

令和3年度 学位論文内容要旨

論文題目

〈邦 文〉

III 族窒化物ナノワイヤの結晶成長及びそれを用いた発光デバイスに関する研究

〈欧 文〉

Study on crystal growth and device fabrication of III-nitride nanowire-based optoelectronics

名城大学大学院 理工学研究科電気・情報・材料・物質工学専攻博士後期課程

氏 名

曾根直樹

【研究背景】

III 族窒化物半導体結晶を用いた可視光発光デバイスは、現代社会の中で欠かすことのできない技術に成長した。青色発光ダイオード (Light emitting diode: LED) の外部量子効率¹は、84.3% (444nm, 20mA) という低電流領域で非常に高い値が報告されているが、高電流領域では効率ドロップ現象により効率が低下するという問題がまだ残る。効率ドロップは、量子井戸内のキャリア密度を下げることで改善できる。キャリア密度を低減する方法に量子井戸層の厚膜化があり、ドロップ抑制効果が実証されている。しかし、現在市販されている c 面 GaN 結晶を用いた青色 LED は、結晶の非対称性による極性が生じるため、GaInN 量子井戸層に内部電界が発生し、量子井戸層を厚くすると発光効率が低下する。レーザダイオード (Laser diode: LD) においては、現状の青色 LD のエネルギー変換効率は 40% 程度に留まっている。効率向上には閾値電流の低減や微分量子効率の改善、そして駆動電圧の低減が重要となるが、現在使われる量子井戸層は二次元薄膜構造のため、光閉じ込め係数が低く、p 型クラッド層は高抵抗/高光吸収のため、さらなる効率向上は難しい。

近年、三次元ナノサイズの発光デバイスが大きな注目を集めている。特に、直径が数百 nm の柱状結晶からなる GaN ナノワイヤは、現状の二次元薄膜構造よりも多くの利点があり、LED やレーザダイオード (Laser diode: LD) など、さまざまな用途の研究が進められている。直径がサブミクロンサイズの柱状結晶は、下地層から伝播する貫通転位の多くが選択成長用マスクで止まり、マスク開口部から柱状結晶に延びる転位も柱状結晶底部で側面方向に曲がるため、上部では無転位にできる。また、柱状 n 型 GaN コアを c 軸方向に成長させた場合、活性層を無極性面にできるナノワイヤは、量子閉じ込めシュタルク効果 (quantum-confined Stark effect: QCSE) を抑制できるため量子井戸層の厚膜化が可能で、効率ドロップを改善できる。LD においては、3 次元に形成された活性層によって、共振器体積に対する活性層体積を増大できるため、光閉じ込め効率を向上できる可能性があり、またビームパターン面積を広くできるため、瞬時光学損傷の回避も期待できる。

【研究課題】

ナノワイヤを用いた発光デバイスは、上記のような利点があるが、報告されている青色領域のナノワイヤ LED の発光効率は、実用化されている二次元 c 面 LED より低い。原因の一つは、p 型 GaN シェル層を覆う ITO 電極での光吸収ロス等による光取り出し効率の低下である。三次元形状により活性層面積が増加する反面、吸収ロスが増加するため、光取り出し効率向上には、光吸収ロスを最小化する柱状結晶の配置、チップ構造が必要である。ナノワイヤ LD 実現の課題も多く、実現には、三次元活性層に高電流を均一に注入する必要があるが、ITO 電極を用いて高アスペクト比のナノワイヤへの均一電流注入は非常に困難である。そのため、コアシェル型ナノワイヤ LD の報告はほとんどない。さらには、二次元薄膜 GaN 成長に対し、三次元 GaN ナノワイヤの成長は知見がまだ少ないため、成長メカニズムも未解明な部分が多く、結晶品質の最適化が進んでいない。また評価手法が限定されるため、表面平坦性、発光層構造、ドーピング濃度等の評価が難しいという問題がある。

従って、ナノワイヤ発光デバイスの性能向上には、まず、ナノワイヤ結晶の成長メカニズムの理解と、ナノワイヤに適用可能な評価手法の開発という重要課題の解決と共に、ナノワイヤ LED, LD に最適なデバイス作製のために、結晶構造、不純物ドーピング制御が重要となる。

