

Oral presentation | 15 Crystal Engineering : 15.4 III-V-group nitride crystals

📅 Thu. Sep 19, 2024 9:00 AM - 11:30 AM JST | Thu. Sep 19, 2024 12:00 AM - 2:30 AM UTC 🏨 C42 (Hotel Nikko 4F)

[19a-C42-1~9] 15.4 III-V-group nitride crystals

Atsushi Tanaka(Nagoya Univ.), Shigeyoshi Usami(阪大)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

9:00 AM - 9:15 AM JST | 12:00 AM - 12:15 AM UTC

[19a-C42-1]

Reduction of polycrystals in low dislocation GaN crystal growth using meltback in the Na-flux method

○Shogo Washida¹, Masayuki Imanishi¹, Kosuke Murakami¹, Shigeyoshi Usami¹, Mihoko Maruyama¹, Masashi Yoshimura^{1,2}, Yusuke Mori¹ (1.Osaka Univ., 2.ILE, Osaka Univ.)

9:15 AM - 9:30 AM JST | 12:15 AM - 12:30 AM UTC

[19a-C42-2]

A Study on the Classification of Threading Dislocations in GaN Substrates by Spot Size using X-ray Topography High-Resolution Images

○Masakazu Kanechika¹, Satoshi Yamaguchi², Yoshihiro Kishida², Kazuhisa Isegawa², Kohsuke Kitazumi², Yasuji Kimoto² (1.Nagoya Univ., 2.Toyota Central R&D Labs., Inc.)

9:30 AM - 9:45 AM JST | 12:30 AM - 12:45 AM UTC

[19a-C42-3]

CMP Properties of OVPE-GaN Substrates with High Oxygen Concentration

○Jinta Nakase¹, Fuminori Takami¹, Junichi Takino¹, Tomoaki Sumi¹, Yoshio Okayama¹ (1.Panasonic Holdings Corp.)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

9:45 AM - 10:00 AM JST | 12:45 AM - 1:00 AM UTC

[19a-C42-4]

Characteristics on electrochemical etching of high carrier concentration OVPE-GaN

○(B)Sogo Yokoi¹, Shigeyoshi Usami¹, Masayuki Imanishi¹, Tomoaki Sumi², Junichi Takino², Yoshio Okayama², Ryota Ito³, Masahiko Hata⁴, Atsushi Tanaka⁵, Yoshio Honda⁵, Hiroshi Amano⁵, Mihoko Maruyama¹, Masashi Yoshimura⁶, Yusuke Mori¹ (1.Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ., 2.Panasonic Holdings Corp., 3.Sumitomo Chemical Co., Ltd., 4.Itochu Plastics Inc., 5.IMaSS Nagoya Univ., 6.ILE, Osaka Univ.)

10:00 AM - 10:15 AM JST | 1:00 AM - 1:15 AM UTC

[19a-C42-5]

Effect of H₂ annealing on pit formation in HVPE-AlN growth on 4H-SiC(000-1)

○Arashi Sato¹, Hisashi Murakami¹ (1.TUAT)

10:30 AM - 10:45 AM JST | 1:30 AM - 1:45 AM UTC

[19a-C42-6]

Growth of InGaN-based MQW on strain-relaxed InGaN intermediate layer via THVPE

○Chiho Yamada¹, Satoru Nakai¹, Hisashi Murakami¹ (1.TUAT)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

10:45 AM - 11:00 AM JST | 1:45 AM - 2:00 AM UTC

[19a-C42-7]

Sputter-growth of GaN thin Films utilizing Bayesian optimization

○Akinori Saito¹, Riki Kanetake¹, Naoomi Yamada¹ (1.Chubu Univ.)

11:00 AM - 11:15 AM JST | 2:00 AM - 2:15 AM UTC

[19a-C42-8]

Pulsed Sputtering Growth of GaN film using Sintered Target

○(M1)Kohei Nomura¹, Koo Bando², Yoshihiro Ueoka², Yoshiro Kususe², Mesuda Masami², Masahiro Uemukai¹, Tomoyuki Tanikawa¹, Ryuji Katayama¹ (1.Osaka Univ, 2.Tosoh Corp)

11:15 AM - 11:30 AM JST | 2:15 AM - 2:30 AM UTC

[19a-C42-9]

Fabrication and evaluation of Mg-containing GaN sputtering targets

○Erisa Kano¹, Koo Bando¹, Hidehiko Misaki¹, Yoshihiro Ueoka¹, Masami Mesuda¹ (1.Tosoh Corporation)

Na フラックス法におけるメルトバックを利用した 低転位 GaN 結晶成長における多結晶の低減

Reduction of polycrystals in low dislocation GaN crystal growth using meltback in the Na-flux method

阪大院工¹, 阪大レーザー研² ○鷲田 将吾¹, 今西 正幸¹, 村上 航介¹,
宇佐美 茂佳¹, 丸山 美帆子¹, 吉村 政志^{1,2}, 森 勇介¹

Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ.¹, ILE, Osaka Univ.²

○Shogo Washida¹, Masayuki Imanishi¹, Kosuke Murakami¹,
Shigeyoshi Usami¹, Mihoko Maruyama¹, Masashi Yoshimura¹, Yusuke Mori¹

