

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31日現在

機関番号：34315

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360013

研究課題名（和文）新機軸基板剥離式縦型深紫外発光素子に関する研究

研究課題名（英文）Research on vertical-type deep UV LEDs using new-concept substrate lift-off techniques

研究代表者

武内 道一（TAKEUCHI MISAICHI）

立命館大学・立命館グローバル・イノベーション研究機構・准教授

研究者番号：60284585

研究成果の概要（和文）：基板をはく離することで電極対向面配置型の縦型深紫外LED作製し、大面積化を行うことを目的として研究である。青色LEDに用いられている既存の技術ではサファイア基板とエピ GaN 層界面をレーザーリフトオフ法ではく離していたのだが、深紫外LEDではサファイア基板と AlN 層界面をはく離せねばならない。AlN 層はく離に適した成長膜構造開発とともに、結晶の高品質化に努め、数 mW 超の発光に成功した。サファイア基板以外にも Si 基板を用いた試行により、結晶の高品質化、クラック抑制を達成し、ウェットエッチングで Si 基板はく離が可能かを実証した。

研究成果の概要（英文）：This project focused on development of vertically-constructed deep UV LEDs by removing substrates. In the conventional substrate-removing techniques for blue LEDs, laser-lift off is used to remove substrates at the interfaces between substrate and GaN epi-layers. For deep UV LEDs, laser-lift off equipment should be modified to fit to remove at the interface below AlN layers. By improvement of crystalline quality of AlN layers as well as development of hetero-structures for laser-lift off, over several mW emission has been achieved. In addition, Si substrates were used as substrates on trial. Crystalline quality and crack formation were improved, and removing Si substrates by wet etching was demonstrated.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	6,800,000	2,040,000	8,840,000
2010年度	4,600,000	1,380,000	5,980,000
2011年度	3,000,000	900,000	3,900,000
総計	14,400,000	4,320,000	18,720,000

研究分野：半導体結晶成長工学、半導体発光デバイス工学

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：深紫外発光素子・結晶成長・III族窒化物半導体・量子井戸・AlN

・AlGaN・縦型発光素子・レーザーリフトオフ

1. 研究開始当初の背景

次世代短波長発光素子として期待されている AlGaN 系窒化物半導体を用いた深紫外発光素子の開発が急務となっている。応用面

としては 260~280 nm 台深紫外光が各種化学結合を直接分解可能なことから殺菌的用途が大いに注目されている。

応募者は以前より提唱してきた独自のア

アイデアである「基板はく離式縦型発光素子」によって素子の大面積化、および高出力化を目指してきた。

2. 研究の目的

III 族窒化物半導体による深紫外発光素子を実用的デバイスとして成功させるには、発光強度向上もさることながら、素子の寿命、コストなどの問題がある。「基板はく離式縦型発光素子」は、そうした問題を解決するために提唱したものである。本課題では、殺菌・化学物質分解等に有用な 260~280 nm 帯深紫外発光素子その基板はく離技術を用いて大面積高効率発光を実現することに加え、将来のさらなる高強度発光、及びトータルコスト低減を勘案して、新規なアイデアに基づいた基板はく離型縦型深紫外発光素子の開発を行うことを目的とした。

3. 研究の方法

起案当初は、Si などのウェットエッチングが可能な基板と、AlN バルク基板を用いてレーザーリフトオフ犠牲層を開発することで AlN バルク基板の再利用を可能とする技術を基軸として研究プランを提案した。Si 基板を利用するためには、AlGaIn/AlN/Si 構造でクラックフリー化を目指すために、何らかの応力解放構造を導入する必要があると考え研究を進めることとした。AlN バルク基板は、まだ入手が困難なことから、サファイア基板を用いて、AlGaIn 系レーザーリフトオフ犠牲層/AlN/サファイア基板構造の更なる高品質化、及びレーザーリフトオフ犠牲層の高性能化を目指すこととした。また、適時、265~280 nm 帯深紫外 LED 構造を試作し、LED 作製プロセスなども検証することとした。

4. 研究成果

易加工性基板である Si 基板を用いた AlN 成長について、初年度である 21 年度は「自然ボイド形成法」という手法を用いてクラックフリーで高品質な AlGaIn 系薄膜を成長可能とすることに成功し、その次年度は手法の制御性

