

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011 ～ 2012

課題番号：23651146

研究課題名（和文）

シリコン基板上架橋窒化物半導体ナノワイヤLEDの開発

研究課題名（英文）

Development of bridged nitride semiconductor nanowire LED on Si substrate

研究代表者

本田 善央 (HONDA YOSHIO)

名古屋大学・工学研究科・助教

研究者番号：60362274

研究成果の概要（和文）：トレンチ構造を有する Si 基板のトレンチ側壁に垂直に、RF-MBE 法を用いることで、GaN ナノワイヤを成長することに成功した。また、デバイスに応用した際に分極電場やバッファ層等による悪影響を少なくするために、バッファ層を介さずに InGaN ナノワイヤを直接 Si 基板上に成長することに成功した。ただし、InGaN ナノワイヤの場合 GaN と比較すると光学特性に影響が出ると予測される双晶が発生することがわかり、双晶の発生と光学特性との関係を調べた。最後に、今後の応用デバイスのためにグラフェン上への GaN ナノワイヤ成長の検討を行い、高配向性グラフェン基板上にも GaN ナノワイヤの成長を確認した。

研究成果の概要（英文）：We succeeded in growth of GaN nanowires (NWs) on trench wall of Si microstructure. In order to reduce adverse effects of a polarization electric field and buffer layers, we also succeeded in growth of InGaN NWs on Si substrate without any buffer layer. In contrast to GaN NWs, however, there are some twin boundaries in InGaN NWs. We investigated the relationship between the twin boundaries and the optical properties. Lastly, we attempted to grow GaN NWs on highly oriented pyrolytic graphite (HOPG) substrate in order to apply to future device, and we observed that GaN NWs grew on HOPG substrate.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：結晶成長

科研費の分科・細目：応用物理学・結晶工学

キーワード：MBE, 結晶成長, 半導体超微細化, 半導体物性, 量子細線

1. 研究開始当初の背景

近年、化合物半導体ナノワイヤ（ナノコラム）の研究が盛んに行われており、その材料として様々な種類が研究されている。しかしながら、これまでの研究ではナノワイヤは基板に垂直に成長されており、上部に電極を形成することで、その高い発光効率を十分に引き出すことが出来ないという状況である。

そこで我々は、加工 Si 基板上に架橋 GaN ナノワイヤを成長させること、ならびにこの架橋 GaN ナノワイヤの中心部に InGaN 量子ド

ットを、pn 接合の接合部分に配置させることが可能となれば、架橋された両側の Si から電極を取ることができ、発光部分が表面に露出した形となり、取り出し効率の高い発光ダイオード（LED）構造が出来るものと考えている。また、活性層となる InGaN は数十 nm の直径かつ長さも数 nm～数十 nm を想定しており、発光波長に対して非常に小さいために、活性層内で生成された光は、活性層と空気との屈折率差を無視できるようになり、ほぼ 100% の光取り出し効率が実現できるものと

期待され、Si トレンチ壁に反射ミラーを設けることによって、さらに高効率 LED が実現できるものと期待される。

2. 研究の目的

そこで本研究の目的は、トレンチ構造に加工した SOI (Silicon on insulator) 基板を用いて、トレンチ壁に InGaN 量子ドットを活性層として内包する無欠陥・架橋 GaN ナノワイヤ pn 接合を高周波プラズマ支援分子線エピタキシー (RF-MBE) 法により実現し、高い量子効率と高い取り出し効率を兼ね備えた GaN ナノワイヤ LED を作製することを目的とし、これによるマイクロ光源の実現可能性について検討を行った。

3. 研究の方法

自然酸化膜を除去した (111)Si 基板、あるいはフォトリソグラフィとウェットエッチングにより加工した (110)Si 基板上に RF-MBE 法を用いてバッファ層を介さずに成長温度を変化させて GaN および InGaN ナノワイヤの成長を行った。評価には、フォトルミネッセンス (PL) 法、走査型電子顕微鏡 (SEM)、走査型透過電子顕微鏡 (STEM)、透過型電子顕微鏡 (TEM)、およびカソードルミネッセンス (CL) 法を用いた。

