

酸性鉱化剤を用いたアモノサーマル法による 電子デバイス用 GaN 結晶合成の進展

Recent progress in the ammonothermal growth of GaN crystals for power devices using
acidic mineralizers

東北大多元研¹, 三菱ケミカル², 日本製鋼所³

○秩父重英¹, 斉藤真^{1,2}, 包全喜^{1,3}, 栗本浩平³, 富田大輔¹, 嶋紘平¹, 小島一信¹,
鏡谷勇二², 茅野林造³, 石黒徹¹

IMRAM-Tohoku Univ.¹, Mitsubishi Chemical Corp.², Japan Steel Works³

○S. F. Chichibu¹, M. Saito^{1,2}, Q. Bao^{1,3}, K. Kurimoto³, D. Tomida¹, K. Shima¹, K. Kojima¹,
Y. Kagamitani², R. Kayano³, T. Ishiguro¹

E-mail: chichibu@tohoku.ac.jp

【はじめに】高出力・高効率 GaN 系光・電子デバイスの実現に向け、GaN 基板、エピ成長、プロセス技術やデバイスの研究開発が活発である。GaN 基板の作製法として、現在はハイドライド気相エピタキシー (HVPE)法が主流であり、高出力 LED や LD などへの応用が進んでいる。一方、パワースwitching素子をはじめとする、特に縦型電子デバイスの製造に用いるためには GaN 基板の大口径化が必須である。

大型バルク GaN 結晶の量産化が可能な手法の一つにアモノサーマル(AT)法が挙げられる。AT 法は超臨界水を溶媒とする人工水晶の水熱合成法と類似しており、高純度、低転位密度で反りも無く無歪の大口径 GaN 基板を安価に製造する手法として期待されている。東北大多元研では、バルク GaN 結晶の工業化を目指した AT 法の研究を、現三菱ケミカルと共に福田研時代の 2002 年に開始し、日本製鋼所を交えた現体制での共同研究は 10 年以上継続している。この間、鉱化剤にハロゲン化アンモニウムを用いることにより、Ga 極性 *c* 面で 100 $\mu\text{m}/\text{day}$ を超える高速成長を達成した[1,2]。また、鉱化剤気相合成法[3]や高純度金属 Ga を原料に用いる[4]等の高純度化技術開発を行って、AT 法成長 GaN 結晶が基板として使用できることを見出す[5,6]等の成果を上げてきた。本シンポジウム講演では、最近の成果と将来展望まで含めてお話しさせていただきたい。

【実験】超臨界 NH₃ を溶媒とする GaN 成長を行った。NH₃ に対する GaN の溶解度を高めるためハロゲン化アンモニウム(NH₄X)を鉱化剤として投入し、酸性雰囲気に行っている。このため、結晶成長を行う Ni 基合金製オートクレーブの内壁は Pt でライニングし、腐食を防止して結晶の汚染を防げる構造としている。オートクレーブは 2 ゾーンヒーターにより加熱し、ゾーン間に生じる温度勾配に起因する対流によって、原料域から成長域へ GaN の輸送を起こす。この際、Pt で製作したバッフルプレート为原料域と成長域の中間に配置し、対流量(原料搬送量)を制御している。

【主な結果】(i) 鉱化剤は、中間媒体として Ga 種を NH₃ 溶媒に溶解させる役割を担っており、形成される錯体の違い等が成長速度や結晶品質に大きな影響を与える。これらを最適化する事により、1 mm/day を超える高速成長でありながら、X 線ロックアップカーブの半値幅が 25arcsec 以下の高品質結晶の成長が可能であることを見出した。(ii)AT 法のオートクレーブは、超高压流体を保持する為に本体及び配管類全て肉厚で内径が細く、半導体製造に必要とされる高い純度を真空脱気によって得るのは困難である。そこで、脱酸剤を用いて純度を維持し、均一性の高い結晶を得る手法を得た。さらに、(iii)NH₃ 圧力が GaN 結晶成長速度に及ぼす影響を調査し、単に高压にすることよりも、鉱化剤濃度に適する圧力が存在することを明らかにした。これらの知見を用い、大口径化に適する比較的低压条件にて、バルク GaN 結晶の成長に成功した。

【謝辞】本研究の一部は、NEDO 低炭素 PJ , 文科省 官民イノベ東北大 BIP,物質・デバイス領域共同研究拠点/ダイナミック・アライアンス,科研費(新学術・特異構造 16H06427)の援助を受けた。

【文献】[1] Tomida *et al.*, JCG 353 (2012) 59. [2] Bao *et al.*, Cryst. Growth Design 13 (2013) 4158. [3] Tomida *et al.*, JCG 348 (2012) 80. [4] Bao *et al.*, CrystEngComm 14 (2012) 3351. [5] Chichibu *et al.*, APEX 4 (2011) 045501. [6] 秩父重英, 応用物理 81 (2012) 502.