

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05297

研究課題名(和文) 多段階高温成長法による半極性AlN仮想基板の低転位化と深紫外発光ダイオードの研究

研究課題名(英文) Low Dislocation of Semi-Polar AlN Virtual Substrates by Multi-Step High Temperature Growth Method and Deep UV Light Emitting Diodes

研究代表者

定昌史 (Jo, Masafumi)

国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・専任研究員

研究者番号：20400020

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：多段階高温成長法と外部アニール処理を組みあわせることで(11-22)AlN仮想基板の低転位化を行い、欠陥密度を2桁減少することに成功した。高品質AlN仮想基板上に(11-22)AlGaIn量子井戸を作製し、室温で明瞭なUVC発光を得た。さらにUVBでの電流注入発光も達成した。(10-13)面の高品質化にも成功し、室温におけるUVB領域での量子井戸発光を光励起、電流注入の両方において実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

深紫外光は殺菌をはじめとした幅広い用途を持つため、小型で堅牢、波長可変といった特性を持つLEDを用いた深紫外光源が実現できれば社会の様々な場面で役に立つことが期待される。深紫外LEDの高性能化アプローチの一つとして、半極性面を用いた結晶成長が注目されているが、従来は結晶性が低く十分な特性は得られていなかった。本研究では成長方法を工夫することにより結晶の高品質化を実現し、深紫外波長域において半極性面デバイスで初の室温動作を達成した。本結果は今後の半極性面デバイス実用化へ大きく前進したものである。

研究成果の概要(英文)：We have succeeded in reducing dislocation density in (11-22)AlN virtual substrates by combining a multi-step high-temperature growth method and external annealing treatment, resulting in a two-digit reduction in defect density. (11-22)AlGaIn quantum wells were fabricated on high-quality AlN virtual substrates, and clear UVC emission was obtained at room temperature. Furthermore, current injection luminescence at UVB was also achieved. The (10-13) surface was also successfully improved to high quality, and quantum well luminescence in the UVB region at room temperature was achieved for both photoexcitation and current injection.

研究分野：半導体量子構造

キーワード：AlGaIn 半極性面 PL EL

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

窒化物半導体の結晶構造に起因した分極は、極性面を用いるかぎり避けられない課題としてデバイス設計に大きな制約を課してきた。その制約を克服すべく非極性面を用いた結晶成長が InGa_N 系を中心に近年盛んとなっている。AlGa_N 深紫外光源においても、従来の限界を超えた高性能を実現するには、非極性面デバイスの実現が非常に重要である。

非極性 AlGa_N の研究はヨーロッパで盛んに進められており、(11-22)面に関しては AlN, AlGa_N の成長と光物性が報告されている。ただし、AlN 結晶品質は X 線半値全幅で 700 arcsec といまだ不十分である。実際、発光特性の観測はいずれも低温に限られており、室温における量子井戸からのフォトルミネッセンスやエレクトロルミネッセンスの報告は未だない。

2. 研究の目的

本研究では、極性面の限界を超えた高性能深紫外 LED の実現に向け、半極性面を成長面方位とした高品質 AlGa_N/AlN 膜の成長と、それを用いた AlGa_N 深紫外 LED 作製を目的とする。申請者が開発した多段階高温成長と外部アニール処理を併用することで、サファイア上(11-22)AlN 膜の低転位化を行う。低転位 AlN 仮想基板上に AlGa_N 量子井戸構造を作製し、室温発光の観測と分極低減効果の検証を達成する。(11-22)面における不純物ドーピング特性を明らかにし、高効率深紫外 LED の実現を目指す。

3. 研究の方法

(1) AlN 仮想基板の低転位化

多段階高温成長法と外部アニール処理を組みあわせることで半極性 AlN 仮想基板の低転位化を行う。

(2) AlGa_N 量子井戸作製と発光特性評価

半極性面では分極低減により電子・正孔の重なり積分が保たれるため、量子井戸幅を増やすことでキャリア捕獲効率が向上し、極性面に比べて発光効率の改善が期待される。蛍光強度極大を与える井戸幅を明らかにするとともに、ピークエネルギー位置のシフト量から分極低減効果を検証する。

