

一般セッション(口頭講演) | 15 結晶工学 : 15.4 III-V族窒化物結晶

2025年3月16日(日) 13:00 ~ 17:30 会 K401 (講義棟)

[16p-K401-1~16] 15.4 III-V族窒化物結晶

石井 良太(京大)、今井 大地(名城大)、大西 一生(三重大)

13:00 ~ 13:15

[16p-K401-1]

フォノン・励起子・輻射モデルにより解析した超薄膜AlN/GaN/AlN量子井戸中の2次元励起子への非輻射過程の影響

○(D)地崎 匡哉¹、石谷 善博¹ (1.千葉大院工)

◆ 英語発表

13:15 ~ 13:30

[16p-K401-2]

Integrated analysis of the ratio of $A_1(\text{LO})$ and $E_2(\text{high})$ modes energy shift in Fe-doped GaN with Raman spectroscopy○(D)KhaingShwe TheeEi¹, Kohei Ueno², Bei Ma¹, Hiroshi Fujioka², Yoshihiro Ishitani¹ (1.Chiba Univ., 2.The Univ. of Tokyo)

13:30 ~ 13:45

[16p-K401-3]

高濃度SiドーパGaNに形成されるバンドギャップ内準位の解析

○廣瀬 礼也¹、近藤 泉樹²、長田 和樹²、宇田 陽²、今井 大地^{1,2}、竹内 哲也^{1,2}、宮嶋 孝夫^{1,2} (1.名城大理工、2.名城大院理工)

13:45 ~ 14:00

[16p-K401-4]

光熱偏向分光法によるGaNの熱拡散率解析精度向上へ向けた裏面励起-表面プローブ測定配置の提案

○澤田 昂希¹、田中 翔²、山迫 希²、野村 麻友²、今井 大地^{1,2}、宮嶋 考夫^{1,2} (1.名城大理工、2.名城大院理工)

◆ 奨励賞エントリー

14:00 ~ 14:15

[16p-K401-5]

直接遷移型半導体自立結晶における時間分解フォトルミネッセンスの解釈

○(B)田中 大地¹、市川 修平^{2,3}、佐野 昂志²、田畑 博史²、小島 一信² (1.阪大工、2.阪大院工、3.阪大電顕センター)

◆ 奨励賞エントリー

14:15 ~ 14:30

[16p-K401-6]

波長角度分解カソードルミネッセンス法による窒化ガリウム半導体の発光特性評価

○宇佐美 翔太¹、赤瀬 善太郎¹、岩満 一功¹、横川 俊哉¹、藤倉 序章²、富谷 茂隆¹ (1.奈良先端大、2.住友化学株式会社)

14:45 ~ 15:00

[16p-K401-7]

超高压アニール処理した無添加およびイオン注入GaNのフォトルミネッセンス評価

○嶋 紘平¹、石橋 章司²、上殿 明良³、Michal Bockowski^{4,5}、須田 淳^{5,6}、加地 徹⁵、秩父 重英¹ (1.東北大多元研、2.産総研CD-FMat、3.筑波大数物系、4.IHPP PAS、5.名大IMaSS、6.名大工)

15:00 ~ 15:15

[16p-K401-8]

サファイア基板上有機金属気相成長させたBN薄膜の深紫外発光特性

○嶋 紘平¹、辻谷 陽仁¹、秩父 重英¹ (1.東北大多元研)

15:15 ~ 15:30

[16p-K401-9]

HVPE成長Si添加ホモエピタキシャルAlNの発光特性

○秩父 重英¹、菊地 清¹、Moody Baxter²、三田 清二²、Collazo Ramon³、Sitar Zlatko^{2,3}、熊谷 義直⁴、石橋 章司⁵、上殿 明良⁶、嶋 紘平¹ (1.東北大多元研、2.Adroit Materials, Inc.、3.North Carolina State University、4.東京農工大院工、5.産総研CD-FMat、6.筑波大数物)

15:30 ~ 15:45

[16p-K401-10]

HVPE成長Mg添加p型GaNのフォトルミネッセンススペクトル(II)

○秩父 重英¹、大西 一生²、渡邊 浩崇²、新田 州吾²、本田 善央^{2,3}、天野 浩^{2,3}、上殿 明良⁴、石橋 章司⁵、嶋 紘平¹ (1.東北大多元研、2.名大IMaSS、3.名大高等研究院、4.筑波大数物系、5.産総研CD-FMat)

◆ 奨励賞エントリー

15:45 ~ 16:00

[16p-K401-11]

OVPE-GaNにおける熱伝導率の酸素濃度依存性

○(M1)浅生 晃聖¹、宇佐美 茂佳¹、今西 正幸¹、丸山 美帆子¹、吉村 政志²、秦 雅彦³、伊勢村 雅士⁴、森 勇介¹ (1.阪大院工、2.阪大レーザー研、3.伊藤忠プラスチック(株)、4.(株)創晶應心)

◆ 奨励賞エントリー

16:15 ~ 16:30

[16p-K401-12]

OVPE法による高Ga₂O領域におけるGaNの超高速成長条件探索

○山田 大介¹、宇佐美 茂佳¹、東山 律子¹、今西 正幸¹、丸山 美帆子¹、滝野 淳一²、隅 智亮²、岡山 芳央²、吉村 政志³、秦 雅彦⁴、伊勢村 雅彦⁵、森 勇介¹ (1.阪大院工、2.パナソニックホールディングス(株)、3.阪大レーザー研、4.伊藤忠プラスチック(株)、5.(株)創晶應心)

◆ 奨励賞エントリー

16:30 ~ 16:45

[16p-K401-13]

OVPE法によるGaN結晶成長における炉内多結晶量と貫通大ピットの関係

○(M1)藤本 直樹¹、宇佐美 茂佳¹、今西 正幸¹、丸山 美帆子¹、吉村 政志²、秦 雅彦³、伊勢村 雅士⁴、森 勇介¹ (1.阪大院工、2.阪大レーザー研、3.伊藤忠プラスチック(株)、4.(株)創晶應心)

◆ 奨励賞エントリー

16:45 ~ 17:00

[16p-K401-14]

OVPE法によるGaNの口径維持領域の調査

○寺島 惇平¹、宇佐美 茂佳²、中園 翼²、今西 正幸²、丸山 美帆子²、吉村 政志³、秦 雅彦⁴、伊勢村 雅士⁵、森 勇介² (1.阪大工、2.阪大院工、3.阪大レーザー研、4.伊藤忠プラスチック(株)、5.(株)創晶應心)

◆ 奨励賞エントリー

17:00 ~ 17:15

[16p-K401-15]

Naフラックスポイントシード法においてGa組成比がGaN結晶合体領域の転位密度に与える影響

○(M1)佐々木 稜太郎¹、鷺田 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 (1.阪大院工、2.阪大レーザー研)

◆ 奨励賞エントリー

17:15 ~ 17:30

[16p-K401-16]

Flux-Film-Coated 技術を導入した Na フラックス法におけるGaN 結晶成長雰囲気の高圧・高温による多結晶抑制

○田代 知輝¹、今西 正幸²、鷺田 将吾²、村上 航介²、宇佐美 茂佳²、丸山 美帆子²、吉村 政志^{2,3}、森 勇介² (1.阪大工、2.阪大院工、3.阪大レーザー研)

フォノン・励起子・輻射モデルにより解析した超薄膜 AlN/GaN/AlN 量子井戸中の2次元励起子への非輻射過程の影響

Effect of nonradiative recombination process on 2-dimensional exciton in AlN/GaN/AlN ultrathin quantum well analyzed by phononic–excitonic–radiative model

千葉大院工 [○](D3)地崎 匡哉, 石谷 善博

Chiba Univ., [○](D3)Masaya Chizaki, Yoshihiro Ishitani

E-mail: ishitani@faculty.chiba-u.jp

電子正孔プラズマ状態に比べて発光確率の高い励起子を利用した高効率な発光デバイスの開発が期待されているが、ワイドギャップ半導体において電流注入型レーザで励起子発振を利用した例は少ない。III-V 属窒化物半導体は他の III-V 属半導体に比べ、電子と縦光学(LO)フォノンとの相互作用が強い。この励起子・フォノン相互作用は、発光再結合確率の低い主量子数 n が 2 以上の励起子状態や自由電子正孔状態へポピュレーション分布を移行させ、発光効率を低下させる。励起子の発光ダイナミクスを理解するには、フォノンの効果を取り入れた理論体系が必要になる。また、実デバイス構造の1つである量子井戸構造のような2次元系では、励起子の束縛エネルギーはバルク結晶に比べ4倍大きいことが知られている。また、1分子層(1ML) GaN を用いた AlN/GaN/AlN の超薄膜量子井戸構造では、バルク GaN の束縛エネルギーの8倍に相当する 215 meV の励起子束縛エネルギーが第1原理計算により報告された[1]。一方、フォノンによるスクリーニング効果を取り入れると、励起子束縛エネルギーは 160 meV となると報告された[2]。実デバイスの診断には、このような高い束縛エネルギーを有する2次元系構造での励起子の発光ダイナミクスを扱う理論モデルが必要となる。

我々は、水素プラズマのダイナミクスを記述する衝突輻射(CR)モデルを参考にフォノン・励起子・輻射(PXR)モデルを構築し、バルク材料での非熱平衡系の励起子ダイナミクスを理論的に解析している[3-5]。さらに、PXRモデルを究極的な2次元構造である1ML量子井戸構造へと適用した[6]。これまでの解析では、全電子正孔対の密度 N_{tot} (cm^{-2}) を一定とした際のポピュレーション分布の解析を行ってきた。すなわち、単位時間当たりの電子正孔対の供給速度 R_{VC} ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) を、 N_{tot} が一定となるように調整していた。本発表では、一定の励起速度 R_{VC} 下でのポピュレーション分布を計算し、輻射過程と非輻射過程との競合を計算した。Figure 1 に励起子の非輻射再結合がなしの場合(a)とありの場合(b)でのポピュレーション分布の温度依存性を示す。Fig. 1(a)より、一定の励起速度 R_{VC} 下においては温度が上昇すると、輻射再結合速度の低下により全体の電子正孔密度 N_{tot} が増加する。一方で、非輻射過程ありの Fig. 1(b)の場合、 N_{tot} は温度上昇に伴い増加し、220 K 以上では1S励起子密度に比べ、自由キャリア密度が支配的になる。これは、非輻射速度 P_{nr} が輻射速度に比べて速いとき、1S励起子密度が $R_{\text{VC}}/P_{\text{nr}}$ に従って決まるが、温度上昇に伴いポピュレーションが上準位へと移ったためである。

