

| | |
|------|--------------|
| 報告番号 | ※ 甲 第 11043号 |
|------|--------------|

主 論 文 の 要 旨

論文題目 Si基板上可視光デバイス応用に向けた
窒化物半導体結晶成長に関する研究

氏 名 光 成 正

論 文 内 容 の 要 旨

本研究は、Si 基板上窒化物半導体結晶成長(GaN-on-Si)及び光デバイス作製のための基盤技術に関するものである。本研究では Si 基板上 GaN 成長において実現されていないあるいは困難性の高い課題として、Si(001)基板上への高品質単結晶 GaN 成長技術、Si 基板の光吸収、高電流駆動時の発光効率低減、GaN デバイスの融合を挙げ、これらの課題を解決するための基盤技術である Si(001)基板上単結晶 GaN 実現に向けた中間層成長技術の開発、および Si 基板上分布帰還型反射構造(Distributed Bragg Reflector : DBR)成長および光閉じ込め構造を用いた新規デバイス作製技術の開発の二点を目的として掲げた。

第一の目的として掲げた Si(001)基板上単結晶 GaN 実現に向けた中間層技術とは、Si(001)面にエピタキシャルに配向した中間層上に GaN が成長初期から単一配向させることである。このような新規中間層ができれば、成長前のアニールプロセスによる成長初期に存在するダブルドメインの発生の抑制は必要なくなり、デバイス作製がより容易になると考えられる。さらに Si(001)基板上の高品質な GaN 単結晶成長が実現すれば、その基板サイズを生かして LED(Light Emitting Diode)のチップサイズを大きくして、電流密度が低い状態でも高い光出力を得ることができる。また、Si(001)基板上に成長した単結晶 GaN を用いたデバイス構造を用いて CMOS(Complementary Metal Oxide Semiconductor)や MEMS(Micro Electro Mechanical Systems)に代表される Si デバイスと III 族窒化物光デバイスとの融合したデバイス実現も期待される。

第二の目的として Si 基板上 DBR 成長および光閉じ込め構造を用いた新規デバイス作製技術の開発を掲げた。Si と GaN 間に反射膜である DBR を成長することによって、LED の光取り出し効率向上に加えて、Resonant Cavity-LED や Vertical Cavity Surface Emitting Laser 等のデバ

イス作製の足掛かりとなり、窒化物半導体系の可視光デバイスを用いた新しい光通信等の応用が可能になると考えられる。

以上の目的を実現するために、本論文は示すように GaN 系光デバイスと Si 集積デバイスのハイブリッド化を目指した発展型成長技術として、中間層成長技術および反射膜成長技術に取り組んだ。

第 1 章では本研究の主旨である Si 基板上窒化物半導体結晶成長に関する課題および目的を明らかにするために、半導体産業の黎明期から今日にいたるまでのバルク半導体結晶成長および異種基板上半導体結晶成長技術の重要な役割をまとめた。バルク半導体結晶成長では、Si 半導体のデバイスプロセス技術の進展と、並行して進められた Si バルク半導体結晶成長技術に関して述べ、Si 半導体上に化合物半導体を結晶成長する意義を明らかにした。また異種基板上成長では、本研究で主に扱った Si 基板上 GaN 成長、いわゆる GaN-on-Si の基礎となる知識として GaAs-on-Si 成長を主とする様々な歴史および技術に触れ、実際に GaN-on-Si にもこれらの知見が応用されていることをまとめた。更に 1990 年代から活発化した GaN-on-Si に関する研究の課題とその解決の進展をまとめた。また今後の GaN-on-Si に必要となる技術として、窒化物半導体デバイスと Si デバイスを融合させた高機能デバイス実現のために Si(001)基板上の窒化物半導体結晶成長技術及び高品質反射膜作製技術および光閉じ込め構造の作製技術が重要であることを示した。

