

GaN系半導体への希土類元素添加に基づく 表面・歪の意図的制御と光デバイスへの展開

¹大阪大学 大学院工学研究科

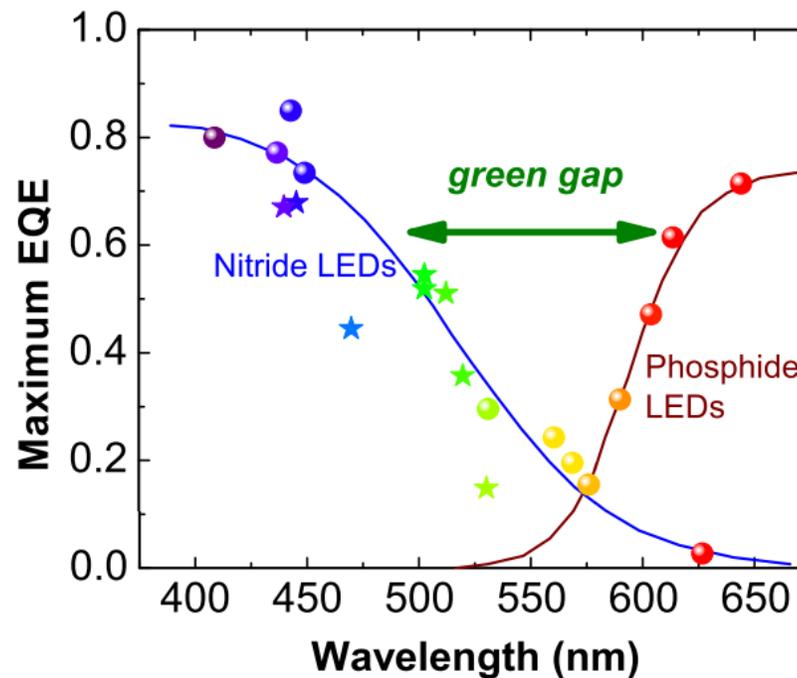
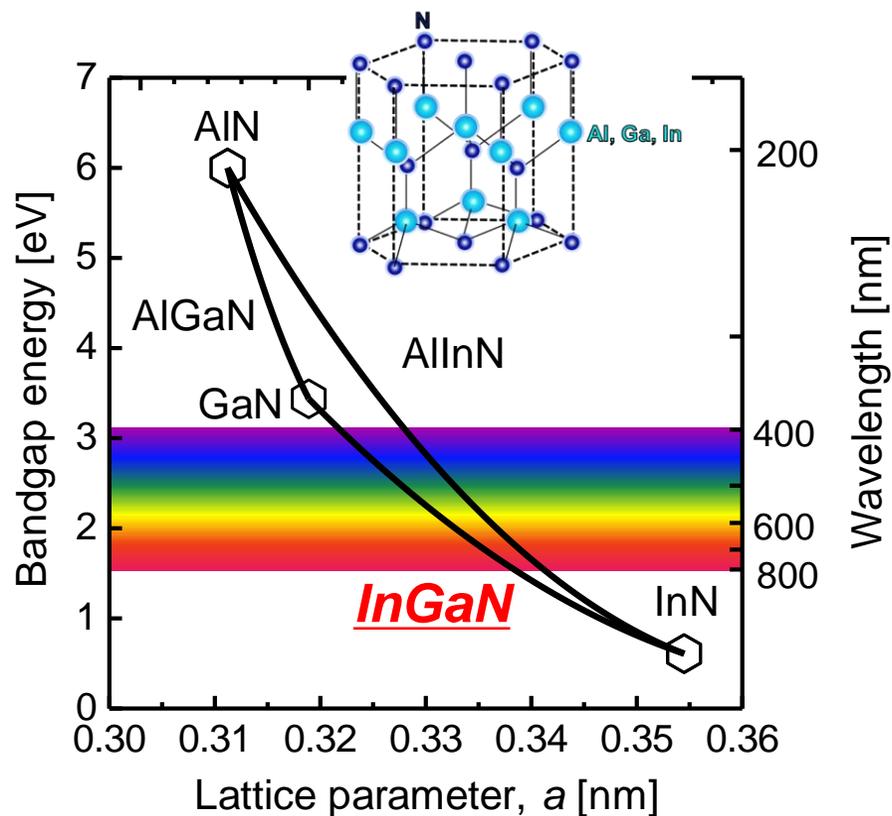
²大阪大学 超高压電子顕微鏡センター

○市川 修平^{1,2}

GaN系半導体の背景

$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 光デバイス

Bandgap energy: 0.6~3.4 eV \Rightarrow 可視光全域をカバー

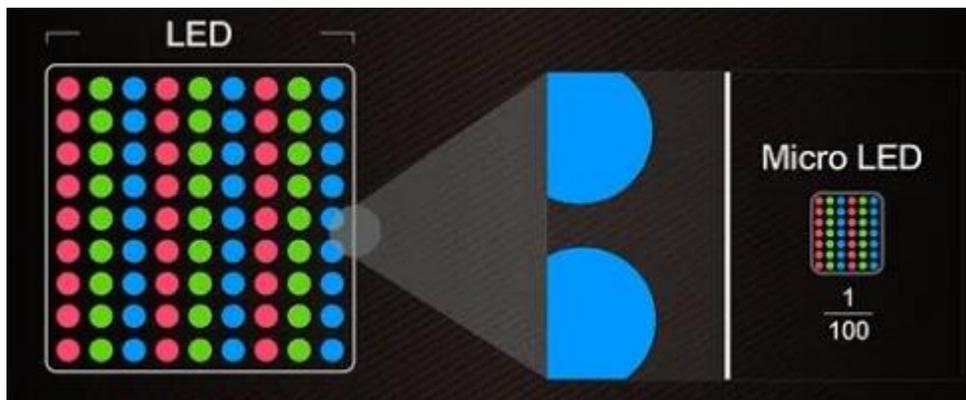


[1] M. A. der Maur *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 027401 (2016).

長波長域や微細デバイスでの量子効率改善が課題
(*In*-rich *InGaN*, surface recombination in a μ -LED chip)

Micro LEDへの期待

Micro LEDディスプレイ



<https://www.ledinside.com/news/>

<https://www.gizmodo.jp/2012/07/iglass.html>

AR/MR/VRデバイス

超小型プロジェクタ



iGlass
Reality reinvented

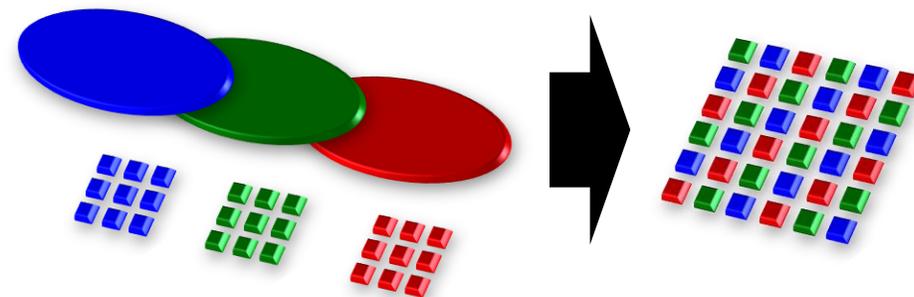


三原色LEDのモノリシック集積



“Pick-and-place” technique がピクセル密度を制限 (Mass-transfer)

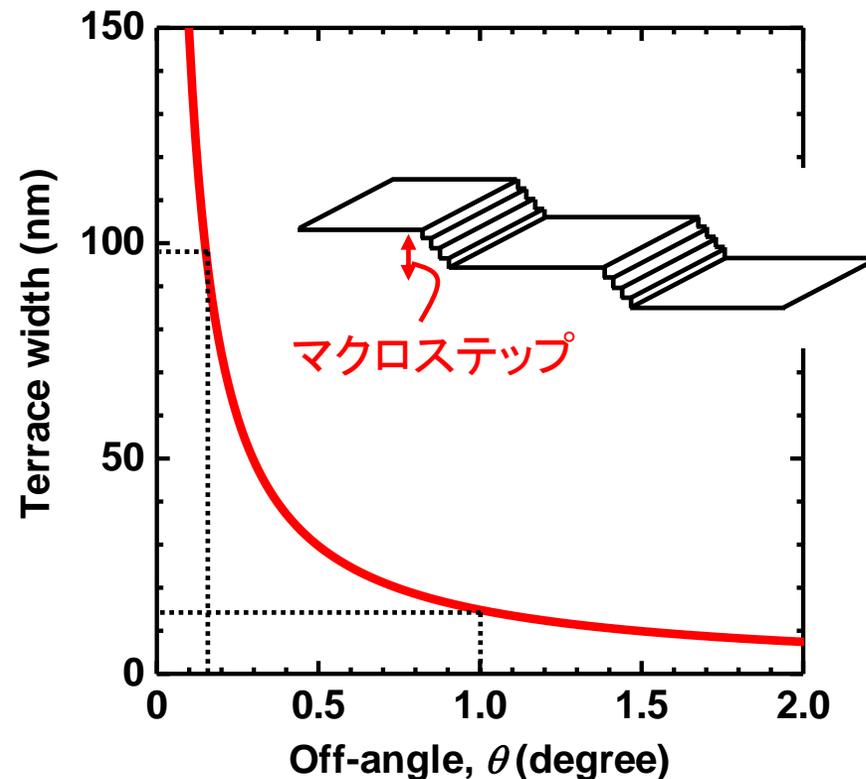
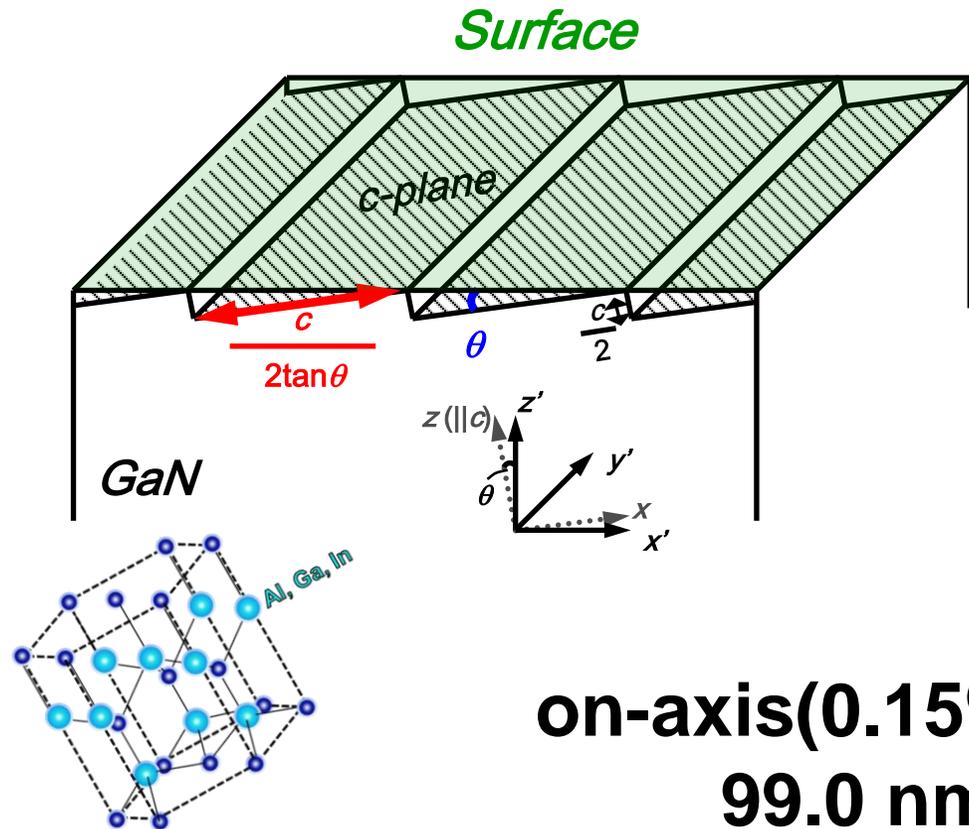
⇒ 微細なLED素子の各色切り出しと正確な配置が必要



同一基板上3原色LEDを作製することが
実現に向けたキーテクノロジー

基板のオフ角とステップバンチング

Step-and terrace structure



on-axis (0.15° off)

99.0 nm

vicinal (1° off)

14.9 nm

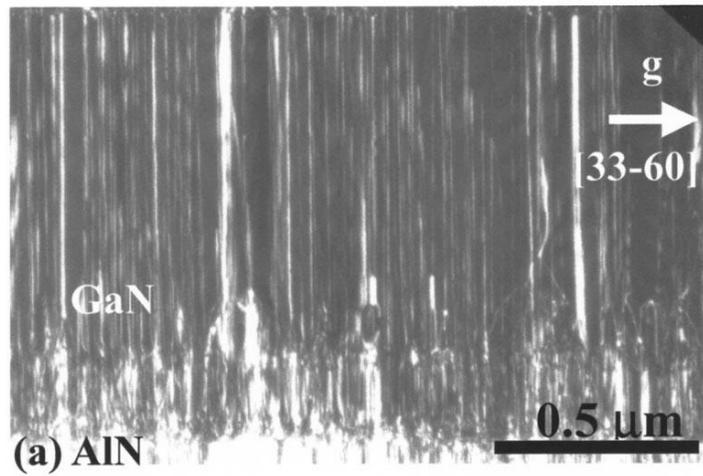
⇒

オフ角が存在すると劇的にテラス幅は減少
⇒ステップバンチング

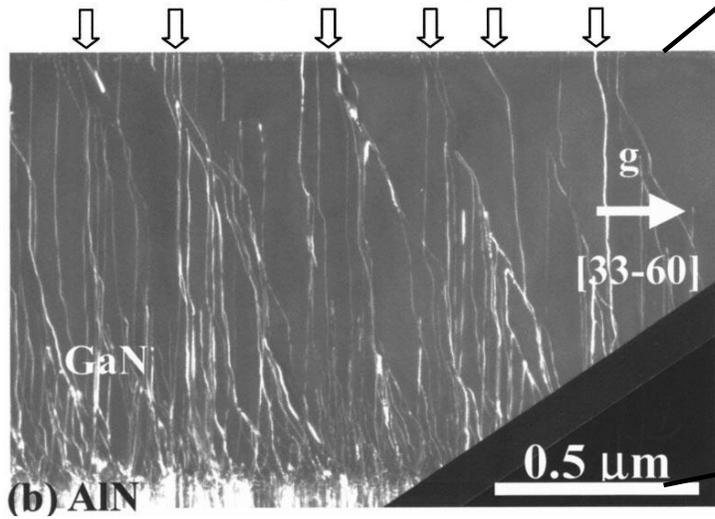
バンチングにより生成したマクロステップによる転位の低減[2]

[2] X. Q. Shen *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 021912 (2005).