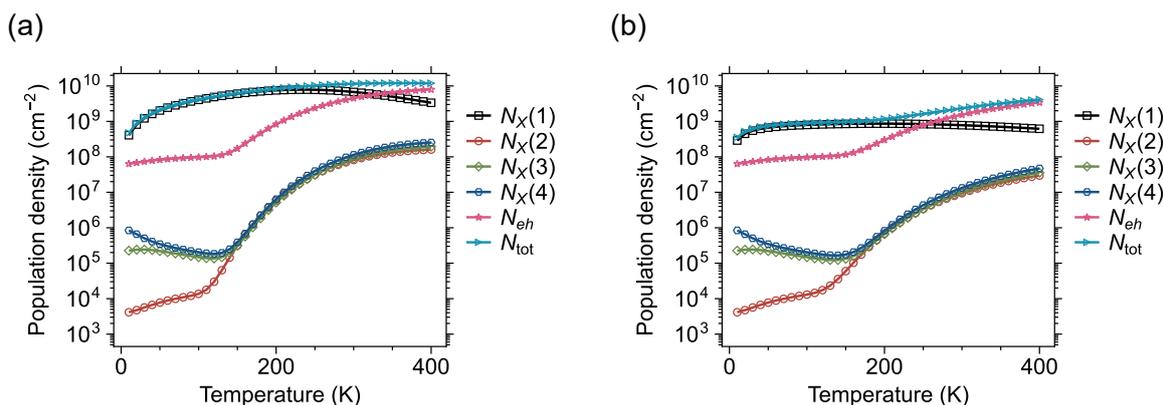


Fig. 1 Population distribution obtained by the PXR model (a) without and (b) with the nonradiative recombination of the rate of 100 ns^{-1} . Excitation rate per unit time is $R_{\text{VC}} = 10^{10} \text{ cm}^{-2}\text{ns}^{-1}$. $N_{\text{X}}(n)$ denotes the density of the n exciton. N_{eh} denotes the free carrier density. N_{tot} denotes the total existing electron or hole density, which is $\sum_n N_{\text{X}}(n) + N_{\text{eh}}$.

参考文献

- [1] D. Bayerl *et al.*, Appl. Phys. Lett. **115**, 131101 (2019). [2] W. Lee *et al.*, Phys. Rev. Lett. **133**, 206901 (2024).
[3] K. Oki *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 205204 (2017). [4] M. Chizaki *et al.*, J. Luminescence **243**, 118603 (2022).
[5] M. Chizaki *et al.*, Mater. Sci. Semicond. Process. **148**, 106794 (2022). [6] M. Chizaki *et al.*, Phys. Status Solidi B **261**, 2400038 (2024).

Integrated analysis of the ratio of $A_1(\text{LO})$ and $E_2(\text{high})$ modes energy shift in Fe-doped GaN with Raman spectroscopy

Thee Ei Khaing Shwe¹, Kohei Ueno², Bei Ma¹, Hiroshi Fujioka², Yoshihiro Ishitani¹

Chiba University¹, The University of Tokyo²

E-mail: ishitani@faculty.chiba-u.jp

Gallium Nitride (GaN) is applied to high-power devices, light-emitting diodes (LEDs), and laser diodes. Iron (Fe) doping is important as a material of semi-insulating layer in devices. Many of the operational functions of electronic and photonic devices are suppressed by temperature increases, where the control of phonon dynamics is indispensable. In particular, the LO phonon has a high probability of interaction with the electron system. However, there are few reports on the integrated analysis of electrons, photons, and phonons. We have established a double laser system enabling the layer-identified temperature variation by photo-generation of thermal energy.^{1,2)} In this article, we mainly focus on the LO phonon dynamics in Fe-doped GaN. We investigate the difference in energy shifts of phonon modes between two heating conditions of thermal equilibrium case and laser heating in Raman spectroscopy. A 325-nm laser was used as the heating and probing laser, and a 532-nm laser was used to detect the Raman signals in GaN. A confocal optical system with an objective lens or mirror with NA in the 0.47 – 0.5 range was utilized.

Figure 1(a) shows the ratio of the values of energy shift decrements of $A_1(\text{LO})$ (A_1^{LO}) and $E_2(\text{high})$ (E_2^{H}) mode by the 325-nm laser excitation. The energy decrement of A_1^{LO} mode ΔA_1^{LO} is over five times greater than the energy decrement of E_2^{H} mode ΔE_2^{H} in the case of the laser heating. Figure 1(b) shows the ratio of the value of the ratio is approximately 2 and constant in the measurement temperature range. The result indicates the anormal high mode energy decrement in the A_1^{LO} . As it is known that the electrons are firstly captured by the Fe atoms, this result indicates the A_1^{LO} is affected by the hole plasmon, which induces the mode energy decrease because of the overdamping. When we analyze the LO mode peak of layers with high density deep levels in Raman scattering analysis, consideration of hole plasmon is thought to be required under the condition of high-density irradiation of UV light for heating.

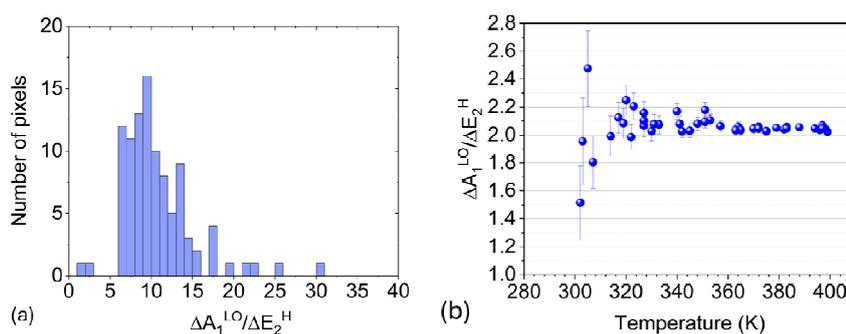


Figure 1. Ratio of the value of energy decrement of ΔA_1^{LO} by ΔE_2^{H} mode energy of Fe-doped GaN under the conditions of (a) the heating by a 325nm laser irradiation and (b) the heating with an Ohmic heater.

1) Okamoto *et al.* Appl. Phys. Lett. **116**, 142107(2020).

2) Nakayama *et al.* Mater. Sci. Semicond. Process. **150**, 106905 (2022).

3) Thee Ei Khaing Shwe *et al.* Appl. Phys. Lett. **125**, 012105 (2024).

高濃度 Si ドープ GaN に形成されるバンドギャップ内準位の解析

Analysis of the in-gap energy states in heavily Si-doped GaN

名城大理工¹, 名城大院理工², ○(B4)廣瀬 礼也^{1*}, 近藤 泉樹², 長田 和樹², 宇田 陽²,

今井 大地^{1,2**}, 竹内 哲也^{1,2}, 宮嶋 孝夫^{1,2}

Meijo Univ.¹, Grad. Sch. Sci. Tech., Meijo Univ.²

○R. Hirose¹, M. Kondo², K. Osada², H. Uda², D. Imai^{1,2}, T. Takeuchi^{1,2}, M. Miyajuma^{1,2}

E-mail: *210443057@ccmailg.meijo-u.ac.jp, **idaichi@meijo-u.ac.jp

深紫外 LED における活性層への正孔注入¹や面発光レーザーの電流狭窄構造²など、ワイドギャップ半導体において GaN 系トンネル接合(TJ)の活用が進んでいる。低抵抗な TJ には急峻な pn 接合界面が必要とされていることに対し、Akatsuka らは MOCVD 法で作製した GaN-TJ において、pn ドーピングプロファイルが互いにオーバーラップする緩やかな接合界面により低抵抗化することを報告した³。この要因としてバンドギャップ内準位を介した電気伝導が予想されているが⁴、逆バイアス下でトンネル電流が流れることや TJ 領域が約 20nm と極めて薄いことからバンドギャップ内準位の評価は困難性が高い。これに対し我々は、薄膜における微弱な光吸収の観測に優れた光熱偏向分光法(PDS 法)により、GaN-TJ において GaN バンド端近傍から 2.6 eV にかけて深い準位による吸収があること、これらの準位の密度が p⁺⁺-GaN、n⁺⁺-GaN 単体よりも TJ の形成により増大することを報告した⁵⁻⁷。今回我々は、TJ 中に形成されるバンド内準位の起源を明らかにするため、Si ドーピング濃度の異なる n⁺⁺-GaN においてバンド内準位の解析を行ったので報告する。

図 1 に MOCVD 法により GaN/sapphire テンプレート上に積層した Si 濃度の異なる n⁺⁺-GaN (膜厚 100 nm)の室温における PDS スペクトルを示す。2.4 ~ 3.3 eV においてリファレンス GaN テンプレートに対する PDS 信号強度の増大が観測され、PDS 信号強度は Si 濃度増加に伴い増大している。一方、図 2 に示すこれらの試料のフォトルミネッセンス(PL)スペクトルでは、バンド端近傍および深い準位ともに Si 濃度増加に伴う発光強度の減少が観測された。これらの結果は Si 濃度の増加に伴いバンドギャップ内の非発光性準位密度が増大していることを示している。現状、最も低抵抗な GaN-TJ が得られている Si 濃度が $6.0 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ であることを考慮すると³、TJ 素子抵抗低減に n⁺⁺領域のバンドギャップ内準位密度増加が寄与している可能性が考えられる。今後は n⁺⁺-GaN で観測されたバンドギャップ内準位の起源や、TJ 素子の抵抗率との関連について解析を進める。

【参考文献】 1) Nagata, *et al.*, APEX, **14**, 084001 (2021). 2) Kiyohara *et al.*, APEX, **13**, 111003 (2020).

3) Akatsuka, *et al.*, APEX, **12**, 025502 (2019). 4) Fedisson, *et al.*, APL, **72**, 22 (1998). 5) 市川他, 第

84 回秋季応物 22p-B101-9(2023). 6) 近藤他, 第 85 回秋季応物, 19p-C42-7 (2024). 7) D. Imai *et al.*, IWN2024, No.502, (2024).

【謝辞】本研究の一部は科研費基盤研究 S (No. 23H05460)、基盤研究 C (No. 22K04956)、文部科学省 革新的パワーエレクトロ

ニクス創出基盤技術研究開発事業 JPJ009777、名城大学総合研究所研究成果展開事業費の支援を受けて行われた。

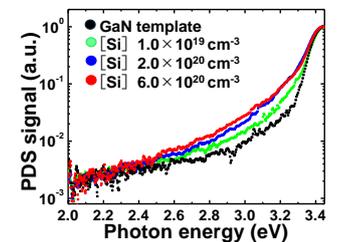


図 1 n⁺⁺-GaN における PDS スペクトルの Si 濃度依性.

