日本―中国 国際共同研究「都市における環境問題または都市における エネルギー問題に関する研究」 平成 28 年度 年次報告書		
研究課題名(和文)	有害物質分解システムに向けた高性能紫外線レーザーダイ オードの研究	
研究課題名(英文)	Development of Nitride Semiconductor-based High Power Ultraviolet Laser Diodes for Hazardous Substances Decomposition Systems	
日本側研究代表者氏名	天野浩	
所属・役職	名古屋大学 未来材料・システム研究所 未来エレクトロ ニクス集積研究センター センター長、教授	
研究期間	平成 28 年 8 月 1 日~平成 31 年 3 月 31 日	

1. 日本側の研究実施体制

ワークパッケー No. 1	・ジ	AIN 基板の作製	
氏名		所属機関・部局・役職	役割
三宅 秀人	三 三 三 授	€大学大学院地域イノベーシ ▽学研究科 副研究科長・教	結晶成長及び構造評価
本田善央	名 こ 人 石 ス り	5屋大学 未来材料・システ 肝究所 未来エレクトロニク 集積研究センター 准教授	光・電気物性の評価
岡田俊祐	三電	፪大学院工学研究科 氖電子工学専攻 D2	結晶成長と評価
岩山 章	三重電学	重大学院工学研究科 瓦電子工学専攻 研究員	結晶成長と評価

ワークパッケージ No. 2		UV-LD の作製	
氏名		所属機関・部局・役職	役割
天野 浩	名 古 石 切 ス 集 、	□屋大学 未来材料・システ 〒究所 未来エレクトロニク ■積研究センター センター 教授	研究総括
本田善央	名さ ム研 ス集	5屋大学 未来材料・システ Ŧ究所 未来エレクトロニク ミ積研究センター 准教授	光・電気物性の評価
久志本 真希	名さ 子情	5屋大学大学院工学研究科電 「報システム専攻 助教	光励起システムの構築
Xu Yang	名さ 院生	5屋大学大学院工学研究科 E(博士後期課程 D1)	薄膜結晶成長及び評価
Zhibin Liu	名さ 院生	5屋大学大学院工学研究科 E(博士後期課程 D1)	厚膜結晶成長及び評価

2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

環境有害物質分解システムのニーズに応じ、高出力の紫外線レーザーダイオード(UV-LD) 素子の要素技術の確立を目的とし、UV-LD に関する素子構造の設計、AIN 結晶成長と転位の 低減、UV-LD 結晶材料と素子の物性などを研究する。高 AI 組成 AlGaN の転位の挙動、超格 子や量子井戸界面の急峻性、AI 組成の均一性、歪み、発光特性及び電気特性などを評価とと もに、その場観察技術を導入し、成長動力学や熱力学を明らかにする。また、高出力 UV-LD に不可欠な高品質 AIN 基板作製技術の確立を目指し、凹凸基板上へ AIN の厚膜成長を行う。 また、HVPE 法によるホモエピタキシャルを行って、基板からの不純物の拡散や、HVPE 成 長膜における酸素などの不純物取り込みについても調べる。透過電子顕微鏡を用いて転位の 挙動を調べ、結晶成長および熱処理条件の検討にフィードバックを行う。

3. 日本側研究チームの実施概要

ワークパッケージ No. 1 : AIN 基板の作製		
日本側の主担当者	三宅 秀人	
所属機関 部局	三重大学大学院地域イノベーション学研究科	
役職	副研究科長・教授	
宝施報告		

