

GaN のヘテロエピタキシー —Empirical philosophy—

名古屋大学工学部 赤崎 勇

Breakthrough には (1) … を突破する, (2) (太陽が雲間から) 現れる, あるいは (3) (規則などを) 破るなどの意味がある。本企画で求められているのは, 紛れもなく (1), (2) であろう。つまり, 「大きな障害を克服する」ことによって, それまで暗雲に閉ざされていた世界に光明をもたらすこと」だと考える。換言すれば, ブレイクスルーとは, 「際立って重要な進歩」をもたらすものでなければならない。極めて短期間に起こる量的大変革が質的変革をもたらすことは歴史の教えるところであるから, 格段の量的進歩もブレイクスルーと考えてよいであろう。半導体の純度を数桁も向上させた帯域精製技術などは最たるものである。ただし, ブレイクスルーによって厚い壁に風穴が開き, そこから生まれるさまざまな改良技術(これも当然, 科学技術の進歩に寄与するが)は, 上記定義に照らして, ブレイクスルーとはいえない。

さて, 表題の主旨にそって, 私たちの経験のうち, サファイア基板上への GaN のヘテロエピタキシーの研究の経緯を紹介し, 責を果たしたい。

私が, GaN の物性と青色 LED の研究を開始したのは 1974 年である。当時 MBE による GaN 単結晶作製と青色 LED 開発を通産省中核プロジェクトに提案した。金属 Ga と NH_3 を原料とする案に対し, GaN の MBE 成長は無理ではないかとのコメントがついたが幸いにも採択され, 小林らと GaN 単結晶薄膜成長を確認報告した¹⁾。しかし, 当時の MBE 装置は幼稚で, 多量の不純物を含んでおり, 材料研究やデバイス用として不適であった (GaN の MBE 成長の可能性は示すことができたが, ブレイクスルーなどといえ

るものではない)。

MBE の限界を克服するため, GaCl と NH_3 の反応を利用する HVPE で種々検討の末, 基板の前処理の重要性に気が付き, Zn 添加法などを工夫して(大木ら), 当時最高輝度の mis 型 LED を開発した²⁾。しかし, GaN と基板には多数のクラックやピットが発生し, 表面の凹凸もひどく, 成長の再現性に乏しい状況であった。これは両者の物性定数の大きな差によると考えられる。

1981 年, MOVPE を適用, 薄膜の膜厚制御は可能になり, 表面の平坦性も少し改善されたが, クラックやピットは解消せず, 電気的特性にも改善はみられなかった。そこで, 基板とのミスマッチを緩和するため ZnO, AlN あるいは SiC などの緩衝層の導入を検討した。そのころ, Ga と NH_3 を原料とする化成 MBE (基本的には 1) に類似) で, AlN 単結晶をサファイア基板との中間層に用いることにより, GaN の諸性質が改善されることが報告された³⁾。AlN 中間層は確かに有効であるが, 単結晶を使うと, AlN そのものが基板になり, AlN とのミスマッチに起因する問題は依然残ると考えられる。そこで, MOVPE で, AlN を緩衝層として用いることにし, 共同研究者(天野)に, 「AlN の結晶化温度よりかなり低い温度で, かつ薄く堆積してもらった」ところ, 上記問題点の解決に成功した。すなわち, ①クラックやピットのない平坦かつ透明な単結晶膜が再現性よく得られ, ② X 線回折線幅は従来の数分の 1 に低減し, また③発光特性は大幅に改善, ④電子密度は 2 ~ 3 桁減少, 同移動度は 1 桁以上向上, また⑤ TEM によると, 欠陥は界面近傍 200nm までに限られ上層部にはほとん

ど観察されないなど, マクロおよびミクロな欠陥や不純物が大幅に低減し, 結晶性および電氣的・発光特性の格段の向上が認められた。なお, 緩衝層の堆積条件(温度や厚さなど)に最適値が存在することも明らかにした。この結晶を用いて, 光励起による室温紫外光誘導放出をはじめて観測したが, 結晶品質が優れていることを示している。この高品質結晶に Mg を添加, 電子線照射により, 低抵抗 p 型 GaN をはじめて実現した⁴⁾。同時に, Mg の関与する青色発光強度(スペクトル形状は不変)が 10 ~ 30 倍増大する。この二つの現象は同時に(後者は Zn 添加 GaN でも (LEEBI 効果と呼ぶ) 起こり, 不可逆かつ極めて安定である。詳細機構は検討中であるが, 格子中での Mg (Zn) の位置変化によるものと考えている⁵⁾。従来, 自己補償効果などで極めて困難とされていた p 型 GaN を実現し, 低電圧駆動の p-n 接合も可能になった。また, AlN 緩衝層および LEBBI 処理は AlGaIn にも有効で, p-AlGaIn を実現し, その青紫色発光が約 20 倍増大することを確認している⁶⁾。これらの進展は, 未踏といわれた GaN 系の可能性を示した点で画期的だと考えられる。

20 年近くも GaN に関わりながら, まだ, 頂上を極めたわけではない。振り返って, サイエンスとアートが関わるといわれる結晶成長, とりわけ, 新しい材料の研究では, ブレイクスルーへの近道はないように思われる。

- 1) 赤崎ほか; 青色発光素子開発に関する応用研究(昭和 50 ~ 52 年度通産省報告書)。
- 2) Y. Ohki, Y. Toyoda, H. Kobayashi and I. Akasaki; Inst. Phys. Conf. Ser. **63**, 479 (1981)。
- 3) S. Yoshida, S. Misawa, and S. Gonda; Appl. Phys. Lett., **42**, 427 (1983)。
- 4) H. Amano, M. Kitoh, K. Hiramatsu and I. Akasaki; Jpn. J. Appl. Phys. **28**, L2112 (1989)。
- 5) H. Amano, M. Kitoh, K. Hiramatsu and I. Akasaki; Inst. Phys. Conf. Ser. **106**, 725 (1989)。
- 6) I. Akasaki and H. Amano; 1991 MRS Fall Meeting G5, p. 1。