【本研究の目的と結果概要】

我々のグループでは、これまでコアシェル型ナノワイヤの結晶成長とそれを用いた発光デバイスの研究を進めてきた。前述した課題の中で特に ITO 電極による光吸収ロスに関し、トンネル接合を
(名城大学大学院)

導入した構造を提案している。p 型 GaN シェルに ITO 透明電極を形成する一般的なナノワイヤ発光デバイス構造に対し、トンネル接合を導入した構造は、p 型 GaN シェル上にトンネル接合を成長させ、さらにナノワイヤ間を低抵抗の n 型 GaN で埋め込む。この構造は、ナノワイヤ側壁の活性層に均一な電流注入が可能となり、ナノワイヤ間は、低抵抗の埋込 n 型 GaN 層で形成されているため、光吸収ロスを低減できる。また、トンネル接合構造を用いたナノワイヤ LD 構造では、ナノワイヤを適切に配置した場合、シミュレーション結果より光閉じ込め係数が 9%になると算出している。これは、c 面上に形成された多重量子井戸 LD の光閉じ込め係数約 3%に対し非常に高く、一般的な LD より低閾値電流動作が期待できる。

本研究では、コアシェル型ナノワイヤ発光デバイスの性能向上を目的に、n 型 GaN コア層、活性層、p 型 GaN シェル層、トンネル接合層、そして埋込 n 型 GaN 層まで、全ての層の成長メカニズムを検討すると共に、各層の不純物ドーピングについて解析を実施した。また、ナノワイヤを用いた発光デバイスを試作し、性能向上を検討した。

結晶成長では、二次元薄膜構造と異なる特異な成長条件を必要とするナノワイヤ成長について、これまでの研究を整理し、課題を明確にした。n 型 GaN コア成長では低 V/III 比と成長温度の最適化により転位のない結晶を実現し、連続供給法を用いて SiH₄ 流量を最適化することでパルス供給法成長のナノワイヤによく見られる n 型 GaN コアと活性層の界面から発生する欠陥を抑制した。

p 型 GaN シェル成長では、成長温度、V/III 比、成長レート、Mg 流量を検討することで、成長条件とシェル形状の関係を体系的にまとめた。また、p 型 GaN シェル層に発生する欠陥とナノワイヤ LED の電気特性の関係を明らかにした。

トンネル接合層と埋込 n 型 GaN 成長では、p 型 GaN シェル層外周に 10~20nm のトンネル接合層としての p⁺型 GaN 及び n⁺型 GaN 成長とボイドフリーの埋込 n 型 GaN 層成長を実現させた。さらに、X 線回折評価やホール効果測定等、二次薄膜構造で使われる評価手法が適用できないナノワイヤに対し、三次元アトムプローブ法 (3DAPT)、ナノスケール二次イオン質量分析法 (NanoSIMS) により n 型 GaN コア層内の Si 濃度、p 型 GaN シェル層及びトンネル接合層の不純物 (Si, Mg) 濃度を評価した。また n 型 GaN コア層中の Si 濃度を評価可能な、一般的なダイナミック SIMS による簡易な手法を開発した。それによって測定した Si 濃度は 3DAPT、NanoSIMS の結果とよく一致した。

発光デバイスの試作では、最適化された成長条件を使ってトンネル接合が無い一般的な ITO 電極型ナノワイヤ LED とトンネル接合型ナノワイヤ LED の両方を作製した。ITO 電極型ナノワイヤ LED では、スパッタで形成した ITO 電極の最適化により電流拡散を改善したナノワイヤ LED を実現した。トンネル接合型ナノワイヤ LED では、青色発光を確認し、埋込 n 型 GaN とトンネル接合によるナノワイヤ m 面への電流注入を実証した。LD 構造においても、トンネル接合が無い p 型 GaN 埋込 LD 構造とトンネル接合型 LD 構造の両方を試作、評価し、それぞれの構造の課題を明確にした。

今後、本論文で得られた知見をもとに、GaN ナノワイヤ発光デバイスのさらなる高性能化が期待できる。例えば、m 面量子井戸層を厚膜化した活性層を成長させ、膜厚の最適化を図ることで効率ドループを抑制した青色 LED が実現できる。また、LD 構造においては、最適なナノワイヤ配置において、波長均一/膜厚均一性の高い活性層が実現できれば、エネルギー効率が高く、ビーム特性に優れた画期的なレーザが実現できる。