

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 19 日現在

機関番号：15501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760012

研究課題名(和文) 高品質半極性面 InGaN テンプレート上 LED の光学・発光特性の解明

研究課題名(英文) Elucidation of optical and electrical luminescence characteristics of light-emitting diodes fabricated on high-quality semipolar InGaN template

研究代表者

岡田 成仁 (Okada, Narihito)

山口大学・理工学研究科・助教

研究者番号：70510684

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000 円、(間接経費) 1,050,000 円

研究成果の概要(和文)：本研究課題により、LEDの性能を最大限引き出すことのできる非極性面 InGaN テンプレート上 LED の作製及び評価を行った。偏光特性を制御することにより、LED を用いた液晶ディスプレイ・レーザーダイオードの効率を上げることのできる InGaN テンプレートを用いることによって偏光特性を自在に制御可能であることを見出した。また、現在の LED の問題となっている高電流注入時の効率低下において InGaN テンプレートは効果的であり、高電流注入時に InGaN テンプレート上に作製した LED は従来型 LED の出力を最大で 6 倍まで高めることに成功した。

研究成果の概要(英文)：This research project aims to fabricate and evaluate light-emitting diodes (LEDs) grown on a semipolar InGaN template enabling to realize state-of-the-art LED. Efficiency of a liquid crystal display using LEDs and laser diodes (LDs) can be improved by controlling light-polarization characteristics; it was revealed that the semipolar InGaN templates can control the light-polarization for the LEDs and LDs. Although LEDs recently have a problem of efficiency droop at a high-injection current, InGaN template is also effective to enhance the light output power of LED. The light output power of the LED fabricated on the InGaN template is approximately 6 times higher than that of a conventional LED at a high injection current.

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：発光ダイオード 窒化ガリウムインジウムテンプレート 偏光特性

1. 研究開始当初の背景

III 族窒化物半導体は、青色から近紫外線、さらに緑色 LED の実用化がなされている。しかしながら、未だ緑色 LED の外部量子効率¹は 30% 程度と、青色 LED の 85%、赤色 LED の 50% などと比較すると低く、その改善は急務である。現在、緑色 LED の効率を青色、赤色 LED まで引き上げる試みが世界中の研究機関で行われている。

LED を作製するためには、一般的に GaN を下地層、InGaN を発光層に用いる。GaN と InGaN の格子定数が異なるため、InGaN 発光層への欠陥導入による効率低下の問題がある。また、LED を作製する場合は、通常、極性面と呼ばれる c 面 GaN を下地層に用いている。このとき、GaN よりも InGaN の格子定数が大きい²ため、InGaN 発光層には圧縮ひずみ³が加わる⁴ことにより発生する⁵ ピエゾ電界による効率低下の問題がある。効率低下は⁶ ピエゾ電界により注入された電子と正孔の発光再結合確率が低下することに起因する。この InGaN 発光層への欠陥導入・⁷ ピエゾ電界の影響は緑色 LED (長波長 LED) について特に深刻な問題となる。本研究課題では山口大独自の技術⁸を利用し高品質半極性面 InGaN を実現し、上記問題を解決する。

2. 研究の目的

サファイア加工基板側壁からの選択成長による高品質非極性面 GaN の成長が可能であり、窒化物半導体の問題点である⁹ ピエゾ電界を低減できることが証明されてきた。しかし、非極性面においても GaN 下地層と InGaN 発光層の格子定数が異なることに起因する LED の効率低下の問題は解決できなことが分かってきた。よって、LED の性能を最大限引き出すことのできる InGaN テンプレートと非極性面の組み合わせが有望となる。本研究課題は、サファイア加工基板上非極性面の成長方法による高品質半極性面 InGaN テンプレートの作製を軸に、LED の光学・発光特性の¹⁰ 解明へと展開し、将来的に¹¹ 広範囲の波長領域に対応する高効率な LED を提供するものである。

3. 研究の方法

(1) MOVPE 装置による半極性面 InGaN 成長及び成長機構解明

InGaN テンプレートは有機金属化合物気相成長 (MOVPE) 法により成長を行う。成長条件である成長温度 (600 ~ 900 度)、成長圧力 (50 ~ 760 Torr)、V 族 III 族原料供給比 (100 ~ 10000) を変化させ、InGaN の結晶配向性、不純物濃度、成長モードを評価する。

(2) InGaN 発光層の欠陥密度評価と発生機構の解明

発光層である InGaN/GaN 多重量子井戸の結晶品質の評価には XRD、AFM、TEM を用い、欠陥密度を定量的に評価する。このとき、GaN テンプレート上と InGaN テンプレート

