

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 17 日現在

機関番号：33919

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560015

研究課題名(和文) ワイドギャップ半導体トンネル接合による新規電流注入構造の実現

研究課題名(英文) A novel current injection in wide bandgap semiconductors with tunnel junctions

研究代表者

竹内 哲也 (Takeuchi, Tetsuya)

名城大学・理工学部・准教授

研究者番号：10583817

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円、(間接経費) 1,230,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、ワイドギャップ半導体、特に赤外から深紫外までをカバーする究極の発光受光材料である窒化物半導体の新規電流注入構造の実現である。ワイドギャップ半導体では、低抵抗p層の実現が困難であり、紫外領域での発光受光素子の実現が遅れている。本研究では、極低抵抗トンネル接合を実現し、現状高抵抗であるp層の大部分を低抵抗n層に置き換えることで、これまでにない新規発光受光素子を実現した。高In組成GaInNトンネル接合によりその抵抗は従来よりも一桁低下し、それを利用した新規素子として電流狭窄型微小LED、マイクロディスプレイ、そしてタンデム型太陽電池を実証し、新しい電流注入構造を確立した。

研究成果の概要(英文)：The objective of this research is to develop a novel current injection in wide bandgap semiconductors, especially nitride semiconductors which are supreme materials for light emitting and detecting devices covering the ranges from infrared to deep ultraviolet. Such wide bandgap materials show highly resistive p-layers, resulting in poor characteristics of ultraviolet light emitting devices. In the research very low resistive tunnel junctions have been obtained. The highly resistive p-layers are replaced with the low resistive n-layers by the tunnel junctions, leading to novel light emitting and detecting devices. High In content GaInN tunnel junctions show one order of magnitude lower resistances than before. Current confinement micro light emitting diodes, micro displays and tandem solar cells have been developed with the tunnel junctions. The novel current injection with tunnel junctions has been established.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用物性・結晶光学

キーワード：ワイドギャップ半導体 窒化物半導体 トンネル接合 低抵抗化 水素脱理

1. 研究開始当初の背景

AlN、GaN、InN およびその混晶である窒化物半導体は、InN の 0.7 eV から AlN の 6.0 eV までの近赤外、可視光そして深紫外領域での発光・受光素子への応用が期待される次世代半導体材料である。すでに、青色発光ダイオード(LED)による LED 電球や Blu-ray 用紫外レーザーダイオードが実現し、社会に広く浸透している。

一方で、実際に実用化された波長領域が紫外から緑色領域に限定されている主な理由は、発光受光素子に必要な低抵抗 p 型層の実現が、深紫外や近赤外領域では極めて難しいからである。さらに、紫外から緑色領域であっても低抵抗 p 型層が必要な面発光レーザーなどの高性能素子は実用化に至っていない。

2001 年に申請者は、上記課題を打破すべく GaInN によるトンネル接合を初めて報告した。トンネル接合は n 層から p 層へ低抵抗で電流を流すことができるため、素子構造の高抵抗 p 型層の大部分を低抵抗 n 型層に置き換えることができる。その結果、素子抵抗を大幅に低減し、さらに、電流経路を制御した電流狭窄構造が実現できる。しかしながら、当時作製されたトンネル接合は 20mA で 1V 程度の無視できない電圧降下が生じ、さらなる低抵抗化が期待された。

その後、窒化物半導体トンネル接合に関する研究はほとんど進展しなかったが、2010 年にオハイオ州立大学のグループより、GaInN の piezo 分極を積極的に利用したトンネル接合が MBE 法で作製され、1V の電圧降下で 100 A/cm² と比較的高い電流密度を実現し、再び注目を集め始めた。

2. 研究の目的

上記状況を鑑みて本研究では以下の二点を目的とした。

- (1) 高い電流密度 (~kA/cm²) を 2V 以下の印加電圧で流すことが可能な窒化物半導体トンネル接合を実現する。
- (2) 上記低抵抗トンネル接合を用いて、面発光レーザーやタンデム型太陽電池などの新規デバイスを実現する。

