

平成21年 5月18日現在

研究種目：基盤研究（B）  
 研究期間：2006～2008  
 課題番号：18360008  
 研究課題名（和文）ナノフォトンクス構造により配光制御した照明用発光ダイオードに関する研究  
 研究課題名（英文） Study on light emitting diode for lighting controlling the luminous intensity distribution by nano-photonics structures  
 研究代表者 平松 和政（HIRAMATSU KAZUMASA）  
 三重大学・大学院工学研究科・教授  
 研究者番号：50165205

## 研究成果の概要：

本研究では LED が真に照明デバイスとして用いられるために必要な配光制御を検討し、照明に適した LED の実現を目指す。その結果、選択成長技術を利用して、高品質な AlGaIn エピタキシャル層や AlN バルク単結晶を得ることができ、高い発光効率を有する照明用 LED を作製するために必要な基板結晶を得るための見通しを得ることができた。また、LED の取り出し効率の改善や配光制御を行うために AlGaIn のフォトリソグラフィ結晶や光学フィルムを用いた回折レンズを作製し、これらの光学素子が照明用 LED の高性能化のために有効な技術であることを示した。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	10,000,000	0	10,000,000
2007年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2008年度	1,700,000	510,000	2,210,000
年度			
年度			
総計	13,300,000	990,000	14,290,000

## 研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物性・結晶工学

キーワード：窒化物半導体、発光ダイオード、ナノ構造、フォトリソグラフィ結晶、配光制御、LED 照明

## 1. 研究開始当初の背景

近年窒化物半導体を用いた高輝度青色や紫外の発光ダイオード (LED) の開発が進められてきた。また、青色や紫外の LED と蛍光体を組み合わせることで、白色の LED も実現されている。これまでの研究で、発光効率 80 lm/W (実験室レベル) が実現し、従来の蛍光灯 (60～80 lm/W) や電球 (~20 lm/W) との置き換えも現実味を帯びてきた。これまでの照明用光源は蛍光灯や電球が中心であり、長年にわたってそれらの照明用光源の技

術が蓄積されてきた。一方で、LED の発光効率が近年急速に高まり、省エネルギーの観点より LED が照明用の光源として注目を浴びてきた。

照明デバイスに要求される特性は、(1) 発光効率、(2) 配色 (色度、彩度)、(3) 色温度、(4) 演色性、(5) 配色特性 (光放射の方向性) 等である。これまでの LED の研究は発光効率向上に偏っていた。LED が真に照明デバイスに用いられるためには、上記に述べた発光効率以外の向上が必要不可欠

である。最近になって、配色、色温度、演色性については検討され始めているが、配光特性（光放射の方向性）については本格的な研究がない。従来の LED 一方向へ配光特性を示すものがほとんどであった。LED を電球や蛍光灯に代わる照明デバイスに使用するためには、球面状に均一に配光制御された光度分布が必要である。さらに、LED をバックライトのようにディスプレイデバイスに使用するためには、平面状に配光制御された光度分布が必要である。しかしながら、現在のところ LED は球面状および平面状の配光制御ができていない。

## 2. 研究の目的

本研究では LED が真に照明デバイスとして用いられるために必要な配光制御を検討し、照明に適した LED の実現を目指す。この目的のために、申請者の研究グループで培った窒化物半導体の選択成長技術及びナノフォトニクス結晶作製技術を駆使して、素子表面にフォトニック結晶状の周期構造を作製して、周期構造の形状や寸法等によって配光制御を行うことで、球面及び平面配光制御が可能な LED を実現する。

## 3. 研究の方法

(1) 窒化物半導体の選択成長技術による高品質 Al(Ga)N の作製

①高 Al 組成の高品質 AlGa<sub>N</sub> エピタキシャル成長

本研究では AlN 下地基板からの貫通転位と結晶成長中にクラックが生じる問題を解決するため、AlN 基板上に低転位密度 GaN を選択成長法により作製し、それを下地として AlGa<sub>N</sub> の成長を行った。減圧 MOVPE 装置に反射光モニタリング装置を取り付け、GaN の選択成長条件を検討し、選択成長した GaN を下地にして、AlGa<sub>N</sub> の成長を行った。