4. 研究成果

(1) トレンチを有する加工 (110)Si 基板上に GaN ナノワイヤの成長を試みた。加工 Si 基板に GaN ナノワイヤを成長した場合、トレンチ壁である (111) 方向への成長は全く見られず、基板に垂直に GaN ナノワイヤが成長することがわかった。また、基板の表面上には SiO₂ 膜が堆積されているが、その上からもナノワイヤの成長が確認された。

そこで、基板表面ならびにトレンチ底面に SiO₂ と Ti を形成することでマスクとし、基板回転やフラックス比、そして成長時間を調整することで、図 1 のように GaN ナノワイヤをトレンチ壁に垂直な方向で成長することが可能となった。ただし、マスク上部にも若干の成長が見られ、今後の検討課題となる。

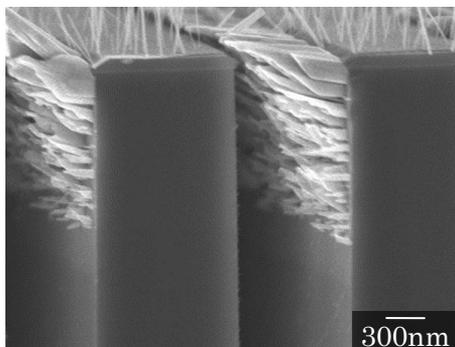


図 1 : 加工した Si 基板のトレンチ壁に成長した GaN ナノワイヤ

(2) GaN 系 LED 要求される発光波長が 500 - 600 nm であり非常に In が多い系である。この場合、GaN と InGaN とのヘテロ接合により分極電場が発生し、発光効率の低下を招く可能性がある。そのため、InGaN ナノワイヤを直接 Si 基板に成長できれば、その In の組成を制御することで、分極電場の発生を低下させ、発光効率の向上が望める。そこで InGaN ナノワイヤの Si 基板上への直接成長ならびに In の取り込みについて検討を行った。

RF-MBE 法によりバッファ層を介さずに、In と Ga の気相比比および成長温度を変化させて InGaN ナノワイヤの成長を行った。InGaN ナノワイヤの成長において、成長温度を上げるほどナノワイヤの長さが短くなる傾向がみられた (図 2 参照)。このことから、成長温度が高温になるにつれて、In が脱離していることが予想される。

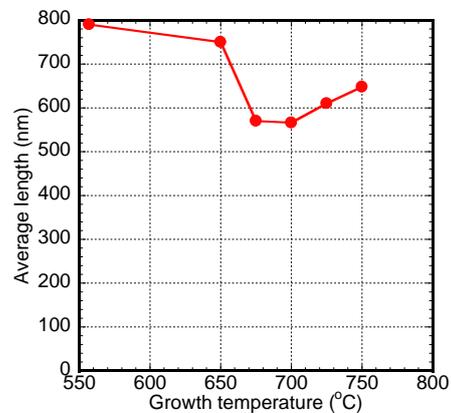


図 2 : InGaN ナノワイヤにおける平均ナノワイヤ長の成長温度依存性

次に各試料において PL 測定を行った。その結果、In フラックス比が低い 13% の場合は、700°C を超えると In が取り込まれずナノワイヤが発光しない。逆に、高 In フラックス比 30% の場合は、650°C で成長すると結晶はナノワイヤのような形状にならず、発光も確認されなかった。しかし、高温で成長するにつれ結晶はナノワイヤの形状になり、強い発光が確認できた。

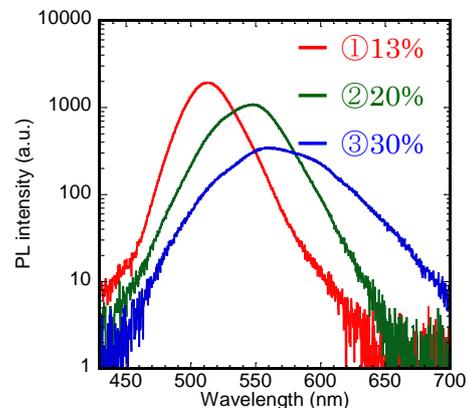


図 3 : InGaN ナノワイヤにおける In 気相比の違いによる PL スペクトル (室温)

