **94**, 164 (2019).
- ⁹ A. Kumar, S. Vinayak, and R. Singh, Curr. Appl. Phys. **13**, 1137 (2013).
- ¹⁰ F. Iucolano, F. Roccaforte, F. Giannazzo, and V. Raineri, J. Appl. Phys. **102**, 113701 (2007).
- ¹¹ V. R. Reddy, V. Janardhanam, C.-H. Leem, and C.-J. Choi, Superlattices Microstruct. **67**, 242 (2014).
- ¹² M. S. P. Reddy, A. A. Kumar, and V. R. Reddy, Thin Solid Films **519**, 3844 (2011).
- ¹³ N. Yıldırım, K. Ejderha, and A. Turut, J. Appl. Phys. **108**, 114506 (2010).
- ¹⁴ F. A. Padovani and R. Stratton, Solid-State Electron. **9**, 695 (1966).
- ¹⁵ M. Hara, S. Asada, T. Maeda, and T. Kimoto, Appl. Phys. Express **13**, 041001 (2020).
- ¹⁶ T. Hatakeyama and T. Shinohe, Mater. Sci. Forum **389–393**, 1169 (2002).
- ¹⁷ M. Imanishi, K. Murakami, T. Yamada, K. Kakinouchi, K. Nakamura, T. Kitamura, K. Okumura, M. Yoshimura, and Y. Mori, Appl. Phys. Express **12**, 045508 (2019).
- ¹⁸ Y. Mori, M. Imanishi, K. Murakami, and M. Yoshimura, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, SC0803 (2019).
- ¹⁹ S. M. Sze and K. K. Ng, *Physics of Semiconductor Devices*, 3rd ed. (Wiley, Hoboken, 2007).
- ²⁰ I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, J. Appl. Phys. **89**, 5815 (2001).
- ²¹ H. Yamada, H. Chonan, T. Takahashi, and M. Shimizu, Phys. Status Solidi A **215**, 1700362 (2017).

- 22 M. Naganawa, T. Aoki, T. Mishima, and K. Shiojima, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 04EG06 (2016).
- 23 A. Motayed, A. V. Davydov, M. D. Vaudin, I. Levin, J. Melngailis, and S. N. Mohammad, J. Appl. Phys. **100**, 024306 (2006).
- 24 A. Botman, J. J. L. Mulders, R. Weemaes, and S. Mentink, Nanotechnology **17**, 3779 (2006).
- 25 H. Imadate, T. Mishima, and K. Shiojima, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 04FG13 (2018).
- 26 K. Isobe and M. Akazawa, Jpn. J. Appl. Phys. **59**, 046506 (2020).
- 27 D. Segev and C. G. Van de Walle, Europhys. Lett. **76**, 305 (2006).
- 28 A. S. Barker, Jr. and M. Ilegems, Phys. Rev. B **7**, 743 (1973).
- 29 J. Chen, M. Zhu, X. Lu, and X. Zou, Appl. Phys. Lett. **116**, 062102 (2020).
- 30 A. Kumar, S. Arafin, M. Amann, and R. Singh, Nanoscale Res. Lett. **8**, 481 (2013).
- 31 A. Chatterjee, S. K. Khamari, V. K. Dixit, S. M. Oak, and T. K. Sharma, J. Appl. Phys. **118**, 175703 (2015).
- 32 W. Götz, L. T. Romano, B. S. Krusor, N. M. Johnson, and R. J. Molnar, Appl. Phys. Lett. **69**, 242 (1996).
- 33 T. Maeda, T. Narita, S. Yamada, T. Kachi, T. Kimoto, M. Horita, and J. Suda, J. Appl. Phys. **129**, 185702 (2021).
- 34 L. Sang, B. Ren, M. Sumiya, M. Liao, Y. Koide, A. Tanaka, Y. Cho, Y. Harada, T. Nabatame, T. Sekiguchi, S. Usami, Y. Honda, and H. Amano, Appl. Phys. Lett. **111**, 122102 (2017).
- 35 T. Narita and T. Kachi, *Characterization of Defects and Deep Levels for GaN Power Devices*, (New York, Melville, 2020) pp. 3-2-3-18
- 36 Y. Tokuda, Y. Matuoka, K. Yoshida, H. Ueda, O. Ishiguro, N. Soejima, and T. Kachi, Phys. Status Solidi C **4**, 2568 (2007).
- 37 T. Tanaka, K. Shiojima, T. Mishima, and Y. Tokuda, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 061101 (2016).
- 38 N. Sawada, T. Narita, M. Kanechika, T. Uesugi, T. Kachi, M. Horita, T. Kimoto, and J. Suda, Appl. Phys. Express **11**, 041001 (2018).
- 39 H. K. Cho, C. S. Kim, and C.-H. Hong, J. Appl. Phys. **94**, 1485 (2003).
- 40 D. Haase, M. Schmid, W. Kürner, A. Dörnen, V. Härle, F. Scholz, M. Burkard, and H. Schweizer, Appl. Phys. Lett. **69**, 2525 (1996).
- 41 K. Kanegae, H. Fujikura, Y. Otoki, T. Konno, T. Yoshida, M. Horita, T. Kimoto, and J. Suda, Appl. Phys. Lett. **115**, 012103 (2019).
- 42 M. Horita, T. Narita, T. Kachi, and J. Suda, Appl. Phys. Express **13**, 071007 (2020).
- 43 T. Narita, M. Horita, K. Tomita, T. Kachi, and J. Suda, Jpn. J. Appl. Phys. **59**,

- 105505 (2020).
- ⁴⁴ D. Nakamura, T. Kimura, T. Narita, A. Suzumura, T. Kimoto, and K. Nakashima, *J. Cryst. Growth* **478**, 163 (2017).
- ⁴⁵ D. Nakamura, T. Narita, and T. Kimura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **85**, 075509 (2019).
- ⁴⁶ D. Nakamura, T. Kimura, and K. Horibuchi, *Appl. Phys. Express* **10**, 045504 (2017).
- ⁴⁷ S. Onda, H. Watanabe, Y. Kito, H. Kondo, H. Uehigashi, N. Hosokawa, Y. Hisada, K. Shiraishi, and H. Saka, *Philos. Mag. Lett.* **93**, 439 (2013).
- ⁴⁸ K. Konishi, Y. Nakamura, A. Nagae, N. Kawabata, T. Tanaka, N. Tomita, H. Watanabe, S. Tomohisa, and N. Miura *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, 011001 (2020).
- ⁴⁹ A. Tanaka, O. Barry, K. Nagamatsu, J. Matsushita, M. Deki, Y. Ando, M. Kushimoto, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Phys. Status Solidi A* **214**, 1600829 (2017).
- ⁵⁰ Y. Ren, Z. He, B. Dong, C. Wang, Z. Zeng, Q. Li, Z. Chen, L. Li, and N. Liu, *J. Alloys and Compounds*, in press, (2021).
- ⁵¹ U. Karrer, O. Ambacher, and M. Stutzmann, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2012 (2000).
- ⁵² A. Rizzi and H. Lüth, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 530 (2002).
- ⁵³ H. Lu, R. Zhang, X. Xiu, Z. Xie, and Y. Zheng, Z. Li, *Appl. Phys. Lett* **91**, 172113 (2007).
- ⁵⁴ E. G. Brazel, M. A. Chin, and V. Narayanamurti, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2367 (1999).
- ⁵⁵ J. W. P. Hsu, M. J. Manfra, D. V. Lang, S. Richter, S. N. G. Chu, A. M. Sergent, R. N. Kleiman, L. N. Pfeiffer, and R. J. Molnar, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1685 (2001).
- ⁵⁶ J. W. P. Hsu, M. J. Manfra, S. N. G. Chu, C. H. Chen, L. N. Pfeiffer, and R. J. Molnar, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3980 (2001)
- ⁵⁷ J. W. P. Hsu, M. J. Manfra, R. J. Molnar, B. Heying, and J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 79 (2002).
- ⁵⁸ B. S. Simpkins, E. T. Yu, P. Waltereit, and J. S. Speck, *J. Appl. Phys.* **94**, 1448 (2003).
- ⁵⁹ J. C. Moore, J. E. Ortiz, J. Xie, H. Morkoc, and A. A. Baski, *J. Phys.: Conf. Ser.* **61**, 90 (2007).
- ⁶⁰ B. Kim, D. Moon, K. Joo, S. Oh, Y. K. Lee, Y. Park, Y. Nanishi, and E. Yoon, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 102101 (2014).
- ⁶¹ L. Sang, B. Ren, M. Sumiya, M. Liao, Y. Koide, A. Tanaka, Y. Cho, Y. Harada, T. Nabatame, T. Sekiguchi, S. Usami, Y. Honda, and H. Amano, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 122102 (2017).
- ⁶² S. Usami, R. Miyagoshi, A. Tanaka, K. Nagamatsu, M. Kushimoto, M. Deki, S.

- Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Phys. Status Solidi A* **214**, 1600837 (2017).
- ⁶³ S. Usami, Y. Ando, A. Tanaka, k. Nagamatsu, M. Deki, M. Kushimoto, S. Nitta, Y. Honda, H. Amano, Y. Sugawara, Y-Z. Yao, and Y. Ishikawa, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 182106 (2018).
- ⁶⁴ S. Usami, A. Tanaka, H. Fukushima, Y. Ando, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58** SCCB24 (2019).
- ⁶⁵ S. M. Lee, M. A. Belkhir, X. Y. Zhu, Y. H. Lee, Y. G. Hwang, and T. Frauenheim, *Phys. Rev. B* **61**, 16033 (2000).
- ⁶⁶ I. Arslan, A. Bleloch, E. A. Stach, S. Ogut, and N. D. Browning, *Philos. Mag.* **86**, 4727 (2006).
- ⁶⁷ J. E. Northrup, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2288 (2001).
- ⁶⁸ I. Belabbas, M. A. Belkhir, Y. H. Lee, J. Chen, A. Bere, P. Ruterana, and G. Nouet, *Comput. Mater. Sci.* **37**, 410 (2006).
- ⁶⁹ R. Jones, J. Elsner, M. Haugk, R. Gutierrez, Th. Frauenheim, M. I. Heggie, S. Oeberg, and P. R. Briddon, *Phys. Status Solidi B* **171**, 167 (1999).
- ⁷⁰ T. Nakano, Y. Harashima, K. Chokawa, K. Shiraishi, A. Oshiyama, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, Y. Honda, and H. Amano, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 012105 (2020).
- ⁷¹ T. Nakano, K. Chokawa, M. Araidai, K. Shiraishi, A. Oshiyama, A. Kusaba, Y. Kangawa, A. Tanaka, Y. Honda, and H. Amano, *Compound Semiconductor Week*, 1 (2019).
- ⁷² N. Kumar, K. Kennedy, K. Gildersleeve, R. Abelson, C. M. Mastrangelo and D. C. Montgomery, *Int. J. Prod. Res.* **44**, 5019 (2006).
- ⁷³ K Chatty, S Banerjee, and K Matoch, *Proc. IEEE 4th Workshop on Wide Bandgap Power Devices and Applications (WiPDA)*, 143, (2016).
- ⁷⁴ A. Gupta and J. W. Lathrop, *IEEE Journal of Solid-State Circuits* **SC-7**, 389 (1972).
- ⁷⁵ 鶴田和弘、DENSO Technical review **22**, 51 (2017).
- ⁷⁶ K. Shiojima, T. Suemitsu, and M. Ogura, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3636 (2001).
- ⁷⁷ Y. Zhang, M. Sun, H.-Y. Wong, Y. Lin, P. Srivastava, C. Hatem, M. Azize, D. Piedra, L. Yu, T. Sumitomo, N. de Almeida Braga, V. Mickevicius, and T. Palacios, *IEEE Trans. Electron Devices* **62**, 2155 (2015).
- ⁷⁸ B. Rackauskas, S. Dalcanale, M. J. Uren, T. Kachi, and M. Kuball, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 233501 (2018).
- ⁷⁹ S. Usami, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 232105 (2019).

第6章 貫通転位の伝播形態及び微細構造と電気特性の関係

6.1. はじめに

本章では、第5章にて、ショットキー接触における電気特性を計測した転位について、その伝播形態(反応性、バルク中の転位形態等)やバーガースベクトル、ピット直下での形態等をMPPL及びTEMにより解析する。大多数の貫通転位が、バーガースベクトルに依らず同様の電気特性を示すことが示されたものの、同じサイズのピットの中でも、ショットキー障壁やリーク電流度合いにある程度のばらつきが見られた。MPPL解析に基づき、これらのばらつきと、転位伝播形態の相関性を統計的に評価する。また、第5章で見出された、極めて大きなリーク電流を生じたMピット電極や、アブノーマルな I - V カーブ形状を示したLピット電極を含む複数のピットにおいてMPPL観察及びTEM観察を実施し、ショットキー界面において欠陥準位を介したトンネル電流のような、異質な電気伝導を誘発した転位の伝播形態や微細な結晶構造を調査する。なお、評価試料は第4章及び第5章で用いた試料と同じハイブリット基板を用いている。

6.2. 貫通転位の伝播形態とショットキー接触における電気特性の相関性

第5章にて電気測定を行った全ピット電極について、その直下の貫通転位の伝播形態を観察し、ピットサイズ(すなわちバーガースベクトル)毎に、幾つかの伝播形態上の特徴と、ショットキー接触における障壁高さやリーク電流度合いとの相関性を評価した結果を示す。

6.2.1. Sピット

図6-1(a)-(c)は、Sピット電極で計測されたショットキー障壁高さ $\phi_{b,TE}$ 、及びリーク電流密度 $J_R=10^{-3}$ A/cm²となる逆バイアス電圧値(以降、リーク電圧と呼称する)と、 c 軸からの転位傾斜角度、他の転位との反応の有無、転位の傾斜方位の関係性をプロットした結果である。図6-1(a)及び(c)において、 c 軸からの傾斜角度は $5.7^{\circ}\sim 13.4^{\circ}$ となり、転位の傾斜方位も概ね a 方向(60° の倍数)に分布していることが分かる。この傾斜特性は第4章の $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ 転位の特徴と合致しており、これらSピット直下の貫通転位も $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ を有すると考えられる。 $\phi_{b,TE}$ とリーク電圧共に、傾斜角度及び傾斜方位との

相関はほぼ見られなかった。第 4 章で示した通り、幾つかの転位はバルク中を伝播する過程で他の転位と会合したり、分裂したりする特徴を有し、転位に依って反応性が異なっていた。他の転位と全く反応せず単独で伝播する転位と、会合や分裂等を経て伝播する反応性の高い転位で大別し、図 6-1(b)ではこれを $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧と関連付けている。しかしながら、いずれも顕著な相関は見られなかった。

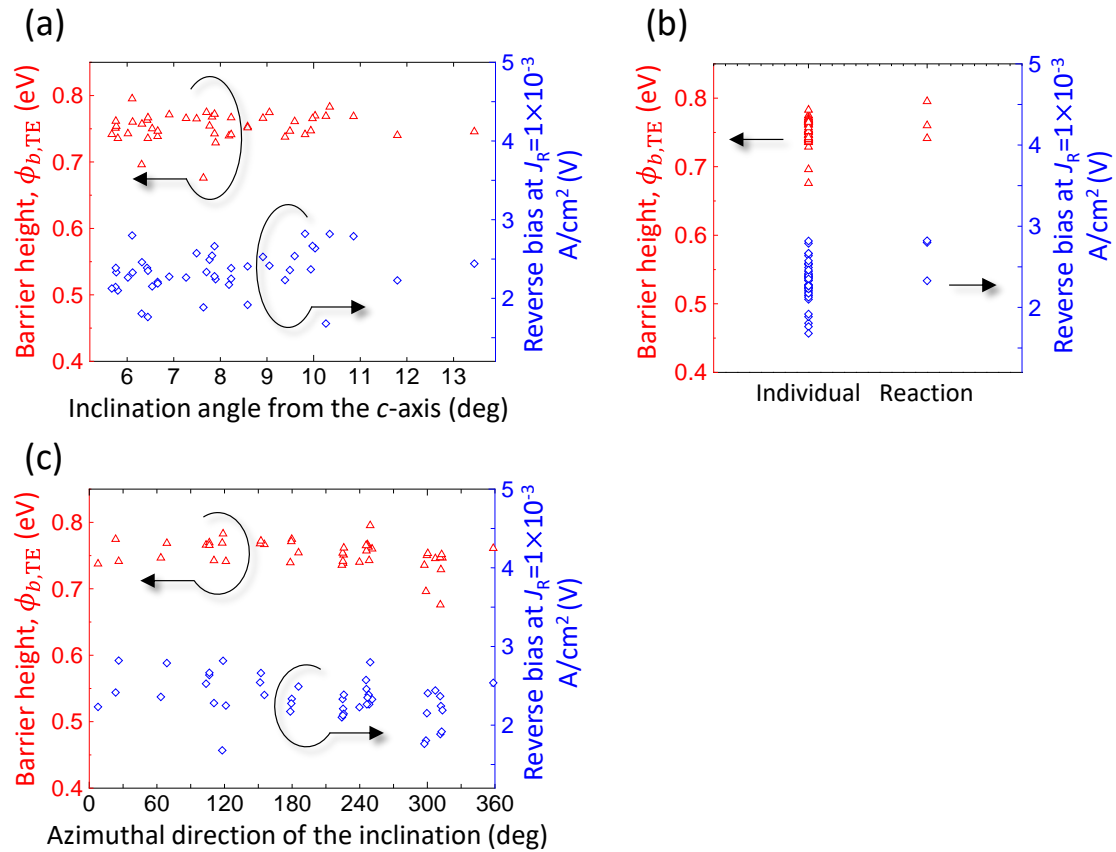


図 6-1 S ピットにおける $\phi_{b,TE}$ 及び $J_R=10^{-3}$ A/cm² となる逆バイアス電圧値と各種伝播形態上の特徴との相関性。(a) c 軸に対する転位の傾斜角度、(b) 他の転位との反応の有無、(c) 転位の傾斜方位([11 $\bar{2}$ 0]方向を基準として反時計回りを正とする)。

6.2.2. M ピット

M ピットに関しては、異常大リークを示した 2 つ(#M66、#M95)を含んだ、全 M ピットの統計的解析によって明らかになった、伝播形態と $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧の相関に関する全体的な傾向を示す。その後、異常大リークを示した#M66と#M95の転位伝播形態について、他の標準的な M ピットにおける転位と違いがあるのかという観点から評価した結果を示す。

M ピット全体的な傾向

図 6-2(a)-(d)は M ピット電極直下の貫通転位の各種伝播形態の特徴と $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧値との関係である。第 4 章の結果から予想された通り、電気測定を行ったほぼ全ての転位が明瞭な蛇行伝播形態を有していた。この事実より、ほぼすべての転位は $b=1c$ を有していると推察される。この結果に基づき、蛇行形態中のスパイラル半周期数(図 6-2(a))、転位反応の有無(図 6-2(b))、ピット直下における傾斜方位(図 6-2(c))、スパイラル回転方向(right-handed/left-handed、図 6-2(d))と、 $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧値との関係相関を評価した。しかしながら、いずれの伝播形態上の特徴も、これらショットキー界面における電気特性との間に相関は見られなかった。

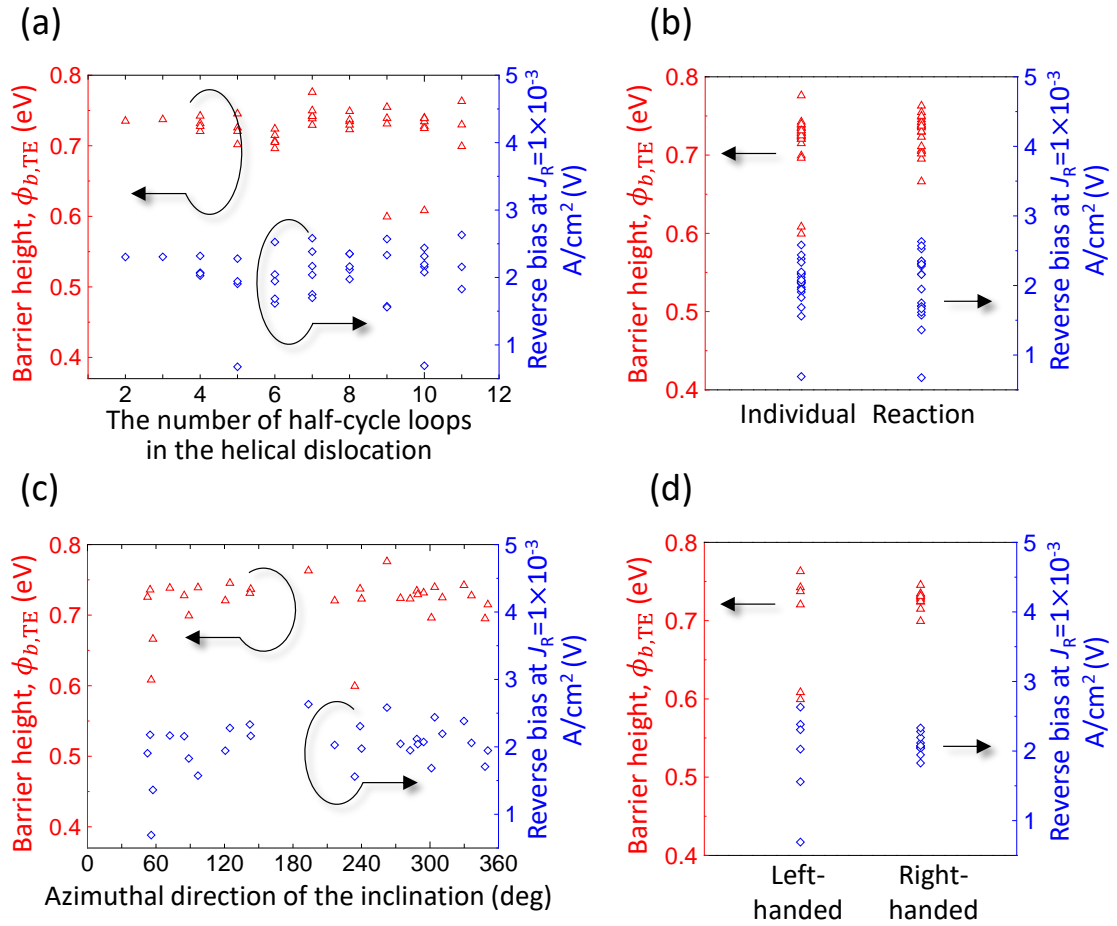


図 6-2 M ピットにおける $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧値と各種伝播形態上の特徴との相関性。(a) スパイラル半周期数、(b) 他の転位との反応の有無、(c) ピット直下における傾斜方位、(d) ヘリカル回転方向。

異常大リークピット#M66 及び#M95 の伝播形態

図 6-3(a)は#M66 付近で取得した貫通転位挙動の 3 次元 MPPL データを c 方向に投影した図である。転位コントラストを強調するため、コントラストを反転している。近傍には、標準的なリーク特性を示した別の M ピット#M127 の転位も存在する。この図より、#M66、#M127 共に図中左上から右下方向に単独で伝播している(別転位との会合・分裂、基底面転位無し)こと、さらに両転位共に left-handed 方向(図中赤矢印で示す; 転位方向を $+c$ と定義した場合の回転方向)のヘリカル形態となっていることが分かる。図 6-3(b)はこれらの転位の 3 次元像である。蛇行周期に僅かな違いがあるものの、それ以外に顕著な違いはなく、類似した伝播形態であった。これらの伝播形態は第 4 章で示した大多数の M ピット下の転位とほぼ同じであり、普遍的な形態であると言える。

図 6-4(a)は、#M95 近傍領域における各深さでの 2 次元 MPPL データを示し、図 6-4(b)には、その 3 次元的模式図を示している。近傍に標準的なリーク特性を示した M ピット#M89 も観測されている。図 6-5 はこれら#M95 と#M89 を含む、同領域内の転位の 3 次元的像である。#M95 及び#M89 を含む、この MPPL 領域近傍の貫通転位は、どれも非常に反応性が高く、あらゆる深さで貫通転位を横切る BPD が数多く観測された(BPD の MPPL 強度は弱いため、図 6-5 の 3 次元像ではほとんど見えていない)。#M95 及び#M89 の転位は、他の M ピットのような一般的な蛇行転位とはやや異なり、BPD との反応を介した特徴的な伝播挙動を示した。図 6-4 で示す通り、#M95 の転位は、結晶裏面から深さ 80 μm までは、BPD の横切りが数回あったものの、基本的に蛇行伝播をしていた。しかしながら、深さ 80 μm に至る直前まで、図中の左方向に蛇行伝播してきた転位が、BPD が横切った直後から蛇行を止め、図中の上方向に直線の伝播を始めた。その後、成長が続いても直線形態を保持したまま表面まで貫通していた。図 6-5 では、この蛇行伝播から直線伝播への変換点を矢印で示している。ただし、この現象は#M95 だけでなく、#M89 でも生じていた(図 6-5 の白矢印が伝播形態変換点)。図 6-5 より、これら二つの転位伝播形態が非常によく似ていることが分かる。