を向上すべくボイド形成メカニズムの詳細な検証を行い、断面構造の詳細を検証から、Si 基板側にわずかにエッチピットが形成され、そこを起点にボイドが形成されることを見いだした。それら研究の中で明らかとなってきたのは初期の Si-Al 反応が非常に MOCVD 炉内の雰囲気によって左右され、再現性が問題であるということであった。最終年度は再現性、制御性、均一性について留意して研究を進め、Si-Al 反応の安定性が炉内残留雰囲気に大いに影響を受けさらに温度条件が非常に狭いことがわかった。その不安定さが故に残念ながら高品質化に踏み込むことところまでは到達できなかった。

AlN/サファイアテンプレート構造については、極性混在初期膜成長-アニール埋め込み成長といった二段階成長法を駆使し、各種成長パラメーターの再見直しとともに最高水準の AlN 膜を市販の結晶成長炉の能力で 2 インチ基板上に非常に均質に形成する成長技法の開発に成功し、昨年度にはクラックフリーの n 形 AlGaIn 層は $4\sim 5\times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ も達成していた。最終年度ではこれを利用することで、7 mW を越える発光を実現することができた。

この系での基板はく離法開発に関しては、申請時当初は素子抵抗低減のために基板はく離式電極正対型縦型構造を良しとして来たが、上記高濃度 n 形ドーピングが可能となったこと、基板はく離法そのものが非常に困難なこと、さらに基板はく離後の暴露裏面への電極構造形成が困難かつ接触抵抗が大幅に増加してしまうことなどもあって、電極横配置型素子で熱伝導性の悪いサファイア基板をはく離することの是非を検討せねばならないと判断している。

残念な点としては、発案時の AlN バルク基板を入手してレーザーリフトオフにて再利用をというアイデアを試行する点については、いまだ AlN バルク基板がレーザーリフトオフのレーザー光に透明でないことなどから現状では不適合な基板でしかなかった。AlN/サファイア基板界面に対するレーザーリフトオフ法適用により、歩留まり向上をというアイ

アも試行したが、新規レーザーリフトオフ装置の開発・導入は予算面からして踏み切れなかった。縦型素子を絶対視するのではなく、熱伝導性能向上のためにサファイア基板をはく離するのか、研磨により薄くするのか、熱放出性能を向上させるためにデバイス構造設計シミュレーションの精度を高めて解決させるのかなどという視点から、素子のコストまでも鑑みて慎重な検討を要する点であると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

1. 著者名 : H. Aida, S. W. Kim, K. Sunakawa, N. Aota, K. Koyama, M. Takeuchi, and T. Suzuki、論文表題 : III-Nitride epitaxy on atomically controlled surface of sapphire substrate with slight misorientation、雑誌名 : Jpn. J. Appl. Phys.、査読 : 有、巻 : 51、発行年 : 2012、ページ : 025502
2. 著者名 : Y. Aoyagi, M. Takeuchi, S. Iwai, and H. Hirayama、論文表題 : High hole carrier concentration realized by alternative co-doping technique in metal organic chemical vapor deposition、雑誌名 : Appl. Phys. Lett.、査読 : 有、巻 : 99、発行年 : 2011、ページ : 112110
3. 著者名 : Y. Aoyagi, M. Takeuchi, K. Yoshida, M. Kurouchi, N. Yasui, N. Kamiko, T. Araki and Y. Nanishi、論文表題 : Inactivation of Bacterial Viruses in Water Using Deep Ultraviolet Semiconductor Light-Emitting Diode、雑誌名 : J. Environ. Eng.、査読 : 有、巻 : 137、発行年 : 2011、ページ : 1215
4. 著者名 : T. Nanjo, M. Takeuchi, A. Imai, M. Suita, T. Oishi, Y. Abe, E. Yagyū, T. Kurata, Y. Tokuda and Y. Aoyagi、論文表題 : AlGa_N channel HEMTs on AlN buffer layer with sufficiently low off-state drain leakage current、雑誌名 : ELECTRONICS LETTERS、査読 : 有、巻 : 94、発行年 : 2009、ページ : 1346

〔学会発表〕(計34件)