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

【背景】 窒化ガリウム (GaN) を用いた縦型パワーデバイスの実現には低転位な GaN 基板が必要である。さらなる低転位化に向け、我々は未飽和の Ga-Na 融液内におけるメルトバックを利用する手法を新たに提案した^[1]。種結晶表面にメルトバックを起因とする凹凸を形成し、その表面上に結晶成長をすることで $\{10\bar{1}1\}$ 面等のファセットによる成長が誘起される。ファセットによる成長中に転位が会合及び対消滅し転位密度の低減がみられた。しかしながら、当該手法ではメルトバック時に種結晶から分離した結晶を起点とする多結晶の発生が問題となっていた。種結晶からの結晶分離を抑制するためには、メルトバック条件を緩和することが有効であると考えられるが、表面の凹凸が縮小しファセットによる転位低減効果が小さくなる懸念がある。したがって、本研究では多結晶低減とファセットによる転位低減の両立のため、メルトバック条件を窒素圧力及び温度により制御し、メルトバック後の結晶表面状態及び多結晶への影響を調査した。

【実験と結果】 まず、Na フラックス製 GaN 結晶をメルトバックさせるため Ga-Na 融液を未飽和にする。通常の結晶成長では窒素圧力及び温度を 3.0 MPa 及び 880°C とするが、メルトバック促進のため窒素圧力及び温度を 1.0 MPa 及び 880°C (条件 A) と 2.0 MPa 及び 900°C (条件 B) とした。Ga-Na 融液への窒素溶解量が平衡状態になるまで、昇温後 GaN 結晶を 24 h 気相中に保持し、その後、結晶を 6 h 融液に浸漬した。作製したサンプルの重量の低下からメルトバックレートを算出した。また、サンプルをへき開し Fig. 1 に示すような断面走査型電子顕微鏡 (SEM) 像から結晶表面の凹凸高さを計測した。条件 A のメルトバックレートは 21.3 mg/h、凹凸高さは 18-150 μm であったのに対し、条件 B のメルトバックレートは 11.0 mg/h、凹凸高さは 14-82 μm だった。よって条件 B によるメルトバックレートが低く、メルトバックレートの低下に伴い凹凸高さが低下することがわかった。次に、条件 B によるメルトバック後に続けて結晶成長を行い、結晶の成長量及び多結晶量を調査した。Fig. 2 に今回育成した結晶と従来の条件である 1.0 MPa 及び 900°C において 1 h メルトバックした後結晶成長した結晶の光学像を示す。従来条件におけるメルトバックレートが 36.2 mg/h 及び育成結晶及び多結晶の重量が 0.02 g 及び 0.73 g であったのに対し、条件 B においては 0.85 g 及び 0.0 g と多結晶が発生しなかった。よって、メルトバックレートの低下により多結晶低減及びファセット成長の両立が可能だと考えられる。表面凹凸高さは小さくなっておりファセット成長領域の縮小も予想されるが、この転位密度への影響は今後調査する。

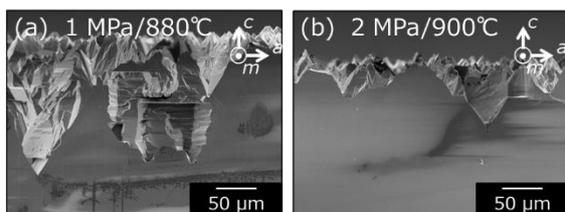


Fig. 1. Cross-sectional SEM images of crystals which were melted under (a) 1.0 MPa/880°C (condition A) or (b) 2.0 MPa/900°C (condition B).

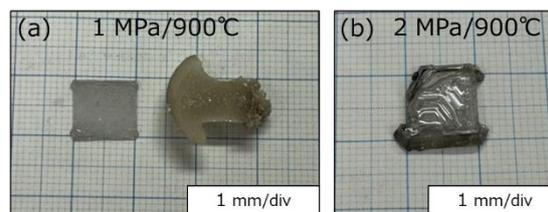


Fig. 2. Optical images of crystals which were grown after melting under (a) 1.0 MPa/900°C (conventional condition) or (b) 2.0 MPa/900°C (condition B).

【参考文献】

[1] S. Washida *et al.*, ICNS-14, GR12-6 (2023).

【謝辞】

本研究は JSPS 科研費 JP24KJ1636 の助成を受けたものです。

反射 X 線トポグラフィ像の転位スポットサイズによる GaN 基板中の貫通転位種の同定

A Study on the Classification of Threading Dislocations in GaN Substrates by Spot Size
using X-ray Topography High-Resolution Images

名大¹, 豊田中研² ◯兼近将一¹, 山口聡², 岸田佳大², 伊勢川和久², 北住幸介², 木本康司²

Nagoya Univ.¹, Toyota Central R&D Labs., Inc.²

◯M. Kanechika¹, S. Yamaguchi², Y. Kishida², K. Isegawa², K. Kitazumi², Y. Kimoto²

E-mail: kanechika.masakazu.z0@f.mail.nagoya-u.ac.jp

[研究の目的]

縦型 GaN パワーデバイスの実用化には、高品質な GaN 基板が必要であるが、市販基板の転位密度は $10^5 \sim 10^6/\text{cm}^2$ であり、刃状、らせん、混合転位が多数含まれている。転位種ごとにデバイス特性への影響は異なる[1]ため、非破壊で転位種を分類する方法が求められている。その有力な方法として、反射 X 線トポグラフィが挙げられる。本研究では、放射光による単色 X 線および高解像度デジタル X 線カメラを活用し、反射 X 線トポグラフィにより得られた転位のスポットサイズのみに着目して転位種の同定を検討した。

