

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：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010～2011

課題番号：22760017

研究課題名（和文）窒化物半導体を用いた深紫外LED・深紫外LDの開発

研究課題名（英文）Development of deep ultraviolet LED and LD on nitride semiconductor

研究代表者

藤川 紗千恵 (FUJIKAWA SACHIE)

独立行政法人理化学研究所・テラヘルツ量子素子研究チーム・基礎科学特別研究員

研究者番号：90550327

研究成果の概要（和文）：

サファイアオフ角 a 軸傾斜基板を用いて高品質 AlN の作製、AlGaIn 量子井戸領域への Si モジュレーションドーピングにより内部量子効率改善、多重障壁バリア層導入による電子注入効率の向上、各膜厚や膜質の最適化等を行った。その結果、安易に良質な AlN 表面平坦な膜を形成できることを明らかにし、波長 270nm において最高光出力 33mW、最高外部量子効率約 4%と世界最高レベルの深紫外 LED を実現した。

研究成果の概要（英文）：

I demonstrated high-efficiency 270nm band AlGaIn based deep-ultraviolet (DUV) LEDs grown by low-pressure metal-organic chemical-vapor deposition (LP-MOCVD). The high efficiency DUV-LEDs were achieved by using a-axis oriented c-plane sapphire substrates in order to obtain a high quality AlN, introducing the light-doping of Si to AlGaIn quantum well emitting region, using the multi quantum barriers layer, optimizing the band lineup and so on. As a result, I made found growing the easily good AlN surface. Additionally, the maximum light output power and maximum external quantum efficiency of DUV-LEDs were 33mW and about 4%, respectively.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

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：DUV-LED, AlN, AlGaIn, sapphire, MOCVD

1. 研究開始当初の背景

波長 250-350nm 帯の深紫外高輝度 LED・深紫外半導体レーザー(LD)は、医療、殺菌・浄水、生化学産業、高演色 LED 照明、高密度光記録、紫外硬化樹脂等の化学工業、ダイオキシンや PCB、NOx ガスなど公害物質の高速分解処理、バイオ工学、各種情報センシング等の大変幅広い分野で貢献する事ができる。深紫外高輝度 LED・深紫外 LD が実現すれば、コンパクトで安価・高効率・長寿命紫外光源となり、上記の応用分野が飛躍的に広がると考えられる (図 1)。

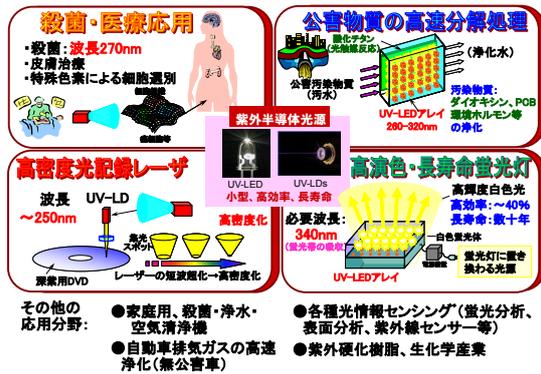


図 1. 深紫外 LED・LD の応用分野

窒化アルミニウムガリウム (AlGaIn) 系半導体は、波長 200nm-360nm の紫外に発光領域を有し、紫外 LED を実現する材料として最も有力である。近年、紫外 LED・LD の短波長化と高効率化に向けて激しい開発競争が行われている。しかし、青から近紫外領域ではすでに数十%の発光効率が実現されているが、波長が 360nm よりも短い深紫外領域では効率がまだ極めて低いのが現状である (図 2)。また、窒化物半導体レーザーの最短波長は 336nm であり、それより短波の LD はいまだ実現していない。

