

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 26 日現在

機関番号：33919

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24686003

研究課題名(和文)太陽光スペクトルに近い究極的な照明用・蛍光体フリー・白色LED

研究課題名(英文)Realization of phosphor free white LED for lighting

研究代表者

岩谷 素顕 (Iwaya, Motoaki)

名城大学・理工学部・准教授

研究者番号：40367735

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、窒化物半導体による蛍光体フリーの白色LEDの実現に向け研究を進めた。具体的には、発光強度を高めると同時にブロード発光を実現するための手法の開拓、Moth-eye構造や多層膜反射鏡技術などの光制御技術および光/電子透過型・貼り合わせ技術を活用するの3つを検討した。各項目の結果は以下の通りである。

窒化物半導体LEDのうち高効率化ができていない緑色領域においてAg微粒子を用いることによってプラズモン効果による発光強度の増大が確認できた。Moth-eye構造や多層膜反射鏡を用いることによって光取り出し効率の改善が確認できた。直接およびITOを用いた貼り合わせ技術の開拓を行った。

研究成果の概要(英文)：In this study, we examined for the realization of phosphor-free nitride semiconductor-based white light-emitting diodes (LED). In order to realize these devices, we examined as follows,

1. Increase of luminescence efficiency of nitride-based green LED due to a plasmon effect by using an Ag fine particles. 2. We confirmed that moth-eye structure (nano-structure) and the multilayer reflector have realized the increase of light extraction efficiency. 3. We developed the wafer bonding technology with direct and using ITO light transparent electrode by ion irradiation.

研究分野：半導体工学

キーワード：白色LED 貼り合わせ技術 プラズモン ナノ構造 光取り出し効率 緑色LED

1. 研究開始当初の背景

GaN系III族窒化物半導体は、青色・緑色・白色LEDや青紫色半導体レーザ、さらには高速・ハイパワーFET等が実用化されている。特に白色LEDは、小型・高効率・長寿命など優れた特長を有しており、照明やディスプレイ等のバックライトなど幅広い応用が期待されており日亜化学㈱、豊田合成㈱を始め世界中で研究されている。現在市販されている白色LEDのほとんどは、青色LEDによりYAG:Ceなどの黄色蛍光体を励起し、青色+黄色による擬似白色を得る方法がひろく用いられている。この白色LEDの高性能化は、主に青色LEDの高性能化によって達成されている。具体的には、III族窒化物半導体発光層の量子井戸構造を用い、転位等の格子欠陥や格子の揺らぎの除去によって、発光強度を増大させている手法は必須の技術となっている。これらの改善によって、現在では249 lm/Wという蛍光灯(80~100 lm/W)を凌駕する効率のものが実現されている。

しかしながら、格子欠陥や格子の揺らぎの除去によって青色LEDがシャープな発光となってしまうため、現状の白色LEDは太陽光とは大きく異なったスペクトルになってしまう。そのため、(1)演色指数(物体の色見え方に及ぼす光源の性質:太陽光を100)が低くなってしまふ。さらに、(2)青色から黄色の光に変換するときに約25%のストークスロスが生じる(3)発光色の微調整が困難(4)発光体塗布による歩留まりの低下など、原理的な課題は多い。また、3原色のLEDを用いた白色LEDもあるが、これらもシャープなスペクトルを持ったLEDを用いているため太陽光スペクトルに近い理想的な照明用光源とはならない。

2. 研究の目的

本研究課題では、研究代表者が有する技術的な裏付けを基に、『太陽光スペクトルに近い究極的な照明用・蛍光体フリー・白色LED』を実現するための基盤技術を開拓することを目的に研究を進める。

3. 研究の方法

本研究課題では、先述の課題を実現するために、以下の3つの検討を行い、基盤技術の開拓を進めた。具体的には、銀ナノ粒子を用いたプラズモン効果による緑色LEDの発光効率の向上、ITOおよび直接貼り合わせ技術の開拓、さらには誘電体多層膜ミラーおよびMoth-eye構造と呼ばれるナノ構造を用いた光取り出し効率の向上を系統的に検討した。またLEDの電力変換効率を向上するために、n型層の低抵抗化に関しても検討を行った。