第 2 章では本研究で用いた各結晶成長法の特徴と実験装置の構成、実験プロセスの概要および主な結晶評価法に関して述べた。特に CVD(Chemical Vapor Deposition)および PVD(Physical Vapor Deposition)を用いた結晶成長において膜の配向を決めるモデルを複数示した。また、本研究で用いたマグネトロンスパッタリングおよび MOVPE(Metal Organic Vapor Phase Epitaxy)法の概要を述べた。結晶配向評価に用いた EBSD(Electron BackScatter Diffraction)法に関しては、その歴史と X 線回折を用いた配向性評価との違い並びに有用性を述べた。

第 3 章ではスパッタリング法を用いた Si(001)基板上の中間層の最適化について、異なる金属初期配向層を用いた AlN 中間層および GaN を成膜することにより行った。

まず Al 初期配向層を用いて AlN 中間層を成膜する場合に、Si(111)基板上で最適化した条件を Si(001)基板上および Si(110)基板上に適用すると、Si(111)基板上と比べて AlN 中間層上 GaN 初期結晶核密度が下がり、X 線からは明確な配向ピークは観察されなかった。しかしながら AlN 上に成長した GaN 初期結晶核の配向を EBSD 法によって調べることによって Si(001)基板上および Si(110)基板上においても GaN 初期核が基板の結晶構造に対して GaN[0001]の基板面に対する投影方向が Si{110}に対応した面内配向関係を持っていることを明らかとした。

次に Ti 初期配向層を用いた Si 基板上 AlN 中間層成膜を試み、Al 初期配向層導入では得られなかった c 軸配向した GaN が室温成膜でも Si(001)基板上に得られることが分かった。また成膜温度 450℃で Ti 初期配向層厚みを最適化した条件下において、Si(111)、Si(110)、Si(001)基板上す

べてにおいて c 軸配向し、基板と面内配向関係を持った GaN が成長可能なことを明らかとした。また Si(001)基板上においては off 基板を用いることで存在する回転ドメインの片方が支配的となった。つまりこれまで報告されてきたような 1000℃以上の高温条件下でなく 450℃の低温成膜においても膜厚を最適化した Ti を初期配向層として用いることで AlN の配向性向上が可能であることを見出した。

上記の実験結果から、Si(001)基板上に面内配向性を持った単結晶 GaN を得るために Al 初期配向層および指向性スパッタリングを併用する方法を提案した。指向性スパッタリングとは基板を回転せず固定し、特定の Si 面内方向、この場合 Si[110]方向をスパッタリングターゲット方向に向けてスパッタリング成膜を行う方法である。指向性スパッタリングを用いて成膜した Al 初期配向層および AlN 中間層を用いて GaN 成長を行ったところ、Si(001)基板上に(10-13)GaN の単結晶成長が可能であることが分かった。X 線回折によって、得られた(10-13)GaN の面内 c 軸方向を調べたところ、指向性スパッタリングを行った Si[110]方向と平行な方向であることが確かめられた。これらの実験によって GaN の c 軸方向が指向性スパッタリングを行う Si[110]方向に対応していることを確かめた。更に得られた(10-13)GaN の MOVPE 成長条件最適化を試み、低 V/III 比及び低圧条件下によって、平坦化した(10-13)GaN が Si(001)基板上に得られることを示した。得られた(10-13)GaN の結晶成長のメカニズムを明らかとするために、断面の Transmission Electron Microscope(TEM)観察を行った。初期の Al 結晶核は Si(001)基板の結晶構造と同一の Al(001)配向しており、その後の AlN 成長から c 軸が傾いて成長していることが分かった。AlN、GaN それぞれの結晶成長過程において c 軸方向はばらつきがあるものの、GaN を数 100 nm 成長することで、GaN 上部では配向が均一な単結晶 GaN となることが、TEM 観察から明らかとなった。成長した Si(001)基板上(10-13)GaN には多数の積層欠陥が混入していたため低温 AlN 中間層導入による積層欠陥低減を試みた。GaN 成長途中の低温 AlN 層導入により下部の積層欠陥密度が $\sim 7 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ であるのに対し低温 AlN 上部では $\sim 3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ と一定の積層欠陥低減の効果が見られたが、同時に GaN/低温 AlN 界面での格子不整合による転位発生も観察されたことから、最適化は今後の課題となった。

