

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 11 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24246010

研究課題名(和文) Si基板を用いた縦型大面積・高出力深紫外LEDの研究

研究課題名(英文) Research on vertical-type large-area high-power deep-UV LEDs fabricated on Si substrates

研究代表者

平山 秀樹 (Hirayama, Hideki)

独立行政法人理化学研究所・平山量子光素子研究室・主任研究員

研究者番号：70270593

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,200,000円

研究成果の概要(和文)：深紫外LEDは、医療、殺菌・浄水、生化学産業などへ応用においてその高出力化が期待されている。しかし、サファイア基板上に形成された深紫外LEDでは、横注入構造のため高出力化が難しく、また光取り出し効率が低い。本研究では、Si基板上にAlGaIn深紫外LEDを形成することにより、縦型・大面積化を実現しその高出力化を実現することを目的とする。

本研究では、2次元格子状パターン加工基板上にAlN成長を行いクラックの無い良好なAlNバッファを形成し、深紫外LEDのミリワット動作に成功した。また、透明p型AlGaInコンタクトと高反射電極を導入することにより、深紫外LEDの光取り出し効率を大幅に向上させた。

研究成果の概要(英文)：The development of high-power deep-ultraviolet light-emitting diodes (DUV-LEDs) is quite an important subject because they are required for a wide variety of applications, such as sterilization, water purification, medicine and biochemistry. However, high-power operation of a DUV-LED fabricated on a sapphire substrate is difficult because of a large series resistance due to a lateral-injection and a low light-extraction efficiency (LEE). The purpose of this work is to realize a high-power DUV-LED by fabricating a vertical-type large-area LED device on a silicon (Si) substrate. We demonstrated high-quality AlN buffer layers with no surface cracks by fabricating them on patterned Si substrates. We obtained milli-watt power operations of DUV-LEDs fabricating on the high-quality AlN layer grown on the patterned substrates. We also achieved significant increase of LEE of DUV LED by introducing a transparent p-type AlGaIn contact layer and a highly-reflective electrode.

研究分野：量子電子・光デバイス工学 半導体工学

キーワード：深紫外LED AlGaIn AlN MOCVD Si基板 縦型LED 光取りだし効率 内部量子効率

1. 研究開始当初の背景

波長が230-350nm帯の深紫外高効率発光ダイオード(LED)・深紫外半導体レーザ(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、公害物質の高速浄化、各種情報センシング等の幅広い分野への応用が考えられその実現が大変期待されている。窒化物AlGaIn系半導体は、波長200-360nmの広い深紫外領域で直接遷移発光する、量子井戸を用いた高効率発光が可能である、p型及びn型伝導が可能である、結晶が硬く長寿命素子が可能である、砒素、水銀、鉛等を含まず環境に無害である、など多くの利点を兼ね備え持つため、深紫外発光素子を実現する最も有力な材料である。

しかし、深紫外LEDは、絶縁性のサファイア基板上に形成されているため、LEDは横注入構造をとっており、n型AlGaInの大きなシリーズ抵抗のため高出力化が難しい。またサファイア基板を伝搬する導波モードの発生により、光取り出し効率が大幅に低下し、光取り出し効率は8%以下と非常に低い。

2. 研究の目的

本研究では、Si基板上にAlGaIn系深紫外LEDを結晶成長し、さらにSi基板のリムーブを行うことで、縦型・大面積のAlGaIn系深紫外LEDを実現する。それにより、シリーズ抵抗の低減と光取り出し効率の向上により、深紫外LEDの大幅な高出力化を実現することを目的とする。サファイア基板のレーザリフトオフ(LLO)を用いて縦型LEDを作製した場合、LLOによるダメージにより素子特性が劣化し、大面積化も難しい。本研究では、Si基板上にAlGaIn系深紫外LEDを作製し、ウェットエッチングを用いてエピ層にダメージのないSi大面積リムーブを実現する。その行程を用いて縦型大面積・深紫外LEDを作製し、LEDの飛躍的な高出力化を目標とする。

3. 研究の方法

Si基板上高効率AlGaIn深紫外LEDの結晶成長、ウェットエッチングによるSi基板のリムーブ、AlN層除去とメッシュ電極形成の各プロセスを用いて、縦型大面積・高出力深紫外LEDを作製する。縦型および基板レス構造をとることで、シリーズ抵抗の大幅低減と高い光取り出し効率を実現し、高出力・深紫外LEDを実現する。