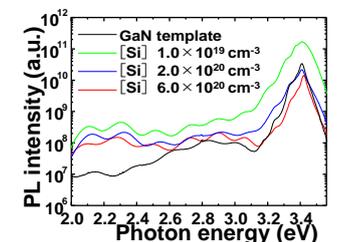


図 2 n⁺⁺-GaN における PL スペクトルの Si 濃度依性.

光熱偏向分光法による GaN の熱拡散率解析精度向上へ向けた 裏面励起-表面プローブ測定配置の提案

Proposal of rear-side excitation configuration to improve the accuracies of thermal characterization
of GaN using photothermal deflection spectroscopy

名城大理工¹, 名城大院理工², (B4)〇澤田 昂希^{1*}, 田中 翔², 山迫 希², 野村 麻友²,
今井 大地^{1,2**}, 宮嶋 孝夫^{1,2}

Meijo Univ.¹, Graduate school of science and technology, Meijo Univ.,²

〇G. Sawada¹, K. Tanaka², N. Yamasako², M. Nomura², D. Imai^{1,2}, and T. Miyajima^{1,2}

E-mail: *210443036@ccmailg.meijo-u.ac.jp **idaichi@meijo-u.ac.jp

GaN は紫外-可視発光素子や電子デバイスの基板として用いられており、その熱物性の理解と制御は素子設計の重要な要素の一つである。我々は半導体結晶の熱物性を非接触で簡易的に評価する手法として光熱偏向分光(PDS)法に着目している。本手法は光励起により発生した熱(非発光再結合)をプローブ光の偏向(PDS 信号)として検出し、主にバンドギャップ内準位の評価に用いられている^[1]。このとき励起光に対するプローブ信号の時間的遅れをロックインアンプの位相遅れ(位相差)として検出すれば、試料の熱拡散(伝導)率評価が可能である^[2]。本手法の測定精度向上には、位相差に対する試料物性の寄与を極力大きくすることが望ましく、これまでに我々は、試料表面-プローブ光間距離(x_0)を $10\mu\text{m}$ 程度まで近づけること^[3, 4]、液体媒質に熱伝導率の高いものを採用する^[5]ことで、液体媒質による位相変化が抑制され、試料の熱拡散率解析精度向上につながることを報告した。本研究では位相信号に対する試料の熱物性自体の寄与を大きくすることを目的とし、励起光を裏面から照射する裏面励起 PDS 法を提案し、その解析精度について検討した。

図 1 に通常の表面励起、および今回提案する裏面励起配置のモデルを示す。このモデルに基づき熱拡散方程式を解くことで得られる理論式を用いてシミュレーションを行った。図 2(a), (b)に表面・裏面励起配置における位相信号の周波数依存性を、図 3 に 140Hz および 400Hz における位相信号変化量($\Delta\theta$)の GaN 熱伝導率依存性を示す。測定範囲 0-400 Hz、GaN 熱伝導率 1.0-3.0 W/cm K の条件において、裏面励起では表面励起に対し最大で 5 倍程度の $\Delta\theta$ が得られた。よって裏面励起配置にて測定を実施することで、GaN の熱物性解析精度の更なる向上が期待できると考えられる。

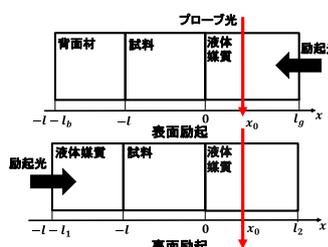


図1 解析モデル

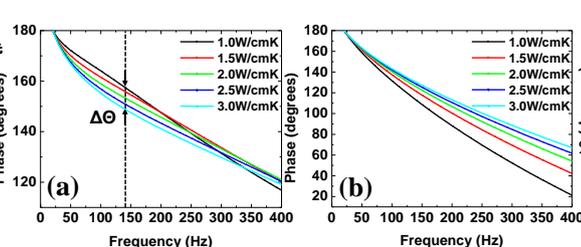


図2 熱伝導率を変化させたときの位相信号の周波数依存性 ($x_0 = 10\mu\text{m}$)(a)表面励起 (b)裏面励起

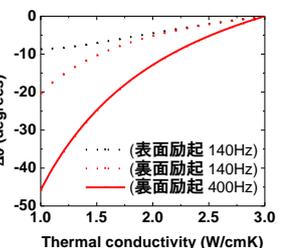


図3 位相信号変化量の熱伝導率依存性($x_0 = 10\mu\text{m}$)

[1] D. Imai, et al, JAP, 135,035703 (2024). [2] N.Yacoubi et al., JAP, 69 12 (1991). [3] 野村,他, 第 84 回秋季応物, 21p-P06-12 (2023). [4] 野村, 他, 第 71 回 春季応物,17p-B401-13 (2024). [5] 田中,他 第 85 回 秋季応物,19p-C42-9. [6] Rosencwaig et al., JAP 47,64-69 (1976). 【謝辞】本研究の一部は科研費基盤研究 C(No. No. 22K04956)の援助を受けた。

直接遷移型半導体自立結晶における 時間分解フォトルミネッセンスの解釈

Understanding of transient phenomena in photoluminescence for freestanding direct-transition-semiconductor crystals

阪大工¹, 阪大院工², 阪大電顕センター³

○(B3)田中 大地¹, 市川 修平^{2,3}, 佐野 昂志², 田畑 博史², 小島 一信²

Osaka Univ.¹, Grad. Sch. Eng., Osaka Univ.², Research Center for UHVEM, Osaka Univ.³

◦Daichi Tanaka¹, Shuhei Ichikawa^{2,3}, Koshi Sano², Hiroshi Tabata², and Kazunobu Kojima²

E-mail: daichi.tanaka@sfm.eei.eng.osaka-u.ac.jp

【研究背景】 半導体結晶を評価する際、励起された過剰キャリアの消滅の時定数である「キャリア寿命」は、結晶中の不純物濃度やデバイスの効率を評価できるため、正確に測定することが求められる。キャリア寿命を実験的に求める技術として、時間分解フォトルミネッセンス (TRPL) と呼ばれる、半導体にパルス波の光を照射した時のフォトルミネッセンス (PL) の過渡現象を観測する手法が広く用いられる。この手法では PL 光子が外部に取り出される前に結晶に吸収される、自己吸収 (SA) 効果やフォトンリサイクリング (PR) 効果 [1] は考慮されない。一方で、近年の GaN 等の自立結晶においては、PL 測定の際に SA 効果や PR 効果は無視できない現象になりつつある [2]。そこで、本研究ではこれらが TRPL の結果に及ぼす影響を定量的に考察する。

【実験条件・結果】 キャリアの拡散長や光子の侵入長に対して結晶サイズが十分大きな場合を想定することで、キャリアと光子の空間的挙動は試料奥行き方向のみの一次元モデルに落とし込める (Fig. 1) [2]。ここでは簡単化のため表面再結合を無視する。モンテカルロ法を用いて、GaN を例にとり TRPL 測定をシミュレーションした結果を Fig. 2 に示す。多くのキャリアは結晶表面付近で励起されるため、表面付近のキャリア濃度分布の勾配が急になる。表面付近のキャリアは拡散現象の影響を強く受け奥行き方向へ拡散する。表面から深い位置で生成された PL 光子は SA 効果を強く受け結晶から取り出されにくくなる。一方で、表面付近で生成された PL 光子は効率よく TRPL 測定で検出される。拡散現象により表面付近に存在するキャリアの割合は時間が経つにつれ減少するため、TRPL 測定で検出されるキャリア数は自己吸収を考慮しない場合と比べ減少し、見積もられるキャリア寿命は短くなる。また、PR 効果により複数回の拡散現象を経て生成された PL 光子も取り出される。それにより時間を経ても光子数が減少しないため、TRPL 測定で見積もられるキャリア寿命は PR 効果を考慮しない場合と比べ長くなる。詳細は当日報告する。

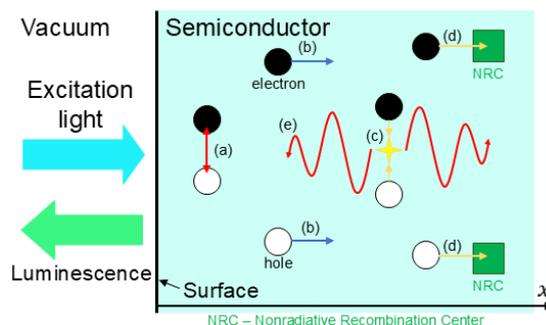


Fig. 1 Schematic illustration of processes related to carrier dynamics : (a) generation of carrier, (b) diffusion of carrier, (c) radiative recombination, (d) nonradiative recombination, and (e) self-absorption.

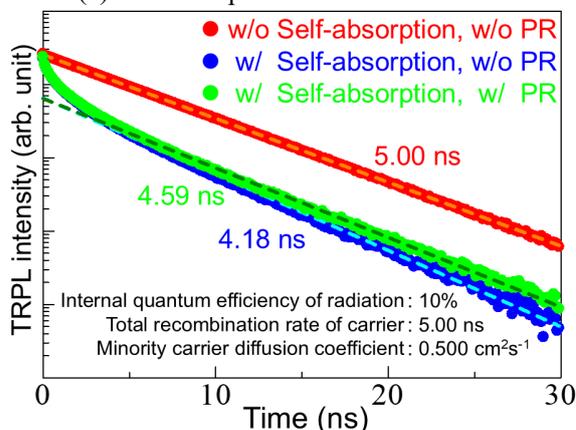


Fig. 2 PL decay curves (simulation).

【参考文献】 [1] 小島一信, 応用物理 **90**, (2021). [2] H. Asai *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **12**, 014002 (2019).