上記(1)(2)を実現するために鍵となる物性パラメータの抽出にも注力し、その材料物性とデバイス特性の関連についても理解を深める。さらに、上記二点を大量生産に向く MOCVD 法で実現する。

3. 研究の方法

低抵抗トンネル接合を実現するために、原理的には低バンドギャップ、高濃度ドーピング、かつ急峻なドーピングプロファイル、の三点が必要である。そこで高 In 組

成 GaInN、薄膜高濃度ドーブ層から着手し、様々な条件で作製・評価された試料の不純物プロファイルを評価する、というアプローチで研究を進めた。

トンネル接合の抵抗は、その抵抗の大きさや測定する際の電流密度を考慮して、(a)トンネル接合+LED 構造(標準構造)、(b)トンネル接合+微細 LED 構造(低抵抗トンネル接合・高電流密度用)、そして(c)トンネル接合単体の TLM 構造(低抵抗トンネル接合・低電流密度用)の三種類を中心に進めた。

また、素子構造の最適化だけでなく、トンネル接合に適したデバイスプロセスの最適化、具体的にはトンネル接合を含む p 層の Mg 活性化の最適条件も検討を進めた。

さらに、新規デバイスとして、面発光レーザーや文字表示ディスプレイに応用可能な電流狭窄 LED、マイクロディスプレイとなるマイクロ LED 集積アレイ、そしてタンデム型太陽電池などを実際に作製し、その動作検証を進めた。

4. 研究成果

(1)窒化物半導体低抵抗トンネル接合を目指し、トンネル接合に使用する GaInN の In 組成を高しながら、不純物濃度も高くしていった。不純物濃度は高くし過ぎると結晶性、表面平坦性が大きく損なわれるため、Mg が $2 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ 、Si が $4 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ が可能な最大値であることが実験から判明した。図 1 と図 2 にトンネル接合+LED 構造の駆動電圧の In 組成依存性を示す。比較としてトンネル接合を含まない通常の LED 構造の結果も示す。トンネル接合内 p 型 GaInN の In 組成を 0 から 0.4 まで変化させた。その結果、0.35 と 0.4 ではトンネル接合を含まない通常の LED とほぼ同じ駆動電圧まで低減し、トンネル接合の電圧降下としては、20mA (~20A/cm²) で 0.08V と従来よりも一桁低い値を実現した。抵抗値としては 4Ω であり、面積で規格化した比抵抗としては、 $3 \times 10^{-3} \Omega \text{cm}^2$ であった。

さらに、以下の二つの方法でトンネル接合の抵抗を評価した。トンネル接合の抵抗を精度よく評価するために、コンタクト抵抗の測定で使用される TLM 法である。ただし、電流密度は 1A/cm² 程度と低い領域である。この手法で測定した結果、弱いショットキー特性を示し、比抵抗は $3 \times 10^{-2} \Omega \text{cm}^2$ であった。一方、素子面積の小さい微小 LED (20μmφ) にトンネル接合より電流を注入させて高電流密度 (5kA/cm²) 時の素子抵抗を見積もった。この結果、 $3 \times 10^{-4} \Omega \text{cm}^2$ であった。このように測定する電流密度が高いとトンネル接合の抵抗が下がることがわかった。これは、TLM でも見られたようにショットキー特性が残っているために、低い電流値では、その影響で高く見積もられると思われる。以上より、5kA/cm² という高い電流密度でも、電圧降下 1.5V を実現し、目的(1)を達成した。