さらに高品質な AlGa<sub>N</sub> 結晶を得るためには、結晶成長中に発生する基板の反りの抑制も必要である。本研究では、基板の反りのその場観察を行いながら、サファイア基板上への AlGa<sub>N</sub> の成長を行った。

②無極性 AlGa<sub>N</sub> のエピタキシャル成長

本研究では r 面サファイア上に減圧 MOVPE 法により高品質な a 面 GaN 及び AlGa<sub>N</sub> を得ることを目的として、結晶成長条件（成長圧力と成長温度等）の検討を行った。

③クラックフリー AlN バルク単結晶成長

本研究ではサファイアと AlN の熱膨張係数差により発生するクラックを抑制し、クラックフリーの AlN バルク単結晶を得るために、

サファイア上に成長した AlN に周期的な溝を加工し、HVPE 法により AlN の厚膜成長を行った。

(2) 窒化物半導体選択成長技術を用いた発光材料の作製

選択成長技術により、InGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> のピラミッド構造を作製し、得られた構造に電子線を照射して、カソードルミネッセンス (CL) を測定した。

(3) フォトニック結晶による紫外光の光取り出し効率の改善

配光が制御できる LED を作製するための方法の1つとして、LED 表面にナノオーダーのフォトニック結晶を作製することが有効である。本研究では、AlGa<sub>N</sub> 結晶の表面にナノオーダーのフォトニック結晶を作製し、光の取り出し効率を評価した。

AlGa<sub>N</sub> フォトニック結晶を作製するための基板を、AlN テンプレート上に減圧 MOVPE 法により成長し、スパッタ法によって SiO<sub>2</sub> を 100nm 堆積後、電子線描画装置を用いて三角格子パターンを作製し、その後反応性イオンエッチング (RIE) を用いて SiO<sub>2</sub>、AlGa<sub>N</sub> に転写を行った。作製した AlGa<sub>N</sub> フォトニック結晶について CL で光学的特性評価を行った。

(4) 光学フィルムを用いた LED の配光制御

ポリエチレンテレフタレート (PET) フィルムに電子線リソグラフィ技術によりバイナリ型回折レンズ構造を作製した。得られた構造と LED チップ（配光角 120°）を組み合わせ LED 配光測定器で配光特性を評価した。

さらに薄型の配光制御 LED 光源を目指すためには、焦点距離をさらに短くしてマイクロオーダーにする必要がある。また、回折効率を改善するためには傾斜構造を有するブレード化した回折レンズが有効であるが、電子線リソグラフィやナノインプリントで傾斜構造を作製することは困難である。本研究では図\*に示すような波長よりも大きな周期構造の中に、波長よりも小さな凹凸構造を組み込んで、ブレード型回折レンズをバイナリ化したバイナリブレード型回折レンズの設計を時間領域差分法 (FDTD 法) により設計を行った。

(5) LED 照明の応用

LED 照明の応用に関する一例として、LED 照明と伊勢形紙を組み合わせた照明への応用に関する検討を行った。伊勢形紙の材料として用いられる渋紙は白色の美濃和紙

に柿渋を塗って乾燥させたものである。本研究では、渋紙の光学的特性及び色彩特性の評価を行った。

#### 4. 研究成果

(1) 窒化物半導体の選択成長技術による高品質 Al(Ga)N の作製

①高 Al 組成の高品質 AlGaN エピタキシャル成長

反射光モニタリングにより、選択成長による GaN の成長条件を詳細に検討したところ、側面に理想的な(11-20)面を持った GaN が作製できた(図 1(a))。これを下地に用いて AlGaN の成長を行うと、図 1(b)に示すようなクラックフリーで平坦な AlGaN 膜が作製できた。