1. 発表者名 : 黒内正仁, 武内道一, 青柳克信、発表表題 : ウェハそりを制御した厚膜 AlN テンプレート上の 265nm 帯深紫外 LED の作製、学会名等 : 第 59 回応用物理学関係連合講演会、発表年月日 : 2012 年 3 月 18 日、発表場所 : 早稲田大学、新宿区 (東京都)
2. 発表者名 : 黒瀬範子, 黒内正仁, 武内道一, 青柳克信、発表表題 : マイクロプラズマを用いた深紫外発光素子の原理実証研究、学会名等 : 第 59 回応用物理学関係連合講演会、発表年月日 : 2012 年 3 月 18 日、発表場所 : 早稲田大学、新宿区 (東京都)
3. 発表者名 : 王科, 荒木努, 武内道一, 山口智広, 名西やすし、発表表題 : InN overgrowth through in situ AlN nano-mask on sapphire substrate、学会名等 : 第 59 回応用物理学関係連合講演会、発表年月日 : 2012 年 3 月 17 日、発表場所 : 早稲田大学、新宿区 (東京都)
4. 発表者名 : 武内道一, 黒内正仁, 黄恩淑, 青柳克信、発表表題 : 極性混在 AlN 上への AlGa_N 量子ドット状キャリア局在構造、学会名等 : 第 59 回応用物理学関係連合講演会、発表年月日 : 2012 年 3 月 15 日、発表場所 : 早稲田大学、新宿区 (東京都)
5. 発表者名 : M. Takeuchi, M. Kurouchi, Y. Aoyagi、発表表題 : Recent progress in our AlGa_N deep UV LEDs - over 6 mW operation (Invited)、学会名等 : The 8th SNU-Ritsumeikan University Joint Workshop on Compound Semiconductors、発表年月日 : 2011 年 12 月 9 日、発表場所 : ソウル (韓国)
6. 発表者名 : 武内道一, 黒内正仁, 青柳克信、発表表題 : 市販 MOCVD 装置による AlGa_N 系深紫外 LED とその素子応用、学

- 会名等：第 72 回応用物理学会学術講演会、
発表年月日：2011 年 9 月 2 日、発表場所：
山形大学、山形市（山形県）
7. 発表者名：黒内正仁、武内道一、青柳克信、発表表題：成長レート増加による AlN 成長中のウェハそり低減、学会名等：第 72 回応用物理学会学術講演会、発表年月日：2011 年 8 月 31 日、発表場所：山形大学、山形市（山形県）
 8. 発表者名：M. Takeuchi, M. Kurouchi, Y. Aoyagi、発表表題：Over 1 mW Emission Achieved by Polarity-Inversion MOCVD Growth for AlGaIn-Based Deep UV LEDs ($\lambda \approx 265$ nm)、学会名等：9th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-9)、発表年月日：2011 年 7 月 13 日、発表場所：グラスゴー（英国）
 9. 発表者名：黒内正仁、武内道一、青柳克信、発表表題：Suppression of wafer curvature increment during AlN growth by increasing growth rate、学会名等：30th Electronic Materials Symposium (EMS30)、発表年月日：2011 年 6 月 30 日、発表場所：ラフォーレ琵琶湖、守山市（滋賀県）
 10. 発表者名：武内道一、発表表題：AlGaIn 系深紫外発光素子対応半導体層の MOCVD 成長、学会名等：第 52 回 CVD 研究会、発表年月日：2010 年 12 月 13 日、発表場所：京都私学会館、京都市（京都府）
 11. 発表者名：M. Takeuchi、発表表題：III-Nitride based deep UV light emitting devices for environmental issues (Invited)、学会名等：The 7th Scientific Conference of University of Science、発表年月日：2010 年 11 月 26 日、発表場所：ホーチミンシティ（ベトナム）
 12. 発表者名：M. Takeuchi, K. Yoshida, M. Kurouchi, T. Araki, Y. Nanishi, Y. Aoyagi、発表表題：Growth and Application of AlGaIn Deep UV LEDs -Water Purification and Ozone Sensing- (Invited)、学会名等：The 6th SNU-Ritsumeikan Joint Workshop on Compound Semiconductors、発表年月日：2010 年 11 月 10 日、発表場所：ソウル（韓国）
 13. 発表者名：武内道一、吉田薫、黒内正人、荒木努、名西徳之、青柳克信、発表表題：水殺菌、およびオゾン検知への AlGaIn 系深紫外 LED の実応用、学会名等：窒化物ナノ・エレクトロニクス材料研究センター講演会 GaN 系プラネットコンシヤスデバイス・材料の現状、発表年月日：2010 年 11 月 4 日、発表場所：東北大学、仙台市（宮城県）
 14. 発表者名：武内道一、発表表題：深紫外 LED による水処理・オゾンセンサー (Invited)、学会名等：第三回窒化物半導体の高品質結晶成長とその素子応用、発表年月日：2010 年 10 月 25 日、発表場所：東北大学、仙台市（宮城県）
 15. 発表者名：M. Kurouchi, Misaichi Takeuchi, Yoshinobu Aoyagi、発表表題：Formation of Three-dimensional AlN Structure for Initial Growth by Annealing AlN Buffer Layer、学会名等：International Workshop on Nitride Semiconductors 2010 (IWN2010)、発表年月日：2010 年 9 月 20 日、発表場所：タンパ（米国）
 16. 発表者名：M. Takeuchi, Y. Aoyagi、発表表題：Crack-free AlGaIn/AlN Templates Grown on Si(111) Substrates by In-situ Void Formation Technique、学会名等：International Workshop on Nitride Semiconductors 2010 (IWN2010)、発表年月日：2010 年 9 月 20 日、発表場所：タンパ（米国）
 17. 発表者名：黒内正仁、武内道一、黄恩淑、青柳克信、発表表題：極性混在 AlN バッファ層のアニール処理による新しい核形成法、学会名等：第 71 回応用物理学会学術講演会、発表年月日：2010 年 9 月 15 日、発表場所：長崎大学、長崎市（長