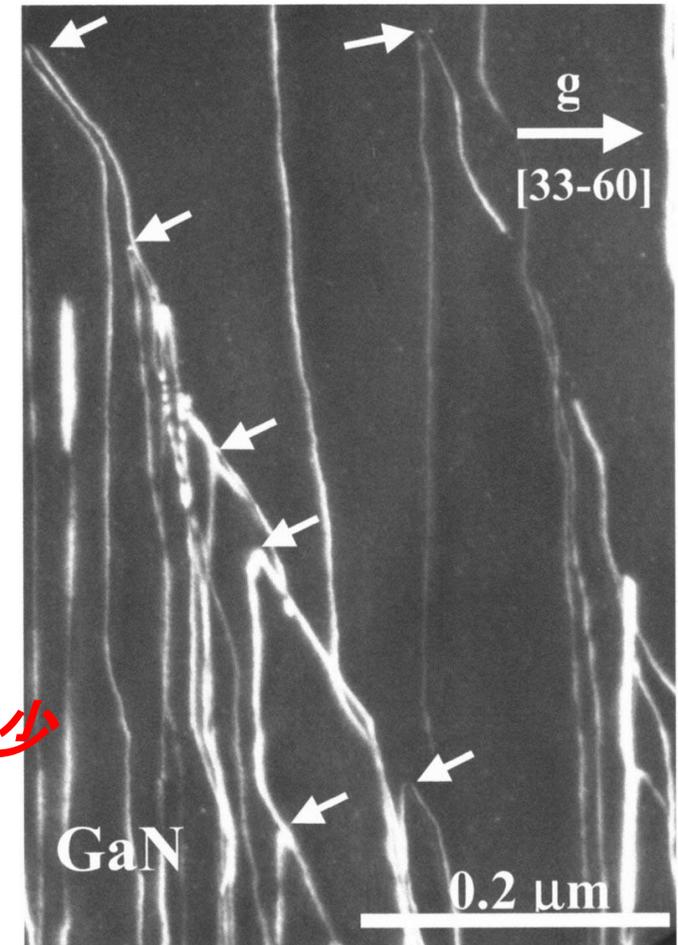
0.5° off



2.0° off

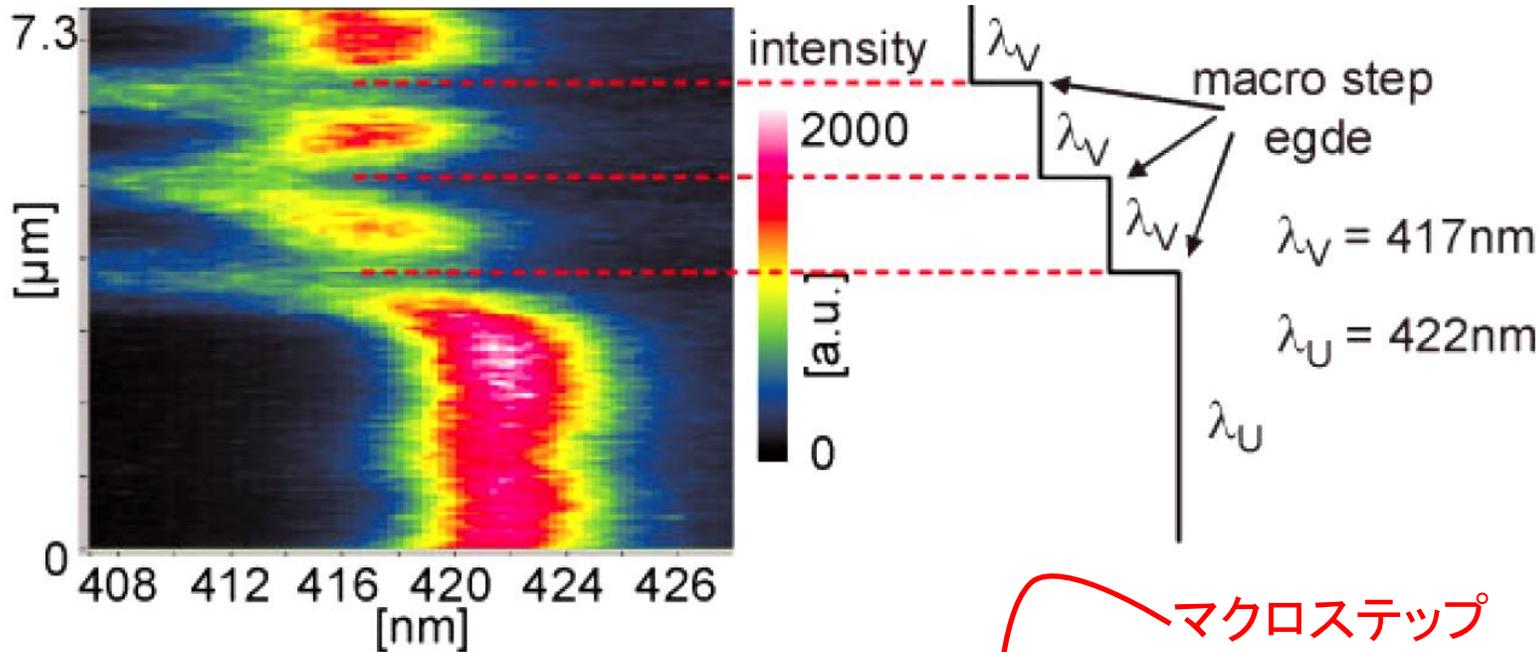


マクロステップの進行による
横方向成長によって転位減少

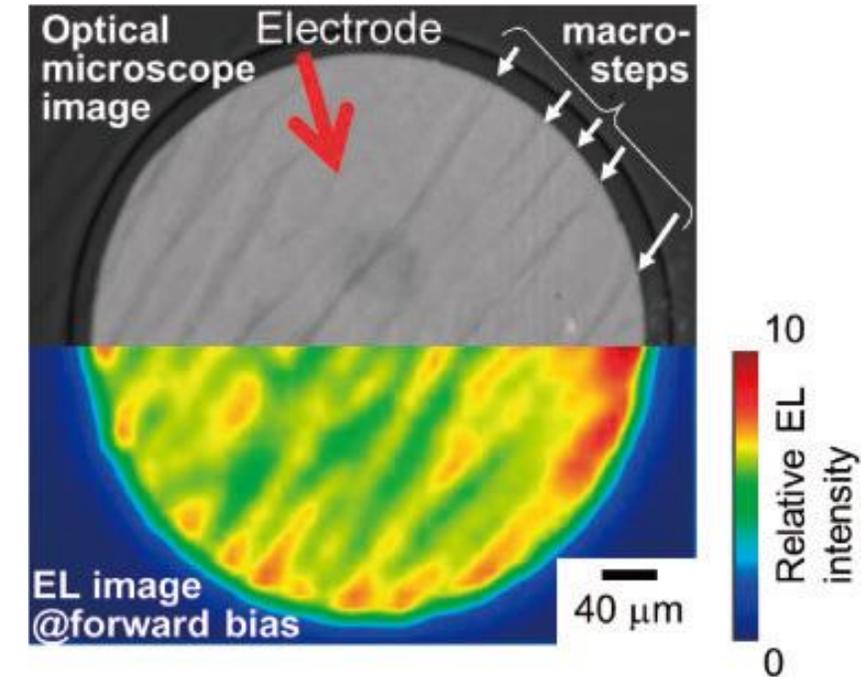


微傾斜基板上成長の課題

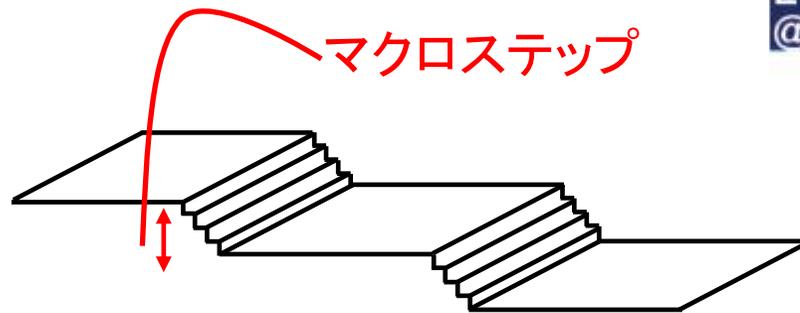
InGaN/GaN QW[3]



GaN pinダイオード[4]



マクロステップ端で組成変調
⇒発光特性等に影響



マクロステップ箇所への
電流集中

[3] T. Lermer *et al.*, *Phys. Stat. Solidi A* **208**, 1199 (2011).

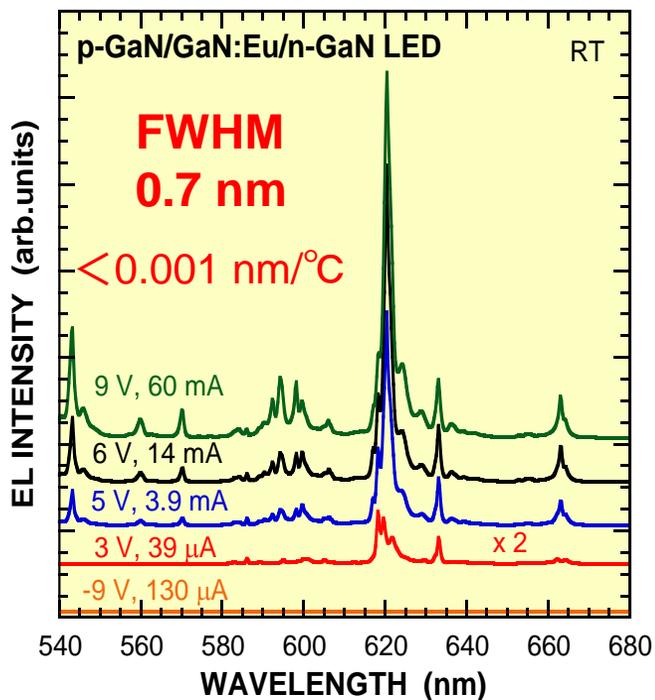
[4] H. Fujikura *et al.*, *Appl. Phys. Express* **11**, 045502 (2018).

Eu添加GaNのこれまで

Eu-doped GaN (GaN:Eu)
を発光層とした赤色LED

※Eu³⁺がGaサイトを置換

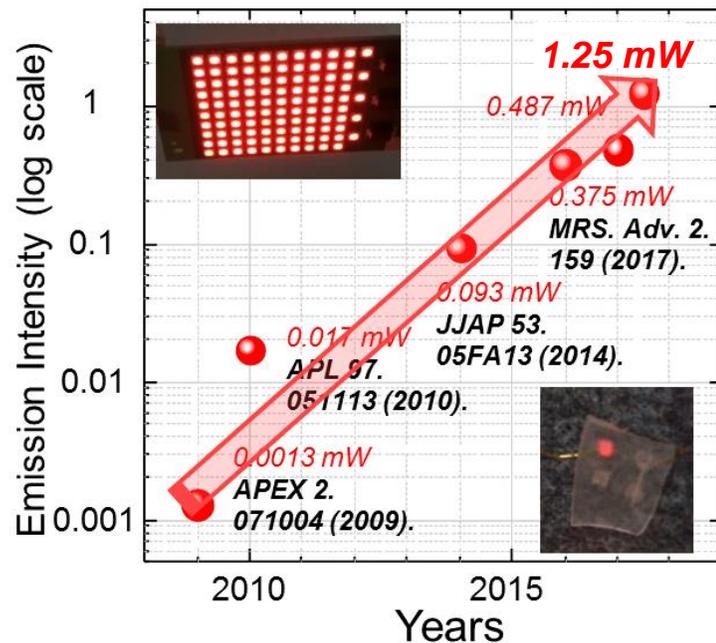
GaN:Eu LED



A. Nishikawa, Y. Fujiwara et al., *Appl. Phys. Express* **2**, 071004 (2009).

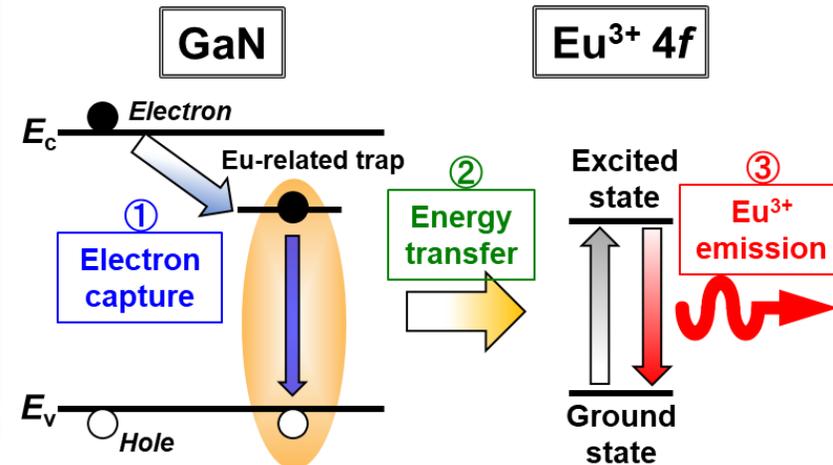
✓ Eu³⁺イオンの4f殻内遷移

- 極めて狭帯域な発光
- 電流注入量によるスペクトルシフトなし



B. Mitchell, Y. Fujiwara et al., *J. Appl. Phys.* **123**, 160901 (2018).

- ① 電子トラップ.
- ② エネルギー輸送
- ③ Eu赤色発光



Our Approach

Eu添加が成長表面に与える影響に着目

試料作製条件および評価方法

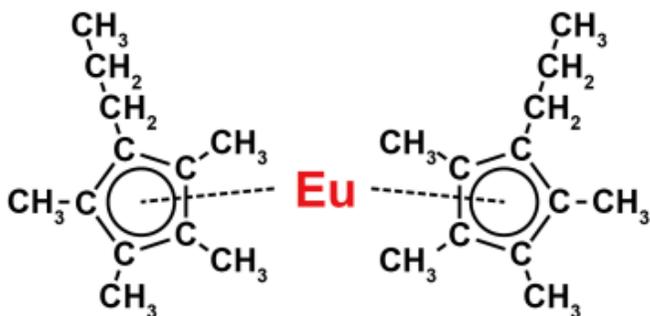
成長法 : 有機金属気相成長(MOVPE)法

成長基板: c面サファイア基板(on-axis, 1° -off toward $[11-20]_{\text{GaN}}$)