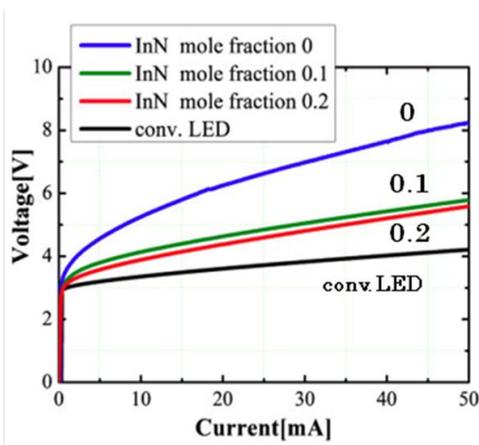


図1 GaInN (In組成 0~0.2) トンネル接合を有する LED 構造の電流電圧特性

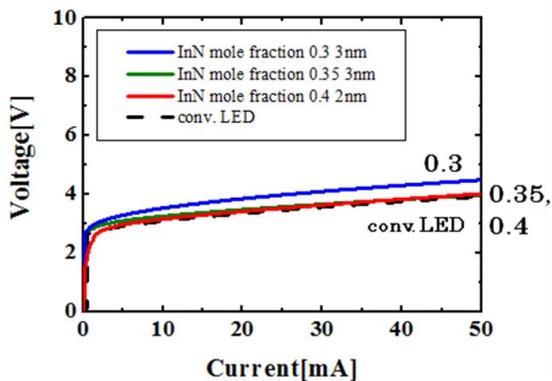


図2 GaInN (In組成 0.3~0.4) トンネル接合を有する LED 構造の電流電圧特性

次に、高 In 組成 GaInN トンネル接合により低抵抗化が実現した理由の一つとして、Mg プロファイルの急峻性と In 組成との相関を明らかにした。図 3 に Mg の立下りプロファイルの In 組成依存性をしめす。In 組成が増えるに従って、低抵抗化するが、その理由の一つとして Mg プロファイルの急峻性が改善され、より薄い空乏層が実現したためと考えられる。

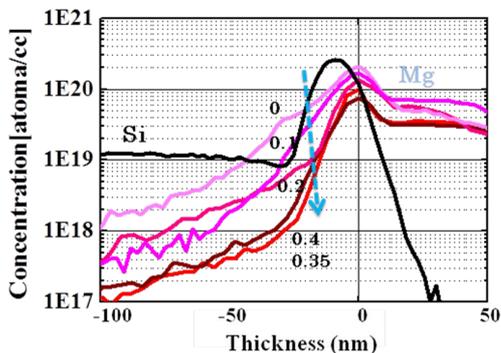


図3 Mg プロファイルの In 組成依存性

続いて、トンネル接合を含むデバイスのプロセス最適化として、Mg 活性化条件の最適化を行った。背景として、トンネル接合を上部に有する LED 構造では、電流が不均一に流れ、その結果、発光領域がスポット状になるという課題があった。ところで、他半導体材料でもアクセプタ活性化が必要な場合、熱アニールによるアクセプタからの水素脱離が報告されている。さらに、n 層内では水素が極めて移動しにくいために、n 層に埋め込まれた p 層では水素が移動できずに活性化されないことが報告されている。本研究における LED 構造上にトンネル接合を有する構造は、n 層が最表面に存在し、n 層による活性化の抑制が上記スポット状発光の原因ではないかと疑われた。そこで、埋め込まれた p 層から水素が脱離できるような経路として、側壁を設けて横方向に水素が脱離できる経路を意図的に設けてから熱アニールする活性化手法を考案・検討した。具体的には、素子分離のためのエッチングをまず行い、側壁を設けてから熱アニールを行う方法である。図 4 に側壁の有無による LED 発光パターンの違いを示す。側壁がある場合は、従来の無い場合に比べ極めて均一に発光することがわかる。これは、p 層の側壁周辺部から Mg 活性化が開始され、水素脱離が横方向に行われた明確な結果であると考えられる。また、この手法により、発光領域が均一になるだけでなく、安定して低い電圧降下を得られることもわかった。このようにトンネル接合を含む素子構造では、水素脱離のための経路を積極的に形成する必要があることが理解された。