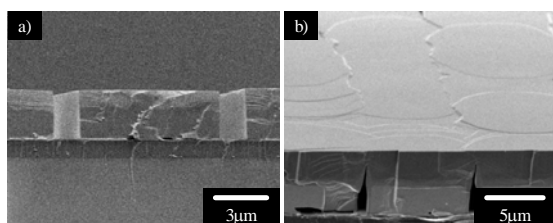


図 1 (a) 選択成長 GaN (断面) (b) AlGaN (鳥瞰) の SEM 像

また、基板の反りのその場観察においては、サファイア基板上に AlN を成長させた基板を用いると、AlGaN 成長前に存在した基板の反りが減少することがわかった。また、転位密度を測定したところ  $3 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$  で従来の結晶成長技術に比べ、2 桁の低減ができた。

②無極性 AlGaN のエピタキシャル成長

a 面 GaN の成長において、図 2 に示すように 500Torr での成長を行うと、成長初期は島状の成長が見られるが、平坦な膜になった。一方、a 面 AlGaN は、50 Torr、1100°C で結

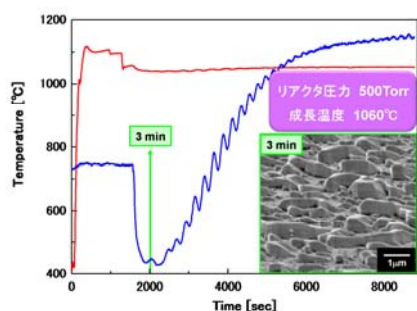


図 2 500 Torr での a 面 GaN の成長

晶成長を行ったとき、比較的良好な結晶を得ることができた。

③クラックフリー AlN バルク単結晶成長

サファイア上に成長した AlN に周期的な

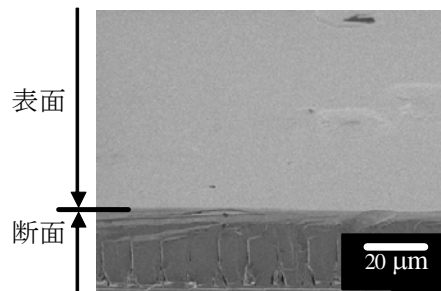


図 3 周期溝加工 AlN 下地基板上への AlN 成長の鳥瞰 SEM 像

溝を加工し、HVPE 法により AlN の厚膜成長を行ったところ、図 3 に示すように、結晶成長中に発生するボイドによって結晶中の応力が緩和され、表面の平坦性に優れ、クラックフリーで、転位密度が従来に比べ、1 桁少ない高品質な AlN バルク単結晶を得ることができた。

これらの成果から、高い発光効率を有する照明用 LED を作製するために必要な基板結晶を得るための見通しを得ることができた。

(2) 窒化物半導体選択成長技術を用いた発光材料の作製

選択成長により、図 4 に示すような InGaN/GaN のピラミッド構造を作製し、カソードルミネッセンス (CL) 測定を行うと、図 5 のような青色発光が得られた。さらに、CL 測定を詳細に行うと、ピラミッド構造の底部より頂上部において、CL 強度が増加し、ピーク波長が長波長側にシフトしていることが明らかになった。

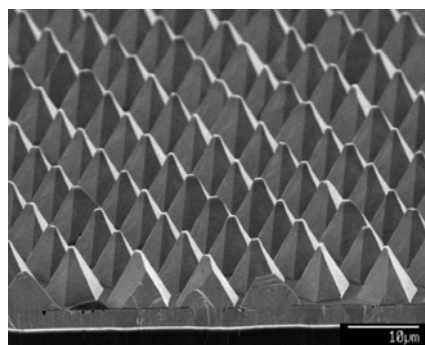


図 4 InGaN/GaN のピラミッド構造

(3) フォトニック結晶による紫外光の光取り出し効率の改善

電子線描画と RIE において、適切な描画条件とエッチング条件を検討することで、図 6 に示すような穴の径 150nm、周期 300nm で深さ 200nm の AlGaIn フォトニック結晶が作製できたことが確認できた。さらに図 7 に示すような CL 測定よりフォトニック結晶を作

