

Na フラックス法の高温育成によるバルク GaN 単結晶透明化

Transparent Bulk GaN Crystals Grown by High Temperature Na-flux Method

阪大・工 〇林正俊, 佐藤太郎, 山田拓海, 小川翔梧, 今西正幸,
村上航介, 今林弘毅, 松尾大輔, 丸山美帆子, 今出完, 吉村政志, 森勇介

Graduate School of Engineering, Osaka Univ.,

〇Masatoshi Hayashi, Taro Sato, Takumi Yamada, Shogo Ogawa, Masayuki Imanishi, Kosuke Murakami,

Hiroki Imabayashi, Daisuke Matsuo, Mihoko Maruyama, Mamoru Imade, Masashi Yoshimura, Yusuke Mori

E-mail: mhayashi@cryst.eei.eng.osaka-u.ac.jp

【はじめに】窒化ガリウム (GaN) を LED 材料として応用するには透明性の高い GaN ウェハが必要である。GaN ウェハを低コストで作製するにはバルク単結晶を作製し、ウェハを切り出すプロセスが理想的である。Na フラックス法は透明性が高く低転位密度を有する c 面結晶を育成可能であるが、バルク結晶成長を行うと $\{10\bar{1}1\}$ 面や m 面が黒色化することが知られており (Fig. 2(a))、その原因は窒素欠陥によるものと考えられている[1]。Ca・Li の共添加によって窒素溶解量が上がり透明 GaN 結晶が得られることは報告されているが[2]、多結晶収率が課題となっていた。本研究では、Ga-Na 溶液中への窒素溶解量が増加する高温条件に着眼して GaN 育成を行い、結晶の透明性を向上させることを試みた。

【実験と結果】c面GaNテンプレート (c-GaN/sapphire) をエッチングし、直径1 mmの微小GaN結晶を作製して種結晶とした。坩堝に種結晶と Ga、Na (Ga:Na=27:73 (mol%)) および炭素 (0.5 mol%) を充填後、ステンレス容器に封入し、900°C まで加熱し、Ga-Na溶液に4.0 MPaでN₂を加圧した。メルトバックを抑制するために24時間気相中保持し[3]、溶液が過飽和に達してから溶液中に浸漬し120時間育成した (Fig. 1(a))。その結果 (Fig. 2(c),(d))、透明性の高い結晶が得られたが、870°C、4.0 MPaのN₂雰囲気下 (Fig. 1(a)) で育成した結晶 (Fig. 2(b)) よりもモルフォロジーが悪化した。モルフォロジーの悪化は高温 (低過飽和) 条件による成長初期形状の違いに起因すると考え、これを解消するために、成長初期に低温 (高過飽和) プロセスを導入した。同様に原料を坩堝に充填後、育成初期の温度を880°Cとし、Ga-Na溶液に4.0 MPaでN₂を加圧した。種結晶を24時間気相中保持した後、溶液中に浸漬し5時間の高過飽和プロセスを経てから、900°C、4.0 MPaのN₂雰囲気下で60時間育成を行った (Fig. 1(c))。その結果、透明かつ良好なモルフォロジーをもつ結晶が得られた (Fig. 2(e),(f))。以上の結果から高温育成はGaNの透明化に有効であり、低過飽和育成の問題点である結晶モルフォロジーの悪化は、成長初期に高過飽和プロセスを組み合わせることにより改善可能であることが明らかになった。また、今回の育成法では多結晶は無く、透明バルク GaN単結晶育成に有利であると考えられる。

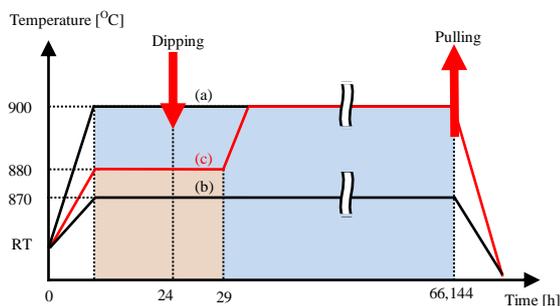


Fig. 1 Temperature programs

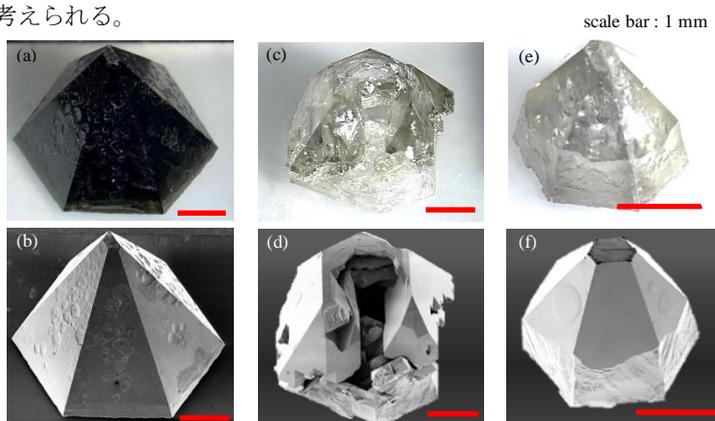


Fig. 2 Optical images (a),(c) and SEM images (b),(d) of the GaN crystal grown at 870°C or 900°C respectively. An optical image (e) and a SEM image (f) of the GaN crystal with the high supersaturation process(880°C) in the early stage.

- 【参考文献】 [1] H. Yamane *et al.*, Chem. Mater. 9 (1997) 413-416
[2] Y. Konishi *et al.*, Appl. Phys. Express 5 (2012) 025503
[3] T. Sato *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. (2015) *in press*.