

新たな高品質窒化ガリウム結晶育成法を開発

配布日時：2020年11月12日14時

国立研究開発法人 物質・材料研究機構（NIMS）

国立大学法人 東京工業大学

概要

1. NIMS は東京工業大学と共同で、次世代パワーデバイスとして期待される窒化ガリウムの結晶成長において、欠陥を大幅に減らして高品質な結晶を得ることのできる新たな技術を開発しました。従来のような溶液中での成長ではなく、合金の液体を下地へ塗布して結晶成長させることで、不要な溶液成分が結晶中に残るといった問題を解決しました。EV 用モータ制御ユニットなど次世代パワーデバイスとしての実用化が期待されます。
2. 窒化ガリウム半導体は、シリコンよりも大電流・大電圧に耐えることができるため、車載用次世代パワーデバイス等への応用に向けて精力的な開発が続けられています。しかし、従来の原料ガスを基板に吹き付ける窒化ガリウム単結晶育成法では、結晶中に原子のズレ（転位欠陥^{*1}）が多く生じてしまい、大電流を流した際にその部分を起点にデバイスが破損してしまうという根本的な問題が生じます。そのため現在は、原料を含んだ溶液中で結晶成長させるアモノサーマル法やナトリウムフラックス法^{*2}と呼ばれる合成法の開発が活発になっています。これらの手法では、転位欠陥といった原子レベルでの結晶のズレは最小限にできるものの、溶液成長特有の問題である「溶液成分が塊状に結晶内に取り残されてしまう（インクルージョン^{*3}）」という新たな課題の克服が問題となっていました。
3. 本研究では、原料となる合金の液体を、基板に塗布しながら窒化ガリウムを成長させることで、インクルージョンの問題を克服しました。下地の基板にガリウムとナトリウムの合金液体を塗布しながら結晶成長させたところ、転位欠陥を大幅に減少させながら、さらにインクルージョンも含まない高品質な結晶の作成に成功しました。本手法は工程も非常にシンプルであるため、約1時間のプロセスによって高品質の窒化ガリウム基板を得ることができます

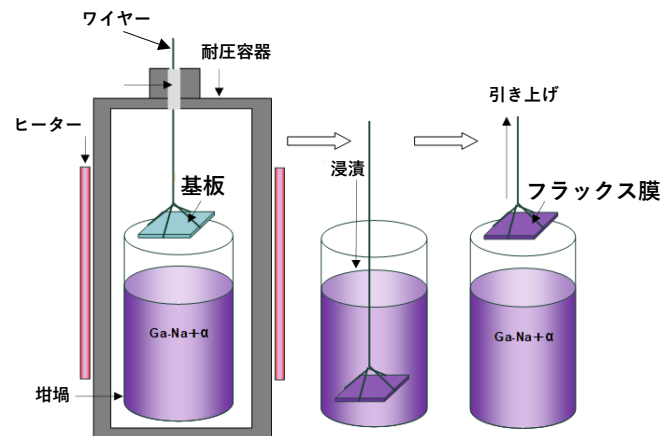


図1. 基板に合金溶液を塗布する窒化ガリウム成長法のイメージ図

4. 今回の成果は、次世代パワーデバイス向けの高品質な窒化ガリウム基板を得る新たな製造方法としての応用が期待されます。現在は本手法の有効性確認のためにサイズの小さな結晶の育成を行っている段階であり、今後、大型結晶化の実証実験を行い実用化技術としての開発を進めていきます。
5. 本研究は、物質・材料研究機構 機能性材料研究拠点 超高压グループの川村史朗主幹研究員、光学単結晶グループのソン イェリン NIMS ジュニア研究員、機能性材料研究拠点 大橋直樹 拠点長（東京工業大学 元素戦略研究センター 特定教授 兼任）を中心とするメンバーによって行われました。本研究成果は、Crystal Research and Technology 誌の2020年7月16日発行号にて掲載されました。

研究の背景

自動車のEV化が急速に進められる昨今、シリコンと比べて、大電流・大電圧に耐えることの出来る窒化ガリウム半導体を用いたパワーデバイスへの期待が増加しています。窒化ガリウム半導体の実用化に向けた研究開発が精力的に行われていますが、車載用のパワーデバイスは高電圧・大電流をかける必要があるため、半導体結晶中に含まれる転位欠陥によるデバイスパフォーマンスの低下が課題となっています。最もシンプルな答えとしては、転位を含まない窒化ガリウム単結晶基板の上にデバイスを作製することであるものの、未だその技術開発は困難を極めているのが現状です。

そこで、転位密度の小さい窒化ガリウム単結晶基板の作成法開発が期待されています。この開発の実現に向けて2000年頃からナトリウムフラックス法という液相成長法が精力的に研究された結果、従来と比べて1/100以下まで転位密度を減らすことに成功しているものの、結晶中にフラックス液の成分であるガリウムとナトリウムの塊（インクルージョン）が取り残されてしまうという問題があり、この難問の完全な克服には至っていませんでした。今回、薄膜状のフラックス液体を下地基板上にコーティングしながら窒化ガリウム結晶を成長させることで、高品質窒化ガリウムが成長可能であることを確認するための検証実験を行いました。

研究内容と成果

物質・材料研究機構 機能性材料研究拠点 超高压グループの川村史朗 主幹研究員らは、高品質窒化ガリウム基板育成のために、特定の添加物を含んだガリウムとナトリウムの合金液体を下地の基板上に塗布しながら結晶育成を行う、という取り組みを行った結果、転位密度を1/100に減らしながら高品質の窒化ガリウムが成長し、かつインクルージョンが取り込まれなくなることを発見しました。