4. 研究成果

本研究課題では以下のような結果が得られた。

Agナノ粒子を用いたプラズモン効果に

よる緑色LEDの発光効率の向上の確認

窒化物半導体において、青色LEDの発光効率は既に内部量子効率で90%を超えるものが市販されている。その一方で、長波長領域になると急激に効率が低下する。3原色LEDを用いた高効率白色LEDを実現するためには、緑色領域のLEDの発光効率を向上することが喫緊の課題である。本研究課題では、Agプラズモンの効果をLEDに適用しその有用性を検討した。図1に検討結果を示す。SP-LEDの書かれているのがプラズモン効果を適用したLEDの電流-電圧・電流-光出力・電流-量子効率特性である。図を見て分かるように、プラズモン構造を入れたことによって僅かに電圧が増大しているが、発光効率の改善が確認できた。今後、さらなる構造の最適化を進めることによって、その有用性が明らかになることが期待される。

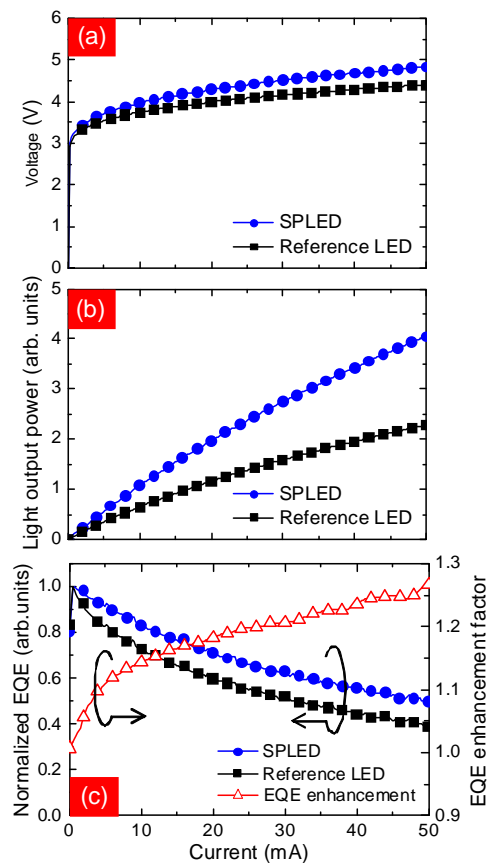


図 1

貼り合わせ技術の開拓。

窒化物半導体LEDの貼り合わせ技術の開拓を進めた。これまでに窒化物半導体とSiの貼り合わせなどは報告があるが、3原色LEDを実現することを達成するためにはLED同士の貼り合わせや透明導電膜であるITOを活用した貼り合わせ技術の開拓が不可欠である。本研究課題では、図2のようなプラズマ照射もしくはイオン照射と加圧・加熱による貼り合わせ及び加圧・加熱による直接接合を検討した。

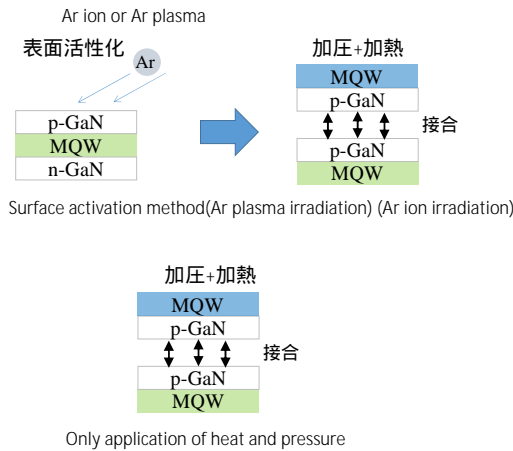


図 2

結果として、イオン照射による方法以外は基板の一部若しくは全面での貼りあわせが可能であることが確認された。一方ITOを介して作成する場合には、イオン照射による手法が有効であることが確認され、材料による依存性が大きいことが確認された。今後、デバイス応用を検討する必要がある。

