

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 7日現在

機関番号：33302

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22560012

研究課題名（和文） 次世代発光デバイス用新材料および量子ドット構造への
光照射劣化の研究研究課題名（英文） Study of Optical Irradiation on Nobel Materials and Quantum Dot
Structures for Next Generation Optical Devices

研究代表者

上田 修 (UEDA OSAMU)

金沢工業大学・工学研究科・教授

研究者番号：50418076

研究成果の概要（和文）：発光デバイスの究極の寿命を決定する遅い劣化のメカニズムを解明するために、次世代発光デバイス用の新材料および量子ドット構造に外部から光照射を行い、劣化の度合いを評価した。その結果、新材料の GaInNAs では、顕著な劣化が見られたが、InGaN, AlInGaAs では、殆ど劣化が見られなかった。また、InP/InAs 量子ドット/InP 構造では、比較的強い光励起下でも殆ど劣化は見られなかった。今後、実デバイスに近い構造でも評価する必要がある。

研究成果の概要（英文）：In order to clarify the mechanism of gradual degradation of optical devices, degree of degradation under optical irradiation was evaluated for materials for next generation optical devices and quantum dot structure. It was clarified that striking degradation phenomenon is observed in GaInNAs. However, no definite degradation phenomena have been confirmed for InGaN and AlInGaAs. The InAs quantum dot structure did not show any degradation under comparatively strong optical irradiation. It is required to carry out the similar experiment for practical device structures.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

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：発光デバイス、量子ドット、信頼性、劣化、結晶成長、格子欠陥、転位、電子顕微鏡、

1. 研究開始当初の背景

(1) 半導体レーザー・発光ダイオードなどの半導体発光デバイスは、1970年代初頭に光通信用の半導体レーザーの室温連続発振が実現して以来、様々な波長域の素子が開発されてきた。現在では、光通信システム用光源のみならず、オーディオ/ビデオシステムや光プ

リタ用光源、照明用、溶接用、医療用など極めて多岐にわたる分野に用いられており、その材料・構造も多種多様となっている。そのため、高性能で高信頼なシステム・電子機器などを実現するためには、キーデバイスである発光デバイスの信頼性向上が重要な鍵を握っているといっても過言ではない。

(2) III-V族化合物半導体発光デバイスの劣化メカニズムやそれらの材料の高品質化に関する研究は、1970年代から1980年代にかけて精力的に進められ、(1)結晶中の転位や転位ループを起源として、その上昇運動による増殖に伴い急速劣化が起こること、(2)点欠陥やその複合体の形成による遅い劣化が素子の究極の寿命を決めること、(3)レーザの場合には、端面の強い光吸収により、結晶が瞬時に熔融する光学損傷、などの劣化メカニズムが明らかにされた。この成果に基づいて、様々の劣化の低減策が提案された。

(3) 遅い劣化は素子の究極の寿命を決める劣化モードであるが、これに関しては、通電時の発光領域における非発光再結合による何らかの点欠陥反応に起因すると推察されてはいるものの、その具体的なメカニズムや材料による劣化の程度の違いは十分明らかにされていない。一方で、さらなる高性能化、高機能化といった時代のニーズに応えるため、AlInGaAs, GaInNAs などの新規材料や量子ドットに代表されるナノ構造を用いたレーザが開発されつつある。これらの開発途上ないしは次世代デバイスに関しても、その遅い劣化現象を明らかにし、事前に長期信頼性を確保しておくことは、今後の安全で安心な社会の実現のために極めて重要と考える。

2. 研究の目的

安全で安心な社会・システムを実現するためには、様々なシステム・電子機器のキーデバイスの一つである発光デバイスの長期信頼性の確保が不可欠である。これまで、発光デバイスの劣化研究は、急速劣化、衝撃劣化に関してはメカニズム解明が進んだが、素子の究極の寿命を決定する遅い劣化に関しては、いくつかの劣化モデルは提案されているものの不明な点が多く、対策も十分でない。そこで、本研究では、次世代発光デバイス用の新材料および量子ドット構造に外部から光照射を行い、活性層の発光状態を制御し、遅い劣化を中心に劣化メカニズムを解明する。また、材料・構造の差異による劣化度を評価すると共に、劣化の抑制策を提案し、低減化を図る。

