

照明用白色LEDに向けた 低転位 GaN 基板の優位性

善積祐介*・吉田喬久・京野孝史
上野昌紀・中村孝夫

Advantages of Employing the Freestanding GaN Substrates with Low Dislocation Density for White Light-Emitting Diodes Toward Solid-State Lighting — by Yusuke Yoshizumi, Takahisa Yoshida, Takashi Kyono, Masaki Ueno and Takao Nakamura — To improve the luminous efficiency of white light-emitting diodes (LEDs) for general lighting, the InGaN-based-LEDs with thick quantum wells (QWs) were examined on our unique freestanding gallium nitride (GaN) substrates with low dislocation density. With LEDs on sapphire substrates, which are currently commonly-used, the crystalline quality of QWs was deteriorated and the luminous efficiency was degraded with the increase in the total thicknesses of InGaN QWs. On the other hand, on the GaN substrates with low dislocation density, the luminous efficiency at high current density was successfully improved without the deterioration of crystalline quality by increasing total thicknesses of InGaN QWs. Consequently, it was performed that the utilization of thick total thicknesses of InGaN QWs and low dislocation density GaN substrates gives rise to highly efficient LEDs required for solid state lighting.

Keywords: LED, droop, GaN, InGaN, GaN substrate, dislocation, defect, QW

1. 緒言

20世紀末に開発された窒化ガリウム (GaN) 系白色発光ダイオード (LED*) は、小型・高効率・長寿命といった特徴を活かし、携帯電話向け液晶ディスプレイのバックライト光源として市場を急拡大した。さらに近年、白熱電球、さらには蛍光灯に取って代わる照明用光源への期待が非常に大きく、一部では既に実用化され、さらなる高効率化に向けた開発が盛んに行われている。

照明用白色LEDに求められる特性を以下に述べる。一般に白色LEDは、青色LEDチップに通電して生じた青色発光と、その青色発光によって光励起された蛍光体からの黄色発光とを混色して白色を生成する。蛍光灯は1メートルを超える大きさ(長さ)であるのに対し、LEDチップの大きさは、1チップあたり0.2~1ミリメートル角と非常に小さい。これ以上大きなチップでは、チップからの光の取り出し効率が悪くなるため、大きくするには限界がある。そのため、蛍光灯と同等の明るさを得るには、何十個あるいは何百個ものLEDチップを配置する必要がある。このチップ数の増加が、コストの増加を招き、LED照明普及を妨げる要因の1つとなっている。従って、青色LEDのチップ1個あたりから得られる光出力(光束)を増加させるために、できるだけ高電流密度で動作させ、その際の発光効率を向上させることが求められている。

典型的なGaN系青色LEDの発光効率と動作電流密度の関係を図1に示す。1~10 A/cm²といった携帯電話用途の低電流密度での動作時には、高い発光効率を有する。し

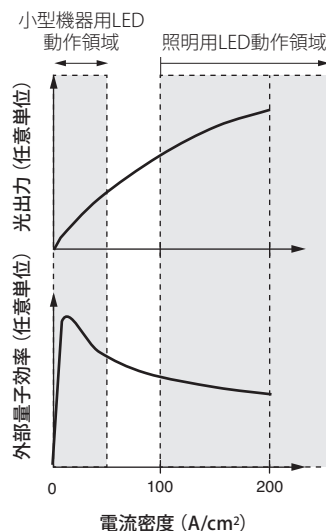


図1 典型的な GaN 系青色 LED の光出力および外部量子効率の電流密度依存性

かし、電流密度を増加するにつれて発光効率は低下し、照明用途に求められる > 100 A/cm² といった高電流密度動作時の発光効率は、最大効率の5~7割近くにまで減少することが知られている。この現象は Droop と呼ばれ、未だ原因は解明されていない。最近の報告では、高電流密度動作領域でのキャリア同士の相互作用で生じるオージェ再結

