

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 29 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13344

研究課題名（和文）高効率・高出力を両立するAlInN発光デバイスの実現

研究課題名（英文）Realization of high-power and high-efficiency light-emitting devices based on AlInN

研究代表者

小島 一信 (Kojima, Kazunobu)

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号：30534250

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：有機金属気相成長法によって成長したm面AlInNエピタキシャルナノ構造の構造解析および光物性の評価を行った。AlInNの結晶性は、ハイドライド気相成長法にて作製された低転位密度m面自立GaN基板上にコヒーレントに成長されたことで極めて改善した。AlInN層は1軸ないしは2軸性の異方的な歪を内包していたが、X線回折の半値幅は下地層と同等の低い値を示した。このようなm面AlInNエピタキシャルナノ構造を用いて、深紫外・青・緑色波長領域で動作する、蛍光表示管型の偏光発光素子を作製した。

研究成果の概要（英文）：Structural and optical characterization were performed for thin m-plane AlInN epitaxial nanostructures grown by metalorganic vapor phase epitaxy. Crystal qualities of AlInN were remarkably improved via coherent growth on a low defect density m-plane freestanding GaN substrate prepared by hydride vapor phase epitaxy. All the epilayers unexceptionally suffer from uniaxial or biaxial anisotropic in-plane stress. However, full-width at half-maximum values of the x-ray x-rocking curves were nearly unchanged as the underlayer values being 80 ~ 150 arcsec. Applying the m-plane AlInN epitaxial nanostructures, planar vacuum fluorescent display devices emitting polarized DUV, blue, and green light were demonstrated.

研究分野：半導体光物性

キーワード：AlInN 深紫外光源 非極性面

1. 研究開始当初の背景

現在、地球上で安全な水を飲めない人口は11億人、清潔な公衆衛生が保たれていない人口は26億人と言われている。このような状況を打開し、安全な環境を提供して世界に貢献できる方法の一つに、波長260-280nmの高効率深紫外(DUV)固体光源を低コストで開発する事が挙げられる。この用途に適する医療・消毒・殺菌用光源として、また、超高密度光記録や見通し外通信用の光源として、さらに大型ガスレーザーや各種大型励起光源の固体化による小型化を目指して、波長300nm台から200nmを切る紫外線(UV)~DUV光を呈する光源の開発が望まれている。

2. 研究の目的

DUV光を呈する小型固体素子開発の主流は、窒化アルミニウムガリウム(AlGaIn)量子井戸を活性層とする発光ダイオード(LED)の開発であり、これまでに日米をはじめ数多くの研究機関や企業等がその性能向上について報告している。その理由は、図1から分かるように、 AlGaIn 混晶のバンドギャップエネルギーがDUVからUV波長領域に渡っており、 AlN モル分率を50%程度にすれば波長約280nmに届くこと、 AlGaIn の結晶成長が、 AlInN と比較すると遥かに容易であることが挙げられる。ここで、 AlGaIn の結晶成長には、青色LEDを製造する際に用いられている、有機金属気相エピタキシャル成長(MOVPE)法が用いられている。しかしながら、青色LEDのような高効率化や低コスト化が困難で、民生品としての実用化を阻んでいる。

一方で、図1から、 AlN と InN を混ぜた AlInN 混晶もDUVやUV光源用材料として期待して良いと読み取れる。しかし、 InN と AlN の格子定数が14%異なるうえ、 AlN と InN のMOVPE結晶成長に適する温度が 1600°C 以上と 400°C 以下で全く異なっており、熱力学的に混ざりにくい「非混和系」である。また、格子定数の違いも AlN と GaN の場合より大きく、高品質な結晶の成長が極めて困難であり、光デバイスの発光層として用いられた実績はない。しかしながら、この混晶の高品質結晶を成長できるようになった場合、これまで AlGaIn と InGaIn で実現してきたデバイスもすべて AlInN だけで実現できる可能性があるため、ある種、 AlInN は究極の窒化物半導体混晶と言える。また、窒化物半導体発光素子の発光効率向上のためには一般論として、電子と正孔の輻射再結合確率を低下させる、ヘテロ界面における分極不連続に因る量子閉じ込めシュタルク効果を排除する目的で極性の無い面(非極性面)上に結晶成長を行う事が望ましい。