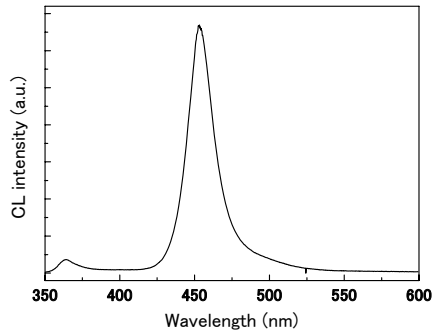


図5 InGaN/GaNのCLスペクトル

製することによって、未加工の表面が平坦な結晶と比較してバンド端(300 nm)の発光強度が約2倍に増大した。また、フォトリソグラフィ技術を用いて作製した穴の径5 $\mu\text{m}$ 、周期10 $\mu\text{m}$ の場合では、発光強度が約0.6倍であり穴の径や構造の周期に依存することがわかった。

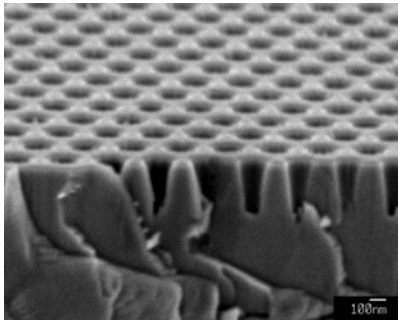


図6 AlGaIn フォトニック結晶の鳥瞰SEM像

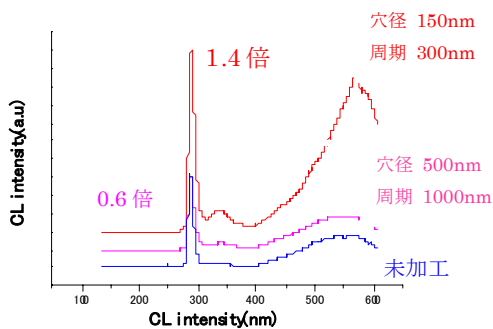


図7 AlGaIn フォトニック結晶のCLスペクトル

#### (4) 光学フィルムを用いたLEDの配光制御

PETフィルムに電子線リソグラフィ技術により図8に示すようなバイナリ型回折レンズ構造を作製した。得られた構造とLEDチップ(配光角120°)を組み合わせLED配光測定器で配光特性を評価したところ、図9に示すような意配光角40°に集光できるレンズ構造になっていることを確認した。

また、バイナリブレード型回折レンズのFDTDシミュレーションを行ったところ、140 $\mu\text{m}$ のところまで光が集光し、発散して広がっていくことが明らかになった。この結果から、ナノ構造を有するバイナリブレード型回折レンズによってマイクロオーダーの焦点距離を得ることが可能であることが示された。

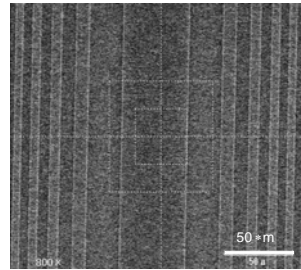


図8 バイナリ型回折レンズのSEM像

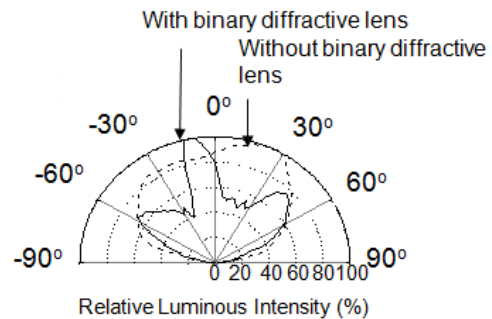


図9 バイナリ型回折レンズによるLEDの配光制御

#### (5) LED照明の応用

渋紙の吸収及び拡散反射スペクトルを評価したところ、青や緑の光を吸収しやすく、赤い光は拡散透過しやすいことがわかった。この結果から渋紙には青や緑のLEDを組み合わせ照明器具を作製することが有効であることが明らかになった。

