

報告番号	※ 甲 第 10596号
------	--------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 MOVPE法を用いたサファイア基板上GaN層の
貫通転位密度の低減に関する研究

氏 名 奥野浩司

論 文 内 容 の 要 旨

現在の GaN 系青色 LED の進展は、低温 AlN バッファ層によってデバイス作製可能なほど平坦な表面を持つ GaN 層がサファイア基板上に実現したことにより導かれた。大きな格子不整合差となるサファイア基板上に高光度 LED が実現し実用化に至った半導体材料は、GaN 系半導体以外に前例が無い。この事実は結晶成長の新たな道を切り開き、大きな格子不整合差を持つヘテロ基板上に良質な結晶層を得る為の応用技術の発展に繋がった。さらに、安価且つ大口径が得られるヘテロ基板上に高品質の GaN 層を実現できたことは、LED の実用化と普及において非常に大きな役割を果たした。しかしながら、ヘテロ基板上に成長させた GaN 系半導体中の貫通転位密度は、現在においても $\sim 10^8 \text{ cm}^{-2}$ と高密度に存在している。ポテンシャル揺らぎによりキャリアの拡散長が制限される InGaN を発光層に用いる発光デバイスを除けば、結晶品質の問題は依然として大きい。InGaN 系青色 LED においても貫通転位の影響を無視できる貫通転位密度は $\sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$ 以下であると言われており、改善の余地が残されている。従って、ヘテロ基板上に低貫通転位密度の GaN 層を実現させる手法を確立することは、更なる LED デバイスの普及にとって非常に重要である。

本論文では、格子不整合系ヘテロ基板上結晶層の貫通転位密度を低減させる手法を確立させる為に、低温 AlN バッファ層技術と patterned sapphire substrate(PSS)技術を用いて、サファイア基板上 GaN 層の貫通転位密度を低減させる為の成長メカニズム解明と貫通転位密度の低減を試みた。上記 2 つの技術を研究テーマとして選択した理由は次の通りである。GaN 層の貫通転位密度を低減させる為には、サファイア基板界面から発生する貫通転位を低減させる必要がある。従って、ヘテロ基板上に最初に形成されるバッファ層に着眼した。貫通転位密度の低減の為には GaN 層中を伝播する貫通転位の低減も必要である。従って、現在の高光度 LED の必須技術であり、横方向成長による貫通転位の低減と光散乱による光取出し効率向上の両立が可能な

PSS に着眼した。

1 つ目の研究テーマは、低温バッファ層による貫通転位密度低減の為の成長メカニズム解明とその応用である。低温バッファ層は GaN 層がヘテロ基板上に成長する為に必要な成長核として高密度の結晶粒を形成する。現在のところ GaN 層中に伝播している貫通転位は結晶粒界が起源とされている。しかし、結晶粒密度と貫通転位密度の関係を定量的に示した報告はまだ無い。従って、低温バッファ層を用いて GaN 層の貫通転位密度を低減させる為には、低温バッファ層に形成される結晶粒密度と貫通転位密度、および GaN 層の貫通転位密度との関係を定量的に明らかとする必要がある。今回、基板としてサファイア、低温バッファ層として AlN を用い、低温バッファ層の成長メカニズム解明と貫通転位密度を低減させる手法の確立を目指した。その結果、GaN 層中の貫通転位密度を低減させる為には、アニール後の低温 AlN バッファ層の結晶粒密度を低減させる必要があり、その為にはアニール温度の高温化が効果的であることを定量的に明らかとした。

2 つ目の研究テーマである PSS は、貫通転位密度の低減による内部量子効率向上と光散乱による光取出し効率向上の両立が可能であるという PSS の特徴を最大限に発揮する為に、PSS 上 GaN 層の成長メカニズム解明とその応用技術の確立を目指した。今回考案した放射状ストライプパターンを持つ PSS は、成長メカニズム解明にとって非常に有効な手法であることを明らかとした。そして、平坦且つ低貫通転位密度の GaN 層が、 $[10\bar{1}0]_{\text{sapphire}}$ から 3° 回転したストライプパターンを持つ PSS 上に成長できることを見出した。さらに、貫通転位密度低減による内部量子効率向上と光取出し効率向上を両立させる為に、新規 PSS を考案し、青色 LED デバイスによる検証を行った。その結果、メカニズム解明で得られた貫通転位密度低減効果に加え、光散乱効果を増大させ、内部量子効率向上と光取出し効率向上を実現した。

最後に、上記 2 つの研究成果を組み合わせ、GaN 層の貫通転位密度の更なる低減に試み、GaN 層中の貫通転位密度の低減の為には、ヘテロ基板界面から発生する貫通転位と GaN 層中を伝播する貫通転位を低減させるアプローチが必要不可欠であることを実証した。

これらの研究成果は格子不整合系ヘテロ基板上結晶層の貫通転位密度の低減に対して重要な貢献をする研究成果であると考え。以下、各章の概要を述べる。

第 1 章の序論では、GaN 系半導体および LED の研究開発の歴史と現状を説明し、高光度 LED を実現させる為の課題について述べる。そして本研究の目的を提示した。

第 2 章では、MOVPE 法について説明し、低温バッファ層を用いたサファイア基板上 GaN 成長の典型的な成長プロセスについて述べる。さらに GaN 成長に用いることが可能な低温バッファ層とヘテロ基板を説明し、それぞれの特徴と課題を述べる。