上記の結果より、異常大リーク特性を示した#M66 と#M95 の転位は、これら二つだけに特有な特異形態を有しているわけではなく、それぞれ標準リーク特性を示した近傍の転位と類似した形態であった。二つの転位間で共通する特徴も特に見出されなかった。従って、異常大リークが生じるか否かは伝播形態で決まるわけではなく、何か別の要因が寄与していると結論づけられる。

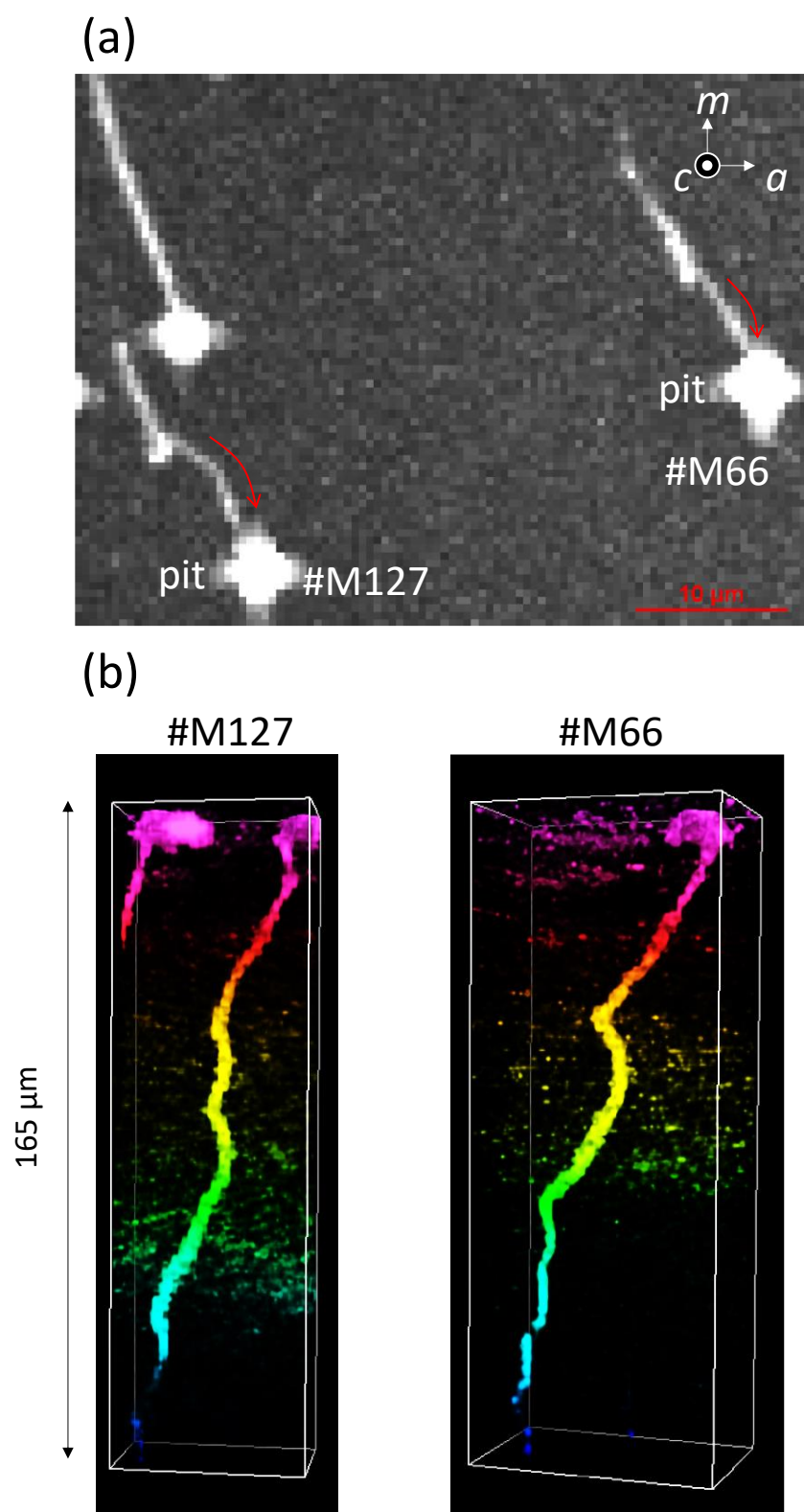


図 6-3 #M127(標準的リーク特性)と#M66(異常大リーク特性)における深さ 165 μm から表面に渡る(a) 転位伝播軌跡を表す c 方向投影図と(b) 3 次元形態。

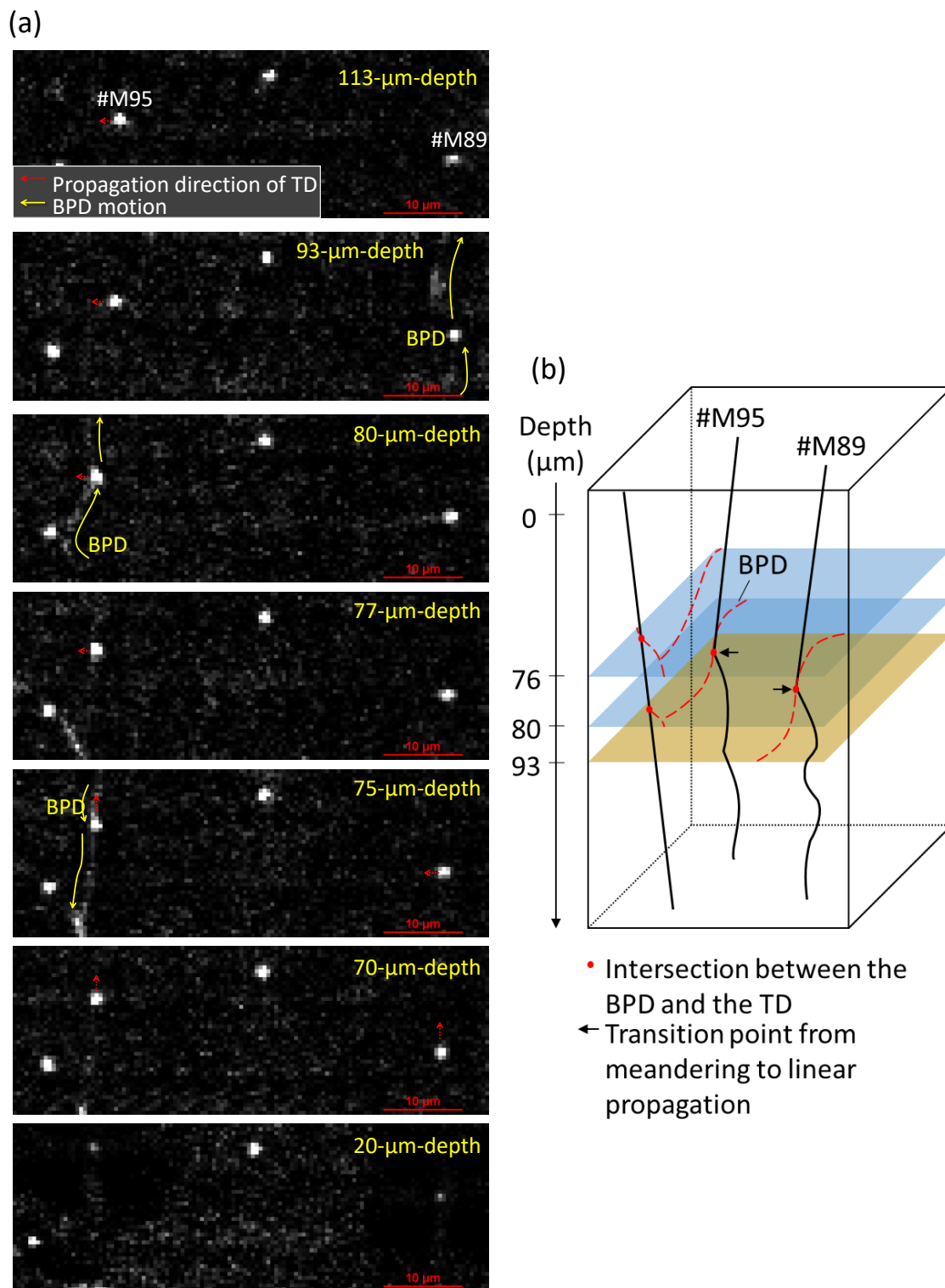


図 6-4 (a) 各深さで観察した#M95 周辺の 2 次元 MPPL 像。転位コントラストを強調するために、実際の MPPL データのコントラストを反転させて表示している。(b) 転位伝播形態の 3 次元模式図。

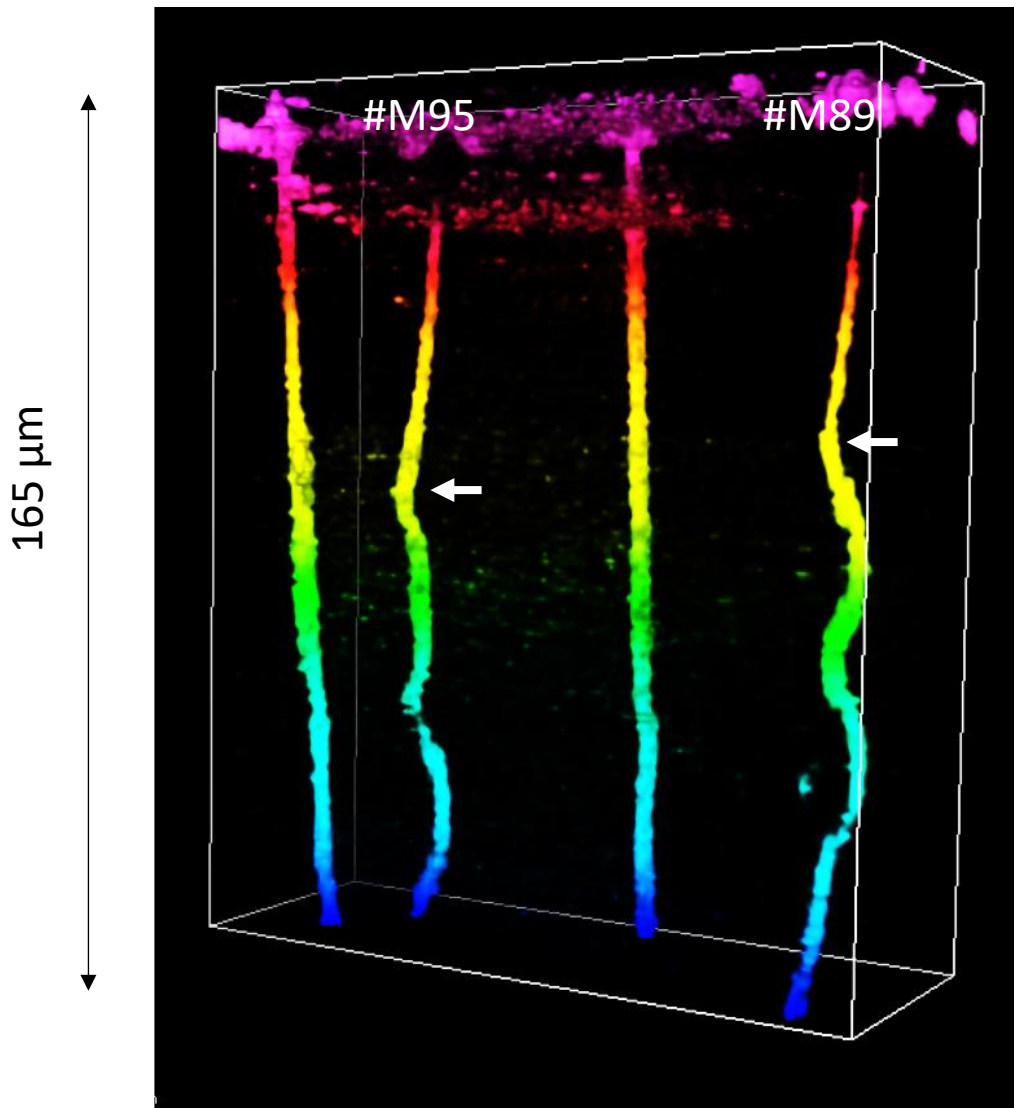


図 6-5 #M89(標準的リーク特性)と#M95(異常大リーク特性)における貫通転位の 3 次元形態。矢印は、蛇行伝播から直線伝播に切り替わった深さを示す。

6.2.3. L ピット

図 6-6 (a)-(c) M ピット電極直下の貫通転位の各種伝播形態の特徴と $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧値との関係である。図 6-6 (a) 及び (b) より、電気測定を行った L ピット直下の転位は、 c 軸からの傾きが比較的小さく、ほとんどの転位が合体を経て形成されていた。この伝播形態もまた、第 4 章の $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ 転位の特徴と合致しており、第 5 章で電気測定を行った L ピット直下の貫通転位のバーガースベクトルは $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ であると考えられる。S、M ピットと同様に、 c 軸からの傾斜角度(図 6-6 (a))、他の転位との反応の有無(図 6-6 (b))、傾斜方位(図 6-6 (c))のいずれも $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧値との相関は見

られなかった。

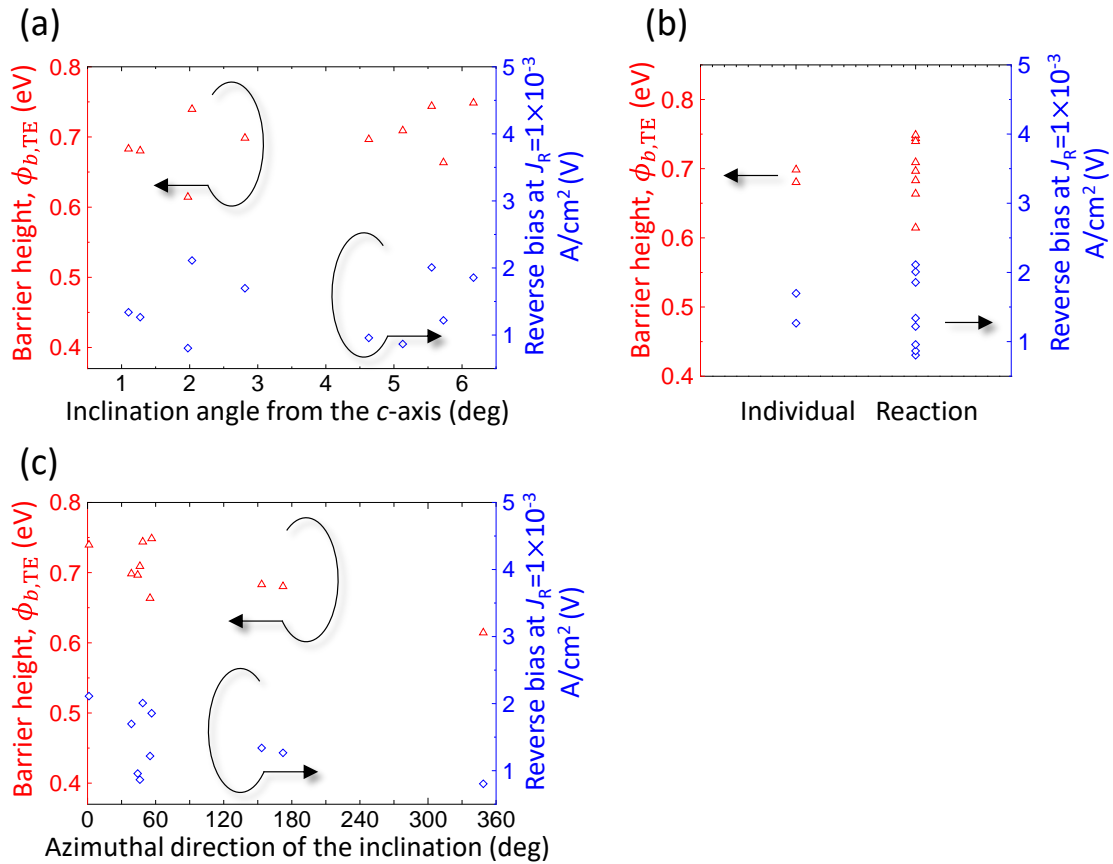


図 6-6 L ピットにおける $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧値と各種伝播形態上の特徴との相関性。(a) c 軸に対する転位の傾斜角度、(b) 他の転位との反応の有無、(c) 転位の傾斜方位。

これら S、M、L ピットの統計的な解析結果を踏まえると、第 5 章で見られた、各ピットサイズの標準的な J - V 特性を示したピット電極間の $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧値のばらつきは、転位伝播形態に由来する可能性は極めて低く、界面の品質等の外在的な因子に起因して生じたと考えられる。この結果より、これら大多数の貫通転位については、バーガースベクトルのみならず傾斜方位や傾斜角度等の伝播形態もまた、ショットキー界面の電気伝導に対してほとんど影響を及ぼさないと結論付けられる。

6.3. TEM による微細構造解析

図 6-7 は、第 5 章図 5-24 の再掲である。これら図 6-7(a)-(c) のピット電極の中で、TEM 解析を行ったピットをオープンシンボルで示している。S ピットについては異常なリーク特性を示すものが存在しなかったため、代表的に #S81 の 1 つを観察した。M ピットについては、異常に大きなリーク電流を示した 2 つ (#M66 と #M95、図 6-7(b) 及び (e) では破線囲みで示している)、その比較として標準的なリーク特性を示した 3 つ (#M93、#M124、#M125) を観察した。L ピットについては、アブノーマルな逆方向 I - V カurve 形状を示した #L72、標準的な特性の中でも比較的大きなリーク電流を示した #L64 と小さなリーク電流を示した #L75 を観察した。

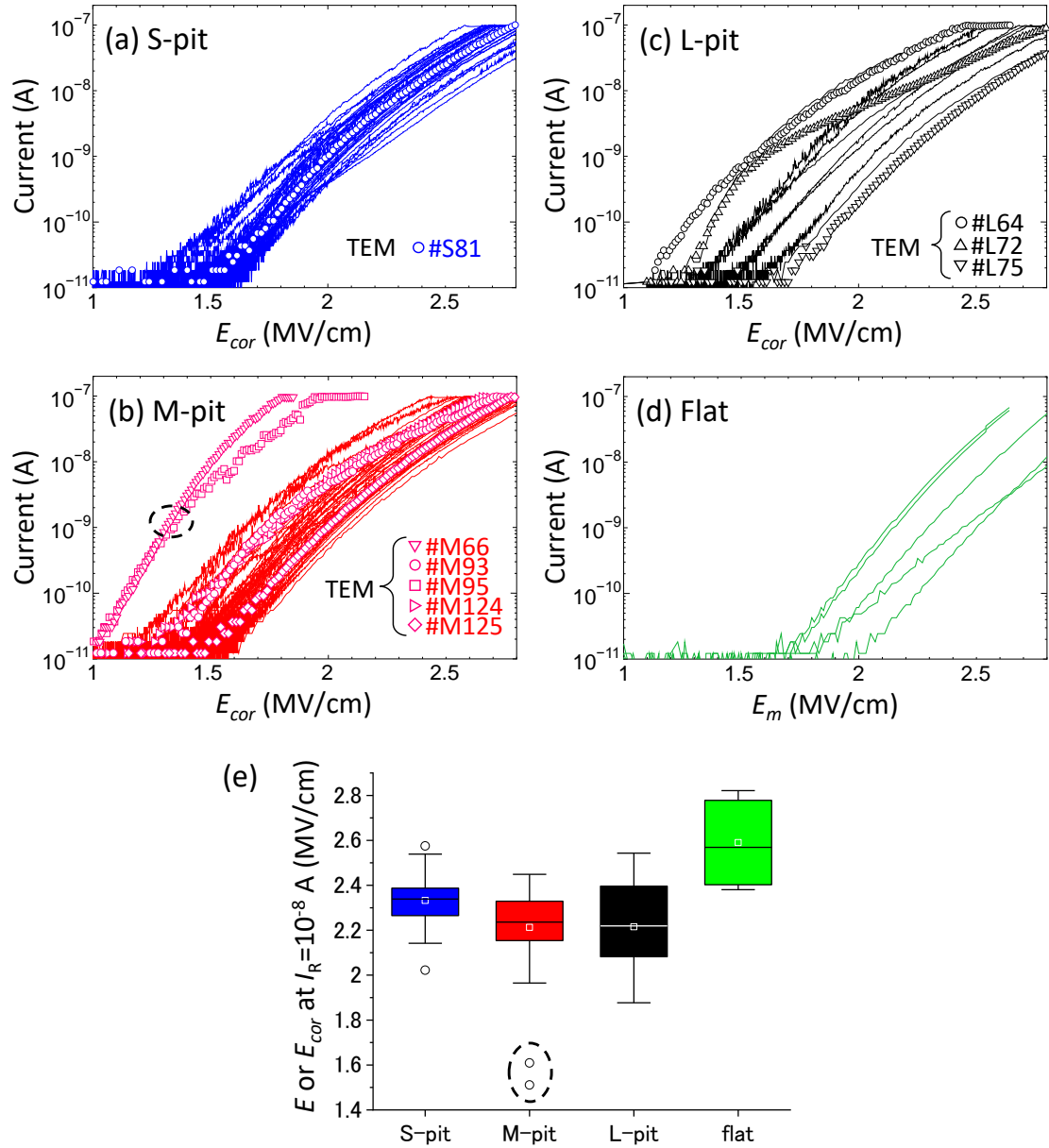


図 6-7 (図5-24 の再掲)室温における(a) Sピット、(b) Mピット、(c) Lピット電極の逆バイアス I vs E_{cor} 特性、及び(d) flat 電極の逆バイアス I vs E_m 特性。(e) 各電極部において $I_R=10^{-8}$ A となる電界強度のボックスプロット。

6.3.1. S ピット

図 6-8(a)及び(b)は、それぞれ $g=11\bar{2}0$ と $g=0002$ の下で観察された#S81 直下の貫通転位の暗視野 TEM 像である。 $g=11\bar{2}0$ と $g=0002$ の両方で転位コントラストが確認されることから、混合転位と判定された。LACBED 解析の結果 (Appendix の A.4 節に記載)、この転位のバーガースベクトルは $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ と決定された。この結果は第 4 章の S ピットと同様である。ピット直下の傾斜角度も $\sim 12.3^\circ$ で、図 6-1(a)の MPPL データに見られる傾斜角度とも概ね整合していた。これまでの結果を統合すると、 $\mathbf{b}=1\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ の混合転位については、その構造や、各転位がショットキー接触における電気特性に及ぼす影響度合いにほとんど違いはないと結論付けられる。

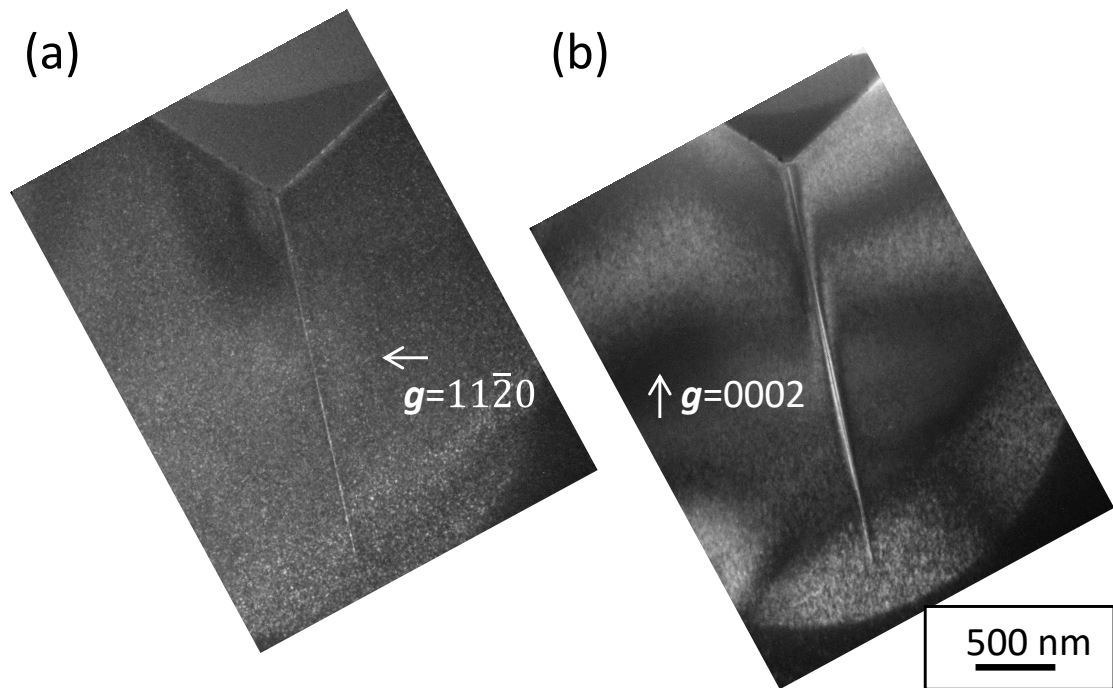


図 6-8 #S81 における貫通転位の暗視野 TEM 像。(a) $g=11\bar{2}0$ 及び(b) $g=0002$ 。

6.3.2. L ピット

図 6-9(a-1)-(c-2)は、#L64、#L72、#L75 において、 $g=11\bar{2}0$ 及び $g=0002$ で観察された暗視野 TEM 像である。標準的なリーク特性の中で比較的リーク電流が大きかった #L64 (図 6-9(a-1)及び(a-2))とリーク電流が小さかった#L75 (図 6-9(c-1)及び(c-2))は、僅かな傾斜角度の差こそあるものの、非常に類似した直線的形態を有している。どちらも $g=11\bar{2}0$ 及び $g=0002$ でコントラストが確認でき、混合転位と判定された。また、LACBED 解析の結果、両者とも $\mathbf{b}=1\mathbf{m}+1\mathbf{c}$ のバーガースベクトルを有していた

