



2022年5月26日

報道機関 各位

東北大学 多元物質科学研究所

**低圧超臨界相の活用で
従来以上に高品質な窒化ガリウム結晶を作製
-実験炉で反りがなく高純度な窒化ガリウム結晶成長を実証-**

【発表のポイント】

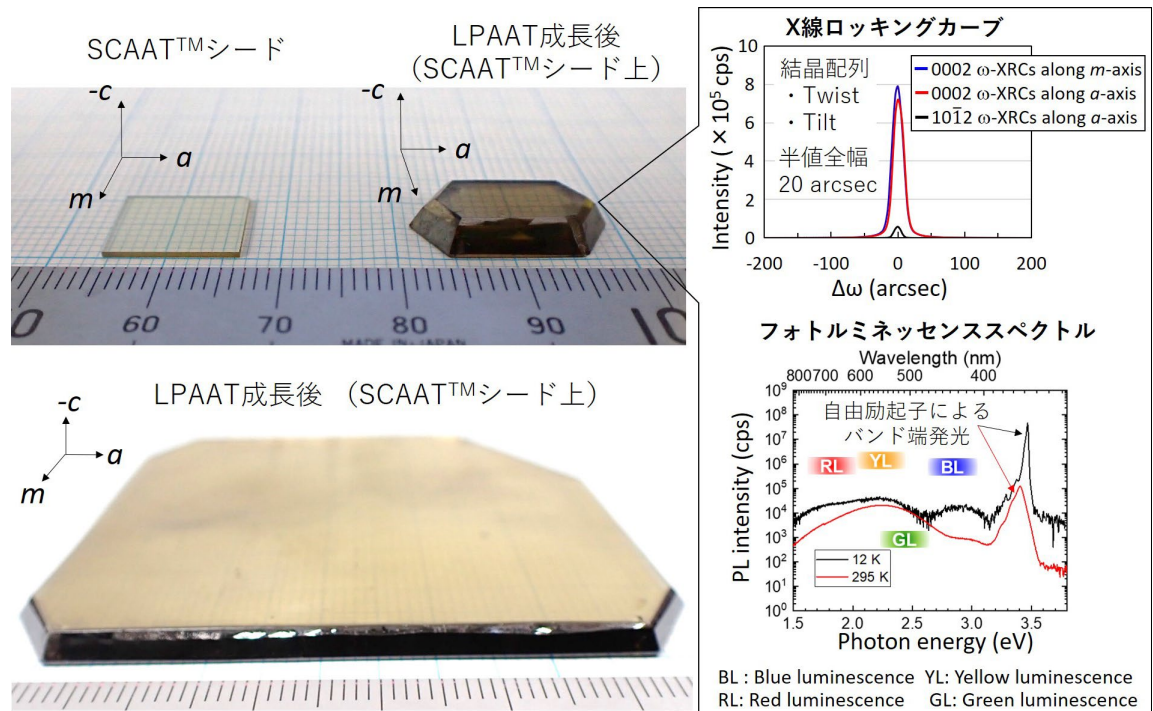
- 低圧酸性アモノサーマル法^{*1}において、高品質なシード（種結晶）を用いることにより結晶性がよく、高純度な窒化ガリウム^{*2}結晶の成長を確認
- 高品質な窒化ガリウム基板の供給により窒化ガリウムデバイスの研究促進に貢献

【概要】

近年、世界中で環境問題への関心が高まり、産業界において省エネルギー化が進められています。そのためには各分野で用いられている半導体デバイスの高性能化が必要不可欠です。例えば電力制御を担う高周波パワートランジスタ^{*3}など自立した窒化ガリウム（GaN）基板上に作製される電子デバイス（GaN-on-GaN デバイス）はエネルギー消費を抑えることでCO₂の削減につながると期待されています。しかし現在市販されている GaN 単結晶基板では品質に課題があり GaN-on-GaN デバイスのポテンシャルを十分に引き出し切れていないのが現状です。

東北大学多元物質科学研究所の秩父重英教授らは、株式会社日本製鋼所、三菱ケミカル株式会社との共同研究において、GaN 基板の量産法として開発した低圧酸性アモノサーマル（LPAAT）法の実用化に向けた検討を進め、使用するシード基板の品質が成長後の結晶の品質に与える影響を明らかにしました。特に、高品質なシードを用いれば成長させた結晶の結晶性も良くなり、室温のフォトルミネッセンス^{*4} スペクトルも自由励起子^{*5} 再結合によるバンド端発光が支配的になるほど高純度になることを確認しました。