上の発光層の欠陥密度を比較し、InGaN テンプレートの有用性を検証する。また、XRD により発光層にかかる応力を測定し、理論計算による欠陥発生¹²の臨界膜厚を計算する。欠陥密度の実験値と計算結果を比較し、フィードバックしながら、欠陥の発生機構の解明を進める。

(3) 半極性面 InGaN テンプレート上発光層及び LED の評価

InGaN テンプレート上発光層の評価

PL 測定により半極性面 InGaN テンプレート上発光層の光学評価を行う。低温 PL による内部量子効率を見積もり、偏光子を使用して表面の偏光特性を評価する。半極性面上の偏光特性は極性面や無極性面にはない、In 組成によって A バンド B バンド (価電子帯の上部に位置するバンド) がスイッチングする偏光特性を示す窒化物半導体でも興味深い材料系である。下地層が半極性面 InGaN となれば、発光層に加わる歪が GaN テンプレートと異なることから新たな偏光特性が期待できる。

LED の評価

高品質半極性 InGaN テンプレート上 LED をプロービング装置及び積分球により評価する。最終的に LED をチップ化し、InGaN テンプレート上 LED について、外部量子効率、リーク電流、ドループ効率、動作電圧などを評価し、半極性 InGaN テンプレートの有用性を実証する。

4. 研究成果

(1) InGaN 下地層の成長

InGaN の選択横方向成長による高品質化及び結晶評価の実験において、InGaN の高品質化には必ずしも選択横方向成長は必要でないことを見出した。すなわち、高品質非極性面 GaN 上に InGaN を成長させた場合、In 組成と膜厚をうまくコントロールすることによって、新たに発生する欠陥を InGaN/GaN 界面でストップさせることに成功した。その成長条件は In 組成 10% 未満、膜厚 1 μm 程度である。図 1 は In 組成 10%、膜厚 1 μm の InGaN と GaN 界面の TEM 像である。界面において発生している欠陥は上方向に伝搬していないことが分かる。

これによって、高品質な InGaN を当初の研究計画より簡便化方法で得ることができるようになり、研究速度を上げることに成功した。

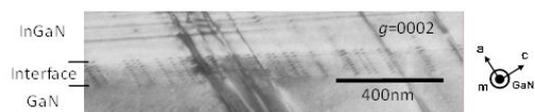


図 1 In 組成 10%、膜厚 1 μm の InGaN と GaN 界面の TEM 像

(2) 非極性面 LED の偏光特性

上記高品質 InGaN テンプレート上に LED の作製とその諸特性を調べた結果、InGaN の膜厚と組成を変化させることによって、LED の変更特性を自在に制御することが可能となった。これは発光層にかかる歪を InGaN テンプレートによって変えていることに起因する。偏光は A バンドと B バンドの発光ピークエネルギーの差 (Energy separation: E) より求めることができる。図 2 は E の膜厚依存性を示したグラフである。この結果は液晶を用いた LED ディスプレイの高効率化を可能にし、また、LED の閾値電流密度を下げる可能性を秘めている。この結果は、これまでに、活性層に加わる歪によって、非極性面の偏光特性が制御可能であるという理論解析が行われてきたが、実際に実用レベルで可能であることを世界で先駆けて発表した成果である。