ア.凹凸基板上へ AIN 成長条件の検討

サファイア上 GaN 成長では、主に SiO₂をマスクに用いて、選択横方向成長(ELO 法)により 転位密度の低減の検討が行われてきた。しかし、AIN は SiO₂等のマスクを用いることができ ないことに加えて、GaN に比べ成長条件による形態変化が小さく、GaN に用いられている FACELO 法 (Facet-controlled Epitaxial Lateral Overgrowth,ファセット制御 ELO 法)のよう な二段階成長による転位低減技術が適応できない。図 WP1.1 に GaN と AIN の転位低減の機 構について模式図を示す。GaN では一段階目を成長条件によってマスク開口部の断面形状が 三角となるように成長し、二段階目では横方向成長を促進させることにより、貫通転位の伝搬 方向を横方向に変え、マスク上に形成したボイドに逃がすことでマスク開口部の転位密度を大 幅に低減することが可能となった。一方 AIN では、ストライプ溝基板を用いて、溝上にボイド を形成した場合でも、溝上の貫通転位は抑止することができるが、テラス上の貫通転位はその まま表面まで伝播してしまう。そこで、シード部の断面形状を始めから三角となるように加工 するプロセスを開発することで疑似的に FACELO を行ったところ、シード部からの転位伝搬 を抑制することができた。本研究では三角ストライプ溝基板による転位低減のメカニズムを明 らかにし、さらなる厚膜化、低転位化のためにストライプ構造や成長条件の検討を行った。



図 WP1.1 に GaN と AIN の転位低減の機

サファイア上に MOVPE 法により 4 µm AIN を堆積した AIN/サファイア基板にプラズマ CVD 法を用いて SiO₂を堆積させ、フォトリソグラフィ技術によって凹凸ストライプパターン を作製した。その後、レジストを保護層としてウェットエッチングを行い SiO₂のマスクパタ ーンを作製する。ウェットエッチングの等方性を利用して SiO₂の断面形状を三角にする。そ の後、RIE 装置を用いて SiO₂を完全にドライエッチングすることにより、SiO₂の断面形状を AIN に転写することができる。この様にして<1-100>AIN 方向と平行に三角ストライプ溝パ ターンを形成した。図 WP1.2 に示す三角ストライプ溝基板を用いて HVPE 装置により AIN 成 長を行った。

7μm: 3μm 基板上への 180 min の成長により 28 μm のクラックフリーAIN 膜を得た。図 WP1.3 に断面 SEM 像を示す。横方向成長によりボイドが形成され応力緩和がなされたため、 クラックの発生を抑制することができた。エッチピット密度(EPD)測定により成長後 7μm: 3μm 基板の転位分布を調べた結果を表 WP1.1 に示す。使用した MOVPE の基板では a+c 型 転位、a 型転位はともに一様に分布しており、転位密度は非常に多い。それに対して、三角ス トライプ溝基板上へ成長した AIN では、a+c 型転位は横方向成長の合体部に集中しており、 それ以外の部分では大幅に低減されている。一方、a 型転位はシード上部にも一様に分布して いるが、成長前に比べ転位密度は低減されている。

	三角ストライプ溝基板	使用した基板
a+c 型転位(cm ⁻²)	4. 2 × 10 ⁶	2. 2 × 10 ⁸
a 型転位(cm ⁻²)	7. 3 × 10 ⁸	1.9×10 ⁹

表 WP1.1 7µm:3µm 加工基板の EPD 測定により転位密度



図 WP1.2 に示す三角ストライプ溝基板

図 WP1.3 断面 SEM 像

10 µm

イ. AIN の熱処理による高品質化の検討

低コストで大面積の AIN 膜作製技術としてスパッタ法に着目し、サファイア上の AIN 膜は 高温アニールにより高品質化が可能である。本研究では、まずスパッタ法 AIN 膜の高温アニー ルと、HVPE 法を用いたホモエピ成長を行い、結晶性や表面状態を評価した。サファイア上に スパッタ法により 200nm 成膜を行った AIN テンプレート (Sp-AIN)を用い、1700℃で 3 時 間の熱処理を行った。熱処理した AIN テンプレート上に HVPE 法により 1550℃で AIN を約 10 µm 成長させた。

図 WP1.4 に Sp-AIN テンプレートのアニール処理前、アニール処理後と成長後の X 線ロッキングカーブ(XRC)のスペクトルを示す。アニール前は回転ドメインの存在からブロードなピークを示しているが、アニール後はシャープなシングルピークとなっており結晶性が向上した。アニール後の結晶性を引き継いで、HVPE 成長後にも高品質な AIN 膜が得られた。図 WP1.6 は成長後の AIN 表面 AFM 像で、良好なステップ構造が観察された。



図 WP1.5 HVPE 成長後の 表面 AFM 像(1µmx1µm)

