

令和 2 年 4 月 20 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06795

研究課題名(和文) 自己組織化による窒化アルミニウム結晶薄膜の創製

研究課題名(英文) A new fabrication technique of AlN/sapphire template

研究代表者

寒川 義裕 (Kagawa, Yoshihiro)

九州大学・応用力学研究所・教授

研究者番号：90327320

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：AlGaIn深紫外LED用のAlN/サファイアテンプレートの新規作製方法を提案した。具体的には、(1)サファイア基板上的Al厚膜の堆積、(2)Li<sub>3</sub>N粉末の塗布、(3)アニールによる自己組織化AlN結晶薄膜の創製を行った。実験により、アニール温度および原料組成の最適化を行った。実験により(A)ステップ2で塗布する原料はLi<sub>3</sub>N粉末のみでなくAl粉末との混合粉末とする必要があること、(B)アニール温度は1250℃付近が最適であることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

深紫外の高輝度光源、特に発光波長260nm以下の光源は細菌のDNA破壊に有効なため殺菌・浄水用光源として利用されている。現状では水銀灯タイプの光源が用いられているが、環境負荷の低減および小型化の観点から代替となるAlGaIn深紫外LED(Light Emitting Diode)の開発が進められている。しかし、AlGaIn深紫外LED素子の基板材料には昇華法あるいはHVPE法により作製された高価なAlN結晶または厚膜が用いられているため、低コスト化が困難である。本研究では、素子の低コスト化に資するAlN/サファイアテンプレートの新規作製方法を提案した。

研究成果の概要(英文)：In the present research, a new solution growth technique to make AlN/sapphire template was studied. Specifically, the following growth process was examined: (1) Al sputtering on sapphire substrate, (2) filling of Li<sub>3</sub>N particles on the Al/sapphire template, and (3) annealing of the material to make AlN/sapphire template. The results suggest that (A) the source material should be Al and Li<sub>3</sub>N complex instead of a simple Li<sub>3</sub>N, and (B) annealing temperature should be around 1250 degree C are necessary to make AlN/sapphire template by this technique.

研究分野：結晶工学

キーワード：窒化アルミニウム 溶液成長

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

深紫外 (deep ultraviolet: DUV) の高輝度光源、特に発光波長  $\sim 250$  nm の光源は細菌のDNA破壊に有効なため殺菌・浄水用光源として注目されている。現在、UV 殺菌装置には蛍光灯や水銀灯タイプの光源が用いられている。しかし、2020年以降は水俣条約により水銀の使用が一部制限される計画があるため、代替の深紫外光源の開発が急務となっている。代替光源の有力な候補として (Al, Ga)N 深紫外LED が挙げられる。以下、AlGaIn-LED と略す。AlGaIn-LED の開発は日米の大学、企業を中心に展開されており、大きく分けて2つの方式が存在する。1つは昇華法やハライド気相成長 (HVPE) 法により作製した AlN 単結晶基板を用いる方式、もう1つはサファイア基板を用いる方式である。前者の方式では、高量子効率の AlGaIn-LED の作製が期待されるが、基板材料が高価なため素子の低コスト化・シェアの拡大が困難である。後者の方式は、低コスト化が期待されるものの高量子効率の素子作製が困難である。

### 2. 研究の目的

殺菌・浄水用 (Al, Ga)N 深紫外LED の開発を目的とする。目的達成に向けて、本研究では、新たな AlN テンプレート基板作製技術を提案・実証し、深紫外LED の高効率化・低コスト化に寄与することを目標とする。具体的には、申請者がこれまでにやってきた AlN 固体ソース溶液成長技術の研究開発において蓄積された知見 [1] を基に新規考案した自己組織化 AlN 結晶薄膜の創製技術の実現可能性を検証する。

### 3. 研究の方法

本研究では、新規 AlN テンプレート基板作製技術の提案・実証を行う。具体的には、(1) スパッタ法による Al 膜の堆積、(2)  $\text{Li}_3\text{N}$  粉末の塗布、(3) アニールによる自己組織化 AlN 結晶薄膜の創製からなる一連の成長技術を検証する。図1に一連のプロセスの模式図を示す。(1) Al スパッタ膜の膜厚およびその均一性、(2) 塗布する  $\text{Li}_3\text{N}$  粉末の分量や(3) アニール温度および基板垂直方向の温度勾配を適切に制御することにより、高品質・高均一の AlN テンプレート基板を創製する。