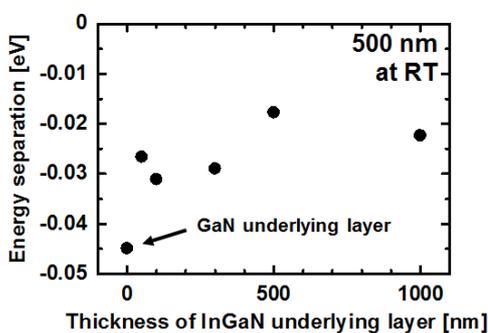


図 2 E の膜厚依存性

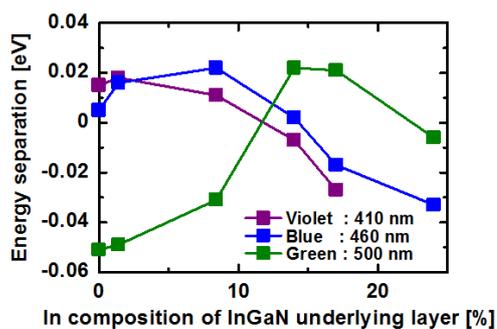


図 3 E の InGaN 下地層の In 組成依存性

(3) 非極性面緑色 LED の高効率化

(1) で述べたとおり、比較的高品質の InGaN 層を得ることが容易になったため、構造の最適化と合わせて、緑色 LED の作製を行った。図 4 に InGaN 下地層を用いて作製した LED の InGaN 下地層を挿入していない場合の電ロトルミネッセンス (EL) 強度を 1 として規格化した EL 強度の下地層 In 組成依存性を示す。MQW の In 組成を一定とし、InGaN 下地層の In 組成を 1.7% から 7.7% まで変化させた。LED の発光層は挿入図に示すように、InGaN/GaN 多重量子井戸構造 (MQWs) を用いた。InGaN 下地層を用いることによる発光強度の向上を確認した。また、In 組成が 2.1%

において最も発光強度が強くなった。これは、InGaN 下地層の挿入による MQWs 内に発生する歪みや欠陥密度の低減の作用と In 組成の増加による結晶品質の悪化や下地層での吸収の作用の兼ね合いによるものだと考えられる。構造最適化にはホールブロッキング層 (HBL) を用いた。図 5 に HBL を用いて作製した LED、HBL を挿入していない場合の LED 及び従来の LED の EL 強度の注入電流依存性を図 5 に示す。HBL の Al 組成は 24.8% を用いている。HBL を利用した LED の発光層は順方向電流低減を図るために、InGaN/GaN 単一量子井戸構造 (SQW) を用いている。図 5 より、HBL を挿入することによる発光強度の向上を確認した。これは、Al 組成の増加により HBL 障壁高さが高くなり、正孔のオーバーフローがより抑止できているためと考えられる。InGaN 下地層と HBL を組み合わせた LED の 20 mA 電流注入時において、発光強度は従来の LED と比較して約 3 倍向上し順方向電圧は 3.2 V であった。これは InGaN テンプレートが高品質であること、緑色 LED には InGaN テンプレートが有用であることを証明するものである。特に高電流注入時における効率低下を改善した。100 mA 電流注入時には従来の LED に比べ約 6 倍の発光強度を得ることに成功した。この結果は、現在問題となっている LED は高電流注入時

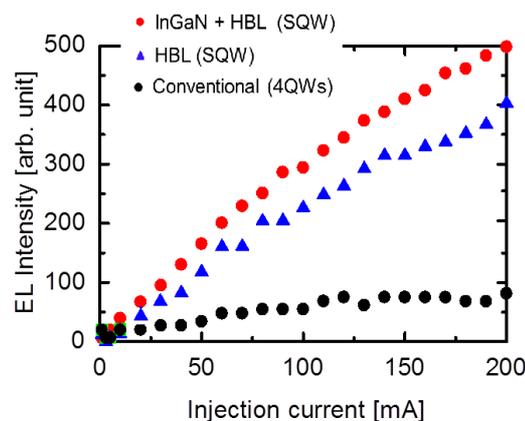


図 4 InGaN 下地層を用いて作製した LED の EL 強度の注入電流依存性

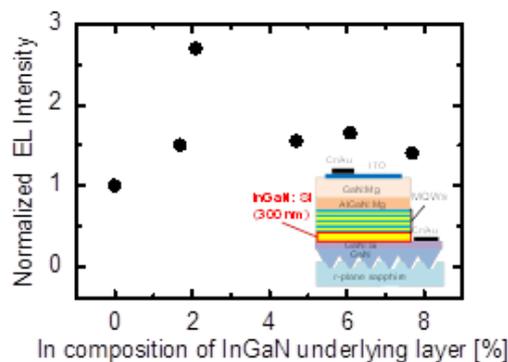


図 5 各構造における EL 強度の注入電流依存性

の低効率化を非極性面 InGaN テンプレートが問題可決することできる可能性を示している」と期待している。

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5件)

N. Okada, A. Ishikawa, K. Yamane, K. Tadatomo, U. Jahn, and H. T. Grahn, "Generation of dislocation clusters by glide m-planes in semipolar GaN layers" Phys. Stat. Solidi (a), 査読有, 211, No. 4, 2014, 736-739

DOI: 10.1002/pssa.201300465

M. Ueno, Y. Hashimoto, K. Yamane, N. Okada, and K. Tadatomo, "Growth of semipolar {11-22} GaN using SiNx intermediate layer by hydride vapor phase epitaxy" Phys. Stat. Solidi (c), 査読有, 11, No. 3-4, 2014, 557-560