そこで本研究では、 $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ 混晶を m 面成長させて材料の基礎物性とポテンシャルを明らかにし、電子線励起型発光素子の試作を行った。

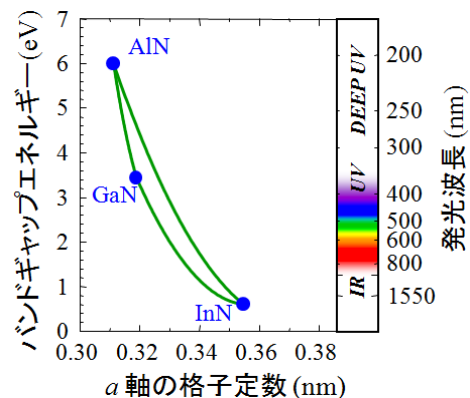


図1 III族窒化物半導体のバンドギャップエネルギーと格子定数の関係。

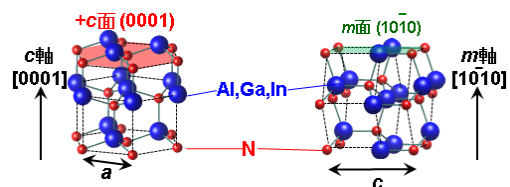


図2 極性面(c面)と非極性面(m面)。

3. 研究の方法

三菱ケミカル製ハイドライド気相エピタキシャル成長 m 面 GaN 基板に、有機金属気相エピタキシー(MOVPE)法を用いて AlInN 結晶の成長を行った。成長させた試料は、X線回折による結晶構造の評価、原子間力顕微鏡による表面状態の観察に加え、高角度環状暗視野走査透過型電子顕微鏡(HAADF-STEM)を用いた断面構造観察を行った。

光学的特性の評価は、フォトルミネセンス(PL)やカソードルミネセンスを用いた分光評価、分光エリプソメトリによる消衰係数および屈折率の評価を行った。また、励起キャリアの寿命評価のために、パルス励起光とストリークカメラを用いた時間分解PL法による発光寿命計測を行った。 AlInN 薄膜のデバイス応用については、双葉電子工業(株)の協力を得て、 AlInN 結晶を発光層とする蛍光表示管(VFD)を作製した。VFDは $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ 混晶を電子線にて励起する発光素子である。高 AlN モル分率 AlGaIn 混晶の場合と同様に、 p 型 AlInN 結晶を得るのが困難であると予想されるため、本研究では、 p 型層を用いずに発光させることができるVFDに AlInN を搭載する事に挑戦した。

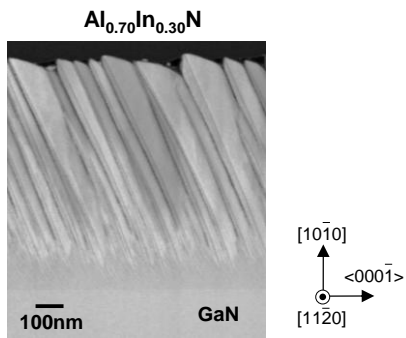


図3 m 面自立 GaN 基板上に MOVPE 成長させた $\text{Al}_{0.70}\text{In}_{0.30}\text{N}$ エピタキシャルナノ構造の HAADF-STEM 像。

