

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 17 日現在

機関番号：14101

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360007

研究課題名（和文）窒化物半導体ファセット変調構造の創製と広帯域・連続スペクトル白色 LED の開発

研究課題名（英文） Creation of the modulated facet structures of III-nitride semiconductors and development of the white LEDs with wide and continuous wavelength spectra

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（和文）：本研究では、連続広帯域スペクトルを有する白色 LED を開発することにより、「波長ばらつきの問題」と「演色性の問題」を同時に解決し、照明に適した LED の実現を目指すことを目的として、a 面 GaN 上への選択成長と m 面の平坦な GaN 膜の作製を行った。成長温度と成長圧力を制御することで、ファセットを制御した選択成長を行うことができ、さらにこの知見を利用して、m 面の平坦な GaN 膜を得ることができた。これらの成果を活用すれば、連続広帯域スペクトルを有する白色 LED の開発が可能になる。

研究成果の概要（英文）：In this study, in order to solve the fluctuation of the light emitting wave length and color rendering properties, the selective area growth on a plane GaN and the fabrication of the flat m-plane GaN are carried out aiming at the development of the white LED with continuous and wide wavelength range. By controlling growth temperature and growth pressure, the facet controlled structures can be fabricated. Also by using this technique, the flat m-plane GaN can be obtained. From these results, The development of the white LED with continuous and wide wavelength range can be realized.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	8,900,000	2,670,000	11,570,000
2010 年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2011 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
年度			
年度			
総計	14,000,000	4,200,000	18,200,000

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：エピタキシャル成長、選択成長、非極性、窒化物半導体、発光ダイオード

1. 研究開始当初の背景

近年窒化物半導体を用いた高光度青色発光ダイオード（LED）の開発が進められ、青色 LED と黄色蛍光体の組み合わせによる白色 LED が、次世代の省エネルギー照明デバイスとして注目を浴びている。これまでの研究で、発光効率 200 lm/W（実験室レベル）が実現

し、従来の蛍光灯（80 lm/W）や電球（20 lm/W）を凌ぐ発光効率が実現できるようになった。

LED 照明デバイスに要求される重要な課題は、（1）発光効率向上、（2）ピーク波長のばらつき制御、（3）演色性向上、等である。

発光効率向上の研究は一層重要であるが、LED が真に照明デバイスに用いられるためには、それ以外の特性向上も併せて必要である。本研究では、連続広帯域スペクトルを有する白色 LED を開発することにより、「波長ばらつきの問題」と「演色性の問題」を同時に解決し、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てきた、窒化物半導体の選択成長技術、及びファセット制御技術等の固有技術を駆使する。

<広帯域・連続スペクトル白色 LED の提案>

従来の白色 LED の発光波長スペクトルは青と黄色の複数のピークをもつために、演色性（色の忠実な再現性）が低いという問題がある。また、チップごとに青色 LED の発光ピーク波長のばらつきがあると、チップごとに光源色のばらつき（光源の色むら）が発生するという問題があり、工業的に重大な問題となっている。LED を真の照明デバイスとして用いるためには、これらの問題の解決が不可欠である。このために、本研究では発光スペクトルが広帯域・連続スペクトルになる白色 LED の実現を目指す。これが実現されると、青から赤色までの連続スペクトル発光により演色性が格段に改善されると同時に、光源の色むらの問題が一気に解決される。

<広帯域連続スペクトルを実現するファセット変調構造の提案>

上記の革新的な LED を実現するために、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を駆使した、ファセット変調構造を提案する。申請者等は、1994 年に窒化物半導体の選択成長技術を世界に先駆けて実現し、今日の窒化物半導体発展のきっかけとなった。さらに 1999 年にはそれを応用したファセット制御技術を開発した（2007 年度日本結晶成長学会論文賞を受賞）。c 面 GaN 上で選択成長によって生じるファセット構造を結晶成長条件（成長温度や成長圧力）によって制御できることを明らかにした。