- 崎県)
18. 発表者名: 吉田薫、黒内正仁、武内道一、荒木努、名西徳之、菅野裕靖、阿彦 由美、中村広隆、青柳克信、発表表題: 深紫外線 LED を用いたオゾン濃度測定、学会名等: 第 71 回応用物理学会学術講演会、発表年月日: 2010 年 9 月 15 日、発表場所: 長崎大学、長崎市 (長崎県)
 19. 発表者名: 南條拓真、武内道一、今井章文、鈴木洋介、塩沢勝臣、吹田宗義、阿部雄次、柳生栄治、吉新喜市、青柳克信、発表表題: Field Plate 構造を適用した AlGa_N channel HEMT の特性、学会名等: 第 71 回応用物理学会学術講演会、発表年月日: 2010 年 9 月 15 日、発表場所: 長崎大学、長崎市 (長崎県)
 20. 発表者名: 武内道一、黒内正人、青柳克信、安井宣仁、神子直之、発表表題: III 族窒化物半導体深紫外光源による水処理 (Invited)、学会名等: 第 13 回日本水環境学会シンポジウム、発表年月日: 2010 年 9 月 9 日、発表場所: 京都大学、京都市 (京都府)
 21. 発表者名: K. Yoshida, M. Kurouchi, M. Takeuchi, N. Yasui, N. Kamiko, Y. Nanishi, T. Araki, and Y. Aoyagi、発表表題: Water Sterilization by AlGa_N base DUV Light Emitting Diodes、学会名等: 29th Electronic Materials Symposium (EMS29)、発表年月日: 2010 年 7 月 15 日、発表場所: ラフォーレ修善寺、伊豆市 (静岡県)
 22. 発表者名: 武内道一、林 洋平、荒木 努、名西やすし、青柳克信、発表表題: AlN ボイド形成法による Si 基板上へのクラックフリー AlGa_N 層成長、学会名等: 第 57 回応用物理学関係連合講演会、発表年月日: 2010 年 3 月 18 日、発表場所: 東海大学、平塚市 (神奈川県)
 23. 発表者名: M. Takeuchi、発表表題: AlGa_N-based deep UV light emitting devices for environment issues (Invited)、学会名等: MICINN-JST Joint Workshop on “Nanoscience and New Materials for Environmental Challenges”、発表年月日: 2010 年 3 月 11 日、発表場所: マドリード (スペイン)
 24. 発表者名: 武内道一、発表表題: Si ドープ AlGa_N の反りと結晶成長 (Invited)、学会名等: 第 2 回窒化物半導体の高品質結晶成長と素子応用、発表年月日: 2009 年 12 月 22 日、発表場所: 東北大学、仙台市 (宮城県)
 25. 発表者名: T. Nanjo, M. Takeuchi, A. Imai, M. Suita, T. Oishi, Y. Abe, E. Yagyu, T. Kurata, Y. Tokuda, Y. Aoyagi、発表表題: Drivability Enhancement of AlGa_N Channel HEMTs、学会名等: 8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8)、発表年月日: 2009 年 10 月 23 日、発表場所: 済州島 (韓国)
 26. 発表者名: M. Takeuchi, Y. Aoyagi、発表表題: Investigation of AlN MOCVD Growth by Two-light-Beam in-situ Monitoring System、学会名等: 8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8)、発表年月日: 2009 年 10 月 19 日、発表場所: 済州島 (韓国)
 27. 発表者名: 武内道一、青柳克信、発表表題: 高出力深紫外縦型半導体発光素子の開発と水浄化への応用、学会名等: 第 12 回日本水環境学会シンポジウム、発表年月日: 2009 年 9 月 14 日、発表場所: お茶の水女子大、文京区 (東京都)
 28. 発表者名: 高橋 聡、武内道一、荒木 努、名西やすし、青柳克信、発表表題: 超格子はく離層を用いた AlGa_N 系レーザーリフトオフ法によるダメージの評価、学会名等: 第 70 回応用物理学会学術講演会、発表年月日: 2009 年 9 月 11 日、発表場所: 富山大学、富山市 (富山県)
 29. 発表者名: 吉田 薫、武内道一、荒木 努、名西やすし、青柳克信、発表表題: AlGa_N 量子井戸構造に対する III 族元素を用い