合によって、効率が低下するといったモデルが、実験と理論の両方から報告されている^{(1)~(4)}。さらに、この課題を克服するために、単位体積あたりの注入キャリア密度を低減することを目的とし、InGaN 井戸層を従来よりも厚くすることで効率を向上したという報告も成されている^{(2),(5),(6)}。

現在市販されている青色LEDの大部分は、格子定数の異なるサファイア基板上にGaN層および発光層となるInGaN井戸層をエピタキシャル成長して作製されるため、成長層内に高密度の貫通転位とよばれる結晶欠陥が存在する。一方、基板に低転位GaN基板を用いた場合には、その上のGaNエピタキシャル層は基板と同様に低転位密度とすることができ、さらには、導電性、高放熱性といった特長を活かすことができる。当社は、2003年に2インチサイズの低転位GaN基板を世界に先駆けて量産し、Blu-rayディスクの光源レーザ用基板として実用化に貢献した^{(7),(8)}。さらに、この低転位GaN基板を用いた青色LEDでは、サファイア基板を用いた場合と比較して、高電流密度動作時の発光効率向上が可能であることを示した^{(9),(10)}。当社独自の低転位GaN基板と井戸層厚み増加とを組み合わせた照明用高出力白色LED開発は、高効率化を実現できる可能性がある。そこで、本報告では、青色LEDの、特に高電流密度動作時における高効率化を目的とし、InGaN井戸層の厚み依存性および低転位GaN基板を用いる優位性の実証について報告する。

2. 実験

実験に用いた基板は、ハイドライド気相成長(HVPE^{*2})法で成長した低転位n型GaN基板および、サファイア基板上に1.5μmのn-GaN層を形成したものをを用いた。基板の面方位は(0001)面とし、基板サイズは直径2インチを用いた。貫通転位密度はそれぞれ、 $1 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ 以下および $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ であった。作製したLED構造を図2に示す。

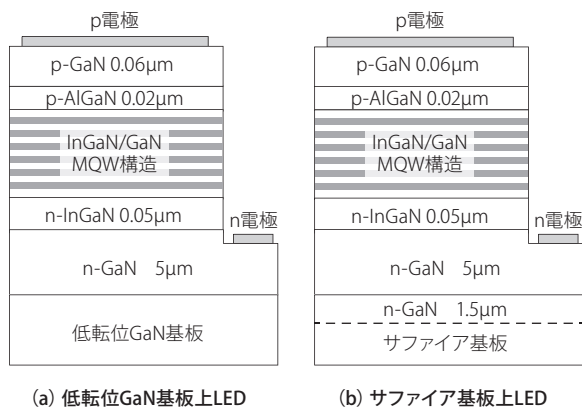


図2 LED構造

す。LED構造のエピタキシャル成長には、有機金属気相成長(OMVPE^{*3})法を用いた。基板側から、厚さ5μmのn-GaN層、厚さ0.05μmのn-InGaIn層、InGaIn量子井戸層およびGaIn障壁層からなる多重量子井戸(MQW^{*4})構造、厚さ0.02μmのp-AlGaIn電子ブロック層、厚さ0.06μmのp-GaN層で構成されている。MQW周期数は3周期および6周期とし、InGaIn井戸層厚みは、3~7nmの範囲で変化させた。InGaIn井戸層のIn組成は13~15%とし、200A/cm²通電時の発光波長が430~450nmの青色領域になるように設計した。エピタキシャル成長後、LEDの結晶品質の違いを顕微鏡を用いた発光像の観察によって行った。

基板の裏面状態の違いによる光取り出し効率の変動の影響を避けるため、全ウェハの裏面を鏡面研磨した。フォトリソグラフィ法によって、0.4×0.4mm²のp型オーミック透明電極をウェハ表面に形成した。反応性イオンエッチングによってp型層をエッチングしてメサ構造を形成した後、露出したn型層にn型オーミック電極を形成した。通電評価は、室温においてウェハ状態において行った。通電による発熱の影響を避けるため、パルス幅2μsec、Duty比5%のパルス電源を用いて行った。