さらに自動販売機用照明応用に向けた調査を実施し、LEDを自販機照明に応用するための課題を明らかにした。

#### 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23件)

- (1) A. Motogaito, N. Machida, T. Morikawa, K. Manabe, H. Miyake, K. Hiramatsu, "Fabrication of a Binary Diffractive Lens for Controlling the Luminous Intensity Distribution of LED Light", *Optical Review* (掲載決定、印刷中) (査読有り)

- (2) Y. Katagiri, S. Kishino, K. Okuura, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Low-Pressure HVPE growth of crack free thick AlN on trench patterned AlN template", Journal of Crystal Growth (掲載決定、印刷中) (査読有り)
- (3) B. Ma, R. Miyagawa, W. Hu, D. Li, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Structural and electrical properties of Si-doped a-plane GaN grown on r-plane sapphire by MOVPE", Journal of Crystal Growth (掲載決定、印刷中) (査読有り)
- (4) D. Li, B. Ma, R. Miyagawa, W. Hu, M. Narukawa, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Photoluminescence study of Si-doped a-plane GaN grown by MOVPE", Journal of Crystal Growth (掲載決定、印刷中) (査読有り)
- (5) M. Narukawa, R. Miyagawa, B. Ma, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Optical properties of MOVPE-grown a-plane GaN and AlGaIn", Journal of Crystal Growth (掲載決定、印刷中) (査読有り)
- (6) M. Narukawa, S. Koide, H. Miyake, and K. Hiramatsu, "Growth of undoped and Zn-doped GaN nanowires", Journal of Crystal Growth (掲載決定、印刷中) (査読有り)
- (7) H. Miyake, N. Masuda, Y. Ogawahara, M. Narukawa, K. Hiramatsu et al., "Growth of crack-free AlGaIn on selective-area growth GaN", Journal of Crystal Growth, 310 (2008) pp.4885-4887. (査読有り)
- (8) R. Miyagawa, M. Narukawa, B. Ma, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Reactor-pressure dependence of growth of a-plane GaN on r-plane sapphire", Journal of Crystal Growth, 310 (2008) pp.4979-4982. (査読有り)
- (9) H. Miyake, T. Ishii, A. Motogaito and K. Hiramatsu, "Improved optical properties of AlGaIn using periodic structures", Physica Status Solidi (c), 5 (2008) pp.1822-1824. (査読有り)
- (10) D. Li, M. Aoki, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Improved surface morphology of flow-modulated MOVPE grown AlN on sapphire using thin medium-temperature AlN buffer layer", Physica Status Solidi (c), 5 (2008) pp.1818-1821. (査読有り)
- (11) Y. Liu, S. Koide, H. Miyake, K. Hiramatsu, et al., "Thermal analysis of GaN powder formation via reaction of gallium ethylenediamine tetraacetic acid complexes with ammonia" Physica Status Solidi (c), 5 (2008) pp.1522-1524. (査読有り)
- (12) A. Motogaito, K. Manabe, Y. Yamanaka, N. Machida, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Optical characterization of Japanese papers for application in the LED lighting system with human sensitivity", Journal of Light & Visual Environment, 32 (2008) pp.218-221. (査読有り)
- (13) K. Hiramatsu, H. Miyake and D. Li, "Selective area growth of III-nitride and their application for emitting devices", Journal of Light & Visual Environment, 32 (2008) pp.177-182. (査読有り)
- (14) K. Tsujisawa, S. Kishino, D. Li, H. Miyake, K. Hiramatsu et al., "Suppression of crack generation using high-compressive-strain AlN/Sapphire template for hydride vapor phase epitaxy of thick AlN film", Japanese Journal of Applied Physics, 46 (2007), pp.L552-L555. (査読有り)
- (15) H. Miyake, K. Nakao and K. Hiramatsu, "Blue emission from InGaIn/GaN hexagonal pyramid structures", Superlattices and Microstructures, 41 (2007), pp.341-346. (査読有り)
- (16) D. Li, T. Katsuno, M. Aoki, H. Miyake, K. Hiramatsu et al., "Structural and optical properties of Si-doped AlGaIn/AlN multiple quantum wells grown by MOVPE", Physica Status Solidi (c), 4 (2007) pp.2494-2497. (査読有り)
- (17) K. Nakao, D. Li, Y. Liu, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Dependence of In mole fraction in InGaIn on GaN facets", Physica Status Solidi (c), 4 (2007) pp.2383-2386. (査読有り)
- (18) K. Tsujisawa, S. Kishino, Y. Liu, H. Miyake,