n型層の低抵抗化に関する検討

白色LEDの高性能化を目指すうえでは、デバイス抵抗の低減が必要不可欠である。窒化物半導体のLEDは一般に絶縁体であるサファイア基板上に作製されていることから、p型層に比べ低抵抗率なn型層は横方向に電気を流す必要がある。しかし、薄膜であること及び伝搬長が長くなることから、LED素子全体の抵抗のうちこのシート抵抗は最も大きな割合を占めている。この問題点を解決するためには、n型層の不純物濃度を極限まで高め、それによって抵抗成分を減らすことが有効である。一般的にGaNはSiを添加することによってn型電気伝導性の制御を行っており、ほぼ全ての窒化物半導体LEDはこの方法を用いている。このSi添加という手法は比較的不純物原料に対して線形的に増大するが、不純物濃度が 10^{19}cm^{-3} を超えると、図3(a)のように表面平坦性が急激に悪化してしまうため、それ以下の不純物濃度にする必要がある。したがって、一般的には膜厚数 μm 程度のn型GaNを用いると、GaN層のシート抵抗が無視できなくなる。したがって、これを向上させる方法を確立することは重要である。本グループでは、様々な検討を行ったところ、以下の図3(b)のようにAlを数%程度加えることによって、 10^{20}cm^{-3} を超える不純物濃度でも表面平坦性の良好な膜が得られることが分かった。この手法を用いて、キャリア濃度と抵抗率の関係を検討したところ、図4のようにGaNを用いた場合に比べ、1桁以上の抵抗率の低減を確認した。さらに、同手法を窒化物半導体可視LEDに適用したところ、図5のように素子抵抗を半減することが可能となる

ことが確認でき、これらの結果は Applied Physics Express などの論文に報告した。

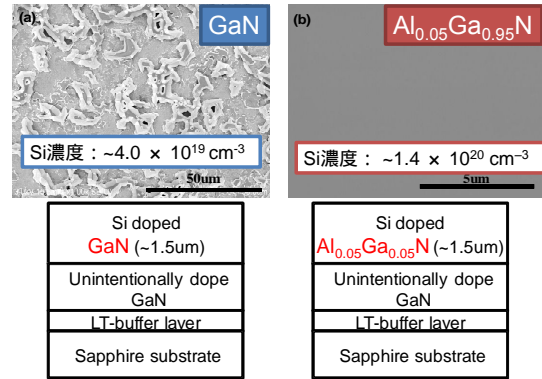


図 3

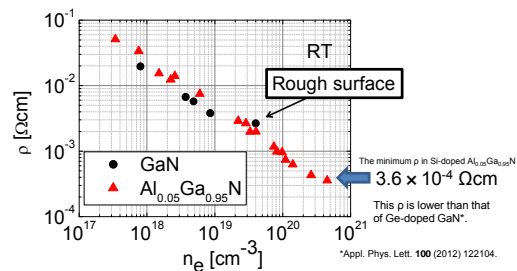
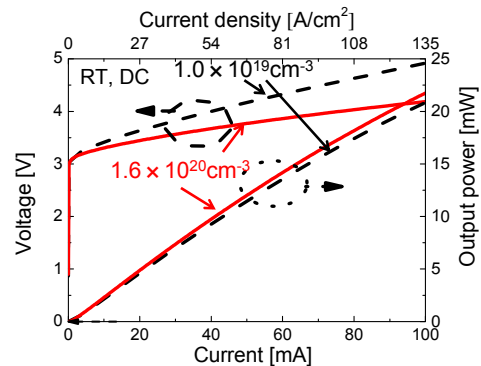


図 4

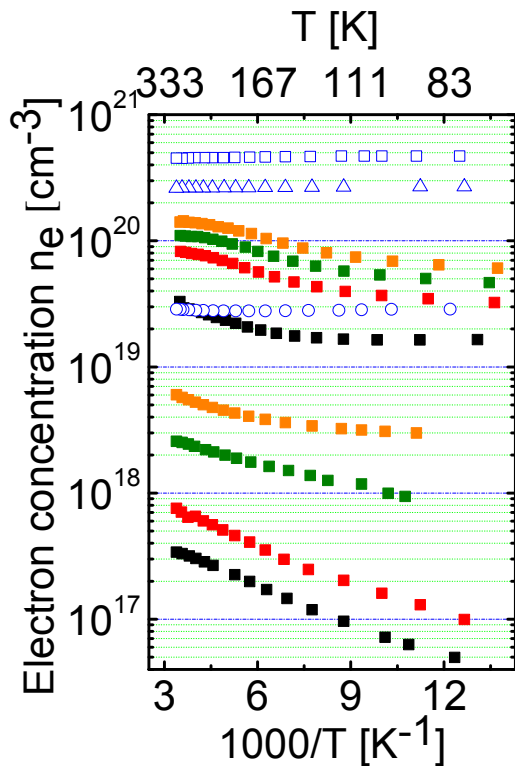


微分抵抗@100mA
14 Ω 7.2mA
20乗を超えるn型層でもIQEはほぼ同等

図 5

また、この高Si濃度AlGaInの電気的特性を詳細に調べた。具体的にはホール効果測定で温度依存性に関して詳細に調べた。図6にキャリア濃度と温度の逆数の依存性を示す。その結果として2つのサンプル群があることが明らかになった。具体的には、キャリア濃度が温度に依存する通常の不純物半導体の特性を示すサンプル群と、キャリア濃度に温度依存性が見られないサンプル群である。一般的に不純物半導体では、活性化するために必要なエネルギーが存在するため、温度が上昇するにしたがって増大する。しかし、19乗を超えるサンプル群ではこれが見られないサンプル群が存在した。詳細な物理は現在検討しているが、恐らくこの温度依存性が見られ