これまでナトリウムフラックス法による窒化ガリウム単結晶基板の育成は、フラックス液を攪拌したり、温度や圧力といった育成条件を最適化することで結晶を高品質化する取り組みが行われてきました。攪拌によって、成長中の結晶表面の凹凸が小さくなるために、インクルージョンは取り込まれ難くなりますが、問題の完全な克服には至っていませんでした。本研究では、0.1~0.2mm程度の薄いフラックス液を育成結晶表面に塗布しながら結晶成長を行うことで（図1）、永続的に表面の平坦性を維持するという試みです。

今回、原理確認実験として、約800℃のフラックスを下地基板上に塗布しながら窒化ガリウムを結晶成長させた結果、成長中の結晶表面は窒化ガリウムの分子高さの凹凸に抑えることが可能となり（図2）、断面観察からも、インクルージョンが結晶中に存在していないことが確認されました（図3）。

ガリウム-ナトリウム合金は下地結晶との濡れ性が悪いいため、カルシウムやストロンチウムといった微量の添加物を加えることで、濡れ性を劇的に向上させたことが成功のカギとなっています。

この手法はシンプルな成長法であるため、約1時間のプロセスによって高品質の窒化ガリウム基板を得ることが出来ます。

今後の展開

現在生産されている窒化ガリウム基板や窒化ガリウム薄膜の表面をフラックス液で塗布して結晶品質

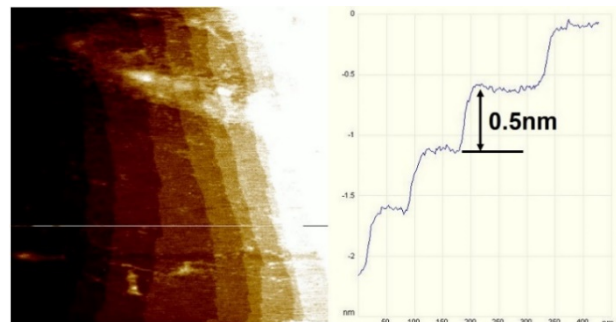


図2. フラックスを塗布しながら窒化ガリウムを成長させることで、表面凹凸が分子レベルの高さまで低減されたことを示す表面の顕微鏡観察結果。

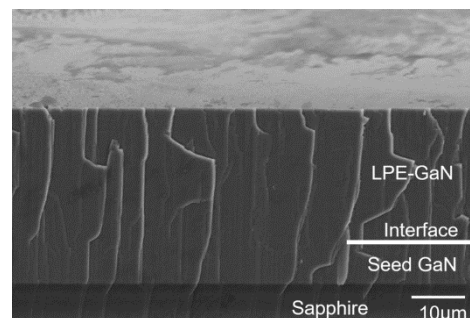


図3. 平坦に成長し、かつインクルージョンが結晶中に取り込まれていないことを示す結晶断面の顕微鏡観察結果。

を改善させることによって、高性能の次世代パワーデバイスの実現が期待出来ます。

例えば、最も安価な窒化ガリウム薄膜成長法であるスパッタリング法によって作製した品質の低い窒化ガリウム膜を、本手法によって高品質化させることが出来れば、安価かつ大面積に高品質窒化ガリウム基板を得ることが期待出来ます。

今後、実用応用に向けて結晶サイズを大型化する必要があります。原理確認用の成長装置から実用応用に向けて大型の結晶成長装置の開発を行い、今回得られた結果が大型結晶に応用出来るか否かを見極める検証実験を行います。

付記

本成果は、以下の事業・研究課題の支援によって得られました。

文部科学省 元素戦略プロジェクト<拠点形成型>

研究課題名：「東工大元素戦略拠点」

代表研究者：東京工業大学 元素戦略研究センター センター長 細野 秀雄

PM：元素戦略研究センター 雲見日出也 特任教授

研究実施場所：東京工業大学、物質・材料研究機構、高エネルギー加速器研究機構、東京大学

研究開発期間：2013年7月～2022年3月

掲載論文

題目：High-Quality GaN Crystal Growth Using Flux-Film-Coated LPE with Na Flux

著者：Yelim Song, Fumio Kawamura, Takashi Taniguchi, Kiyoshi Shimamura, Naoki Ohashi

雑誌：Crystal Research and Technology

掲載日時：2020年7月16日

用語解説

(1) 転位欠陥

結晶内部で原子位置が連続的にずれた状態。この欠陥が多いとデバイスの性能が低下してしまうため、出来る限り減らす努力が続けられている。

(2) ナトリウムフラックス法

1998年に東北大学の山根久典氏によって発明された窒化ガリウム単結晶の成長法。ガリウムとナトリウムの合金液体中に数十気圧の窒素ガスを溶かすことで、窒化ガリウムを液相成長させることが出来る。

(3) インクルージョン

単結晶を成長させた際に、結晶内部に溶媒などが取り残されてしまうことがある。この取り残された塊の総称。窒化ガリウム基板中にインクルージョンが含まれると、デバイス作製が上手くいかないといった問題が生じる。

本件に関するお問い合わせ先

(研究内容に関すること)

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 機能性材料研究拠点、超高压グループ

主幹研究員 川村史朗 (かわむらふみお)

E-mail: KAWAMURA.Fumio@nims.go.jp

TEL: 029-860-4428

URL: <http://www.nims.go.jp/high-pressure/>

(報道・広報に関すること)

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 経営企画部門 広報室

〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

TEL: 029-859-2026, FAX: 029-859-2017

E-mail: pressrelease@ml.nims.go.jp

国立大学法人 東京工業大学 総務部 広報課

TEL: 03-5734-2975, FAX: 03-5734-3661

E-mail: media@jim.titech.ac.jp