波長角度分解カソードルミネッセンス法による 窒化ガリウム半導体の発光特性評価

Local luminescence characterization of gallium nitride semiconductors
by wavelength angle-resolved cathodoluminescence method

奈良先端大¹, 住友化学株式会社²

○(M1) 宇佐美 翔太¹, 赤瀬 善太郎¹, 岩満 一功¹, 横川 俊哉¹, 藤倉 序章², 富谷 茂隆¹

NAIST¹, Sumitomo Chemical Co., Ltd.²,

○Shota Usami¹, Zentaro Akase¹, Kazunori Iwamitsu¹, Toshiya Yokogawa¹,
Hajime Fujikura², Shigetaka Tomiya¹

E-mail: usami.shota.up6@naist.ac.jp

窒化物半導体 (GaN) は、可視光から紫外光までの幅広い波長域で高効率な発光を実現できるため、照明、ディスプレイ、殺菌用途などで注目されている。特に、マイクロ/ナノ LED やフォトニック結晶などの微細構造を有するデバイスの開発が進む中、その発光特性を詳細に解析する新たな手法が求められている。

従来のカソードルミネッセンス (CL) 法では、材料の発光強度や波長特性を高い空間分解能で評価可能であるものの、角度依存性や表面形状との解析には限界があった。CL 検出器の進歩により、角度依存性の評価が可能になった [1, 2]。さらに、近年、実質的に解像度を低下することなく、波長ごとの発光特性とその角度依存性を同時に評価できる波長角度分解カソードルミネッセンス (WAR-CL) 法が可能となってきた (Fig.1) [3]。微細構造や欠陥と発光パターンとの関係が把握できるようになってきた。

本研究では、WAR-CL 法を用いて、エッチングにより GaN 結晶表面に形成したピット試料を対象に、表面形状と発光分布の関係を評価した。Fig.2 は、加速電圧 5 kV、照射電流 1 nA で測定した GaN 結晶の SEM 像を示しており、測定点として①平坦部と②ピット側面の 2 か所を選定した。Fig.3 は、発光強度ピークの波長で取得した WAR-CL 像を示している。

結果として、Fig.3(a)と Fig.3(b) を比較すると、それぞれ異なる発光分布が確認された。Fig.3(a)では、同心円状に広がる発光分布が観察されたのに対し、Fig.3(b)では発光に指向性が見られ、特に天頂角 50° 方位角 90° 付近で最も強い発光が確認された。発表では、天頂角および方位角に基づく発光分布の統計的解析について議論する。

References

- [1] T. Coenen, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **99** 143103 (2011).
- [2] N. Yamamoto, *The Transmission Electron Microscope*, ed. K Maaz, (In Tech, 2012).
- [3] M. Bertilson, *et al.*, *Microscopy and Microanalysis*, **24**, S1, 622–623 (2018).

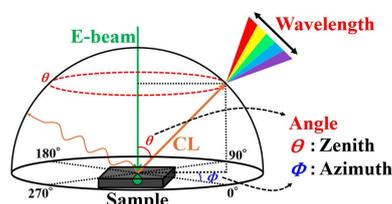


Fig.1 Conceptual diagram of WAR-CL

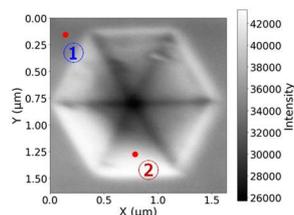


Fig.2 SEM image of a GaN etch pit. The numbers indicate the WAR-CL measurement points: ① is a flat area, ② is a sidewall of the etch pit.

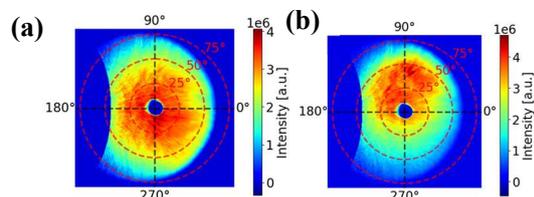


Fig.3 WAR-CL emission patterns measured at the peak emission intensity wavelength from (a) a flat area and (b) the sidewall of an etch pit. The red and black numbers represent the zenith and azimuth angles, respectively.

超高压アニール処理した無添加およびイオン注入 GaN の フォトルミネッセンス評価

Impacts of ultra-high-pressure annealing on undoped and ion-implanted

GaN epitaxial layers studied by photoluminescence measurements

東北大多元研¹, 産総研 CD-FMat², 筑波大数物系³, IHPP PAS⁴, 名大 IMASS⁵, 名大工⁶

◦嶋紘平¹, 石橋章司², 上殿明良³, Michal Bockowski^{4,5}, 須田淳^{5,6}, 加地徹⁵, 秩父重英¹

IMRAM-Tohoku Univ.¹, AIST,² Univ. of Tsukuba³, IHPP PAS⁴, IMASS-Nagoya Univ.⁵, Nagoya Univ.⁶

◦K. Shima¹, S. Ishibashi², A. Uedono³, M. Bockowski^{4,5}, J. Suda^{5,6}, T. Kachi⁵, and S. F. Chichibu¹

E-mail: kshima@tohoku.ac.jp

GaN MOS パワーデバイスの実現には、イオン注入(I/I)による n 型および p 型 GaN セグメントの形成技術が必須であり、高い制御性と再現性を併せ持つ活性化アニールが必要となる。I/I 誘起欠陥(V_{Ga} 空孔と N 空孔の複空孔: $V_{Ga}V_N[1]$)およびアニール時に形成される $(V_{Ga}V_N)_3$ 等の空孔クラスターの濃度を低減させる技術として近年、超高压アニール(UHPA; ~ 1 GPa, ~ 1480 °C)が注目されている[2]。しかしながら、UHPA 後も依然として $(V_{Ga}V_N)_3$ 等の空孔クラスターが残留することが報告されており[3]、さらなる空孔濃度の低減が必要である。本講演では、UHPA 温度(T_a)等の条件が無添加(UID)GaN、Si イオン注入 GaN (I/I-GaN:Si)、Mg イオン注入 GaN (I/I-GaN:Mg)のミッドギャップ再結合中心(MGRC)に与える影響をフォトルミネッセンス(PL)法により評価した結果を報告する。

+c 面 GaN 基板上に MOVPE 成長させた UID-GaN 層($[Si] < 2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$)に対して、Si-I/I および Mg-I/I を行い Si および Mg の箱型濃度プロファイルを形成した($1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 、深さ 300 nm)。UHPA は圧力 1 GPa, $T_a = 1300$ - 1480 °C の条件で実施した。UHPA 後の各試料の弱励起条件静的 PL スペクトルを図 1 に示す。UID-GaN の場合、 T_a 増加に従い室温バンド端発光強度が低下したため、UHPA 中に、表面近くに MGRC が誘起されたと考えられる。一方、I/I-GaN:Si および I/I-GaN:Mg の場合、 T_a 増加に従い室温バンド端発光強度が増加したため、MGRC として働く[4] $(V_{Ga}V_N)_3$ 等の空孔複合体の濃度が減少したと考えられる。I/I-GaN:Mg の場合、 T_a 増加に従いアクセプタ束縛励起子(ABE)由来の発光強度が増加しており、 Mg_{Ga} アクセプタの活性化[2]が示唆された。

試料準備および議論をして頂いた(株)アルバック 櫻井秀樹氏、(株)豊田中央研究所 成田哲生氏、片岡恵太氏に感謝致します。本研究は、文科省次世代半導体(JPJ005357)、革新ハロエレ(JPJ009777)、クロスオーバーアライアンス、科研費(21H01826)等の援助を受けた。[1] 上殿他 PSSB **252**, 2794 (2015). [2] 櫻井他 APL **115**, 142104 (2019). [3] 上殿他 Sci. Rep. **10**, 17349 (2020); PSSB **259** 2200183 (2022). [4] 嶋, 秩父他 APL **113**, 191901 (2018).

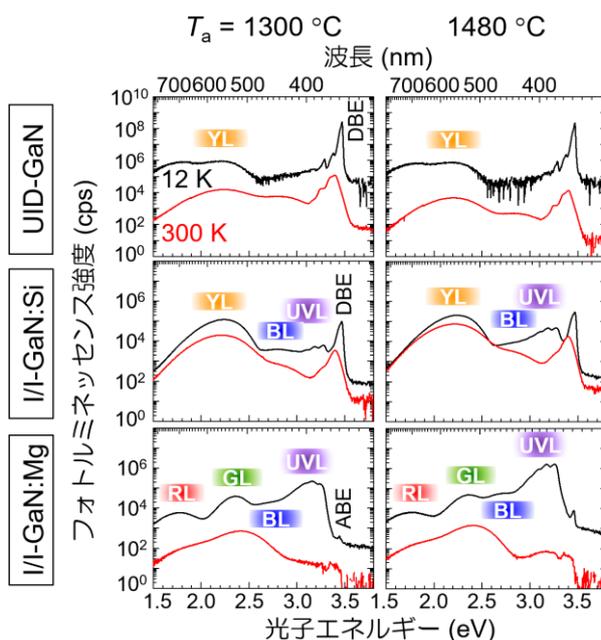


Fig. 1. PL spectra at 12 K and 300 K of UID-GaN, I/I-GaN:Si, and I/I-GaN:Mg after UHPA under 1-GPa- N_2 ($T_a = 1300$ and 1480 °C).

サファイア基板上有機金属気相成長させた BN 薄膜の深紫外発光特性

Deep-UV luminescence characteristics of BN thin films grown on a sapphire substrate by metalorganic vapor phase epitaxy

東北大多元研 °嶋紘平, 辻谷陽仁, 秩父重英

IMRAM-Tohoku Univ., °K. Shima, H. Tsujitani, and S. F. Chichibu

E-mail: kshima@tohoku.ac.jp

sp^2 結合を有する二次元層状化合物である六方晶(h)BN(積層順 AA')は、間接遷移型半導体[1,2]でありながら室温において禁制帯幅(約 6 eV)に相当する波長 215 nm 付近の高効率励起子発光を呈する[2,3]ため、深紫外線発光材料として期待できる。 sp^2 結合の多形である菱面体晶(r)BN(積層順 ABC)および Bernal (b)BN(積層順 AB)は、それぞれ室温において波長 215 nm [4,5]および 207 nm [4,6]付近の発光を呈するため興味深い。これまで、大面積化が期待できる気相成長法において hBN 相[7]、rBN 相[8,9]および bBN 相[10]の成長が確認されてきた。しかしながら、励起子発光を呈する高品位な気相成長 BN 薄膜の実現は、静大原らのハライド気相成長法(BCl_3/NH_3 系)[9-11]に限られている。本講演では、有機金属気相エピタキシャル(MOVPE)法により sp^2 結合 BN 薄膜を成長させ、深紫外線発光特性を評価した結果を報告する。

c 面サファイア基板上に 1400 °C 以上の温度で sp^2 結合 BN 薄膜を MOVPE 成長させた。得られた BN 薄膜は、典型的には数マイクロメートル四方の平坦な表面を有するピラー状結晶から構成された。図 1 に BN 薄膜の X 線回折パターンを示す。基板であるコランダム構造(α) Al_2O_3 の 0006 回折に加えて、表面窒化により形成されたウルツ鉱構造(w)AIN の 0002 回折、さらに hBN 0002(ないしは rBN 0003)の回折が確認された。従って、成長させた BN 薄膜は sp^2 結合した c 軸配向層であることが確認された。広域カソードルミネッセンス測定の結果、炭素由来と考えられる 4 eV 発光帯[12]が支配的であったが、 sp^2 結合 BN の積層乱れに起因する 5.5 eV 発光帯[13]、および hBN ないしは rBN の間接遷移励起子の再結合のフォノンレプリカ(5.7~5.9 eV)[2,4,5]と考えられる発光も確認された。当日は、成長条件が BN 薄膜の結晶配向および深紫外発光特性に与える影響についても議論する。

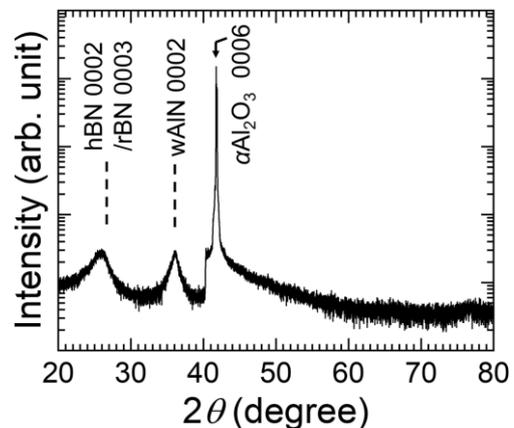


Fig. 1. θ - 2θ XRD pattern of the BN films measured using the Cu $K_{\alpha 1,2}$ lines.