(Appendix の A.4 節に記載)。共に、第 4 章で見られた L ピット直下 $1m+1c$ 転位とほぼ同じ特徴であり、L ピットを形成する転位としては、普遍的な構造であると言える。従って、図 6-7(c)及び(e)で見られた、L ピット電極内で比較的同形状のカーブを有するリーク特性間のばらつきは、貫通転位自体の構造に起因している可能性は低く、ショットキー界面の品質等、外在的な因子が主原因であると考えられる。

アブノーマルな逆方向 J - V カーブ形状を示した #L72 直下の転位は、他とは異なり、明らかに複雑な構造を有している(図 6-9(b-1)及び(b-2))。ピット先端からまっすぐ下に伸びている転位は $g=11\bar{2}0$ 及び $g=0002$ の両方でコントラストが確認されるため混合転位と判定されるが、ピット側面から伸びる転位と、図中右下から左上に向かって伝播し、直線的混合転位を介して BPD に変換されている転位については、 $g=11\bar{2}0$ のみでコントラストが確認できるため、 a 成分のみを有する刃状転位と判定される。図 6-9(b-1)には LACBED 解析より判定したバーガースベクトルを転位毎に示しているが(詳細は Appendix の A.4 節に記載)、上記の $g \cdot b$ 解析結果と整合する。しかしながら、L サイズのピットであるにも拘らず、ピット先端から伸びる貫通転位のバーガースベクトルは $b=1a+1c$ であった。これは、KOH+NaOH ウェットエッチング前の結晶表層領域で、元々この $b=1a+1c$ 転位とピット側面の $b=1a$ 転位と合体して $b=1m+1c$ の転位であったことに起因する。実際、これらのバーガースベクトルの和 $1/3[11\bar{2}0]+1/3[2\bar{1}\bar{1}3]$ は $[10\bar{1}\bar{1}]=1m+1c$ となっている。ピット先端の $b=1a+1c$ 転位は一般的な形態を有していることから、#L72 で観測されたアブノーマルなリーク特性は、ピット先端の他に、ピット側面からもう一つ別の $1a$ 転位が伸びていることによる影響が大きいと推察される。実際に、この $1a$ 転位の起点となるピット側面では、側面に沿って特異なコントラストが発現している(図 6-9(b-1)及び(b-2)の赤矢印で示している)。この構造の詳細は不明であるが、これは、この $1a$ 転位を起点としてピット側面から過剰なリーク電流が生じたことによって副次的に形成された欠陥であると予想される。従って、#L72 で観測されたアブノーマルなリーク特性は、ピット側面に転位が異例的に存在していたことに依るもので、ピット先端の $1a+1c$ 転位がショットキー界面における電気伝導に本質的な影響を及ぼしたものではないと言える。図 6-7(c)の中で #L72 を除く L ピット電極が $b=1m+1c$ のリーク特性を示していると考えられ、これらの J - V カーブ形状は非常によく似ている。#L64 と #L75 の結果より、リーク電流度合いのばらつきが界面品質等の外因に由来すると推察されたことから、本 HVPE-GaN 基板における $b=1m+1c$ 転位についても、ショットキー界面の電気伝導に及ぼす影響度合いは転位間でほぼ変わらないと結論付けられる。

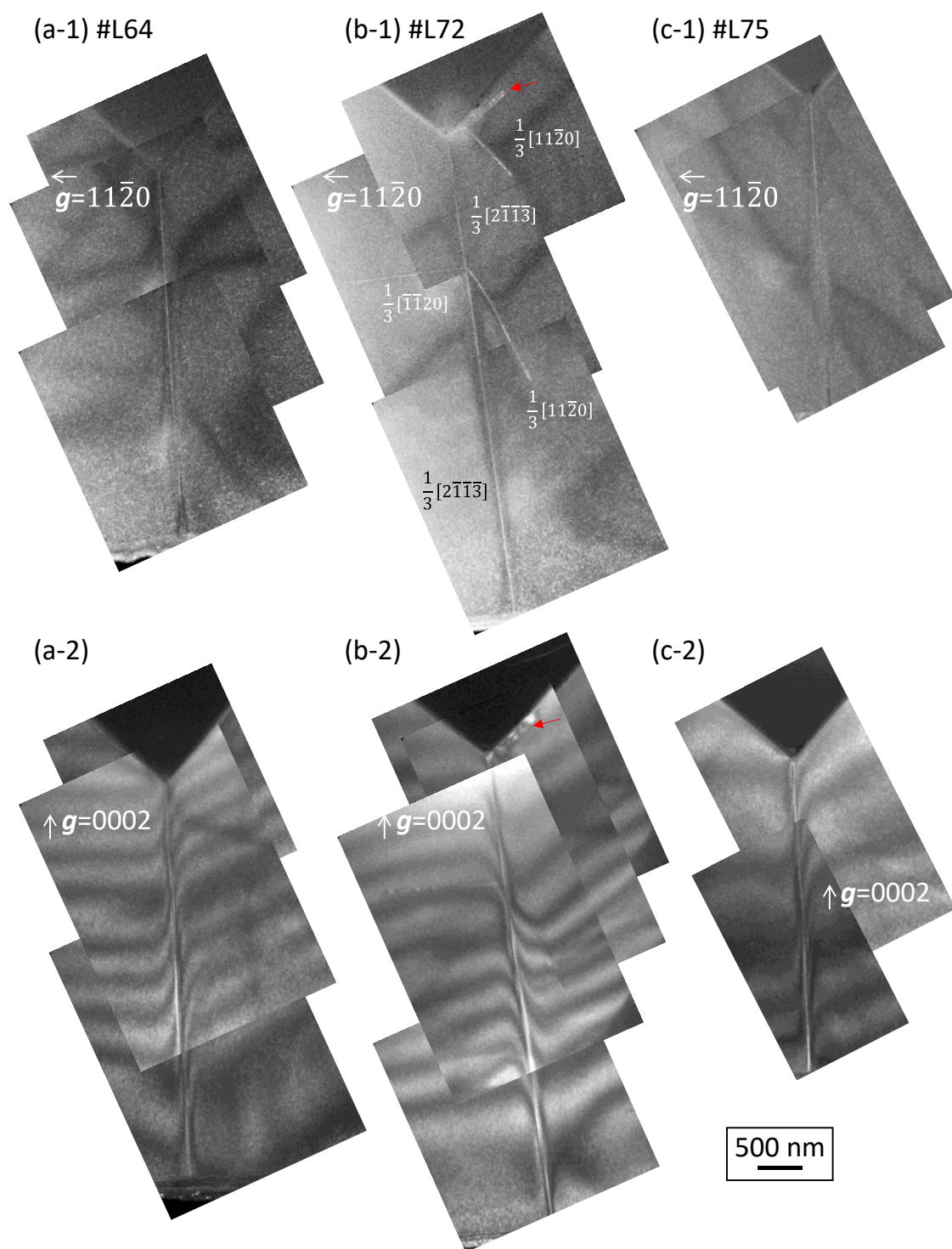


図 6-9 (a-1), (a-2) #L64、(b-1), (b-2) #L72、(c-1), (c-2) #L75 において $g=11\bar{2}0$ (上段) 及び $g=0002$ (下段) で観察された暗視野 TEM 像。(b-1) には転位毎にバーガスベクトルを記している。

6.3.3. M ピット

図 6-10(a-1)-(c-2)は標準的なリーク特性を示した#M93、#M124、#M125 において $g=11\bar{2}0$ 及び $g=0002$ で観察された暗視野 TEM 像である。いずれのピットにおいても $g=0002$ (図 6-10(a-2)、(b-2)、(c-2)) でのみ転位コントラストが現れ、 $g=11\bar{2}0$ (図 6-10(a-1)、(b-1)、(c-1)) では消失していることから、全ての転位が c 成分のみを有したらせん転位と判定される。LACBED 解析より、これらの転位のバーガースベクトルは全て $b=1c$ であると決定された (Appendix の A.4 節に記載)。#M93 の貫通転位には、転位を横切る基底面転位 (BPD: basal plane dislocation) が観察された (図 6-10(a-2)挿入図)。#M125 における c 軸からの傾きが#M93 や#M124 よりもやや大きいといった特徴があるが、上記 BPD の存在以外、これら 3 つの転位構造に顕著な特異性は見られなかった。

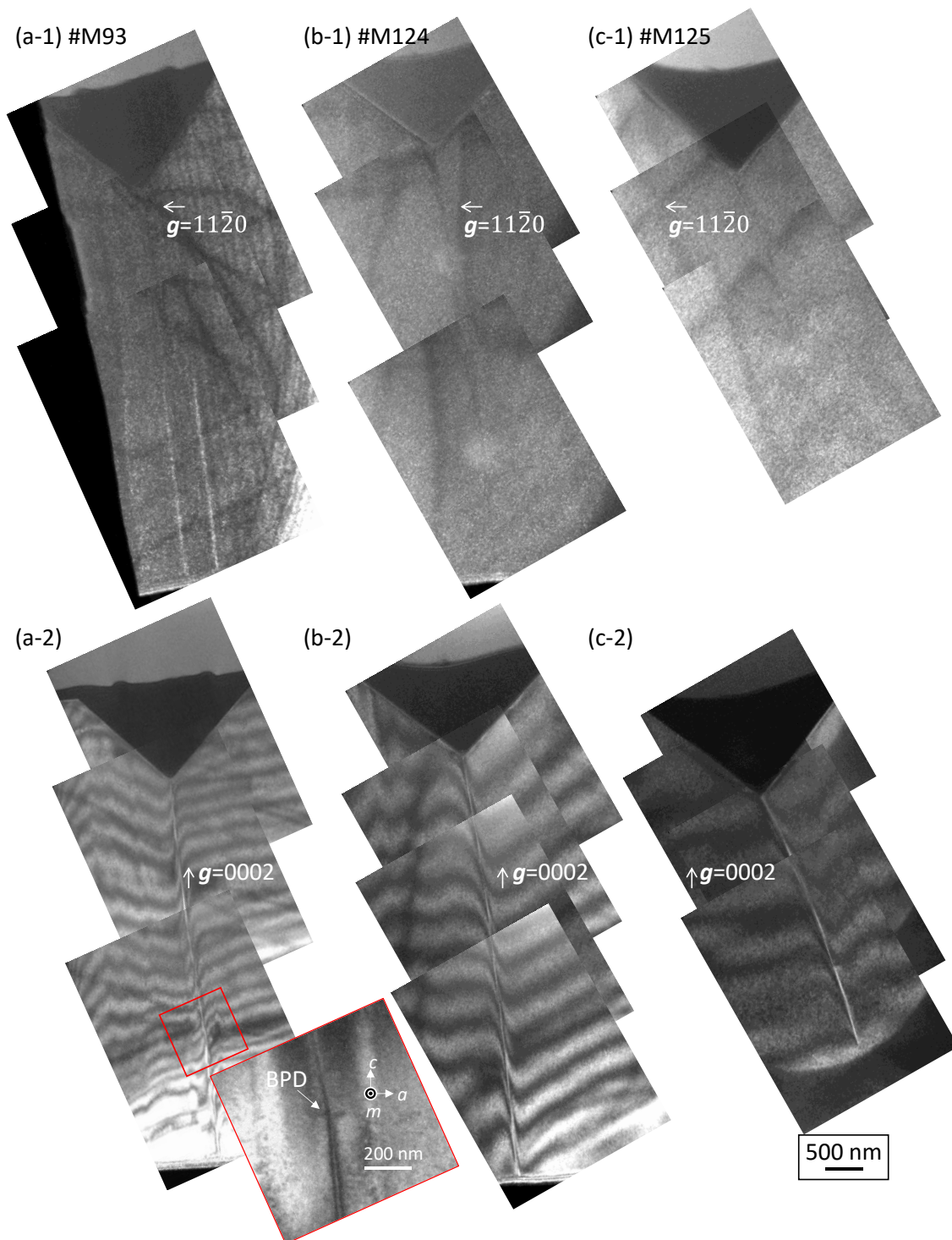


図 6-10 標準的なリーク特性を示した(a-1), (a-2) #M93、(b-1), (b-2) #M124、(c-1), (c-2) #M125 において $g=11\bar{2}0$ (上段) 及び $g=0002$ (下段) で観察された暗視野 TEM 像。(a-2)の挿入図は基底面転位 (BPD) 周囲 (赤線囲み領域) の拡大明視野像 (m 方向晶帯軸入射条件で観察)。

図 6-11(a-1)-(b-2)に、異常に大きなリーク特性を示した#M66 及び#M95 の TEM 観察結果を示す。いずれも、#M66、#M95 とともに、 $g=11\bar{2}0$ (それぞれ図 6-11(a-1)と(b-1)) では転位コントラストが消失し、 $g=0002$ (それぞれ図 6-11(a-2)と(b-2)) でコントラストが確認されることから、らせん転位と判定される。LACBED 解析の結果から、いずれのバーガスベクトルも、標準的リーク特性を示した M ピット(#M93、#M124、#M125)と同様、 $b=1c$ であることが明らかとなった(Appendix の A.4 節に記載)。#M66 直下の貫通転位形態は特異な構造を有していることはなく、#M93、#M124、#M125 と類似した、普遍的な形態であった。一方、#M95 については、いくつか特徴的な構造が見られた。まず、#M93 で見られたような、貫通転位を横切る BPD が存在していた。(図 6-11 (b-4))。また、図 6-11 (b-2)のピット先端で、直線的な貫通転位コントラストが途切れ、特異なコントラストとなっていた(赤破線囲み領域)。図 6-11 (b-4)には、同領域を $g=11\bar{2}0$ で観察した拡大明視野像を示している。これより、ピット直下に、明らかに他のピットで見られた単純な転位とは異なる欠陥が存在することが明らかとなった。観察方位を変えて観察することにより、この特異な欠陥構造の詳細を調査した。図 6-12(a)は m 晶帯軸方位から a 軸中心に 29° 傾斜して観察した、#M95 のピット直下の TEM 像で、図 6-12(b)がその模式図である。ピット直下から直線的に伸びる転位が $b=1c$ の貫通転位で、ピット先端部からややずれた位置を起点に、変則的に曲がりながら伝播するもう一つ別の転位が観察された。図 6-11 (b-2)及び(b-3)より、 $g=0002$ でややコントラストが薄れ、 $g=11\bar{2}0$ で明瞭なコントラストとなることから、この転位は a 成分を持つ転位であると考えられる。

#M95 で見られた、 $1c$ 転位の近傍でもう一つの a 転位が存在するという現象自体、第4章で示した TEM 結果も含めて、Mピット直下の転位では異例である。さらに、 a 転位の伝播形態も非常に変則的である。従って、この a 転位は、結晶成長で伝播してきた転位ではなく、過剰なリーク電流が流れた際に副次的に形成された転位である可能性が高い。つまり、#M95 直下にはもともと $b=1c$ の貫通転位しか存在していなかったが、何らかの原因で大リークが生じた際のエネルギー(例えばジュール熱)によって新たに形成されたと考えられる。SiC-PIN のようなバイポーラデバイスでは、通電時の電子・正孔対の対消滅エネルギーによって基底面転位が拡張し、積層欠陥が新たに形成されることが知られており、順方向特性劣化を引き起こすとして問題視されている¹⁻³。本研究のアプローチ上、ピット先端に存在する転位には周囲よりも過度な電界がかかっている上に、電気伝導も転位を起点として生じていると予想される。metal/GaN や p-

GaN/n-GaN のような二次元的な界面に空乏層が広がる一般的な PND や SBD に比べても、本研究のピット電極構造は転位に対して過度な負荷を与えていると考えられ、それ故に、このような転位形成現象が発現したと推察される。逆に言えば、この結果は、今後デバイスの超高耐圧が進めば、GaN においても SiC のような、転位を起点とした欠陥の拡張現象が生じ得ることを示唆している結果と言える。

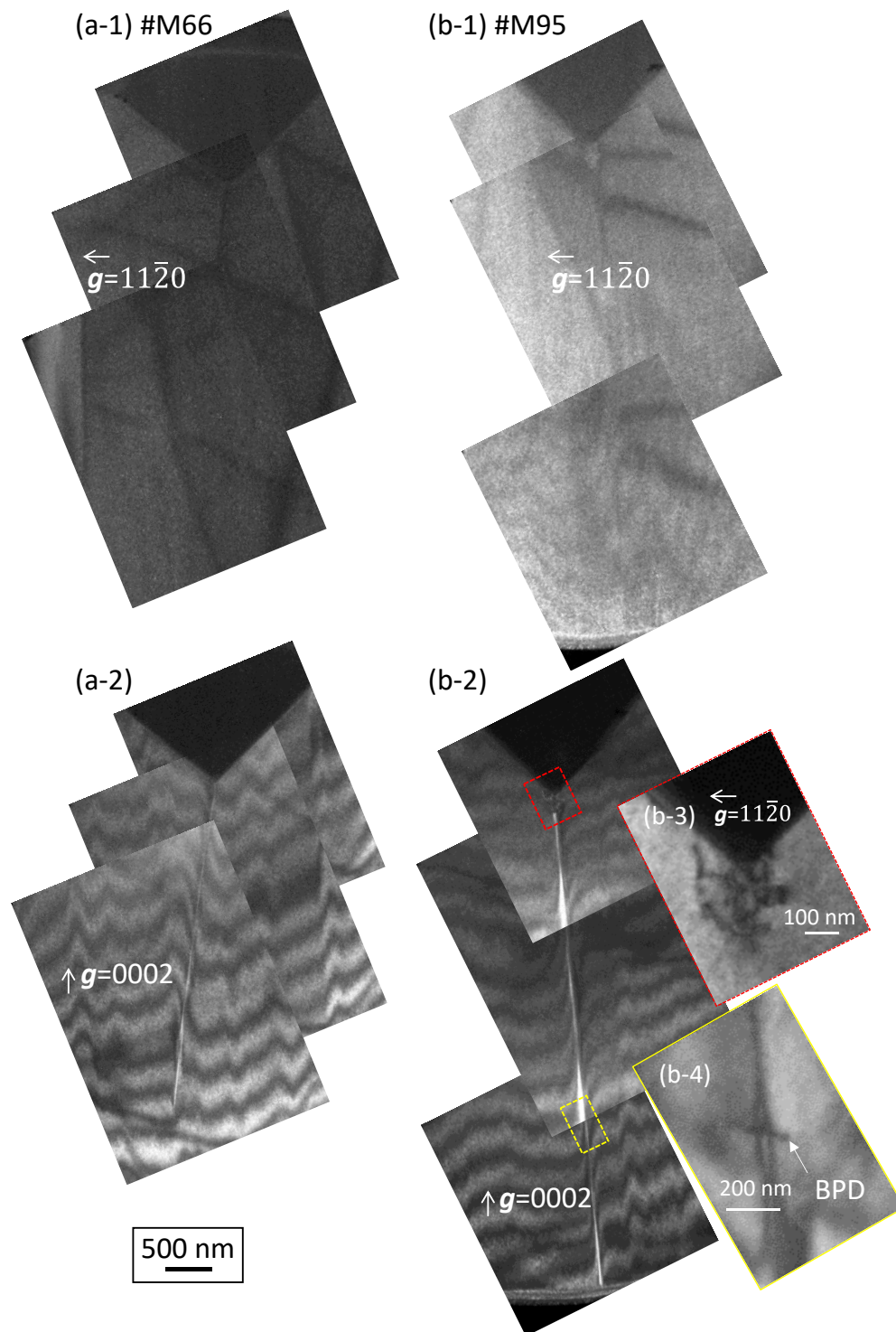


図 6-11 異常に大きなリーク特性を示した(a-1), (a-2) #M66、(b-1), (b-2) #M95 において $g=11\bar{2}0$ (上段) 及び $g=0002$ (下段) で観察された暗視野 TEM 像。(b-3) #M95 ピット直下 (赤破線囲み領域) の拡大明視野像 ($g=11\bar{2}0$ で観察)。(b-4) #M95 の貫通転位を横切る BPD の拡大像 (m 晶帯軸方位から a 軸中心に 30° 傾斜して観察)。

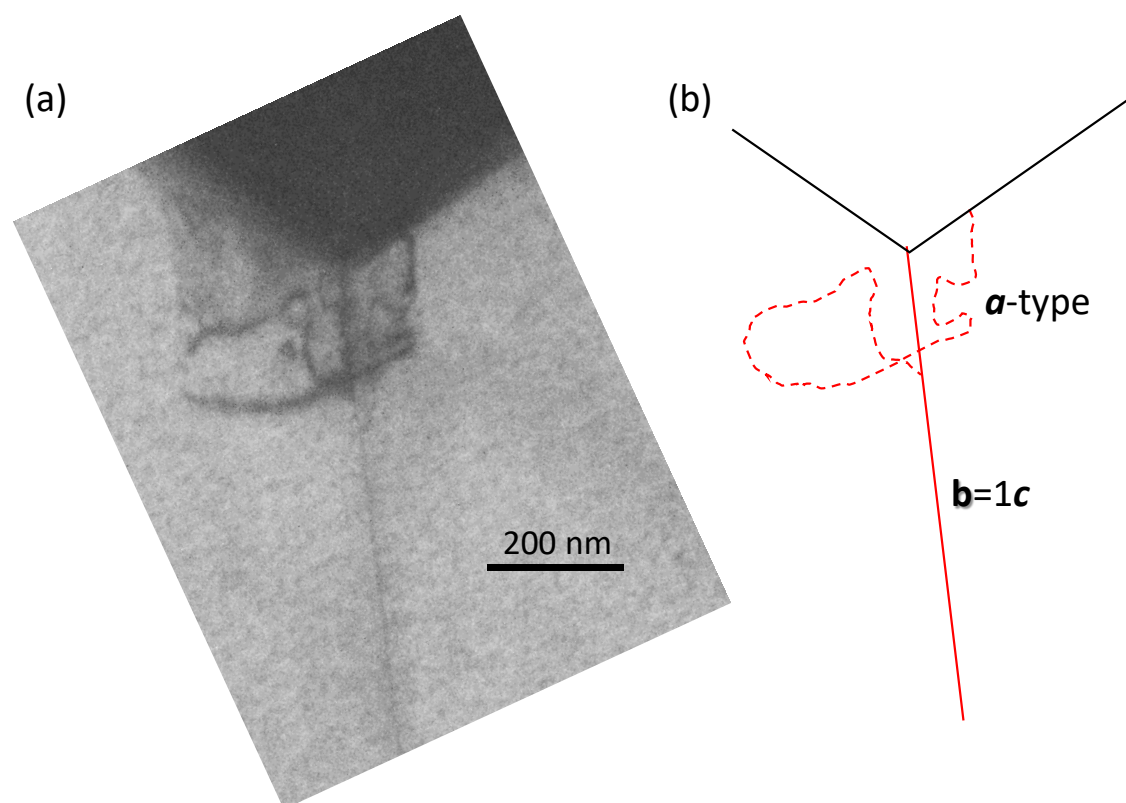


図 6-12 #M95 のピット直下における(a) TEM 像及び(b) 模式図。(a)は m 晶帯軸方位から a 軸中心に 29° 傾斜させて観察された。

6.4. $b=1c$ らせん転位のキラーク陥化メカニズム

ここまでの結果を踏まえると、#M66 は過剰なリーク電流を生じた転位であるものの、そのバーガスベクトルやピット直下での転位形態は、標準的なリーク特性を示した他の M ピット直下の転位と類似しており、本 TEM 解析では顕著な違いを見出すことが出来なかった。#M95 についても、もともと $1c$ 転位だけが存在していたとすると、その形態にも目立った特徴はない。BPD の有無に関しても、異常リーク特性を示した 2 つの M ピットの中でも #M95 にのみ存在し、さらに標準的リーク特性の #M93 にも BPD は見られたことから、リーク特性に大きな影響を及ぼしている可能性は低い。これは、図 6-2(b)において、転位の反応性が $\phi_{b,TE}$ 及びリーク電圧に及ぼす影響はほぼないことを統計的に明示した MPPL データが示す通りである。故に、#M66 で異常なリーク電流が発生した原因は、TEM では観測できない、別の原因に由来すると結論付けられる。