[実験]

アモナーマル法によって成長された GaN 結晶を用いた。SPring-8 の放射光 (BL16B2) を用い、回折条件としては 0008 反射を用いた。今回は、 $1.3\text{mm} \times 1.3\text{mm}$ の領域に限定して、X 線カメラ (XSight Micron™ LC) を用いた。トポグラフィ像における転位スポットサイズは転位周辺の歪場を反映しているため、そのサイズはエッチピットサイズと同様な関係 (らせん > 混合 > 刃状) と考えた。スポットサイズと転位種の相関を調べるため、エッチピットおよび断面 TEM 観察を行った。

[結果]

図 1 にトポグラフィ像、図 2 に同領域のエッチピットの顕微鏡写真を示す。トポグラフィ像のスポットとエッチピットの位置は対応している。今回、トポグラフィ像において大サイズの L2 と中サイズの M2 に着目した。これらは、エッチピットでも同様な大小関係が確認できる。断面 TEM で観察したところ、L2 はらせん転位、M2 は混合転位であった。トポグラフィ像におけるスポットサイズのみで転位種の同定できる可能性を得た。今後の非破壊転位種の検出に活用する。

[参考文献] [1] T. Narita *et al.*, scientific reports (2022) 12:1458.

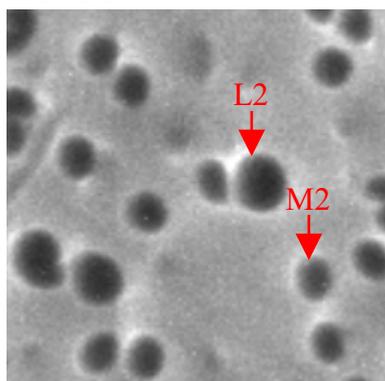


図 1 トポ像 ($70\mu\text{m} \times 70\mu\text{m}$) ←g

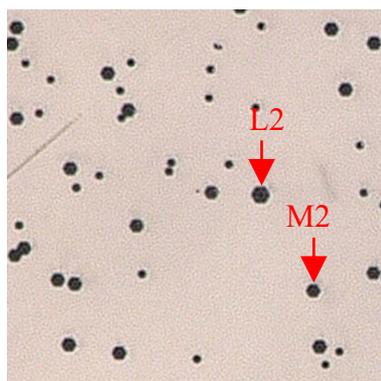


図 2 エッチピット

高酸素濃度を有する OVPE-GaN 基板の CMP 特性

CMP Properties of OVPE-GaN Substrates with High Oxygen Concentration

パナソニックホールディングス株式会社

○中瀬 仁太, 高見 文宣, 滝野 淳一, 隅 智亮, 岡山 芳央

Panasonic Holdings Corp.

○Jinta Nakase, Fuminori Takami, Junichi Takino, Tomoaki Sumi, Yoshio Okayama

E-mail: nakase.jinta@jp.panasonic.com

Oxide Vapor Phase Epitaxy (OVPE) 法は低転位密度 ($2 \times 10^4 \text{ cm}^{-2}$) かつ低電気抵抗 ($9.77 \times 10^{-4} \Omega \text{ cm}$) な GaN 基板を作製可能な手法であり、縦型 GaN パワーデバイスの性能向上への寄与が期待されている[1]。デバイスの製造にはダメージフリーかつ平坦な基板が不可欠であり化学機械研磨 (CMP) は重要な工程である。しかし OVPE-GaN 基板に対する CMP プロセスはいまだ確立されていない。そこで本研究では、OVPE-GaN に対して種々の条件で CMP を行い、その特性を評価した。

OVPE-GaN 基板を 13 mm 角に切り出し、機械研磨を行った。その後+c 面に市販シリカスラリーと不織布パッドを用いて 100 分間の CMP を施した。ここでは実験結果の一例を示す。表面粗さは原子間力顕微鏡により評価し、研磨速度 (MRR) を研磨前後の重量変化から求めた。3 μm 角の範囲の表面粗さは $R_a = 0.08 \text{ nm}$ であり、 $MRR = 1060 \text{ nm/h}$ であった。比較のため HVPE 法で作製された市販 GaN 基板 (転位密度: $\approx 6 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$, 比抵抗: $\approx 2.0 \times 10^{-2} \Omega \text{ cm}$) に同一条件で 600 分間の CMP を施した。その結果、HVPE-GaN の表面粗さは $R_a = 0.07 \text{ nm}$ であり、 $MRR = 90 \text{ nm/h}$ であった。各々の結果を Fig. 1 と Fig. 2 に示す。GaN の CMP では酸化剤の添加により表面の Ga-O 結合の割合が増加し、MRR が向上すると報告されている[2]。Dynamic Secondary-Ion Mass Spectroscopy により測定した OVPE-GaN と HVPE-GaN の酸素濃度は $1.3 \times 10^{21} \text{ atoms/cm}^3$ と、 $2.0 \times 10^{16} \text{ atoms/cm}^3$ であった。これらの結果から、高濃度に酸素添加された OVPE-GaN は Ga-O 結合を多く有し、高い MRR が得られたと考えられる。本講演ではその他の研磨条件を含め、各種評価結果について詳細を述べる。

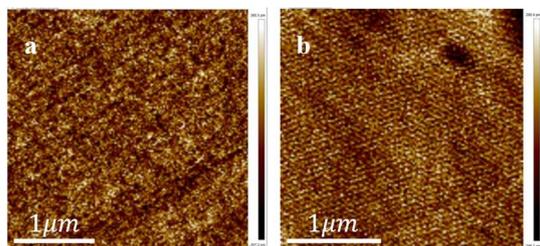


Fig. 1. AFM Images of the (a)OVPE-GaN and the (b)HVPE-GaN.