(3) (11-22)AlGa_N 不純物ドーピングと電気特性評価

不純物の取り込まれやすさは成長面方位に依存し、一般に半極性面ではドナー不純物が取り込まれやすい。そのため p 型ドーピングでは、残留不純物濃度を考慮しつつアクセプター不純物濃度に対する正孔濃度をモニタする必要がある。アクセプター活性化率が低い場合には、ポストアニール処理温度を従来よりも高温にすることで効率的な水素追い出しをはかる。

(4) 半極性 AlGa_N 深紫外 LED の作製

以上の結果を総合して半極性 AlGa_N 深紫外 LED を作製し、効率と特性を評価する。

(5) (10-1-3)面など他の半極性面の検討

(11-22)面成長に用いている(10-10)サファイア基板では、成長条件により(10-10)面や(10-1-3)面 AlN も形成される。(10-10)面は無極性面ゆえ分極ゼロを実現可能であり、(10-1-3)面は双極子遷移行列要素の点で有利と考えられる。発展として、これらの非極性面についても多段階高温成長

法を適用することで高品質化をはかり、機能発現について検討を行う。

4. 研究成果

半極性 AlN の高品質化と深紫外発光素子の実現に向け、(11-22)面と(10-13)面の 2 種類の半極性面について研究を行った。

(11-22)面：多段階高温成長法と外部アニール処理を組みあわせることで線欠陥密度を 10^{11} cm^{-2} から 10^9 cm^{-2} まで減らした AlN 仮想基板を作製し、その基板の上に AlGaIn 成長を行った。高品質な AlN 基板を反映して平坦な AlGaIn 量子井戸構造が得られ、室温において明瞭な蛍光スペクトルが観測された。量子井戸幅を 2-6 nm で変化した試料の発光特性を図 1 に示す。井戸幅増加とともに発光波長は長波化するが、そのシフト量は極性面である(0001)面 AlGaIn よりずっと小さい。(11-22)面で期待される分極電場値を用いて計算したシフトとほぼ整合しており、(11-22)面が分極電場が小さく特性の良い面方位であることを示唆している。

図 2 は n 型の電気特性を評価したもので、一定値以上の Si ドープメント流量において良好な電気特性が得られた。いっぽう、p 型の電気特性は不純物酸素の取り込みもあり難しい。これは AlGaIn の Al 組成が高くなるほど顕著である。そのため、LED 構造では Al 組成を落として UVB 領域での発光を示す構造とした。図 3 に室温における電流注入蛍光スペクトルを示す。発光強度は弱くほかの準位からの発光も観測されるものの、量子井戸からの発光を 310 nm に得た。

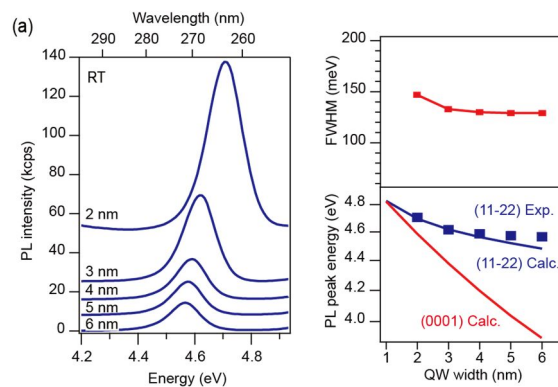


図 1 室温における(11-22)AlGaIn 量子井戸の蛍光スペクトルの井戸幅依存性。右上：発光線幅、右下：ピーク位置の井戸幅依存性。線幅、ピーク位置とも極性の大きな(0001)面に比べ小さい値であり、(11-22)面の分極電場が小さいことを示唆している。

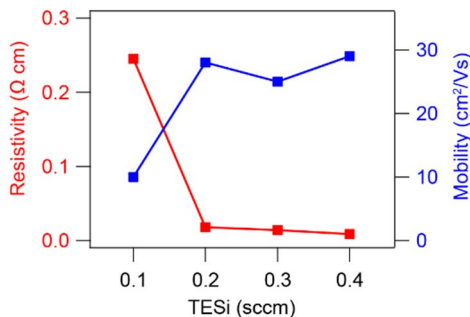


図 2 (11-22) n 型 AlGaIn 電気特性の Si 流量依存性。TESi 0.2 sccm 以上で比抵抗 0.01 cm と十分な電気特性が得られている。