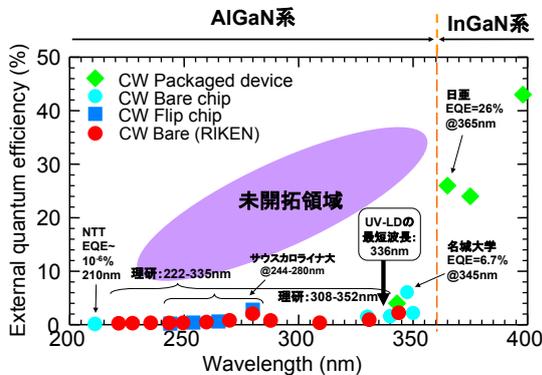


図 2. 窒化物紫外 LED の外部量子効率と波長の関係

したがって、今後、深紫外発光素子の実用化に向け、波長 250-350nm 帯の高効率発光素子を実現することが、この分野の研究の大きな課題である。

2. 研究の目的

窒化物半導体は、波長 200-360nm 帯の発光波長域を持ち深紫外発光素子を実現する上で最も有力な材料である。本研究では、その窒化物半導体材料を用い波長 250nm-350nm 帯の深紫外高効率発光ダイオード (LED) の高出力動作、未踏波の深紫外半導体レーザー (LD) を実現することを目的とした。

3. 研究の方法

試料作製は、減圧有機金属気相成長法 (LP-MOCVD) を用いて行った。III族材料は、トリメチルガリウム (TMGa)、トリメチルアルミニウム (TMAI) を用い、ドーパントとしてテトラエチルシラン (TESi)、ビスクロペンタジエニルマグネシウム (Cp2Mg) を用いた。V族材料にはアンモニア (NH₃) を用いた。キャリアガスとして、水素ガス (H₂) を用いた。

サファイア基板は、a 軸に平行なオフ角 0.15°と m 軸に平行なオフ角 0.15°の c 面サファイア基板を用いた (図 3)。そして、a 軸と m 軸傾斜のサファイア基板上の成長状態を観察し比較を行った。

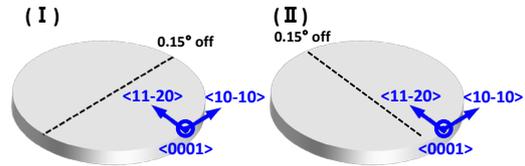


図 3. サファイア(0001)基板オフ方向概略図 (I) a 軸傾斜方向 (II) m 軸傾斜方向

図 4 に本研究で AlN バッファ層の成長に用いた「アンモニアパルス多段成長法」の概念とガスフローシーケンスを示す。この方法は ①低い貫通転位密度、②原子層オーダー平坦性、③クラック防止、④安定した III 族極性を一度に満たす方法として考案した方法である。まず、パルス供給により高品質 AlN 結晶の核を基板上に形成したあと、横方向によく成長するパルス供給成長条件を用いて埋め込み、貫通転位密度をできるだけ減少させる。その後、連続供給による高速縦方向成長と低速パルス供給成長による AlN 層を交互に繰り返すことでクラックを防止しながら、原子層オーダーの平坦性と貫通転位密度の低減を実現す

るのがその原理である。アンモニアパルス多段成長法を用いることにより、マイグレーションエンハンス成長が可能であるばかりで無く、安定したⅢ族極性を維持しながら成長が可能で、極性反転による異常核成長を大幅に抑制することが可能である。

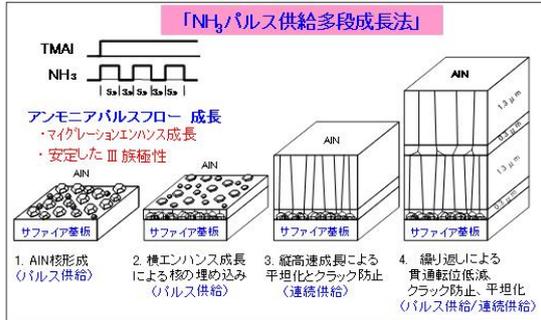


図4. 「アンモニアパルス多段成長法」による AlN 成長の概念とガスフローシーケンス

4. 研究成果

図5に a 軸および m 軸傾斜サファイア基板上の AlN 層表面光学顕微鏡写真を示す。m 軸傾斜上のはマイクロステップが観測され、a 軸傾斜上のは平坦な表面が観測できた。

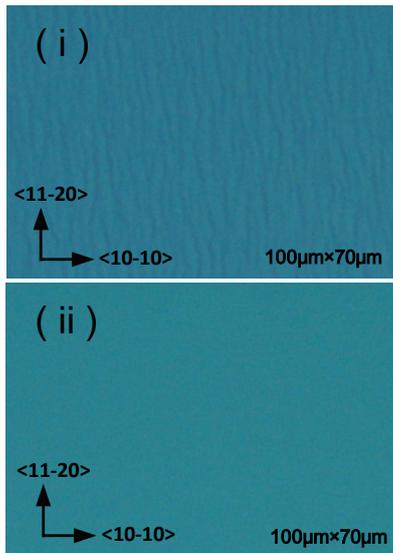


図5. (i) m 軸傾斜と (ii) a 軸傾斜サファイア上の AlN 表面比較 (400 倍)