本成果は、科学雑誌 Applied Physics Express にて 2022 年 5 月 13 日にオンライン公開されました。



【参考画像1】 LPAAT 法により、高品質なSCAAT™シード上に成長させた GaN 単結晶の外観、結晶構造特性、およびフォトルミネッセンススペクトル。

本研究の一部は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) のプログラム「低炭素社会を実現する次世代パワーエレクトロニクスプロジェクト (JPNP10022)」、 「戦略的省エネルギー技術革新プログラム (JPNP12004)」、および文部科学省「人・環境と物質をつなぐイノベーション創出ダイナミック・アライアンス」の助成を受けています。

【問い合わせ先】

(研究に関すること)

東北大学多元物質科学研究所
 教授 秩父重英(ちちぶ しげふさ)
 電話: 022-217-5363
 E-mail: chichibu@tohoku.ac.jp

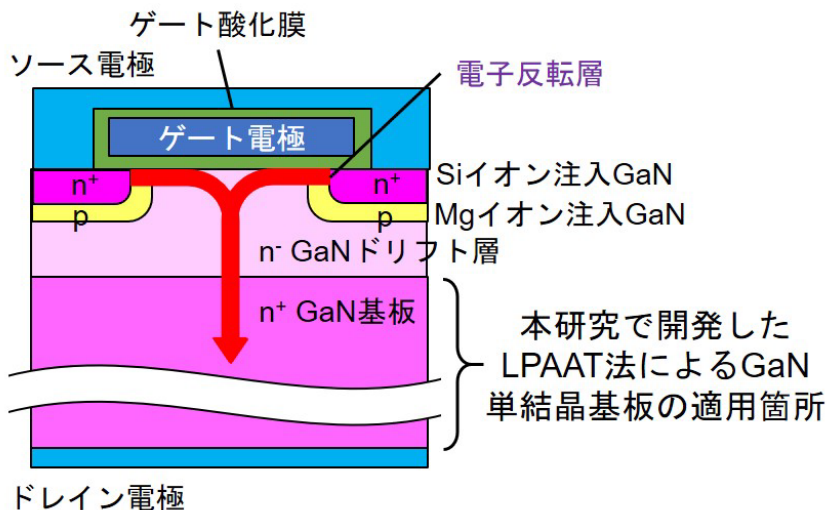
(報道に関すること)

同研究所 広報情報室
 電話: 022-217-5198
 E-mail: press.tagen@grp.tohoku.ac.jp

【詳細な説明】

1. 背景

近年、世界中で環境問題への関心が高まり、特に地球温暖化対策として温室効果ガスの削減および低炭素化が進められています。そのためには各分野において省エネルギー化を進める必要があります。エネルギーロスを改善するためには各分野で用いられている半導体デバイスの高性能化が必要不可欠です。例えば GaN は広い禁制帯幅 (3.4 eV)、高い絶縁破壊電界 (3.3 MV cm^{-1})、速い飽和電子速度 ($2.5 \times 10^7 \text{ cm s}^{-1}$) などの優れた物性を有するため、次世代パワー半導体材料として検討されています。電力制御を担う高周波パワートランジスタなど、自立した GaN 基板上に作製される電子デバイス (GaN-on-GaN デバイス、参考画像 2) はエネルギー消費を抑えることで CO₂ の削減につながると期待されています。しかし現在市販されている GaN 単結晶基板では品質に課題があり GaN-on-GaN デバイスのポテンシャルを十分に引き出し切れていないのが現状です。



【参考画像 2】 GaN を用いた縦型パワートランジスタの模式図。

2. 研究手法と成果

本研究では、東北大学多元物質科学研究所秩父研究室と株式会社日本製鋼所、三菱ケミカル株式会社が共同研究により開発した「低圧酸性アモノサーマル (Low-pressure acidic ammonothermal; LPAAT) 法」を用いました。LPAAT 法は大口径の GaN 単結晶基板が安価で量産可能になると期待されている技術で、既に実用化もなされている、高圧の超臨界流体アンモニアを用いる酸性アモノサーマル (AAT) 法と比較して半分の圧力で結晶成長が可能のため装置構成と運転上の理由から量産に向いています。本研究では LPAAT の実用化に向けてさらに研究を進め、実験炉において成長に使用するシードの種類 (HVPE 製、

SCAAT™ 製) の違いにより成長後の外観や結晶性などの品質に大きな差が出ることを明らかにしました。本共同研究枠組みの成果に基づき三菱ケミカル株が SCAAT™ として商標登録した高品質 GaN シードを用いて LPAAT 成長させた結晶は、参考画像 1 に示すように外観が透明かつ平坦であり、結晶モザイク性についても低いこと (対称面・非対称面の X 線ロックアップ半値全幅が 20 秒以内)を確認しました。またフォトルミネッセンススペクトルも、12 K では高純度な半導体で観測される束縛励起子^{*5}の再結合によるバンド端発光強度が深い準位の発光と比較して約 3 桁高く、室温においても自由励起子^{*5}の再結合によるバンド端発光が支配的であり、高純度な GaN 結晶であることを確認しました。このように LPAAT 法による大口径・低反り・高純度な GaN 単結晶基板が普及していけば、信頼性に優れる GaN 縦型パワートランジスタに代表される GaN-on-GaN デバイスの研究が促進され、早期に実用化されていくと期待されます。