Ga原料: TMG

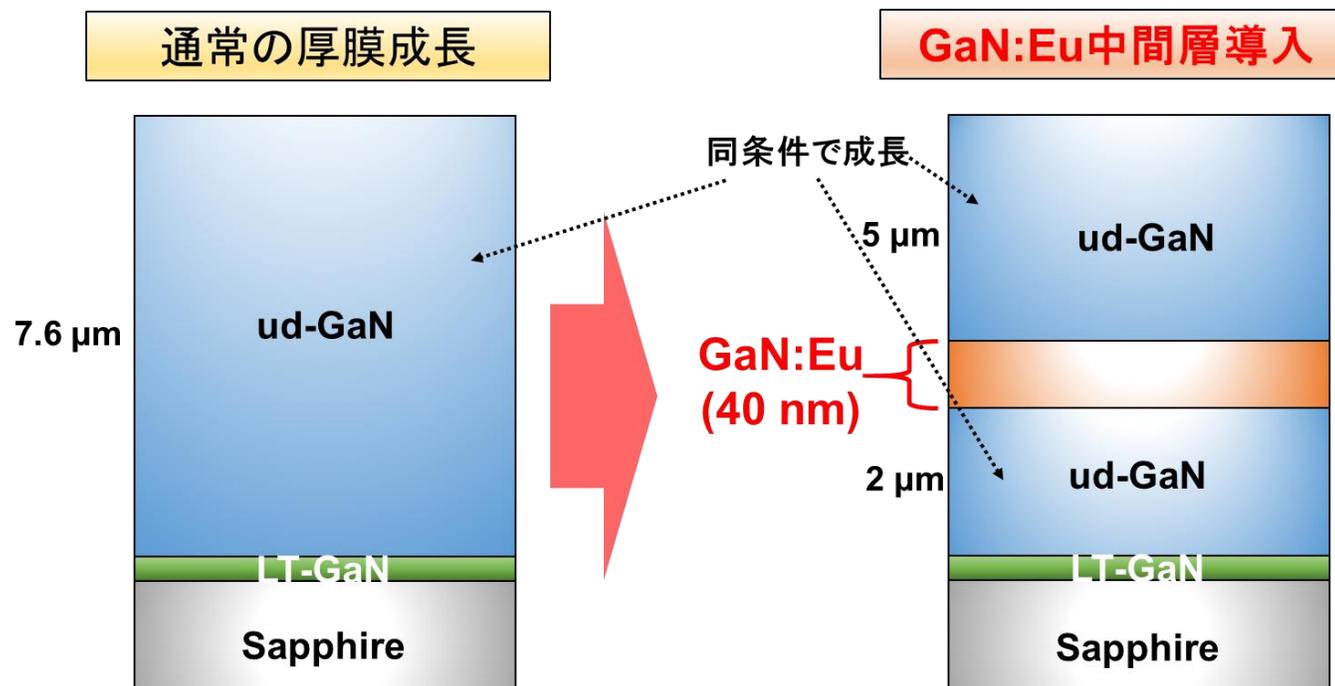
N原料 : NH_3

Eu原料: $\text{EuCp}^{\text{pm}}_2$



評価手法

AFM, XRD, 光学顕微鏡,
その場観察反射率モニター

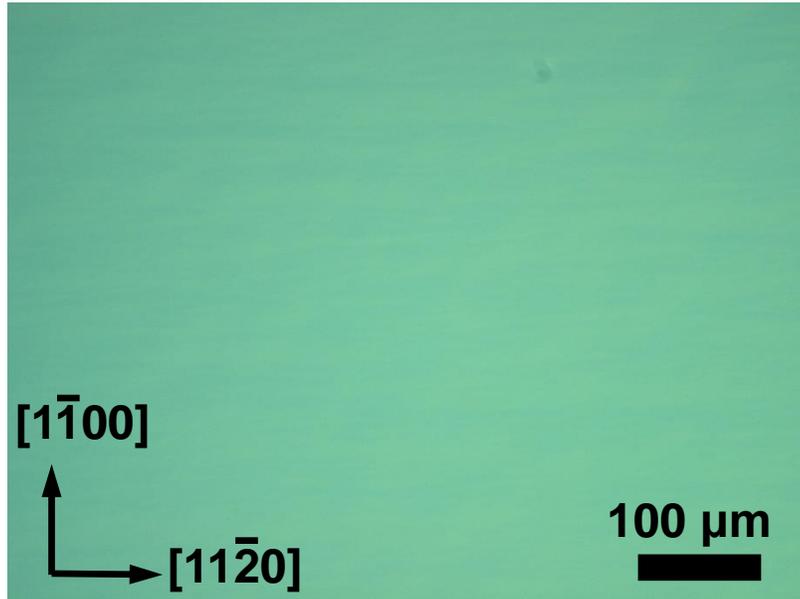


※構造に関わらず最表面 ud-GaN を評価

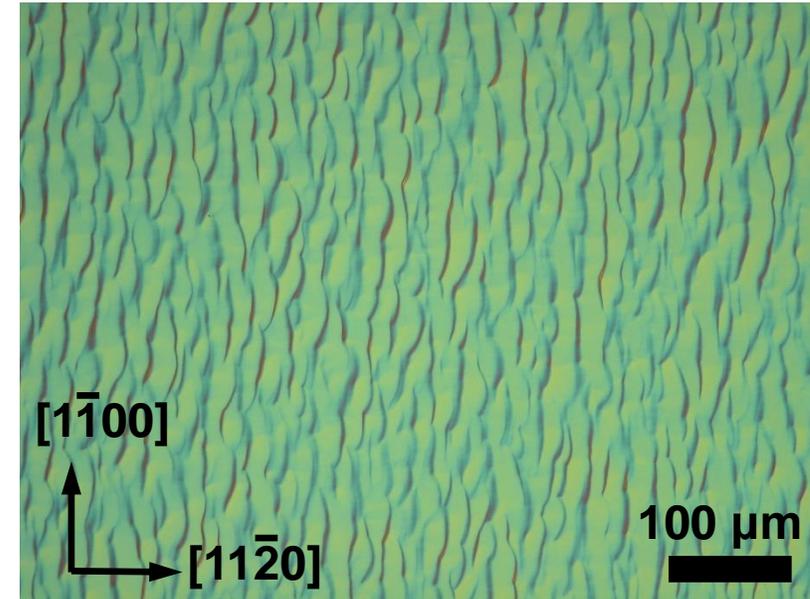
光学顕微鏡による巨視的表面観察

Optical microscope image

on-axis



1° off toward $[11\bar{2}0]$



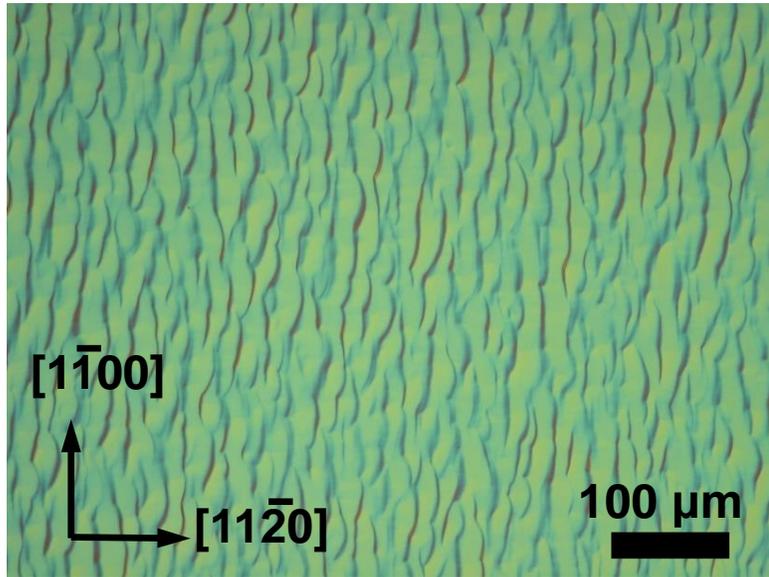
オフを有するud-GaN表面に巨大なマクロステップが生成

(表面原子ステップの間隔 \ll Gaのマイグレーション長)

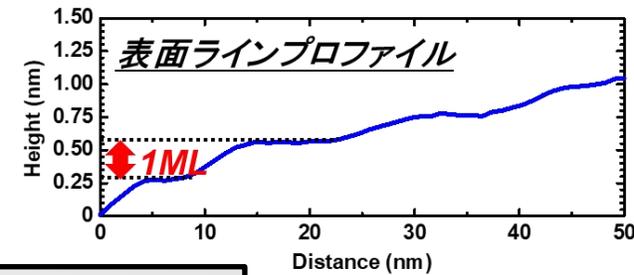
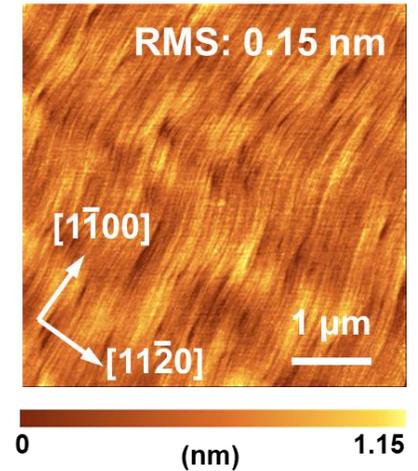
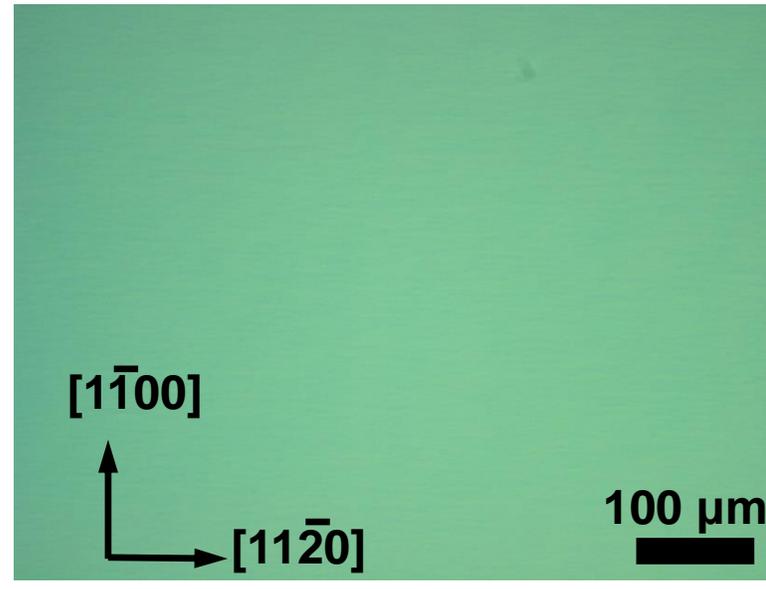
Eu中間層導入後の表面観察