成長温度 700°C の場合、図 3 に示すように In フラックス比が大きくなるにつれて PL ピーク波長は長波長側へシフトしたが、発光強度は弱くなった。

これらのことから、高品質な InGaN ナノワイヤを得るには、In フラックス比に応じた最適な成長温度で成長する必要があると言える。

(3) In を取り込んだ系では、GaN のみのナノワイヤでは見られなかった、双晶欠陥（通常の GaN 系結晶構造であるウルツ鉱構造とほぼ同じ構造を持つ閃亜鉛鉱構造が結合した部分）が STEM 観察から多く存在していることが分かり（図 4 参照）、これらが発光効率の低下を招く可能性がある。そのため、Si 基板上に成長させた InGaN ナノワイヤの In の取り込み量と双晶の発生について検討を行った。

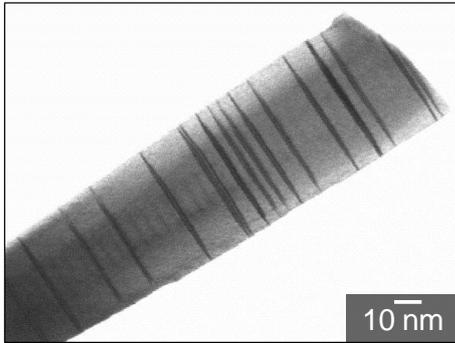


図 4：STEM 観察による InGaN ナノワイヤにおける双晶

先程と同様に RF-MBE 法によりバッファ層を介さずに、様々な成長条件を変化させて InGaN ナノワイヤの成長を行い、各試料において PL 測定、TEM および STEM 観察を行った。

TEM 観察により、まず無極性である Si 基板上に極性半導体である InGaN ナノワイヤを成長した場合、Si 基板との界面には Si_xN_y あるいは SiO_2 が形成されていることがわかった。しかしながら、界面がアモルファスであるにもかかわらず高解像度 TEM 観察を行うと、InGaN ナノワイヤの軸方向は、全て +c 軸方向に揃っていることがわかった。この原因については明らかではない。

また STEM 観察により、In 組成比が高い試料では、双晶の発生確率が高くなっており、それに伴って PL 発光強度も弱くなっていることがわかった（図 5 参照）。これは、双晶面でキャリアがナノワイヤ側面（結晶表面）に拡散し、ナノワイヤ側面にて表面欠陥に取り込まれることで非発光再結合が促進されているものと考えられる。

従って、高 In 組成を有する InGaN ナノワイヤのデバイス応用には、双晶抑制に関する検討を行わなければならないことを示唆している。

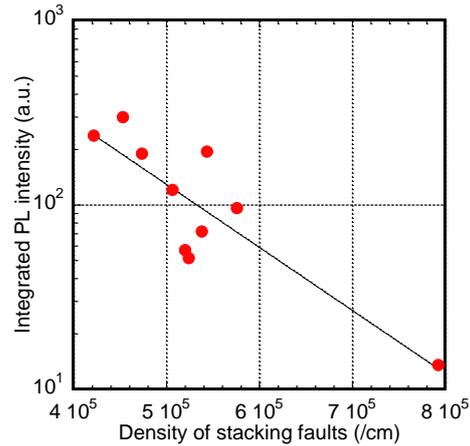


図 5：InGaN ナノワイヤにおける双晶密度と積分 PL 強度の関係

本研究提案当初は、Si 基板の加工により架橋ナノワイヤ構造の実現を予定していたが、近年グラフェン上への GaN 成長が検討され始めている。グラフェンを用いれば導電性があり、また構造的にフレキシブルであるために様々な状況に対応した成長用基板となり得る可能性がある。そこで、その初期段階として、グラフェンが高配向して重なり合った HOPG (highly oriented pyrolytic graphite) 基板上への GaN ナノワイヤの成長も試みた。

HOPG 基板上に RF-MBE 法により成長温度が 900 °C において GaN ナノワイヤを成長したところ、図 6 示すように HOPG 基板上にも基板に垂直に GaN ナノワイヤが成長することがわかった。また、CL 測定を行ったところ、Si 基板上に成長した GaN ナノワイヤと比較しても遜色ない発光特性を得られたことがわかった。

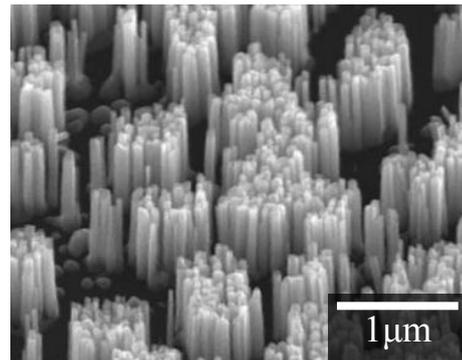


図 6：HOPG 基板上 GaN ナノワイヤ

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 3 件)

- ① T. Tabata, J.H. Paek, Y. Honda, M. Yamaguchi, and H. Amano, Stacking

faults and luminescence property of In- GaN nanowires, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 2013, (in press).

