

令和 3 年 6 月 10 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04226

研究課題名(和文) 酸化物半導体トンネル接合電極導入によるAlGaIn系UVC-LED高効率化の研究

研究課題名(英文) Study on high efficiency AlGaIn UVC-LED with oxide semiconductor tunnelling junction

研究代表者

内田 和男 (uchida, kazuo)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・教授

研究者番号：80293116

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：n-ZnOトンネル層を組み込んだAlGaIn UV-LEDの発光に成功し、その電気特性評価でn-ZnOによるトンネル抵抗が確認され、低電流注入においてZnOトンネル層による正孔注入で向上された発光が得られた。さらに、p-AlGaIn/n-ZnOトンネル接合のエネルギーバンド構造の理論解析を行い、接合界面で局在する負の分極電荷による電場が正孔注入効率改善に寄与する事を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では窒化物半導体と酸化物半導体のハイブリッド化による新規高機能デバイスとしてのn-ZnOトンネル層を有するAlGaIn UV-LEDの作成プロセス開発と物性の探索を行い、新たな学術的知見が得られた。また研究結果は、現在、世界規模で蔓延するコロナウイルスを不活化できる深紫外LEDの問題点である、高抵抗、低効率の改善に寄与することを明示しており、社会的意義は高い。

研究成果の概要(英文)：The AlGaIn UV-LED with n-ZnO tunneling layer was fabricated and its UV emission was successfully observed by electroluminescence. The tunneling resistance was identified in its I-V characteristics. A superior emission in optical intensity to conventional LEDs was also observed in low current regime. This can be attributed to enhanced hole injections by tunneling. Further, the theoretical calculation of the energy band structure of p-AlGaIn/n-ZnO tunnel junction revealed that the electric field enhanced by negatively polarized charges localized at the junction could improve injection efficiency of holes into p-AlGaIn.

研究分野：半導体工学、結晶成長、半導体物性

キーワード：UV-LED ZnO 窒化物半導体 酸化物半導体 有機金属気相成長法 RFスパッタリング トンネル接合 AlGaIn

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

### 1. 研究開始当初の背景

本研究申請当時、280nm以下の波長領域であるUVCと呼ばれるIII-窒化物半導体AlGaIn系深紫外発光ダイオード(UV-LED)の有機金属気相成長法(MOVPE)による研究開発は、殺菌、浄化、光硬化等の広い産業応用範囲と、従来の深紫外光源を凌駕する高光出力化、長寿命化、小型化を目標に活性化が始まろうとしていた。この中で解決すべき研究対象は、高いアルミ組成が由縁の $Al_xGa_{1-x}N$ の低い結晶性、高抵抗による高い立ち上がり電圧(Vf)の問題、短寿命、低い光出力であり、p- $Al_xGa_{1-x}N$ のオーミックコンタクトの困難さより、光出力低下の要因となるUVCを吸収するp-GaNコンタクト層の使用、そして高いアルミ組成の $Al_xGa_{1-x}N$ 上に成膜されるp-GaN層の低い結晶性であった。<sup>[1]-[4]</sup>一方でAlGaIn結晶性向上のために必要なAlN基板は高価な上に、UVCに対しての光透過性に問題があった。さらにコンタクト層に用いるp-GaNに起因する問題である光取り出しに関しては、p-GaN層を部分的にエッチングにて削除する方法により、光取り出しの向上を試みる施策もあるが、コンタクト抵抗の実質的な低下には至っていなかった。このようにAlGaInの結晶性向上と光取り出し層の向上が今後のUVC-LEDの高効率化に必須である事が明らかであった。

### 2. 研究の目的

本研究はMOVPEによるAlGaIn系UV-LEDにおいてUV発光を吸収するp-GaNコンタクト層の代わりにUV光に対して透明な導電性酸化物半導体によるトンネル接合光取出電極を作成し、UV-LEDの高効率化を目的とする。従来のUVC-LEDの研究が高価な成長基板、高温成長可能な特殊成長装置を用いて、結晶転位密度の低減による高性能化を目指しているのに対して、本研究はトンネル接合というLED構造自体と酸化物半導体の研究で、低抵抗化と光取り出し効率向上を目指すという独自性と創造性があり、これらの具現化で、UV-LEDの低Vf、製造コストの低下も可能となることより、市場の活性化や新規市場への展開も見込まれる。そして酸化物半導体の材料物性の解明、及びデバイスの高機能化による新たな展開が可能になることは学術的に非常に重要であり、産業界への貢献も大いに期待できる。

### 3. 研究の方法

本研究に用いたUV-LEDは大陽日酸(株)製MOVPE装置SR-4000を用いて、(0001)サファイア基板にAlNバッファ層/n- $Al_{0.3}Ga_{0.7}N$ (2 $\mu$ m)/p- $Al_{0.3}Ga_{0.7}N$ (300nm)/p-GaN(10nm)の構造で成膜した。その後、アネルバ(株)製F-210S-FHを使用し、RFマグネトロンスパッタリング法により、このLED基板上に酸化物半導体トンネル層としての140nm厚のZnO成膜を行った。ZnOの電気特性