1° off基板上の最表面ud-GaN

ud-GaNのみ



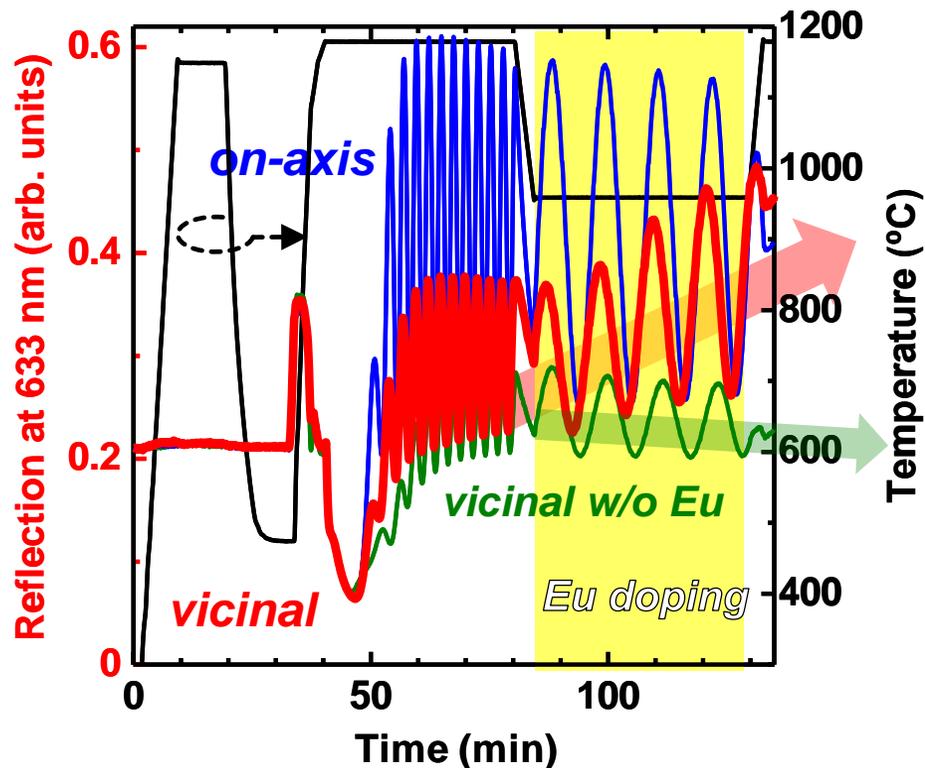
GaN:Eu中間層あり



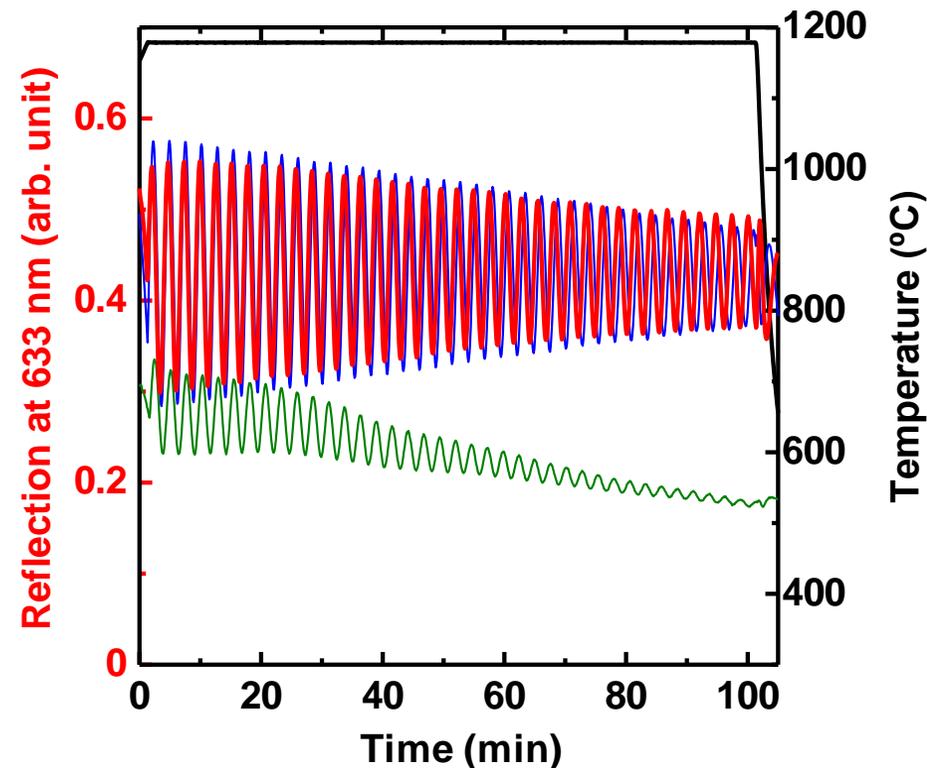
GaN:Eu中間層の導入によってマクロステップが除去

GaN:Eu中間層導入時の反射率モニター

LT-GaN ~ GaN:Eu中間層

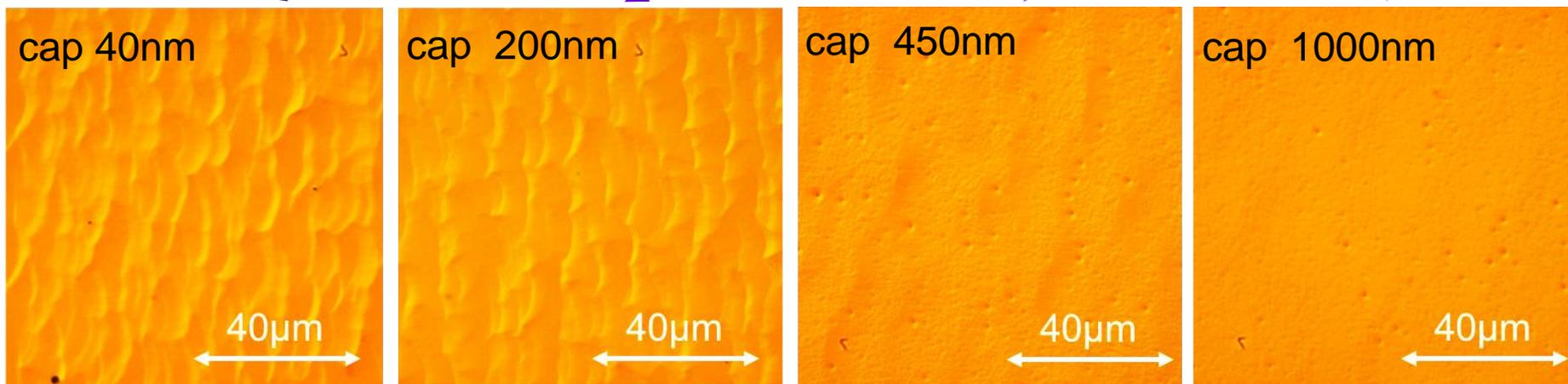
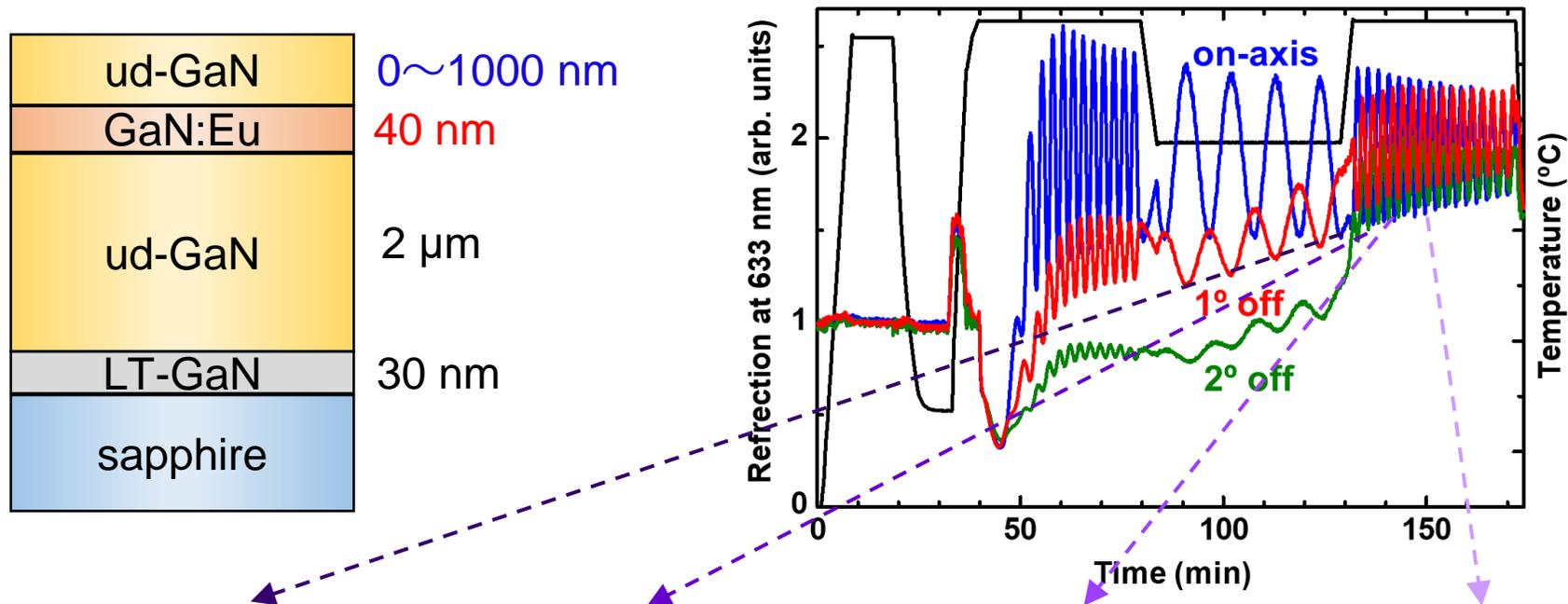


最表面ud-GaN層



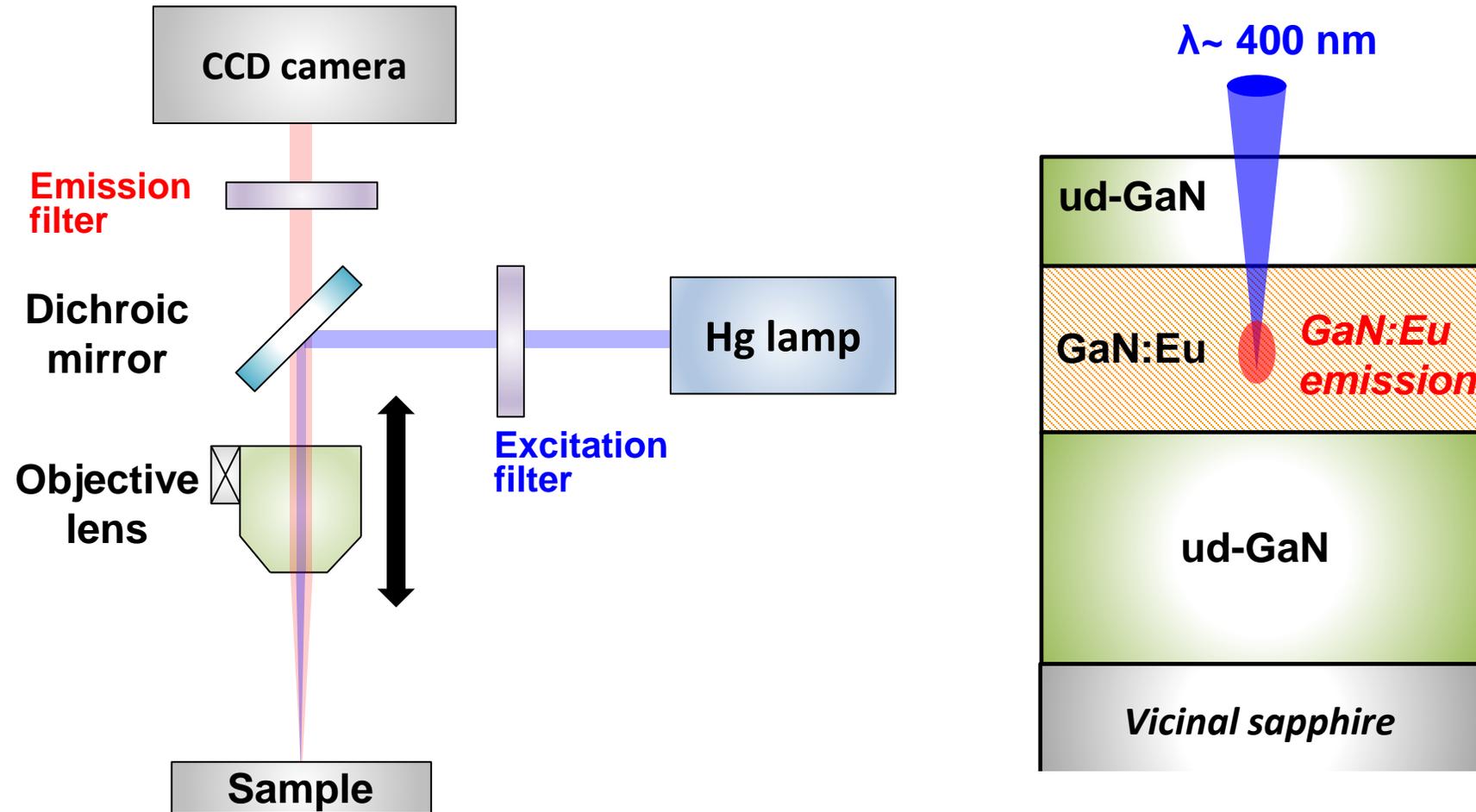
Eu添加で反射率が回復⇒マクロステップ除去効果示唆
(成長温度による効果ではない)

キャップ層厚を変化させたときのマクロステップ構造変化



GaN:Eu層上部でマクロステップが徐々に平滑化

蛍光顕微鏡によるGaN:Eu中間層の観察



蛍光顕微鏡によるGaN:Eu中間層の選択励起

蛍光顕微鏡観察による界面推定

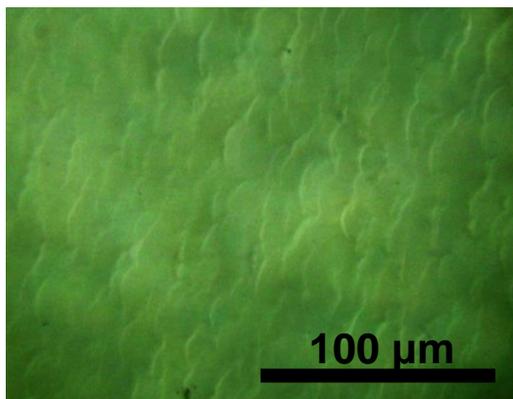
1°オフサファイア上

ud-GaN cap 40 nm

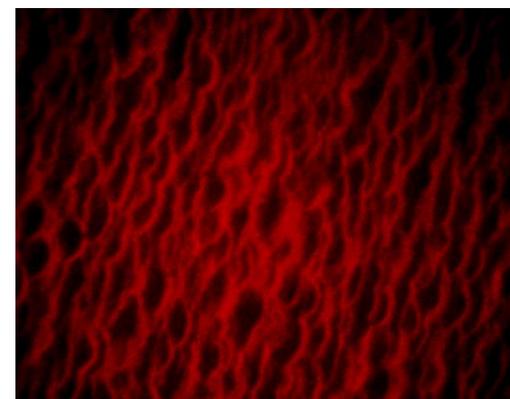
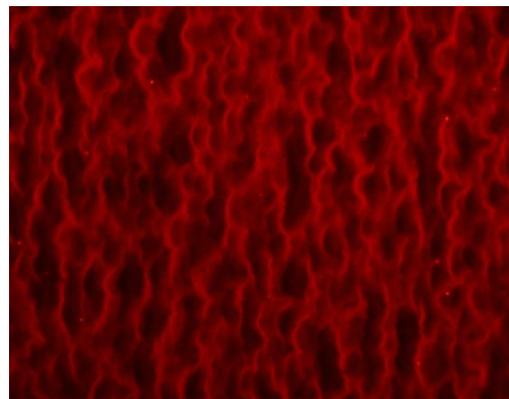
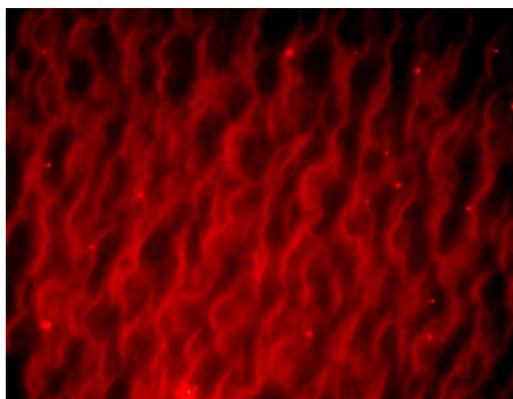
ud-GaN cap 450 nm

ud-GaN cap 1000 nm

光学顕微鏡像

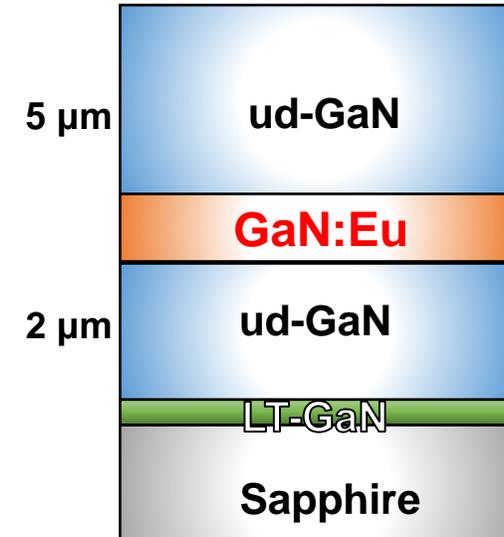
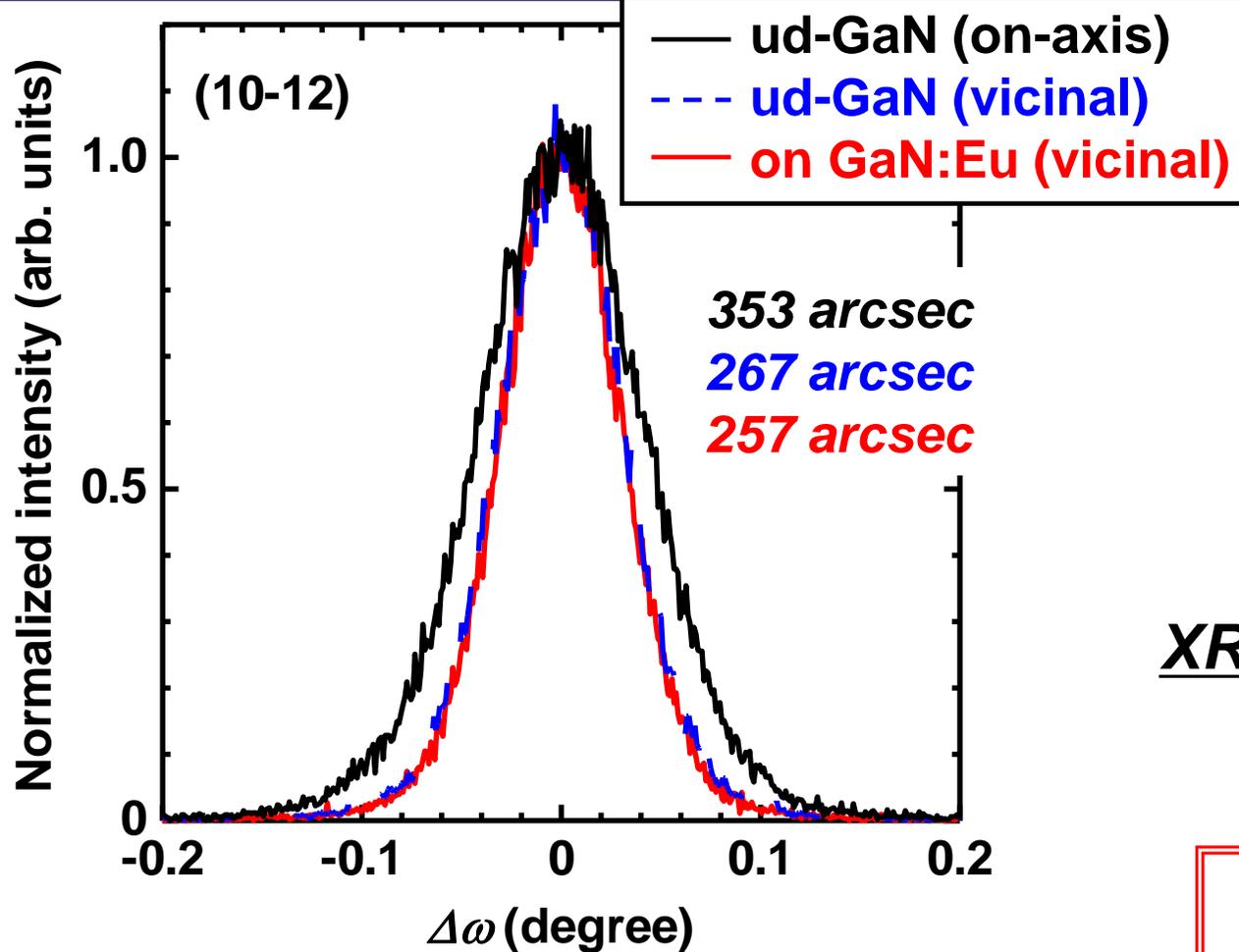


