

氏名	いわぶちたくや 岩 渕 拓 也
授与学位	博士 (工学)
学位授与年月日	平成31年3月27日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 応用物理学専攻
学位論文題目	劈開 ScAlMgO ₄ 基板上 InGaN ベース LED の作製とその特性向上に関する研究
指導教員	東北大学教授 松岡 隆志
論文審査委員	主査 東北大学教授 松岡 隆志 東北大学教授 北上 修 東北大学教授 秩父 重英 東北大学講師 谷川 智之

論文内容要旨

窒化物半導体は混晶を形成することで紫外域から赤外域までバンドギャップを大きく変化させることが可能であり、青色 LED やレーザーなどへ応用されている。これらの窒化物半導体デバイスの多くは安価な *c* 面サファイア基板上に作製されている。サファイア基板と GaN の格子不整合率は 13.8% と大きく、この大きい格子不整合率に起因したミスフィット転位が界面に発生する。ミスフィット転位の一部は貫通転位となり、サファイア基板上 GaN では 10^8 から 10^9 cm⁻² 程度の高い貫通転位密度が見られる。貫通転位は非発光再結合中心として働くため、発光デバイス等において悪影響をおよぼす。日本における照明の消費電力に占める割合は約 20% であり、より省エネルギーでクリーンな社会の実現のためには、LED の高効率化が極めて重要である。高効率な LED を実現するためには、貫通転位密度を低減できるため、格子不整合率の小さい基板が必要となる。GaN 基板は、GaN の結晶成長に最適な基板であるが、高コストであり普及していない。この問題を解決するため、GaN との格子不整合率が -1.7% と小さい *c* 面 ScAlMgO₄ (SCAM) 基板が提案された。SCAM 結晶は大口径化に適したチョクラルスキー法で成長されるため、量産性に優れた結晶である。この結晶を切断および研磨することで研磨基板を作製し、分子線エピタキシー法および有機金属気相成長(MOVPE)法による GaN の結晶成長が少数報告されている。SCAM 結晶は *c* 面における劈開性が存在し、その高い劈開性によって研磨が難しく、また劈開基板では研磨を行わないためそのコストを低減できるなど、劈開基板に優位性がある。しかし、SCAM 結晶の *c* 面における劈開性を利用した劈開基板上における GaN の結晶成長は報告されていない。そこで、本論文では劈開 SCAM 基板上における、産業への応用上重要である MOVPE 法を用いた GaN 薄膜の結晶成長を研究した。また、高品質な GaN を成長するため、SCAM 基板からの不純物混入の抑制について着目した。この問題では、SCAM 基板から GaN への不純物の混入経路を明らかにするとともに、その混入抑制手法を開発した。最後に、InGaN ベース LED を作製し、不純物混入の抑制によって LED の特性が向上することを示した。

本研究で用いた劈開 SCAM 基板は成長直前に SCAM 結晶のブールをカミソリで劈開することで作製した。劈開後に有機洗浄した基板を MOVPE 炉内に入れ、結晶成長を行った。その結果、平坦な GaN 薄膜を実現するた

めには、 H_2 クリーニングおよび低温 GaN 緩衝層成長の両方を GaN 成長前に行うことが重要であることを明らかにした。平坦な GaN 薄膜の表面では、AFM 測定から GaN の c 軸長にあたる高さ 0.57 nm のステップ・テラス構造が見られた。このステップの起源は、基板のステップではなく、螺旋転位による GaN のスパイラル成長であることを明らかにした。KOH によるエッチングの結果から、劈開 SCAM 基板上 GaN は Ga 極性であることを明らかにした。これは SCAM 基板上における Ga 極性成長の最初の報告であり、分子線エピタキシー法における N 極性成長と異なる成長様式であった。劈開面における Ga 極性成長を説明するため、電子カウンティングルールを考慮した構造モデルを提案した。X 線回折測定の結果、GaN 中に 0.055% の面内圧縮歪が存在し、ラマン散乱からも歪を確認することができた。この歪は GaN と SCAM の熱膨張係数差によるものであると考えられる。X 線回折ロックアップカーブの半値幅から見積もった劈開 SCAM 基板上 GaN の貫通転位密度は、同条件で成長したサファイア基板と比べて同等以下であった。貫通転位密度は低温 GaN 緩衝層の成長温度を高温化することで低減した。この傾向から、劈開 SCAM 基板上 GaN の貫通転位は、主に低温 GaN 緩衝層における低い成長温度に起因した積層欠陥を起源としていると考えられる。そのため、SCAM の GaN との低い格子不整合率の効果が見られず、ミスフィット転位が貫通転位の主要な起源となるまで低転位密度化が期待できる。