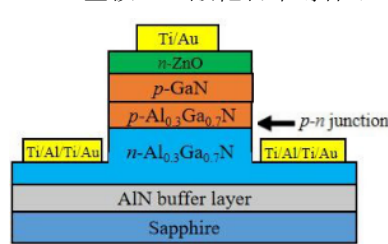


図1 ZnO トンネル層 UV-LED 断面構造

の最適化をHall測定を用いて行い、スパッタリング条件はn型キャリア濃度が $10^{20}cm^{-3}$ を再現できるRF電力50W、基板温度を300 $^{\circ}C$ とした。そして、この基板のデバイス化のために、ドライエッチングとウェットエッチングを併用してLEDのメサ構造を形成した後に、電子ビーム蒸着法によりオーミック接合のためのp電極(Ti/Au)とn電極(Ti/Al/Ti/Au)を蒸着した。このZnO酸化物半導体トンネル層を有するUV-LEDデバイスの断面構造を図1に示す。作成したUV-LEDはZnOトンネル層有無の2種で、これらを電流-電圧測定(I-V測定)、

エレクトロルミネッセンス法(EL法)により、電気的評価特性、光学特性評価を行った。一方で、ZnO酸化物半導体トンネル層によるUV-LED正孔注入促進の可能性を理論的に検討するために、p-AlGaIn/n-ZnOトンネル接合のバンド構造解析を行った。解析ソフトにはnextnanomatを用い、Poisson方程式を解く事で熱平衡状態におけるトンネル接合のエネルギーバンド構造を計算した。

### 4. 研究成果

#### (1) 光学評価結果

図2に作成したZnOトンネル層を有するUV-LEDのEL測定により得られたスペクトルを示す。この図中で赤線表記のスペクトルは図1の構造を有するZnO層ありUV-LED、そして青線表記のスペクトルが比較のために作成したZnO層だけを省いた構造のUV-LEDからである。両スペクトル共に、室温、注入電流18mAにおける発光である。この図より明らかなことは、両サンプル共に同じピーク発光波長 $\lambda_p$ が335nm付近に観測されることより、ZnO層プロセ

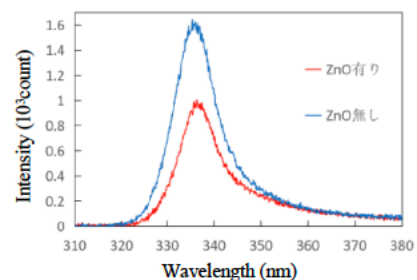


図2 ZnO トンネル層有無を比較するUV-LEDのELスペクトル

スによる活性層へのダメージ、歪み等による影響は無いことが明らかである。一方で発光強度に関しては、ZnO無しがZnO有りを凌駕している。これは、ZnO層によるLED発光の吸収が原因である可能性を示唆する。この解決にはZnO層の膜厚の再考が必要である。またZnOトンネル層有無のEL発光強度の注入電流( $I_F$ )依存性を図3に示す。この図より、 $I_F$  8mA以下の低電流注入領域においては、ZnO有りの発光強度がZnO無しのそれを凌駕しており、8mA以上でこの関係は逆転する。この8mA以下ではZnOトンネル接合による正孔注入効率の向上が光出力の促進に寄与したと考える。一方で、8mA以上では図2のEL光強度比較結果と一致している。しかし、発光強度差が電流増加で直線性を示しておらず、これはZnOによる一定の吸収では説明できない。ここで、ZnOトンネル接合層はその低い抵抗率( $1.1 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ )により、電流拡散層として機能し、高電流注入時の電流集中を防止している可能性がある。この場合、140nm厚ZnOによる光吸収よりも電流集中の抑制による実効的な電流密度の低下が発光強度の低下になる可能性もある。また、今回のEL測定での集光方法は積分球を使用しておらず、発光の角度依存性がある場合は、正確な発光強度比較ができない。さらに屈折率の異なるZnO層挿入による光放射分布の変化も大いにあり、これが測定精度に影響を与えている可能性は否定できない。よってこれは今後の研究課題になる。

## (2) 電気的特性評価

図4にI-V測定より得られた、ZnOトンネル層有無UV-LEDの順方向電流-微分抵抗の関係を示す。この図において、全電流領域においてZnO有りLEDが若干の抵抗成分を有することが示されている。これはZnO/GaN界面での接触抵抗によると考える。また $10^{-7}$ から $10^{-3}$ Aの低電流注入領域では、ZnO有りLEDがさらなる抵抗成分を有することが解る。Y. Zhangらは、InGaNを用いたトンネル接合LEDにおいて、この電流領域での寄生抵抗をトンネル抵抗として報告している。<sup>[5]</sup> またこの結果は光学特性結果におけるZnO層ありLEDの発光優位性をZnOトンネル接合による正孔注入効率の向上とする説明を支持するものである。また高電流注入領域では両デバイスが有する同等の直列抵抗成分が支配的になっている。

