

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）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：基盤研究(A)

研究期間：2010 ~ 2012

課題番号：22246004

研究課題名（和文）

圧力印加MOVPEによる高品質InGaN厚膜成長

研究課題名（英文）

Growth of high-quality thick InGaN by raised-pressure MOVPE

研究代表者

天野 浩 (AMANO HIROSHI)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：60202694

研究成果の概要（和文）：

10気圧まで加圧可能な有機金属化合物気相成長(MOVPE)装置を設計、外注し、その装置を用いてInGaN成長を行った。炉内圧力増加と共にキャリアガスの熱伝導率が上昇し、原料が基板手前で分解してしまい輸送されない問題が実験開始当初生じた。そのためフローチャンネル部材をグラファイトから熱伝導率の低い石英に変更するなどの改造を行った。結果、基板への原料供給問題は解決し、当初の目的であるInGaNのMOVPE成長における加圧効果を確認することができた。圧力6気圧において高温で量子井戸を作製したところ1気圧と比べ120nm長波長で発光することがわかった。

研究成果の概要（英文）：

MOVPE reactor having two buffer tanks for the supply of pressurized TMGa and TMIIn, has been operated from 1 atm to 10 atm. It was found that with increasing the reactor pressure, thermal conductivity of the gas increases, thus metalorganic precursors were fully decomposed before reaching the substrate. Therefore, reactor was redesigned and repaired. Then, we can successfully grow high In content InGaN at raised pressure. InGaN based-quantum wells grown at 6 atm shows emission wavelength longer than 120 nm compared with that grown at 1 atm.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	31,700,000	9,510,000	41,210,000
2011年度	3,100,000	930,000	4,030,000
2012年度	3,100,000	930,000	4,030,000
総計	37,900,000	11,370,000	49,270,000

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・結晶工学

キーワード：結晶成長 可視長波長LED 圧力印加有機金属化合物気相成長法

1. 研究開始当初の背景

GaN系Ⅲ族窒化物半導体は、紫色、青色および緑色LED、黄色の蛍光体と青色LEDとを組み合わせた白色LED、Blu-ray Disc用紫色LDなどが実用化し、街路灯などの特殊照明、交通信号機、大型ディスプレイ、液晶用バックライトなどですすでにおなじみであり、更に一般照明用光源としての応用が徐々に始ま

っている。すでに語りつくされている通り、LEDは蛍光灯のように水銀などの有害物質を含まず、寿命も4万時間以上と長い。更に太陽電池として光電変換能力も高く、本申請者等は、外部量子効率65%を超す太陽電池の機能を有する緑色LEDの試作に成功している。

研究開始当時報告されていた最も効率・性能の高い白色LEDは、色温度5,000[K]で

130[lm/W]程度であり、青みがかった冷白色である。CRIの基準光源である白熱電球の色温度は3,200[K]であるが、この色温度での現状の白色LEDの効率はせいぜい60[lm/W]程度である。現在、特に家庭用一般照明に必要とされる暖白色光源に関しては、世界中のどの研究機関や企業においても高効率化が実現されていない。また、低コストで大面積照明するには、少数のLEDチップを大電流駆動する必要があるが、電流密度の増加により効率が低下するドループ現象は未解決であった。効率ドループは、膜厚の薄いInGaN量子井戸層を発光層として用いる限り状態密度不足よりキャリアオーバーフローを生じるため、解決することはできない。また、太陽電池としては、高効率デバイスは波長400[nm]程度までに留まっている。

また研究開始当初、国内外企業から相次いで緑色LDの報告がなされた。走査型レーザーディスプレイの基幹デバイスであり、また三次元ディスプレイの実現にも大いに期待がかかる。画面サイズにもよるが、走査型レーザーディスプレイ用光源としては、レーザー光を走査することから1[W]を超える出力が必要である。しかし当時は長波長化、すなわちInGaN中のIn組成が多くなるにつれて外部量子効率は減少し、ワットクラスのLDの実現には、大きな課題が存在していた。

2. 研究の目的

研究開始当初、In組成0.25以上の高In組成のInGaNの品質は劣悪であった。高品質InGaN厚膜の成長が可能になれば、効率>250[lm/W]、CRI>80の高効率暖白色LEDはもとより、厚膜活性層の利用により効率ドループ問題は解決され、出力1[W]を越す緑色LDも可能になる。また現状の青色LED+YAG:Ce系蛍光体の弱点である青緑色及び赤色をの高効率LEDで実現する可能性も生まれる。更に、高In組成InGaN太陽光発電素子の実現、および現有のセル接合プロセス技術の融合により、現状最高効率を示すAlGaInP/GaAs/Ge系太陽電池性能を凌駕する60%以上の効率の太陽電池実現も十分可能である。