考え得る原因として、点欠陥の取り込みが関与したらせん転位芯における「原子構造の特異変化」が挙げられる。第一原理計算を用いて、らせん転位の芯構造と電子状態の関係性を調査した多くの先行研究で、らせん転位芯の最安定原子構造は結晶成長条件に依って変化し、さらに芯構造に応じてバンドギャップ間の準位も変化することが指摘されている^{4,7}。 $b=1c$ を持つらせん転位の芯構造は、転位線の位置によって single 6-atoms ring core と double 6-atoms ring core に大別される (single 6-atoms ring core: 基底面内の隣り合う 6 つの原子で構成される六角形 1 ユニットの中心に転位線が存在; double 6-atoms ring core: 基底面内の二つの隣り合う六角形ユニットの境界に転位線が存在)⁷。図 6-13(a)-(d)にはそれらの原子構造を球棒モデルで示している⁷。さらに、この転位芯における Ga 原子と N 原子をそれぞれいくつ取り除くかによっても、原子芯構造は異なる。Nakano らは、single 6-atoms ring core と double 6-atoms ring core 及び転位芯における Ga 原子と N 原子の数を様々に変えたらせん転位モデルを構築し、成長条件毎に安定な芯構造と、その構造が有する電子状態を計算している^{4,5}。その結果、N-rich な成長条件下で最安定ならせん転位構造は、伝導帯端よりも低いエネルギー帯に欠陥準位が形成されない一方で、Ga-rich な成長条件下で最安定ならせん転位構造の場合、伝導帯端の下に欠陥準位が形成されることを明らかにしている⁴。また、Belabass らの報告では、転位芯に窒素空孔が取り込まれ、転位芯が Ga のみで構成された non-stoichiometric な構造 (gallium single 6-atoms ring core または gallium double 6-atoms ring core) になると、バンドギャップ間に準位が広く分布し、もはやサブギャップも消失した metallic な電子状態になると指摘されている⁷。

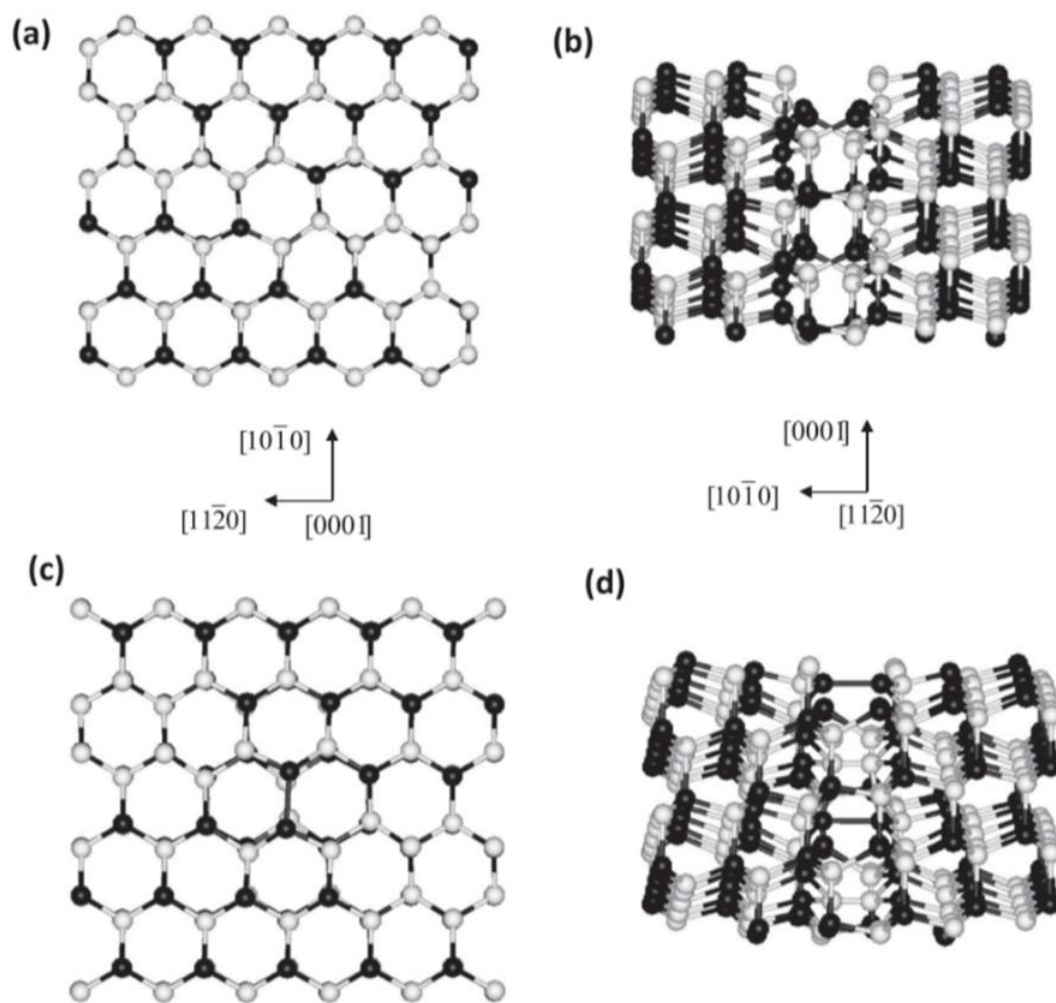


図 6-13 (a), (c) c 方向及び(b), (d) a 方向より投影された、single 6-atoms ring core (上段)と double 6-atoms ring core(下段)を有する $b=1c$ らせん転位芯構造の球棒モデル⁷⁾。

先行研究では、らせん転位の芯構造が結晶成長過程で突発的に変化する現象が実際に観測されている。例えば、Hawkrige らは、サファイヤ基板上 HVPE-GaN 結晶内で、らせん転位の芯構造が非常に短い周期で closed-core と open-core を入れ替えながら c 方向に伝播する様子を TEM で捉えている(図 6-14)⁸。STEM-EELS によって、open-core (すなわちナノパイプ) 側壁への酸素集積が確認されたことを踏まえ、この現象が、成長表面のらせん転位終端部に形成されたピット部分に酸素不純物が過剰に集積することが原因であると推察されている。酸素(O)は、ナノパイプ側壁面 $\{10\bar{1}0\}$ で Ga 空孔(V_{Ga})と複合した、(V_{Ga} -O) complex の形で安定する⁹。closed-core らせん転位終端部ピット部に酸素不純物を取り込まれる過程で、ピット側面に(V_{Ga} -O) complex が形成され open-core (ナノパイプ) 構造が生じるものの、パイプ内側への優先的な酸素取り込みに起因して、一時的かつ局所的に成長最表面 open-core 部分への酸素拡散濃度が減少し、エネルギー的な安定を求めて再度 open-core を閉じて closed-core となる、しかし、その後再び closed-core らせん転位部にピットが形成され再度酸素不純物が集積する、ということが繰り返され、特異な芯構造変化が発現したとされている。Arslan らも、平面 STEM 観察及び EELS 解析により、元々ナノパイプ(側壁には酸素不純物が集積)構造だった転位が、その後の成長で閉じたと考えられるらせん転位(転位芯周辺に残留酸素不純物が検出)を見出している¹⁰。Usami らは、MOVPE 法による GaN 基板上エピ成長膜内で、closed-core らせん転位が、突発的にナノパイプへ変換され、その後安定して c 方向へ伝播している様子を観測している(図 6-15)¹¹。芯構造の変換メカニズムは明らかにされていないものの、結晶中の全てのらせん転位ではなく一部のらせん転位で芯構造変換が発現すること、その変換点(図 6-15 中‘t’で表記)がらせん転位毎に異なること、そして、closed-core らせん転位からナノパイプへの変換率が成長圧力や成長レート(V/III 比)によって変化することが明らかとなっている^{11,12}。これらは、closed-core と open-core 間の変換であり、TEM で明瞭に観測できる構造変化である。closed-core 同士のらせん転位芯構造変化の場合、図 6-13(a)-(d)からも分かるように、 c 軸方向からの平面観察でも、 a 軸(又は m 軸)方向からの断面観察でも、両者の原子配列の違いを明確に区別できないため、closed-core 同士のらせん転位芯構造変化を実際に観測すること自体、困難である。しかし、GaN 結晶において、closed-core と open-core 間の変換がかなり普遍的な現象であること踏まえると、closed-core 同士の芯構造変化も十分生じ得ると言える。実際、Hsu らの研究(Ga-rich 条件下 MBE-GaN)では、断面 TEM 観察よりその可能性が指摘されている¹³。

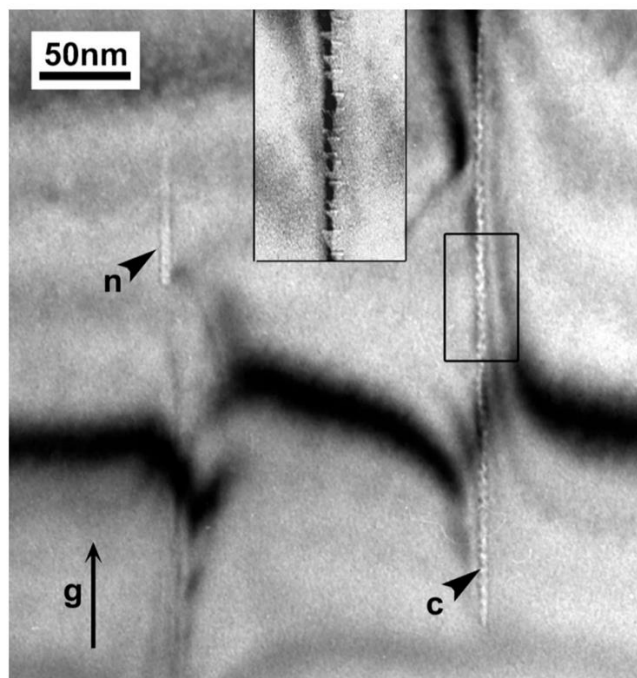


図 6-14 closed-coreと open-coreを入れ替えながら伝播するらせん転位(図中‘c’で示されている)の TEM 像⁸。挿入図の転位芯付近拡大像にて、転位コントラストに沿って多数見られる逆三角形構造が open-core。

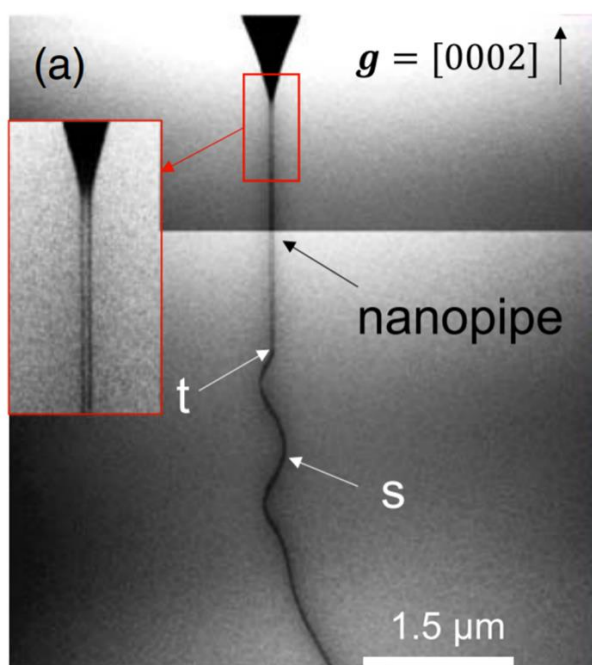


図 6-15 エッチピット直下における貫通転位の断面 STEM 像¹¹。ヘリカルライクな形態で伝播してきた closed-core らせん転位(図中‘s’で示されている)が、‘t’で示された点で突発的にナノパイプへ変換している。

上に挙げた先行研究の結果を踏まえ、本研究で明らかとなった、 $b=1c$ らせん転位の一部が異常大リークを生じる現象について考察する。Nakanoらの報告⁴に基づくと、本章で用いた HVPE-GaN 基板は、らせん転位がバンドギャップ間に欠陥準位を作らないような芯構造が最安定となる条件 (N-rich) で育成されたと考えられる。しかし、極稀に、成長過程で窒素空孔等の点欠陥を過剰に取り込む過程で、例えば Ga-filled core 構造のような、欠陥準位を形成するらせん転位芯構造が例外的に形成されたと推測される。これは、本研究の結果、すなわち、大多数のらせん転位は互いにほとんど同様のリーク特性を示し、さらに #M54 (標準的なリーク特性) のらせん転位では、転位起因のトラップ準位ではなく、貫通転位のない #F07 と同様な点欠陥起因のトラップ準位を有していたことと整合する。一般的に、二元化合物における転位芯の安定構造は各構成元素の化学ポテンシャルに依存するため⁶、このような芯構造の変化は、特定のらせん転位近傍での化学ポテンシャル揺らぎ、すなわち V/III 比や圧力、温度等、結晶成長条件の局所的な変化に起因する可能性が高い¹³。そしてこの変化は、転位周囲のステップ、バンチング、ヒロック分布・密度等の表面モロロジー、並びにこれらステップ等の起源となるらせん／混合転位分布・密度等に由来すると予想される¹⁵。第4章にて、ほぼ全ての $b=1c$ らせん転位が、HVPE 成長下で、その転位芯に多くの点欠陥を取り込み climbしながら蛇行伝播していたことを踏まえると、点欠陥との反応を介しながら転位芯構造を構成するらせん転位の中で、周囲の環境 (成長モロロジー等) が起因して成長条件 (V/III 比、温度、圧力等) が局所的に変化した領域に存在していたらせん転位部分でのみ、本来の成長条件では形成されづらい、欠陥準位を有する特異な芯構造が形成されたと推察される。また、このような転位芯原子構造の変化自体に酸素の様な不純物原子が関与していた可能性や、転位芯構造の特異化に付随して、他のらせん転位よりも過剰に酸素不純物が集積していた可能性も挙げられる^{8,10,16}。酸素不純物が c 成分バーガースベクトルを有する転位だけに集積するといった、酸素集積現象のバーガースベクトル依存性も報告されていることから¹⁶、特異的に転位芯構造が異なる $b=1c$ らせん転位芯部分でのみ、過剰な酸素取り込みや、それに伴う特異な複合欠陥化が起きることも十分考えられ⁹、その複合欠陥に起因した深い欠陥準位が形成された可能性も挙げられる。

このような、らせん転位芯原子構造の特異化メカニズムに立てば、異常なリーク特性を示す転位が $b=1c$ らせん転位でしか発現せず、他の $b=1a+1c$ や $b=1m+1c$ 転位では発現しなかった理由も説明し得る。第4章及び本章の結果より、 $b=1a+1c$ や $b=1m+1c$

の貫通転位は、統計的に見ても各 **b** の転位間で形態の差異はほとんどなかった。従って、仮に転位芯への不純物集積現象が生じていたとしても、その集積度合いや集積様式が転位間で大きく異なるとは考えづらく、一部の転位でのみ突発的かつ特異な転位芯構造変化が生じる可能性は低い。それ故に、これらの貫通転位では、互いにほぼ一様な電気伝導機構、並びにリーク特性を示したと考えられる。対照的に、らせん転位という **climb** 現象が生じやすい性質を有する **b=1c** 転位は、結晶成長過程で容易に点欠陥と反応することができ、さらに実験的にも個々に多様な蛇行周期・振幅、傾斜を有することが示されたことから、その反応様式も個々に異なっていると考えられる。故に、極一部の転位だけに、ショットキー界面の電気特性に致命的な変化をもたらすほどの特異な芯構造変化が生じる可能性は **b=1a+1c** や **b=1m+1c** の貫通転位よりも高いと言え、結果として、**b=1c** らせん転位でしか異常なリーク特性が発現しなかったと推察される。

本章までの結果から導かれる、**b=1c** らせん転位のキラ欠陥化モデルを図 6-16 に示している。ここでは、**b=1c** らせん転位のみにも照準した図を示している。第4章の結果より、HVPE-GaN 層の **b=1c** らせん転位の多くは Na フラックス GaN 基板中のらせん転位を起源とするので、バーガスベクトルの保存則より Na フラックス GaN 中のらせん転位も **b=1c** を有していたと考えられる。HVPE 成長過程で、これらのらせん転位は点欠陥を吸収しながら **climb** 運動をし、蛇行形態で結晶中を伝播する。多くのらせん転位では、成長条件下で最安定な、欠陥準位を有さない芯構造が形成される。しかしながら、極一部のらせん転位において、その近傍のモホロジー等の揺らぎに起因して、他の多数のらせん転位とは異なる成長条件下で結晶成長が進んでしまい、芯構造が欠陥準位を有する特異な構造へと変換される。その後の結晶成長でもこの特異な芯構造が保持され、最終的には結晶表面まで突き抜けた貫通転位となったと考えられる。この結果、転位自体がショットキー界面におけるリーク電流伝導に関与しない、大多数の良性 (**non-killer**) ならせん転位の中に、極少数の割合で、異常に大きなリーク電流を生じる、悪性 (**killer**) らせん転位が存在することになったと考えられる。

1. Adsorption of point defects via the climb process

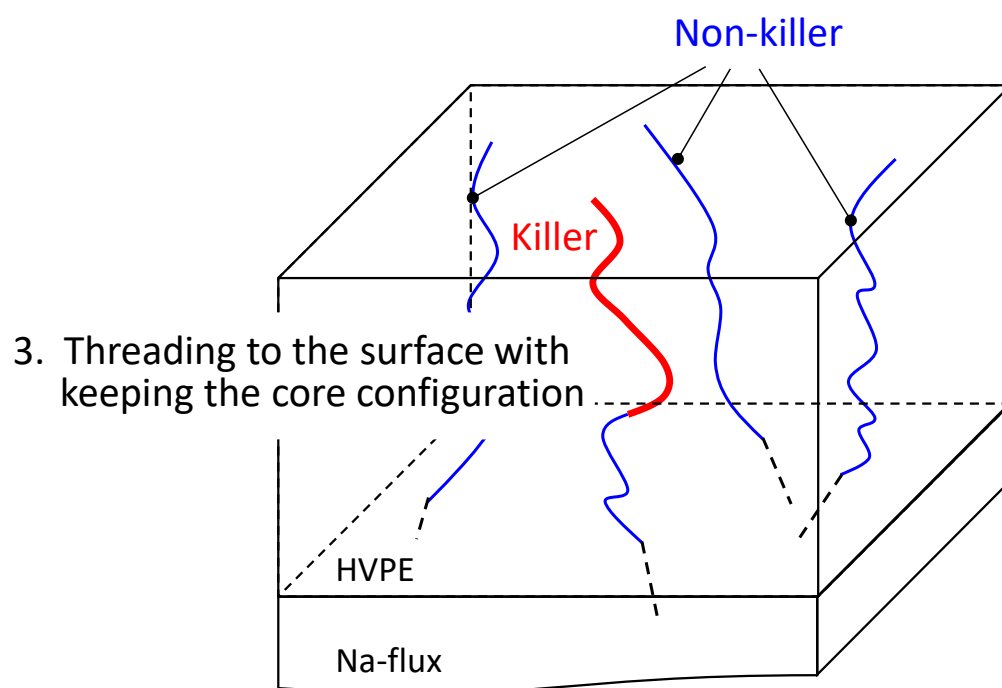
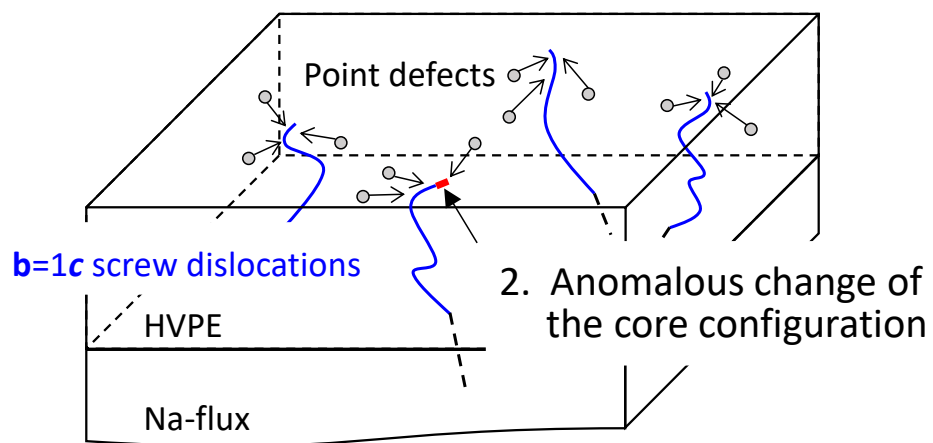


図 6-16 本研究結果より考えられる $b=1c$ 転位のキラー欠陥化モデル。

6.5. 小括

本章では、第 5 章にて電気測定を行ったピット電極直下における、貫通転位の伝播形態や微細構造を MPPL や TEM によって解析し、ショットキー接触における障壁高さやリーク電流度合いとの関連性を探索した。以下に本章で得られた知見を示す。

- 大多数の $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ 、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ 、 $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ を有する転位においては、そのショットキー障壁高さやリーク電流度合いに、転位の傾斜方向・方位、他の転位との反応性、ヘリカル周期やスパイラルの数・回転方向のような、バルク中における伝播形態との相関性はほぼなく、転位自体がショットキー界面での電気特性に及ぼす本質的な影響は転位間で同等である。
- 異常なリーク電流を示した転位は $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ を有するらせん転位であると判明したものの、そのバーガースベクトルやピット直下の形態、並びにバルク中の伝播形態については、他の標準的リーク特性を示したらせん転位と類似していた
- 故に、この $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ らせん転位で異常に大きなリーク電流が生じた原因は、TEM や MPPL で検出できない、点欠陥吸収起因で発現したらせん転位芯構造の特異変化と推察される。

異常なリーク電流を示した転位は $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ を有するらせん転位であったという本研究結果は、Usami らの 2018 年の報告 (EM 法による GaN on GaN PND のリークスポット同定) で見出された結果と合致している¹⁷⁾。しかしながら Usami らの報告では、一部のらせん転位ではなく、デバイス中の全てのらせん転位でリークしており、この点は本研究結果と食い違っている。この違いは、p 層の有無が関連していると推察される。近年の研究により、縦型 PND の p-GaN 中で Mg 不純物が転位に集積し、転位に沿って拡散する現象が確認されている^{5,18)}。第一原理計算により、らせん転位が Mg 原子と複合欠陥化すると、転位の電子状態が変化し、リーク電流パスとなることが示唆されている⁵⁾。本章結果と PND を対象とした先行研究との食い違いの原因の一つに、このような、らせん転位の電子状態変化メカニズムが異なる可能性が挙げられる。また、別の可能性として、EM 評価法に関する原因も挙げられる。EM 法はある一定電圧の下 (Usami らの報告では -550~600 V) でリーク発光が検出されるのか否かを判定するものであり、スポット間でのリーク電流度合いを定量評価することは難しい。Usami らの報告でリーク電流を生じたらせん転位間でも、(本研究で示されたように) 本当は個々のリーク特性

に違いが存在しており、より低い逆電圧で EM 測定をすればらせん転位の中でもリーク量が小さいものも存在していた可能性は否定できない。これを踏まえると、転位毎に定量的な I - V 特性解析を実施して導かれた本研究結果は、EM 法では捉えきれなかった、らせん転位間に存在する電氣的・電子的特性の違いを抽出できている可能性がある。改めて、「GaN 基板中においては、全ての $b=1c$ らせん転位ではなく、極僅かな $b=1c$ らせん転位しかデバイスキラーとはならない」という事実が浮き彫りとなり、GaN バルク結晶成長プロセス分野に対して、必ずしもすべてのらせん転位を排除する必要はなく、この異常ならせん転位の形成割合を減らすことが重要であるということが示された。

従来、転位の電気特性・構造解析アプローチの困難性故に、リークパスとなる転位構造を調査するほとんどの先行研究が転位種以上の議論に踏み込まず、「らせん成分を持つ転位がリークしやすい傾向にある」という結論に留まっていた。そのため GaN パワーデバイス中のキラー欠陥を減らす方策としては、GaN 基板中のらせん成分を有する貫通転位密度を減らすこと、すなわちバルク結晶成長プロセスを軸とした改良方針が長らく謳われてきた。しかし、本研究が示唆する「らせん転位と点欠陥の反応を介した芯構造の特異化がらせん転位の大リーク起源である」という結論は、もはやバルク結晶成長プロセスの改良だけでは不十分であり、デバイス作製プロセスにおける技術革新も不可欠であることを強く示唆するものである。なぜならば、エピ層成膜、エッチング、高温アニール、イオン注入等、結晶内に点欠陥・不純物原子が導入される機会は、バルク結晶成長プロセスよりもデバイス作製プロセスの方が圧倒的に多く、らせん転位がキラー欠陥化する可能性も必然的に高くなると考えられるからである。中でも、エピ成長条件の最適化は特に重要である。パワーデバイスにおいて、高電界がかかりリーク電流が生じる領域であるドリフト層は、ドーピング濃度の自由度の観点から一般的に気相法でエピ成長される。本結果は、たとえ液相成長等で育成した種基板中でらせん転位がリークしなかったとしても、その上の気相法ホモエピ成長過程でリークしやすいらせん転位へと変換される可能性を示しているものでもあり、エピ成長条件がドリフト層中のらせん転位変換に敏感に影響する可能性を示唆している。今後、大リークらせん転位密度やリーク電流伝導機構の気相成長条件依存性を調査する必要がある。

結晶成長過程で窒素空孔や不純物原子の様な点欠陥を過剰に取り込んでしまうのは、らせん転位が任意の方向に交差滑りしやすく、結果的に climb 運動が起きやすいという、らせん転位の構造上避けられない特徴に根差している。らせん転位芯構造の

特異化は、この特徴の上に、転位周辺での局所的な化学ポテンシャル揺らぎ(V/III比や圧力・温度、成長モホロジー等の揺らぎ)が合わさるかたちで発現すると推察されるため、今後、この可能性について、例えば、化学ポテンシャルの安定性が異なると考えられる気相成長と液相成長の両 GaN 結晶を対象に、らせん転位の大リーク発現割合を評価する等の方法で明確にしていく必要がある。また、らせん転位と点欠陥の反応を根本的に抑制・制御していく方針も挙げられる。先行研究では、不純物濃度が高く溶質原子の転位ピンングが生じやすくなる状況下では、climb を介したらせん転位のヘリカル構造化が促進されること²⁰や、アニール処理などの高温下では転位への点欠陥集積が発現しやすい^{21,22}といったような、らせん転位と点欠陥の反応が促進されやすい状況が報告されている。このような過去の知見を踏まえつつ、デバイス作製工程における各種プロセス毎に、結晶成長条件と成長モホロジーの関係や、らせん転位の伝播形態や構造、並びにその電気特性に関するデータが蓄積されていくことにより、プロセス由来のらせん転位のキラ欠陥化も抑制できると考えられる。

参考文献

- ¹ J. P. Bergman, H. Lendenmann, P. A. Nilsson, U. Lindefelt, and P. Skytt, *Mater. Sci. Forum* **353-356**, 299 (2001).
- ² H. Lendenmann, P. Bergman, F. Dahlquist, and C. Hallin, *Mater. Sci. Forum* **433-436**, 901 (2003).
- ³ M. Skowronski and S. Ha, *J. Appl. Phys.* **99**, 011101 (2006).
- ⁴ T. Nakano, K. Chokawa, M. Araidai, K. Shiraishi, A. Oshiyama, A. Kusaba, Y. Kangawa, A. Tanaka, Y. Honda, and H. Amano, *Compound Semiconductor Week*, 1 (2019).
- ⁵ T. Nakano, Y. Harashima, K. Chokawa, K. Shiraishi, A. Oshiyama, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, Y. Honda, and H. Amano, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 012105 (2020).
- ⁶ J. E. Northrup, *Phys. Rev. B* **66**, 045204 (2002).
- ⁷ I. Belabbas, J. Chen, and G. Nouet, *Comput. Mater. Sci.* **90**, 71 (2014).
- ⁸ M. E. Hawkrige and D. Cherns, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 221903 (2005).
- ⁹ R. Jones, J. Elsner, M. Haugk, R. Gutierrez, Th. Frauenheim, M. I. Heggie, S. Oeberg, and P. R. Briddon, *Phys. Status Solidi B* **171**, 167 (1999).
- ¹⁰ I. Arslan and N. D. Browning, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 165501 (2003).
- ¹¹ S. Usami, A. Tanaka, H. Fukushima, Y. Ando, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58** SCCB24 (2019).
- ¹² 宇佐美 茂佳、博士学位論文(2019).
- ¹³ J. W. P. Hsu, M. J. Manfra, S. N. G. Chu, C. H. Chen, L. N. Pfeiffer, and R. J. Molnar, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3980 (2001).
- ¹⁴ H. Fujikura and T. Konno, *Appl. Phys. Lett.* **113**, 152101 (2018).
- ¹⁵ B. Heying, E. J. Tarsa, C. R. Elsass, P. Fini, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *J. Appl. Phys.* **85**, 6470 (1999).
- ¹⁶ P. P. Michałowski, S. Złotnik, and M. Rudziński, *Chem. Commun.* **55**, 11539 (2019).
- ¹⁷ S. Usami, Y. Ando, A. Tanaka, k. Nagamatsu, M. Deki, M. Kushimoto, S. Nitta, Y. Honda, H. Amano, Y. Sugawara, Y-Z. Yao, and Y. Ishikawa, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 182106 (2018).
- ¹⁸ S. Usami, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 232105 (2019).
- ¹⁹ T. Nakano, Y. Harashima, K. Chokawa, K. Shiraishi, A. Oshiyama, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, Y. Honda, and H. Amano, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 012105 (2020).