第 3 章では、低温 AlN バッファ層による GaN 層中の貫通転位を低減させる成長メカニズムを構築する為に、a 面と c 面サファイア基板上 GaN 層の貫通転位密度の差に着眼し、低温 AlN バッファ層の結晶粒密度と貫通転位密度、および GaN 層の貫通

転位密度との関係について比較・解析を行った結果について述べる。その結果、a 面、c 面サファイア基板上に低温 AlN バッファ層を介して成長させた GaN 層の貫通転位の差は、アニール後の低温 AlN バッファ層の結晶粒密度の差であることを明らかとした。この結晶粒密度の差は格子不整合差の違いに起因していることが示唆された。そして GaN 層中の貫通転位密度を減少させる為には、低温 AlN バッファ層の結晶粒密度の低減が必要であり、その為はアニール処理によって結晶粒の固相成長を促進させ、そのサイズを大きくし、結晶粒密度を低減させることが重要であることを示した。

第 4 章では、低温 AlN バッファ層を介して c 面サファイア基板上に成長させた GaN 層中の貫通転位密度を低減させる為に、アニール温度の高温化による低温 AlN バッファ層の結晶粒密度の低減を試みた結果について述べる。低温 AlN バッファ層の結晶粒密度はアニール温度が高いほど減少した。これはアニールの高温化によって隣接する結晶粒同士が合体する、固相成長が促進したことを示す。そして低温 AlN バッファ層の結晶粒密度と貫通転位密度には高い相関関係があることを初めて定量的に明らかとし、貫通転位が小傾角粒界で形成されていることを示した。一方、低温 AlN バッファ層の高温アニールには課題も存在し、そのメカニズム解明と対策手法の考案及び検証を行った。最後に、アニール後の低温 AlN バッファ層の結晶粒密度と GaN 層中の貫通転位密度の関係を示し、GaN 層中の貫通転位密度を低減させる為にはアニール後の低温 AlN バッファ層の結晶粒密度を低減させる必要があることを初めて定量的に示し、低温 AlN バッファ層による GaN 層の貫通転位密度を低減させる成長メカニズムを明らかとした。

第 5 章では、PSS 上 GaN 層の成長メカニズムを解明する為に、ストライプパターンが 0.01° 間隔で放射状に広がった放射状ストライプ PSS を考案し、GaN 層の成長モードと貫通転位の挙動について解析を行った結果について述べる。その結果、GaN 層の成長モードと貫通転位密度は、ストライプ方向に強く依存し、主に 3 つの成長モードが存在することが分かった。特に特徴的な領域は、ストライプ方向が $[10\bar{1}0]_{\text{sapphire}}$ から 12° 以下のオフ角を持つ領域であり、この領域において $[10\bar{1}0]_{\text{sapphire}}$ からのストライプ方向のオフ角が 3° の時に、平坦且つ低い貫通転位密度(約 $2.0 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$)を持つ膜厚 $5\mu\text{m}$ の GaN 層が得られることを見出した。 $[10\bar{1}0]_{\text{sapphire}}$ からオフ角を持つストライプ PSS 上に成長させた GaN 層は、その成長モードが InP のマイクロチャネルエピタキシーで報告されている zipper growth mode に似ており、さらに貫通転位の挙動は ELO で得られた GaN 層中の貫通転位の挙動と似ていることから、平坦な表面が得られると共に貫通転位密度の低減効果も高いことを明らかとした。

第 6 章では、貫通転位密度低減による内部量子効率向上と光取出し効率向上を両立させる為に、第 3 章で得られた結果を応用し、 $[10\bar{1}0]_{\text{sapphire}}$ から 3.0° オフしたストライプパターンと $[11\bar{2}0]_{\text{sapphire}}$ に並行なストライプパターンを組み合わせた 2 方向ストライプ PSS (TPSS(3°))を作製し、TPSS(3°)上の GaN 層成長モードと青色 LED デバイスの特性について述べる。GaN 層の成長モードは TPSS(3°)に形成されている

$[10\bar{1}0]_{\text{sapphire}}$ から 3.0° オフしたストライプパターンの存在により、平坦且つ低い貫通転位密度(約 $2.0 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$)の GaN 層が実現可能であることを示した。TPSS(3°)上に作製した青色 LED の光出力は、比較として用意した平坦なサファイア基板および 1 方向のストライプパターンを持つ SPSS 上青色 LED よりも増大しており、これは貫通転位密度の低減による内部量子効率向上と光散乱増大による光取出し効率向上が両立した結果であることを明らかとした。

第 7 章では、低温 AlN バッファ層(第 3,4 章)と PSS(第 5,6 章)の研究成果で得られた貫通転位密度の低減技術を応用し、更なる貫通転位密度の低減と青色 LED 特性の向上を試みた結果について述べる。上記 2 つの技術を組み合わせることによって、GaN 層中の貫通転位密度の更なる低減(約 $8.4 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$)を実現した。青色 LED の電気特性および光出力特性は、貫通転位密度が低いほど改善することを確認した。これらの結果から、青色 LED の特性を改善する為には GaN 層中の貫通転位密度を減少させる必要があり、その為には低温バッファ層で形成される貫通転位と GaN 層中を伝播する貫通転位を減少させる必要があることを示した。

第 8 章は結論であり、低温 AlN バッファ層および PSS 上 GaN 層の成長メカニズム解明とその応用結果について要約する。最後に、残された課題と今後の展望について述べ、本論分の結びとする。