これまでの窒化物半導体白色 LED では、単色あるいは二色の発光色の重ね合わせで白色を出している。これとは異なり、本研究では、本研究では連続的にファセット形態が変調する構造を新たに提案し、これにより発光層の波長を連続的に変化させ広帯域連続スペクトルを得る。異なるファセットによる複数の発光波長を用いた LED はすでに提案されているが、連続的にファセット形態を変化させるというアイデアははじめてである。同一基板上で連続的にファセット形態を変化させるためには、選択マスク等の形状を連続的

に変えることで可能になる。このことは予備実験で確かめている。

具体的には、まず、無極性 a 面 GaN 基板上でのファセット制御の基礎検討を行う。さらに、それに基づき、無極性及び半極性ファセットを制御しながらストライプ型及びドット型ファセット変調構造を作製する。さらに、ファセット変調による InGaN の混晶組成の連続的な変化を利用して広帯域・連続スペクトルを有する白色 LED を実現する。無極性面、半極性面のファセット形態を積極的に利用することにより、内部量子効率、並びに InGaN における In の取り込み効率を格段に向上し、黄～赤の発光を実現する。同時に青色発光の短波長化は極端に薄くした量子井戸層で実現する。

2. 研究の目的

本研究では、広帯域・連続スペクトル白色 LED の実現を目指すために以下のことを目的として研究を行った。

- (1) 無極性、半極性面ファセット形態制御のための成長条件、成長機構を明らかにする。
- (2) それに基づき、ストライプ型及びドット型の無極性、半極性面ファセット変調構造を作製する。
- (3) InGaN 及び混晶の各ファセット上での In 取り込み過程について詳細な検討を行う。
- (4) さらに以上の結果を踏まえ、広帯域・連続スペクトル白色 LED を作製し、連続発光スペクトルを確認する。

3. 研究の方法

本研究では、上記の 4 つの目的の内、特に(1)、(2)についての検討を中心に研究を行った。

無極性、半極性面ファセット形態制御のための成長条件、成長機構を明らかにする。減圧 MOVPE 装置を用いて、a 面 GaN 上に SiO₂ マスクを施した選択成長用の基板を準備して、無極性、半極性面ファセットを有する GaN の選択成長を行い、結晶成長条件の検討を行った。次に r 面サファイア上に成長した a 面 GaN 上でのファセット制御のための成長条件の検討とファセット制御機構の考察を行いながら、ストライプ型及びドット型のファセット変調構造の作製を行った。さらに非極性面基板上への結晶成長機構と選択成長におけるファセット形態の解明、転位や歪みの低減を目指し、m 面 GaN 自立基板上に GaN 選択成長を行い、その成長形態や発光特性などを調べた。

4. 研究成果

本研究では、連続広帯域スペクトルを有する白色 LED を開発することにより、「波長ばらつきの問題」と「演色性の問題」を同時に

解決し、照明に適した LED の実現を目指す。この目的を実現するために、今年度は無極性、半極性面ファセット形態制御のための成長条件、成長機構を明らかにする。この目的のために、最初は、a 面 GaN 上へ SiO₂ マスクを用いて選択成長を行い、更に、m 面の平坦な GaN 膜の作製を行った。

成長温度と圧力の変化により、結晶のファセット形態が精密に制御できることが分かった。特に図 1 に示すように、成長圧力 500 Torr で成長温度を変化させると、成長温度によりファセット形態は大きく変化し、高温では a 面、+c 面、-c 面を持つ長方形ファセット形状が、低温では -c 面と {11-22} 面を持つ三角形ファセット形状が現れる。この傾向は c 面 GaN 上の選択成長で現れるファセット形態と同様な傾向であることを明らかにした。さらに成長条件（温度、圧力）を変化させて GaN の選択成長を行った。成長温度が 1100°C の場合、(0001), (000-1), (11-20) 面が見られた。また、圧力が 300 Torr の場合、{11-22} 面が現れ、100 Torr の場合、{11-22} と (000-1) 面のみが観測された。このように、リアクタ圧力を変えることによって、ファセット面の制御が成功した。