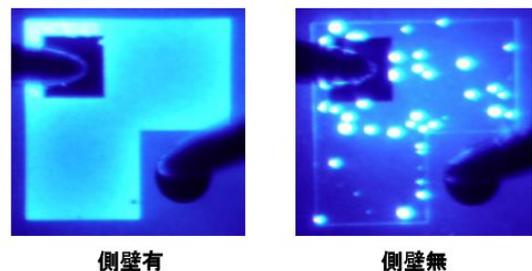


図4 側壁の有無による発光パターンの違い

(2)次に、このトンネル接合を用いて新規素子を作製した。図 5 に 10 μ m 径メサのトンネル接合を n 層で埋め込むことで電流狭窄させたマイクロ LED の発光領域を示す。埋め込んだトンネル接合のサイズと同じサイズの発光領域が得られ、また、電流注入すると同時に発光強度が上昇したことから、リークのない良好な電流狭窄型マイクロ LED が実現した。今後この構造は面発光レーザの電流狭窄として適用できる。図 6 には、この電流狭窄構造を応用して「名城大学」と発光する長さ 1mm の文字表示ディスプレイも作製できている。

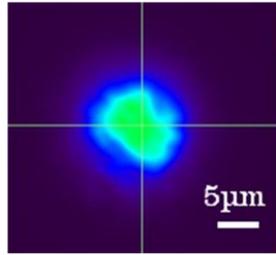


図5 10µm 埋め込みトンネル接合による電流狭窄型LEDの発光パターン

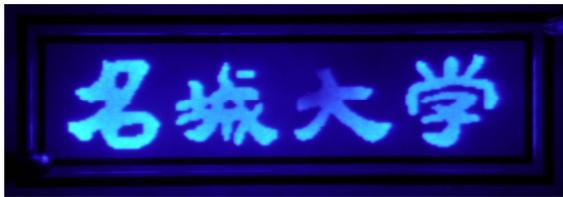


図6 埋め込みトンネル接合による文字表示ディスプレイ素子

続いて、トンネル接合と n-GaN 電極を用いたマトリクス駆動による長さ 2mm のマイクロディスプレイを作製した。ひとつのドットサイズは $10 \times 16 \mu\text{m}^2$ であり、これを $25 \mu\text{m}$ ピッチで 14×72 個二次元配置させた。必要な電極個所に電圧を印加することで所望の文字や記号を表示できる。ここでは、図7に示すように「Meijo University」と表示させた例を示す。通常、このようなマトリクス駆動アレイを作製するには少なくとも7つのプロセス工程が必要であり、マイクロLEDを含む大規模アレイ素子の形成では歩留まり低下が懸念されるが、本素子はトンネル接合と n-GaN 電極の組み合わせを利用することで4つのプロセス工程で作製が可能であり、歩留まりの大幅な向上に繋がる。最後に、トンネル接合を用いて二つの太陽電池を積層させたタンデム型太陽電池を作製した。太陽電池一つの場合に比べ、開放端電圧が上昇し、窒化物半導体であってもタンデム型にするメリットが初めて実証された。以上、トンネル接合を有する三つの新規素子を設計・作製し、その素子動作が実証された。



図7 トンネル接合によるマトリクス駆動 14×72 ドットマイクロディスプレイ

以上、本研究により、大量生産に向くMOCVD法で低抵抗トンネル接合が実現された。その低抵抗化に必要な手法を明確にするとともに、その手法が有効な理由を材料性の観点から理解した。さらに、低抵抗トンネル接合を用いた新規素子を三つ実現し、トンネル接合の有用性も実証した。この低抵抗トンネル接合は、窒化物半導体が抱える高抵抗 p 型層という制約を取り払い、これまで実現不可能であった様々な新規素子実現を可能にする有用な手法・技術である。

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7件)

M. Watanabe, K. Nakajima, M. Kaga, Y. Kuwano, D. Minamikawa, T. Suzuki, K. Yamashita, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, and I. Akasaki, Jpn. J. Appl. Phys., 53(2014)05FL06. (査読あり)