科研費(20K20993, 23K22786, 23K17757)およびクロスオーバーアライアンス/MEXT 等の助成を受けた。BN 薄膜成長について議論いただいた静大・原和彦教授に感謝致します。MOCVD 装置改造に協力いただいた粕谷拓生氏および高屋竣大氏に感謝致します。[1] Arnaud 他 PRL **96**, 026402 (2006). 他 [2] Cassabois 他 Nat. Photon. **10**, 262 (2016). [3] 渡邊他 Nat. Mater. **3**, 404 (2004). [4] Sponza 他 PRB **98**, 125206 (2018). [5] Zanfagnini 他 PRL **131**, 206902 (2023). [6] Rousseau 他 PRM **5**, 064602 (2021). [7] Jiang 他 ECS JSSST **6**, Q3012 (2017). [8] Chubarov 他 Cryst. Growth Des. **12**, 3215 (2012). [9] 太田他 2024 年秋季応用物理学会 18a-P07-3. [10] 秩父他 APL **120**, 231904 (2022). [11] 梅原他 JJAP **55**, 05FD09 (2016). [12] Larach 他 Phys. Rev. **104**, 68 (1956). [13] Cassabois 他 PRB **93**, 035207 (2016).

HVPE 成長 Si 添加ホモエピタキシャル AlN の発光特性

Luminescent properties of Si-doped homoepitaxial AlN grown by HVPE

東北大多元研¹, Adroit Materials, Inc.², North Carolina State University³,

東京農工大院工⁴, 産総研 CD-FMat⁵, 筑波大数物⁶

秩父重英¹, 菊地清¹, Baxter Moody², 三田清二², Ramon Collazo³, Zlatko Sitar^{2,3},

熊谷義直⁴, 石橋章司⁵, 上殿明良⁶, 嶋紘平¹ / Tohoku Univ.¹, Adroit Mater. Inc.², North

Carolina State Univ.³, Tokyo Univ. Agri. & Tech.⁴, AIST⁵, Univ. of Tsukuba⁶

°S. F. Chichibu¹, K. Kikuchi¹, B. Moody², S. Mita², R. Collazo³, Z. Sitar^{2,3}, Y. Kumagai⁴, S. Ishibashi⁵,

A. Uedono⁶, and K. Shima¹ E-mail: chichibulab@yahoo.co.jp

【序】AlGaN系深紫外LEDの発光内部量子効率向上には、禁制帯内に深い準位を形成する再結合中心(MGRC)の濃度低減が必須である。AlNの場合Al空孔(V_{Al})とN空孔(V_N)の空孔クラスタ[1]だけでなく V_{Al} と不純物の複合体[2]もMGRCとなることが示唆されており[2-4]、不純物と点欠陥双方の低減が必要である。幸い低転位密度($< 10^4 \text{ cm}^{-2}$) AlN基板[5]が入手できるため、N位置に置換し3.7 eV付近に高効率発光を呈す[6]炭素(C_N)の濃度を減らせば点欠陥(及び複合体)が発光特性に及ぼす影響を明らかにできる。本発表では、物理気相輸送(PVT)成長c面AlN基板にHVPE成長させた低転位密度・低 C_N 濃度Si添加AlNの陰極線蛍光(CL)及び陽電子消滅測定結果を報告する。

【試料、結果と考察】(株)トクヤマ及び農工大製Si添加c面AlN[7]のCLスペクトルを加速電圧-3.5 kVで計測した。成長温度は1450 °CでありSi濃度($[Si]$)は $2 \times 10^{17} \sim 7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ である。残留炭素および酸素濃度は各々 $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 以下、 $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 以下である。X線ロックアップカーブ計測により低転位密度であることも確認した。Fig. 1に室温CLスペクトルを示す。 $[Si]$ 増加に従いバンド端発光強度は減少し、 C_N の発光帯(約3.7 eV)よりも1-2桁高い、3.1 eVを中心とする $V_{Al}(O_N)_n$ [1-3]及び2.9 eVの肩を呈す $V_{Al}-Si_{Al}$ 系複合体[4,8]の発光が支配的となり4.5 eV付近に $Si_{Al}C_N$ 欠陥による[9]とされる発光帯も現れた。陽電子消滅測定[1]における(S, W)の変化から、Si添加により $V_{Al}(V_N)_n$ 空孔クラスタが $V_{Al}(O_N)_n$ や $V_{Al}-Si_{Al}$ に変化している可能性が示された。この結果はCLスペクトルの同定と矛盾しない。

【謝辞】試料を提供いただいた(株)トクヤマ 永島徹氏に

感謝します。本研究はクロスオーバーアライアンス及び科研費(15H03555, 16H06417, 16H06424, 16H06427, 17H02907)の援助を受けた。【文献】1) 上殿他 JAP **105**, 054501 (2009); JAP **128**, 085704 (2020). 2) 小山他 APL **90**, 241914 (2007). 3) Yan 他 APL **105**, 111104 (2014). 4) Harris 他 APL **112**, 152101 (2018). 5) Rice 他 JAP **108**, 043510 (2010). など 6) 熊谷他 APEX **5**, 055504 (2012). 7) 熊谷他 JCG **446**, 33 (2016). 8) 秩父他 JAP **113**, 213506 (2013). 9) Gaddy 他 APL **104**, 202106 (2014).

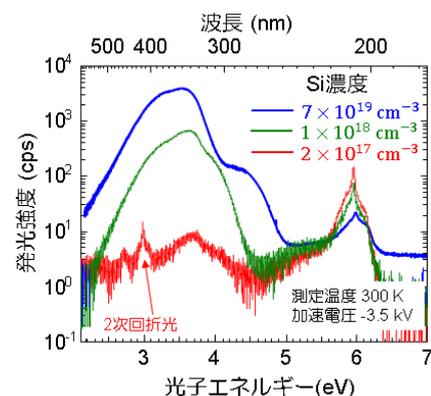


Fig. 1 CL spectra measured at 300 K of Si-doped AlN grown by HVPE on a PVT-AlN seed.

HVPE 成長 Mg 添加 p 型 GaN のフォトルミネッセンススペクトル(II)

Photoluminescence spectra of p-GaN epilayers grown by halide vapor phase epitaxy (II)

東北大多元研¹, 名大 I MaSS², 名大高等研究院³, 筑波大数物系⁴, 産総研 CD-FMat⁵秩父重英¹, 大西一生², 渡邊浩崇², 新田州吾², 本田善央^{2,3}, 天野浩^{2,3},上殿明良⁴, 石橋章司⁵, 嶋紘平¹Tohoku Univ.¹, Nagoya Univ.^{2,3}, U. Tsukuba⁴, AIST⁵, °S. F. Chichibu¹, K. Ohnisi², H. Watanabe²,S. Nitta², Y. Honda^{2,3}, H. Amano^{2,3}, A. Uedono⁴, S. Ishibashi⁵, and K. Shima¹

E-mail: chichibulab@yahoo.co.jp

【はじめに】縦型 GaN パワーデバイスの低キャリア濃度 n 型ドリフト層は専ら有機金属気相エピタキシャル(MOVPE)法により形成されるが炭素(C)濃度と成長速度がトレードオフの関係にあり、高耐圧厚膜ドリフト層成長には原料分子に C を含まないハライド気相エピタキシャル(HVPE)法が適する。HVPE による高純度無添加 GaN[1]成長や、n-GaN 及び MgO 原料を用いた Mg 添加 p-GaN (p-GaN:Mg)層成長[2]、再成長を用いない連続成長による pn 接合の形成[3]等が報告されている。本講演では、HVPE によりヘテロ及びホモエピタキシャル成長させた p-GaN:Mg のフォトルミネッセンス(PL)測定結果を GaN 基板上 MOVPE 成長 p-GaN:Mg の結果[4]と比較し検討する。

【内容】MgO 原料上に HCl を流し MgCl₂ ドーピング源を合成し、c 面サファイア及び GaN 基板上に HVPE 成長させた p-GaN:Mg の弱励起静的・動的 PL 測定を行った。また、同試料群の陽電子消滅評価を行った。HVPE 成長 p-GaN:Mg の PL スペクトルには Mg_{Ga} アクセプタに起因する紫外発光(UVL)帯[5]および p-GaN に特徴的な青色発光(BL)帯が観測され、電気特性評価結果[2]と矛盾しない。低温における UVL 強度と室温におけるバンド端発光の PL 強度・PL 寿命は[Mg]増加に従い減少した。いずれも広義にはバンド端の発光であるため非輻射再結合中心(NRC)濃度が増加したと考えられる。本試料群の C 濃度は $3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 未満であり、陽電子消滅測定により見積もられる Ga 空孔(V_{Ga})と N 空孔(V_{N})の空孔クラスターである $V_{\text{Ga}}(V_{\text{N}})_n$ ($n=1-2$)濃度の方が 1 桁は高い。MOVPE 成長 p-GaN:Mg 中の $V_{\text{Ga}}(V_{\text{N}})_2$ は NRC となる[4]ため HVPE 膜でも NRC と考えられ、Fig. 1 に示す室温 PL 寿命とミッドギャップ再結合中心(MGRC)濃度の関係[4,6]と整合する。

【謝辞】文科省革新プログラム(JPJ009777)、知事官庁-アライアンス、科研費(23K13672)等の援助を受けた。PL 測定を補助してくれた向田彰氏に感謝します。

【文献】[1]藤倉他 JJAP **56**, 085503 (2017); APL **117**, 012103 (2020). [2]大西他 APEX **13**, 061007 (2020); JCG **566**, 126173 (2021). [3]大西他 APL **119**, 152102 (2021). [4]秩父他 APL **112**, 211901 (2018). [5] Reshchikov and Morkoç, JAP **97**, 061301 (2005). [6]秩父他 JAP **135** 185701 (2024).