3. 実験結果

3-1 発光像におけるMQW構造および転位密度の違い
 作製したLEDの結晶品質の違いを、発光像の観察によって調べた結果について述べる。InGaIn井戸層は顕微鏡を用いて波長365nmの水銀ランプで光励起するとフォトルミネッセンスによって青色発光する。しかし、欠陥が存在すると、非発光領域として観察される。図3に量子井戸構造を変化させた場合の発光像を示す。まず、6周期/井戸層厚3nmの構造に注目すると、サファイア基板上LEDおよびGaIn基板上LEDの両者で均一な発光像が得られた。この構造から、井戸層厚を5nm、7nmと厚くした場合の変化に着目すると、GaIn基板上LEDでは顕著な変化は見られないのに対し、サファイア基板上LEDでは非発光領域が増加し、井戸層厚7nmの場合には、ほぼ全面が非発光領域となることがわかった。これらのことから、サファイア基板上LEDでは、InGaIn井戸層厚み増加による結晶品質が悪化し易いのに対し、低転位GaIn基板上LEDではInGaIn井戸層の結晶品質を良好に保つことができることがわかった。次に、MQW周期数の違いに注目する。6周期/井戸層厚5nm構造では、サファイア基板を用いた場合に非発光領域が観察されたが、3周期/井戸層厚5nm構造では、サファイア基板でも非発光領域の発生が無いことがわかった。すなわち、サファイア基板上での非発光領域発生し易さは、井戸層厚みで決まるのではなく、(井戸層厚み)×(周期数)で計算される井戸層合計厚みで決まると考えられる。図3には、この値も示した。この値が増加すると、InGaIn井戸層とGaIn層との格子不整合に起因す

量子井戸周期数	3周期		6周期		
	井戸層厚み	5 nm	3 nm	5 nm	7 nm
井戸層合計厚み	9 nm	15 nm	18 nm	30 nm	42 nm
サファイア 基板上LED					
低転位GaN 基板上LED					

図3 発光像における非発光領域のMQW構造の違い

る歪みが増加し、サファイア基板上LEDでは、蓄積された歪みが貫通転位部で緩和され、結晶品質悪化を招くと考えることができる。

3-2 発光効率におけるMQW構造および転位密度の違い
次に、LEDに通電した場合のLED特性におけるMQW構造の依存性について述べる。図4に200 A/cm²における外部量子効率のInGaN井戸層合計厚み依存性を示す。図3の議論で、InGaN井戸層合計厚みと発光像に相関が見られたことから、横軸をInGaN合計膜厚としている。外部量子効率が一般的な報告値（～数10%）よりも低いのが、これは、光取り出し効率の低いウェハ状態での測定によるためである。図4において、サファイア基板上LEDに注目すると、InGaN合計膜厚が18 nm以下の場合、InGaN合計厚み増加とともに外部量子効率は増加したが、InGaN合計厚みが18 nm以上に場合は、逆に外部量子効率が低下

した。この外部量子効率の低下は、図3に見られた非発光領域によって、InGaN井戸層の結晶品質が低下したことが原因と考えられる。これらのことから、サファイア基板では、InGaN合計厚みに上限が存在し、今回の実験では18 nmと考えることができる。