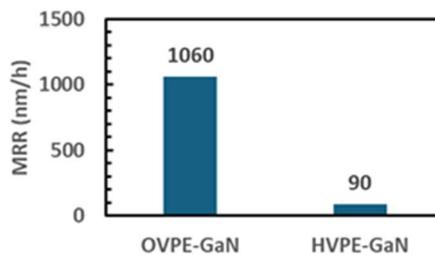


Fig. 2. MRR of the OVPE-GaN and the HVPE-GaN.

【謝辞】本研究の一部は環境省「革新的な省 CO2 実現のための部材や素材の社会実装・普及展開加速化事業」の支援を受けて行われた。

【参考文献】

[1] J. Takino et al., Jpn. J. Appl. Phys. **60** 095501 (2021).

[2] Y. Zhu et al., Mater. Sci. Semicond. Process. **138** 106272 (2022).

高キャリア濃度 OVPE-GaN の電気化学エッチングに関する特性

Characteristics on electrochemical etching of high carrier concentration OVPE-GaN

阪大院工¹, パナソニックホールディングス(株)², 住友化学(株)³,

伊藤忠プラスチック(株)⁴, 名大未来研⁵, 阪大レーザー研⁶,

○(B)横井創吾¹, 宇佐美茂佳¹, 今西正幸¹, 隅智亮², 滝野淳一², 岡山芳央², 伊藤瞭太³,

秦雅彦⁴, 田中敦之⁵, 本田善央⁵, 天野浩⁵, 丸山美帆子¹, 吉村政志⁶, 森勇介¹

Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ.¹, Panasonic Holdings Corp.², Sumitomo Chemical Co., Ltd.³,

Itochu Plastics Inc.⁴, IMaSS Nagoya Univ.⁵, ILE, Osaka Univ.⁶,

○S. Yokoi¹, S. Usami¹, M. Imanishi¹, T. Sumi², J. Takino², Y. Okayama², R. Ito³,

M. Hata⁴, A. Tanaka⁵, Y. Honda⁴, H. Amano⁵, M. Maruyama¹, M. Yoshimura⁶, and Y. Mori¹

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

【研究背景】窒化ガリウム(GaN)はその優れた物性から、高効率な半導体パワーデバイスの社会実装に向けて研究が進められている。GaNは電気化学エッチングで溶解させることが可能であることが報告されており^[1], 半導体プロセスへの応用が期待されている。一方、GaNの電気化学エッチング特性についての報告の多くはキャリア濃度が $10^{16} \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の領域にあり^[2], 高濃度にドーピングされた n^+ -GaNに対するエッチングの報告は少ない。我々がバルクGaNの作製法として開発を進めているオキサイド気相成長(OVPE)法は、III族原料として Ga_2O を使用することからGaN結晶中に酸素不純物が高濃度で取り込まれ 10^{20} cm^{-3} を超えるキャリア濃度となる^[3], この特性を利用し、本実験ではOVPE法を用いてエピタキシャル成長させた高キャリア濃度 n^+ -GaNに対する電気化学エッチングの加工性を調査した。

【実験・結果】HVPE法で作製された市販のGaN基板に、育成時のIII族原料の供給量を調整しキャリア濃度に差をつけたOVPE-GaNをエピタキシャル成長させた。リファレンスには種基板として使用したSiドープ、アンドープGaN基板を使用した。それぞれのGaN基板を陽極、プラチナ(Pt)電極を陰極として、印加電圧13Vの水酸化カリウム1mol/L

水溶液中で電気化学エッチングを行った後、サンプルを走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて評価を行った。断面の観察からOVPE-GaN層は $3000 \mu\text{m/h}$ を超える速度でエッチング可能であることが確認された。OVPE-GaNがエッチングにより表面が大きく削りとられた(Fig. 1)のに対し、SiドープGaNはc軸方向への微細なエッチングにより多孔質に変化するとどまり、アンドープGaNはエッチングが進行しなかった。これらのエッチレートとキャリア濃度の関係をFig. 2に示す。以上の結果は、高キャリア濃度のGaNが電気化学エッチングによって容易に加工可能であることを示唆する。