4. 研究成果

MOVPE 法により非極性 m 面 GaN 基板上に $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ 混晶をエピ成長させる際、装置形状や成長条件を最適化する事によって、X 線回折評価では十分な結晶品質をもつ、InN モル分率 0~32%程度までの $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ の単結晶薄膜成長を行う事に成功した。 m 面 GaN 基板上に、1 μm 厚の GaN および 500 - 600 nm 厚の $\text{Al}_{0.70}\text{In}_{0.30}\text{N}$ 混晶を MOVPE 連続成長させた試料の、 a 軸方向から見た断面 HAADF-STEM 像を図 3 に示す。本試料を含め、 $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ は厚さ 60 nm 程度までは原子層オーダーで平坦なエピタキシャル成長したもの、それ以上の厚さでは 3 次元的成長モードとなった。その結果、本試料の場合は c 軸方向の厚さが 40-70 nm 程度、 a 軸方向の長さが 200-300 nm 程度の「ナノ板」の集合体となり、空隙の存在する高欠陥密度構造となった。このため、これらの試料は測定温度に関わらず非常に短い (数十 ps) 発光寿命を呈した。すなわち、室温では非輻射再結合割合が大きく、発光減衰が高速であった。しかしながら、室温において深紫外線から緑色までの、面内直線偏光光を呈することが分かった。

このナノ構造を、図 4 に示す VFD に実装することによって、面内で直線偏光された DUV、青色、緑色の光を呈する小型光源を実現した。発光している様子と偏光の様子を図 5(a)、5(b)および 5(c)に示す。

VFD は電子線励起型の発光素子であり、高精細な車載インパネや小型表示機として実用化され、生活に溶け込んでいるデバイスである。したがって、低コスト化も十分可能であるといえる。さらに、単なる UV や可視光源としてだけでなく、非極性 m 面 GaN 基板上に $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ 混晶の発光は強く偏光していることから、偏光板が 1 枚少なくすむ液晶バックライト等にも使用可能であると考えられる。このような m 面 $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ 薄膜ナノ構造を VFD に搭載することで、波長 215 nm 程度の DUV 波長から緑色波長まで、幅広い領域において小型偏光光源を実現した。

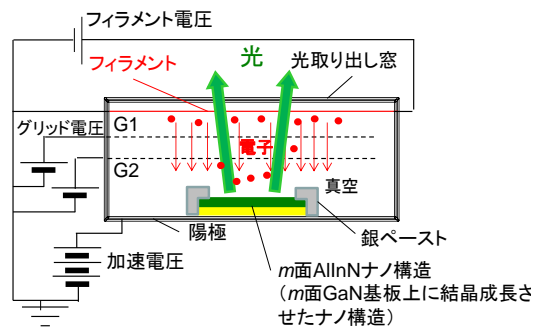


図4 m 面 AlInN 混晶を実装した蛍光表示管 (VFD) の概略図。

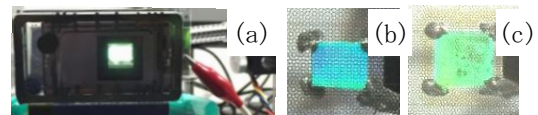


図5 (a) VFD の外観。(b) m 面 $\text{Al}_{0.23}\text{In}_{0.77}\text{N}$ と (c) m 面 $\text{Al}_{0.70}\text{In}_{0.30}\text{N}$ が、VFD 動作している様子。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① S. F. Chichibu, K. Kojima, A. Uedono, and Y. Sato, "Defect-resistant radiative performance of m -plane immiscible $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ epitaxial nanostructures for deep-ultraviolet and visible polarized-light emitters", *Advanced Materials* 29, 1603644 (2017).
査読有、DOI: 10.1002/adma.201603644
- ② K. Kojima, D. Kagaya, Y. Yamazaki, H. Ikeda, K. Fujito, and S. F. Chichibu, "Spectroscopic ellipsometry studies on the m -plane $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ epilayers grown by metalorganic vapor phase epitaxy on a freestanding GaN substrate", *Jpn. J. Appl. Phys.* 55, 05FG04 (2016).
査読有、DOI: 10.7567/JJAP.55.05FG04

[学会発表] (計 8 件)