蛍光顕微鏡像



蛍光顕微鏡像はGaN:Eu中間層の界面ステップ構造を反映

微傾斜基板上的での転位密度低減



XRDから見積もられる転位密度

$$1.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ (on-axis)}$$

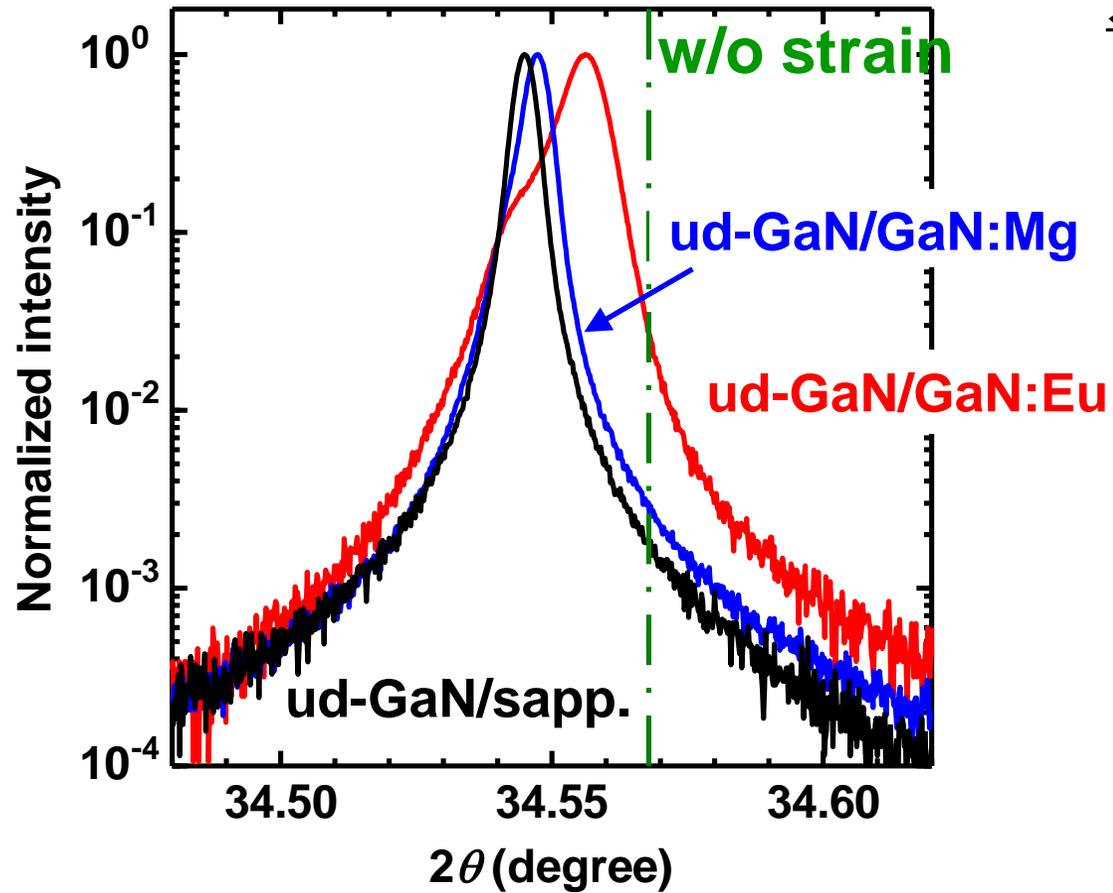
マクロステップフリーで

$$4.9 \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ (1}^\circ \text{ off)}$$

2 μm の厚膜ud-GaN成長後にマクロステップを消滅
⇒ 転位の減少効果を得た上で表面平坦化(on-axis比 **0.38倍**)

不純物添加層上のud-GaN膜中の歪

XRD (0002) 2θ-ωスキャン



ステップ間に働く引力⇒バンチング促進

$$F = \frac{\sigma^2 h^2}{M} \ln\left(\frac{L_s}{2\pi a}\right) \propto \epsilon^2$$

[8] J. Tersoff, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 24 (1995).

ϵ : 歪
 σ : 応力
 h : ステップ高さ
 M : 弾性定数
 L_s : ステップ間距離
 a : 格子定数

ud-GaN層の面内歪

on sapp.

ϵ_{xx} : -0.172%

on GaN:Mg

ϵ_{xx} : -0.169%

on GaN:Eu

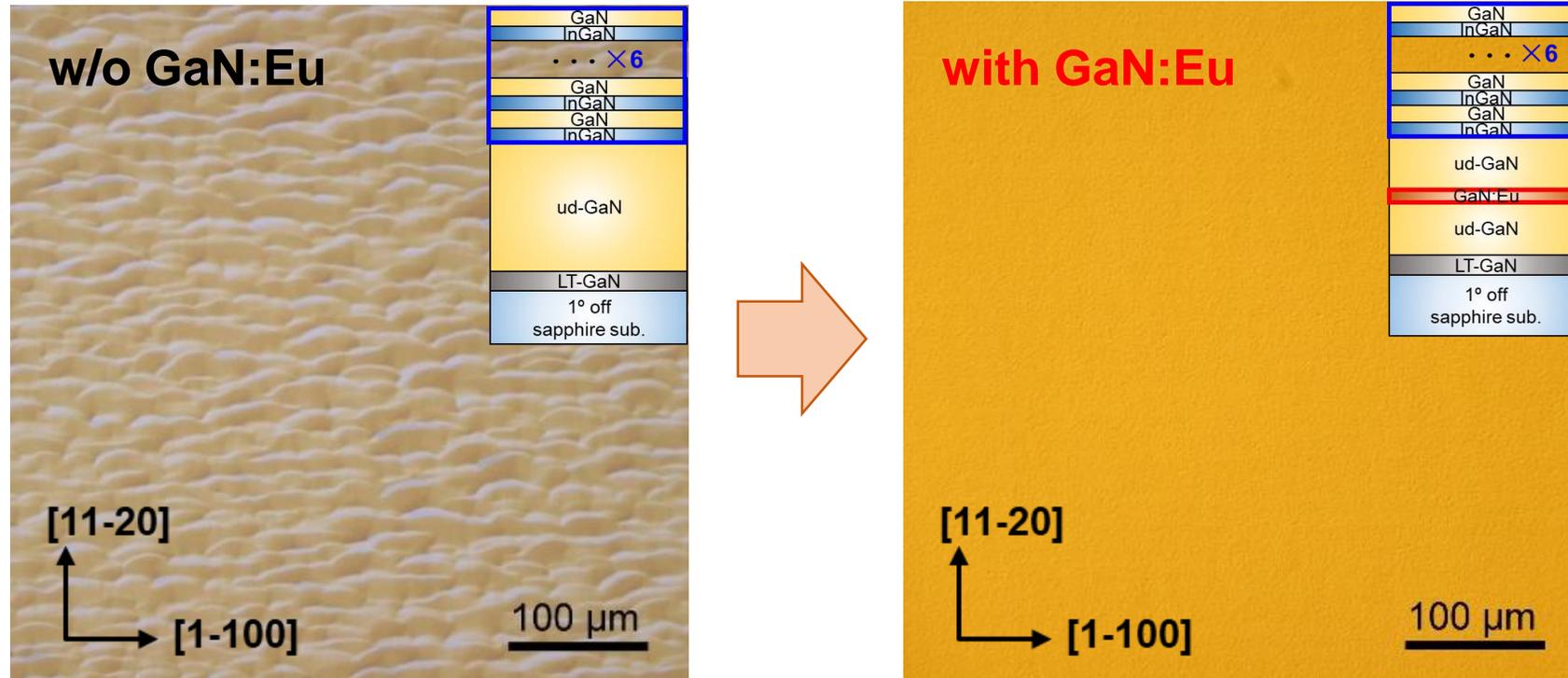
ϵ_{xx} : -0.118%

原子半径
 $\text{Ga} < \text{Mg} < \text{Eu}$
 を反映か

Eu添加層上のud-GaN層で圧縮歪が緩和

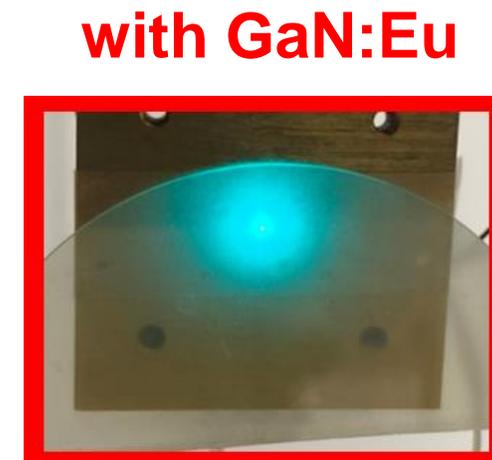
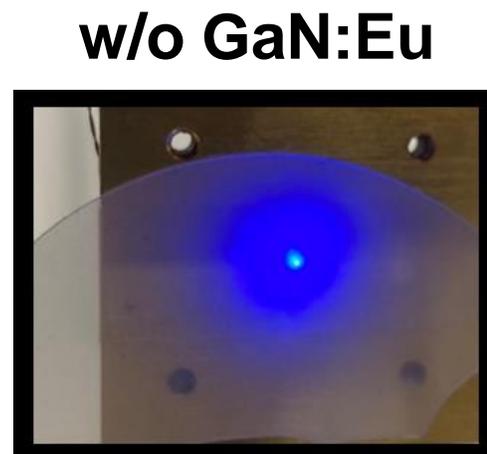
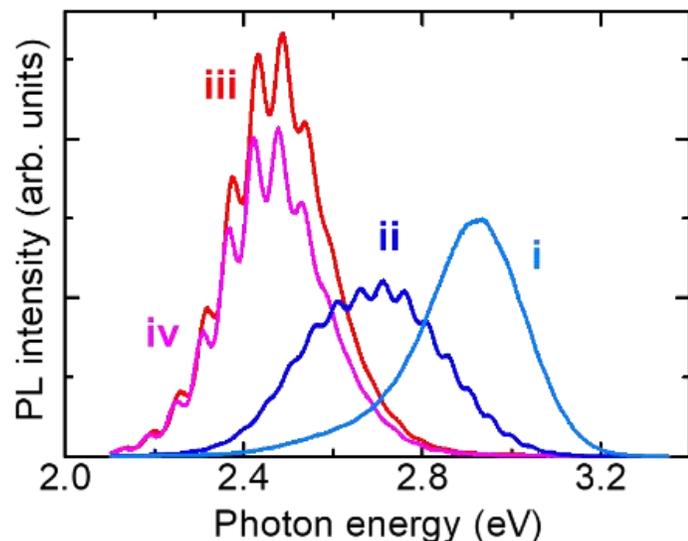
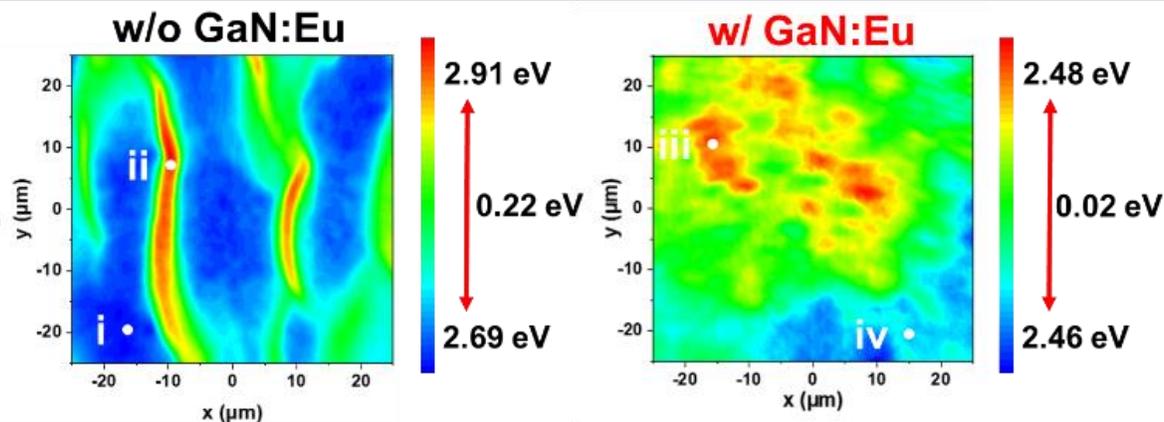
InGaN/GaN量子井戸の下地層へのGaN:Eu層適用