DOI: 10.1002/pssc.201300520

K. Nakao, M. Haziq, Y. Okamura, K. Yamane, N. Okada, and K. Tadatomo, "Characterization of semipolar {11-22} light-emitting diodes using a hole blocking layer" Phys. Stat. Solidi (c), 査読有, 11, No. 3-4, 2014, 775-777

DOI: 10.1002/pssc.201300511

K. Uchida, S. Miyoshi, K. Yamane, N. Okada, K. Tadatomo, and N. Kuwano, "Evaluation of {11-22} Semipolar Multiple Quantum Wells Using Relaxed Thick InGaN Layers with Various In Compositions" Jpn. J. Appl. Phys. 査読有, 52, 2013, 08JC07.

DOI: 10.7567/JJAP.52.08JC07

H. Furuya, K. Yamane, N. Okada, and K. Tadatomo, "Self-separated large freestanding semipolar {11-22} GaN films using r-plane patterned sapphire substrates" Jpn. J. Appl. Phys. 52, 2013, 08JA09.

DOI: org/10.7567/JJAP.52.08JA09

[学会発表](計57件)

招待講演(計12件)

Y. Hashimoto, M. Koyama, T. Inagaki, K. Yamane, N. Okada, K. Tadatomo, "Evaluation of Heteroepitaxially Grown Semipolar {20-21}GaN on

Patterned Sapphire Substrate" International Symposium on Optomechatronic Technologies 2013 (ISOT2013), Ramada Plaza Jeju Hotel, Jeju Island, Korea, Oct. 28-30, 2013. (Invited oral Presentation)

K. Tadatomo, N. Okada, K. Yamane, H. Furuya, Y. Hashimoto, "Advancement in Future Applications with III-Nitrides by Fusion Technology between Epitaxy and Processing", International Workshop on Ultra-Precision Processing for III Nitride Semiconductor and Devices (WUPP for Nitride), Santa Barbara, California, USA. Oct. 16-18, 2013. (Invited oral presentation)

N. Okada, H. Furuya, Y. Hashimoto, K. Yamane, K. Tadatomo, "Hydride vapor phase epitaxy of semipolar GaN using GaN templates grown on patterned sapphire substrates", 8th International Workshop on Bulk Nitride Semiconductors (IWBNS-VIII), Kloster Seeon, Bavaria, Germany, Sept. 30-Oct. 5, 2013. (Invited oral presentation)

K. Yamane, Y. Hashimoto, N. Okada, K. Tadatomo, "Improvement on Flatness of GaN Layer and Utilization Efficiency of Ga Source by Flow Modulation on Hydride Vapor Phase Epitaxy", 8th International Workshop on Bulk Nitride Semiconductors (IWBNS-VIII), Kloster Seeon, Bavaria, Germany, Sept. 30-Oct. 5, 2013. (Invited oral presentation)

N. Okada, K. Yamane, K. Tadatomo, "Progress in semipolar GaN on patterned sapphire substrates by HVPE", JSAP-OSA Joint Symposia 2013, 17p-M6-2, Doshisya University, Kyoto, Japan, Sept. 16-18, 2013. (Invited oral presentation)

K. Tadatomo, K. Yamane, N. Okada, H. Furuya, and Y. Hashimoto "Semipolar GaN substrate grown on patterned sapphire substrate by hydride vapor phase epitaxy" DPG Spring Meeting Deutschen Physikalischen Gesellschaft (Germany, Regensburg: Regensburg University) 2013.3.10

K. Tadatomo, N. Okada, K. Yamane, H. Furuya, and Y. Hashimoto "Semipolar GaN Growth on Patterned Sapphire Substrate by Hydride Vapor Phase Epitaxy" SPIE, Photonics West 2013 SPIE (the international society for optics and photonics) Paper No.8625-2 (USA, California: Mscone Center) 2013.2.2

岡田成仁「非極性面 LED の現状と課題」
固体光源分科会、視覚・色・光環境分科
会 公開研究会「照明用 LED の開発と応
用の最新技術動向」(2013.1.17) 日本大学
理工学部, 東京都

K. Tadatomo, N. Okada, K. Yamane, H.
Furuya “Growth of free standing Semipolar
GaN on Patterned Sapphire Substrates by
Hydride Vapor Phase Epitaxy” Intensive
Discussion on Crystal Growth of Nitride
Semiconductors (Sendai:Tohoku
University) 2012.10.22