Fig. 1. OVPE-GaN substrate almost removed by etching

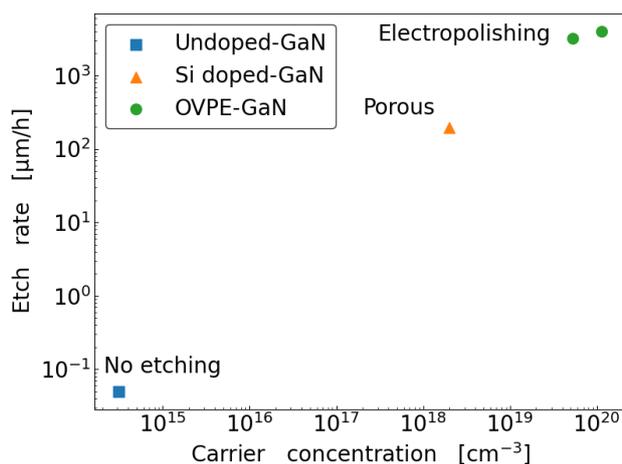


Fig. 2. Relationship between carrier concentration and etch rate

【参考文献】

- [1] W. J. Tseng *et al.*, J. Phys. Chem. C, **118**, 29492–29498 (2014).
 [2] Y. Zhang *et al.*, Phys. Status Solidi B **247**, 1713–1716 (2010).
 [3] J. Takino *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, SC1043 (2019).

【謝辞】

本研究の一部は環境省「革新的な省CO2実現のための部材(GaN)や素材(CNF)の社会実装・普及展開加速化事業」の委託を受けて行われた。

4H-SiC(000-1)上 HVPE-AIN 成長における 成長前水素アニールがピット形成に与える影響

Effect of H₂ annealing on pit formation in HVPE-AIN growth on 4H-SiC(000-1)

東京農工大院 BASE ○(M1)佐藤嵐士, 村上尚

Tokyo University of Agriculture and Technology, Arashi Sato and Hisashi Murakami

E-mail: murak@cc.tuat.ac.jp

AINはAlGaN系深紫外発光デバイスの基板材料として有望な半導体材料である。近年では、高い深紫外透過性及び低い転位密度を有する AIN ウェハ作製が報告されているが¹⁾、現状の AIN 基板は、高価格かつ小口径のものに限られる。本研究では、比較的安価で大口径の基板が入手可能な 4H-SiC に着目し、HVPE 法による 4H-SiC 基板上 AIN 成長の検討を行った。今回は、AIN 成長前の基板水素処理により意図的に表面にステップバンチングを起こし、様々なマクロステップ表面上での AIN 成長を行い、ピット形成挙動や AIN 厚膜の結晶品質への影響について調査を行った。

AIN 成長には縦型の石英反応管を用い、AlCl₃ 及び NH₃ を原料ガスとして使用した。初期基板には 4 度オフ 4H-SiC(000-1)基板を用い、1375 °C に加熱した成長部で AlCl₃ と NH₃ を反応させることで AIN を成長した。意図的なステップバンチングのために、AIN 成長前に 1375 °C にて SiC(000-1)基板を H₂ 雰囲気下で表面アニール処理した。

Fig.1 に成長前水素アニール時間を 10~60 分に変化し、AIN 膜を 3 μm 成長した際の鳥瞰 SEM 像を示す。水素アニール時間の変化により AIN 成長層表面に現れるピット密度及び大きさが変化し、60 分の時はピットが形成されず平坦化したことから、ステップバンチングによって出現するマクロステップの高さやテラス幅が水素アニールの時間によって変化し、ステップ端での AIN 成長の挙動が変化した結果であると考察した。アニール直後の表面モロロジーや結晶品質への影響については当日報告する。

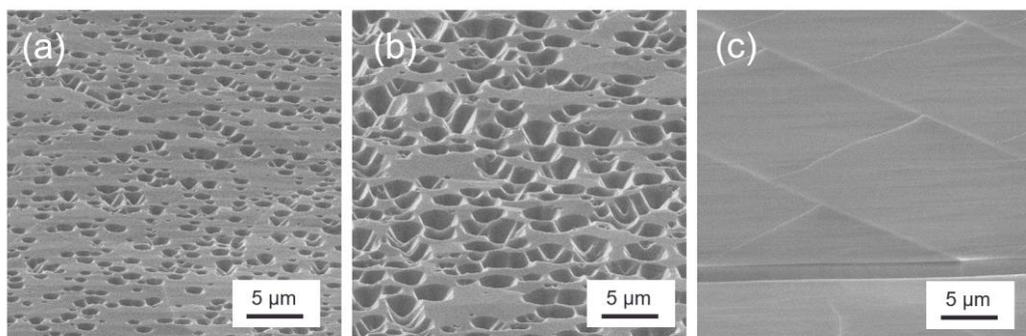


Fig.1 Bird's-eye view SEM micrographs of AlN layers grown on 4H-SiC (000-1) substrate:

(a) Annealing time 10min. (b) Annealing time 20min. (c) Annealing time 60min.

参考文献

- 1) T. Nagashima *et al.*, J. Cryst. Growth, **540**, 125644 (2020).