- ²⁰ T. Iizuka and M. Kikuchi, Jpn. J. Appl. Phys. **7**, 175 (1968).
- ²¹ W. C. Dash, J. Appl. Phys. **31**, 2275 (1960).
- ²² K. Horibuchi, S. Yamaguchi, Y. Kimoto, K. Nishikawa, and T. Kachi, Semicond. Sci. Technol. **31**, 034002 (2016).

第7章 総括

7.1. 本研究で得られた成果

本論文では、GaN パワーデバイスの実用化に向けた最重要課題の一つである、貫通転位における逆方向リーク電流発生メカニズムを解明することを目的とし、単独貫通転位におけるショットキー接触の電気特性を個々に定量計測できる技術を確立した上で、その電気特性と、バーガースベクトルを含む微細構造、伝播形態、周辺の結晶成長様式までを含んだ多角的かつマルチスケールな転位構造を対応付けた評価を行った。本研究では、デバイス基板となる GaN バルク結晶に着目し、特に、高品質 GaN バルク結晶成長手法として期待される Na フラックス法で育成された、Na フラックス GaN 基板、及びその発展技術として期待される HVPE on Na フラックスのハイブリッド GaN 基板を評価対象とした。異なる結晶成長手法で育成された GaN バルク結晶毎にリークしやすい転位を見出し、その構造的及び電気的特性から、リーク電流伝導機構やその起源を解析することにより、転位でリーク電流が生じる本質的メカニズムを探索した。以下に、本研究で得られた成果を章毎にまとめる。

第2章 貫通転位の包括的物性アプローチの構築

エッチピットと FIB を併用した微小ショットキー接触作製アプローチを構築し、単独貫通転位部ショットキー接触の電気特性を定量計測できる新しい技術を開発した。これを基軸として、エッチピット法、MPPL 法、TEM 法を有機的に併用し、転位のショットキー接触における電気特性、微細構造、伝播形態、転位周辺結晶成長様式を多角的に解析する包括的なアプローチを構築し、続く第3章から第6章までの研究基盤を確立した。

第3章 結晶成長様式が貫通転位の電気特性に及ぼす影響

MPS 法によって Na フラックス成長させた MPSC-GaN バルク結晶と、MPS 法と FFC 法を併用して育成した FFC-GaN を対象に、不均一な結晶成長様式が転位伝播形態

や転位構造、並びにショットキー界面のリーク特性に及ぼす影響を調査した。*c*GS と FGS という顕著に異なる結晶領域を有する MPS を調査した結果、貫通転位直上ショットキー接触におけるリーク電流度合いが、酸素不純物の存在に強く依存することが明らかとなった。この結果により、転位のリーク現象について、主に転位の種類との相関関係に議論が留まっていた従来の議論を打破し、転位周辺における結晶の成長履歴もまた転位部分で生じるリーク電流特性に影響することを示した。

FFC-GaN においては、*c*GS のみで構成されていると思われていた結晶に過剰な酸素不純物濃度を有する μ -FGS が局在することを明らかにし、転位のリーク電流を増大させることを見出した。 μ -FGS の転位の中では、束状の転位や、 $\mathbf{b}=2\mathbf{a}+1\mathbf{c}$ という大きなバーガースベクトルを有する特異転位でリーク電流が特に大きいことが明らかとなり、ピットサイズとリーク量の相関関係から、転位の歪場が不純物集積を促進させるメカニズムで、転位部でのリーク量が増大することが示唆された。さらに、これら特異転位が、転位の集合・合体を促進する μ -FGS の存在により高頻度で形成されていることを明らかにし、Na フラックス成長過程で突発的に生じる μ -FGS の完全制御または FFC-GaN 上のホモエピに依る μ -FGS 成長の継承抑止が更なる基板高品質化がカギとなることを示した。これら Na フラックス GaN の研究結果より、転位を起源とするリーク現象を解き明かす上では、結晶の成長履歴やそれに伴う転位の伝播形態にも注目すべきであることが提示された。

この知見を踏まえ、続く第4章以降の HVPE on Na フラックスハイブリッド基板を対象とした研究では、転位部ショットキー接触の電気特性評価に先立ち、まず GaN 結晶成長モホロジーやそれを反映した転位の伝播形態や微細構造の関連性を系統的に調査した。これより、HVPE 基板の結晶成長様式や転位伝播形態の高い均一性が明らかとなり、第5章及び第6章において、周辺結晶成長履歴の影響が極力排除された、転位形態・微細構造に応じた転位自体の本質的なショットキー特性への影響を評価するに至った。

第4章 HVPE-GaN バルク結晶における転位の伝播挙動

HVPE on Na フラックスハイブリッド基板、及びサファイヤを種基板とした市販 HVPE 基板を対象に、エッチピット法、TEM、MPPL による統計的かつ定量的な評価を実施

することで、GaN バルク結晶における、転位のバーガースベクトルと伝播挙動の関連性を調査した。KOH+NaOH によるエッチピット形状と転位のバーガースベクトルの間に明確な一対一対応関係が存在することを明らかにし、統計解析基盤となるピットサイズとバーガースベクトルの確固たるデータベースを構築した。その上で、GaN 結晶において報告例のない極めて珍しい $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ というバーガースベクトルを持つ転位が、種基板の違いに依らず一定の割合で存在することを実証し、これを含む大多数の貫通転位がバーガースベクトルに依存したような伝播形態を有することを明らかにした。特に、GaN 基板に存在する貫通転位の約 99%を占める 3 つのバーガースベクトル ($\mathbf{b}=\mathbf{1a}$, $\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$, $\mathbf{1c}$) を有する貫通転位に関して、それぞれ結晶成長モロロジーと点欠陥の影響を強く受けたメカニズムでバルク結晶成長していることを実験・理論の両観点から明らかにした。最後に、ハイブリッド基板中のヒロックの起源、並びに貫通転位の起源をバーガースベクトル毎に明らかにし、ハイブリッド基板の更なる高品質化に向けた、貫通転位の抑制指針を提示した。

これらの系統的調査によって、GaN バルク結晶中の貫通転位における「エッチピットサイズ・伝播形態・バーガースベクトル」が初めて紐づけられた。この知見は、エッチピット法や MPPL 法による非破壊・簡易的な転位種識別のための実用的なデータ基盤となると考えられる。この転位識別技術の進展は、GaN バルク結晶成長プロセスやデバイス開発プロセス工程におけるキラ欠陥抑制技術開発に直結する技術であり、これによって、GaN パワーデバイスの更なる高性能化・高信頼化が期待できる。

第4章で明らかとなった、ハイブリッド基板における「ピットサイズ・バーガースベクトルの一対一対応関係」と「結晶成長様式並びに転位伝播形態の均一性」によって、「所望のバーガースベクトルを有する貫通転位に照準したショットキー接触形成」と、「その電気伝導に影響し得る周辺の不均一な不純物分布の影響が極力排除された電気特性解析」が可能となった。これにより、続く第5章と第6章では、異なるバーガースベクトル毎に多数の貫通転位でショットキー接触の電気特性やその温度依存特性を計測し、統計的かつ定量的に解析することで、バーガースベクトルや伝播形態に応じた転位の本質的なショットキー接触の電気伝導機構への影響度合いを議論することが可能となった。

第5章 ハイブリッド基板の単独貫通転位における電気伝導機構

結晶成長様式が一樣な HVPE/Na フラックスハイブリッド基板を対象に、貫通転位部ピット電極と flat 電極において室温 I - V 測定及び I - V - T 測定を行い、ピット形状に由来した電界集中等を考慮した精密且つ定量的な解析を実施することで、flat 電極並びにピット電極部のショットキー接触における電気伝導機構を解析した。その結果、バーガースベクトルに c 成分を有する大多数の貫通転位においては、順方向及び逆方向の電気伝導機構がバーガースベクトルの違いに依らず flat 電極と同様であり、特にリーク電流に関しては、もはや転位ではなく点欠陥を介した電気伝導メカニズムで生じていることが示された。ピット電極と flat 電極間で見られたショットキー障壁高さの違いも、ショットキー接触面方位の差異という外在的因子に由来する可能性が高いことが示された。これらを踏まえて、大多数の貫通転位はバーガースベクトルに依らずショットキー接触の障壁高さや電気伝導機構のような電気的特性にほとんど影響しないという結論が導かれた。一方で、全 M ピットの 4.5% (全エッチピットの 0.14 %) にあたる極少数の M ピット起源の貫通転位でのみ異常に大きなリーク電流が生じることが示された。この異常な転位では、上記の標準リークのピット電極よりもやや深い (貫通転位自身に由来している可能性の高い) トラップ準位を介したトンネル電流が関与する電気伝導メカニズムで、順・逆方向電流が生じていることが明らかとなった。

これらの結果により、実デバイスを用いた従来の研究で予想されていた、「マクロなデバイスリークが一部の貫通転位に起因した欠陥準位を介して生じている」というモデルを裏付ける決定的なデータが示されたと共に、バーガースベクトルに c 成分を有する大多数の貫通転位については、ショットキー障壁高さの低下やリーク電流の増大に寄与する可能性は低い、という GaN パワーデバイス分野にとってポジティブな知見が示された。異常な大リーク電流を生じた一部の M ピット貫通転位は、デバイス製造工程における歩留まり低下要因となるキラ欠陥として振る舞う可能性も示唆され、この異質な転位の発現メカニズムを解明し、それを抑制することが重要であると結論付けた。

これを踏まえ第6章では、特に、異質な M ピット貫通転位に特有の構造的特徴を明らかにすべく、幾つかの貫通転位の構造・伝播形態を解析すると共に、第5章で見られた、同一バーガースベクトルの貫通転位内でのショットキー特性ばらつきと転位伝播形態との相関性を調査するに至った。

第6章 貫通転位の伝播形態及び微細構造と電気特性の関係

第5章にて電気測定を行った HVPE/Na フラックスハイブリッド基板のピット電極直下における、貫通転位の伝播形態や微細構造を MPPL や TEM によって解析し、ショットキー接触の電気特性との関連性を探索した。5章では、 $\mathbf{b}=\mathbf{1a}+\mathbf{1c}$ 、 $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ 、 $\mathbf{b}=\mathbf{1m}+\mathbf{1c}$ の各バーガースベクトルを有する貫通転位間で、そのショットキー障壁高さやリーク電流度合いにある程度のばらつきが見られた。しかし、これら電気特性と転位伝播形態との間には相関性はほぼないことが統計的に示され、改めて、異常リークを示す転位を除く大多数の貫通転位については、その存在自体がショットキー接触の電気特性に及ぼす影響が小さいことが明らかとなった。一方で、異常なリーク電流を示した転位は $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ を有するらせん転位と判明したものの、そのバーガースベクトルやピット直下における形態については、他の標準的なリーク特性を示したらせん転位と類似しており、特に特徴的な構造は見出されなかった。故に、この $\mathbf{b}=\mathbf{1c}$ らせん転位で異常に大きなリーク電流が生じた原因は、TEM や MPPL で検出できない、点欠陥吸収過程で発現した転位芯構造の特異変化やそれに付随した不純物原子の集積と推察した。

先行研究も踏まえると、極一部のらせん転位でのみ芯構造が特異化する現象は、「climb運動しやすいらせん転位特有の性質」と「結晶成長条件や成長モホロジー等の局所的な揺らぎ」が重畳した結果生じたと考えられる。これより、らせん転位のトータル密度を低減することに加え、結晶成長過程における局所的な成長条件揺らぎを抑制すること、プロセス毎にらせん転位と点欠陥の反応を制御することが重要であることが示唆された。バルク結晶成長プロセスとデバイス作製プロセス両分野での欠陥制御技術の発展が、キラー欠陥の根絶、引いては、GaN パワーデバイスの社会実装実現へのカギであると結論付けた。

7.2. 残された課題と今後の展望

最後に、本研究結果を踏まえた今後の課題、展望について述べる。

GaN バルク結晶における貫通転位密度の低減

第4章から第6章のハイブリッド基板の結果を踏まえ、GaN パワーデバイス実用化を果たす上で達成すべき GaN 基板中貫通転位密度の低減目標値を試算し、バルク結晶成長分野における課題を提示したい。全貫通転位密度に対する異常 **b=1c** らせん転位の存在比率を第5章の推定値(0.14%)で固定した場合(すなわち、キラ欠陥が全貫通転位密度に依らず常に 0.14%の比率で存在すると仮定した場合)、デバイス製造歩留まりを 90%とするためには全体の貫通転位密度をどれほどにまで抑制する必要があるのか、その値をポアソン分布($Yield = \exp(-DA)$ 、第5章小括参照)に基づき算定することが出来る。図 7-1 は、異常な大リークを示した **b=1c** 転位のキラ欠陥が全貫通転位密度の内 0.14%の割合で存在すると仮定した場合に、各歩留まりを達成するために要求される全貫通転位密度のデバイスサイズ依存性を示している。この結果から、第5章小括と同様、車載用想定で 2 mm²チップパワーデバイスの作製歩留まり 90 %を達成するためには、全貫通転位密度を $1.88 \times 10^3 \text{ cm}^{-2}$ にまで減らさなければならないことが分かる。すなわち、現状の GaN ウェハで約 10^{4-6} cm^{-2} の密度で存在する貫通転位を、SiC ウェハ並みの密度まで低減することができれば、このようなキラ欠陥を含んでいても、商用化可能な歩留まりを達成できる。

全貫通転位の内 **b=1c** らせん転位の「存在比率」を低減する方針に関しても目標値を示したい。図 7-2 は、異常なリークを示した **b=1c** らせん転位が全 **b=1c** らせん転位の内 2/45 の割合で存在すると仮定した場合に、歩留まり 90%を達成するために要求される、全貫通転位に対する **b=1c** らせん転位の存在比率のデバイスサイズ依存性である。全転位密度が低くなれば、歩留まり 90%を達成するために要求されるらせん転位の存在比率はある程度高くても許容されることがわかる。仮に、GaN ウェハ中の全貫通転位密度が 10^5 cm^{-2} (現状のハイブリッド基板平均値程度、市販 HVPE ウェハの密度が約 1 桁低減された程度)と仮定した場合、2 mm²チップ想定で、全貫通転位の内らせん転位の割合を 0.06 %、密度換算で約 60 cm^{-2} にまで低減できれば、たとえキラ欠陥となる **b=1c** らせん転位が 2/45 の割合で含まれていたとしても、歩留まり 90%を達成できる(参考までに、第4章で用いた市販 HVPE ウェハと第4章から本章で用いたハイブリッド基板におけるらせん転位の存在比率は、それぞれ 1%と 3%であった

(第4章参照))。これらの推定目標値を踏まえると、GaNパワーデバイスの実用化を目指す上では、らせん転位存在比率を現状(数%程度)よりも増やすことなく、全貫通転位密度をSiCウェハと同程度の 10^3 cm^{-2} 台にまで抑制し、かつその面内分布を面内で一様にする方策が現実的な技術開発方針であると考えられる。近年では、GaNバルク結晶成長方法として Oxide vapor phase epitaxy (OVPE) 法という新しい技術も考案されており、新興技術ながらも、既に貫通転位密度が 10^4 cm^{-2} 台にまで抑制された2インチ基板が実現されている^{1,2}。また、ハイブリッド基板に関しても、HVPE/Naフラックスのハイブリッド基板以外に、HVPE/AmmonothermalやAmmonothermal/Naフラックス等のハイブリッドGaN基板開発も実証・検討されている³。このような新規技術と従来技術の継続的な研究開発の末に、ブレークスルーとなるような革新的なGaNバルク結晶成長技術が実現されれば、上記の目標も達成されることが考えられる。

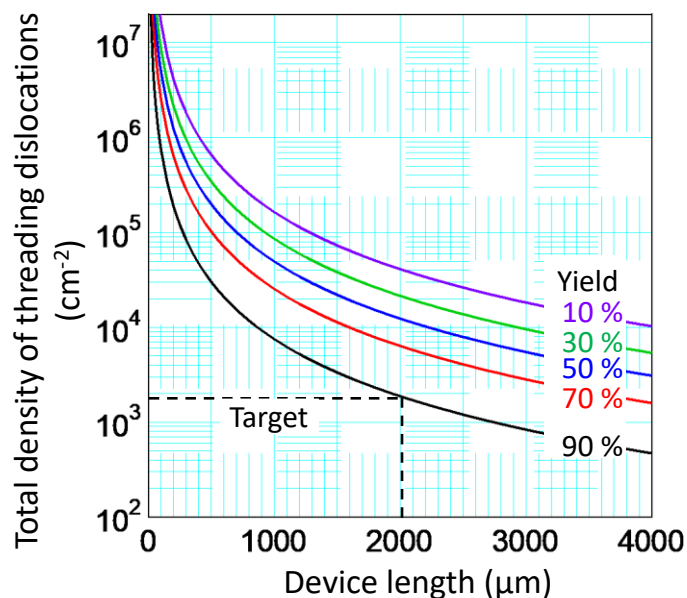


図 7-1 キラー欠陥(異常なリークを示した $b=1c$ 転位)が全貫通転位密度の内 0.14%の割合で存在すると仮定した場合に、各歩留まりを達成するために要求される全貫通転位密度のデバイスサイズ依存性。破線は車載用チップ(2 mm□、歩留まり 90%)を想定した場合の全貫通転位密度の目標値を示す。

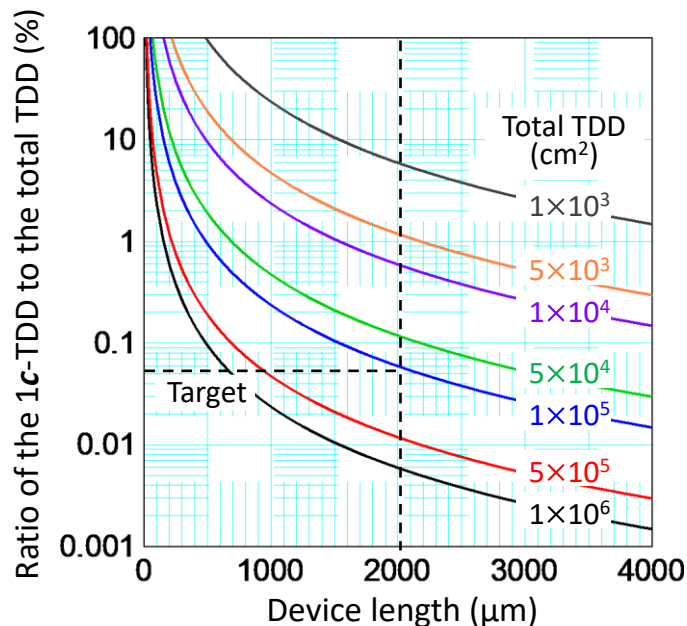


図 7-2 キラー欠陥(異常なリークを示した $b=1c$ 転位)が全 $b=1c$ らせん転位密度の内 2/45 の割合で存在すると仮定した場合に、歩留まり 90%を達成するために要求される、全貫通転位密度に対する全 $b=1c$ らせん転位密度比率のデバイスサイズ依存性。破線は車載用チップ(2 mm□)を想定した場合の目標比率を示す。(TDD: threading dislocation density)

貫通転位のキラーク陥化を決定付ける真因の追求

本研究では、結晶成長様式の不均一性と、それに起因した高濃度不純物領域における転位構造の束状化や大きなバーガースベクトル形成がショットキー接触における過剰リーク電流の要因となることを明示できた。しかしながら、結晶全体で比較的一様な様式で成長したハイブリッド GaN 結晶においては、大リーク電流を生じたらせん転位と小リークらせん転位間で明確な構造的差異を見出すことが出来なかった。「らせん転位の芯構造特異化」をらせん転位の大リーク発生原因として提示したが、今後は、この仮説を裏付けていく必要がある。らせん転位芯原子構造の変異は、計測すること自体が挑戦的となる物理現象であるが、例えば、転位芯近傍の STEM-EELS による価電子状態の解析⁴、3次元アトムプローブによる不純物集積の可視化^{5,6}等が、有意な知見を得られる可能性の高い直接的な解析手法である。また、間接的解析にはなるが、芯構造の特異化を局所的な歪分布の変化として捉えられる可能性があり、これにはナノビーム X 線回折法 (nanoXRD)⁷が有効と考えられる。

また、らせん転位芯の突発的な変化は、結晶成長過程での局所的な化学ポテンシャルの揺らぎ、すなわち、V/III 比や圧力、温度等成長条件の局所的な変化に起因すると推察された。これについても、例えば、化学ポテンシャルの安定性が異なると考えられる気相成長と液相成長の両 GaN 結晶を対象に、大リークらせん転位の発現割合を調査する等の方策で明らかにしていく必要がある。

GaN パワーデバイス開発プロセスへのキラーク陥抑制技術開発指針の提示

本研究アプローチにより見出された異常貫通転位が、実デバイス特性に対してどれほど影響を与えるのか、というデータをデバイス分野に明示することも重要な課題の一つである。例えば、SBD や PND の様な実デバイスに対して電気測定と EM 測定を行い、デバイスの電気伝導機構とキラークとなる貫通転位を特定した後、本アプローチにより同一キラーク陥の電気伝導を解析すれば、デバイス特性に及ぼすキラーク陥の影響度を定量的に評価することができる。逆に、先に本アプローチを GaN 基板(又はエピ層)に適用して異常貫通転位のショットキー接触電気特性・分布を把握した後に、同転位を含む領域で実デバイスの作製・電気測定・EM 測定を行い、異常貫通転位の影響度を評価するアプローチも挙げられる。このような実験により、実デバイスが、そのデバイス特性や信頼性の観点から許容できる異常貫通転位のリーク度合い・密度等に

