

## 論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 13309 号
------	---------------

氏 名 劉 強

### 論 文 題 目

Study on High Quality bulk GaN Single Crystal Growth by Halide Vapor Phase Epitaxy  
(ハライド気相成長法による高品質バルクGaN単結晶成長に関する研究)

### 論文審査担当者

主査	名古屋大学	教授	天野 浩
委員	名古屋大学	教授	須田 淳
委員	名古屋大学	准教授	本田 善央
委員	三重大学	教授	三宅 秀人
委員	名古屋大学	教授	宇治原 徹

## 論文審査の結果の要旨

劉強君提出の論文「Study on High Quality bulk GaN Single Crystal Growth by Halide Vapor Phase Epitaxy (ハライド気相成長法による高品質バルクGaN単結晶成長に関する研究)」は、1969年に初めて窒化ガリウム(GaN)単結晶成長が報告され、これまで主にGaNの自立基板成長に用いられているハライド気相成長法(HVPE法、ハイドライド気相成長法と呼ばれることが多いが、その理由は1970年代、GaAsのエピタキシャル成長の際、砒素の原料としてAsH<sub>3</sub>とAsCl<sub>3</sub>が用いられたために、それぞれの原料を用いた成長法を水素化物であるハイドライド気相成長法及び塩化物であるクロライド気相成長法と区別して呼んだことが遠因となっている。GaNの場合、クロライドの窒素原料は一般的ではなく、多くはハイドライド、即ち水素化物のアンモニアである。寧ろGaの原料として有機金属化合物を用いる場合と、HClとGaを反応させて合成するハロゲン化物、いわゆるハライドとしてGaClを用いる場合を区別してMOVPE法とHVPE法としているので、本論文ではHVPEのHをハイドライドではなく、ハライドと呼んでいる。)を用い、低コスト自立基板用単結晶の成長法を検討した結果をまとめている。本論文では、従来熟練者の勘と経験に頼っていた成長炉の設計について、縦型の炉において、市販のソフトウェアを基に結晶成長シミュレーションを行い、成長速度の実験結果を正確に再現できることを確認している。次にAmmonothermal法、HVPE法、およびNaフラックス法で成長されたGaN自立基板を種結晶として用い、長尺成長用種結晶としての優位性について比較している。さらに本論文では、6インチ長尺成長の実現のため、\*縦型炉の基板配置の上下を入れ替えたパーティクル付着による異常成長を防ぐための種結晶フェイスダウン配置、\*内部と外部の原料ガス供給を独立して制御する二層制御供給システム、\*長時間成長でもNH<sub>4</sub>Clの析出による詰まりの問題の無い副生成物低温析出システムを設計し、実際に結晶成長実験を行い、大型化への指針を得ている。各章の概要は以下の通りである。

第1章では、GaNの結晶成長の歴史をまとめ、特に自立基板の成長法として期待されているNaフラックス法、Ammonothermal法、HVPE法のこれまでの研究経緯を紹介し、HVPE法による長尺結晶成長を目指した本論文の取り組みについて、種結晶の必要仕様、金属触媒を用いた厚膜成長における多結晶析出抑制のアイデア、大口径エピタキシャル成長のための本研究の取り組みの新規性をまとめている。

第2章では、フェイスアップのHVPE法縦型炉を設計、試作し、結晶成長の実験を行っている。実際の成長速度やGaとHClの反応量に関して、有限要素法による市販のHVPE法シミュレーションソフトウェアにより計算を行い、実験結果とよく一致していることから、計算手法や用いているパラメータが有効であることを確認している。

第3章では、フェイスダウンの縦型HVPE炉を用いて、Ammonothermal法、二つの別企業で作製されたHVPE法、およびNaフラックス法の計4つの種結晶上にHVPEで厚膜成長を行い、反りの最も少ないAmmonothermal法種結晶が、その上のエピタキシャル層内でも最も歪が小さいことを、多光子フォトルミネッセンスを用いた貫通転位伝搬の角度変化の様子から見出している。また、(0002)回折ではエピタキシャル成長後にブラッグ回折のすそ野の回折強度が増大し、(10-12)回折では複雑に変化することを見出している。長尺成長の問題点の一つに、成長速度の比較的遅い{10-12}半極性面が形成され、結晶径が小さくなる問題がある。本論文では、触媒であるタングステンを外周に配置することにより、側壁が無極性面で囲われ、長尺成長に伴う径の縮小の抑制に成功している。

第4章では、大口径6インチの長尺成長の実現のため、フェイスダウン構造の大型HVPE炉での最適装置設計及び結晶成長シミュレーションと実験結果の比較を議論している。長時間成長の際問題となる吹き出し口での多結晶析出を抑えるためのタングステンおよび窒化タングステンの効果を見出している。またその技術を用い、2.3 mmまでの厚膜成長を実現したこと、タングステンの触媒効果が長尺成長に有効であること、および4インチまでの均一な成長条件の構築に成功し、6インチ成長も可能であることを証明している。

第5章では、第3章及び第4章で得られた成果をまとめ、大口径長尺結晶の実現には、今後マイクロな高速歪マッピング評価法の構築や無歪の大型種結晶の重要性を強調している。

以上のように、本論文は、GaN基板上的GaNデバイス、すなわちGaN on GaNデバイスの社会実装の加速のために必須のGaN基板の低コスト化に関して、HVPE法を用いた大口径長尺成長実現に必要なカギとなる種結晶の品質を明らかにし、また長尺成長のための成長炉の設計指針を示した。その成果は、学術上のみならず産業上も極めて顕著であり、本論文の提出者である劉強君は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格があると判断した。