次に、カソードルミネッセンス (CL) による表面及び断面観察を行った。図 2 に図 1 の断面試料に対する断面の CL 像を示す。下地 GaN の貫通転位は窓部では直進し、横方向成長した部分では転位は大幅に減少し、{11-22} 面で転位の曲がりを観測した。無極性窒化物半導体は成長方向に分極電界を発生しない

ため注目を集めている。しかし、現在 r 面サファイア上に成長した a 面 GaN 薄膜には多くの転位が存在し、結晶品質を上げる必要があることが今後の課題であるが、ファセット面の制御技術により、a 面 GaN の転位低減することができれば、高性能な連続広帯域スペクトルを有する白色 LED の実現が期待できる。

更に、r 面サファイア上に高品質な a 面 GaN を直接成長させるための条件の検討として、r 面サファイアの窒化処理を行い、その上に a 面 GaN 成長を行うことで、a 面 GaN 薄膜の表面平坦性、結晶性及び発光特性が大きく改善された。5 分間の窒化処理のとき、a 面の X 線ロックアップ半値幅が 500 秒未満で、現在報告されている値と比較して最も結晶性が良好であった。また、その基板窒化処理による高品質化のメカニズムは、窒化処理での結晶核の形成密度とその大きさの均一さに依存し、結晶核の合体により、転位密度を低減することであることを明らかにした。

非極性面基板上への結晶成長機構と選択成長におけるファセット形態の解明、転位や歪みの低減を目指し、m 面 GaN 自立基板上に GaN 選択成長を行い、その成長形態や発光特性などを調べた。

<11-20> 方向及び <0001> 方向の SiO₂ マスクにおいて、500 Torr, 1090°C で 30 分成長を行ったところ、成長温度を 970~1090 °C と変化させても、現れるファセット形態には大きな変化がないことがわかった。また、<0001> 方向の SiO₂ マスクにおいて、500

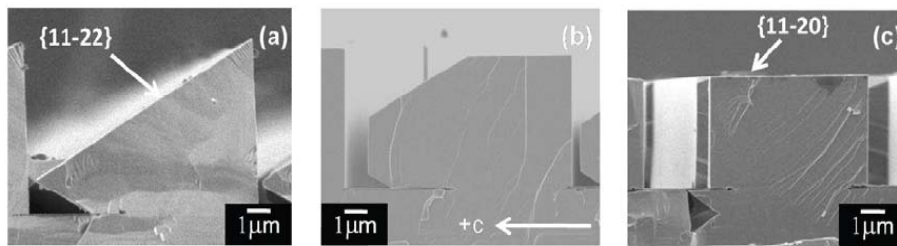


図 1 成長圧力 500 Torr のときの、選択成長の断面 SEM 像 (a) 1000°C、(b) 1050°C、(c) 1100°C

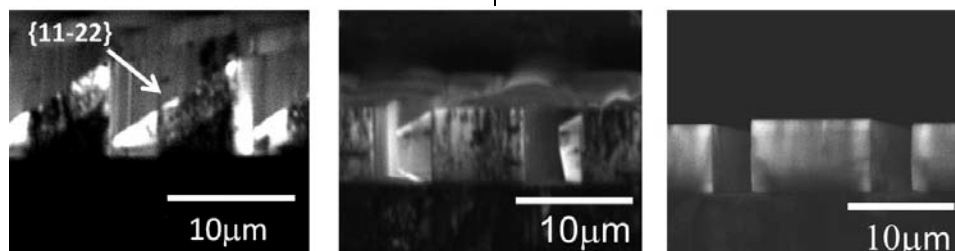


図 2. 図 1 の断面に対する CL による断面観察像

Torr, 1090°C で、120 分 成長を行ったところ、<0001>方向に沿って{1-100}ファセットのみで構成される正六角柱構造が形成された。また、240 分 成長を行った試料では、SiO₂ マスク上にポイドを形成し、m 面の平坦な膜が得られることが明らかとなった。