関して具体的な指標が提示されれば、これはデバイス分野にとって実用的なフィードバックとなる。

また、本研究では、特にショットキー接触の障壁高さやリーク電流のような逆方向特性に対する貫通転位の影響を中心に調査したが、一方で、貫通転位は大電流が流れる通電時のオン抵抗特性や耐久性にも影響し得る⁸⁻¹⁰。本論文で構築した単独転位の電気測定アプローチは、エッチピットに埋める金属を Ti や Al のような仕事関数の低い材料に代替することで、コンタクト抵抗を極力抑えた、単独貫通転位部に対するオーミックライクな接触をも形成できる強みを有している。これにより、一つ一つの貫通転位を分離し、個々の転位における電気伝導特性を効果的に評価することができる。転位線に沿った電気伝導メカニズムや、後述する転位の通電ストレス耐性の転位構造依存性等を解析することで、デバイス通電時の電気特性に致命的な影響を及ぼす転位構造も同定できれば、デバイスプロセスへのフィードバックとなる。

らせん転位の点欠陥吸収と局所的な成長条件揺らぎが、らせん転位のキラ欠陥化メカニズムであることが示唆された本研究結論を踏まえると、バルク成長、エピ成長、イオン注入・エッチング・アニールの様な GaN パワーデバイス作製工程における主要なプロセス毎に、本研究アプローチを適用し、素子特性に及ぼす貫通転位の影響やキラ欠陥となる貫通転位の特徴を体系化することも重要な課題である。例えば、バルク結晶成長プロセスであれば、本研究では Na フラックス GaN バルク結晶や HVPE-GaN バルク結晶を対象としたが、他にも ammonothermal 法や OVPE 法によるバルク基板、HVPE/ammonothermal や ammonothermal/Na フラックス等のハイブリッド基板等がある。これら成長様式が異なる種々のバルク結晶を対象として、キラ欠陥の面内分布・密度と、周囲の貫通転位密度・分布や成長モロロジー等との間に相関が見出すことで、バルク結晶成長条件を最適化できる。エピ成長やその他のプロセスに関しても、プロセス毎にキラ欠陥化メカニズムを理解し最適なキラ欠陥抑制技術が見出されれば、GaN パワーデバイスの社会実装に大きく近づける。

「単独貫通転位の電気特性評価技術」の応用展開

本研究で構築した「単独貫通転位の電気特性評価技術」についての今後の展望も述べたい。本技術の発展は大きく二つの道があると考ええる。一つ目が、同じ用途で他

材料・デバイスへ展開する道である。本技術は、原理上、ウェットエッチングにより貫通転位箇所のエッチピットさえ形成できればいずれの材料にも適用できる、非常に汎用性の高い技術である。例えば、パワーデバイス分野では、近年、GaN や SiC に継ぐ次々世代ワイドバンドギャップ半導体材料として、酸化ガリウムやダイヤモンドが注目されており、いずれも貫通転位起源のリーク電流が問題視されている¹¹⁻¹³。これらの材料に対して本アプローチを適用すれば、各材料における貫通転位自体のリーク特性、さらには材料を跨いだ貫通転位リークメカニズムの統一的な議論も可能となる。また、同アプローチを PND や PIN のようなバイポーラデバイスに直接適用することも原理上可能である。空乏層が広がる領域やドーピング濃度等、いくつかの条件を考慮する必要があるが、デバイスプロセスにとって有用な知見が得られるであろう。

二つ目が、本技術を他の評価技術と組合せて、新規的な欠陥評価ツールとして発展させる道である。一例として、単一貫通転位の電氣的ストレス耐久性評価ツールが挙げられる。スイッチオン・オフ時にそれぞれ大電流・大電圧に曝されるパワーデバイスには、電氣的ストレスに対する高い耐久性が求められる。しかしながら、序論で述べたように、SiC バイポーラデバイスではスイッチオン時の大電流ストレスにより、素子内の基底面転位を起点として積層欠陥が拡張してしまい、電気特性が劣化することが大きな問題とされている¹⁴⁻¹⁶。GaNにおいても、最近、大電流ストレスで PND の順方向電気特性が劣化する現象が報告された¹⁰。詳細なメカニズムは不明であるものの、この劣化現象に貫通転位が関与する可能性が示唆されている。エッチピット部電極の先鋭形状上、貫通転位に対して高い電氣的負荷を与えることが出来る本電気測定技術は、このような転位起因の電気特性劣化現象解明に向けた、新たな転位の電氣的ストレス耐久性評価ツールとして応用することが出来る。この評価基盤は、例えば、本アプローチと nanoXRD 法の組み合わせにより実現し得る。近年、GaN-HEMT における逆圧電効果起因の欠陥誘発メカニズム探索のために、ポンププローブ法を併用した nanoXRD 法によって、デバイス動作下での時分割格子変形測定が試みられている¹⁷。単独転位で電気測定しながら nanoXRD オペランド格子歪測定を実施することで、リーク電流に付随して生じ得る転位周辺結晶領域の局所格子変形や、大電流・大電圧ストレスによる動的な欠陥拡張メカニズムを追求できる。この際、上述のようにエッチピット部に低仕事関数の金属を蒸着してコンタクト抵抗を低減すれば、転位部分に効果的に大電流を流すことができる。また、欠陥拡張・生成メカニズム調査の更なる発展版として、in-situ TEMとの組合せも革新的である。破壊測定となるため挑戦的ではあるが、

第7章 総括

電極を埋め込んだエッチピット及び転位を含む薄片 TEM 素子を作製し、電圧掃引しながら in-situ TEM を実施することにより、過度な電氣的ストレス状況下で生じ得る転位の拡張や、本論文第 6 章で見られたような新たな欠陥導入メカニズムも原子レベルで解明できる可能性を秘めている。

GaN、並びに種々のパワー半導体は、今なお発展途上である。このような研究が継続されることで、パワーデバイスにおけるキラーク欠陥発生メカニズムの核心が解明されること、そしてこれに留まらず、多様な新規材料において欠陥がもたらす種々の現象が解き明かされ、材料品質やデバイス特性が益々発展することを期待する。これらの研究の末に、地球と人類が共生できる社会が築かれ、次世代の人々が永遠に幸せであり続けられる世界となることを切に願い、本論文の結びとする。

参考文献

- ¹ J. Takino, T. Sumi, Y. Okayama, M. Nobuoka, A. Kitamoto, M. Imanishi, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SC1043 (2019).
- ² J. Takino, T. Sumi, Y. Okayama, A. Kitamoto, M. Imanishi, M. Yoshimura, N. Asai, H. Ohta, T. Mishima, and Y. Mori, *Appl. Phys. Express* **13**, 071010 (2020).
- ³ M. Bockowski, M. Iwinska, M. Amilusik, M. Fijalkowski, B. Lucznik, and T. Sochacki, *Semicond. Sci. Technol.* **31**, 093002 (2016).
- ⁴ I. Arslan and N. D. Browning, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 165501 (2003).
- ⁵ S. Usami, N. Mayama, K. Toda, A. Tanaka, M. Deki, S. Nitta, Y. Honda, and H. Amano, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 232105 (2019).
- ⁶ B. Mitchell, D. Timmerman, W. Zhu, J. Y. Lin, H. X. Jiang, J. Poplawsky, R. Ishii, Y. Kawakami, V. Dierolf, J. Tatebayashi, S. Ichikawa, and Y. Fujiwara, *J. Appl. Phys.* **127**, 013102 (2020).
- ⁷ K. Shida, S. Takeuchi, T. Tohei, Y. Imai, S. Kimura, A. Schulze, M. Caymax, and A. Sakai, *Semicond. Sci. Technol.* **33**, 123005 (2018).
- ⁸ H. Ohta, N. Asai, F. Horikiri, Y. Narita, T. Yoshida, and T. Mishima, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, 106503 (2020).
- ⁹ Y. Zhang, A. Dadgar, and T. Palacios, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51**, 273001 (2018).
- ¹⁰ T. Narita, Y. Nagasato, M. Kanechika, T. Kondo, T. Uesugi, K. Tomita, S. Ikeda, S. Yamaguchi, Y. Kimoto, M. Kosaki, T. Oka, J. Kojima, and J. Suda, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 253501 (2021).
- ¹¹ M. Kasu, K. Hanada, T. Moribayashi, A. Hashiguchi, T. Oshima, T. Oishi, K. Koshi, K. Sasaki, A. Kuramata, and O. Ueda, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 1202BB (2016).
- ¹² H. Umezawa, N. Tatsumi, Y. Kato, and S. Shikata, *Diam. Relat. Mater.* **40**, 56 (2013).
- ¹³ N. Akashi, N. Fujimaki, and S. Shikata, *Diam. Relat. Mater.* **109**, 108024 (2020).
- ¹⁴ J. P. Bergman, H. Lendenmann, P. A. Nilsson, U. Lindefelt, and P. Skytt, *Mater. Sci. Forum* **353-356**, 299 (2001).
- ¹⁵ H. Lendenmann, P. Bergman, F. Dahlquist, and C. Hallin, *Mater. Sci. Forum* **433-436**, 901 (2003).
- ¹⁶ M. Skowronski and S. Ha, *J. Appl. Phys.* **99**, 011101 (2006).
- ¹⁷ H. Shiomi, A. Ueda, T. Tohei, Y. Imai, T. Hamachi, K. Sumitani, S. Kimura, Y. Ando, T. Hashizume, and A. Sakai, *Appl. Phys. Express* **14**, 095502 (2021).

謝辞

本研究は大阪大学大学院基礎工学研究科システム創成専攻電子光科学領域において行われました。ご指導、ご鞭撻を賜りました酒井朗 教授に心より感謝の意を表するとともに御礼の言葉を申し上げます。

本研究の遂行にあたり、藤平哲也 准教授、林侑介 助教には、的確なご助言、活発な議論を頂きました。ここに深く感謝いたします。

竹内正太郎 博士(現 SanDisk)には、学部4年から修士1年までの約2年間、本研究を遂行するに際し、日々の実験や考察だけでなく学会発表や論文執筆に関して多大なる御助言を頂きました。ここに深く感謝いたします。

本論文の作成に当たり、副査を引き受けて頂いた中村芳明 教授、浜屋宏平 教授、森勇介 教授に心より深く感謝いたします。

本研究の遂行にあたり、試料を提供していただいた大阪大学大学院工学研究科の森勇介 教授、今西正幸 准教授に深く感謝いたします。GaN 結晶成長に関する的確なご助言、活発な議論をして頂き、大変知見が深まりました。

本研究の遂行にあたり、ウェットエッチングや多光子励起顕微鏡観察を含む、その他数々のご助言、議論をして頂きました、大阪大学大学院工学研究科の宇佐美茂佳 助教、山田拓海 博士に、心より深く感謝いたします。博士学生として世界で活躍されていた当時のお二人の姿に感銘し、博士後期課程に進学するきっかけを頂きました。

研究生生活において、事務手続きだけでなく、身の回りの掃除や観葉植物の設置等、居心地の良い研究室になるよう、環境の面からも多大なご支援を頂きました楠本涼香 氏、並びに丸子美生利 氏に深く感謝いたします。

本研究を遂行するにあたり、日々過ごす研究室を心地良いものにして頂き、研究に関する議論を幾度もして頂いた、酒井研究室の学生の皆様、卒業生の皆様に、深く感謝いたします。

アニールプロセスの遂行に際し、ご協力とご指導を賜りました、大阪大学大学院基礎

謝辞

工学研究科の石部貴史 助教に深く感謝いたします。

電子材料若手交流会 (ISYSE) 及び学会にて大変お世話になりました、東京大学大学院工学系研究科の出浦桃子 助教をはじめ、ISYSE 幹事の皆さま、学生の皆さまに御礼申し上げます。学生幹事に任命していただき、様々な経験をさせていただきました。

SPring-8 での実験及び解析に際し、幾度もご協力とご指導、活発な議論を賜りました高輝度光科学研究センター (JASRI) の 今井康彦 博士、隅谷和嗣 博士、木村滋博士に心より感謝いたします。

TEM 観察及び TEM 試料作製を遂行するにあたり、ご助言、ご指導を賜りました、大阪大学超高压電子顕微鏡センター特任研究員の坂田孝夫 先生、平泉由梨 先生に心より感謝いたします。

STEM 観察を遂行するにあたり、ご助言、ご協力を賜りました、名古屋大学未来材料・システム研究所 五十嵐信行 教授に心より御礼申し上げます。

本研究は、上で挙げきれないほど、多くの方々のご協力、ご指導、ご鞭撻により遂行できたものです。全ての方々に心より御礼申し上げます。

最後に、これまで私を育てくれた家族、そして、私の進学を理解しどんな時も支えてくれた妻 知美に、心より深く感謝し、謝辞の結びとします。

2022 年 1 月

濱地威明

業績一覧

I. 査読付き学術論文(主著 5 件、内 1 件執筆中)

- [1] T. Hamachi, S. Takeuchi, T. Tohei, M. Imanishi, M. Imade, Y. Mori, and A. Sakai, “Leakage current analysis for dislocations in Na-flux GaN bulk single crystals by conductive atomic force microscopy”, *Journal of Applied Physics* **123**, 161417 (2018).
- [2] T. Hamachi, T. Tohei, M. Imanishi, Y. Mori, and A. Sakai, “Local current leakage at threading dislocations in GaN bulk single crystals grown by a modified Na-flux method”, *Japanese Journal of Applied Physics* **58**, 050918 (2019).
- [3] T. Hamachi, T. Tohei, M. Imanishi, Y. Mori, and A. Sakai, “Correlation between current leakage and structural properties of threading dislocations in GaN bulk single crystals grown using a Na-flux method”, *Japanese Journal of Applied Physics* **58**, SCCB23 (2019).
- [4] T. Hamachi, T. Tohei, Y. Hayashi, M. Imanishi, S. Usami, Y. Mori, N. Ikarashi, and A. Sakai, “Propagation of threading dislocations and effects of Burgers vectors in HVPE-grown GaN bulk crystals on Na-flux-grown GaN substrates”, *Journal of Applied Physics* **129**, 225701 (2021).
- [5] T. Hamachi, T. Tohei, Y. Hayashi, M. Imanishi, S. Usami, Y. Mori, and A. Sakai, in preparation.

査読付き学術論文(共著 2 件)

- [6] A. Ueda, T. Hamachi, A. Okazaki, S. Takeuchi, T. Tohei, M. Imanishi, M. Imade, Y. Mori, and A. Sakai “Local piezoelectric properties in Na-flux GaN bulk single crystals”, *Journal of Applied Physics* **128**, 125110 (2020).
- [7] H. Shiomi, A. Ueda, T. Tohei, Y. Imai, T. Hamachi, K. Sumitani, S. Kimura, Y. Ando, T. Hashizume, and A. Sakai, *Appl. Phys. Express* **14**, 095502 (2021).

II. 国際会議(筆頭 4 件)

- [1] T. Hamachi, S. Takeuchi, M. Imanishi, M. Imade, Y. Mori, and A. Sakai, “Leakage current analysis for dislocations in Na flux GaN bulk single crystals by conductive atomic force microscopy”, 29th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-29), Matsue, Japan, July, 2017.
- [2] T. Hamachi, S. Takeuchi, T. Tohei, M. Imanishi, Y. Mori, and A. Sakai, “Leakage current analysis for individual dislocations in the modified Na-flux GaN bulk single crystal”, International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-7), Warsaw, Poland, August, 2018.
- [3] T. Hamachi, T. Tohei, M. Imanishi, Y. Mori, and A. Sakai, “Local electrical and structural analysis for threading dislocation in the modified Na-flux GaN bulk single crystal”, International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2018), Kanazawa, Japan, November, 2018.
- [4] T. Hamachi, T. Tohei, M. Imanishi, Y. Mori, and A. Sakai, “Multilateral investigation of electrical and microstructural properties of threading dislocations in Na-flux-grown GaN crystals”, 13th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS 13), Washington, USA, July, 2019.

国際会議(共著 3 件)

- [5] S. Mizutani, T. Hamachi, S. Takeuchi, T. Tohei, T. Kachi, S. Sarayama, and A. Sakai, “Leakage current analysis in GaN-on-GaN p-n diode by conductive atomic force microscopy”, The 21st SANKEN International Symposium, The 16th SANKEN Nanotechnology International Symposium, Osaka, Japan, January, 2018.
- [6] Z. D. Wu, K. Shida, T. Hamachi, Y. Hayashi, T. Tohei, M. Imanishi, Y. Mori, K. Sumitani, Y. Imai, S. Kimura, and A. Sakai, “Structural analysis of Na flux GaN by nanobeam X-ray diffraction: local lattice constant variation depending on the growth sector”, The 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, Online, March, 2021.
- [7] Y. Imai, K. Sumitani, S. Kimura, T. Hamachi, K. Shida, T. Tohei, H. Miyake, and A. Sakai, “Depth-resolved three-dimensional characterization of semiconductor

materials using nanobeam X-ray diffraction combined with differential technique”,
The 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, On-line,
March, 2021.

III. 国内会議(筆頭 13 件)

- [1] 濱地威明, 竹内正太郎, 藤平哲也, 今西正幸, 今出完, 森勇介, 酒井朗、「Na フラックス GaN 単結晶内の孤立転位に起因した局所漏れ電流特性」、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、6p-A301-11、福岡国際会議場、2017 年 9 月
- [2] 濱地威明, 竹内正太郎, 藤平哲也, 今西正幸, 今出完, 森勇介, 酒井朗、「改良型 Na フラックス GaN 単結晶内の単独転位における漏れ電流特性評価」、第 65 回応用物理学会春季学術講演会、18p-E202-5、早稲田大学 西早稲田キャンパス、2018 年 3 月
- [3] 濱地威明、藤平哲也、今西正幸、森勇介、酒井朗、「Na フラックス GaN バルク単結晶内の転位における電気的特性と転位および周辺結晶形態の関連性」、科学研究費補助金女性事業「新学術領域研究」特異構造の結晶科学平成 30 年度第 2 回領域全体会議、東京大学 生産技術研究所、2018 年 9 月
- [4] 濱地威明, 藤平哲也, 今西正幸, 森勇介, 酒井朗、「改良型 Na フラックス GaN 単結晶内単独転位の漏れ電流特性解析」、第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、21p-146-6、名古屋国際会議場、2018 年 9 月
- [5] 濱地威明、藤平哲也、今西正幸、森勇介、酒井朗、「Na フラックス GaN バルク単結晶の単独転位における漏れ電流特性とバーガースベクトルの解析」、第 66 回応用物理学会春季学術講演会、12a-W541-10、東京工業大学 大岡山キャンパス、2019 年 3 月
- [6] 濱地威明、藤平哲也、今西正幸、森勇介、酒井朗、「Na フラックス GaN バルク単結晶における貫通転位の結晶構造と漏れ電流の関連性」、第 11 回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会、広島大学 東広島キャンパス、2019 年 6 月
- [7] 濱地威明、藤元聖人、藤平哲也、林侑介、今西正幸、森勇介、酒井朗、「HVPE-GaN バルク単結晶における貫通転位の構造と漏れ電流の関連性」第 3 回 ISYSE 研究会、つくばセミナーハウス、2019 年 11 月
- [8] 濱地威明、藤元聖人、藤平哲也、林侑介、今西正幸、森勇介、酒井朗、「HVPE-GaN バルク単結晶における貫通転位の構造と漏れ電流の関連性」、2019 年度第 2 回応用物理学会関西支部講演会、大阪大学 豊中キャンパス、2019 年 11 月
- [9] 濱地威明、藤元聖人、藤平哲也、林侑介、今西正幸、森勇介、酒井朗、「HVPE-GaN バルク単結晶中貫通転位における漏れ電流特性に及ぼす転位構造の影響」、第 2 回結晶工学×ISYSE 合同研究会、東京大学 本郷キャンパス、2019 年

11 月

- [10]濱地威明、藤平哲也、林侑介、今西正幸、森勇介、五十嵐信行、酒井朗、
「HVPE-GaN バルク結晶における貫通転位の 3 次元的形態とバーガースペクトル
の関係」、第 81 回応用物理学会秋季学術講演会、8a-Z02-2、オンライン、2020
年 9 月
- [11]濱地威明、藤平哲也、林侑介、今西正幸、森勇介、酒井朗、「HVPE-GaN バルク
結晶における a 及び a+c タイプ貫通転位の 3 次元的伝播挙動の解析」、第 81 回
応用物理学会秋季学術講演会、8a-Z02-3、オンライン、2020 年 9 月
- [12]濱地威明、藤平哲也、林侑介、宇佐美茂佳、今西正幸、森勇介、隅谷 和嗣、今
井 康彦、木村 滋、酒井朗、「ナノビーム X 線回折による HVPE-GaN バルク結晶
における単独貫通転位周辺の局所歪解析」、第 68 回応用物理学会秋季学術講
演会、19p-29-5、オンライン、2021 年 3 月
- [13]濱地威明、藤平哲也、林侑介、今西正幸、宇佐美茂佳、森勇介、酒井朗、
「HVPE-GaN 自立基板の貫通転位におけるショットキー接触の電気特性と微細構
造の一対一評価」、第 82 回応用物理学会秋季学術講演会、11a-N101-6、オンラ
イン、2021 年 9 月

国内会議(共著 8 件)

- [14]Z. D. Wu, K. Shida, T. Hamachi, T. Tohei, Y. Hayashi, M. Imanishi, Y. Mori, K.
Sumitani, Y. Imai, S. Kimura, and A. Sakai, “Microstructure analysis of FFC-GaN
crystal”, 2019 年度第 2 回応用物理学会関西支部講演会, 大阪大学 豊中キャン
パス, 2019 年 11 月
- [15]栗谷淳、藤平哲也、志田和己、濱地威明、林侑介、滝野淳一、隅智亮、今西正幸、
森勇介、隅谷和嗣、今井康彦、木村滋、酒井朗、「Oxide-Vapor-Phase-Epitaxy 法
で成長した GaN バルク単結晶の微細構造解析」、2019 年度第 3 回応用物理学会
関西支部講演会、産業技術総合研究所、2020 年 2 月
- [16]山本望、濱地威明、林侑介、藤平哲也、三宅秀人、酒井朗、「Nano-patterned
sapphire substrate 上のスパッタ堆積アニール AlN テンプレートを用いた AlN 厚膜
の欠陥構造解析」、2019 年第 3 回応用物理学会関西支部講演会、産業技術総
合研究所、2020 年 2 月
- [17]Z. D. Wu, K. Shida, T. Hamachi, Y. Hayashi, T. Tohei, M. Imanishi, Y. Mori, K.