K.Hiramatsu et al., "High temperature growth of AlN film by LP-HVPE", Physica Status Solidi (c), 4 (2007) pp.2252-2255. (査読有り)

- (19) D. Li, M. Aoki, T. Katsuno, H. Miyake, K. Hiramatsu and M. Tanaka, "Influence of growth interruption and Si doping on the structural and optical properties of AlGaIn/AlN multiple quantum wells", Journal of Crystal Growth, 298, (2007) pp. 500-503 (査読有り)

[学会発表] (計 62 件)

- (1) K. Okuura, Y. Katagiri, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Low-Pressure HVPE growth of thick AlN on trench patterned Sapphire substrate" First International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications, 2009 年 3 月 10 日. (名古屋)
- (2) M. Narukawa, Y. Ogawahara, H. Miyake and K. Hiramatsu, "In situ monitoring on MOVPE growth of nitride semiconductors", First International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications, 2009 年 3 月 10 日. (名古屋)
- (3) H. Miyake, Y. Katagiri, K. Okuura and K. Hiramatsu, "HVPE growth of AlN on trench patterned sapphire" SPIE Photonic West, 2009 年 1 月 26 日. (San Jose, USA)
- (4) H. Miyake, Y. Katagiri, S. Kishino, K. Okuura, and K. Hiramatsu, "HVPE Growth of Crack-free Thick AlN Using Strain-Control Technique", International Workshop on Nitride Semiconductors 2008, 2008 年 10 月 8 日. (Montreux, Switzerland)
- (5) J. Wu, Y. Katagiri, K. Okuura, D. Li, H. Miyake and K. Hiramatsu, "The effects of growth temperature on the properties of nonpolar a-plane AlN by LP-HVPE", International Workshop on Nitride Semiconductors 2008, 2008 年 10 月 9 日. (Montreux, Switzerland)
- (6) A. Motogaito, N. Machida, T. Morikawa, K. Manabe, H. Miyake and K. Hiramatsu "Fabrication of the binary blazed diffractive lens for controlling the luminous intensity distribution of LED light", 6th

International Conference on Optics-photonics Design & Fabrication, 2008 年 6 月 10 日. (Taipei, Taiwan)

- (7) H. Miyake, N. Masuda, Y. Ogawahara, M. Narukawa, K. Hiramatsu et al., "Growth of crack-free AlGaIn on selective area growth GaN", 14th International Conference on Metalorganic vapor phase epitaxy, 2008 年 6 月 4 日. (Metz, France)
- (8) A. Motogaito, K. Manabe, Y. Yamanaka, N. Machida, H. Miyake and K. Hiramatsu, "Optical characterization of Japanese papers for application to the LED lighting system with human sensitivity", 1st International Conference on White LEDs and Solid State Lighting, 2007 年 11 月 29 日. (東京)
- (9) K. Hiramatsu, H. Miyake and D. Li, "Selective area growth of III-nitride and their application for emitting Devices (招待講演)", 1st International Conference on White LEDs and Solid State Lighting, 2007 年 11 月 28 日. (東京)

[その他]

<http://www.opt.elec.mie-u.ac.jp> (研究室 HP)

<http://www.mie-u.ac.jp/research/intro/ct0003-00.html> (三重大学極限ナノエレクトロニクスセンターHP)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

平松 和政 (HIRAMATSU KAZUMASA)  
三重大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：50165205

### (2) 研究分担者

三宅 秀人 (MIYAKE HIDETO)  
三重大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：70209881

元垣内 敦司 (MOTOGAITO ATSUSHI)  
三重大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号：00303751

### (3) 連携研究者