本申請者が平成15年から3年間実施した“基盤研究(A)研究課題名:超ワイドギャップAlN系半導体の超高温エピタキシャル成長による低転位化とデバイス”によれば、GaNおよびAlNは、熱分解しない範囲内でMOVPE法での成長温度が高いほど結晶品質の高い結晶を成長できる。InGaNでも同様と考えられる。より高温でのInGaNの成長を実現するためには、より高い圧力下の成長が必要である。本研究の目的はその実証である。

3. 研究の方法

図1に示す通り、トリメチルガリウム及びトリメチルインジウム用に二つのバッファタンクを設け予備加圧することにより、最大10気圧までの加圧成長に成功した。但し、アンモニアが液化することから実験は8気圧までに限られる。

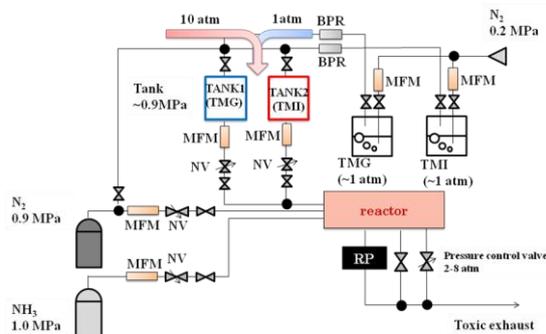


図1 加圧MOVPE装置概略

しかしながら、得られたInGaN結晶を評価すると、熱力学から予想されるIn組成と大幅に異なっていた。その原因として、気体熱伝導率の増加に基づく気相反応の影響を考え、装置を改造した。具体的には、フローチャネルの材質を変え、SiCコートグラファイトから石英にした。また、マニュアルで行っていたバルブ操作を変えて、半自動的にバルブ操作が可能なシーケンスを組み込んだ。これらの改造により、サセプタ上流部での原料ガスの熱分解が大幅に抑制され、大幅なIn組成の増加を確認し、熱力学的予想とよく一致する結果を得た。図2にグラファイトと石英フローチャネルの温度分布の計算値、図3にはそれぞれの

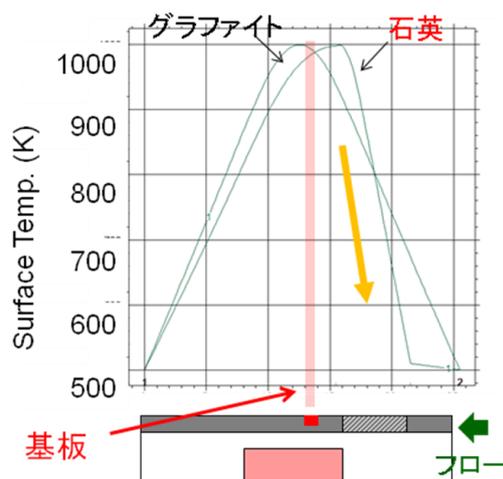


図2 グラファイト及び石英部材を用いた時の温度分布の計算値



図3 グラファイト部材(上)及び石英部材(下)を用いた時の成長後のフローチャネルの汚れの違い

成長後の原料分解の様子を示している。

4. 研究成果

新しいフローチャネルを用いて多重量子井戸 (MQW) 構造を作製した。図4には、それぞれ旧型及び新型フローチャネルを用いて、800°C6気圧で作製した多重量子井戸の2θ/ωによるX線回折強度曲線、表1には井戸層及び障壁層の厚さ及びIn組成を示す。

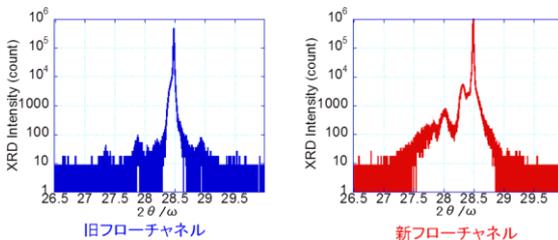


図4 旧型(左)及び新型(右)フローチャネルを用い、800°C6気圧にて作製したMQWの2θ/ω X線回折強度曲線。

表1 図4のMQWの構造詳細

	well-InGaN		barrier-GaN	cap-GaN
	厚さ (nm)	組成 (%)	厚さ (nm)	厚さ (nm)
旧	3.20	6.57	10.68	15.0
新	4.56	19.0	15.68	19.0

フローチャネルの部材の変更により、井戸層のIn組成、及び膜厚の増加が確認された。ところが、ガス流速が同じになるようにガス供給量を制御し、反応炉内圧力を変化させて作製した量子井戸の発光ピーク波長の圧力