H. Kurokawa, M. Kaga, T. Goda, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, I. Akasaki, and Amano, Appl. Phys. Exp., 7(2014)0341041. (査読あり)

M. Kaga, T. Morita, Y. Kuwano, K. Yamashita, K. Yagi, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, and I. Akasaki, Jpn. J. Appl. Phys., 52(2013)08JH06. (査読あり)

Y. Kuwano, M. Kaga, T. Morita, K. Yamashita, K. Yagi, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, and I. Akasaki, Jpn. J. Appl. Phys., 52(2013)08JK12. (査読あり)

T. Yasuda, K. Yagi, T. Suzuki, T. Nakashima, M. Watanabe, T. Takeuchi, M. Iwaya, S. Kamiyama, and Isamu Akasaki, Jpn. J. Appl. Phys., 52(2013)08JJ05. (査読あり)

山下浩司、加賀充、矢木康太、鈴木敦、岩谷素顕、竹内哲也、上山智、赤崎勇、天野浩、電子情報通信学会技術研究報告、111(2011)99. (査読なし)

加賀充、飯田大輔、北野司、山下浩司、矢木康太、岩谷素顕、竹内哲也、上山智、赤崎勇、天野浩、電子情報通信学会技術研究報告、111(2011)105. (査読なし)

[学会発表](計22件)

T. Takeuchi, D. Minamikawa, Y. Kuwano, M. Watanabe, M. Iwaya, S. Kamiyama, I. Akasaki, International conference on metamaterials and nanophysics 2014, Varadero, Cuba, April 2014 (招待講演)

T. Morita, M. Kaga, Y. Kuwano, K.

Matsui, M. Watanabe, T. Takeuchi, S. Kamiyama, M. Iwaya, and I. Akasaki, Conference on LED and its Industrial Application 2013, Yokohama, Japan, April 2014.

Y. Kuwano, M. Ino, T. Morita, D. Minamikawa, T. Takeuchi, S. Kamiyama, M. Iwaya, and I. Akasaki, 6th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials, Nagoya, Japan, March 2014.

M. Ino, Y. Kuwano, T. Morita, D. Minamikawa, T. Takeuchi, S. Kamiyama, M. Iwaya, and I. Akasaki, Conference on LED and its Industrial Application 2014, Yokohama, Japan, April 2014.

桑野侑香、堀川航佑、森田隆敏、井野匡貴、竹内哲也、岩谷素顕、上山智、赤崎勇、第 61 回春季応用物理学学会学術講演会、相模原、2014 年 3 月。

井野匡貴、森田隆敏、桑野侑香、渡邊雅大、竹内哲也、上山智、岩谷素顕、赤崎勇、第 61 回春季応用物理学学会学術講演会、相模原、2014 年 3 月。

D. Minamikawa, M. Kaga, Y. Kuwano, T. Morita, T. Takeuchi, S. Kamiyama, M. Iwaya, I. Akasaki, Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors 2013, New Taipei City, Taiwan, May 2013.

M. Watanabe, M. Kaga, K. Yamashita, T. Suzuki, D. Minamikawa, Y. Kuwano, T. Takeuchi, S. Kamiyama, M. Iwaya, and I. Akasaki, 10th International Conference of Nitride Semiconductors, Washington DC, USA, August 2013.

M. Watanabe, M. Kaga, T. Suzuki, D. Minamikawa, Y. Kuwano, T. Takeuchi, S. Kamiyama, M. Iwaya, and I. Akasaki, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Kyoto, Japan, September 2013.