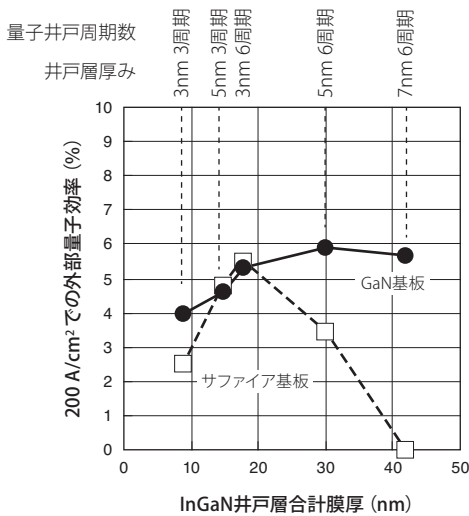


図4 外部量子効率のInGaN合計膜厚依存性

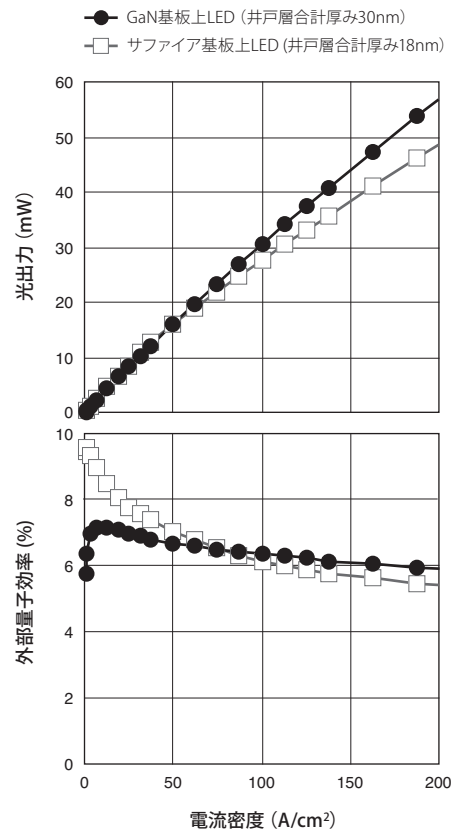


図5 GaN基板上LEDおよびサファイア基板上LEDの光出力と外部量子効率（外部量子効率が一般的な値より小さいが、光取り出し効率の低いウェハ状態での測定によるため）

次に、低転位 GaN 基板上 LED に注目する。低転位 GaN 基板では、InGaN 合計膜厚増加にともなって外部量子効率は向上した。InGaN 合計膜厚 30 nm で最大値を取り、30 nm 以上 42 nm 以下の厚みにおいて、飽和傾向にあることがわかった。図 3 に示したように、低転位 GaN 基板上 LED では、InGaN 合計厚みを増加しても発光像に顕著な非発光領域は発生しないことから、サファイア基板上 LED で見られたような結晶品質悪化は極めて小さいと考えられる。

図 5 に、GaN 基板およびサファイア基板上で最も高い効率が得られた構造での光出力と外部量子効率の電流密度の比較を示す。200 A/cm²での光出力は、サファイア基板上 LED で 49 mW であったのに対し、GaN 基板上では 57 mW が得られ、光出力を 16 % 向上させることに成功した。外部量子効率に着目すると、サファイア基板上 LED では最大値の約 9.5 % から電流密度増加につれて効率は約 5.5 % に大きく低下する一方、GaN 基板上 LED では、最大値 7 % から電流密度増加につれて低下は見られるものの、6 % を維持した。すなわち、Droop を低減することに成功した。

今回の実験では、Droop の原因がオージェ再結合かどうかを特定するには至らないが、低転位 GaN 基板の採用と InGaN 井戸層合計厚み増加によって、単位体積あたりの注入キャリア密度を効果的に減らすことに成功し、高電流密度動作時の発光効率を向上できた。

3-3 MQW 結晶品質における転位密度の違い

図 3 および図 4 に示したとおり、井戸層合計膜厚が 30 nm となる 6 周期 / 井戸層厚 5 nm 構造では、基板の転位密度の違いによって、発光像における非発光領域の発生量が異なり、また、200 A/cm² 動作時の外部量子効率も大きな違いがあることがわかった。原因を明らかにするため、走査型透過電子顕微鏡 (STEM^{*5}) 観察を行った。観察試料の作製には、集束イオンビーム (FIB^{*6}) 法を用いたマイクロサンプリングによって行った⁽¹¹⁾。電子線の加速電圧は