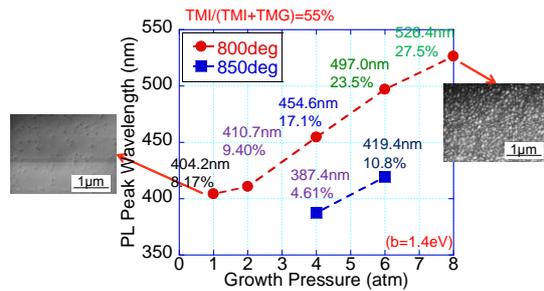


図5 PLピーク波長の成長炉内圧力依存性

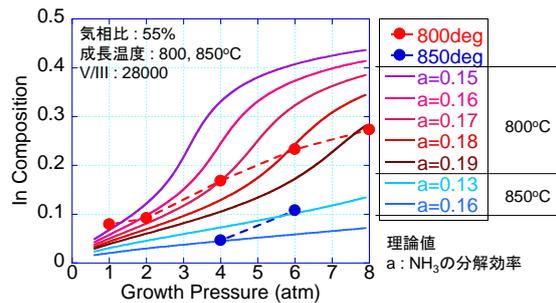


図6 PLピーク波長から換算したMQW中の井戸層のIn組成の成長炉内圧力依存性。実線はNH₃の分解効率を変化させて計算した熱力学曲線

依存性を見ると、必ずしも熱力学的に予想されるIn組成とは異なることが分かった。図5に800°C及び850°Cで作製したMQWのPL発光ピーク波長の班の炉内圧力依存性、図6にはPL発光ピーク波長から彎曲係数を1.4eVとして換算されるIn組成を纏めている。

図5にSEM写真を挿入しているが、図左のSEM写真が示す通り、1気圧で成長したMQWの表面は比較的平坦であるが、圧力と共に表面は荒れる。図には8気圧で成長したMQWの表面SEM写真も挿入してある。

図6に示す通り、成長炉内圧力の増加と共にPL発光波長は長波長化し、In組成の増加を示しているが、圧力が高い領域では大きく外れ、熱力学的計算結果よりも低いIn組成となった。この現象を熱力学的に解釈すると、前述の成長炉内圧力上昇と共に熱伝導率が増加し、NH₃の分解効率が増加した影響が示唆される。図6には、アンモニア分解効率が変化した時のIn組成の圧力依存性を示している。例えば、成長温度800°Cの時、1気圧にてアンモニア分解効率15%のとき、8気圧では19%と推定されることを示している。この結果自体は不自然ではないが、850°Cの場合はこの関係が逆転しており、いまだ現象の理解には程遠い。

以上のように、いまだ完成された成長技術とは言えない状況であるが、X線回折から圧力の増加と共に、InGa_N量子井戸層のIn組成が増加すること、InGa_N量子井戸層、Ga_N障壁層ともに膜厚が増加することは確認できた。また

本報告には示していないが、In組成のガス線流速依存性を確認し、従来の反応炉の限界である1気圧ではInGa_Nの成長ができない高温でもInGa_N成長が可能であることを実験的に示すことができている。これらの結果は、加圧MOVPEの優位性を世界で初めて検証したことを示しており、学術上極めて大きな世界初の成果と言える。今後、他の研究費等を用いて更に実験を行い、成果を学術雑誌に投稿する予定である

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1件)

1. 窒化物ワイドギャップ半導体の現状と展望—バルク GaN 単結晶成長技術開発の観点から、天野浩，応用物理，81 (2012) pp. 455-463. 査読あり

[学会発表] (計20件)

1. 窒化物半導体エピタキシャル成長の新展開，天野 浩，第137回結晶工学分科会研究会「窒化物半導体光デバイスの最前線～基板・エピ成長と評価技術～」(指定)，京都，2012/6/15
2. In and Impurity Incorporation in InGa_N，H. Amano，16th International Conference of Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (ICMOVPE-16) (Invited)，Busan，Korea，2012/5/23
3. Challenge for the growth of high-In-content InGa_N，T. Doi，T. Ohata，T. Tabata，S. Nakagawa，Y. Kawai，Y. Honda，M. Yamaguchi，and H.

Amano，III-V and III-N-based High Efficiency Solar Cells for Future Energy Harvesting(Invited)，Chiba，Japan，2012/5/11

4. 高In組成InGa_N実用化にむけて、天野 浩、第59回応用物理学関係連合講演会(指定)、早稲田大学、2012/3/15
5. High In content InGa_N for solar cell applications，H. Amano，9th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-9) (Plenary)，Glasgow，UK，2011/7/11

[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]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

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

(2) 研究分担者

山口雅史 (YAMAGUCHI MASAHIRO)

名古屋大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：20273261

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

(3) 連携研究者 なし