

機関番号：32619

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760258

研究課題名(和文) 球状シリコン上 GaN のヘテロエピタキシーと高出力 LED の研究

研究課題名(英文) Heteroepitaxial growth of GaN on Silicon spheres and its application for high power light emitting diodes

研究代表者

石川博康 (ISHIKAWA HIROYASU)

芝浦工業大学・工学部・准教授

研究者番号：20303696

研究成果の概要(和文)：

球状という新しい形状の GaN 系 LED の作成に向けて、半導体形成技術とのマッチングに関する研究を行った。Si(100)を支持基板とし、低融点鉛ガラスにより球状 Si の着脱試験を行い、良好な結果を得た。また、Si 基板上 LED に使用している発光層の発光特性とその微細構造形状との相関性について研究を行った。多数の欠陥に起因したピラミッド状の微細構造が観察され、発光の強い場所と弱い場所に特徴があることがわかった。

研究成果の概要(英文)：

Novel technology based on GaN-on-silicon-sphere were investigated for high power and better light extraction efficiency GaN-based LEDs. Using Si (100) substrates as support submounts, silicon spheres could be fixed and unfixed on the submounts with low-melting-point lead glass. Moreover, correlation between luminescence characteristics and nanostructures in GaInN MQWs on Si substrates was investigated for improved performance. There was a strong correlation between strong luminescence characteristics and their nano- and micro-structures.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード：結晶成長、電子デバイス・機器、ナノ材料、マイクロ・ナノデバイス

1. 研究開始当初の背景

GaN 系半導体は、優れた発光素子材料、電子走行素子材料として世界各国で広く研究が行なわれている。基板としてサファイアが用いられているが、これを Si とすれば、①廉価、②発光素子において上下に p 電極(エピ表面)、n 電極(Si 基板裏面)を形成することができる、③Si 集積回路と窒化物発光素子を一体化した高機能素子の作製ができる、というメ

リットがある。

従来、Si 基板上に良好な GaN 結晶を得ることができなかったが、本研究代表者は良好な成長ができない原因が界面の固相反応プロセスにあることを突き止めた。そして、世界で初めて2インチ Si 基板上へクラックのない高品質 GaN の成長に成功した。また、Si と窒化物半導体間のヘテロ障壁の高さを定量的に分析、極めて薄い中間層を用いること

で直列抵抗の低い Si 基板上 GaN 系青色・緑色 LED の作製に成功している。一方、GaN 系 LED 発光波長に対して Si 基板が不透明であり、活性層から基板側に発せられた光は殆ど Si に吸収されてしまう問題がある。そこで、半導体多層膜反射鏡(DBR)を LED 構造と Si 基板間に挿入することにより界面での反射率を高めることを試み、AlGaIn/AlN 系 DBR では従来比 1.5 倍、AlInN/GaN 系 DBR では 3.6 倍の出力を得た。しかしながら、DBR だけでは 20 ペア程度でもクラックが発生しないが、DBR 上に LED 構造を成長すると 10 ペア程度でクラックが発生し、さらなる高出力化には限界がある。また、大面積 Si 基板ではクラックの問題の他、基板の反りによるプロセス異常がある。そして、あまり知られていないが、4 インチ以上の基板では基板周辺からスリップが多数発生、中心部まで伸びる場合も多々あり、応用上深刻な問題となっている。

上記のような問題に対し、本研究では球状 Si を成長用基板として使用することを試みた。通常の平坦な Si 基板上 GaN の問題であったクラック・基板のスリップについて、球状 Si では球が独立していることから成長範囲が限られ、これらを抑制することができると考えられる。上半球部に LED エピ構造、下半球部を n 形コンタクトとして利用する。球形状と Si のエッチング特性を利用して表面全体にマクロステップを形成することで、光取り出し効率の向上が期待できる。

2. 研究の目的

球状 Si の作製を行い、GaN の結晶成長に適するプロセス技術を検討することを第一の目的とした。異方性エッチングを用いて(111)等価面によるマクロステップ形成を行い、GaN を結晶成長させることを試みた。