岡田成仁, 上野元久, 内田健充, 古家大士,
山根啓輔, 只友一行:「ハイドライド気相
成長による非極性面 GaN の低転位化メ
カニズム」(講演奨励賞受賞記念講演)平
成 24 年秋季第 73 回応用物理学会関係連
合学術講演会, 12p-H9-8 (2012.9.12) 愛
媛大学, 愛媛県

K. Tadatomo, N. Okada, K. Yamane, H.
Furuya “Growth of Semipolar GaN on
Patterned Sapphire Substrates by Hydride
Vapor Phase Epitaxy” 2012
German-Japan-Spanish Joint Workshop on
Frontier Photonic and Electronic Materials
and Devices
(Germany, Berlin : Japanese-German
Center Berlin) 2012.7.21

只友一行, 岡田成仁, 山根啓輔:「ハイド
ライド気相成長法による非極性面 GaN の
厚膜成長」第 137 回結晶工学分科会研究
会 (2012.6.15), 京都テルサ, 京都.

国際会議 (計 20 件)

Y. Okamura, K. Nakao, N. Okada, K.
Yamane, and K. Tadatomo, “Evaluation of
the Optical Polarization Properties in
Semi-Polar {11-22} LEDs” Conference on
LED and Its Industrial Application '14
(LEDIA '14), LED4-12, Pacifico Yokohama,
Yokohama, Japan, Apr. 22-24, 2014. (Oral
presentation)

N. Okada, M. Haziq, K. Yamane, Y. Yamada,
and K. Tadatomo, “Relationship between
V-Pit Diameter and Potential Barrier Height
in InGaN Based Light-Emitting Diodes”
Conference on LED and Its Industrial
Application '14 (LEDIA '14), LED4-14,
Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan, Apr.
22-24, 2014. (Oral presentation)

Y. Denpo, Y. Mitsui, K. Yamane, N. Okada,
and K. Tadatomo, “Fabrication of InGaN
Based Light-Emitting Diode Using
Freestanding {20-21} GaN Substrate”
Conference on LED and Its Industrial

Application '14 (LEDIA '14), LEDp6-22,
Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan, Apr.
22-24, 2014. (Poster presentation)

T. Inagaki, K. Yamane, Y. Hashimoto, M.
Koyama, N. Okada, K. Tadatomo,
“Characterization of structural defects in
{20-21} GaN Layers on {22-43} Patterned
Sapphire Substrates”, JSAP-OSA Joint
Symposia 2013, 17p-M6-7, Doshisya
University, Kyoto, Japan, Sept. 16-18, 2013.
(Oral presentation)

N. Okada, T. Yamamoto, K. Yamane, K.
Tadatomo, “Analysis of Surface Potential of
Various Oriented GaN layers via Kelvin
Force Microscopy”, JSAP-OSA Joint
Symposia 2013, 19p-PM4-19, Doshisya
University, Kyoto, Japan, Sept. 16-18, 2013.
(Poster presentation)

Y. Hashimoto, H. Furuya, M. Ueno, M.
Koyama, K. Yamane, N. Okada, K.
Tadatomo, “Improvement in semipolar GaN
substrate grown by Hydride Vapor Phase
Epitaxy”, JSAP-OSA Joint Symposia 2013,
16p-PM1-7, Doshisya University, Kyoto,
Japan, Sept. 16-18, 2013. (Poster
presentation)

K. Yamane, Y. Hashimoto, N. Okada, K.
Tadatomo “Fabrication of freestanding
{20-21} GaN substrates by HVPE and LED
application” 10th International Conference
on Nitride Semiconductors (ICNS-10),
A6.05, Gayload National Hotel and
Convention Center, Washington DC
Metropolitan Area, USA, August 25-30,
2013. (Oral presentation)

N. Okada, A. Ishikawa, K. Yamane, K.
Tadatomo, U. Jahn, H. T. Grahn “Generation
of Defects by Glide m-planes in Semipolar
GaN Layers” 10th International Conference
on Nitride Semiconductors (ICNS-10),
AP3.03, Gayload National Hotel and
Convention Center, Washington DC
Metropolitan Area, USA, August 25-30,
2013. (Poster presentation)

Y. Hashimoto, H. Furuya, M. Ueno, K.
Yamane, N. Okada, K. Tadatomo
“Improvement in semipolar {11-22} GaN
grown by Hydride Vapor Phase Epitaxy”
10th International Conference on Nitride
Semiconductors (ICNS-10), AP3.06,
Gayload National Hotel and Convention
Center, Washington DC Metropolitan Area,
USA, August 25-30, 2013. (Poster
presentation)