以上の結果から、r 面サファイア上の非極性面の GaN を得るための結晶成長条件の検討ができ、本件研究で必要となるファセット変調構造を得るための結晶成長条件を得るための指針を得ることができた。また、m 面の平坦な膜を得ることもできた。これらの成果を活用することで、当初の目的である広帯域・連続スペクトル白色 LED の実現が可能であると考えられる。

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 26 件)

- (1) H. Fang, Y. Takaya, S. Ohuchi, H. Miyake, K. Hiramatsu, H. Asamura and K. Kawamura, Strain control of GaN grown on 3C-SiC/Si substrate using AlGa_N buffer layer, Physica Status Solidi (c), DOI: 10.1002/pssc.201100332, (2012) (査読有り)
- (2) R. Miyagawa, S. Yang, H. Miyake and K. Hiramatsu, Effects of carrier gas ratio and growth temperature on MOVPE growth of AlN, Physica Status Solidi (c), DOI: 10.1002/pssc.201100712 (2012) (査読有り)
- (3) Y. Takagi, R. Miyagawa, H. Miyake and K. Hiramatsu, Fabrication of crack-free thick AlN film on a-plane sapphire by low-pressure HVPE, Physica Status Solidi (c), DOI: 10.1002/pssc.201100797 (2012) (査読有り)
- (4) R. Miyagawa, S. Yang, H. Miyake, K. Hiramatsu, T. Kuwahara, M. Mitsuhashi and N. Kuwano, Microstructure of AlN Grown on a Nucleation Layer on a Sapphire Substrate, Applied Physics Express, 5, pp. 025501-1 - 025501-3 (2012) (査読有り)
- (5) B. Ma, D. Jinno, H. Miyake, K. Hiramatsu and H. Harima, Orientation dependence of polarized Raman spectroscopy for nonpolar, semi-polar, and polar bulk GaN substrates, Applied Physics Letters, 100, pp. 011909 -1 - 011909 -3 (2012) (査読有り)
- (6) Y. Shimahara, H. Miyake, K. Hiramatsu, F. Fukuyo, T. Okada, H. Takaoka and Y. Shimahara, Growth of High-Quality Si-Doped AlGa_N by Low-Pressure Metalorganic Vapor Phase Epitaxy, Japanese Journal of Applied Physics, 50, pp. 095502-1 - 095502-3 (2011) (査読有り)
- (7) B. Ma, H. Miyake, K. Hiramatsu and H. Harima, Stress analysis of a-plane GaN grown on r-plane sapphire substrate, Physica Status Solidi (c), 8, pp.2066-2068 (2011) (査読有り)
- (8) R. Miyagawa, S. Yang, H. Miyake and K. Hiramatsu, Control of AlN buffer/sapphire substrate interface for AlN growth, Physica Status Solidi (c), 8, pp.2069-2071 (2011) (査読有り)
- (9) K. Fujita, K. Okuura, H. Miyake, K. Hiramatsu and H. Hirayama, HVPE grown thick AlN on trench-patterned substrate, Physica Status Solidi (c), 8, pp.1483-1486 (2011) (査読有り)
- (10) Y. Shimahara, H. Miyake, K. Hiramatsu, F. Fukuyo, T. Okada, H. Takaoka and Y. Shimahara, Fabrication of Deep-Ultraviolet-Light-Source Tube Using Si-Doped AlGa_N, Applied Physics Express, 4, pp. 042103-1 - 042103-3 (2011) (査読有り)
- (11) S. Yang, R. Miyagawa, H. Miyake, K. Hiramatsu, and H. Harima, Raman Scattering Spectroscopy of Residual Stresses in Epitaxial AlN Films, Applied Physics Express, 4, pp. 031001-1 - 031001-3 (2011) (査読有り)
- (12) B. Ma, R. Miyagawa, H. Miyake and K. Hiramatsu, Facet control in selective area growth (SAG) of a-plane GaN by MOVPE, Material Research Society Symposium Proceedings, pp. 1201, 1202-I05-12-1 - 1202-I05-12-5 (2010) (査読有り)