図6に各軸方向にオフ角をとったサファイア基板上の AlN 表面の AFM 像を示す。(a)は、m 軸オフ角サファイア基板上的 AlN 表面のマイクロステップ明瞭に観察される。それに対し、(b)の a 軸傾斜サファイア基板上的 AlN 表面には、段差 1nm 未満の良好な原子ステップフローモフォロジーが観察された。その結果、安易に良質な AlN 表面平坦な膜を形成できることを明らかにした。

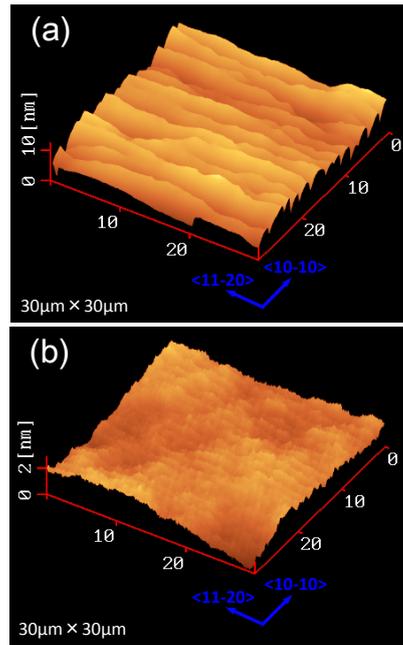


図6. (a) m 軸および(b)a 軸オフ角サファイア基板に成長した AlN テンプレートの AFM 像 (30μm × 30 μm)

図7に AlGaIn 系 LED の試料構造を示す。a 軸傾斜サファイア基板にアンモニアパルス供給多段 AlN 成長法を用いて、AlN 層を作製し、その上に n 型 AlGaIn 層、AlGaIn/AlGaIn:Si 3 重量子井戸層、p 型 AlGaIn 多重量子障壁層 (MQB)、p 型 AlGaIn 層、p 型 GaN コンタクト層を作製した。AlGaIn 量子井戸構造は、内部量子効率向上の為にバリア層に Si ドーピングを行った。また、電子注入効率を向上の為に多重障壁バリア層 (MQB) 導入した。

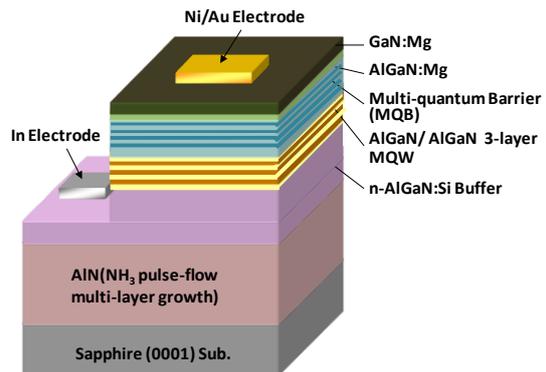


図7. AlGaIn 系深紫外 LED 構造

図8に LED の光出力と外部量子効率と EL スペクトルを示す。a 軸傾斜の c 面サファイア基板上的 LED は、室温連続動作において、波長 272nm で光出力 6.6mW、外部量子効率

3.8%を観測し、m軸傾斜基板より有用であることがわかった。これらの結果より、a軸傾斜のc面サファイア基板上的成長は、容易に平坦な膜が形成でき、高効率LED実現に有用であることが明らかとなった。

また、さらに各膜厚や膜質の最適化等で高効率化を行うことにより、波長270nmにおいて最高光出力33mWを観測した。これらの結果は、深紫外半導体LED実現においても有用であると考えられる。