高い内部量子効率を得るためにSi基板上に貫通転位の少ないAlNバッファを形成する。「アンモニアパルス供給多段成長法」と横方向埋め込み成長(ELO)法を複合して用いることにより、クラックのない低貫通転位密度AlN層を結晶成長する。また、光取り出し効率を向上させるために、Al系高反射p型電極、薄膜p-GaNコンタクト層を用い、紫外光吸収を低減する。さらに、n-AlGaIn表面へのモスアイ加工により全反射を抑え、高い光取り出し効率を実現する。

4. 研究成果

(1) Si基板上の高品質AlN結晶成長をする準備として、パターン形成サファイア基板(PSS)上の高品質AlN結晶成長の検討とLEDの高出力化を行った。PSS上に、「アンモニアパルス供給多段成長法」を用いた低転位AlN形成、ならびに高温(~1400°C)低V/III比(~10)AlN成長を行うことによりアスペクト比の高いAlNピラー構造を形成した。さらに成長条件を変えてAlNピラーを結合させて平坦なAlNバッファ構造を形成した。図1に(a)PSS、(b)成長により自己形成されたAlNピラー、及び(c)ピラー構造を平坦成長したAlNバッファの走査型電子顕微鏡(SEM)像を示す。PSSでは周期3μmの三角格子状パターンを用いた。

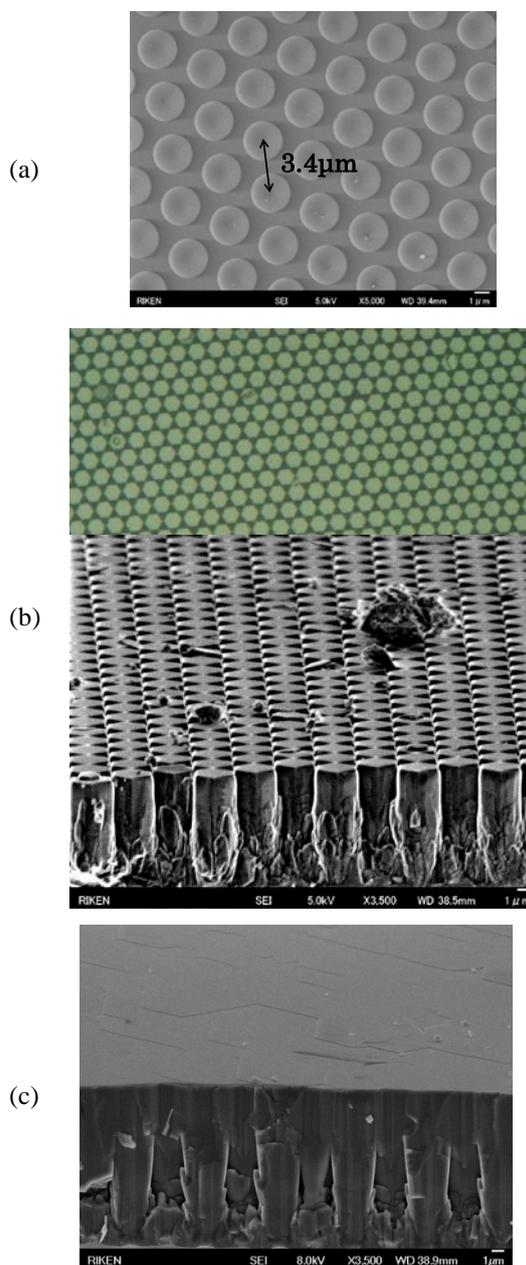


図1. (a)PSS、(b)成長により自己形成されたAlNピラー、及び(c)ピラー構造を平坦成長したAlNバッファのSEM像

図 1(c)で形成された構造は、AlN と基板との格子状数差によるクラックが入りにくく、また縦光伝搬特性を有するため深紫外 LED の光取り出し効率を向上させるために効果的である。図 2 に AlN ピラーバッファの断面透過電子顕微鏡 (TEM) 像を示す。ピラーの内部には貫通転位が無いいため、形成されたバッファは貫通転位密度が低い。低転位バッファは深紫外 LED の内部量子効率 (IQE) の向上のため極めて効果的であると考えられる。