- ② S. Nakagawa, T. Tabata, Y. Honda, M. Yamaguchi, and H. Amano, GaN nanowires grown on a graphite substrate by RF-MBE, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 2013, (in press).
- ③ T. Tabata, J.H. Paek, Y. Honda, M. Yamaguchi, and H. Amano, Growth of InGaN nanowires on a (111)Si substrate by RF-MBE, phys. stat. sol. (c), 査読有, **9**, 2012, pp646-649.

[学会発表] (計 10 件)

- ① 水谷駿介, 田畑拓也, 中川慎太, 山口雅史, 天野 浩, 井村将隆, 中山佳子, 竹口雅樹, RF-MBE 法による各種基板上 GaN 系ナノワイヤ成長, 第 60 回応用物理学会 春期 学術講演会, 神奈川, 2013. 3. 27-30, 28p-PA1-15.
- ② T. Tabata, J.H. Paek, Y. Honda, M. Yamaguchi, and H. Amano, Stacking faults and luminescence property of In- GaN nanowires, International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, 2012. 10. 14-19, ThP-GR-34.
- ③ S. Nakagawa, T. Tabata, Y. Honda, M. Yamaguchi, and H. Amano, GaN nanowires grown on a graphite substrate by RF-MBE, International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, 2012. 10. 14-19, ThP-GR-35.
- ④ 中川慎太, 田畑拓也, 本田善央, 山口雅史, 天野 浩, RF-MBE 法によるグラファイト基板上 GaN ナノワイヤの成長, 第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛, 2012. 9. 11-14, 12a-PB4-13.
- ⑤ 中川慎太, 田畑拓也, 本田善央, 山口雅史, 天野 浩, 淵真悟, 竹田美和, RF-MBE 法によるガラス基板上 InGaN ナノ構造の作製, 第 4 回 窒化物半導体結晶成長講演会, 東京, 2012. 4. 27-28, SA-10.
- ⑥ 山口雅史, 白 知鉉, 田畑拓也, 中川慎太, 本田善央, 天野 浩, Si 基板上 III-V 族化合物半導体ナノワイヤの成長と応用, 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 東

京, 2012. 3. 15-18, 15p-B3-3 (招待講演).

- ⑦ 田畑拓也, 白 知鉉, 本田善央, 山口雅史, 天野 浩, Si 基板上 InGaN ナノワイヤの積層欠陥と発光特性, 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 東京, 2012. 3. 15-18, 16a-DP1-18.
- ⑧ 山口雅史, 白 知鉉, 田畑拓也, 本田善央, 天野 浩, MBE 法による Si 基板上化合物半導体ナノワイヤ成長と評価, 第 15 回名古屋大学 VBL シンポジウム, 名古屋, 2011. 11. 7-8.
- ⑨ 田畑拓也, 白 知鉉, 本田善央, 山口雅史, 天野 浩, RF-MBE 法による (111)Si 基板上への InGaN ナノワイヤの成長 II, 第 72 回応用物理学会学術講演会, 山形, 2011. 8. 29-9. 2, 30p-ZE-2.
- ⑩ T. Tabata, J.H. Paek, Y. Honda, M. Yamaguchi, and H. Amano, Growth of InGaN nanowires on a (111)Si substrate by RF-MBE, 9th International Conference on Nitride Semiconductors, Glasgow (U. K.), 2011. 7. 11-14, PC1. 38.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

本田 善央 (HONDA YOSHIO)
名古屋大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 60362274

(2) 研究分担者

山口 雅史 (YAMAGUCHI MASAHITO)
名古屋大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 20273261

(3) 連携研究者

天野 浩 (AMANO HIROSHI)
名古屋大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 60202694