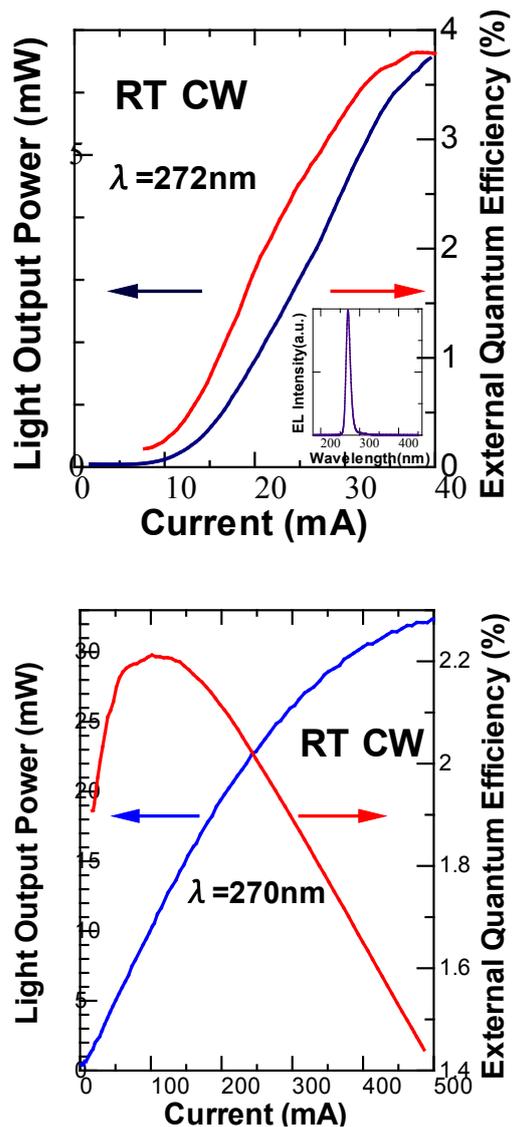


図8. LEDの光出力と外部量子効率とELスペクトル

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4件)

- ① S. Fujikawa, H. Hirayama and N. Maeda, "High-Efficiency AlGaIn Deep-UV LEDs fabricated on a- and m-axis oriented c-plane sapphire substrates", *physica status solidi (c)*, Vol. 9, Issue 3-4, pp. 790–793, (2012) 査読有
- ② S. Fujikawa, H. Hirayama, "284-300nm Quaternary InAlGaIn based Deep Ultraviolet Light-Emitting Diodes on Si (111) Substrates ", *Applied Physics Express* 4 (2011) 061002 査読有
- ③ 前田 哲利, 藤川 紗千恵, 平山 秀樹, 「m軸および a 軸オフ角 C 面サファイア基板上の AlIn 結晶成長の特徴と高出力 AlGaIn 深紫外 LED の作製」, *信学技報*, vol. 111, no. 292, LQE2011-117, pp. 107-112, 11月 (2011) 査読有
- ④ 応用物理, 「AlGaIn 系深紫外 LED の進展と展望」, 平山秀樹, 藤川紗千恵, 塚田悠介, 鎌田憲彦, 2011年4月号 査読無

[学会発表] (計19件)

- ① 藤川紗千恵, 平山秀樹, 前田哲利: "マイクロステップ制御による深紫外 LED の作製", 公益社団法人 応用物理学会 結晶工学分科会主催 2011年・年末講演会, 学習院, 東京, 2011年12月15日
- ② 藤川紗千恵, 前田哲利, 平山秀樹: "a軸および m 軸傾斜サファイア基板上に作製した高効率 AlGaIn 深紫外 LED ", CREST 「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」研究領域 第4回公開シンポジウム「光・光量子科学技術の新展開」, 日本科学未来館, 2011年12月2日
- ③ 藤川紗千恵, 平山秀樹: " Si 基板上 InAlGaIn 系深紫外 LED の進展", 「CREST 「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」研究領域 第4回公開シンポジウム 「光・光量子科学技術の新展開」, 日本科学未来館, 2011年12月2日
- ④ S. Fujikawa, H. Hirayama, Y. Kajima, "Enhancement of Light Extraction Efficiency of Deep UV-LEDs using Photonic Nano-structures", *The 2011 Nano Science Joint Laboratory Form*, RIKEN, 2011年11月25日
- ⑤ 藤川紗千恵, " AlGaIn 系高効率深紫外 LED の開発 ", 日本学術会議主催 公開シンポジウム 第2回先端フォトニクスの展望, 東京, 2011年10月7日
- ⑥ 藤川紗千恵, 平山秀樹, 「InAlGaIn4 元混