## (3) p-AlGaIn/n-ZnOトンネル接合のバンド構造解析結果

この解析においては初期条件として、p領域とn領域の膜厚をそれぞれ500nm、100nmと定め、c軸[0001]方向(Ga極性面)に成長したp-GaN( $N_A=1.0 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ ) / n-ZnO( $N_D=1.0 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ )、n-ZnOをn-GaN( $N_D=1.0 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ )に置き換えた場合さらにp-GaNをp-Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>N( $N_A=1.0 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ )に置き換えた場合、それぞれのバンド構造を図5に示す。これらバンド図の比較で、n領域の材料を置き換えた場合、p-GaN/n-ZnOの構造においてはp-GaN/n-GaNと比べて空乏層幅が減少しており、低電圧でのトンネル確率が向上する可能性があることが分かった。このような結果が得られた原因として、GaN(Ga極性面)とZnO(O極性面)の接合界面にピエゾ効果で負の分極電荷が発生しn領域のバンドが大きく曲げる電場が生じ、空乏層幅が狭まった事、かつp領域のバンドの傾きが緩やかになり、フェルミ準位に近づいた事が挙げられる。また、p領域の材料をp-AlGaInに置き換えた場合、バンドギャップエネルギーは増加するものの、ピエゾ効果により正孔注入促進効果は同様に得られる可能性があることが示された。

## <引用文献>

- [1] H. Hirayama, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 53100209(2014).
- [2] Y. Zhang, et al., Appl. Phys. Lett. 109, 121102 (2016).
- [3] Y. Kuwano, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 52 08JK12 (2013).
- [4] M. Kneissl, et al., Nat. Photonics. 13, 233 (2019).
- [5] Y. Zhang, et al., Appl. Phys. Lett. 106, 141103 (2015)

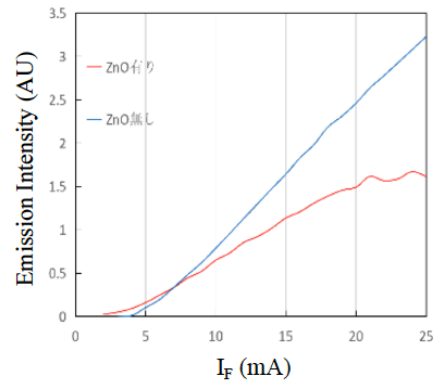


図3 ZnOトンネル層有無のEL発光強度の注入電流( $I_F$ )依存性

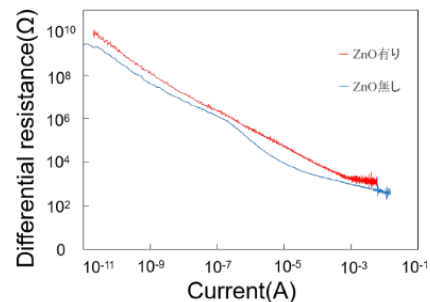


図4 ZnOトンネル層有無UV-LEDの順方向電流-微分抵抗

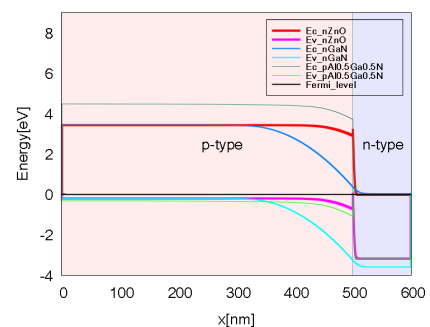


図5 p-GaN/n-ZnO, p-GaN/n-GaN及びp-Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>N/n-ZnOトンネル接合のエネルギーバンド構造

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Xiaojia Zhang, Jun Morimoto, Kazuo Uchida, and Shinji Nozaki
2. 発表標題 High-Al content AlGa <sub>N</sub> pn diode with p-AlGa <sub>N</sub> improved by the UV wet oxidation
3. 学会等名 19th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 SUN ZHENG、森元 諄、大黒 将也、田尻 武義、内田 和男
2. 発表標題 p型コンタクト層にn-ZnOトンネル層を有するAlGa <sub>N</sub> 系pnダイオードの作製及び電氣的評価
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 浮田 駿、田尻 武義、内田 和男
2. 発表標題 正孔注入促進に向けたp-AlGa <sub>N</sub> /n-ZnOトンネル接合のバンド構造解析
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 孫 諶、王 新磊、森元 諄、田尻 武義、内田 和男
2. 発表標題 p型コンタクト層にn-ZnO層を接合したAlGa <sub>N</sub> 系pnダイオードのEL特性評価
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

電気通信大学大学院情報理工学研究科 内田・田尻研究室ホームページ  
<http://www2.w3-4f5f.ee.uec.ac.jp/wp/>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	田尻 武義  (Tajiri Takeyoshi)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------