光学顕微鏡像



InGaN量子井戸上部でもEu添加により微傾斜基板上の
巨視的なマクロステップが解消

PLマッピング測定による面内発光波長分布測定



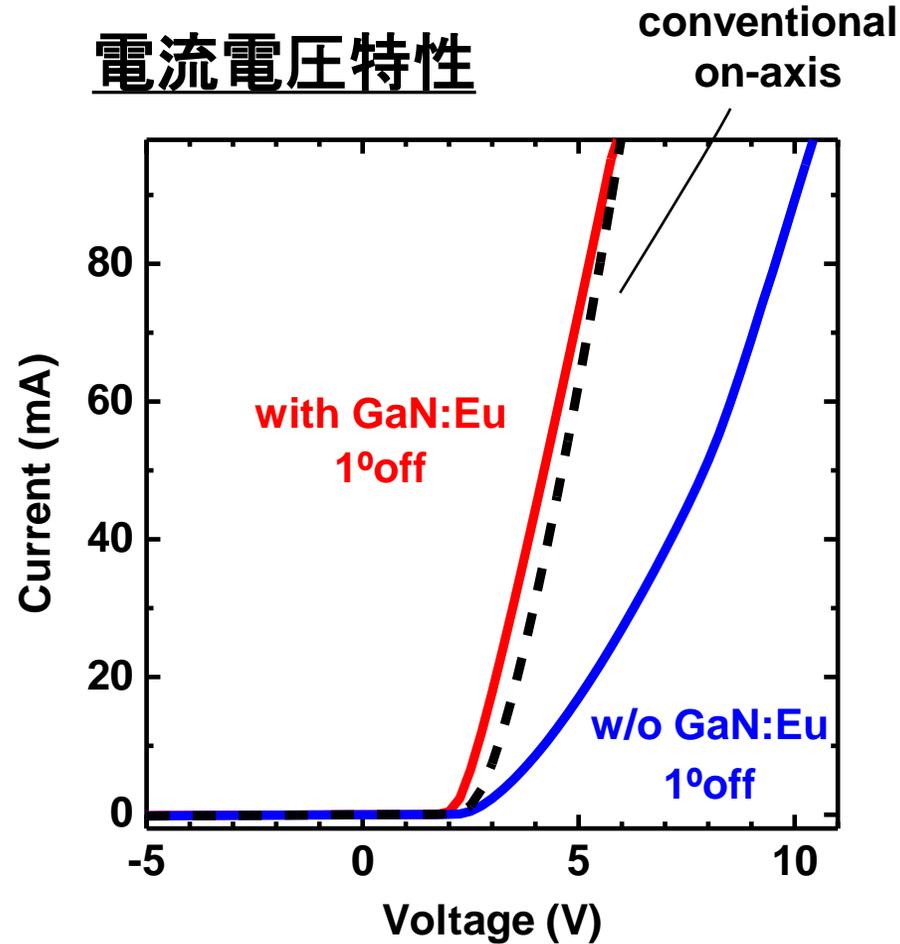
試料	井戸幅	In 組成
with GaN:Eu	1.6 nm	28%
w/o GaN:Eu	1.4 nm	25%

発光の分布を抑えるためには
表面ラフニングの抑制が重要

GaN:Eu導入による圧縮歪の緩和により
In取り込み効率が上昇

Eu中間層を有するInGaN LEDの電氣的・光学的特性

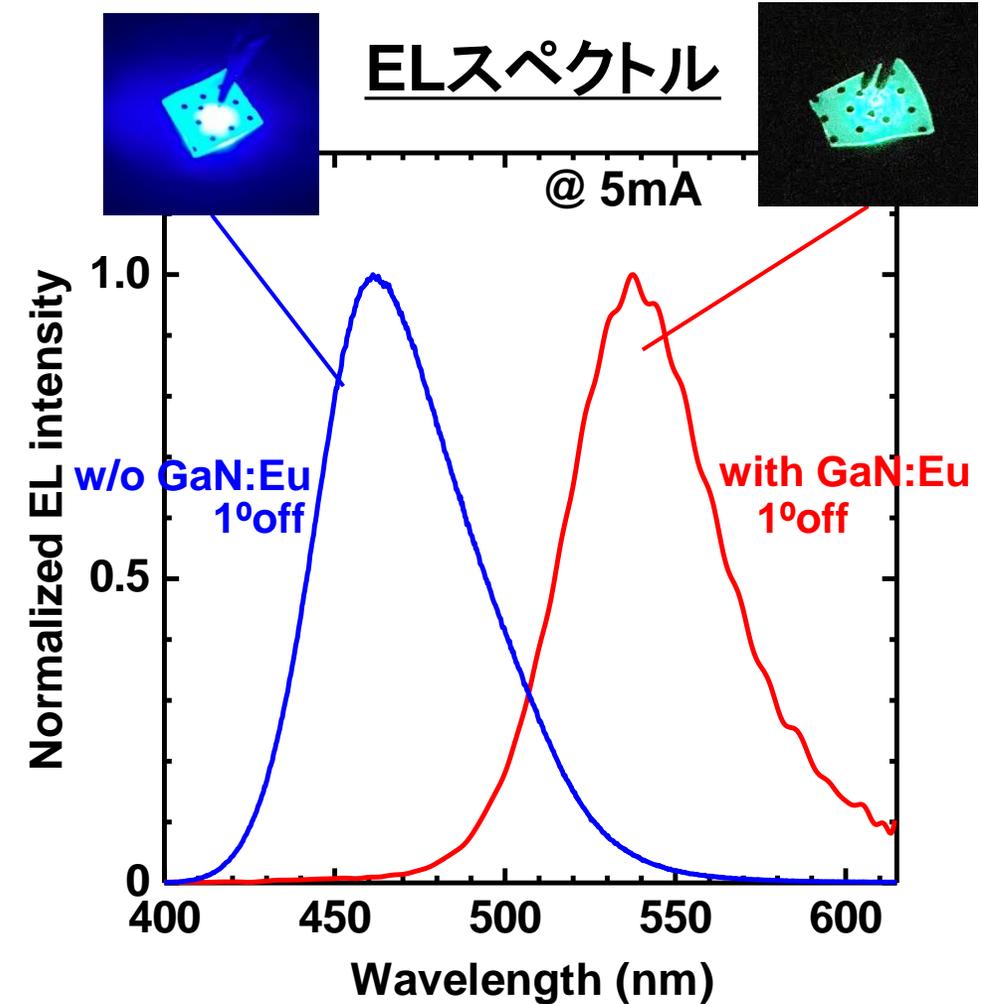
電流電圧特性



Eu中間層により

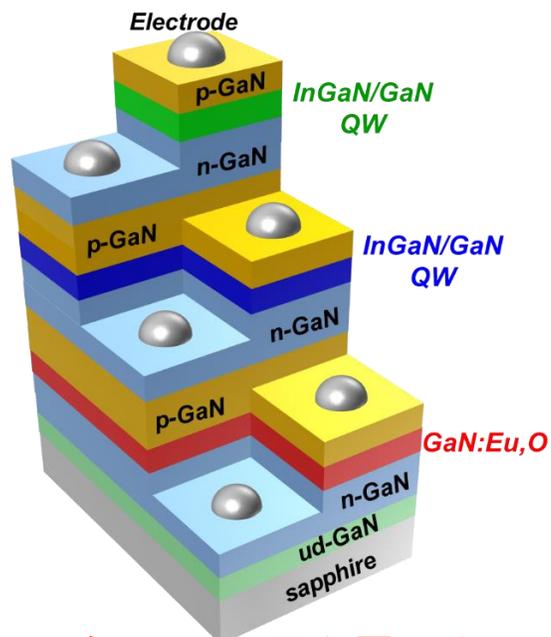
- ✓ IV特性が改善(表面平坦化による不純物取り込みの均一化?)
- ✓ EL発光ピークが長波長化(In取り込みの増大)

ELスペクトル



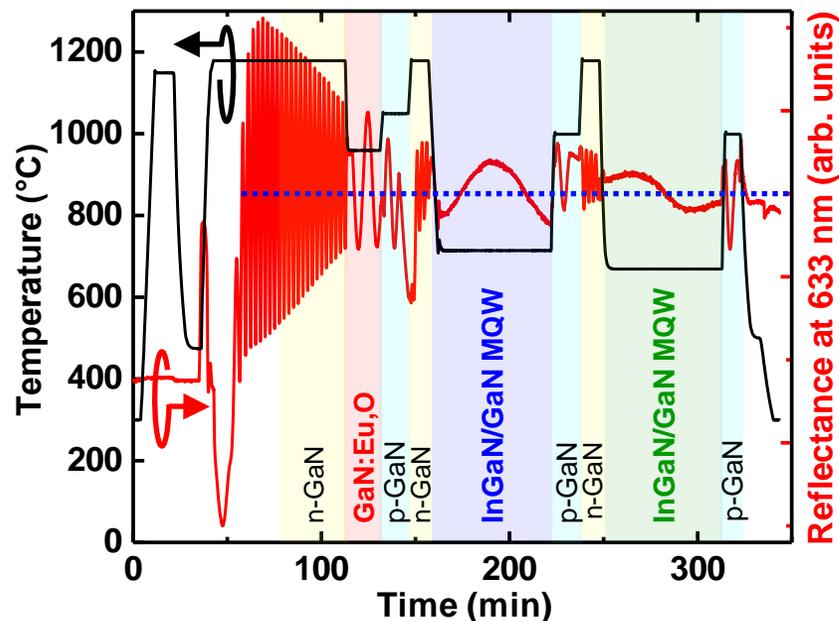
Eu添加GaN LEDを最下層として集積したRGB LED

Vertical-stacked LED structure

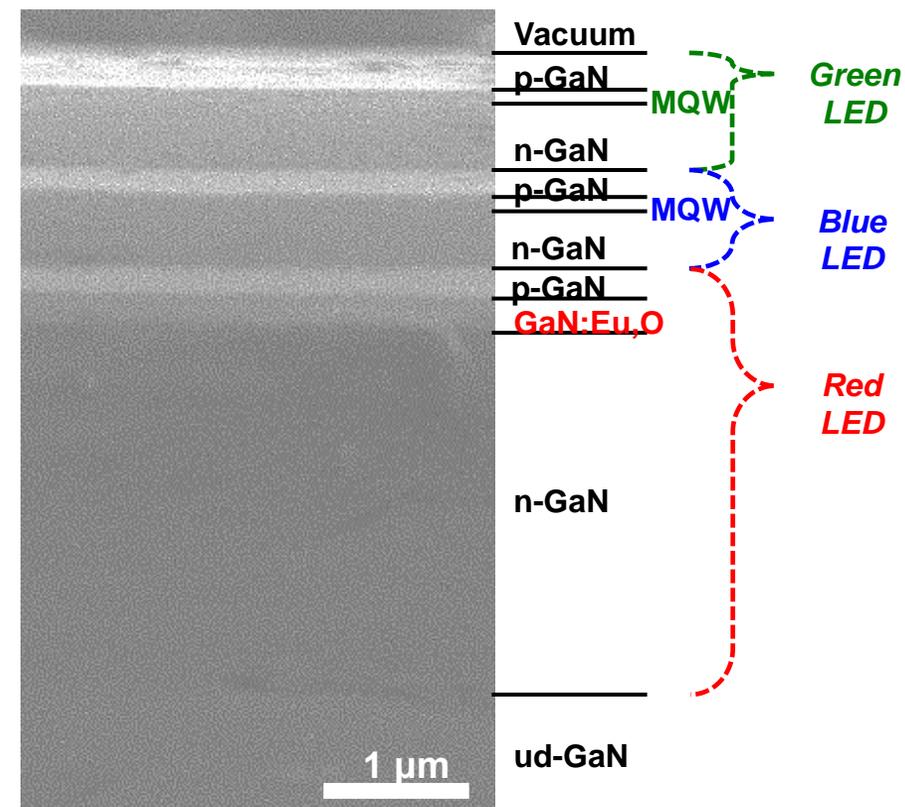


各p-GaN層を露出させた後に
活性化アニール処理

In-situ reflection monitor



Cross-sectional SEM image



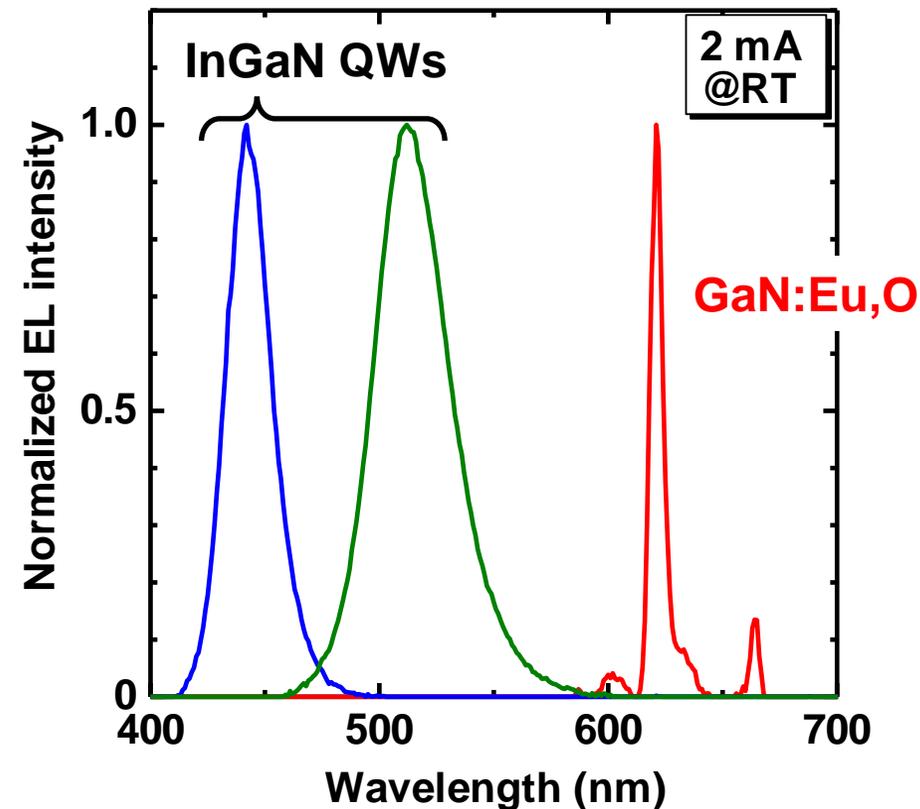
- ✓ Eu添加層の歪緩和を利用した高温InGaN成長が実現
- ✓ 表面平坦性を維持して膜成長が進行
- ✓ QW 構造の成長に耐える急峻な界面を実現