THVPE 法による歪緩和 InGaN 中間層上 InGaN 多重量子井戸成長 Growth of InGaN-based MQW on strain-relaxed InGaN intermediate layer via THVPE

東京農工大院 BASE °(M2) 山田千帆, (M1) 中井慧, 村上尚

Tokyo University of Agriculture and Technology, °Chiho Yamada, Satoru Nakai, Hisashi Murakami,

E-mail: s236826v@st.go.tuat.ac.jp

III 族窒化物混晶半導体の一つである $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ は、In 組成比によってバンドギャップエネルギーを制御でき、可視光全域に渡って光の受発光が可能な材料として研究が活発に行われている。現在、青～緑色領域の短波長領域において外部量子効率(EQE)=80%以上の高効率な InGaN 系発光デバイスが実用化されているが、長波長領域では高効率な発光デバイスの実用化に至っていない。これは、In 組成の増加に伴う多重量子井戸(MQW)中の InGaN 活性層に加わる歪の増大により、結晶品質や In 取りこみ効率の低下が引き起こされるためと考えられ、その解決方法として、InGaN 活性層中の歪を低減する歪緩和 InGaN 層の導入が挙げられる^[1]。本研究では、InGaN の成長法として、原料に金属三塩化物を用いるトリハライド気相成長(THVPE)法を提案している。THVPE 法は、高温域で優れた組成制御性を示すほか^[2]、N 極性 GaN 基板上 InGaN 成長において、理論上計算される値よりも大きい臨界膜厚を示す特異な現象を有する。これらの特徴から、THVPE 法は高品質な InGaN 活性層の成長に有用である。本研究では、活性層の高品質化と In 取り込み向上を目的として、THVPE法を用いて歪緩和 InGaN 層上に InGaN 多重量子井戸層を成長し、歪緩和 InGaN 中間層導入の効果を調査した。

InGaN エピタキシャル成長において III 族原料および V 族原料に GaCl_3 、 InCl_3 および NH_3 を用いた。N 極性 GaN 基板上に In 組成 9%、歪緩和率 10~30%の歪緩和 InGaN 中間層を 840°Cで成長後、InGaN(30nm)/GaN(70nm)MQW 構造を 870°Cで 10 周期成長した。

Fig.1 に、歪緩和 InGaN 中間層の歪緩和率に対する InGaN 活性層の発光波長および In 組成を示す。緩和率 0%の点は、GaN 基板上に直接 MQW を成長した際のデータを示している。InGaN 中間層の歪緩和率の増加と共に、InGaN 活性層の発光波長および In 組成の増加が確認された。この In 組成の増大から、InGaN 活性層中の歪の低減が示唆された。また、InGaN 活性層からの PL 発光スペクトルの半値幅は InGaN 中間層の歪緩和率に関わらず一定であった。したがって、THVPE 法による歪緩和 InGaN 中間層上の成長により、結晶品質を維持した高 In 組成 InGaN 活性層成長の可能性が示唆された。

[1] P. Chan *et al.*, Appl. Phys. Express **14**, 101002 (2021).

[2] K. Hanaoka, H. Murakami *et al.*, J. Cryst. Growth., **318**, (2011).

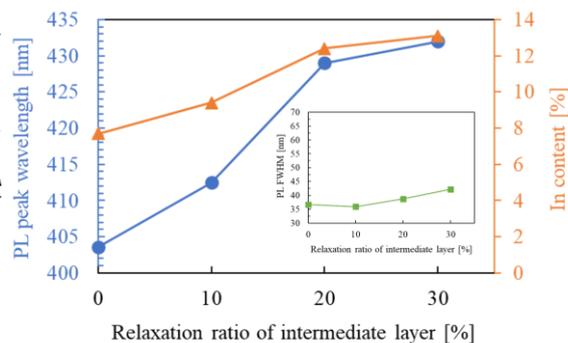


Fig 1. Indium content, PL peak wavelength and its FWHMs of InGaN active layers as a function of relaxation ratio of intermediate layer.

ベイズ最適化を活用した GaN 薄膜のスパッタ成長

Sputter-growth of GaN thin Films utilizing Bayesian optimization

中部大院工 ○齋藤明紀, 金武凜樹, 山田直臣

Chubu Univ. ○A. Saito, R. Kanetake, N. Yamada

E-mail: n-yamada@isc.chubu.ac.jp

【背景と目的】現在 GaN 層の成長は有機金属気相成長法 (MOCVD 法) を用いるの主流である。一方、スパッタ法は低温で高品質な薄膜を低コストで成長できる特徴がある。しかし、GaN 焼結体ターゲットを用いたスパッタ成長の研究例は少なく、最適な成長条件が確立されているとは言い難い。そこで、本研究ではインフォマティクス技術の一つであるベイズ最適化[1]を活用し、GaN 薄膜の最適な成長条件を探索した。

【実験】GaN ターゲット (東ソー製) を用いた RF マグネトロンスパッタ法により c-Al₂O₃ 上へ GaN 薄膜をエピタキシャル成長させた。変化させた成長パラメータは、成長温度 (T_g)、全圧 (P)、窒素流量比 (F_{N_2}) の3つとした。X線回折法で結晶性を評価した。GaN の 002 ピークの強度と半値幅をそれぞれ I_{GaN} と w 、GaN エピ層の膜厚を t 、Al₂O₃ の 006 ピークの強度を I_{sap} とし、結晶性 Y を次のように定義した。

$$Y = \frac{(I_{GaN}/I_{sap})}{w} \cdot \frac{1}{t}$$

T_g 、 P 、 F_{N_2} を説明変数、 Y を目的変数とし [$Y=f(T_g, P, F_{N_2})$]、 Y が最大化するようにベイズ最適化した。その際、カーネル関数にラジアル基底関数 (RBF)、獲得関数に上限信頼境界 (UCB) を採用した。