M. Ueno, Y. Hashimoto, K. Yamane, N.

Okada, K. Tadamoto “Reduction of Defects in Semipolar {11-22} GaN Using SiNx Intermediate layer by Hydride Vapor Phase Epitaxy” 10th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-10), AP3.12, Gayload National Hotel and Convention Center, Washington DC Metropolitan Area, USA, August 25-30, 2013. (Poster presentation)

K. Nakao, K. Uchida, K. Yamane, N. Okada, K. Tadamoto “Improvement in Semipolar {11-22} Light-Emitting Diodes Using Combination of InGaN Underlying Layer and Hole Blocking Layer” 10th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-10), BP3.30, Gayload National Hotel and Convention Center, Washington DC Metropolitan Area, USA, August 25-30, 2013. (Poster presentation)

N. Okada, H. Furuya, Y. Hashimoto, K. Yamane, and K. Tadamoto, “Hydride vapor phase epitaxy of semipolar GaN using GaN templates grown on patterned sapphire substrates” (poster) E-MRS 2013 SPRING MEETING, L P1-1, 2013.5.28, 2013.5.27-31, Congress Center - Strasbourg, Strasbourg, France

N. Okada, K. Uchida, K. Yamane, and K. Tadamoto, “{11-22} Semipolar Light Emitting Diodes Using Relaxed Thick InGaN Layers with Various In Compositions and Thickness” (oral) E-MRS 2013 SPRING MEETING, L 1-3, 2013.5.27, 2013.5.27-31, Congress Center - Strasbourg, Strasbourg, France

T. Inagaki, K. Yamane, Y. Hashimoto, M. Koyama, N. Okada, K. Tadamoto, “Transmission Electron Microscope Characterization on {20-21} GaN Layers on Patterned Sapphire Substrates”, The 6th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors (APWS2012), Fullon Hotel Danshuei Fishermen’s Wharf, Tamsui, New Taipei City, Taiwan, May 12-15. (Oral presentation)

国内会議 (計 25 件)

傳寶裕晶, 光井勇祐, 山根啓輔, 岡田成仁, 只友一行: 「自立{20-21}GaN 基板を用いた InGaN 系 LED 構造の作製」2014 年春季第 61 回応用物理学会関係連合学術講演会 20a-PG1-10 (2014.3.17-20) 青山学院大学, 神奈川県

橋本健宏, 山根啓輔, 岡田成仁, 只友一行: 「HVPE の成長条件が厚膜{20-21} GaN の結晶性に与える影響」2014 年春季

第 61 回応用物理学会関係連合学術講演会, 18p-E13-10 (2014.3.17-20) 青山学院大学, 神奈川県

稲垣卓志, 橋本健宏, 山根啓輔, 岡田成仁, 只友一行: 「ハイドライド気相成長法による半極性面 GaN の再成長」2014 年春季第 61 回応用物理学会関係連合学術講演会, 18p-E13-9 (2014.3.17-20) 青山学院大学, 神奈川県

上野 元久, 山根 啓輔, 岡田 成仁, 只友一行: 「ハイドライド気相成長法を用いた成長条件の最適化による半極性面 {11-22}GaN の基底面積層欠陥の低減」2014 年春季第 61 回応用物理学会関係連合学術講演会, 18p-E13-8 (2014.3.17-20) 青山学院大学, 神奈川県

〔産業財産権〕
○出願状況 (計 3 件)

名称: 自立基板の製造方法
発明者: 古家大士, 東正信, 只友一行, 岡田成仁, 山根啓輔
権利者: 国立大学法人山口大学
種類: 特許
番号: PCT/JP2013/001111
出願年月日: 2013/02/26
国内外の別: 国外

名称: 半導体装置の製造方法
発明者: 古家大士, 東正信, 只友一行, 岡田成仁, 山根啓輔
権利者: 国立大学法人山口大学
種類: 特許
番号: PCT/JP2013/001112
出願年月日: 2013/02/26
国内外の別: 国外

名称: 窒化ガリウム結晶自立基板およびその製造方法
発明者: 古家大士, 東正信, 只友一行, 岡田成仁, 山根啓輔
権利者: 国立大学法人山口大学
種類: 特許
番号: PCT/JP2013/56940
出願年月日: 2013/03/13
国内外の別: 国外

〔その他〕
ホームページ等
<http://device.eee.yamaguchi-u.ac.jp/>

6. 研究組織
(1) 研究代表者
岡田 成仁 (OKADA Narihito)
山口大学・大学院理工学研究科・助教
研究者番号: 70510684