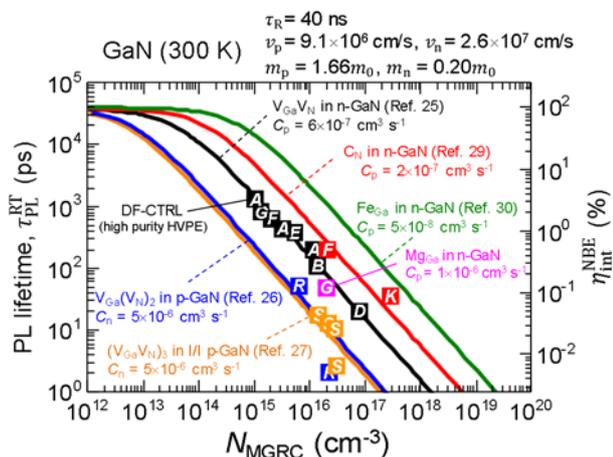


Fig. 1 Room-temperature PL lifetime vs the concentration of midgap recombination centers in GaN [4,6]

OVPE-GaN における熱伝導率の酸素濃度依存性

Dependence of Thermal Conductivity on Oxygen Concentration in OVPE-GaN Substrates

阪大院工¹, 阪大レーザー研², 伊藤忠プラスチック(株)³, (株)創晶應心⁴○(M1)浅生 晃聖¹, 宇佐美 茂佳¹, 今西 正幸¹, 丸山 美帆子¹, 吉村 政志², 秦 雅彦³,
伊勢村 雅士⁴, 森 勇介¹Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ.¹, ILE, Osaka Univ.²,Itochu Plastics Inc.³, Soshoh-Ohshin Inc.⁴, °K. Asao¹, Shigeyoshi Usami¹, Masayuki Imanishi¹,
Mihoko Maruyama¹, Masashi Yoshimura², Masahiko Hata³, Masashi Isemura⁴, and Yusuke Mori¹E-mail: asao@cryst.eei.eng.osaka-u.ac.jp

【背景】窒化ガリウム(GaN)の気相成長法の一つである OVPE 法では、III族源に Ga₂O を用いるため、GaN 結晶中の酸素不純物濃度が 10²⁰ cm⁻³ 以上と非常に高いという特徴がある^[1]. そのメリットとして、酸素不純物がドナーとなることでキャリア密度が上昇し、市販基板より 1 桁程度抵抗率が低くなることが挙げられる^[2]. 一方デメリットとして、酸素不純物がフォノンを散乱させることで熱伝導率が低下することが挙げられる^[3]. しかし、現在のところ、酸素濃度が 10²⁰ cm⁻³ 以上の GaN バルク結晶について、熱伝導率が酸素濃度によってどのように変化するかは調査されていない. そこで本研究では、OVPE 法を用いて育成した GaN の熱伝導率が酸素濃度によってどのように依存するかを調査し、解析値^[3]との比較検討を行った.

【結果及び考察】Ga₂O 流量や NH₃ 流量、キャリアガスとして用いた水素の分圧、育成温度を調節することで、10²⁰ ~ 10²¹ cm⁻³ の範囲で異なる酸素濃度の GaN を用いて育成した. 各酸素濃度のサンプルを 400 μm 以上の膜厚まで育成し、両面研磨を行うことで自立基板を作製した. また、各結晶の熱拡散率を周期加熱放射測温法により面直方向の熱拡散率を測定した. 示差走査熱量計によって比熱を測定し、体積と質量を測定することで密度を求めた. この熱拡散率と比熱と密度の積から熱伝導率を求めた. 酸素濃度は 2 次イオン質量分析法(SIMS)により測定した. リファレンスとして HVPE 法で育成された GaN 基板においても同様に酸素濃度と熱伝導率を測定した. そして、Callaway-Holland モデルによって計算された、GaN における熱伝導率の酸素濃度依存性の解析値^[3]を、実験値と比較した. 本モデルではノーマル過程とウムクラップ過程、サンプルの境界、自由キャリア、酸素不純物と同位体の質量差、格子の歪み場によるフォノン散乱が考慮されている.

測定の結果、HVPE 法で育成した GaN の酸素濃度と熱伝導率はそれぞれ 2.0 × 10¹⁶ cm⁻³, 214 W/mK となった. 一方、OVPE 法で育成した GaN の酸素濃度はそれぞれ 3.0 × 10²⁰ cm⁻³, 1.0 × 10²¹ cm⁻³ であり、熱伝導率はそれぞれ 44.6 W/mK, 35.2 W/mK となった. Fig. 1 に GaN の熱伝導率を解析した結果^[3]と、HVPE 法と OVPE 法で育成した GaN の熱伝導率の測定結果を示す. この解析値と実験値の比較により、OVPE 法で育成した GaN の熱伝導率は、本モデルで説明できる可能性が高いと考えられる.

【参考文献】

- [1] M. Imade *et al.*, J. Cryst. Growth **312**, 676 (2010).
 [2] J. Takino *et al.*, Appl. Phys. **13**, 071010 (2020).
 [3] R. B. Simon *et al.*, Appl. Phys. Lett. **105**, 202105 (2014).

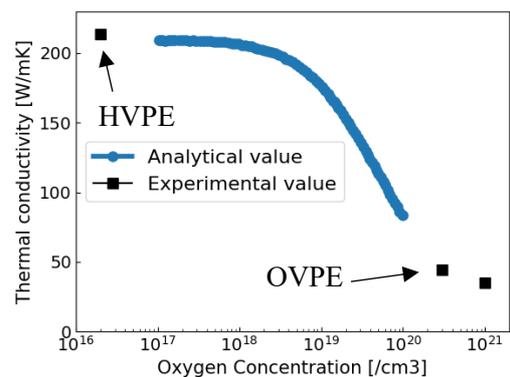


Fig. 1 Thermal conductivity of OVPE- and HVPE-GaN as a function of oxygen concentration.

【謝辞】本研究は環境省「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」の委託および JSPS 科研費(基盤研究 A)JP23H00275 の助成を受けて行われた.

OVPE法による高Ga₂O領域におけるGaNの超高速成長条件探索

Investigation of ultra-high-speed growth conditions of GaN in high Ga₂O region by OVPE

阪大院工¹, パナソニックホールディングス(株)², 阪大レーザー研³,

伊藤忠プラスチック(株)⁴, (株)創晶應心⁵

○山田大介¹, 宇佐美茂佳¹, 東山律子¹, 今西正幸¹, 丸山美帆子¹, 滝野淳一², 隅智亮², 岡山芳央², 吉村政志³, 秦雅彦⁴, 伊勢村雅士⁵, 森勇介¹

Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ.¹, Panasonic Holdings Corporation², ILE, Osaka Univ.³, Itochu Plastics Inc.⁴, Soshoh-Oshin Inc.⁵, ○D. Yamada¹, S. Usami¹, R. Higashiyama¹, M. Imanishi¹, M. Maruyama, J. Takino², T. Sumi², Y. Okayama², M. Yoshimura³, M. Hata⁴, M. Isemura, and Y. Mori¹

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

【背景】 Ga₂OをGa源として用いるOxide Vapor Phase Epitaxy (OVPE) 法は、高速成長時にGa₂O由来の酸素が成長層に過剰に取り込まれることで結晶性が悪化することが問題となっている^[1]。この問題に対し、我々はGa₂O供給量~ 60 sccm までの条件ではH₂分圧を上げることで結晶性を改善しつつ、成長レートを470 μm/hまで高速化できることを報告した^[2]。本研究ではOVPE法において1 mm/hを目指し、Ga₂O供給量をさらに増大させた領域において高い結晶性を維持しつつ、成長レート的高速化が可能か調査した。

【実験および結果】 Fig. 1 に従来のGa₂O供給量よりおよそ20 sccm高い80 sccmにおける成長レートと結晶性のH₂流量依存性を示す。NH₃流量を450 sccmに固定した状態で従来のH₂流量3490 sccmから12490 sccmまで増大させた。低H₂流量において悪化した結晶性は、H₂流量の増大に伴って改善が見られたが、同時に成長レートが半分以下に減少した。これはH₂流量の増大に伴う流速の増加によって、基板表面に到達するNH₃が減少したことが原因と考えられる。そこで、結晶性の改善が見られたH₂流量9490 sccmでNH₃流量依存性について調査した。Fig. 2に成長レートと結晶性のNH₃流量依存性を示す。NH₃流量750 sccmまでは結晶性の悪化を起こすことなく成長レートは増大し、589 μm/hに到達したが、NH₃流量900 sccmで結晶性が顕著に悪化した。これは、基板に到達するNH₃増大によって基板中に取り込まれる酸素が増大したためと考えられる。次に基板部温度依存性について調査した。Fig. 3にH₂流量6490 sccm、NH₃流量450 sccm固定で、基板設定温度を1286 °Cから1320 °Cまで上昇させた時の成長レートと結晶性の推移を示す。基板設定温度1286 °Cと1320 °Cを比較すると成長レートはほとんど変わらず、結晶性改善効果が見られた。以上の結果から、OVPE法における高Ga₂O供給による超高速成長には成長温度の高温化が最も効果的であることが明らかとなった。H₂流量の増大は低下するNH₃を補填することで成長レートを維持しつつ高速化が可能である。Ga₂O供給量をさらに増大させることで、1 mm/hまでの高速化も実現可能と考えられる。

【参考文献】 [1] 宇佐美 他, 第70回春季応物, 18a-E401-8 (2023). [2] 宇佐美 他, 第69回春季応物, 22a-E202-3 (2022).