- Sumitani, Y. Imai, S. Kimura, and A. Sakai, “Structural Analysis of Na-flux GaN by Nanobeam X-ray Diffraction”, 第 12 回 ナノ構造・エピタキシャル成長講演会, オンライン, 2020 年 7 月
- [18] Z. D. Wu, K. Shida, T. Hamachi, Y. Hayashi, T. Tohei, M. Imanishi, Y. Mori, K. Sumitani, Y. Imai, S. Kimura, and A. Sakai, “Structural Analysis of Na-flux GaN by Nanobeam X-ray Diffraction: Local Lattice Constant Variation Depending on the Growth Mode”, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, 11p-Z12-6, オンライン, 2020 年 9 月
- [19] 栗谷淳、藤平哲也、濱地威明、林侑介、滝野淳一、隅智亮、今西正幸、森勇介、隅谷和嗣、今井康彦、木村滋、酒井朗、「OVPE 法で成長した GaN バルク単結晶の微細構造解析」、第 81 回応用物理学会秋季学術講演会、8a-Z02-1、オンライン開催、2020 年 9 月
- [20] Z. D. Wu, Y. Nakanishi, T. Hamachi, Y. Hayashi, T. Tohei, M. Imanishi, Y. Mori, K. Sumitani, Y. Imai, S. Kimura, and A. Sakai, “Analysis of Crystal structure Associated with Dislocation Gathering in Na-flux GaN by Nanobeam X-ray Diffraction”, 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会、10a-N101-7、オンライン、2021 年 9 月
- [21] 佐藤俊和、濱地威明、藤平哲也、林侑介、今西正幸、宇佐美茂佳、森勇介、酒井朗、「HVPE-GaN 自立基板中単独貫通転位上に作製したショットキー接触における電気特性の温度依存性」、第 82 回応用物理学会秋季学術講演会、11a-N101-7、オンライン、2021 年 9 月
- [22] 中西悠太、山本望、濱地威明、林侑介、藤平哲也、隅谷和嗣、今井康彦、木村滋、肖世玉、三宅秀人、酒井朗、「コーン型 NPSS 上 AlN テンプレートに成長させた AlN 厚膜の微細構造解析」、第 82 回応用物理学会秋季学術講演会、10a-N101-6、オンライン、2021 年 9 月

IV. 受賞(6件)

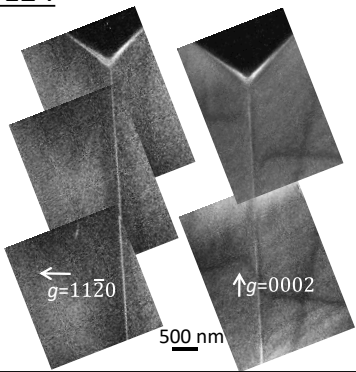
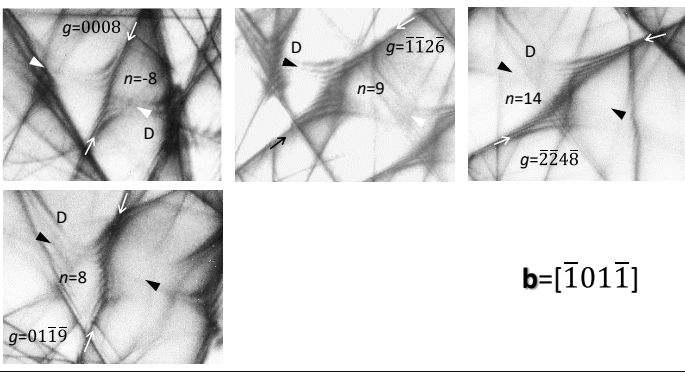
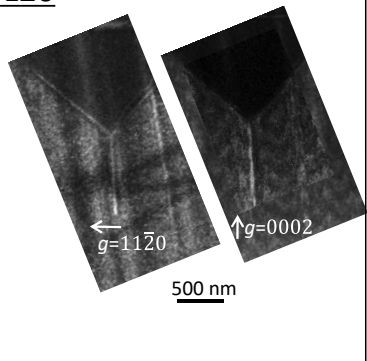
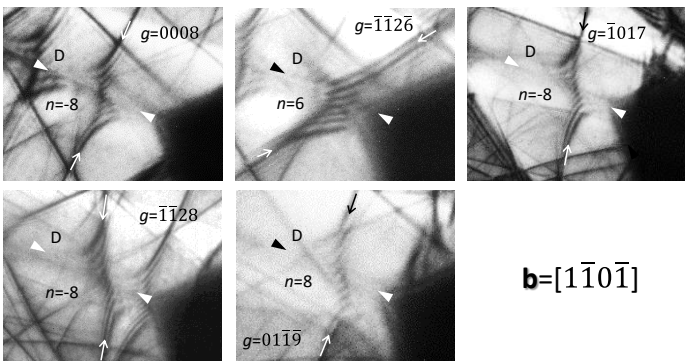
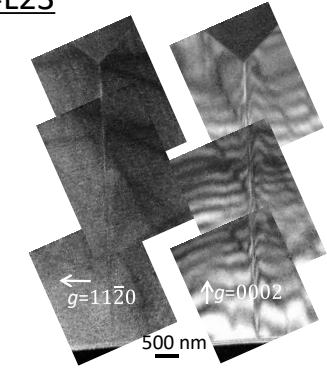
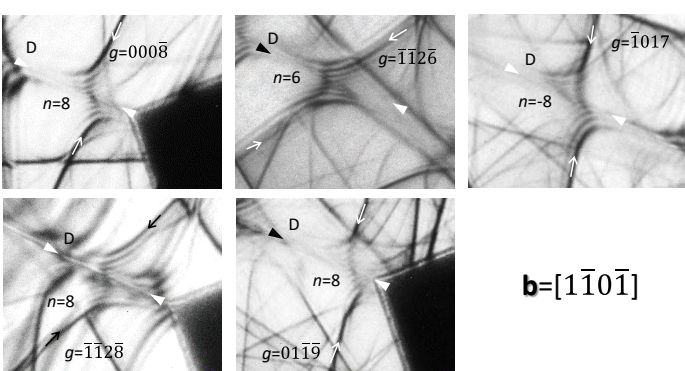
- [1] International Workshop on Nitride Semiconductors 2018 Student award, November, 2018.
- [2] 修士論文優秀賞、大阪大学大学院基礎工学研究科システム創成専攻電子光科学領域修士論文発表会、2018年3月
- [3] 第11回日本結晶成長学会ナノ構造・エピタキシャル成長分科会発表奨励賞、第11回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会、2019年6月
- [4] 応用物理学会関西支部2019年度第2回講演会ポスター賞(最優秀賞)、2019年度第2回応用物理学会関西支部講演会、2019年11月
- [5] 結晶工学分科会×ISYSE研究発表奨励賞、第2回結晶工学×ISYSE合同研究会、2019年11月
- [6] 応用物理学会関西支部第8回関西奨励賞、2020年3月

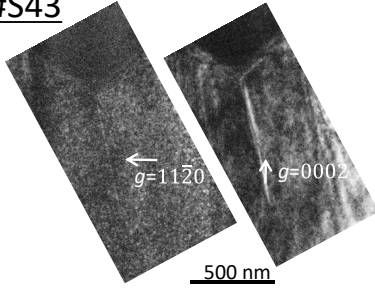
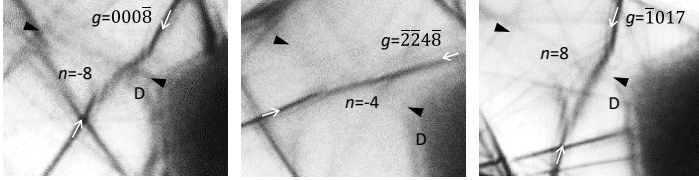
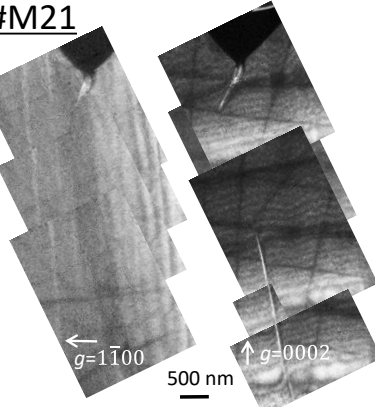
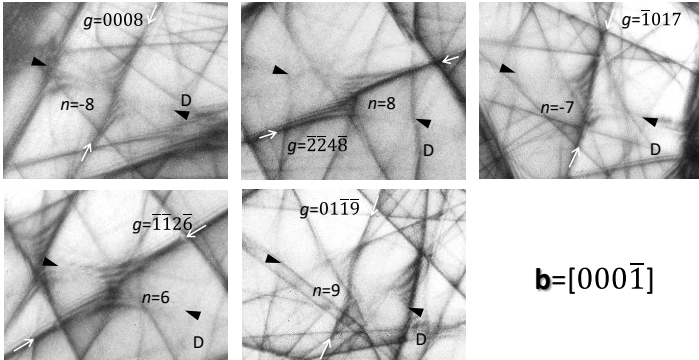
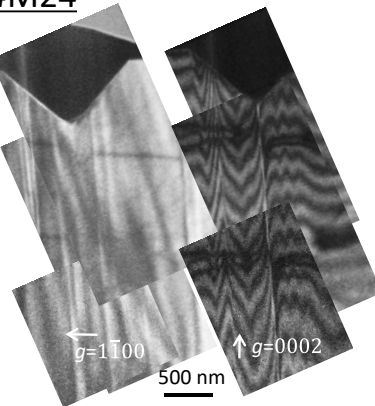
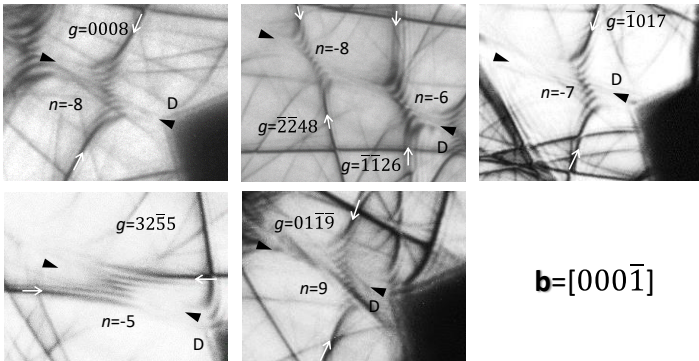
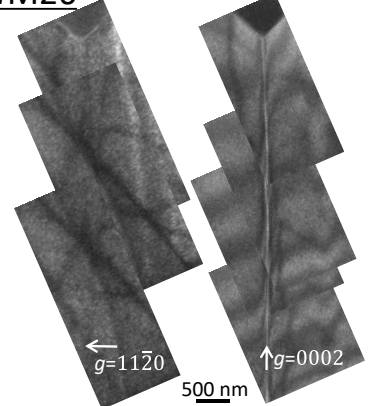
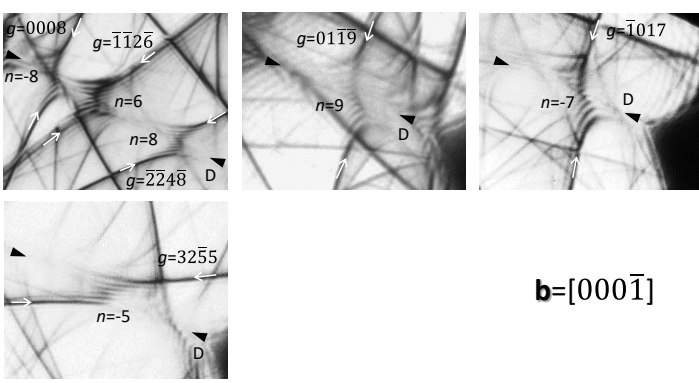
Appendix

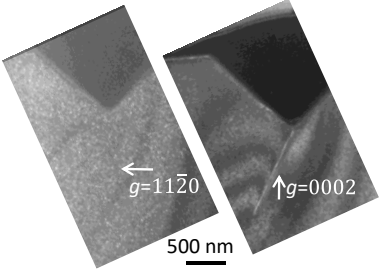
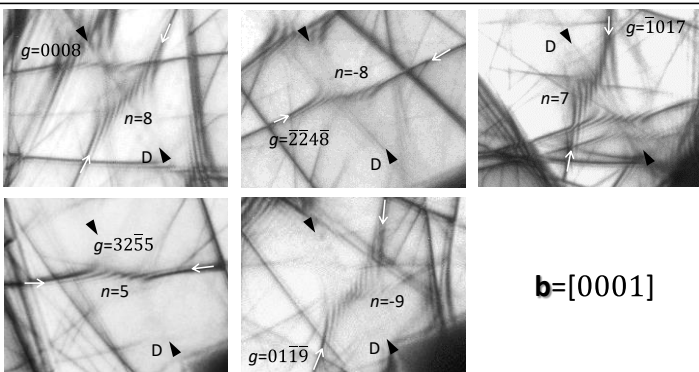
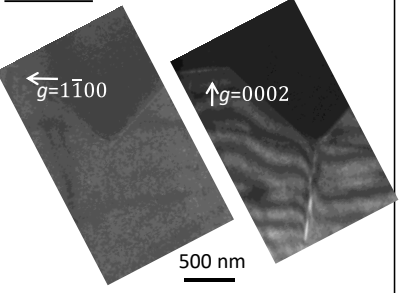
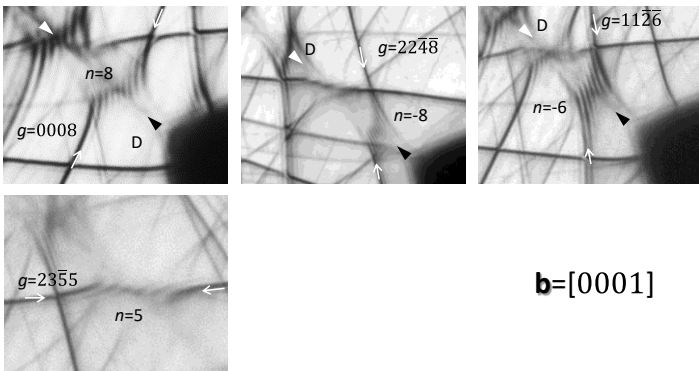
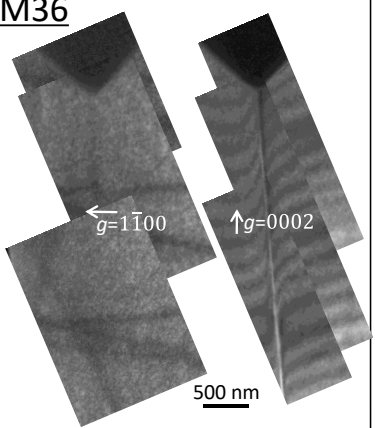
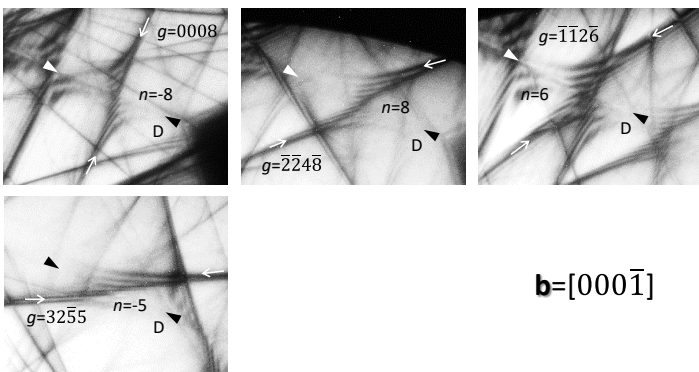
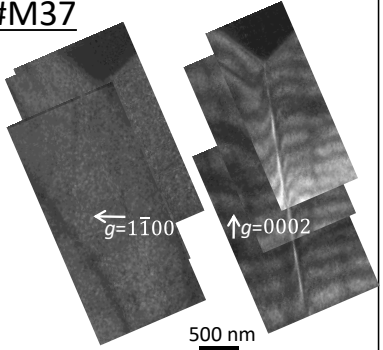
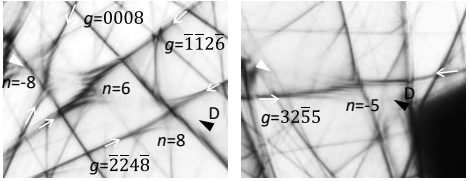
A.1. flat-Na-GaN における貫通転位の TEM 解析結果

第 4 章の flat-Na-GaN (HVPE／Na フラックスハイブリッド基板) について、本文では載せていない S、M、L ピット下の貫通転位の $g\cdot b$ 解析、及び LACBED 解析結果を表 A-1 示す。 $g\cdot b$ 解析は $g=11\bar{2}0$ または $g=1\bar{1}00$ 、及び $g=0002$ により行った。

表 A-1 flat-Na-GaN における貫通転位の TEM 解析結果まとめ。

$g\cdot b$	LACBED
<div>#L14</div> <div></div>	<div></div> <div>$b=[\bar{1}01\bar{1}]$</div>
<div>#L20</div> <div></div>	<div></div> <div>$b=[1\bar{1}0\bar{1}]$</div>
<div>#L23</div> <div></div>	<div></div> <div>$b=[1\bar{1}0\bar{1}]$</div>

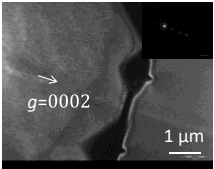
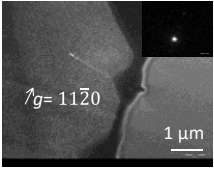
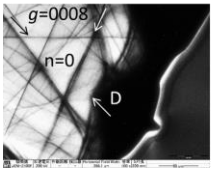
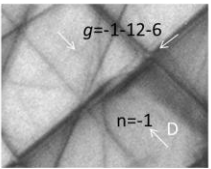
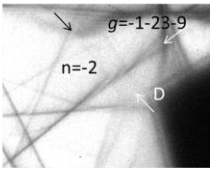
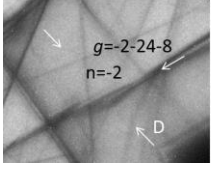
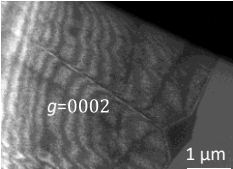
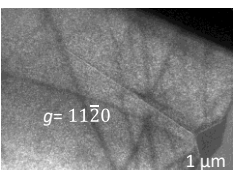
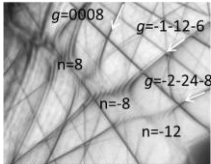
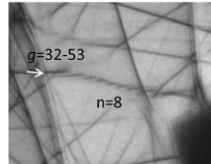
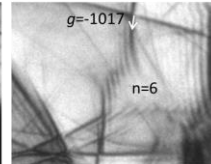
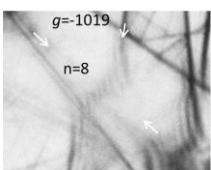
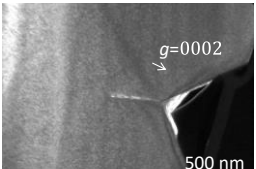
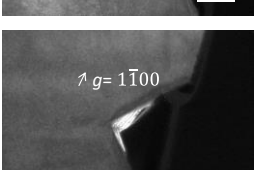
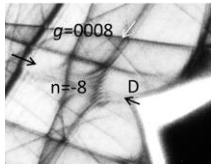
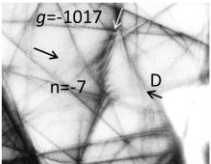
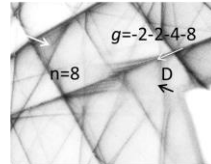
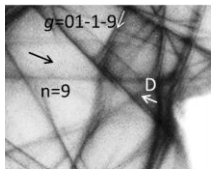
$g \cdot b$	LACBED
#S43 	 <p>$b = 1/3[\bar{1}\bar{1}23]$</p>
#M21 	 <p>$b = [000\bar{1}]$</p>
#M24 	 <p>$b = [000\bar{1}]$</p>
#M26 	 <p>$b = [000\bar{1}]$</p>

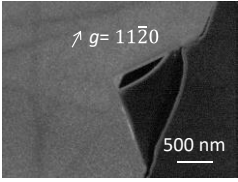
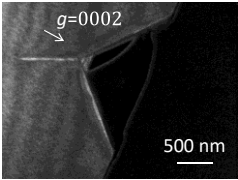
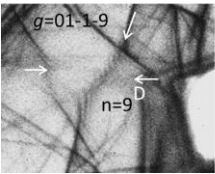
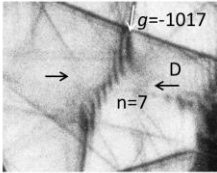
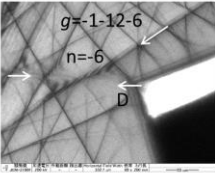
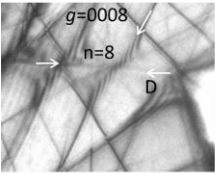
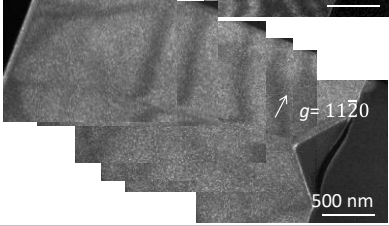
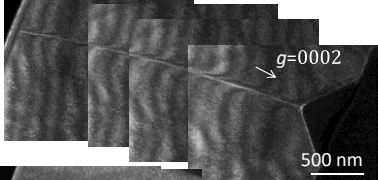
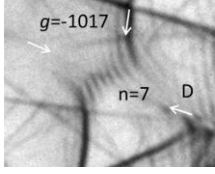
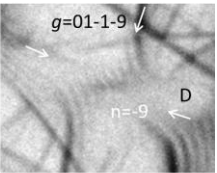
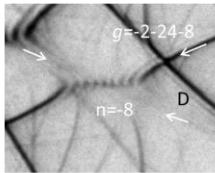
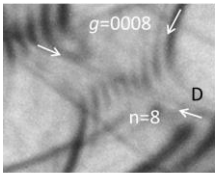
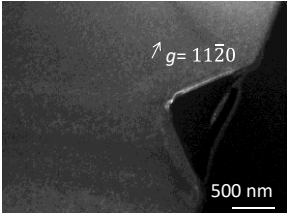
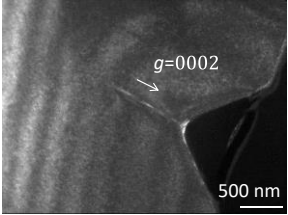
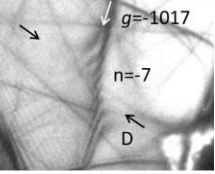
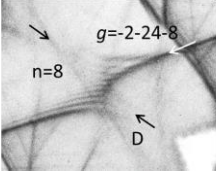
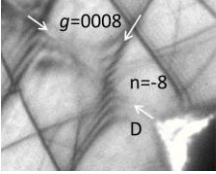
$g \cdot b$	LACBED
#M32 	 <p>$b=[0001]$</p>
#M34 	 <p>$b=[0001]$</p>
#M36 	 <p>$b=[000\bar{1}]$</p>
#M37 	 <p>$b=[000\bar{1}]$</p>

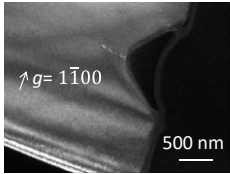
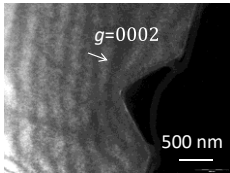
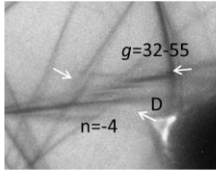
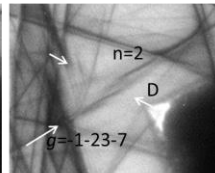
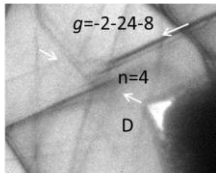
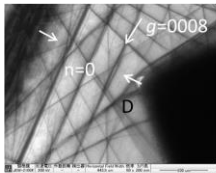
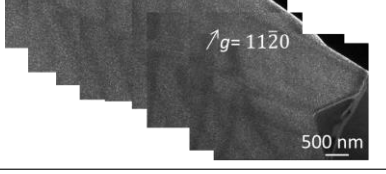
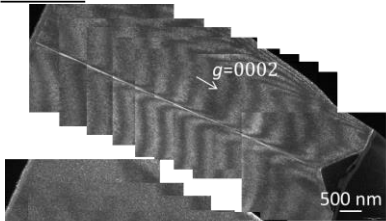
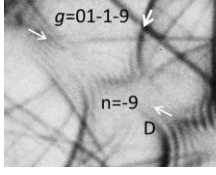
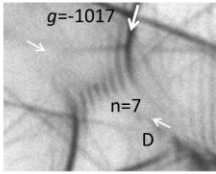
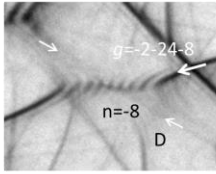
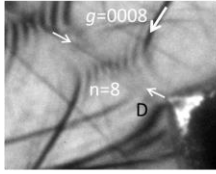
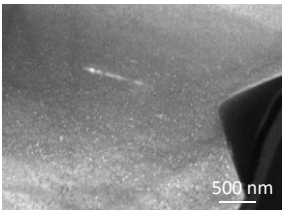
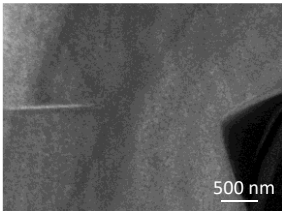
A.2. flat-Sa-GaN における貫通転位の TEM 解析結果

第 4 章の flat-Sa-GaN(市販 HVPE-GaN)について、本文では載せていない XS、S、M、L ピット下の貫通転位の $g \cdot b$ 解析、及び LACBED 解析結果を表 A-2 示す。 $g \cdot b$ 解析は $g=11\bar{2}0$ または $g=1\bar{1}00$ 、及び $g=0002$ により行った。

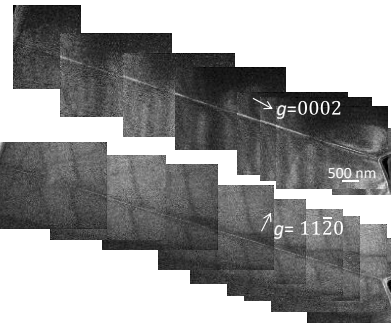
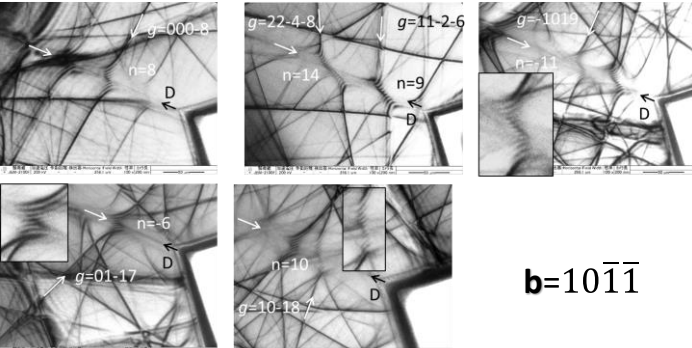
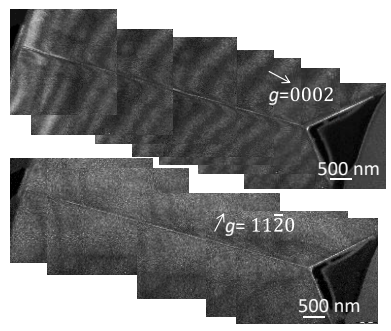
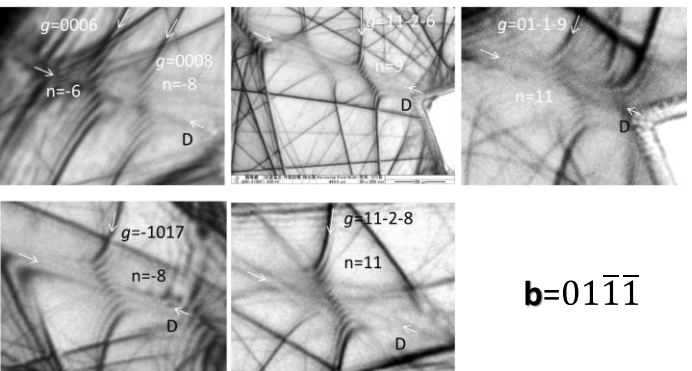
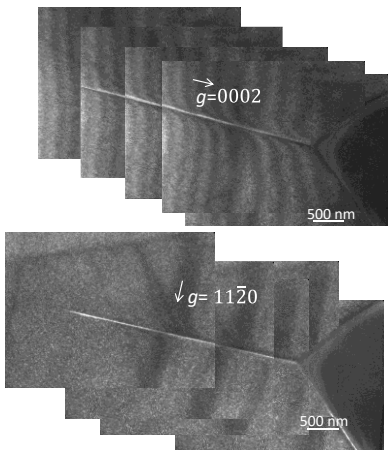
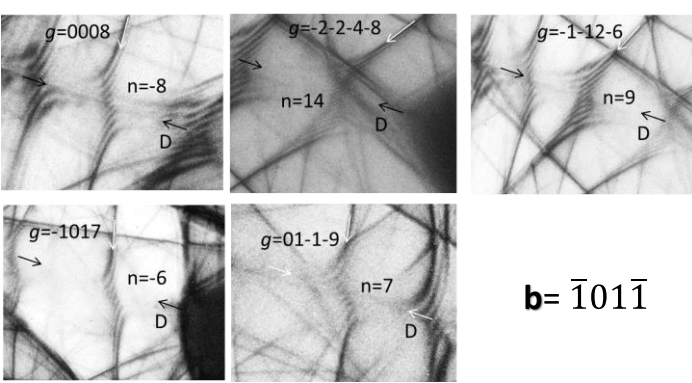
表 A-2 flat-Sa-GaN における貫通転位の TEM 解析結果まとめ。