- たポストアニール効果、学会名等：第70回応用物理学会学術講演会、発表年月日：2009年9月10日、発表場所：富山大学、富山市（富山県）
30. 発表者名：武内道一、青柳克信、発表表題：AlN MOCVD 成長の二光束成長その場観察、学会名等：第70回応用物理学会学術講演会、発表年月日：2009年9月8日、発表場所：富山大学、富山市（富山県）
31. 発表者名：武内道一、発表表題：AlN～AlGa_N系窒化物半導体による大面積縦型発光素子のための結晶成長技術の確立(Invited)、学会名等：第1回窒化物半導体の高品質結晶成長と素子応用、発表年月日：2009年7月31日、発表場所：東北大学、仙台市（宮城県）
32. 発表者名：M. Kurouchi, Y. Hayashi, M. Takeuchi, T. Araki, Y. Nanishi, and Y. Aoyagi、発表表題：Designing of multiple quantum well structures to increase emission intensity from AlGa_N LEDs、学会名等：28th Electronic Materials Symposium (EMS28)、発表年月日：2009年7月10日、発表場所：ラフォーレ琵琶湖、守山市（滋賀県）
33. 発表者名：M. Takeuchi and Y. Aoyagi、発表表題：Discussion about the growth model of AlN flow-modulation MOCVD、学会名等：28th Electronic Materials Symposium (EMS28)、発表年月日：2009年7月10日、発表場所：ラフォーレ琵琶湖、守山市（滋賀県）
34. 発表者名：武内道一、青柳克信、発表表題：AlN～AlGa_N MOCVD 成長その場観察 - 縦型深紫外発光素子実現にむけて - (Invited)、学会名等：日本結晶成長学会ナノエピ分科会 第1回窒化物半導体結晶成長講演会、発表年月日：2009年5月16日、発表場所：東京農工大学、小金井市（東京都）

〔産業財産権〕

○出願状況（計3件）

- 名称：AlN層の製造方法およびAlN層
 発明者：武内道一、青柳克信
 権利者：立命館大学
 種類：特許
 番号：特願2011-151137
 出願年月日：2011, 7, 7
 国内外の別：国内
- 名称：結晶成長方法および半導体素子
 発明者：青柳克信、武内道一、上田吉裕、太田征孝
 権利者：立命館大学、シャープ
 種類：特許
 番号：特願2011-042479
 出願年月日：2011, 2, 28
 国内外の別：国内
- 名称：オゾン濃度測定装置
 発明者：吉田薫、武内道一、青柳克信、中村広隆、菅野裕晴、阿彦由美、菅野勝靖
 権利者：(有)光電鍍工業、(独)都立産業技術研究センター、(学)立命館
 種類：特許
 番号：特願2011-038925
 出願年月日：2011, 2, 24
 国内外の別：国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

武内 道一 (TAKEUCHI MISAICHI)
 立命館大学・立命館グローバル・イノベーション研究機構・准教授
 研究者番号：60284585

(2) 研究分担者

黒内 正仁 (KUROUCHI MASAHIRO)
 立命館大学・立命館グローバル・イノベーション研究機構・ポストドクトルフェロー
 研究者番号：10452187