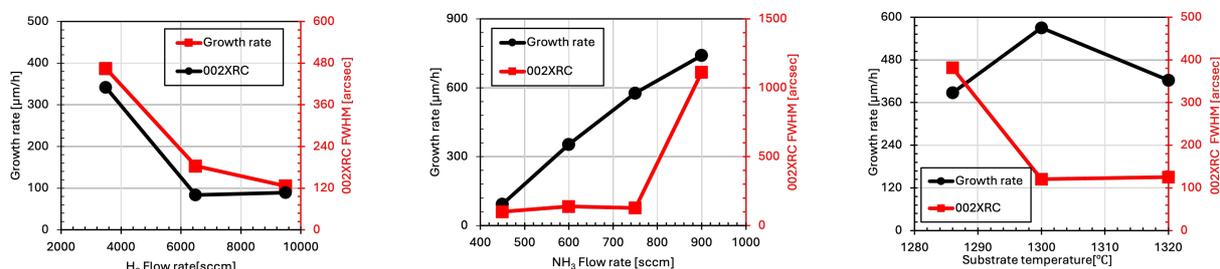


Fig. 1 Growth rate and 002 XRC FWHM vs. H₂ flow rate. N₂O flow rate and substrate temperature are 200 sccm / 1286 °C
 Fig. 2 Growth rate and 002 XRC FWHM vs. NH₃ flow rate. N₂O flow rate and substrate temperature are 200 sccm / 1286 °C
 Fig. 3 Growth rate and 002 XRC FWHM vs. substrate temperature. N₂O flow rate and NH₃ flow rate are 200 sccm / 450 sccm

【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」の委託およびJSPS科研費(基盤研究A)JP23H00275の助成を受けて行われた。

OVPE法によるGaN結晶成長における炉内多結晶量と貫通大ピットの関係

Relationship between the amount of polycrystal in the reactor and large pits in GaN growth by OVPE method

阪大院工¹, 阪大レーザー研², 伊藤忠プラスチック(株)³, (株)創晶應心⁴

○藤本直樹¹, 宇佐美茂佳¹, 今西正幸¹, 丸山美帆子¹, 吉村政志², 秦雅彦³, 伊勢村雅士⁴, 森勇介¹

Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ.¹, ILE, Osaka Univ.², Itochu Plastics Inc.³, Soshu-Ohshin Inc.⁴, ○

N.Fujimoto¹, S.Usami¹, M. Imanishi¹, M.Maruyama¹, M. Yoshimura², M. Hata⁴, M. Isemura⁵, and Y. Mori¹

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

【背景】 GaNウエハを低コストで作製するために、我々はGa₂OガスをⅢ族原料とする酸化物気相成長(OVPE)法を用いたGaNの高速厚膜成長に取り組んでいる。OVPE法では、高速成長時に部分的に多結晶化する問題があったが、気相中核生成頻度低減によって多結晶を抑制した高速成長が可能となった^[1]。しかし、核生成頻度低減に伴って、OVPE-GaN成長初期・途中からエピ層を貫通する大きなピット(貫通大ピット)の出現という新たな問題が生じた。この貫通大ピット底に高確率で微小な多結晶が見られることから、核生成頻度の高くなる育成炉の炉壁等の炉内構造物上に発生する多結晶の飛来が貫通大ピットの発生要因として考えられる。我々は過去、OVPE育成炉の炉壁にV族原料ガスであるNH₃の分解触媒であるタングステン(W)材を用いることで炉壁の多結晶を抑制可能であることを報告している^[2,3]。そこで、本研究では炉内構造物をW材に変更することによる、炉内多結晶量と貫通大ピット数の関係性について調査を行った。

【実験】 Fig. 1に本実験で用いた炉内セットアップを示す。従来のセットアップは炉壁材質：石英、ステージ材質：アルミナである。今回は炉壁多結晶量を計測するため育成領域に石英筒を挿入している。これに対して、新規セットアップでは、筒およびステージの素材をWに変更することで育成領域における炉内構造物をW材のみとした。育成温度は1286°C、H₂分圧を0.8 atm、Ga₂O流量を約42 sccmに固定し、GaN結晶を育成した。W材を導入した環境では基板に到達するまでにNH₃が分解されていくため、成長レート200 μm/h以上となるように供給NH₃流量を増加させた。成長膜厚、表面モルフォロジーおよび貫通大ピット数をSEM像により評価し、結晶品質はXRC半値幅より評価した。炉内多結晶量は挿入したW筒、石英筒の育成前後の重量変化より算出した。OVPE法で育成したGaNは成長面全体に微小なグロースピットを呈するため、貫通大ピットはそのピットに比べ5倍以上の径を持つピットと定義した。

【結果】 炉壁多結晶量と育成時間の関係をFig. 2に、貫通大ピット数と育成時間の関係をFig. 3に示す。Fig. 2、Fig. 3より従来素材からW材に変更することで1時間育成において炉壁多結晶量は53分の1に抑制され、貫通大ピットは8分の1に低減された。育成時間を2時間まで伸ばしてもW材を用いた育成が炉壁多結晶量、貫通大ピット数ともに大幅に減少するという結果を得た。今回の実験では従来環境で270 μm/h以上、W材を用いる実験においては300 μm/h以上の成長レートを達成しており、W材を用いた育成ではより高速な育成であるにもかかわらず、貫通大ピット数の少ないGa₂O結晶が得られた。さらに002回折のXRC半値幅は2時間育成においても92.7 arcsecと、種結晶と同程度の結晶品質を維持していた。以上より、炉内の多結晶飛来は貫通大ピットの主要因であることが明らかとなった。W材を用いてもわずかに炉壁多結晶が発生しており、これらを抑制することで貫通大ピットのゼロ化も可能と考えられる。

【参考文献】 [1] 宇佐美 他, 第69回春季応物, 22a-E202-3 (2022). [2] 川波 他, 第83回秋季応物, 21a-C200-3 (2022). [3] C. N. Hinshelwood and R. E. Burk, J. Chem. Soc. 127, 1105 (1925).

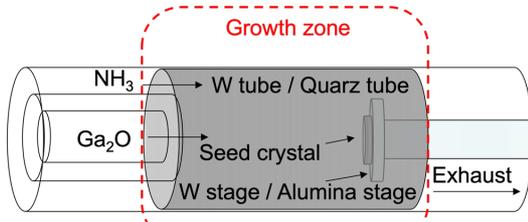


Fig. 1 Tungsten / previous setup reactor

【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」の委託およびJSPS科研費(基盤研究A)JP23H00275の助成を受けて行われた。

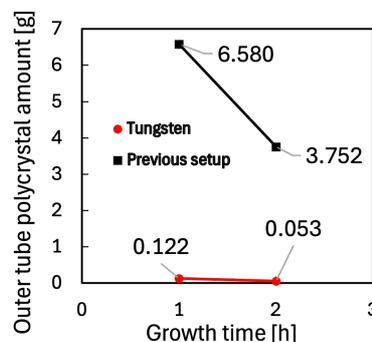


Fig. 2 Polycrystal amount vs. Growth time

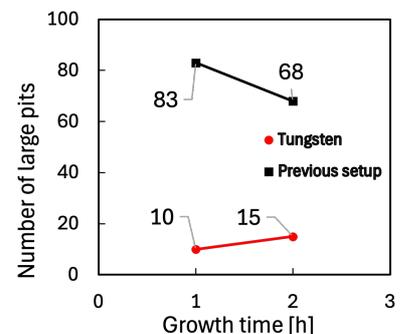


Fig. 3 Number of large pit vs. Growth time

OVPE 法による GaN の口径維持領域の調査

Investigation of GaN diameter maintenance area by OVPE method

阪大工¹, 阪大院工², 阪大レーザー研³, 伊藤忠プラスチック(株)⁴, (株)創晶應心⁵

○寺島 惇平¹, 宇佐美 茂佳², 中園 翼², 今西 正幸², 丸山 美帆子²,
吉村 政志³, 秦 雅彦⁴, 伊勢村 雅士⁵, 森 勇介²

Sch. of Eng., Osaka Univ.¹, Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ.², ILE, Osaka Univ.³,

Sosho-Ohshin Inc.⁵, ○J. Terashima¹, S. Usami², T. Nakazono², M. Imanishi²,

M. Maruyama², M. Yoshimura³, M. Hata⁴, M. Isemura⁵, and Y. Mori¹

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

【背景・目的】 低コスト窒化ガリウム (GaN) 自立基板を実現するため、我々はIII族源として Ga₂O を用いる Oxide Vapor Phase Epitaxy (OVPE) 法に取り組んでいる^[1]。自立基板の低コスト化には、インゴットからスライスしてウェハを多数枚取りすることが望まれるが、GaN は安定面である半極性面が表出することで口径が縮小するため、ウェハの取得枚数は低く制限される。低コスト化に向けては半極性面および無極性面からの成長を促進し、口径を維持または拡大することが必須である。そこで、本研究では OVPE 法による GaN 成長において壁面の垂直成長が可能であるか調査したので報告する。

【実験・結果】 成長温度を 1286°C に設定し、Ga₂O 発生源として N₂O を使い、N₂O : 20~75 sccm, NH₃ : 150~1000 sccm とガス流量を変化させて網羅的に育成を行い、基板壁面角度、成長レート、多結晶量についてマップデータを取得した。このとき、成長時間は 60 min とした。Fig. 1 にマップデータから抜粋した NH₃=300 sccm, N₂O=20, 60, 75 sccm と変化させたときの基板壁面の断面 SEM 像を示す。N₂O=75 sccm では基板壁面が 60° 程度に傾き半極性面が表出しているが、N₂O=60 sccm では基板壁面の傾きが 60° よりも大きくなり、N₂O=20 sccm では基板壁面の傾きが 90° となっている。N₂O 流量を下げることで壁面が錐状から垂直になる様子が確認された。成長レートは N₂O の低下に伴って低下し、N₂O=20 sccm において 80 μm/h であった。また低 N₂O 領域では、どの NH₃ 流量においても壁面は垂直であり NH₃ 流量に対する依存性は確認できなかった。続いて Fig. 2 に多結晶被覆率の N₂O および NH₃ 依存性を示す。N₂O および NH₃ 流量を下げることで、多結晶は低下傾向となった。これらのことより低 N₂O, 低 NH₃ 領域において壁面の垂直成長かつ多結晶の抑制が可能であることが明らかとなった。しかしながら、原料供給量を低下させると成長レートも低下するため、口径縮小を抑制しつつ、高速成長を実現するためには、成長温度を含め更なる検討が必要である。

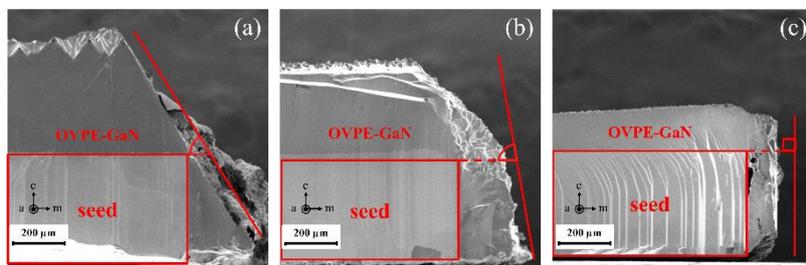


Fig. 1 The SEM image of OVPE-GaN
(a) N₂O: 75 sccm (b) N₂O: 60 sccm (c) N₂O: 20 sccm