- ① S. F. Chichibu, K. Kojima, A. Uedono, and Y. Sato, "Defect-resistant emission properties of nonpolar m -plane $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ epilayers for deep-ultraviolet to visible polarized-light-emitting vacuum fluorescent display devices", *International Workshop on Nitride Semiconductors 2016 (IWN2016)*, Orland, USA, October 2-7 (2016).
- ② S. F. Chichibu, K. Kojima, A. Uedono, Y. Sato, "Defect-resistant luminescent probability of m -plane $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ alloy films for deep

ultraviolet and visible polarized light-emitters”, European Materials Research Society, 2016 Fall Meeting, Warsaw, Poland, September 19-22 (2016).

- ③ S. F. Chichibu, K. Kojima, Y. Yamazaki, and K. Furusawa, “Metalorganic vapor phase epitaxy of pseudomorphic m -plane $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ alloy films on a low defect density m -plane GaN substrate”, The 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-18), 名古屋国際会議場, 愛知県名古屋市, August 7-12 (2016).
- ④ 秩父重英, 小島一信, 上殿明良, “自立 GaN 基板上 m 面 $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ エピタキシャル薄膜の発光特性”, 日本結晶成長学会 ナノ構造エピタキシャル成長分科会 第 8 回窒化物半導体結晶成長講演会, 京都大学, 京都市, 2016 年 5 月 9 日-5 月 10 日.
- ⑤ 秩父重英, 小島一信, 山崎芳樹, 佐藤義孝, 上殿明良, “自立 GaN 基板上 m 面 $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ エピタキシャル薄膜の発光特性 (IV)”, 2016 年 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学, 目黒区, 2016 年 3 月 19 日-3 月 22 日.
- ⑥ S. F. Chichibu, K. Kojima, Y. Yamazaki, K. Furusawa, H. Ikeda, and K. Fujito, “Metalorganic vapor phase epitaxy and time-resolved luminescence studies of pseudomorphic m -plane $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ epitaxial films on a low defect density m -plane GaN substrate”, *The 6th International Symposium on Growth of III-Nitrides*, アクトシティ浜松, 静岡県浜松市, November 8-12 (2015).
- ⑦ K. Kojima, D. Kagaya, Y. Yamazaki, H. Ikeda, K. Fujito, and S. F. Chichibu, “Spectroscopic ellipsometry studies on the m -plane $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ epilayers grown by metalorganic vapor phase epitaxy on a freestanding GaN substrate”, *The 6th International Symposium on Growth of III-Nitrides*, アクトシティ浜松, 静岡県浜松市, November 8-12 (2015).
- ⑧ S. F. Chichibu, K. Kojima, Y. Yamazaki, K. Furusawa, H. Ikeda, and K. Fujito, “Time-resolved and spatially-resolved luminescence studies on ultraviolet to green luminescence peaks of m -plane $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ epilayers grown on a low defect density m -plane GaN substrate”, *The 11th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-11)*, Beijing, China, August 30 - September 4 (2015).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

- ① 非極性面窒化アルミニウムインジウム薄膜ナノ構造を用いた新しい深紫外線～緑色偏光光源 (東北大学プレスリリース):
<https://www.tohoku.ac.jp/japanese/2016/11/press20161124-03.html>
- ② 青色 LED 超えるか? 深紫外～緑色の偏光光源開発 (EETimes Japan):
<http://eetimes.jp/ee/articles/1611/30/news030.html>
- ③ 東北大ら, 新しい深紫外線～緑色偏光光源を開発
www.optronics-media.com/news/20161125/44835/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小島 一信 (KOJIMA, Kazunobu)
東北大学・多元物質科学研究所・准教授
研究者番号: 30534250

(2) 研究分担者

山崎 芳樹 (YAMAZAKI, Yoshiki)
東北大学・多元物質科学研究所・助教
研究者番号: 20730352

秩父 重英 (CHICHIBU, Shigefusa)
東北大学・多元物質科学研究所・教授
研究者番号: 80266907