- (13) R. Miyagawa, J. Wu, H. Miyake and K. Hiramatsu, Growth of high quality c-plane AlN on a-plane sapphire, Material Research Society Symposium Proceedings, 1201, pp. 1202-I05-02-1 - 1202-I05-02-5 (2010) (査読有り)
- (14) M. Narukawa, H. Asamura, K. Kawamura, H. Miyake and K. Hiramatsu, Study of High-Quality and Crack-Free GaN Growth on 3C-SiC/Separation by Implanted Oxygen, Japanese Journal of Applied Physics, 49, pp. 041001-1 - 041001-3 (2010) (査読有り)
- (15) W. Hu, B. Ma, D. Li, R. Miyagawa, H. Miyake, and K. Hiramatsu, Effects of the AlN Interlayer on the Distribution and Mobility of Two-Dimensional Electron Gas in AlGaIn/AlN/GaN Heterojunctions, Japanese Journal of Applied Physics, pp. 035701-1 - 035701-4, 49 (2010) (査読有り)
- (16) J. Wu, K. Okuura, K. Fujita, K. Okumura, H. Miyake, and K. Hiramatsu, Influence of off-cut angle of r-plane sapphire on the crystal quality of nonpolar a-plane AlN by LP-HVPE, Journal of Crystal Growth, 311, pp.4473-4477 (2009) (査読有り)
- (17) J. Wu, K. Okuura, H. Miyake, and K. Hiramatsu, Effects of Substrate Plane on the Growth of High Quality AlN by Hydride Vapor Phase Epitaxy, Applied Physics Express, 2, pp. 111004-1 - 111004-3 (2009) (査読有り)
- (18) B. Ma, W. Hu, H. Miyake and K. Hiramatsu, Nitridating r-plane sapphire to improve crystal qualities and surface morphologies of a-plane GaN grown by metalorganic vapor phase epitaxy, Applied Physics Letters, 95, pp.121910-1 - pp.121910-3 (2009) (査読有り)
- (19) J. Wu, Y. Katagiri, K. Okuura, D. Li, H. Miyake and K. Hiramatsu, Effects of initial stages on the crystal quality of nonpolar a-plane AlN on r-plane sapphire by low-pressure HVPE, Journal of Crystal Growth, 311, pp.3801-3805 (2009) (査読有り)
- (20) J. Wu, Y. Katagiri, K. Okuura, D. Li, H. Miyake and K. Hiramatsu, Effects of initial conditions and growth temperature on the properties of nonpolar a-plane AlN grown by LP-HVPE, Physica Status Solidi (c), 6, pp.S478-S481 (2009) (査読有り)
- (21) W. Hu, B. Ma, D. Li, H. Miyake and K. Hiramatsu, In-plane electric field induced by polarization and lateral photovoltaic effect in a-plane GaN, Applied Physics Letters, 94, pp.231102-1 - 231102-3 (2009) (査読有り)
- (22) M. Narukawa, S. Koide, H. Miyake and K. Hiramatsu, Growth of undoped and Zn-doped GaN nanowires, Journal of Crystal Growth, 311, pp.2970-2972, (2009) (査読有り)
- (23) D. Li, B. Ma, R. Miyagawa, M. Narukawa, H. Miyake and K. Hiramatsu, Photoluminescence study of Si-doped a-plane GaN grown by MOVPE, Journal of Crystal Growth, 311, pp.2906-2909, (2009) (査読有り)
- (24) 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, 311, pp.2903-2905 (2009) (査読有り)
- (25) 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, 311, pp.2899-2902 (2009) (査読有り)
- (26) Y. Katagiri, S. Kishino, K. Okuura, H. Miyake and K. Hiramatsu, Low-pressure HVPE growth of crack-free thick AlN on a trench-patterned AlN template, Journal of Crystal Growth, 311, pp.2831-2833 (2009) (査読有り)