電流注入下でのフルカラーLEDの発光 @RT

同時駆動条件下

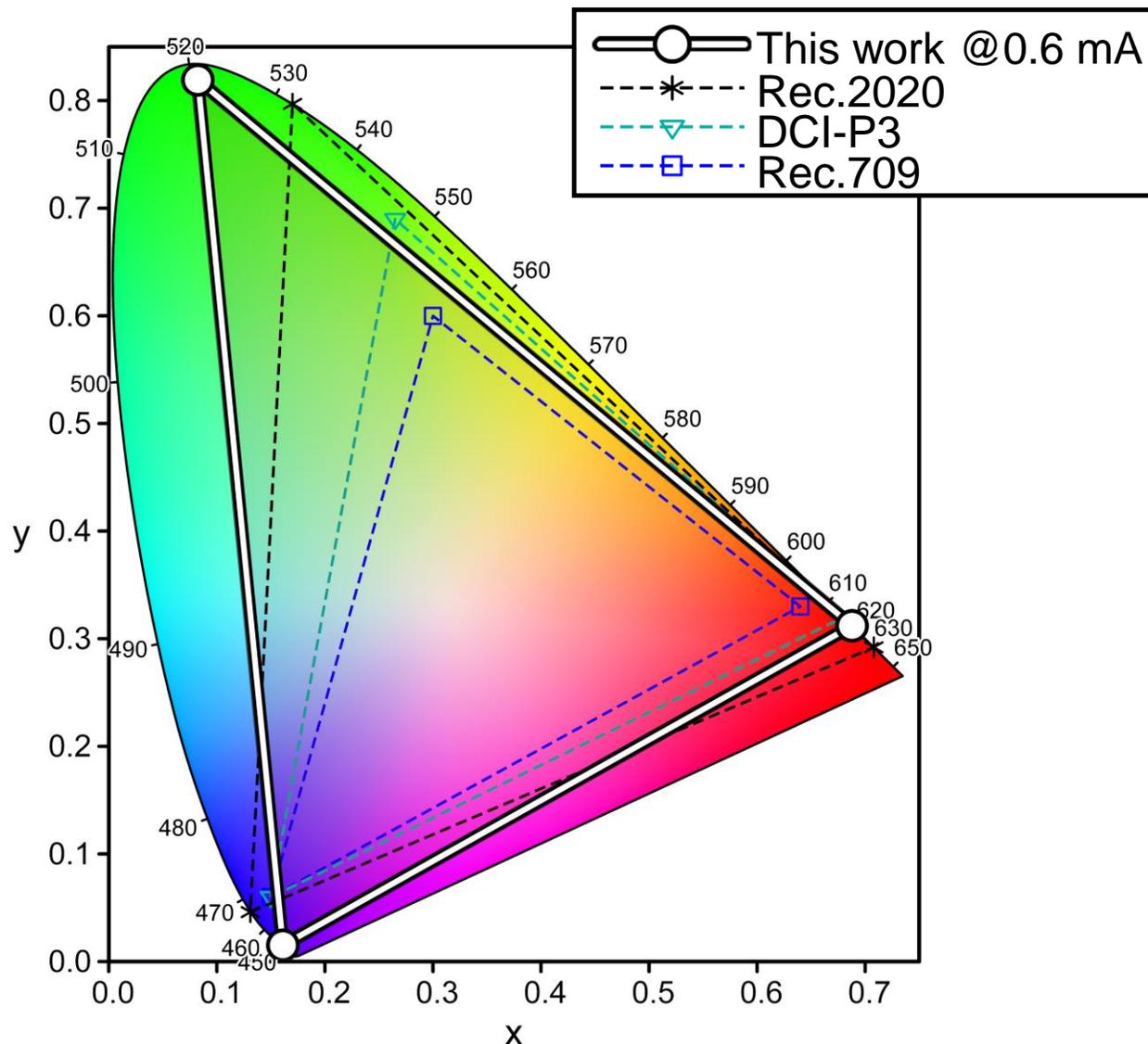


各LEDの室温ELスペクトル



同一サファイア基板上で各LEDから明瞭なスペクトルを確認
(RGB LED間でのクロストーク無し)

同一基板上フルカラーLEDの色域



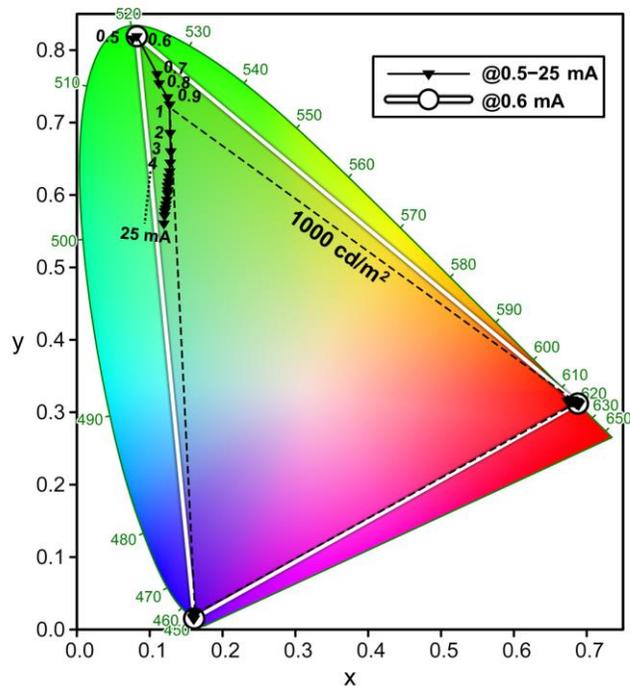
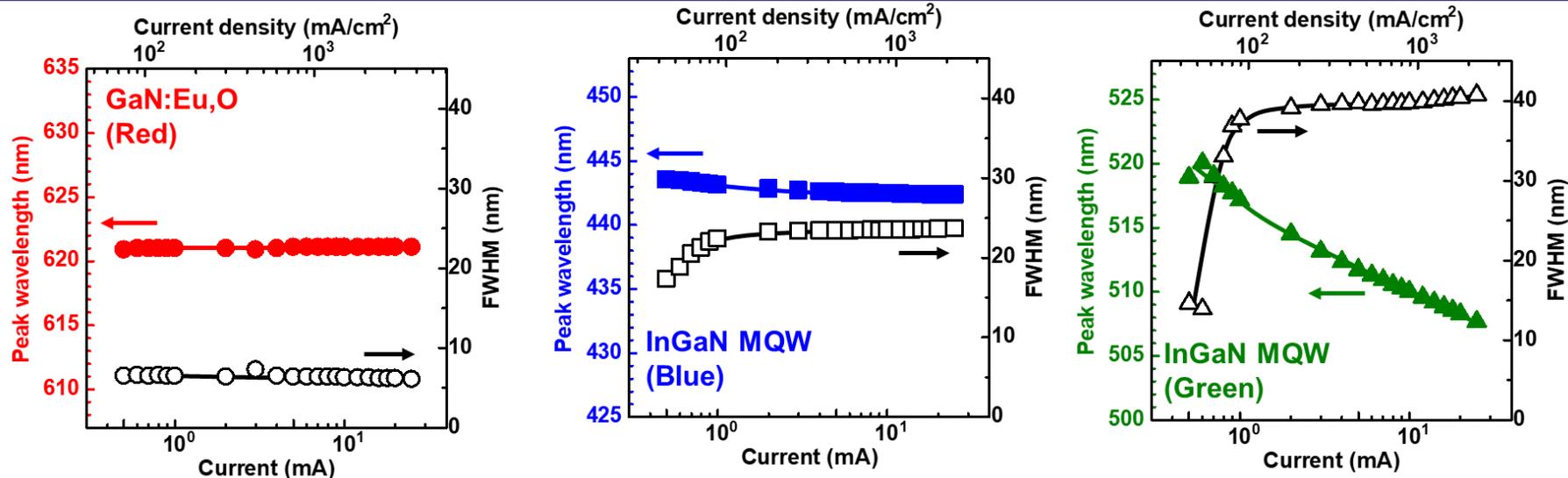
低電流注入化において (@ 0.6 mA)、
極めて高い色純度が実現された
RGBそれぞれ、**100%**, **97.1%**, **99.7%**

最大色域

Standard	Area ratio	Coverage ratio
Rec.709	199.4%	100%
DCI-P3	147.0%	96.5%
Rec.2020	105.5%	91.2%

同一サファイア基板上縦集積
かつ極めて広い色域を実現

ピーク波長の注入電流量依存性



注入電流に対する波長安定性

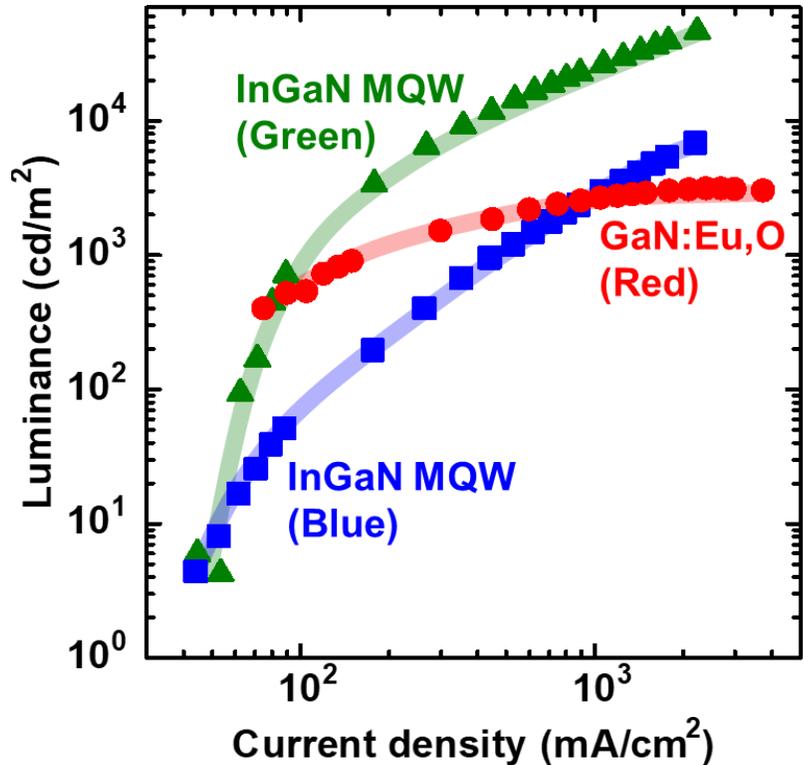
Red \gtrsim Blue \gg Green

バンドフィリング・スクリーニング効果により
高電流注入時に緑色InGaN LEDにおいて
顕著なブルーシフト

⇒ 高電流注入時に色純度も劣化

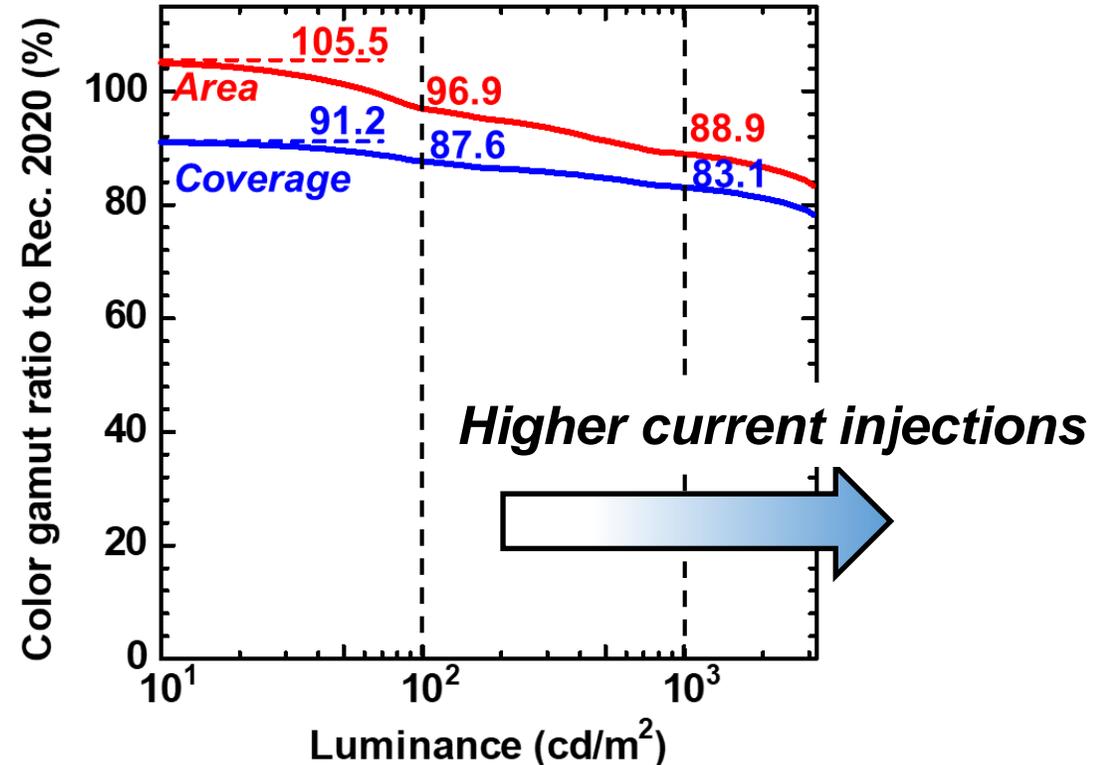
輝度と色域の注入電流依存性

注入電流密度と輝度



RGB LEDの最大輝度 ~3100 cd/m²
(Eu発光の飽和により制限)

輝度とRec.2020に対する色域比

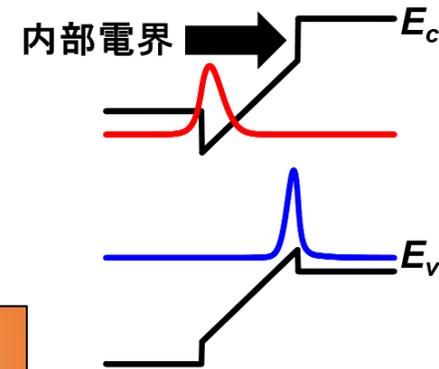
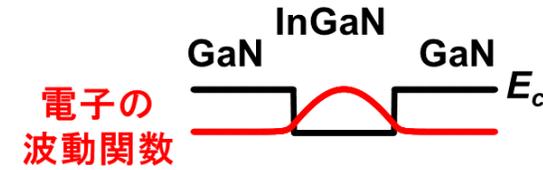
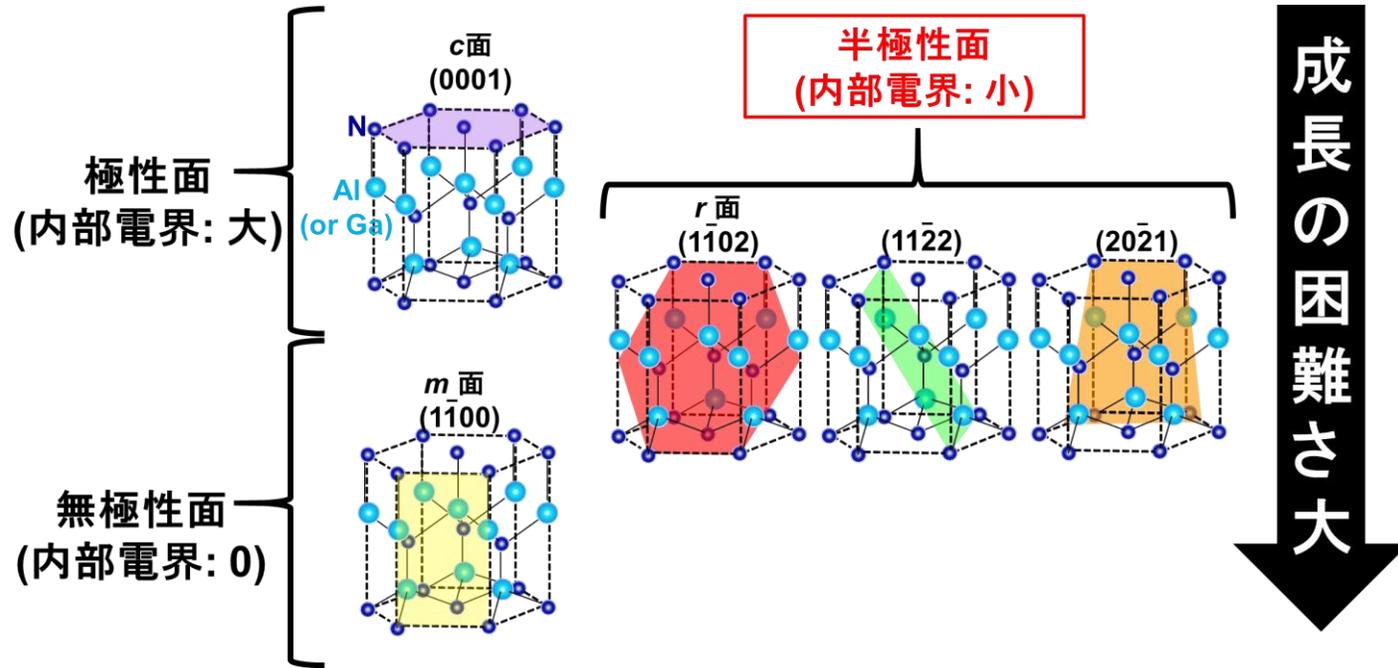