200 kV とし、<11-20> 方向より電子線を入射した。図 6 (a) は低転位 GaN 基板上 LED の断面 STEM 像であり、急峻な界面を有し均一な MQW 構造を作製できていることがわかる。図 6 (b) はサファイア基板上 LED の断面 STEM 像である。図内に矢印 (1) で示す欠陥は、n-GaN 層 / サファイア基板の界面で発生し、MQW まで伝播した貫通転位である。また、矢印 (2) で示すような MQW 内において新たに発生した転位も存在する。さらに、矢印 (3) の領域では、明暗に別れた不均一なコントラストが観察された。これは、組成分析の結果から、InGaN 井戸層の In が分解又は析出した領域であることがわかった。図 3 および図 4 の結果とあわせて考察すると、n-GaN 層 / サファイア基板界面で生じた貫通転位を起点に、井戸層に蓄積された歪みが緩和され、InGaN の分解あるいは析出、転位といった新たな欠陥を発生させていると考えられる。すなわち、これがサファイア基板上で InGaN 井戸層の合計膜厚を厚くすることを制限していると言える。一方、低転位 GaN 基板上では、InGaN 井戸層厚みを増加させても結晶品質の良好な層構造を作製することが可能であり、その結果として、高電流密度動作時の発光出力および発光効率を向上させることが可能である。

4. 結 言

白色 LED の高電流密度動作時の高効率化を目的に、低転位 GaN 基板およびサファイア基板上に InGaN 井戸層厚みを増加させて青色 LED を作製した。一般的に広く用いられているサファイア基板上 LED では、InGaN 井戸層合計厚みを 18 nm 以上に増加すると、発光像に非発光領域が出現し、STEM 像では新たな欠陥の発生が観察され、これが原因となって外部量子効率は低下した。一方、低転位 GaN 基板上 LED では、InGaN 井戸層合計膜厚を 30 nm 以上に増加しても非発光領域の発生は無く、単位体積あたりの注

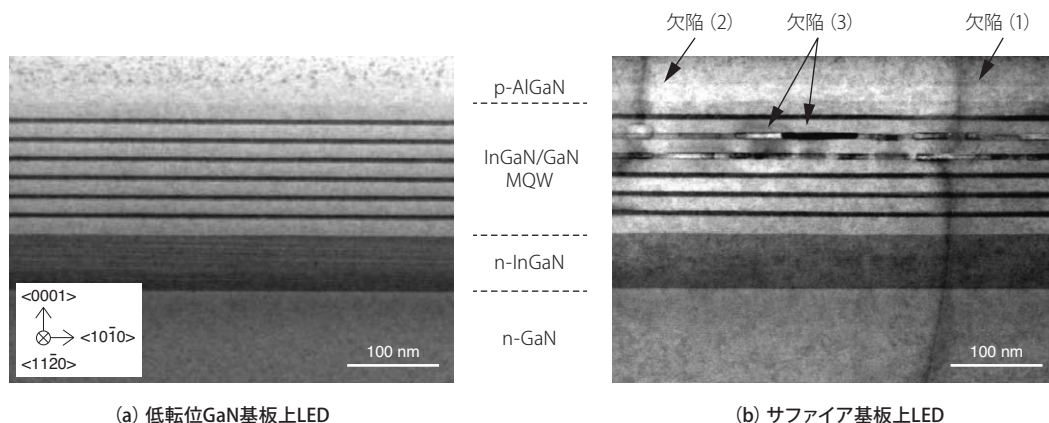


図 6 低転位 GaN 基板上 LED とサファイア基板上 LED における MQW 領域の断面 STEM 像

入キャリア密度低減に成功し、その結果、外部量子効率の向上にも成功した。

当社では、低転位6インチGa_N基板および低コストGa_N基板作製技術開発にも取り組んでいる^{(12)、(13)}。これらの低コスト低転位基板と井戸層厚み増加を組み合わせることによって、今後の白色LEDに求められる高効率化、低コスト化を実現し、LED照明普及の突破口につなげる所存である。