これと平行に、Si 基板上 GaN 系 LED の発光出力を向上させるための研究を同時に行うことにした。Si 基板上 GaInN 15QW LED は比較的良好な発光特性を示すものの、基板の不透明な点を考慮しても出力特性はサファイア基板上 LED に劣る。GaInN は転位等の非発光再結合中心の影響を受けにくいからとされているが、Si 基板上 GaN はサファイア基板上に比べて 10 倍近い転位密度であり、何らかの影響があると考えられる。そこで、Si 基板上 GaInN MQW の発光特性と構造の相関について調べることを第二の目的とした。

3. 研究の方法

(1)球状 Si に関する研究

球状 Si を作製し、その結晶品質について評価を行った。また、結晶成長のための球状 Si の固定方法に関して検討を行った。KOH を用いたウェットエッチングにより、Si(100)基板

上に固定用のピットを形成した。融点 450°C の低融点鉛ガラス粉末をピットに入れ、その上に球状 Si を置いて窒素雰囲気中で熱処理を行った。さらに、有機金属気相成長

(MOCVD)装置により球状 Si 上へ GaN の結晶成長を試みた。

(2)Si 基板上 GaInN MQW 発光層に関する研究
n 型 Si(111)を成長用基板として使用した。横型 MOCVD 装置を用い、減圧 100Torr にて n-AlGaIn/n-AlN 中間層 (30/5 nm)、20 周期の n-GaN/n-AlN (20/5 nm)多層膜を介して n-GaN (0.2 μ m)を成長し、その後常圧下で Ga_{1-x}In_xN / Ga_{0.99}In_{0.01}N(10 nm)MQW 構造を作製した。井戸層の厚さは 2~4nm、周期 (井戸数) は 1~30 まで変化させた。比較のためサファイア基板上 GaN (1.2~1.5 μ m) 上に同様の構造を成長した。

4. 研究成果

(1)球状 Si に関する研究

直径 1.8mm の真球状の球状 Si を作製した。X 線回折測定よりほぼ単結晶状であることがわかった。詳細について球状のままでは測定が困難であり、新たな評価方法が必要である。

球状 Si の固定について、低融点鉛ガラスにより球状 Si を固定することができた。ヒーター上で再加熱することで取り外すことも容易にできた。

一方、低融点鉛ガラスは GaN の結晶成長温度で液体であり、昇温中に球状 Si 表面に動いていく可能性がある。そこで、球状 Si を固定した Si(100)ウェアを窒素雰囲気下 500~900°C で加熱し、加熱後の外観変化を調べた。その結果、900°C で熱処理したものには球状 Si 下部にわずかな変色が認められた。一般的に鉛ガラスには低融点の PbO が含まれる。PbO の蒸気圧曲線より 900°C における蒸気圧は 0.45 Torr と比較的高い値である。今回使用した低融点鉛ガラスの組成の詳細は不明であるが、高温熱処理により PbO が蒸発したものと考えられる。

球状 Si の面方位の特定について、当初ウェットエッチングにより特定面を露出させる方法を考えていた。しかしながら、エッチピットが大きく出てしまい、平坦面を階段状に露出させることができなかった。エッチャントの組成およびドライエッチングについて検討の余地がある。わずかな平坦面から類推される Si(111)面を上向きに置き、GaN の成長を行った。球状 Si 上および周りには多結晶が多数観察された。GaN の結晶成長温度は 1100°C 程度であり、この時の PbO の蒸気圧は 18 Torr と高い。結晶成長中に蒸発した成分が球状 Si の周りに付着、結晶成長を阻害したものと考えられる。低融点鉛ガラスによる固定は簡便であるが、蒸気圧の高い材料を検討す

る必要がある。

平坦面上について表面上の判断は困難であるが、先の PbO の蒸発や水素雰囲気中での還元の影響の他、エッチピット周りに成長した多結晶により c 面成長が阻害されていることも考えられる。平坦面の露出を増し、多結晶成長を引き起こすエッチピットを減らすことが球状 Si 上への GaN の成長に必要である。エッチピットは結晶欠陥と関係があり、球状 Si 自体の結晶品質向上も必要である。