フォトルミネッセンス測定の結果から強いドナー・アクセプターペアに起因した発光が見られ、劈開 SCAM 基板上 GaN における不純物の混入が確認された。ドナーである Si をドープした GaN における Hall 測定の結果、サファイア基板上に比べて劈開 SCAM 基板上においてキャリア濃度と Hall 移動度の両方が減少しており、キャリアの補償率が高いことを明らかにした。この不純物混入経路を同定するため、不純物混入抑制構造を導入した。まず、界面からの拡散を抑制するため、Mg の拡散抑制が知られている AlN 層を挿入した構造を作製した。これによって固相拡散の抑制を目指した。また、基板の裏面と側壁をコーティングし保護層を形成することで、裏面からの脱離の抑制を目指した。保護膜の材料として、MOVPE 成長にも用いられるスパッタリング法によって堆積した SiO_2 を検討した。その結果、不純物混在の経路について Sc は GaN を拡散することで、Mg は気相を経由して取り込まれていると明らかにした。そして、それぞれ対応した不純物抑制構造として AlN 層の導入によって Sc を、裏面保護層の導入によって Mg を抑制可能であると明らかにした。また、裏面保護層として SiO_2 膜を用いた場合、O が炉内に放出され GaN 中に取り込まれるため、 SiN_x 膜が最適な裏面保護膜であることを明らかにした。不純物混在抑制のデバイスに与える影響を調べるため、LED を作製して評価を行った。その結果、不純物混在の抑制によってシート抵抗や発光強度といったデバイス特性を大きく改善することができた。本研究で作製した劈開 $ScAlMgO_4$ 基板上 InGaN ベース LED はサファイア基板上 LED に比べて高いデバイス特性を示すことはできなかったものの、不純物混在の抑制を追求することで同等の LED を実現可能であると考えられる。

以上の結果から、本論文では劈開 SCAM 基板上における GaN の有機金属気相成長についてその手法を確立するとともに、SCAM 基板由来の不純物混入とその経路および影響を明らかにした。また、不純物混入を抑制する手法を確立し、LED の発光強度を 1 桁改善することができた。本論文で確立した手法は SCAM 基板を用いた窒

化物半導体デバイスの作製において欠くべからざるものであり、高効率LEDの実現に向けた重要な研究である。

論文審査結果の要旨

本論文は、窒化物半導体を用いた発光ダイオードの特性向上に向けて、新規基板上への窒化物半導体の結晶成長法の確立に関する研究結果をまとめており、全5章からなる。

第1章は、序論であり、半導体デバイスの発展、窒化物半導体の物性や現状、および、本研究の目的について述べている。窒化物半導体のエピタキシャル成長に用いられる様々な基板について述べている。その中で、最も広く使われているサファイアと比較して、GaN との格子不整合率が一桁低く、研磨工程を行わずに劈開によってc面基板を作製できるScAlMgO₄をGaN発光デバイス用基板として導入している。

第2章は、実験方法について述べている。半導体デバイスの大量生産に用いられている成長法である有機金属気相成長法、成長試料の構造評価法、および、電気伝導特性評価法について述べている。

第3章は、劈開ScAlMgO₄基板上へのGaNの有機金属気相成長について述べている。水素雰囲気中における基板の熱処理時間、低温成長GaN緩衝層の膜厚、および、GaNの高温成長温度の最適化によって、Ga極性GaNを成長できることを示している。また、劈開ScAlMgO₄基板上にGaNを成長した場合の結晶成長モデルを考案している。最適化したGaNの成長条件を用いて、劈開ScAlMgO₄基板上に、InGa_xN_{1-x}/GaN量子井戸構造を発光層とする発光ダイオードを試作し、電気的な整流性と発光層からの発光を確認している。また、課題として、基板由来の不純物がGaNに混入することを述べている。

第4章は、劈開ScAlMgO₄基板上に成長したGaNへの不純物混入とその抑制方法について述べている。基板の側面・裏面の保護膜と、基板とGaN層の間にAlN中間層を挿入して成長したGaN薄膜について電気伝導特性を調べ、基板由来の不純物の混入経路が、気相経由とGaN/ScAlMgO₄界面経由の2種類であることを明らかにしている。さらに、二次イオン質量分析によって、基板由来の不純物を特定している。また、基板の側面・裏面の保護膜の材質と、気相経由による不純物混入抑制効果について、比較している。SiN_x基板保護膜と低温成長AlN中間層が気相経由と界面経由の不純物混入を抑制できることを示している。開発した不純物混入抑制法を用いて、劈開ScAlMgO₄基板上に発光ダイオードを作製し、直列抵抗や発光強度などの特性を向上できることを示している。

第5章は、本学位論文の総括であり、劈開ScAlMgO₄基板上へのGaNの有機金属気相成長、基板由来の不純物混入経路の特定とその抑制方法、および、不純物混入抑制構造を用いて作製したInGa_xN_{1-x}ベース発光ダイオードに関する結論を述べている。最後に、劈開ScAlMgO₄基板の特徴を活かしたInGa_xN_{1-x}ベース発光ダイオードの展望を述べている。

本論文は、劈開性を有し、かつ、格子不整合率の小さい新規基板上への窒化物半導体の結晶成長に注目した研究について述べている。本研究では、劈開ScAlMgO₄基板上へのGaNの成長条件を最適化し、その成長モデルを考案した。また、GaNに混入する基板由来の不純物と混入経路を特定し、その混入抑制法を明らかにした。不純物混入抑制法を用いてScAlMgO₄基板上に発光ダイオード作製し、不純物混入抑制にともない発光特性が向上することを示している。本研究で得られた結晶成長技術は、発光ダイオードの特性向上に有効であるばかりでなく、GaN基板作製用の下地としての応用も期待でき、応用物理学の発展に大きく貢献すると考えられる。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。