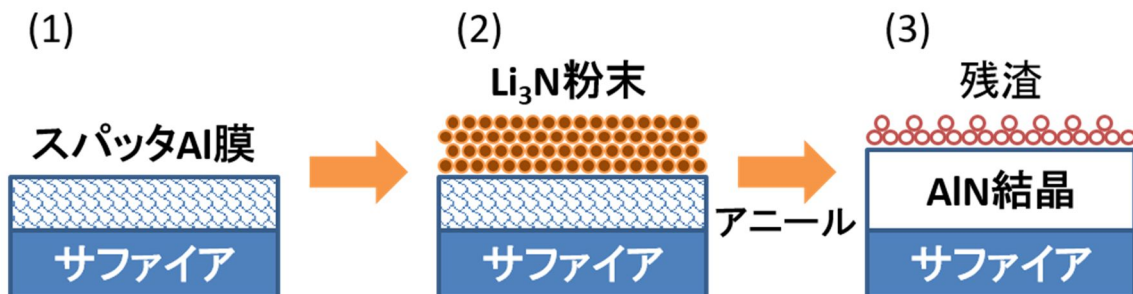


図1 AlN/サファイアテンプレート作製プロセスの模式図。(1) Al スパッタ膜の堆積、(2)  $\text{Li}_3\text{N}$  粉末の塗布、(3) アニールによる自己組織化 AlN 結晶薄膜の創製。

### 4. 研究成果

常用2インチ、最大4インチの AlN/サファイアテンプレートの作製を想定して成膜装置を開発した。図2に装置外観を示す。



図2 新規開発した AlN/サファイア作製装置の外観。

図2に示す、新規装置を用いて AlN/サファイアテンプレートの作製を試みた。図3(a)に AlN 成膜後のサンプルの光学写真を示す。写真は無色透明の2インチサファイア基板の裏面側から撮影された。ただし、ここでは上述のステップ1のプロセスを省略し、Al粉末と  $\text{Li}_3\text{N}$  粉末の混合粉末を原料として実験を行った。図を見ると、明るいコントラストの成長領域と暗いコントラ

ストの非成長領域が混在している様子が観察される。この結果から、均一な AlN/サファイアテンプレート作製には初期基板の塗れ性の改善が重要であることが示唆された。

次に、初期基板の塗れ性の改善を目的として、Al 膜の蒸着を行った。図 3 (b) に Al 蒸着した 2 インチサファイア基板の光学写真を示す。写真は表面側から撮影されている。当初はスパッタ膜の堆積を想定していたが( 図 1 (1) 参照 ) 開発コスト低減の観点からここでは真空蒸着装置による Al 膜の堆積を試みた。ここには示していないが、サンプル断面の光学顕微鏡観察により膜厚 3 ミクロン (  $\mu\text{m}$  ) の均質な Al 膜の堆積を確認した。

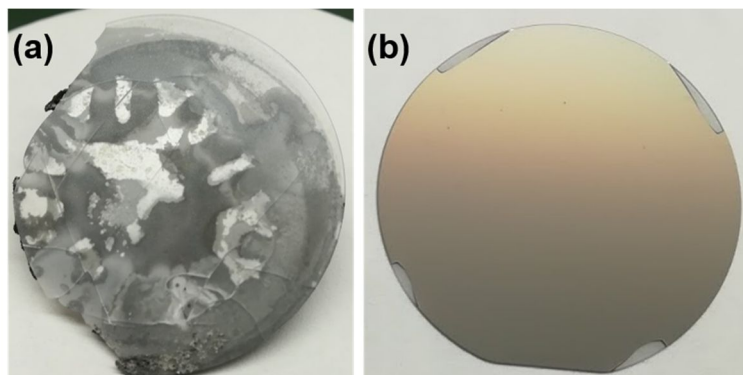


図 3 (a) AlN 成膜後の光学写真 (裏面から撮影)、(b) Al 蒸着した 2 インチサファイア基板の光学写真 (表面から撮影)。

2 インチサファイア上 Al 膜の堆積に引き続き、(ステップ 2)  $\text{Li}_3\text{N}$  膜の塗布、(ステップ 3) 高温アニールを試みた。当初は真空中でのアニールを想定していたため Mo 製ヒーターを使用していたが、成膜条件の最適化の過程で常圧窒素環境下でのアニールの方が良いことがわかった。また、窒素ガス雰囲気では昇温すると Mo 製ヒーターは著しく劣化することから、カーボン製ヒーターに置き換えることとした。

装置改良の後、ガス雰囲気、アニール温度、原料比の最適化を引き続き行った。実験結果から、(A) 常圧窒素環境でのアニールが必要であること、(B) アニール温度は 1250 付近が最適であること、(C) ステップ 2 の塗布原料は  $\text{Li}_3\text{N}$  粉末のみでなく Al 粉末と  $\text{Li}_3\text{N}$  粉末の混合粉末が良いことが明らかとなった。

#### 参考文献

- [1] Y. Kangawa et al., Appl. Phys. Express **8**, 065601 (2015).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 寒川義裕
2. 発表標題 未来材料開拓に向けた相界面制御
3. 学会等名 第48回結晶成長国内会議（招待講演）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----