(2)Si 基板上 GaInN MQW 発光層に関する研究

Si 基板上 MQW 発光層およびサファイア基板上 MQW 発光層の室温 PL スペクトルのピーク波長とピーク強度の井戸数依存性を図 1 および図 2 にそれぞれ示す。励起光源には He-Cd レーザー(レンズで集光、325nm, 11mW)を使用した。井戸層の $Ga_{1-x}In_xN$ の予定組成は $x = 0.13$ であり、励起光は障壁層・井戸層共に励起する。

サファイア基板上では、井戸数 1 から 30 まで明瞭なスペクトルが観察された。PL ピーク波長について、井戸数依存性がほとんど観察されなかった。PL ピーク強度について、井戸数の増加に従いほぼ単調に増加していき、井戸数 20 で飽和した。分光エリプソメータにより求めた GaN の波長 325nm における消衰係数(0.304)を用いると、20QW の総厚 0.26 μm はおよそ $1/e^3$ の減衰を与えると見積もられる。どの程度の減衰まで発光に寄与できるか正確には不明であるが、20QW 以上では励起光の侵入長以上の厚さになるものと言え、ピーク強度が飽和したものと考えている。

一方、Si 基板上では、井戸数 1 から 3 までは測定限界以下の PL 強度であり、4QW 以上で PL スペクトルが観察された。PL ピーク波長について、サファイア基板上と異なり、井戸数の増加と共に単調にレッドシフトし、15QW 付近で飽和した。PL ピーク強度については井戸数 10~15 付近にピークを持つ傾向が得られた。

このような傾向を示す要因を調べるため、15QW LED 構造を用いて断面 TEM 観察を行った。図 3 に Si 基板上 15QW の断面 TEM 像を示す。MQW 構造は通常の層状ではなく、多数のピラミッド状の形状が観察された。ピラミッドのサイドウォール間の角度は 56~63° であった。サイドウォールの面方位について、角度の範囲から {10-11} および {11-2m} ($m \geq 2$) 両方ともに可能性がある。ピットの底には貫通転位があり、転位に起因した構造であると言える。

MQW 構造は c 面上およびサイドウォール面上に形成されている。図 4 に両面上の MQW における 1 周期あたりの膜厚の井戸数依存性を示す。c 面 MQW ではピラミッド頂点に向かって井戸層の膜厚は厚くなっていた。さら