3. 研究の方法

(1) 平成22年度下期からの研究開始となったことに伴い、平成22年度には、化合物半導体薄膜材料の基礎調査として、次世代長波長発光デバイス用 GaInNAs/GaAs 系の欠陥研究動向調査および GaAsBi/GaAs 系薄膜結晶の結晶性の評価を行う。また、化合物半導体への光照射・劣化部評価装置の改良も行う。

(2) 平成23年度には、化合物半導体薄膜材料、量子ドット構造への光照射劣化の研究の第一段階として、1) 現状デバイスに用いられ

ている AlInGaAs/InP 系、InGaN/GaN 系などの材料、2) In(Ga)As/GaAs 系量子ドット構造への劣化について研究し、それぞれの場合について、材料自体の劣化のみならず、p 型ドーパントの拡散、歪みによる劣化の加速などにも着目しつつ、総合的に理解できるようにする。

(3) 平成24年度には、1) GaInNAs/GaAs 系、GaInN, AlInN/GaN 系などの薄膜新材料や、2) InAs/InP 系の新量子ドット構造について同様の研究を行い、劣化メカニズムを解明し、これらを用いた次世代発光デバイスの長期信頼性の実現に繋げる。

(4) (2)および(3)で述べた研究を、1) 化合物半導体多層薄膜・量子ドット構造の作製(佐久間、吉本)、2) 光照射による挙動観察・光学的評価(山口、五神、吉本、矢口)、3) 光照射による劣化領域の結晶学的評価(上田、池永)、という手法を用いる3つの班を構成し、相互に連携しつつ進める。

4. 研究成果

(1) GaInNAs/GaAs 系の結晶性の研究動向調査および GaAsBi/GaAs 系薄膜結晶の結晶性評価
まず、次世代発光デバイス用材料である GaInNAs/GaAs 系の結晶性の研究動向調査を行った。その結果、In 組成が30%以上、N 組成が3%以上になると、空孔型の微小転位ループおよびそれらから派生的に積層欠陥が発生することが報告されていることが分かった。これらのことから、In, N 組成を低く抑えた結晶においても、原子空孔が多く存在すると考えられ、これらが発光デバイスの遅い劣化に何らかの形で関与することが予想される。

次いで、周囲温度が変化しても発振波長が殆ど変動しない次世代半導体レーザの活性層材料として有望な GaAs_{1-x}Bi_x 薄膜および GaAs_{1-x}Bi_x/GaAs 量子井戸構造の結晶性を透過電子顕微鏡(TEM)により評価した。

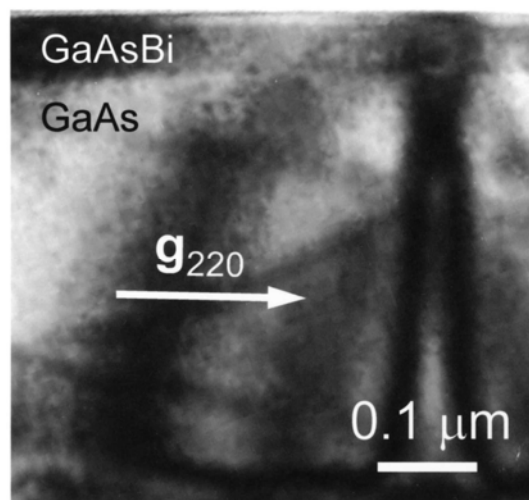


図1 GaAs_{1-x}Bi_x(x=0.095)単層膜の(110)断面 TEM 像

その結果、以下のことを明らかにした(図1)。
 a) GaAs_{1-x}Bi_x/GaAs 界面は欠陥もなく、比較的平坦である。

b) GaAs_{1-x}Bi_x (x<0.11) 薄膜中には、特に、転位などの欠陥および III-V 族化合物半導体混晶中に見られるような組成変調構造や秩序構造は形成されていない。

(2) 不純物をドーブした AlInGaAs 単層膜の光照射劣化の研究

p 型(Zn)または n 型(Si)不純物をドーブした MOCVD-AlInGaAs/(001) InP 単層膜について、光照射実験を行った。照射は、ダイオード励起固体レーザー(DPSS レーザ、波長 532 nm)を光源とする装置で行った。また、この装置では、1150 nm 以上の波長域での PL 評価が可能である。照射は、数 100 kW/cm² の光出力密度で、室温で 10 分行った。n-AlInGaAs 薄膜 (Si ドープ、n=1x 10¹⁸cm⁻³) 試料について光照射前後で PL 評価した結果を図 2 に示す。若干の発光強度の低下が見られる。一方、p-AlInGaAs 薄膜 (Zn ドープ、p=1x 10¹⁸cm⁻³) 試料では、顕著な発光強度の低下は見られなかった。今後、さらなる高光出力密度、長時間の照射を行うことにより劣化するかどうか調べる必要がある。

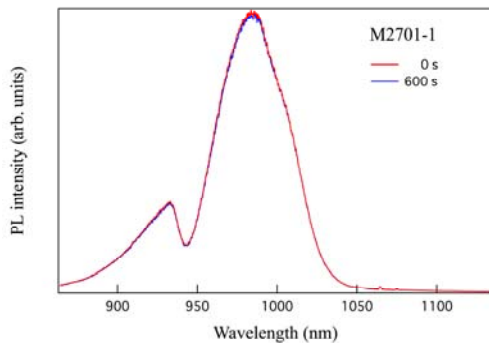


図 2 Si ドープ AlInGaAs 薄膜の光照射前後の PL 評価結果

(3) GaInNAs/GaAs 量子井戸構造の光照射劣化の研究

GaInNAs 量子井戸 (In 組成 33%, N 組成 0.6% (試料 A) 及び 1.3% (試料 B)) / (001)GaAs について、(2) で使用した光照射・PL 評価装置により照射した。パワー密度: 126-3910kW/cm²、照射時間: 0-30 分の条件での照射により以下の結果を得た。

試料 A: パワー密度が高い時では、ピーク強度は減少したが、パワー密度が 120 kW/cm² の時、ピーク強度は初め増加し、その後はほとんど変化しなかった (図 3 参照)。

試料 B: パワー密度が低い時では、ピーク強度はレーザー照射開始後、急速に増加し、その後ゆるやかに増加した。一方、パワー密度が高い時では、ピーク強度は初め増加し、途中

から減少した(図 4 参照)。

また、断面 TEM により、発光効率が大きく低下した試料の量子井戸近傍に、歪みを伴った微小欠陥が観察された (図 5 の白矢印の部分参照)。しかし、この欠陥の微細構造は不明であり、今後、平面 TEM 観察などにより詳細な解析を行う必要がある。

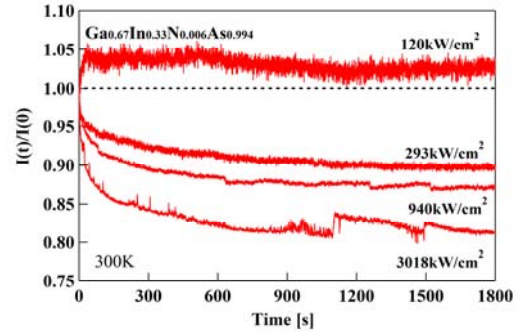


図 3 試料 A の PL ピーク強度の時間変化

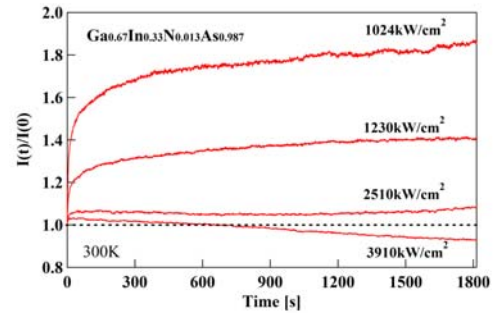


図 4 試料 B の PL ピーク強度の時間変化

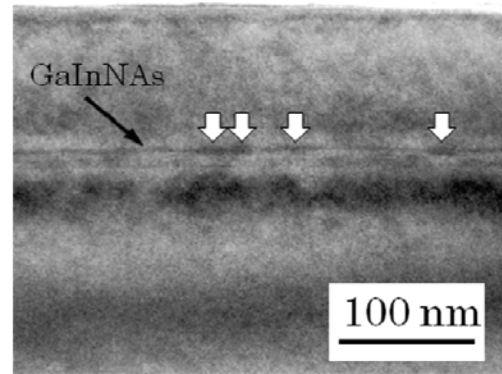


図 5 試料 A の劣化部から得た断面 TEM 像

(4) GaN/InGaN/GaN ヘテロ構造の光照射劣化の研究

p-GaN(Mg)/アンドープ InGaN/n-GaN ダブルヘテロ構造について、試験的な光照射実験を行った。照射は、半導体レーザー (375nm、150mW) の励起光を用いて、室温にて、2 時間行った。図 6 に示すように、室温 120 分の照射では、特に発光強度の変化はなかった。今回は、ビームを集光していないため、励起強度は弱いものと推定され、今後レンズ系を用いて集光し、より高い励起強度の下で照射実験を行う必要がある。

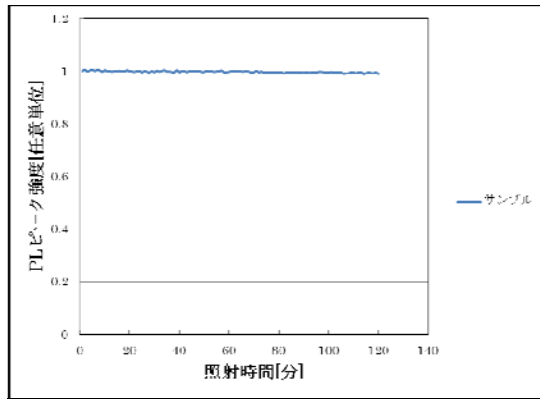


図6 光照射した InGaN 薄膜の発光強度の照射時間依存性

(5) InAs 量子ドット/InP 構造への光照射劣化の研究

InP 基板上に作製したディスク状の InAs 量子ドット (アンドープ、InP キャップ層つき) について、(2) で使用した光照射・PL 評価装置により照射した。

照射は、室温で行い、照射パワー密度は、420-4200kW/cm² の範囲で行った。その結果、いずれの条件においても、特に顕著な劣化は見られなかった。今後、クラッド層に高濃度ドーピングを行った試料について照射時の非発光再結合による不純物の挙動 (拡散など) を調べていく行く必要がある。

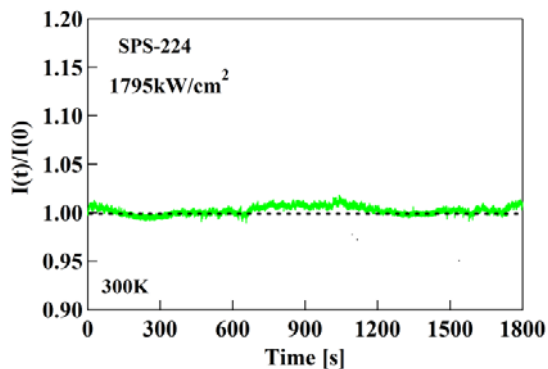


図7 光照射した InAs 量子ドットの発光強度の照射時間依存性

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 10 件)

- ① 上田 修、半導体発光デバイスの劣化解析と劣化抑制 (招待論文)、IEICE Fundamentals Review、査読有、4 巻、2013、pp. 294-304
- ② 上田 修、信頼性と人材育成 - 発光デバイスの例 - (招待論文)、日本信頼性学会誌、査読有、35 巻、2013、pp. 89-97

- ③ T. Kawazu, T. Noda, T. Mano, Y. Sakuma, and H. Sakaki, Effects of Sb/As Interdiffusion on Optical Anisotropy of GaSb Quantum Dots in GaAs Grown by Droplet Epitaxy, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 51, 2012, pp. 115201-1 - 115201-4
- ④ Osamu Ueda, Yoriko Tominaga, Noriaki Ikenaga, Masahiro Yoshimoto, and Kunishige Oe, TEM observation of MBE-grown GaAs_{1-x}Bi_x crystals, Extended Abstract of 30th Electronic Materials Symposium (EMS-30), 査読有, EMS-30, 2011, pp. 155-156
- ⑤ Osamu Ueda, Yoriko Tominaga, Noriaki Ikenaga, Masahiro Yoshimoto, and Kunishige Oe, Structural evaluation of GaAs_{1-x}Bi_x mixed crystals by TEM, Extended Abstract of International Conference on InP and Related Materials (IPRM2011), 査読有, IPRM2011, 2011, pp. 248-251
- ⑥ Atsushi A. Yamaguchi and K. Kojima, A simple theoretical approach to analyze polarization properties in semipolar and nonpolar InGaN quantum wells, Appl. Phys. Lett., 査読有, vol. 98, 2011, pp. 101905-1 - 101905-3
- ⑦ Osamu Ueda, A review of materials issues and degradation of III-V compound semiconductors and optical devices (招待論文), ECS Trans., 査読有, vol. 33, 2010, pp. 73-92
- ⑧ Osamu Ueda, On degradation studies of III-V compound semiconductor optical devices over three decades: focusing on gradual degradation, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, vol. 49, 2010, pp. 090001-090008

[学会発表] (計 10 件)

- ① 上田 修、半導体発光デバイスの再結合欠陥反応による劣化 (招待講演)、日本物理学会第 22 回格子欠陥フォーラム、2012 年 9 月 21 日、神奈川県三浦市、マホロバ・マインズ三浦
- ② 上田 修、光デバイスの信頼性・劣化研究の 40 年と今後の課題 (招待講演)、第 73 回応用物理学会学術研究会、2012 年 9 月 13 日、松山市、愛媛大学
- ③ 上田 修、半導体発光デバイスの信頼性研究 - 総論と 1990 年代の 1990 年代のトピックス - (特別招待講演)、電子情報通信学会信頼性研究会、2012 年 8 月 23 日、仙台市、東北大学電気通信研究所
- ④ 上田 修、半導体とひずみ (招待講演)、第 59 回応用物理学関係連合講演会シンポジウム「ナノひずみエレクトロニクス

～半導体ナノひずみの新規デバイス応用と高分解能測定～」、2012年3月15日、東京、早稲田大学

- ⑤ 上田 修、発光デバイスの劣化研究の現状と課題（招待講演）、2011年度電子情報通信学会エレクトロニクスソサイエティ大会 CI-1 光能動デバイス・装置を支える信頼性・安全性技術、2012年9月13日、札幌市、北海道大学
- ⑥ Osamu Ueda, Yoriko Tominaga, Noriaki Ikenaga, Masahiro Yoshimoto, and Kunishige Oe, TEM evaluation of MBE-grown GaAs_{1-x}Bi_x crystals、30th Electronic Materials Symposium (EMS-30), 2011年6月30日、滋賀県守山市、ラフォーレ琵琶湖
- ⑦ Osamu Ueda, Yoriko Tominaga, Noriaki Ikenaga, Masahiro Yoshimoto, and Kunishige Oe, Structural evaluation of GaAs_{1-x}Bi_x mixed crystals by TEM, International Conference on InP and Related Materials (IPRM2011)、May 24, 2011, Berlin, Germany
- ⑧ 上田 修、半導体発光デバイスに関する信頼性や高信頼化の課題や今後の展望（招待講演）、電子情報通信学会第19回ポリマー光回路(POC)研究会、2010年12月6日、愛知県豊田中央研究所

[図書] (計4件)

- ① 上田 修、株式会社電子ジャーナル、2013 化合物半導体技術大全 第2編第9章第2節、信頼性試験・劣化解析、2013、pp.144-154
- ② Osamu Ueda and Robert W. Herrick, Springer, Materials and Reliability Handbook for Semiconductor Optical and Electron Devices Chapter 2 Failure Analysis of Semiconductor Optical Devices, 2012, pp.19-53
- ③ Osamu Ueda, Springer, Materials and Reliability Handbook for Semiconductor Optical and Electron Devices Chapter 4 Reliability and Degradation of III-V Optical Devices Focusing on Gradual Degradation, 2012, pp. 87-122
- ④ 上田 修、株式会社技術情報協会、機器分析のための試料のサンプリング・前処理ノウハウ集 第6章第5節、TEM観察での試料前処理、2011、pp.254-277

[その他]

金沢工業大学ものづくり研究所における研究代表者の研究内容を紹介している URL:
http://www.kanazawa-it.ac.jp/kit_orc/researcher/1186582_1431.html

研究代表者の研究成果データベースの URL:
<http://kitnet10.kanazawa-it.ac.jp/researcherdb/researcher/RAFAJD.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

上田 修 (UEDA OSAMU)
金沢工業大学・工学研究科・教授
研究者番号：50418706

(2) 研究分担者

山口 敦史 (YAMAGUCHI ATSUSHI)
金沢工業大学・工学部・教授
研究者番号：60449428
佐久間 芳樹 (SAKUMA YOSHIKI)
独立行政法人物質・材料研究機構・
先端フォトニクス材料ユニット・
グループリーダー
研究者番号：60354340

(3) 連携研究者

五神 真 (GONOKAMI MAKOTO)
東京大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：70161809
吉本 昌広 (YOSHIMOTO MASAHIRO)
京都工芸繊維大学・工芸科学研究科・
教授
研究者番号：20210776
矢口 裕之 (YAGUCHI HIROYUKI)
埼玉大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号：50239737
池永 訓昭 (IKENAGA NORIAKI)
金沢工業大学・ものづくり研究所・講師
研究者番号：30512371