第 4 章では第 3 章で最適化した Si 基板上スパッタ AlN 中間層を用いた GaN の、選択成長による低転位化を試みた。Si(111)基板上的最適化した AlN 中間層に関しては SiO₂マスク及び水酸化テトラメチルアンモニウム溶液を用いたスパッタ AlN 中間層のアンダーエッチングにより、数 100 nm オーダーの線幅を持つ AlN 細線が作製可能であることを見出した。更に AlN 線幅を狭くし、スパッタリング AlN 細線上 GaN の選択成長を行った。条件を最適化した c 面 GaN ストライプおよび GaN レイヤーにおいてカソードルミネッセンス(CL)暗点密度が通常の AlN 中間層上に直接成長した GaN と比べて大幅に低減できることが明らかとなった。またこの転位が低減した GaN の良好な光学特性を低温 CL 測定により確認した。

指向性スパッタリング AlN 中間層を用いた Si(001)基板上(10-13)GaN に関しては、放射型ストライプパターンを用いて特定の成長条件下における成長モードを調べ、平坦化されやすいストライプ方向を明らかとした。この選択成長した(10-13)GaN の低温 CL 測定を行い、選択成長した試料では通常のレイヤー成長と比べ発光特性が向上すること、また放射型ストライプパターンを用いた場合の平坦化されやすいストライプ方向において、積層欠陥に起因する発光ピーク強度が最も低くなることを明らかにし、今後の(10-13)GaN の高品質化に向けた指針が得られた。

第 5 章では AlN と GaN の熱分解温度の違いを利用した DBR の成長と、DBR の反射率評価および DBR 上の GaN および InGaN/GaN 成長および単層架橋 AlN 上の GaN マイクロディスク作製に関して述べた。4pair の AlN/air DBR を用いることで 90%を超える反射率が得られ、少ない層数で高い反射率が得られることが明らかとなった。また AlN/air DBR 作製後にそのまま GaN 成長が可能で DBR 上に GaN および InGaN/GaN 量子井戸を成長し、DBR なしの場合と比べ、約 2 倍の PL 強度向上が得られることがわかった。

第 6 章では AlN と GaN の分解温度の差を利用して AlN の架橋構造作製後 GaN を引き続き成長し、成長プロセス中に GaN マイクロディスクを Si 基板上に作製可能であることを示した。GaN マイクロディスクの径をマスクウインドウ幅によって変えることで異なる径のマイクロディスクを作製できた。作製した GaN マイクロディスクのフォトルミネッセンス(PL)強度の励起密度依存性実験を行い、室温、パルス励起下においてマイクロディスクから誘導放出が観測された。ディスク直径 2.3 μm および 4.3 μm のマイクロディスクの各平均励起パワー密度の閾値は 5.9 mJ/cm^2 、4.8 mJ/cm^2 であった。レージング時の主発光ピークの Q 値は約 370 であり Fabri-Pérot(F-P)モードと Whispering Gallery Mode(WGM)に関して実験で得られた Q 値から反射率を求めると、F-P モードに関しては(1-100)面に垂直入射した場合の理想的な反射率である 21%より高くなっており、WGM に関しては約 80%という理想的な全反射に近い値が得られた。有限要素法による 3 次元キャビティ内における固有周波数シミュレーションの結果、WGM と考えられるモードが傾斜ファセットを持つ本研究で作製したマイクロディスクにおいても存在し得ることが示された。また、WGM とした時のモード間隔を実験値と比較する事で良い一致が得られたことから本研究のマイクロディスクから観測されたレージングモードは WGM に関連するものと結論づけた。

第 7 章では本論文で行った研究に関して総括した。また残された課題とこれからの展望に関してまとめ、今後の GaN-on-Si 研究の方向性を示すとともに、本研究を通じて得られた成果を位置づけた。