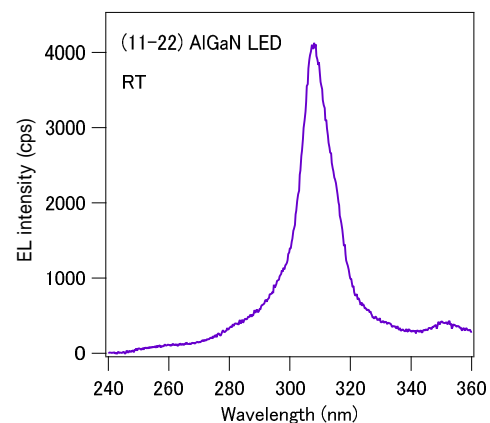


図 3 室温における(11-22)AlGaIn 量子構造の電流注入蛍光スペクトル。Cw 100 mA.

(10-13)面：m 面サファイア基板の上の(10-13)AlN 成長では、成長時の表面状態の対称性に起因し

て面内配向が 180° 異なる双晶が発生し、結晶性や表面平坦性が劣化することが問題となっていた。そこで、本研究では微傾斜サファイア基板を用いることで表面对称性を低下し、双晶の発生を抑制することを検討した。その結果、サファイア基板 a 軸方向にオフ角を持つ基板を用いることで単一の配向性を有する AlN 成膜に成功した (図 4)。配向方向はオフ角の正負に対応することから双晶のうちどちらの配向方向を選択することも制御可能である。いっぽう、c 軸方向のオフ角では双晶抑制効果は観測されなかった。双晶の抑制に伴い、AlN の結晶性は劇的に向上し、XRC 半値は 1/10 まで減少した。この高品質 AlN を用いることで深紫外域における AlGaIn 量子井戸からの室温フォトルミネッセンス、ならびに LED 発光を得ることに成功した (図 5)。

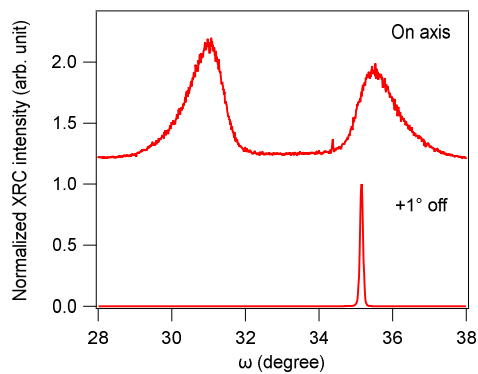


図 4 (10-13) AlN 仮想基板の X 線ロックアップカーブの基板オフ角比較。a 軸方向にオフ角をもつ基板を用いることで双晶の発生を抑制し結晶性を向上することができる。

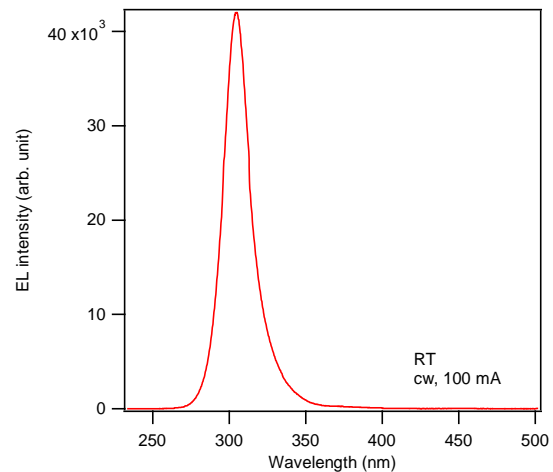


図 5 (10-13) AlGaIn LED の室温における電流注入スペクトル。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Jo Masafumi、Itokazu Yuri、Kuwaba Shunsuke、Hirayama Hideki	4. 巻 -
2. 論文標題 Fabrication of semipolar AlGaIn UV LEDs on sapphire substrates	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 2021 20th International Workshop on Junction Technology (IWJT)	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.23919/IWJT52818.2021.9609387	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Masafumi Jo
2. 発表標題 Fabrication of semipolar AlGaIn UV LEDs on sapphire substrates
3. 学会等名 International Workshop on Junction Technology（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------