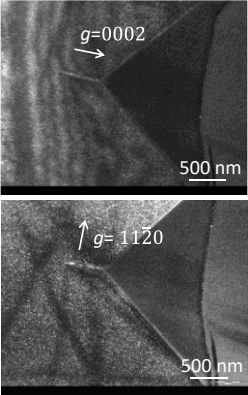
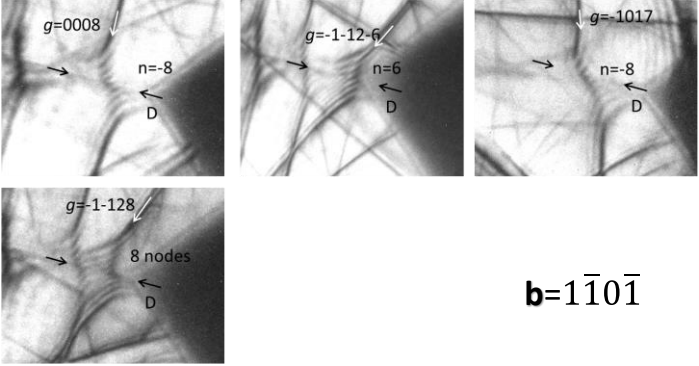
$g \cdot b$	LACBED
<div>#XS25<div> $g=0002$ 1 μm</div><div> $g=11\bar{2}0$ 1 μm</div></div>	<div> $g=0008$ $n=0$  $g=-1-12-6$ $n=-1$  $g=-1-23-9$ $n=-2$  $g=-2-24-8$ $n=-2$</div> <div>$b=1/3[\bar{1}2\bar{1}0]$</div>
<div>#S27<div> $g=0002$ 1 μm</div><div> $g=11\bar{2}0$ 1 μm</div></div>	<div> $g=0008$ $n=8$  $g=-1-12-6$ $n=8$  $g=-2-24-8$ $n=12$  $g=1019$ $n=8$</div> <div>$b=1/3[11\bar{2}3]$</div>
<div>#M12<div> $g=0002$ 500 nm</div><div> $g=1\bar{1}00$ 500 nm</div></div>	<div> $g=0008$ $n=8$  $g=-1017$ $n=-7$  $g=-2-24-8$ $n=8$  $g=01-1-9$ $n=9$</div> <div>$b=[000\bar{1}]$</div>

$g \cdot b$	LACBED
<div>#M13<div></div></div> <div></div> <div>$b=[0001]$</div>	<div>#M14<div></div></div> <div></div> <div>$b=[0001]$</div>
<div>#M15<div></div></div> <div></div> <div>$b=[000\bar{1}]$</div>	

$g \cdot b$	LACBED
<div>#M16</div> <div></div>	<div></div> <div>$b=1/3[2\bar{4}20]$</div>
<div>#M17</div> <div></div>	<div></div> <div>$b=[0001]$</div>
<div>#M18</div> <div></div>	

Appendix flat-Sa-GaN における貫通転位の TEM 解析結果

$g \cdot b$	LACBED
<p>#L10</p> 	 <p>$b=10\bar{1}\bar{1}$</p>
<p>#L11</p> 	 <p>$b=01\bar{1}\bar{1}$</p>
<p>#L22</p> 	 <p>$b=\bar{1}01\bar{1}$</p>

$g \cdot b$	LACBED
<div>#L23</div> <div></div>	<div></div> <div>$b=1\bar{1}0\bar{1}$</div>

A.3. FNT 機構に基づく電界補正係数 p_F の算出

第 5 章にて I - V - T 測定を実施したピット電極 #S55、#S82、#M54、#M66 に対して行った、FNT 機構に基づく電界補正結果を、それぞれ図 A-1～図 A-4 に示す。各ピット電極における電界補正係数 p_F は、第 5 章の表 5-5 にまとめている。

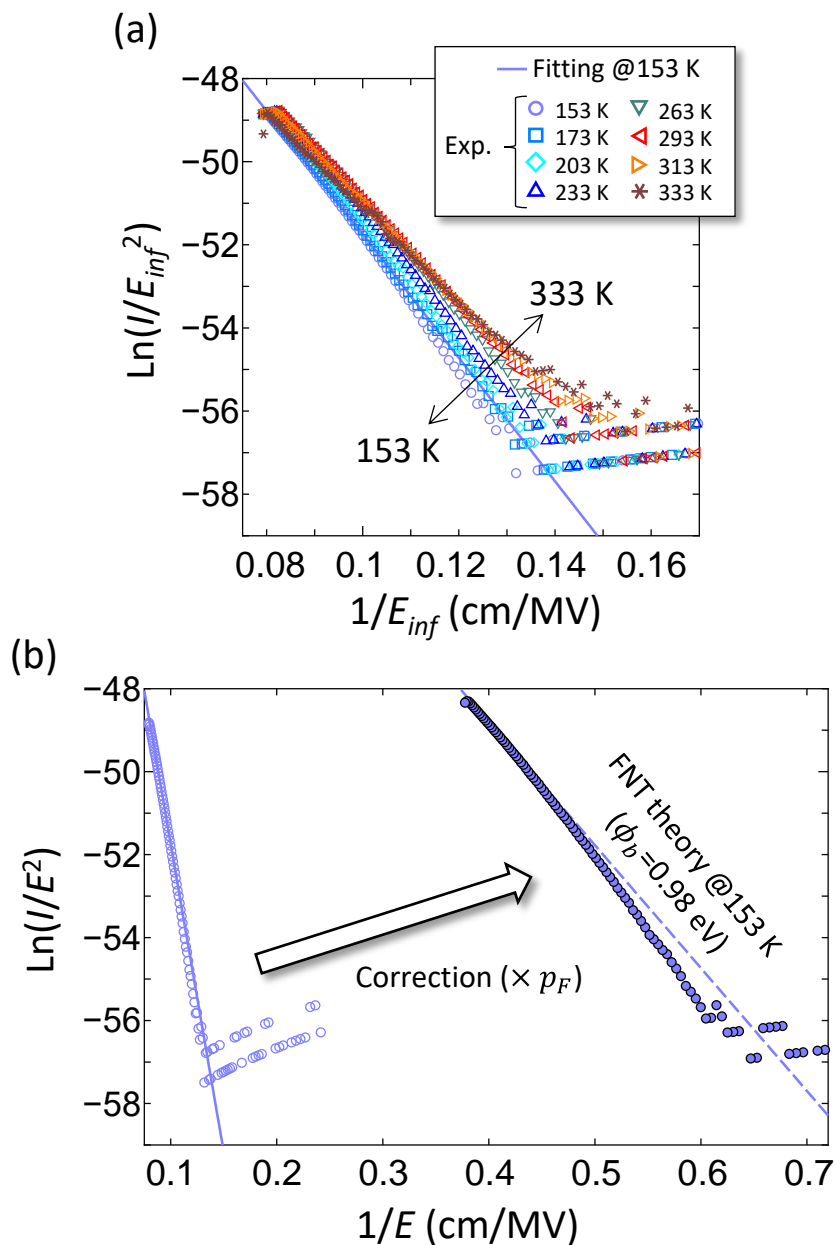


図 A-1 #S55 における(a) $\ln(I/E_{inf}^2)$ vs $1/E_{inf}$ プロット、及び(b) p_F による電界補正操作。(a)及び(b)中の実線は 153 K プロットのフィッティング直線。(b)中の白丸及び塗りつぶし丸プロットは、それぞれ(a)中の 153 K のプロット、及びその電界補正後のプロットに対応し、破線は $\phi_{b0}=0.98$ eV 値を用いて計算した理論 FNT 曲線。

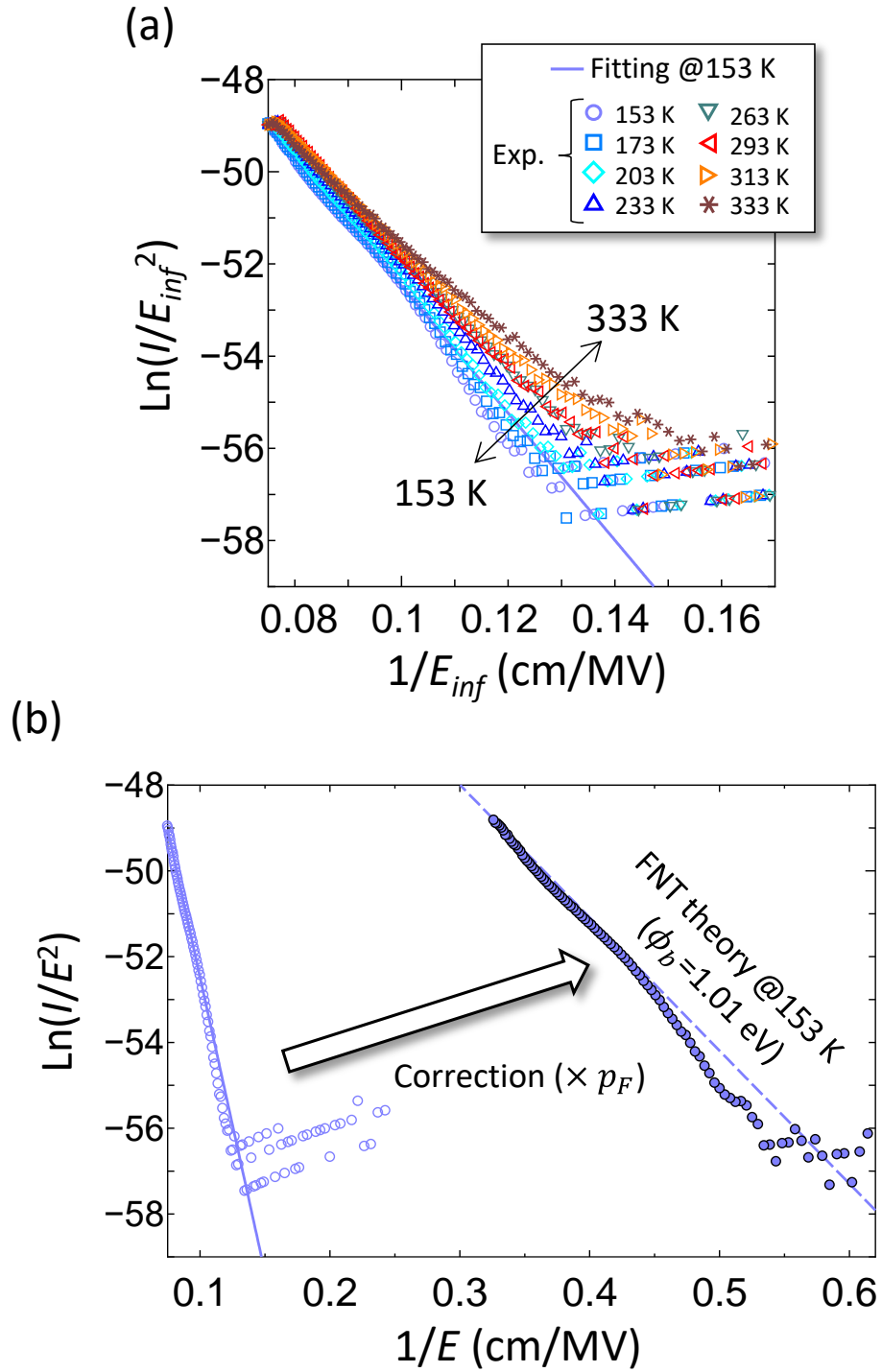


図 A-2 #S82 における(a) $\ln(I/E_{inf}^2)$ vs $1/E_{inf}$ プロット、及び(b) p_F による電界補正操作。(a)及び(b)中の実線は 153 K プロットのフィッティング直線。(b)中の白丸及び塗りつぶし丸プロットは、それぞれ(a)中の 153 K のプロット、及びその電界補正後のプロットに対応し、破線は $\phi_{b0}=1.01$ eV 値を用いて計算した理論 FNT 曲線。

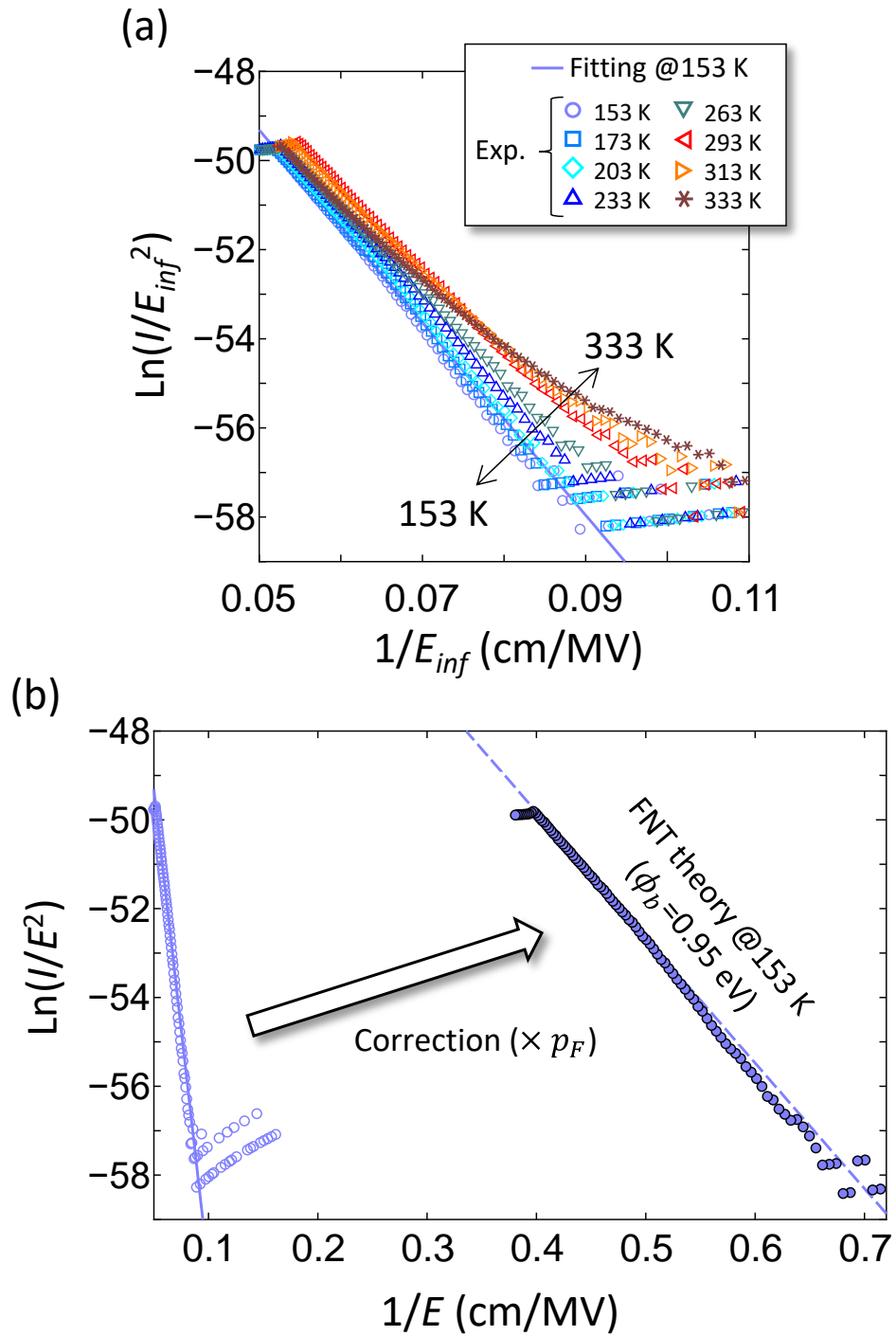


図 A-3 #M54 における(a) $\ln(I/E_{inf}^2)$ vs $1/E_{inf}$ プロット、及び(b) p_F による電界補正操作。(a)及び(b)中の実線は 153 K プロットのフィッティング直線。(b)中の白丸及び塗りつぶし丸プロットは、それぞれ(a)中の 153 K のプロット、及びその電界補正後のプロットに対応し、破線は $\phi_{b0}=0.95$ eV 値を用いて計算した理論 FNT 曲線。

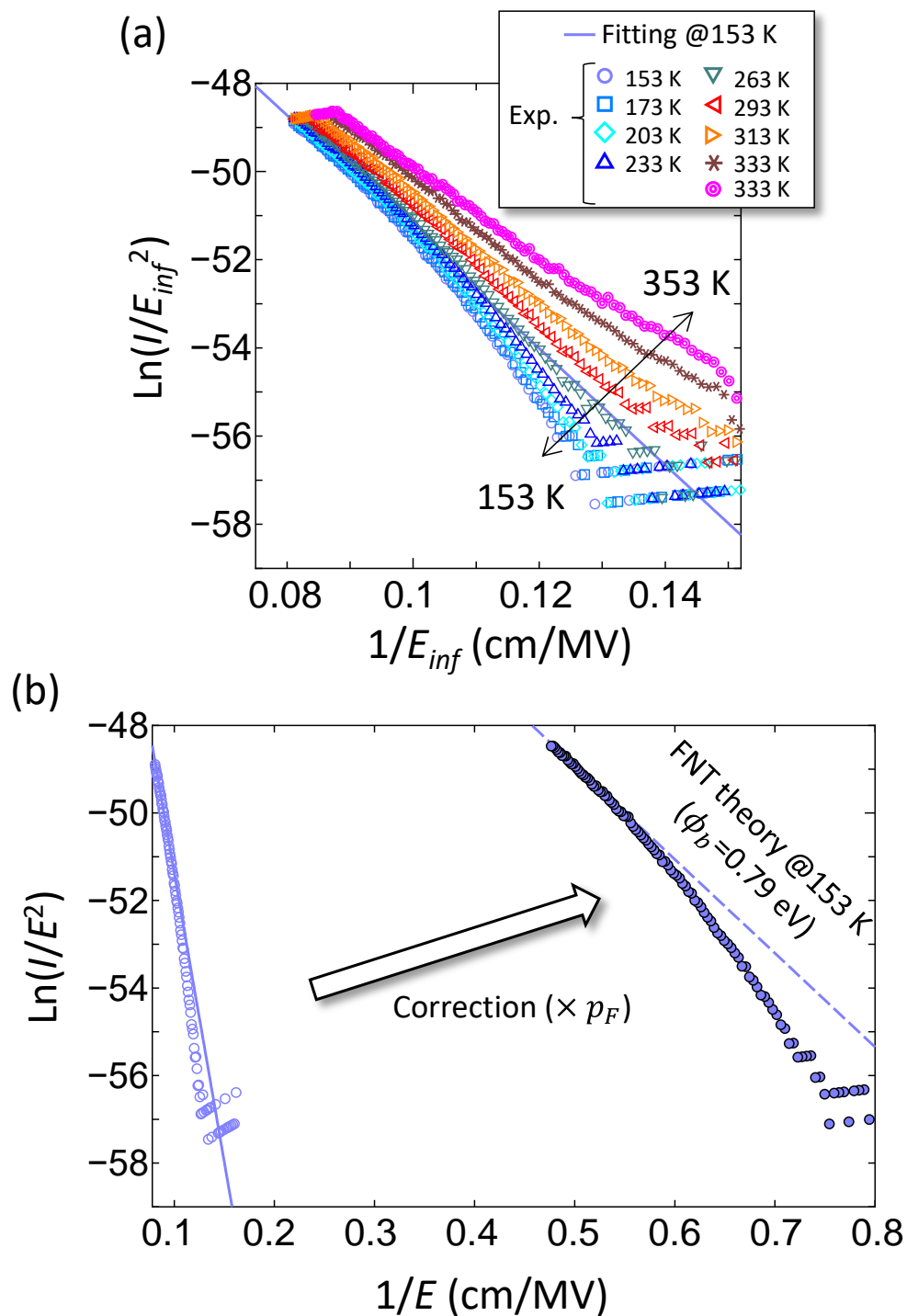
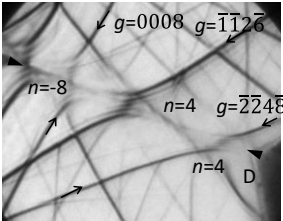
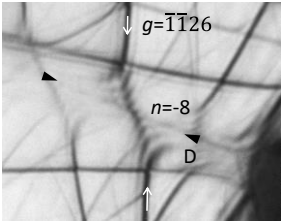
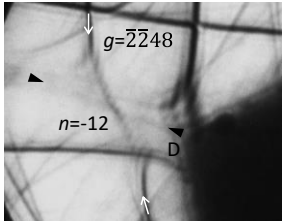
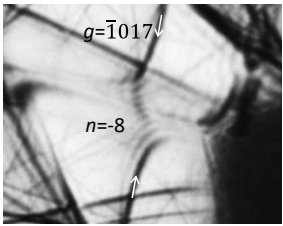
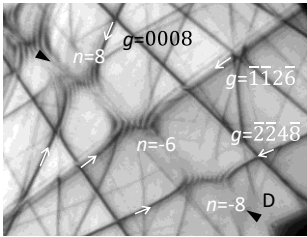
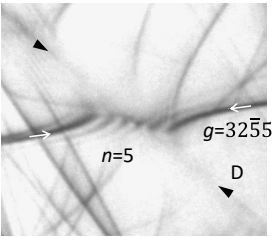
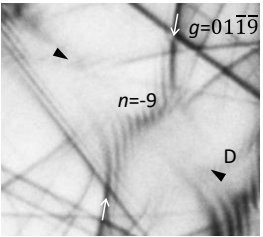
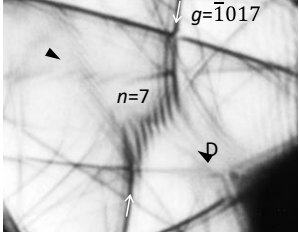
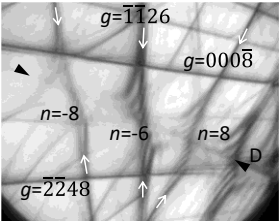
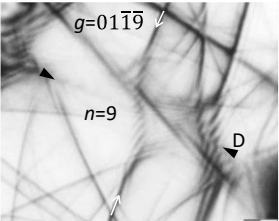
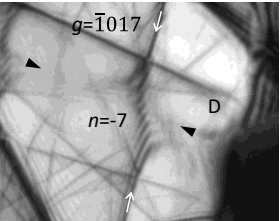


図 A-4 #M66 における(a) $\ln(I/E_{inf}^2)$ vs $1/E_{inf}$ プロット、及び(b) p_F による電界補正操作。(a)及び(b)中の実線は 153 K プロットのフィッティング直線。(b)中の白丸及び塗りつぶし丸プロットは、それぞれ(a)中の 153 K のプロット、及びその電界補正後のプロットに対応し、破線は $\phi_{b0}=0.79$ eV 値を用いて計算した理論 FNT 曲線。

A.4. ハイブリッド基板における貫通転位の LACBED 解析

第 6 章において TEM 観察を行った HVPE/Na フラックスハイブリッド基板の S、M、L ピット下貫通転位に対する LACBED 解析結果を表 A-3 にまとめる。

表 A-3 ハイブリッド基板における貫通転位の LACBED 解析結果まとめ。

#S81			
			
	$\mathbf{b} = 1/3 [11\bar{2}3]$		
#M66			
			
	$\mathbf{b} = [0001]$		
#M93			
	$\mathbf{b} = [000\bar{1}]$		