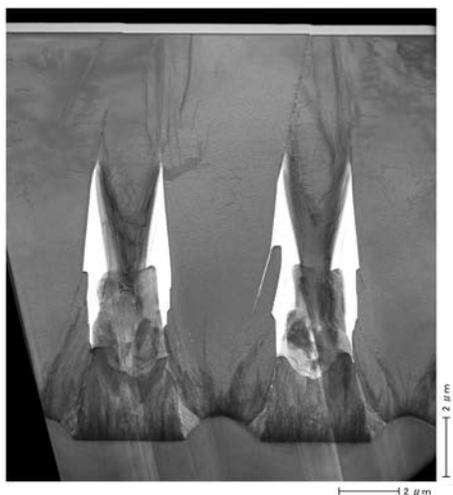


図 2. AlN ピラーバッファの断面 TEM 像

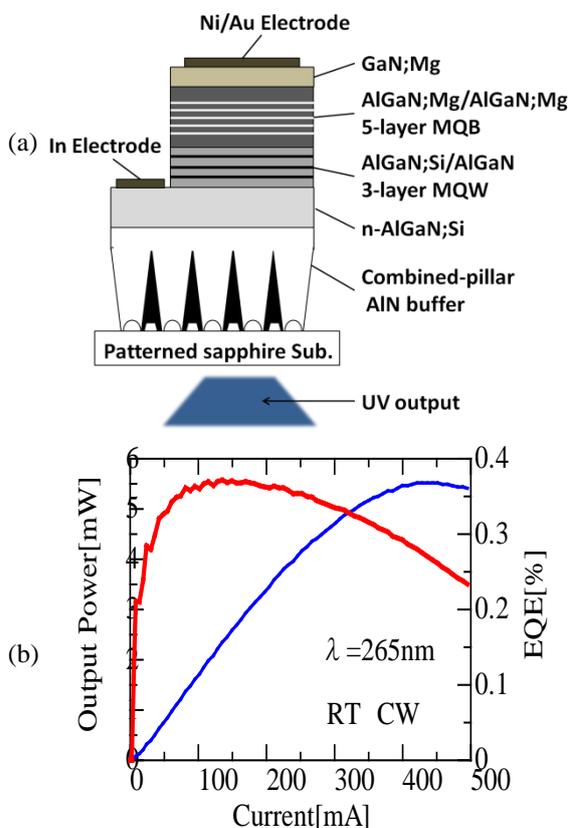


図 3. (a) AlN ピラーバッファ上に作製した AlGaIn 深紫外 LED の構造模式図、(b) 作製した深紫外 LED の動作特性

図 3 に、(a) AlN ピラーバッファ上に作製した AlGaIn 深紫外 LED の構造模式図、(b) 作製した深紫外 LED の動作特性を示す。AlN ピラーバッファを用いた深紫外 LED の良好な LED 動作を確認し、波長 265 nm において連続出力 5 mW の動作を得た。外部量子効率 (EQE) は 0.4% と低めであったが、この原因はピラーバッファの平坦性が良くないことに起因しており、現在 PSS の形状を工夫することで改善を試みている。

(2) 次に Si 基板上の AlN バッファの形成を行った。Si 基板上にクラックの無い AlN 薄膜を形成するために、パターン形成 Si 基板 (PSiS) を用いた。図 4 に、(a) AlN 埋め込み成長の模式図、及び (b) PSiS 上に成長された AlN バッファの断面 SEM 写真を示す。周期 6 μm の三角格子状に穴の開いた PSiS を用いて AlN 成長を行い図 4(b) に示す様な平坦でクラックの無い AlN バッファ層の形成に成功した。本研究で、パターンを形成した Si 基板は、クラックの発生を防止するために有効であり、今後、縦型深紫外 LED の作製に有用であることが示された。