Comparing with the standard of Rec.2020,

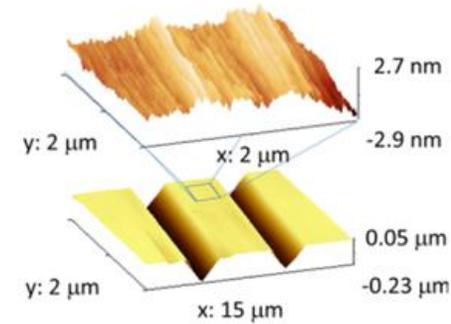
Area ratio: 88.9%
Coverage ratio: 83.1% @1000 cd/m²

半極性面InGaN量子井戸成長への展開

InGaN発光の高効率化にむけた結晶成長面制御

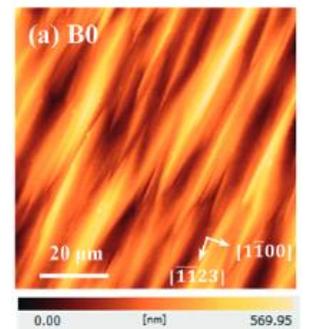


(2021)面上GaN



B. Leung et al.,
Appl. Phys. Lett. **104**, 262105 (2014).

(1122)面上GaN

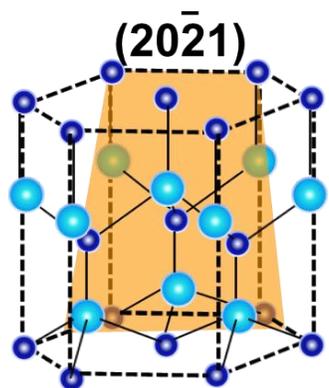


Z. Wu et al.,
Cryst. Eng. Commun. **21**, 244 (2019).

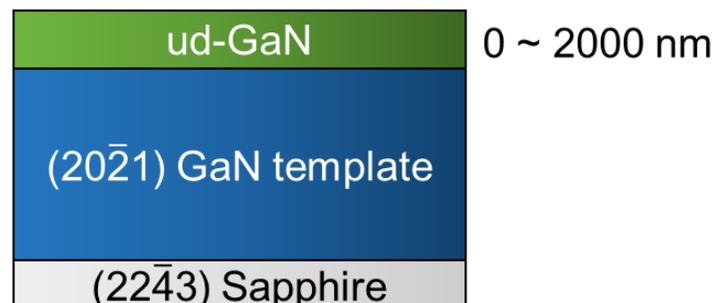
- 半極性面上への量子井戸成長で内部電界を抑制
- ✓ 輻射再結合寿命の短寿命化
 - ✓ 高電流注入時の波長シフト抑制

半極性(20 $\bar{2}$ 1)面上成長時のファセット形成

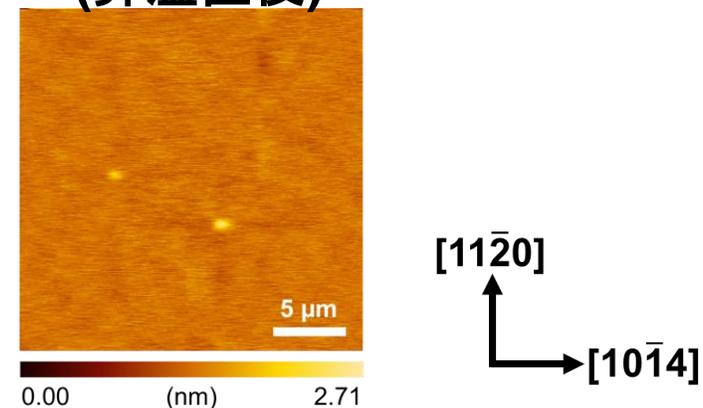
◆ud-GaNの成長膜厚に対する表面形状の変化を観察



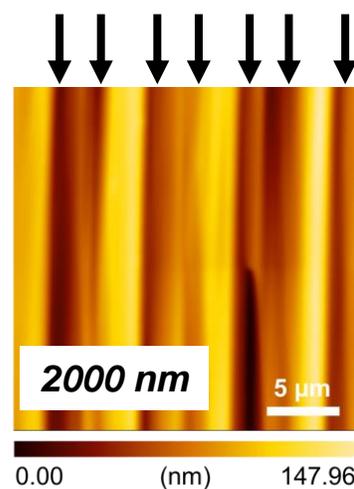
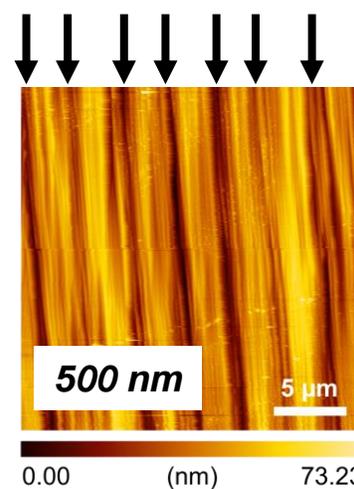
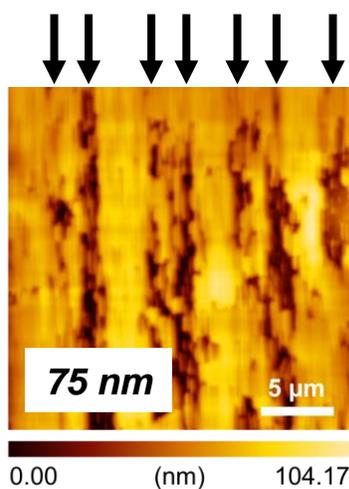
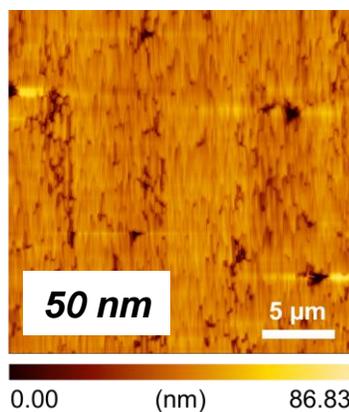
試料構造



成長前
(昇温直後)



AFM像



成長初期に生じたピットに起因し、マクロファセットが形成

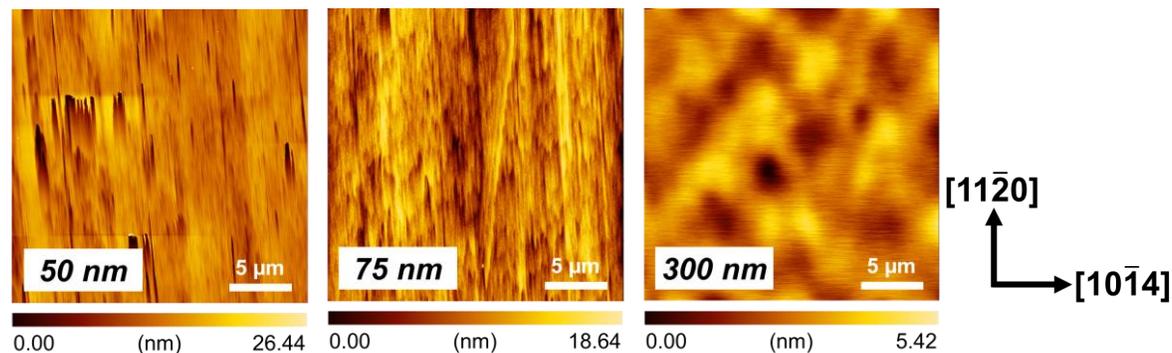
半極性(20 $\bar{2}$ 1)面Eu添加GaN成長時の表面改善

- ◆ テンプレート上にGaN:Euを成膜し、成長過程を観察

試料構造



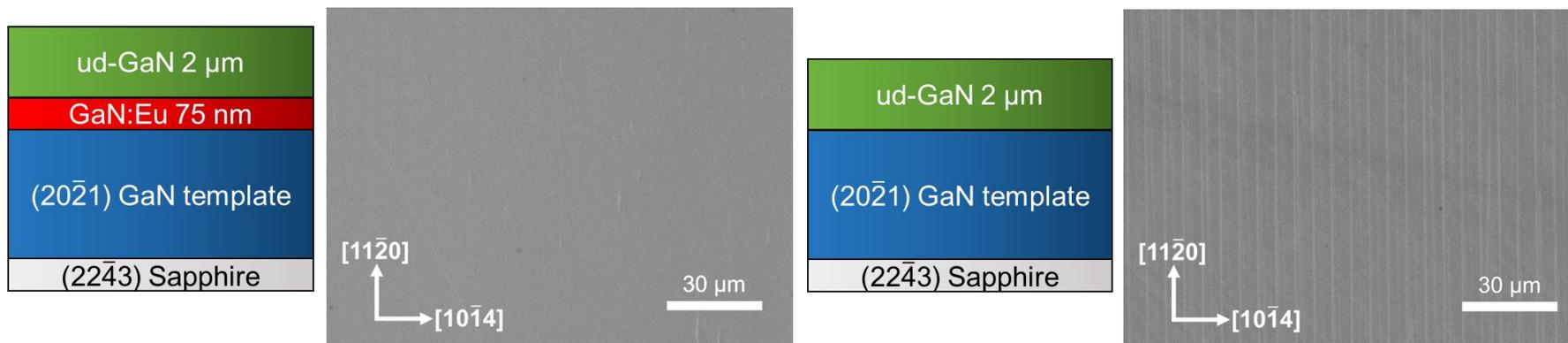
AFM像



- ✓ 75 nm程度の成長で、表面ピットが消滅

- ◆ ピット消滅後にud-GaNを成膜

成長後の表面SEM像



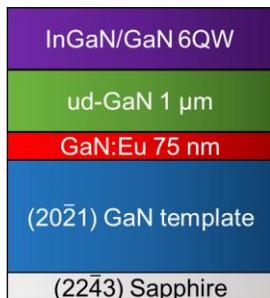
- ✓ ud-GaN成膜時にも、反射率を維持



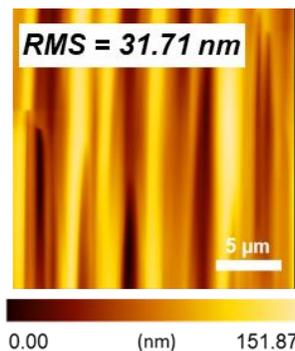
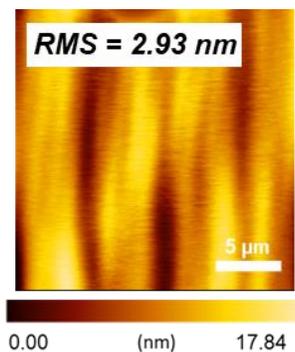
試料全域でマクロファセットを抑制

半極性(20 $\bar{2}1$) InGaN量子井戸成長におけるEu中間層の適用

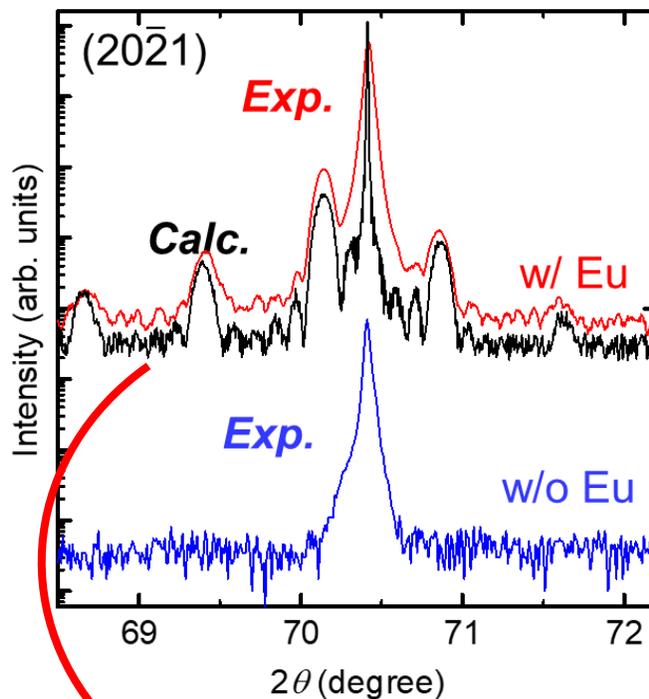
試料構造



AFM像

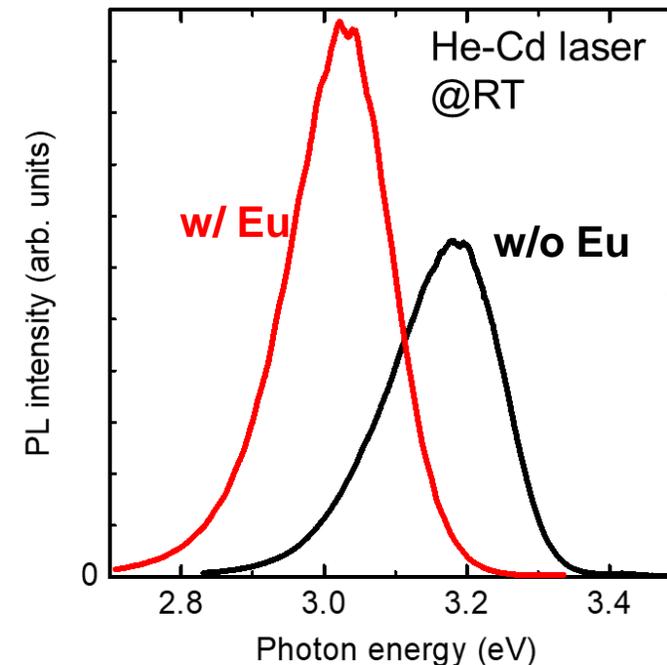


XRD 2 θ - ω スキャン



In組成: 11%, 井戸層幅: 2.7 nm

PLスペクトル



半極性面InGaN成長でも表面の平坦化・界面の急峻化

GaN:Eu層の導入により、
発光エネルギー・強度の
面内均一性が大幅に向上

まとめ

- GaN (0001) 微傾斜表面へのEu不純物添加によりマクロステップを抑制しつつ転位密度の低減を実現
- マクロステップ端へのEuの優先取り込みが示唆
⇒テラス上のGaN核成長が誘発されることでマクロステップが消滅か
- 適度な歪緩和を促す不純物添加が持続的なマクロステップ解消に有用
⇒傾斜表面でバンチングフリー表面でのpn制御可能
- InGaNなどの混晶層への適用が可能
⇒面内で均一な発光を実現
⇒歪緩和効果により高温成長でもInの取り込み増加
- マイクロLEDや非極性面成長、電子デバイス等のさらなる展開に期待