- 晶からの深紫外高 IQE の観測と殺菌波長帯高出力 LED の実現」, 文部科学省科学研究費補助金 特定領域研究 「窒化物光半導体のフロンティア - 材料潜在能力の極限発現-」東京, 2011 年 8 月 3 日
- ⑦ S. Fujikawa, H. Hirayama, N. Maeda, "High-Efficiency AlGaIn Deep-UV LEDs fabricated on a- and m-axis oriented c-plane sapphire substrates", 9th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-9), Glasgow UK, 2011 年 7 月 13 日
- ⑧ 藤川紗千恵, 平山秀樹, 「殺菌への実用を目指した Si 基板上深紫外 LED の実現」, 第 12 回理研・分子研合同シンポジウムエクストリームフォトンクス研究, 理研, 2011 年 6 月 30 日
- ⑨ (奨励賞 受賞講演) 藤川紗千恵, 平山秀樹: "窒化物半導体を用いた深紫外 LED の開発", 第 3 回 窒化物半導体結晶成長講演会, 九州大, 2011 年 6 月 18 日
- ⑩ S. Fujikawa, H. Hirayama and N. Maeda, "High-Efficiency AlGaIn Deep-UV LEDs fabricated on a- and m-axis oriented c-plane sapphire substrates" ,5th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors (APWS-2011), Toba, Mie, 2011 年 5 月 25 日
- ⑪ 藤川紗千恵, 平山秀樹, 前田 哲利: " a 軸方向傾斜 c 面サファイア上に作製した高効率深紫外 LED ", 2011 年春季第 58 回応用物理学関係連合講演会, 神奈川工科大, 2011 年 3 月 24 日
- ⑫ 藤川紗千恵, 平山秀樹: " InAlGaIn 元混晶を用いた 280nm 帯殺菌用途深紫外 LED の進展 ", 「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」研究領域 光・光量子科学技術の進展開 第 3 回公開シンポジウム, 日本科学未来館, 2010 年 11 月 26 日
- ⑬ 藤川紗千恵, 平山秀樹: "Si 基板上 280nm 帯 InAlGaIn 深紫外 LED ", 窒化物ナノ・エレクトロニクス材料研究センター講演会, 東北大, 2010 年 11 月 4 日
- ⑭ S. Fujikawa, H. Hirayama: "First Achievement of Deep-UV LED on Si substrate", 2010 IEEE International Semiconductor Laser Conference, Kyoto, 2010 年 9 月 27 日
- ⑮ S. Fujikawa, H. Hirayama: "Realization of InAlGaIn-based deep UV LEDs on Si (111) substrates", International Workshop on Nitride semiconductors (IWN2010), Tampa, Florida, U.S.A., 2010 年 9 月 21 日
- ⑯ 藤川紗千恵, 平山秀樹, " Si 基板上 280nm 帯 InAlGaIn 深紫外 LED " 2010 年秋季第 71 回応用物理学学会学術講演会, 長崎大,

2010 年 9 月 16 日

- ⑰ S. Fujikawa, H. Hirayama: "280nm-band InAlGaIn deep-UV LED on Silicon (111) substrate ", Third International Symposium on Growth of III-Nitrides(ISGN-3), Montpellier, France, 2010 年 7 月 5 日
- ⑱ 藤川紗千恵, 平山秀樹: "Si 基板上 280nm 帯 InAlGaIn 深紫外 LED の実現", 第 2 回窒化物半導体結晶成長講演会「窒化物半導体結晶成長の新しい流れ」, 三重大, 2010 年 5 月 14 日
- ⑲ 藤川紗千恵: " InAlGaIn 4 元混晶を用いた高出力深紫外 LED の実現 ", 日本学会議主催 公開シンポジウム 先端フォトンクスの展望, 東京, 2010 年 4 月 9 日

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

名称: 発光素子及びその製造方法

発明者: 平山秀樹、藤川紗千恵、鹿嶋行雄、松浦恵里子、西原浩巳、田代貴晴、大川貴史、尹成圓

権利者: 平山秀樹、藤川紗千恵、鹿嶋行雄、松浦恵里子、西原浩巳、田代貴晴、大川貴史、尹成圓

種類: 特許

番号: 2011-154276

出願年月日: 2011 年 7 月 12 日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤川 紗千恵 (FUJIKAWA SACHIE)

独立行政法人理化学研究所・テラヘルツ量子素子研究チーム・基礎科学特別研究員

研究者番号: 9 0 5 5 0 3 2 7