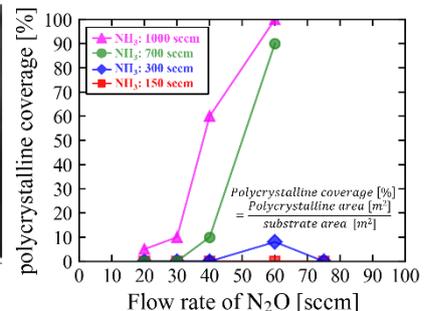


Fig. 2 Polycrystalline coverage vs. Flow rate of N₂O with each NH₃

【参考文献】 [1] M. Imade et al., J. of Cryst. Growth **312**, 676 (2010)

【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」の委託および JSPS 科研費(基盤研究 A)JP23H00275 の助成を受けて行われた。

Na フラックスポイントシード法において Ga 組成比が GaN 結晶合体領域の転位密度に与える影響

The Effect of Ga Composition Ratio of Ga-Na melt on the Dislocation Density at the Coalescence Region of GaN Crystal Grown with the Na-flux Point Seed Technique

阪大院工¹, 阪大レーザー研² ◦佐々木 稜太郎¹, 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,

◦Ryotaro Sasaki¹, Shogo Washida¹, Masayuki Imanishi¹, Kosuke Murakami¹, Shigeyoshi Usami¹, Mihoko Maruyama¹, Masashi Yoshimura^{1,2}, Yusuke Mori¹

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

【研究背景】縦型 GaN 系パワーデバイスの実現には低転位密度の GaN 基板が必要である。我々は Na フラックス法において微小な GaN 結晶をサファイア上に配列させる multi-point seed (MPS) 法により低転位密度の GaN 結晶を作製してきた。当該手法では、微小種結晶からそれぞれ六角錐状の結晶が成長する過程で表面に凹凸が生じるため、flux-film-coated (FFC) 技術により、結晶の平坦化も行っている[1]。FFC 技術は結晶を融液から引き上げて気相中に保持し、結晶表面の凹部に選択的に融液を残留させることで横方向成長を促進する。MPS 法と FFC 技術の組みあわせにより、凡その転位密度が $10^3 \sim 10^4 \text{ cm}^{-2}$ かつ平坦な結晶の育成に成功しているが、3つの六角錐状結晶が合体する領域に $10^5 \sim 10^6 \text{ cm}^{-2}$ の転位密集部が生じることが問題となっている[2]。近年の研究において、融液内外の結晶成長時間比率により合体様式を制御し、合体領域の転位密度の低減に成功した[3]。本研究では更なる低転位化を目指し、個々のポイントシードから成長する結晶の形状に着目した。これまでの取り組みで、合体部の転位密度は、結晶形状が均一であるほど低下することが示唆されている[2]。また、MPS 基板を用いた基礎的な研究において、Ga-Na 融液の Ga 組成が低い条件で結晶形状の均一性が向上することも報告されている[4]。そこで、本研究では低 Ga 組成条件を FFC 技術に適用し、転位密度及び結晶形状への影響を調査した。

【実験と結果】MPS 基板を種結晶として育成温度 870°C 、及び窒素圧力 3.0 MPa で育成を行った。Ga-Na 融液に種基板を 35 時間浸漬した後、 880°C に昇温し FFC 技術を用いて結晶成長を行った。FFC 技術を用いた成長は 132 時間行った。Ga 組成は従来の 27 mol% に加えて低 Ga 組成条件である 19 mol% の結晶を育成した。作製した結晶について、多光子励起顕微鏡 (MPPL) を用いて結晶合体時の均一性評価を行った (Fig. 1)。Ga 組成比 27 mol% で作製した結晶は歪な六角形状を示したのに対して、19 mol% で作製した結晶では正六角形に近い形状を示した。次に、アルカリ融液エッチングを行い、結晶合体部上の $250 \mu\text{m} \times 250 \mu\text{m}$ 領域におけるエッチピットにより転位密度を算出した (Fig. 2)。Ga 組成が 27 mol% で作製された結晶の転位密度は $2.54 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ であったのに対し、19 mol% で作製された結晶では $1.85 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ と減少していた。この結果から低 Ga 組成による均一な結晶形状での合体様式が転位密度の低減に有効であることが分かった。

【参考文献】

- [1] M. Imanishi *et al.*, Appl. Phys. Express, **12**, 045508 (2019).
- [2] M. Imanishi *et al.*, Appl. Phys. Express **13**, 085510 (2020).
- [3] R. Sasaki *et al.*, 12th IWN, P107 (2024).
- [4] M. Honjo *et al.*, Opt. Mater. Express, **65**, 38 (2017).

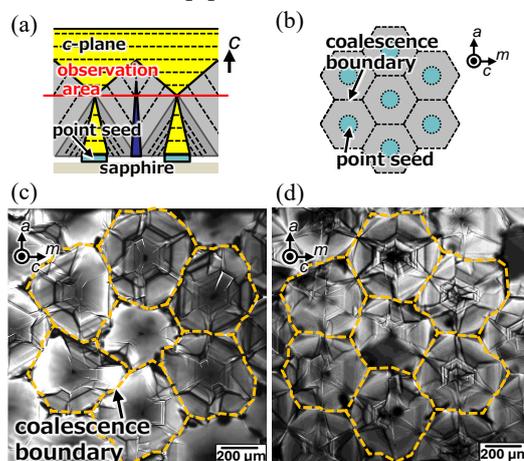


Figure 1: (a) Schematic of the MPPL-observation depth indicated by the red line, (b) schematic of MPPL images taken at the c-plane, and those images with Ga compositions of (c) 27 mol% and (d) 19 mol%.

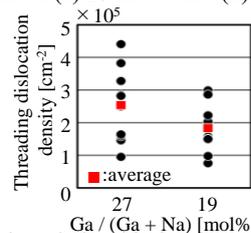


Figure 2: The relationship between flux composition and threading dislocation density above the coalescence region of three GaN crystals grown from each point seed.

Flux-Film-Coated 技術を導入した Na フラックス法における

GaN 結晶成長雰囲気の高圧・高温による多結晶抑制

Suppression of polycrystal by increasing the temperature and pressure of the GaN crystal growth atmosphere in the Na Flux method using Flux-Film-Coated technic

○田代 知輝¹, 今西 正幸², 鷲田 将吾², 村上 航介²,
宇佐美 茂佳², 丸山 美帆子², 吉村 政志^{2,3}, 森 勇介²
阪大工¹, 阪大院工², 阪大レーザー科学研究所³

Sch. of Eng., Osaka Univ.¹, Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ.², ILE, Osaka Univ.³

○Tomoki Tashiro¹, Masayuki Imanishi², Shogo Washida², Kosuke Murakami²,
Shigeyoshi Usami², Mihoko Maruyama², Masashi Yoshimura^{2,3}, Yusuke Mori²

E-mail: tashiro@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のため、大口径かつ低転位な GaN 基板が求められている。Na フラックス法では、微小な GaN 種結晶をサファイア上に配列する multi-point seed (MPS) 法と結晶表面を平坦化させる flux-film-coated (FFC) 技術の組み合わせにより大口径かつ高品質な GaN 基板が作製可能である^[1]。微小な種結晶への核発生を促進するため、通常、成長初期は高過飽和条件 (成長温度 850°C、窒素圧力 3 MPa) を適用し、続く FFC プロセスを 870~880°C で実施していた。しかし、高過飽和条件下では多結晶が発生しやすいことが問題であった。一方近年、成長条件を高温・高圧 (成長温度 880°C、窒素圧力 5 MPa) にすることで、温度を下げることなく高過飽和を維持し、MPS 基板上の全面核発生を達成した。そこで本研究では、当該新規高温・高圧条件を FFC 技術を導入した標準プロセスにおいて、多結晶抑制効果が得られるか検証した。同時に、多結晶抑制効果を有する炭素の添加量 (従来条件では 0.5 mol%) も検討した。

【実験と結果】基板を 35 時間 Ga-Na 融液中に浸漬し、MPS 上に角錐結晶を形成した。さらに、FFC 技術で平坦化を 60 時間行った後、30 時間浸漬して厚膜化を行った。全工程において、温度は 880°C、窒素圧力は 5 MPa に統一した。また、炭素添加量を 0.5 mol%に加えて 1.0 mol%と増加させた条件においても成長を行った。得られた結晶の光学写真をそれぞれ Fig.1 (a) 及び (b) に示す。880°Cかつ 5 MPa の新規高温・高圧条件においても FFC 技術での結晶表面平坦化を確認することができた。各条件における、MPS 基板上結晶と多結晶の収率 (原料 Ga 量のうち GaN 結晶が成長する際に消費された割合) 及び MPS 基板上結晶の成長速度を Fig.2 に示している。従来条件では低収率であるにも関わらず、多結晶が発生した。炭素添加量が 0.5 mol%の条件では、MPS 上結晶収率が約 50% (成長速度: 9.6 $\mu\text{m}/\text{h}$) であったのに対し、多結晶が 30%以上発生した。炭素添加量 1.0 mol%では、MPS 上結晶収率が 80%以上 (成長速度: 16 $\mu\text{m}/\text{h}$) の高過飽和となったが、多結晶は見られなかった。以上の結果から、高温高圧条件において炭素添加量を最適化すると、より高過飽和の場合においても、FFC 技術を導入した育成過程を通して多結晶抑制が可能であることが示された。

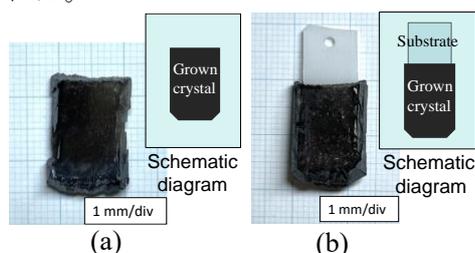


Fig.1. Images of grown crystals with (a) 0.5 mol% and (b) 1.0 mol% carbon addition

【参考文献】

[1] M. Imanishi *et al.*, Appl. Phys. Express **12**, 045508, (2019).

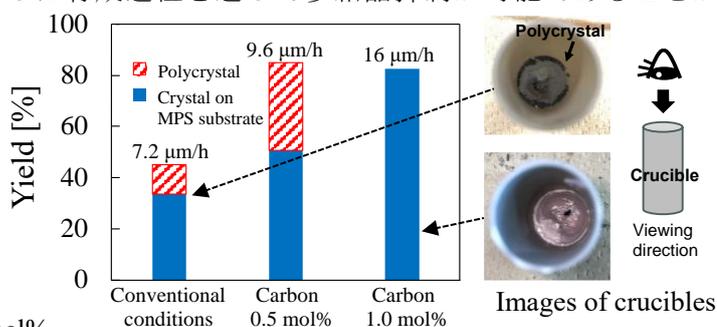


Fig.2. Growth rate and yields of crystal on MPS substrate and polycrystal.

【謝辞】

本研究は JSPS 科研費 JP23H00275 の助成を受けたものです。