【結果と考察】

ベイズ最適化による Y 値の推移を Fig. 1 に示す。5 つの学習データを元にベイズ最適化したところ、結晶性が大幅に向上した。第 2 ループ目 (Data ID = 7) で最適化が完了し、その後は同じ成長条件がプログラムから提案されるようになった。その条件でもう一度成長させたところ (Data ID = 8)、第 2 ループ目と同様の Y 値が得られ、最適化が完了していることを再確認した。

Y 、 T_g 、 F_{N_2} 、 P の相関係数のヒートマップを Fig. 2 に示す。 T_g と F_{N_2} は、 Y と正の相関があり、相関係数 (r) はそれぞれ 0.67 と 0.55 であった。一方、 P は

Y と負の相関を有しており、 $r=-0.44$ であった。つまり、結晶性を向上させるには、① T_g を高くして基板に到達した原子 (Ga, N) のマイグレーションを促進すること、② F_{N_2} を高くして GaN 成長表面からの窒素脱離を抑制すること、③ P を低くしてスパッタ原子の運動エネルギーのロスを抑え、成長表面に到達したときに十分な運動エネルギーを持たせることが重要であることがわかった。

ベイズ最適化はスパッタによる GaN 成長の条件確立に有効であることがわかった。本手法は MOCVD 法等にも適用可能と予想される。

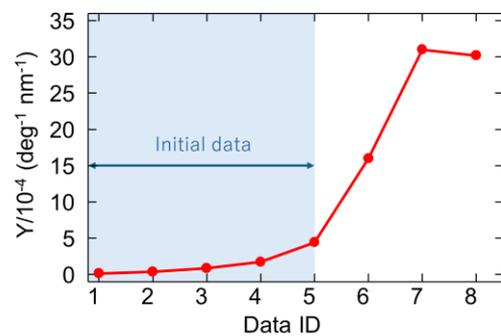


Fig. 1 Evolution of crystallinity Y via Bayesian Optimization.

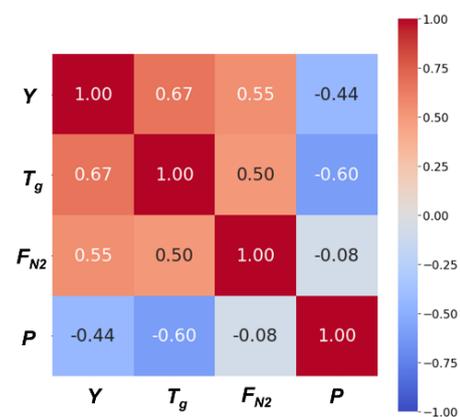


Fig. 2 Heatmap of the correlation matrix showing the relationships between the objective variable (Y) and explanatory variables (T_g , F_{N_2} , and P).

【参考文献】

1. H. Xu et al., *Sci. Technol. Adv. Mater. Meth.* **3**, 2 (2023).

焼結体ターゲットを用いた GaN 薄膜のパルススパッタ成長

Pulsed Sputtering Growth of GaN film using Sintered Target



阪大院工¹, 東ソー株式会社² ◯(M1)野村 航平¹, 板東 廣朗², 上岡 義弘²,

楠瀬 好郎², 召田 雅実², 上向井 正裕¹, 谷川 智之¹, 片山 竜二¹

Osaka Univ.¹, Tosoh Corp.², ◯Kohei Nomura¹, K. Bando², Y. Ueoka²,

Y. Kususe², M. Mesuda², M. Uemukai¹, T. Tanikawa¹, R. Katayama¹

E-mail: nomura.k@qoe.eei.eng.osaka-u.ac.jp

InGaN LED や GaN HEMT などの窒化物半導体デバイスのオーミック電極用途として、低温で高品質膜を形成可能なスパッタ法による低抵抗 GaN 薄膜の成膜技術が注目を集めている。GaN のスパッタ成膜では金属ガリウムまたは GaN 焼結体がターゲットとして用いられるが、焼結体ターゲットは金属ガリウムターゲットと比べ耐環境性に優れ、安定したプロセスが期待できる。本研究では、パルススパッタリング法を用いて焼結体ターゲットを用いた GaN 薄膜のホモエピタキシャル成長を行い、スパッタリング条件が及ぼす GaN 薄膜の品質への影響について調べた。

成長用基板に *c* 面 GaN テンプレートを用いて、基板温度 550~600 °C で GaN 薄膜を 1 時間、N₂/(Ar + N₂)比 0%のときのみ 2 時間成長させた。成長圧力を 10 Pa で一定とし、供給ガスの N₂/(Ar + N₂)比(分圧比)を変化させた。表面モフォロジーはガス比によって顕著に変化した。Ar のみを用いて N₂/(Ar + N₂)比 0%で成長させると表面には高密度の Ga 液滴が析出し (Fig. 1(a))、わずかに N₂を導入して N₂/(Ar + N₂)比 2%とすると、Ga 液滴の密度は著しく低減した (Fig. 1(b))。さらに N₂分圧を増加させ N₂/(Ar + N₂)比 5%で成長させると、Ga 液滴は消失し高密度のピットが発生した (Fig. 1(c))。成長レートは Ga 液滴密度と相関があり、N₂/(Ar + N₂)比の増加に伴い Ga 液滴密度が減少し成長レートが増加した (Fig. 2(a))。非対称 10 $\bar{1}$ 1 反射の X 線ロックンクカーブ (XRC)測定 (Fig. 2(b))から成長膜の結晶性を評価したところ、N₂/(Ar + N₂)比 5%で成長させた試料ではブロードなプロファイルが裾に現れ、テンプレートと比較してスパッタ成長膜の結晶性の悪化が示唆された。一方、N₂/(Ar + N₂)比 0%で成長させた試料ではこのような裾は見られず、テンプレートの品質を引き継いで高品質な GaN 薄膜が成長している可能性が示唆された。以上から、焼結体ターゲットを使用したスパッタリング成長においても N₂ ガスを導入した反応性スパッタリングによる表面ストイキオメトリの制御が必要で、下地層の結晶品質を引き継いでホモエピタキシャル成長させるためには Ga 液滴が表面に析出する Ga リッチ側に最適条件が存在することが分かった。当日は成長条件が及ぼす電気特性や光学特性への影響についても議論する。