ないサンプル群は不純物準位の一部もしくは全てが伝導帯内に含まれてしまっているためにこのような現象が起きていると考えられる。一方、通常の不純物半導体の性質を示すサンプル群においてもキャリア濃度が増大するにしたがってキャリア濃度の増大の傾きが異なっていることが確認できた。各サンプルの活性化エネルギーと不純物濃度の1/3乗の関係を検討したところ図7のように線形的に変化していることからこの結果はクーロン相互作用によるものであることが示唆される結果となった。このような特異な現象は窒化物半導体ではこれまで報告例



がなく、学術的にさらなる検討が必要であると考えられる。

図 6

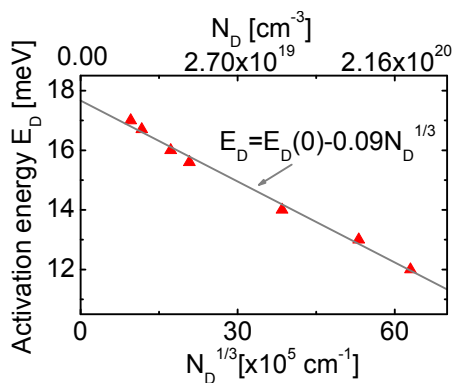


図 7

GaN 基板を用いた LLO 法の確立
本研究課題が志向する、高性能な LED を作製するためには、最終的に基板中に含まれる転位密度の低減が不可欠である。先述のよう

に窒化物半導体 LED の多くはサファイア基板上に作製されているが、これらには 10^8cm^{-2} を超える貫通転位が含まれており、この低減が不可欠である。この低減のために最も有効なのはバルク GaN 基板を用いることであり、それによって 2~3 桁程度の転位密度の低減が可能となる。しかし、GaN 基板を用いた場合 GaN の光吸収や基板自体が厚いため貼り合わせ技術を活用することが困難となる。そこで、本研究課題では、GaN 基板から LED その剥離する技術の確立をはかった。

一般的に、サファイア基板上から LED の剥離には紫外レーザーを用いることによって基板と GaN 層の界面を融解して剥離する手法が確立している。一方、GaN 基板では、基板と LED 層の GaN が同じ材料であるため、選択的に融解させる手法が用いることができない。本研究課題ではその問題点を解決することを検討した。図 8 にそのサンプル構造、サンプルの結晶成長タームシーケンスおよびレーザーリフトオフを用いた LED 作製のプロセス工程を示す。GaN 基板の界面に GaInN 層を形成し、その後熱処理によって GaInN を熱分解し、In ドロプレットを形成し、そこに可視光レーザーを照射することによって In を再融解させ最終的に LED 層のみを剥離する方法を検討した。結果として、In ドロプレットを形成することによって LED 部のみを GaN 基板から剥離することが可能となり、また高性能な LED が実現可能であることが確認された。

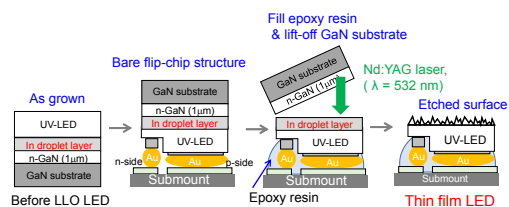
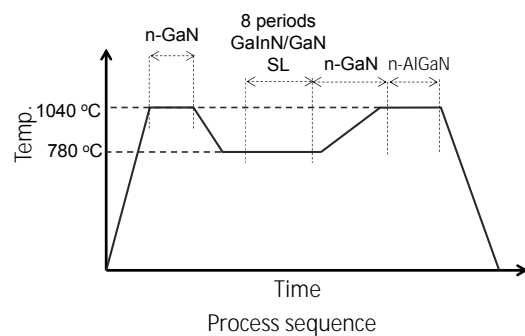
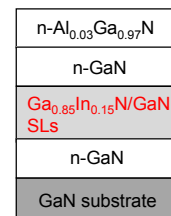


図 8

具体的な得られた結果に関して次に説明する。図9に作製したLEDの発光スペクトルおよびその発光写真を示す。GaN基板中には不純物が含まれていることから、GaN基板が残っているLEDの方は本来活性層からの発光である400nm帯の発光に加えて黄色の蛍光が確認できるが、GaN基板からLEDを剥離したサンプルにおいては黄色の蛍光発光が確認できず、発光写真からもその違いが確認できる。一方電流-電圧特性・電流-光出力特性を図10に示す。電流電圧特性はほぼ同程度の特性が得られており、これはLL0によって活性層にダメージ等が入っていないことを示唆していると考えられる。一方、光出力特性には改善が見られ、これはGaN基板の光吸収が抑制されたこと等により光取り出し効率が改善したことなどが要因であったと考えられる。以上から、貼り合わせ技術と組み合わせることによって3原色LEDの貼り合わせが可能であることが確認できた。

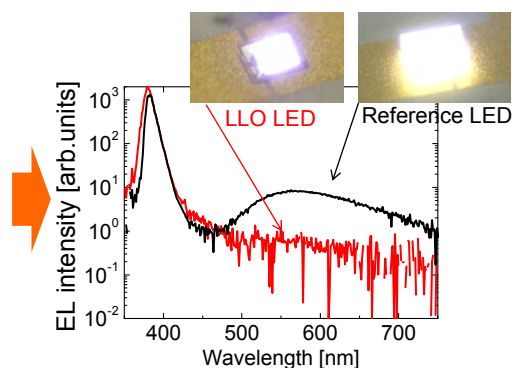


図9

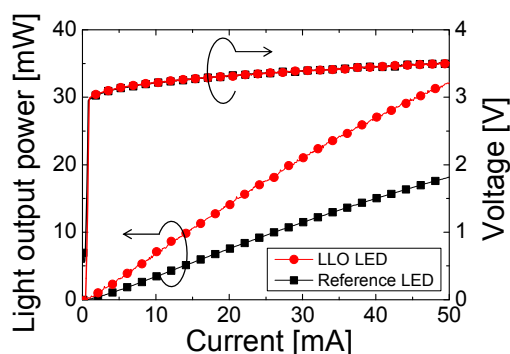


図10

その他、Moth-eye構造や半導体多層膜・誘電体多層膜による高反射率電極の改善によって光取り出し効率の改善に関する見聞が得られた。

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18件)

1. "In situ X-ray diffraction monitoring of GaInN/GaN super lattice during organometallic vapor phase epitaxy growth" Taiji Yamamoto, Daisuke Iida, Yasunari Kondo, Mihoko Sowa, Shinya Umeda, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki: Journal of Crystal Growth 393 (2014) 108.
2. "Extremely Low-Resistivity and High-Carrier-Concentration Si-Doped Al_{0.05}Ga_{0.95}N" Toru Sugiyama, Daisuke Iida, Toshiki Yasuda, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama and Isamu Akasaki: Applied Physics Express Vol. 6 (2013) 121002.
3. "Homoepitaxial growth of AlN layers on freestanding AlN substrate by metalorganic vapor phase epitaxy" Tomohiro Morishita, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki: Journal of Crystal Growth Volume 390 (2014) pp. 46-50.
4. "Multijunction GaInN-based solar cells using a tunnel junction" Hironori Kurokawa, Mitsuru Kaga, Tomomi Goda, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki and Hiroshi Amano: Applied Physics Express Vol. 7 (2014) 034104.
5. "Control of growth mode in Mg-doped GaN/AlN heterostructure" Tomohiro Morishita, Kosuke Sato, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama and Isamu Akasaki: Japanese Journal of Applied Physics Vol. 53 (2014) 030305.
6. "Control of crystallinity of GaN grown on sapphire substrate by metalorganic vapor phase epitaxy using in situ X-ray diffraction monitoring method" Motoaki Iwaya, Taiji Yamamoto, Daiki Tanaka, Daisuke Iida, Satoshi Kamiyama, Tetsuya Takeuchi, Isamu Akasaki: Journal of Crystal Growth 401 (2014) 367-371.
7. "Laser lift-off technique for freestanding GaN substrate using an In droplet formed by thermal decomposition of GaInN and its application to light-emitting diodes" Daisuke Iida, Syunsuke Kawai, Nobuaki Ema, Takayoshi Tsuchiya, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, and Isamu Akasaki: Applied Physics Letters 105 (2014) 072101.
8. "Nitride-based hetero-field-effect transistor-type photosensors with extremely high photosensitivity" Mami Ishiguro, Kazuya Ikeda, Masataka Mizuno, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, and Isamu Akasaki: Physica Status Solidi RRL 7 (2013) 215-217.

9. "Analysis of strain relaxation process in GaInN/GaN heterostructure by in situ X-ray diffraction monitoring during metalorganic vapor-phase epitaxial growth" Daisuke Iida, Yasunari Kondo, Mihoko Sowa, Toru Sugiyama, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, and Isamu Akasaki: Physica Status Solidi RRL 7 (2013) 211–214.
10. "Trench-Shaped Defects on AlGaInN Quantum Wells Grown under Different Growth Pressures" Tomoyuki Suzuki, Mitsuru Kaga, Kouichi Naniwae, Tsukasa Kitano, Keisuke Hirano, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Motoaki Iwaya, and Isamu Akasaki: Japanese Journal of Applied Physics 52 (2013) 08JB27.
11. "Control of the Detection Wavelength in AlGaIn/GaN-Based Hetero-Field-Effect-Transistor Photosensors" Mami Ishiguro, Kazuya Ikeda, Masataka Mizuno, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, and Isamu Akasaki: Japanese Journal of Applied Physics 52 (2013) 08JF02.
12. "Carrier Injections in Nitride-Based Light Emitting Diodes Including Two Active Regions with Mg-Doped Intermediate Layers" Kenjo Matsui, Koji Yamashita, Mitsuru Kaga, Takatoshi Morita, Tomoyuki Suzuki, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Motoaki Iwaya, and Isamu Akasaki: Japanese Journal of Applied Physics 52 (2013) 08JG02.
13. "Combination of Indium–Tin Oxide and SiO₂/AlN Dielectric Multilayer Reflective Electrodes for Ultraviolet-Light-Emitting Diodes" Tsubasa Nakashima, Kenichiro Takeda, Hiroshi Shinzato, Motoaki Iwaya, Satoshi Kamiyama, Tetsuya Takeuchi, Isamu Akasaki, and Hiroshi Amano: Japanese Journal of Applied Physics 52 (2013) 08JG07.
14. "Concentrating Properties of Nitride-Based Solar Cells Using Different Electrodes" Mikiko Mori, Shinichiro Kondo, Shota Yamamoto, Tatsuro Nakao, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki, and Hiroshi Amano: Japanese Journal of Applied Physics 52 (2013) 08JH02.
15. "GaInN-Based Tunnel Junctions in n–p–n Light Emitting Diodes" Mitsuru Kaga, Takatoshi Morita, Yuka Kuwano, Kouji Yamashita, Kouta Yagi, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, and Isamu Akasaki: Japanese Journal of Applied Physics 52 (2013) 08JH07.
16. "Investigations of Polarization-Induced Hole Accumulations and Vertical Hole Conductions in GaN/AlGaIn Heterostructures" Toshiki Yasuda, Kouta Yagi, Tomoyuki Suzuki, Tsubasa Nakashima, Masahiro Watanabe, Tetsuya Takeuchi, Motoaki Iwaya, Satoshi Kamiyama, and Isamu Akasaki: Japanese Journal of Applied Physics 52 (2013) 08JJ05.
17. "Study on Efficiency Component Estimation of 405 nm Light Emitting Diodes from Electroluminescence and Photoluminescence Intensities" Kazuki Aoyama, Atsushi Suzuki, Tsukasa Kitano, Satoshi Kamiyama, Tetsuya Takeuchi, Motoaki Iwaya, and Isamu Akasaki: Japanese Journal of Applied Physics 52 (2013) 08JL16.
18. "Dislocation density dependence of stimulated emission characteristics in AlGaIn/Al multiquantum wells" Yuko Matsubara, Tomoaki Yamada, Kenichiro Takeda, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki and Hiroshi Amano: physica status solidi (c) Volume 10 (2013) pp. 1537–1540.

〔学会発表〕(計 30 件)

〔図書〕(計 2 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕
ホームページ等
<http://nitride.meijo-u.ac.jp/iwaya/index.htm>

6. 研究組織
(1) 研究代表者
岩谷 素顕 (Iwaya Motoaki)
名城大学・理工学部・准教授
研究者番号：40367735

研究分担者および連携研究者は特にはない。