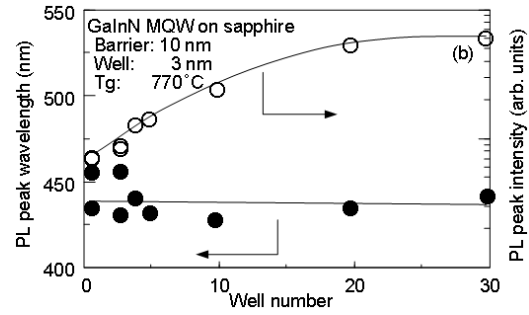


図 1 サファイア上 GaInN MQW の室温 PL のピーク波長およびピーク強度の井戸数依存性

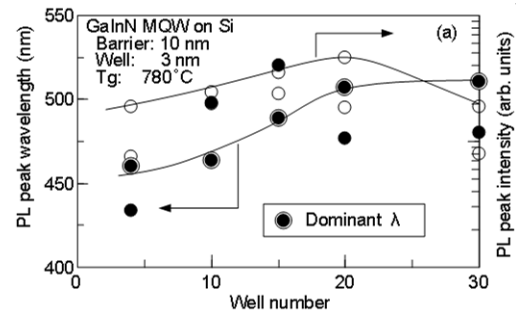


図 2 Si 上 GaInN MQW の室温 PL のピーク波長およびピーク強度の井戸数依存性

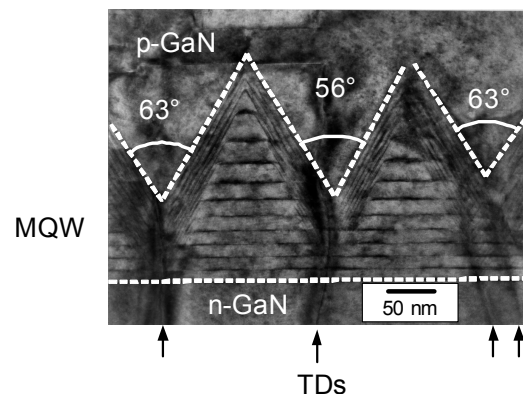


図 3 Si 上 GaInN 15QW の断面 TEM 像

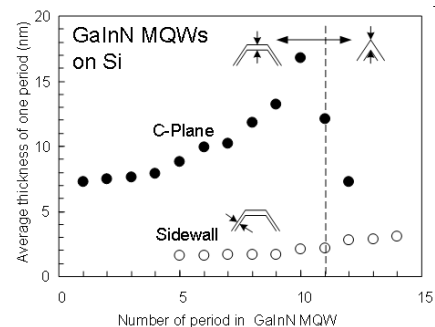


図 4 Si 上 GaInN MQW における 1 周期あたりの膜厚の井戸数依存性

に量子井戸層の横方向の幅が狭くなっていた。下から11番目以降はc面に平行な成分がない。一方、サイドウォールMQWも井戸数とともに膜厚が厚くなるが、c面MQWに比べて井戸層も障壁層も薄い。

どちらの構造が発光に寄与しているか、発光像と表面像の対応を調べた。図5にSi基板上MQWの蛍光顕微鏡 (FLM) 像と同倍率の原子間力顕微鏡 (AFM) 像を示す。AFMには多数のピラミッド構造が観察されているが、その頂点から発光する様子はFLM像にはない。TEM像より、12QW以上では発光層のほとんどがサイドウォールMQWによって覆われている。これらから、サイドウォールMQWが発光に大きく寄与しているものと結論づけられる。

また、発光波長がサファイア上MQWより長くなる点について検討した。c面MQWでは弱励起下においてピエゾ電界による長波長化が起きる。一方、サイドウォールMQWは膜厚が薄く、長波長化の可能性が低い。よって、サイドウォールMQWでは井戸層のGaInNのIn組成が高いと推測される。一方、膜厚が薄いためキャリアの閉じ込めが弱く、これがSi基板上MQWからの発光が弱い原因と考えている。

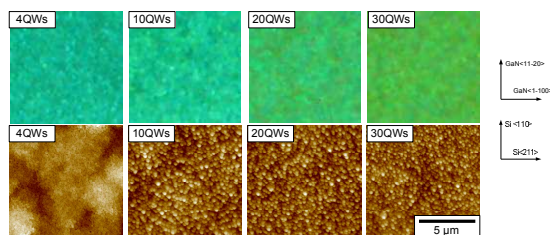


図5 Si基板上GaInN MQWのFLM像およびAFM像

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2件)

1. H. Ishikawa, K. Shimanaka, Reduction of threading dislocations in GaN on in-situ metlback-etched Si substrates, J. Crystal Growth Vol. 315, pp. 196-199 (2011), 査読有.
2. H. Ishikawa, K. Shimanaka, M. Azfar bin M. Amir, Y. Hara, and M. Nakanishi, Improved MOCVD growth of GaN on Si-on-porous-silicon substrates, phys. stat. solidi C Vol. 7, pp. 2049-2051 (2010), 査読有.

[学会発表] (計2件)

1. H. Ishikawa, K. Shimanaka, Reduction of threading dislocations in GaN on In-Situ Meltback-Etched Si Substrates, 15th International Conference on Metal Organic Vapor Phase Epitaxy (ICMOVPE XV), Incline Village (NV, USA), 2010年5月28日.
2. H. Ishikawa, N. Mori, PL and structural studies of GaInN MQWs grown on Si substrates, The 8th International Symposium on Semiconductor Light Emitting Devices, Beijing (China), 2010年5月21日.

6. 研究組織

(1)研究代表者

石川 博康 (ISHIKAWA HIROYASU)

芝浦工業大学・工学部・准教授

研究者番号：20303696

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし