

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24年 6月 5日現在

機関番号：12601
研究種目：若手研究(A)
研究期間：2010～2011
課題番号：22686031
研究課題名（和文） 表面プラズモン制御による発光素子の高効率化

研究課題名（英文） Improvement in efficiencies of light emitting devices by surface plasmon

研究代表者
井上 茂（INOUE SHIGERU）
東京大学・生産技術研究所・特任助教
研究者番号：10470113

研究成果の概要（和文）：緑色域における発光素子の効率改善が望まれている。この問題を解決する方法として表面プラズモンの利用が考えられる。本研究ではスループットが高い結晶成長手法であるパルススパッタ堆積法を用いて作製した半導体薄膜と金属薄膜を組み合わせることで表面プラズモンによる増強効果を利用して高効率緑色発光素子の実現に必要な手法を確立した。

研究成果の概要（英文）：Improvement in efficiencies of green light emitting devices is highly required. Surface plasmon is a promising candidate to solve this problem. In this research, the use of semiconductors fabricated by pulsed sputtering deposition techniques and metal films enable us to improve efficiencies of green light emitting devices.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合 計
2010年度	6,200,000	1,860,000	8,060,000
2011年度	5,600,000	1,680,000	7,280,000
年度			
年度			
年度			
総 計	11,800,000	3,540,000	15,340,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：III 族窒化物半導体

1. 研究開始当初の背景

InGaN 青色 LED の短波長化により緑色 LED が開発されているが、その内部量子効率は青色 LED の効率と比較して急激に低下している。さらに、AlInGaP 系 LED においても緑色領域で発光効率の低下が著しい。そのため、高効率緑色 LED の実現には内部量子効率の向上が本質的に重要な課題となっている。内部量子効率向上の観点からは、これまでに青色域に発光波長を持つ InGaN/GaN 量子井戸構造の上部に Ag 薄膜を蒸着する構造が提案され、Ag の蒸着によりフォトルミネッセンス (PL) 強

度が 14 倍にも増大することが報告されている。この現象は Ag 表面での表面プラズモンと量子井戸に発生した電子-正孔対のカップリングによって生じる内部量子効率の増大に起因している。PL 強度増大効果が現れる波長域は、金属の表面プラズモンエネルギーで決定され、Ag の場合には表面プラズモンエネルギーが～3 eV(～410 nm)であることから、青色域において顕著な PL 強度の増大が出現することになる。そのため、内部量子効率の向上が求められている緑色域で有効な表面プラズモンによる増大効果の実現が必要と

なる。さらに、これまで報告されている構造では増大効果が特定の波長でしか出現しない。また、従来提案されている表面プラズモン増大効果が得られる構造は、LED 構造への組み込みが困難であるのが現状である。

2. 研究の目的

本研究では上記背景を踏まえて、表面プラズモンによる発光強度増大効果を利用して緑色域における内部量子効率の向上を実現し、これまで困難であった素子構造への組み込みを目的とした。これまでは、増大効果は従来特定の波長のみの現象であるが、混晶層の導入により任意の波長での発光強度増大効果を実現する。さらに、周期ナノパターンの導入による異常透過効果を利用して外部量子効率の向上も図り、プラズモニクスを応用した新たな素子を開発することを目指した。

3. 研究の方法

InGaN の結晶成長にはパルススパッタ堆積 (PSD) 法を用いた。緑色域での発光波長に対応する InGaN を相分離を起こすことなく作製した後、表面プラズモンの効果をフォトルミネッセンス強度を比較することで行った。増強効果が最大となる構造については FDTD (時間領域差分) 法を用いて探索した。

発光波長が緑色域となるように設計した InGaN/GaN 量子井戸に AlGaIn を成長し、その上に金属薄膜を形成する。フォトルミネッセンス (PL) により、金属薄膜を用いた場合と何も用いない場合、あるいは他の金属を用いた場合の発光強度の比較を行うことにより、金属薄膜を用いた場合の発光強度増大を評価する。特に、これまでに III 族窒化物への応用に関して報告例がある Ag との比較を行い、緑色域における金属薄膜の優位性を示したい。

また、表面プラズモンによる内部量子効率向上効果は AlGaIn 層の膜厚により変化し、膜厚が薄いほど効果は大きくなる。そこで、表面プラズモンと量子井戸で発生した電子 - 正孔対の相互作用が十分小さくなる程度に厚い AlGaIn 層を作製し、金属薄膜による反射も考慮して、この構造を基準とする。それに対して、AlGaIn 層の膜厚を薄くしていくことでフォトルミネッセンスの発光強度増大を確認し、金属薄膜による反射効果と内部量子効率向上効果の切り分けをして、内部量子効率向上効果を抽出して評価を行う。さらに、AlGaIn 成長との兼ね合いにより決定されると思われる内部量子効率向上効果が最大となる最適な膜厚を決定する。

4. 研究成果

スループットが高く低温成長が可能な手法であるパルススパッタ堆積 (PSD) 法を用い

てサファイア基板上へ InGaIn の成長を行なった。成長した InGaIn 薄膜の XRD 測定を行ったところ、全組成領域において InGaIn の明瞭な 0002 回折ピークが観測された。また、全組成領域において回折ピークはシングルピークであり、顕著な相分離は起こっていないことが示唆された。これは PSD 法の様な低温成長手法の特徴と考えられる。また、作製した InGaIn 薄膜の RHEED 像は明瞭なストリークパターンを示し、良質なエピタキシャル薄膜の成長が実現していることが確認された。これらの InGaIn 薄膜の光学特性を PL 測定によって調べたところ、明瞭なバンド端近傍からの発光が観測され、光学的にも優れたものであることが分かった。以上の結果から、表面プラズモンによる増強効果を確認するために必要な緑色発光を示す InGaIn を得ることができた。

続いて、表面プラズモンの制御に必要となる AlGaIn について検討を行なった。AlGaIn 薄膜の RHEED (反射高速電子回折) 像を図 1 に、AFM (原子間力顕微鏡) 像を図 2 に示す。

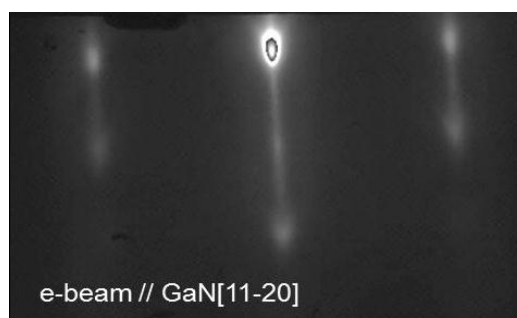


図 1. AlGaIn の RHEED 像

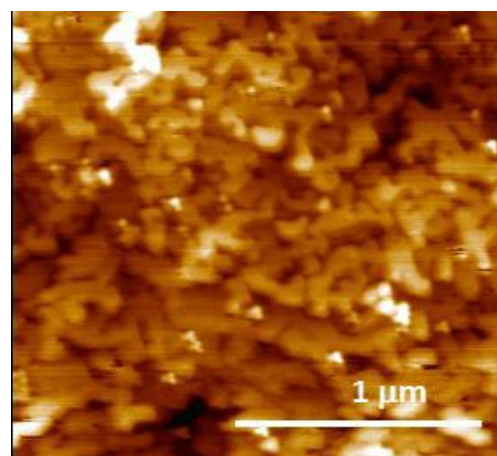


図 2. AlGaIn 表面の AFM 像

RHEED 像はスポットストリークパターンとなり、AlGaIn 表面は荒れていることがわかった。AFM 像を見てもステップ-テラス構造は見ら

れず、RMS 値で 1.0nm という荒れた表面を形成していることがわかった。これは、Ga に加えて Al を同時にスパッタしたことにより、基板へ到達する活性化された窒素原子の量が金属原子に対して増えたため、AlGaIn 成長の時に窒素リッチ条件になってしまったためであると考えられる。よって、ストイキオメトリ条件にするためには、AlGaIn を成長する際に、活性窒素供給量を小さくする必要があるのではないかと考えた。活性窒素供給量を減少させて成長した AlGaIn/GaN ヘテロ構造の RHEED 像を図 3 に AFM 像を図 4 に示す。

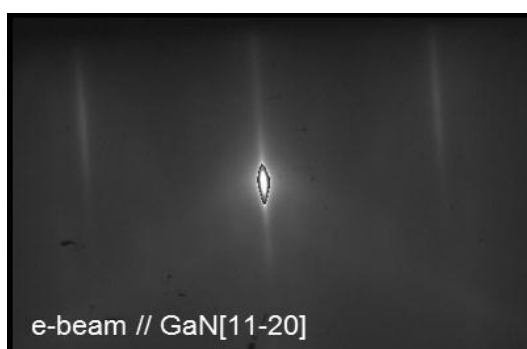


図 3. AlGaIn の RHEED 像

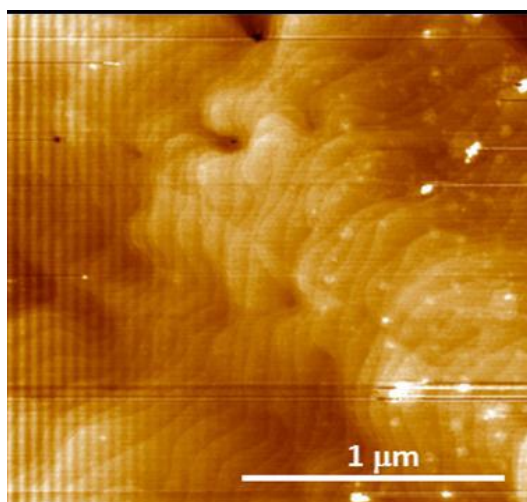


図 4. AlGaIn 表面の AFM 像

これらの図を見ると、RHEED 像はシャープなストリークパターンを示しており、AFM 像からは GaN と同様ステップ-テラス構造が観測され、AlGaIn 表面の平坦性が高い AlGaIn が成長していることがわかる。さらに、Al 供給量を変化させ、様々な Al 組成の AlGaIn の成長を試みた。成長条件を最適化することで、同様のステップ-テラス構造が確認され、Al 組成の異なる平坦な AlGaIn を成長できることがわかった。

パルススパッタ堆積(PSD)法は原料を高いエネルギー状態で成長基板へ供給可能であることから、低温でのエピタキシャル成長が可能な手法でもある。このような特徴を有する PSD 法を用いてサファイア基板上への LED 構造の作製を行なった。初期層となる GaN はドーピングによる導電性制御が必要となることから残留キャリアを低減した成長が必須となるが、PSD 法においても他の III 族窒化物半導体の結晶成長手法と同様に十分に低い残留キャリア密度を達成できることが明らかとなった。そこで、GaN 成長時にドーピングを行って n 型 GaN 層を作製した。このときのキャリア密度と移動度の関係は、III 族窒化物半導体の結晶成長手法として用いられている有機金属気相成長(MOCVD)法などで成長された GaN での関係と一致することが確かめられ、PSD 法で成長した GaN は他の結晶成長の場合と同様に高品質な特性を有していることが分かった。引き続き InGaIn および p 型 GaN を成長して LED 構造を形成した。作製した試料にフォトリソグラフィー、ドライエッチングを用いてメサ構造を形成し、p 型 GaN、n 型 GaN にオーミック電極を形成して LED 構造を作製した。さまざまな In 組成を有する LED の発光特性を評価したところ、RGB に対応する発光が得られ、フルカラー LED の作製が PSD 法で実現可能であることが分かった。In 組成が高い領域では InGaIn の相分離が生じやすいことが知られているが、明瞭な発光が確認されていることから、LED 作製時においても InGaIn の相分離反応は抑制されていることが分かる。これは、PSD 法の特徴である低温成長法を活かした結果であると考えられる。

さらに、表面プラズモンによる増強効果を見積もるために、FDTD(時間領域差分)法を用いて金属/GaN 系で電場強度分布を計算した。金属薄膜の膜厚は 100nm とし、金属/GaN 界面に光源を設置した。この条件のもとで、光源の各波長に対して増強される電場強度を計算した。青色領域に対応する 450nm における電場強度は 2.2V/m であり、赤色領域に対応する 650nm における電場強度は 3.0V/m であった。一方、緑色領域に対応する 550nm における電場強度は 5.1V/m となり、表面プラズモンエネルギーから見積もった予測と一致し、緑色領域で効果的な増強効果が得られることが分かった。

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 井上 茂，太田 実雄，小林 篤，藤岡 洋、

金属基板上への窒化物半導体低温成長、
日本結晶成長学会誌、査読有、38 巻、2012
年、249-254

〔学会発表〕（計 3 件）

- ① 丹所 昂平, 井上 茂, 太田 実雄, 藤岡 洋、
PSD 法による AlGa_N/Ga_N HEMT 構造の特性、
第 59 回応用物理学関係連合講演会、2012
年 3 月 16 日、早稲田大学
- ② 丹所 昂平, 田村 和也, 井上 茂, 太田 実
雄, 藤岡 洋、PSD 法により作製した
AlGa_N/Ga_N ヘテロ構造の電気特性、第 72
回応用物理学学会学術講演会、2011 年 9 月
1 日、山形大学
- ③ 田村 和也, 太田 実雄, 丹所 昂平, 小林
篤, 井上 茂, 藤岡 洋、フルカラー InGa_N
発光ダイオードの作製と評価、第 58 回
応用物理学関係連合講演会、2011 年 3 月
24 日、神奈川工科大学

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

井上 茂 (INOUE SHIGERU)
東京大学・生産技術研究所・特任助教
研究者番号：10470113

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：