[学会発表] (計 108 件)

- (1) 三宅秀人, 平松和政, HVPE 法 AlN 成長

- におけるボイドを用いた歪み・転位低減技術、第59回応用物理学関係連合講演会（招待講演）平成24年3月15日、早稲田大学 早稲田キャンパス
- (2) 平松和政、窒化物半導体における特異構造の理解と制御、第59回応用物理学関係連合講演会（招待講演）平成24年3月15日、早稲田大学 早稲田キャンパス
- (3) H. Miyake, Y. Shimahara, S. Ochiai, K. Hiramatsu, F. Fukuyo, T. Okada, H. Takaoka, H. Yoshida, Ultraviolet light source using MOVPE grown Si-doped AlGa_N on AlN/sapphire, E-MRS Spring Meeting (招待講演) 平成23年5月11日, ニース (フランス)
- (4) H. Miyake, Y. Shimahara, S. Ochiai, K. Hiramatsu, F. Fukuyo, T. Okada, H. Takaoka and H. Yoshida Deep-Ultraviolet Emission Si-doped AlGa_N Excited by Electron Beam, 3rd International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials (ISPlasma 2011) 平成23年3月7日, 名古屋工業大学
- (5) A. Motogaito, K. Arakawa, Y. Nakayama, H. Miyake and K. Hiramatsu, Fabrication and characterization of binary diffractive lens with the 100 μm-order-focal length, 16th Microoptics Conference (MOC2010) 平成22年11月2日, 新竹 (台湾)
- (6) K. Hiramatsu and A. Motogaito, Study on Light Control and LED Lighting Application, Korea-Japan Workshop on Semiconductor for Energy Saving and Harvesting (招待講演) 平成22年10月11日, ソウル(韓国)
- (7) H. Miyake, Y. Shimahara, K. Hiramatsu, F. Fukuyo, T. Okada, H. Takaoka and H. Yoshida, Fabrication Deep-violet Light Source using MOVPE-grown Si-doped AlGa_N, Korea-Japan Workshop on Semiconductor for Energy Saving and Harvesting (招待講演) 平成22年10月11日, ソウル (韓国)
- (8) 元垣内敦司、平松和政、LEDの配光制御とLED照明応用、日本学術振興会真空ナノエレクトロニクス第158委員会 第83回研究会（招待講演）平成22年6月24日、三重大学工学部
- (9) H. Miyake, H. Taketomi, Y. Shimahara, K. Hiramatsu, F. Fukuyo, T. Okada, H. Takaoka and H. Yoshida, Fabrication of Deep Ultra-violet Light Source using AlGa_N on AlN/sapphire, The 8th International Symposium on Semiconductor Light Emitting Devices (ISSLED2010) (招待講演) 平成22年5月18日, 北京 (中国)
- (10) Hideto Miyake Fabrication of ultraviolet-C light source using MOVPE grown AlGa_N layer on AlN/sapphire, SPIE Photonics West 2010 (招待講演) 平成22年1月28日, サンフランシスコ (米国)
- (11) H. Miyake, H. Taketomi, Y. Shimahara, K. Hiramatsu, et al., MOVPE Growth of AlGa_N with AlN Mole-Fraction Control Layer, The 8th International Conference on Nitride Semiconductors (招待講演) 平成21年10月21日, 済州島 (韓国)
- [図書] (計2件)
- (1) 平松和政、元垣内敦司、他4名、新インターユニバーシティ 半導体工学、(株)オーム社、pp.1-46 (2009)
- (2) 三宅秀人、宮川鈴衣奈、他35名、窒化物基板および講師整合基板の成長とデバイス特性、(株)シーエムシー出版、pp.119-127 (2009)
- [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://www.opt.elec.mie-u.ac.jp>
<http://cute.rc.mie-u.ac.jp>
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