竹内哲也、岩谷素顕、上山智、赤崎勇、日本学術振興ワイドギャップ半導体光・電子デバイス第 162 委員会 第 86 回研究会、名城大、名古屋、2013 年 10 月（招待講演）

中島啓介、渡邊雅大、加賀充、鈴木智行、南川大智、竹内哲也、上山智、岩谷素顕、赤崎勇、第 74 回応用物理学学会秋季学術講演会、京都、2013 年 9 月。

黒川泰視、合田智美、加賀充、岩谷素顕、竹内哲也、上山智、赤崎勇、天野浩、第 74 回応用物理学学会秋季学術講演会、京都、2013 年 9 月。

森田隆敏、加賀充、桑野侑香、松井健城、

渡邊雅大、竹内哲也、上山智、岩谷素顕、赤崎勇、第 60 回応用物理学学会春季学術講演会、神奈川、2013 年 3 月。

桑野侑香、加賀充、森田隆敏、山下浩司、南川大智、竹内哲也、岩谷素顕、上山智、赤崎勇、第 60 回応用物理学学会春季学術講演会、神奈川、2013 年 3 月。

M. Kaga, M. Yamashita, T. Morita, Y. Kuwano, K. Yagi, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, and I. Akasaki, 16th International Conference on Metal Organic Vapor Phase Epitaxy, Pusan, Korea, May 2012.

M. Kaga, T. Morita, Y. Kuwano, K. Yamashita, K. Yagi, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, and I. Akasaki, International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, Japan, Oct. 2012.

T. Yasuda, K. Yagi, T. Suzuki, T. Nakashima, M. Watanabe, T. Takeuchi, M. Iwaya, S. Kamiyama, and Isamu Akasaki, International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, Japan, Oct. 2012.

Y. Kuwano, M. Kaga, T. Morita, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, and I. Akasaki, International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, Japan, Oct. 2012.

森田隆敏、加賀充、桑野侑香、松井健城、岩谷素顕、竹内哲也、上山智、赤崎勇、第 73 回応用物理学学会講演会、愛媛、2012 年 9 月。

加賀充、山下浩司、森田隆敏、桑野侑香、矢木康太、岩谷素顕、竹内哲也、上山智、赤崎勇、第 59 回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学、2012 年 3 月。

②1 桑野侑香、山下浩司、加賀充、矢木康太、森田隆敏、松井健城、竹内哲也、岩谷素顕、上山智、赤崎勇、天野浩、第 59 回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学、2012 年 3 月。

②2 加賀充、山下浩司、矢木康太、岩谷素顕、竹内哲也、上山智、赤崎勇、天野浩、第 72 回応用物理学学会学術講演会、山形大学、2011 年 8 月。

〔図書〕(計 1 件)

竹内哲也 (分担) 株式会社エヌ・ティー・エス、ポストシリコン半導体 - ナノ成膜ダイナミクスと基板・界面効果 -、2013 年 11 月

〔産業財産権〕

出願状況 (計 3 件)

名称：電流狭窄を有する窒化物半導体発光素子とその製造方法

発明者：竹内哲也、桑野侑香、岩谷素顕、上山智、赤崎勇
権利者：名城大学
種類：特許
番号：特願 2013-025361
出願年月日：2013年2月13日
国内外の別：国内

名称：半導体発光素子アレイおよびその製造方法
発明者：竹内哲也、渡邊雅大、岩谷素顕、赤崎勇
権利者：名城大学
種類：特許
番号：特願 2013-155760
出願年月日：2013年7月26日
国内外の別：国内

名称：窒化物半導体発光素子の製造方法、および窒化物半導体発光素子
発明者：竹内哲也、桑野侑香、岩谷素顕、赤崎勇
権利者：名城大学
種類：特許
番号：特願 2014-035192
出願年月日：2014年2月26日
国内外の別：国内

取得状況（計0件）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

竹内 哲也 (TAKEUCHI, Tetsuya)
名城大学・理工学部・准教授
研究者番号：10583817

(4) 研究協力者

上山 智 (KAMIYAMA, Satoshi)
名城大学・理工学部・教授
研究者番号：10340291

岩谷 素顕 (IWAYA, Motoaki)
名城大学・理工学部・准教授
研究者番号：40367735