3. 今後の展望

本成果は量産用大型オートクレーブ運用に活用し、LPAAT 法にて高品質かつ大口径な GaN 基板の量産技術の実用化を目指します。成長温度のさらなる最適化やそれにより作製された GaN の輻射・非輻射再結合レートや空孔型欠陥濃度等を、東北大や筑波大の持つ特殊計測技術を用いて定量することにより、LPAAT 法による GaN 単結晶の光学的・電気的な特性をさらに向上させます。

【研究チーム】

- ・東北大学多元物質科学研究所 秩父重英 教授、石黒徹 研究員、嶋紘平 助教、
- ・株式会社日本製鋼所 新事業推進本部 フォトニクス事業室 窒化ガリウム Gr
- ・三菱ケミカル株式会社 技術統括本部 筑波工場 ガリウムナイトライド技術センター

【論文情報】

タイトル : Low-pressure acidic ammonothermal growth of 2-inch-diameter nearly bowing-free bulk GaN crystals

著者名 : Kouhei Kurimoto, Quanxi Bao, Yutaka Mikawa, Kohei Shima, Toru Ishiguro, and Shigefusa F. Chichibu

雑誌名 : Applied Physics Express

DOI : 10.35848/1882-0786/ac67fc

【用語解説】

- *1. 低圧酸性アモノサーマル (Low-pressure acidic ammonothermal; LPAAT) 法
通常の温度・圧力では溶解しない溶質を、高温・高圧の超臨界流体中に溶解させ、炉内の温度勾配に応じた溶解度差を利用して種結晶上に溶質を再結晶さ

せるソルボサーマル法の一種です。使用する溶媒に応じてハイドロサーマル(水熱)法やアモノサーマル(安熱)法などと呼ばれます。超臨界アンモニア中へのGaNの溶解を促進させる鉍化剤として、アルカリアミド(MNH₂, M=Li, Na, K)などの塩基性鉍化剤、ないしはハロゲン化アンモニウム(NH₄X, X=Cl, Br, I)などの酸性鉍化剤を用います。我々の研究グループでは酸性鉍化剤を用いる酸性アモノサーマル法の開発を行ってきました。高压の超臨界流体アンモニアを用いた酸性アモノサーマル法(AAT)は既に実用化されていますが、高压であるため超大型炉への適用は困難です。そこで本研究では、超大型炉に適用可能な低压条件での酸性アモノサーマル法(LPAAT法)を開発しました。

*2. 窒化ガリウム (GaN)

ガリウムと窒素から成る化合物半導体。GaN、および窒化インジウム(InN)とGaNの混晶(InGaN)は青色発光ダイオードおよび青色レーザー等の発光デバイスの基幹材料として実用化されています。近年、半導体としての性能の限界を迎えつつある珪素の代替材料として、炭化珪素、GaN、ダイヤモンド等が注目されています。なかでも、GaNは広い禁制帯幅(3.4 eV)、高い絶縁破壊電界(3.3 MV cm⁻¹)、速い飽和電子速度(2.5×10⁷ cm s⁻¹)などの物性を有するため、高出力かつ高周波で動作する電子デバイスへの応用が期待されています。

*3. 高周波パワートランジスタ

携帯電話の基地局、レーダー、通信衛星等における大容量・高速通信を実現するための電力変換・増幅器。GaNは、他の材料では難しい高出力(kWクラス)かつ高周波数(1 GHz~100 GHz)の領域におけるデバイス応用が期待されています。

*4. フォトルミネッセンス

半導体が禁制帯幅よりも大きなエネルギーの光を照射された際に、半導体内に励起された電子正孔対が再結合する過程で光が放出される現象。フォトルミネッセンスにより放出される光のエネルギースペクトルには、半導体内のバンド間の直接または間接遷移や励起子遷移、ドナーやアクセプター準位などに関係する光学遷移の情報が反映されるため、半導体結晶の周期性や不純物に関する情報を間接的に得ることができます。

*5. 励起子(自由励起子、束縛励起子)

高純度な半導体中では、電子とその逆の電荷をもつ正孔がクーロン力で束縛しあい結晶中を動き回れる水素原子様の「励起子」という量子を形成する。自由に動き回れる励起子を自由励起子、不純物や欠陥に束縛された励起子を束縛励起子と総称します。