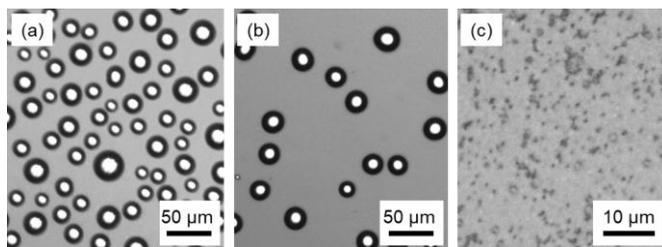


Fig. 1. Optical microscope images of GaN films grown with N₂/(Ar + N₂) ratio of (a) 0%, (b) 2% and (c) 5%.

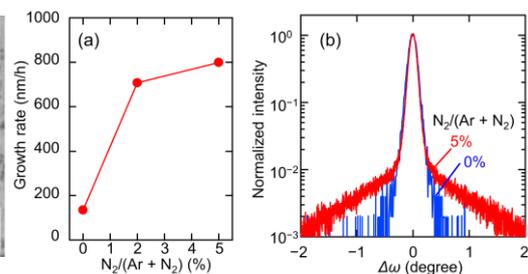


Fig. 2. (a) Growth rate and (b) XRC for skew symmetric 10 $\bar{1}$ 1 reflection.

Mg 含有 GaN スパッタリングターゲットの作製と評価

Fabrication and evaluation of Mg-containing GaN sputtering targets

東ソー株式会社 °加納 絵梨沙, 板東 廣朗, 三崎 日出彦, 上岡 義弘, 召田 雅実

Tosoh Corporation, °Erisa Kano, Koo Bando, Hidehiko Misaki, Yoshihiro Ueoka, Masami Mesuda

E-mail: masami-mesuda-uy@tosoh.co.jp

【緒言】

スパッタリング法を用いた GaN の成膜は、従来の MOCVD 法のような大量のアンモニアや除害設備が不要なため、より低コストかつ低毒性なプロセスとして期待されている。

当社では、独自の焼結技術による高密度・低酸素な GaN 焼結体ターゲットを開発しており、サファイア基板上で MOCVD 法と同等の X 線ロックアップカーブ半値幅を持つ GaN の成膜 [1]、スパッタ GaN 薄膜の内部応力制御[2]を報告している。さらに、



Fig. 1 280×110 mm GaN target

量産装置に適用可能な φ12 インチサイズや角型大型ターゲットの作製も検討中である (Fig. 1)。

スパッタ GaN 薄膜の各種デバイスへの適用にあたり、ドーパントとなるターゲットと GaN ターゲットとの co-スパッタにて p 型・n 型 GaN を作製可能だが、正確なドーパ量の制御が困難である。そこで、過去の講演会にて n 型ドーパントである Si の含有量を精密に制御した GaN ターゲットを開発したことを報告した[3]。本研究では、p 型ドーパントである Mg を含有した GaN ターゲットについて検討を行った。

【実験方法および結果】

開発した Mg 含有 GaN ターゲットの外観を Fig. 2 に、その物性を Table 1 に示す。開発した Mg 含有 GaN ターゲットは $4.6 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ の Mg を含み、アンドープ品と比較しても同等レベルの酸素量、密度を有するターゲットが得られた。

これより、Mg を含有した GaN 薄膜を単一のターゲットを用いたスパッタ法にて作製できる可能性が示された。詳細は講演会にて報告する。

Table 1 Physical properties of the developed GaN target.

	un-doped GaN	Mg-doped GaN
Metal purity	5N	4N *
Oxygen content (wt.%)	<0.1	0.105
Density (g/cm ³)	>4.7	4.7

*Excluding Mg

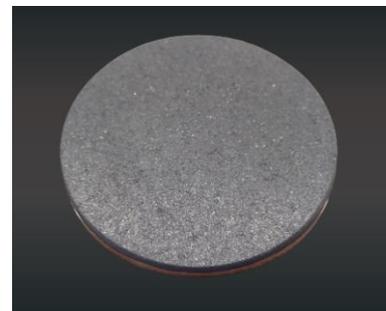


Fig. 2 Mg-doped GaN target.

[1] M. Mesuda *et al.*, 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 15a-1D-10 (2015).

[2] Y. Suemoto *et al.*, 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, 10p-N102-8 (2021).

[3] K. Bando *et al.*, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 25a-21C-6 (2024)