用語集

※1 LED

Light Emitting Diode：電流を注入し電子の持つエネルギーを光に変換する半導体素子。

※2 HVPE

Hydride Vapor Phase Epitaxy：V族原料に水素化物ガスをを用いる気相成長方法。

※3 OMVPE

Organometallic Vapor Phase Epitaxy：構成元素の原料に有機金属化合物蒸気を用いる気相成長方法。

※4 MQW

Multiple Quantum Well：バンドギャップが小さい厚さ数nmの量子井戸層をバンドギャップが大きい障壁層で挟んだ多層の積層構造。

※5 STEM

Scanning Transmission Electron Microscope：収束した電子線を試料上で走査し、各領域の透過波あるいは回折波を結像する電子顕微鏡。

※6 FIB

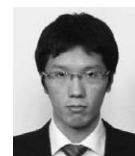
Focused Ion Beam：Ga⁺などのイオンビームでスパッタエッチすることによって、試料の特定位置から微小領域を選択して切り出す方法。

参考文献

- (1) Y. C. Shen, G. O. Mueller, S. Watanabe, N. F. Gardner, A. Munkholm and M. R. Krames, "Auger recombination in InGa_N measured by photoluminescence" Appl. Phys. Lett. 91 (2007) 141101
- (2) A. Laubsch, M. Sabathil, J. Baur, M. Peter and B. Hahn, "High power and high efficiency InGa_N based light emitters" IEEE Trans. Electron Devices 57 (2009) 79
- (3) A. David and M. J. Grundmann, "Droop in InGa_N light-emitting diodes: A differential carrier lifetime analysis" Appl. Phys. Lett. 96 (2010) 103504
- (4) K. T. Delaney, P. Rinke and C. G. Van de walle, "Auger recombination rates in nitrides from first principles" Appl. Phys. Lett. 94 (2009) 191109
- (5) N. F. Gardner, G. O. Mueller, Y. C. Shen, G. Chen, S. Watanabe, W. Gotz and M. R. Krames, "Blue-emitting InGa_N/Ga_N double-heterostructure light-emitting diodes reaching maximum quantum efficiency above 200 A/cm²" Appl. Phys. Lett. 91 (2007) 243506
- (6) M. Maier, K. Kohler, M. Kunzer, W. Pletschen and J. Wagner, "Reduced nonthermal rollover of wide-well Ga_NN light-emitting diodes" Appl. Phys. Lett. 94 (2009) 041103
- (7) 元木健作、「窒化ガリウム基板の開発」、SEIテクニカルレビュー 175号 (2009) 10
- (8) K. Motoki, T. Okahisa, N. Matsumoto, M. Matsushima, H. Kimura, H. Kasai, K. Takemoto, K. Uematsu, T. Hirano, M. Nakayama, S. Nakahata, M. Ueno, D. Hara, Y. Kumagai, A. Koukitsu and H. Seki, "Preparation of large freestanding Ga_N substrates by hydride vapor phase epitaxy using GaAs as a starting substrate" Jpn. J. Appl. Phys. 40 (2001) L140
- (9) K. Akita, T. Kyono, Y. Yoshizumi, H. Kitabayashi and K. Katayama, "Improvements of external quantum efficiency of InGa_N-based blue light-emitting diodes at high current density using Ga_N substrates" J. Appl. Phys. 101 (2007) 033104
- (10) 秋田 他、「低転位Ga_N基板を用いた青色LEDの高効率化」、SEIテクニカルレビュー 171号 (2007) 40
- (11) 山口章、「半導体デバイスの材料解析」、SEIテクニカルレビュー 176号 (2010) 20
- (12) 住友電気工業(株)、「世界で初めて、白色LED用6インチGa_N基板を開発」、プレスリリース (2010年11月16日)
- (13) 住友電気工業(株)、「住友電工と仏ソイテック社、低コストGa_N基板の開発で協業」、プレスリリース (2010年12月1日)

執筆者

善積 祐介*：半導体技術研究所
Ga_N系エピタキシャル成長技術開発に従事



吉田 喬久：半導体技術研究所
京野 孝史：半導体技術研究所 主査 博士 (工学)
上野 昌紀：半導体技術研究所 グループ長 博士 (理学)
中村 孝夫：半導体技術研究所 部長 博士 (工学)

*主執筆者