ウ. HVPE 法による AIN ホモエピタキシャル成長における転位挙動の把握

結晶内部の転位の挙動を調べるため TEM 観察を行った。 図 WP1.6 に三角ストライプ溝基

板上に成長した AIN 膜の断面 TEM 明視野像を示す。g=(11-20)回折の像からは多くの転位が 観測されたが、g=(0002)回折からはほとんど観測することができなかった。このことから、 面内に存在する転位は a 型転位が支配的であることがわかる。この結果は、EPD 測定とも一 致する。溝部からの成長領域(a)においては、下地から伝搬してきた転位は傾斜面との境界に てループを作り終端するか、ストライプ方向へ伝搬することにより、ボイド下部でその伝搬を 阻止されている。三角側面からの成長領域(b)では、転位は横方向成長により水平方向へ曲げ られている。三角頂点部に存在または、生じた転位のみが縦方向成長によりそのまま上部(c) に伝播して表面に向かっている。このことから、EPD 測定にて観測されたシード上部に存在す る a 型転位は三角頂点部に存在していた転位が伝搬したと考えられる。以上のように、下地か ら伝搬した転位の大部分が表面に伝播せず終端してしまうため広範囲(d)で貫通転位密度が大 幅に低減したといえる。



 ワークパッケージ No. 2: UV-LD の作製

 日本側の主担当者
 天野浩

 所属機関 部局
 名古屋大学 未来材料・システム研究所 未来エレクトロニクス集積研究センター センター長、教授

 実施報告
 マールレート 工地工場際の高口版化

ア. UV-LD 下地エピ膜の高品質化

UV-LD エピ膜の結晶品質は、下地基板に 大きく依存する。WP1 で作製された高品質 Sp-AIN テンプレート(AIN 厚み約 170 nm) を用い、MOVPE 法によりホモエピ AIN(厚み 約 550 nm)の結晶性を検証した。表 WP2.1 に示すように、ホモエピ AIN のX線ローキン グカーブの非対称面(10-12)の半値全幅は、 値は Sp-AIN テンプレートとほぼ同様であ る。また、対称面(0002)面の値は Sp-AIN テ ンプレートの約半分以下となっている。ま た、Sp-AIN テンプレート上にホモエピ AIN の成長条件を見出した(図 WP2.1、図 WP2.2)。いずれもステップフロー成長モー ドが観察され、高温・低 V/III 比条件で、よ り平坦な膜が得られる。このことから、WP1

表 WP2.1 Sp-AIN テンプレート上に成長した AIN 膜(試料1~5)の X 線ローキングカーブ の半値全幅

試料 番号	XRC FWHM (arcsec) (0002) (10-12)	
AIN template	109	196
1	58	195
2	55	195
3	33	185
4	30	191
5	33	190

で作製された高品質 Sp-AIN テンプレートの優位性を確認できた。





遅いという問題点があった。本研究では、原料パルス供給 MOVPE 法を用いることで、サファ イア基板上への h-BN 膜の直接成長に成功した。また、高い成長温度、高いアンモニアガス流 量及び III 族原料パルス供給の短周期化により、結晶性向上が可能であることを確認した。即 ち、従来の原料連続供給 MOVPE 法と比較して、原料パルス供給 MOVPE 法を用いることによ り、h-BN の成長速度及び結晶品質の向上が可能である(図 WP2.3)。また、h-BN とサファ イアとの面方位関係は図 WP2.4 に示すように、[0001]_{h-BN} // [0001]_{sapphire} と [10-10]_{h-BN} // [11-20]_{sapphire} であった。



図 WP2.3 (a) 原料パルス供給と連続供給における h-BN 成長速度の比較(NH₃流量:0.5~4 SLM). (b) X 線(0002)面 2θ-ωスキャン(h-BN 厚み:70 nm. 試料 A: NH₃ = 0.5 SLM, パルス供給。 試料 B: NH₃ = 2 SLM, パルス供給。 試料 C: NH₃ = 0.5 SLM, 連続供給。(c) X 線(0002) 面 2θ-ωスキャンピークの半値全幅(赤:連続供給。青:パルス供給)