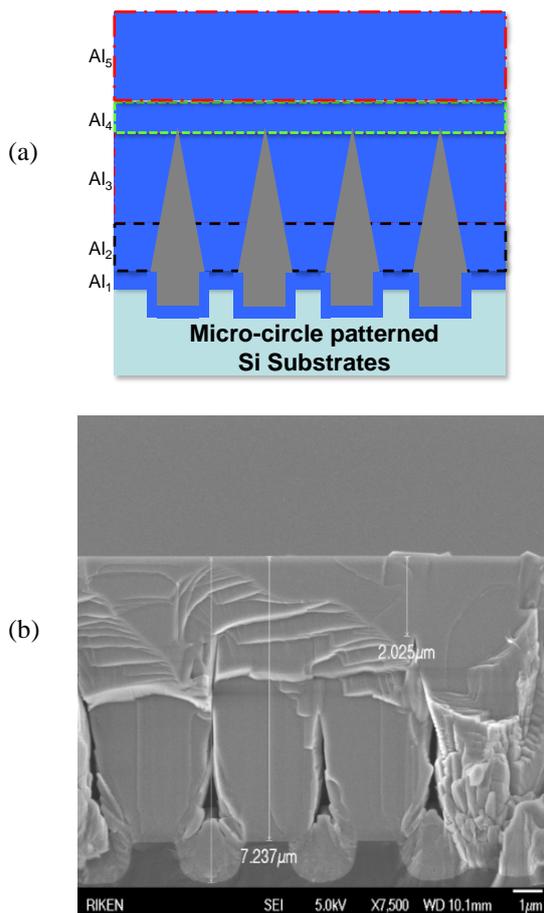


図 4. (a) AlN 埋め込み成長の模式図、及び (b) PSiS 上に成長された AlN バッファの断面 SEM 写真を示す。

(3) AlGaIn 深紫外 LED では、p 型 AlGaIn のホール濃度が非常に低いため、コンタクトを取るために p 型 GaN コンタクト層を用いている。しかし、p 型 GaN 層は紫外光を吸収するため、光取出し効率 (LEE) を著しく減少させる。通常の深紫外 LED では LEE は 8% にも満たない。本研究では、紫外光に透明な p-AlGaIn をコンタクト層に用いた深紫外 LED を作製し、世界初に良好な動作を実現した。

図 5 に、深紫外 LED に用いた p-AlGaIn コンタクト層の透過率を示す。Al 組成が 60% の p-AlGaIn をコンタクト層に用い、その透過率は実際の LED に用いた厚さでは 97% が得られた。図 6 に透明コンタクト層を用いた深紫外 LED の動作特性を示す。透明度の高いコンタクト層を用いた深紫外 LED で外部量子効率が 3% 程度の高効率動作が確認され、透明コンタクト層を用いた深紫外 LED が世界初実現した。

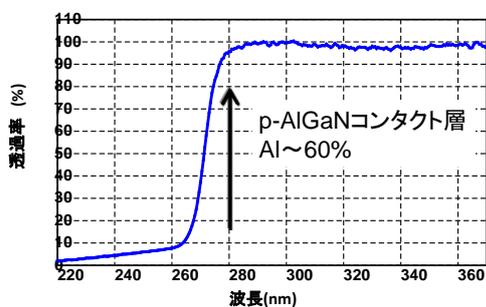


図 5. p-AlGaIn コンタクト層の透過率

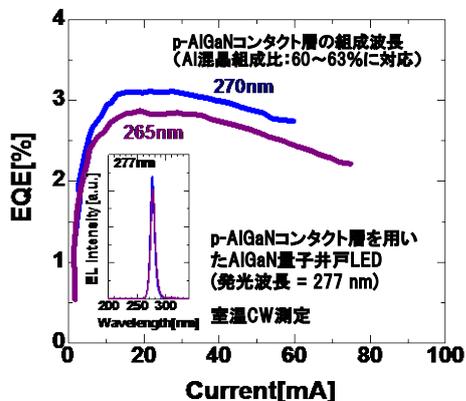


図 6. 透明コンタクト層を用いた深紫外 LED の動作特性

図 7 に、透明コンタクト層と高反射電極を用いた、深紫外 LED の LEE 向上の効果を示す。透明 p-AlGaIn コンタクト層深紫外 LED に、従来の低反射電極と Al 系金属高反射電極を形成して効率を比較した。その結果高反射電極を用いた方が 1.7 倍の効率向上が観測され、透明コンタクト層による LEE 向上効果が初めて明らかになった。今後、透明コンタクト層と高反射電極、及び、AIN ピラーを用いた光取出し構造を用いれば、それらの相乗効果で LEE の向上が可能であり、最終的に LEE は、現在の 8% 程度から 70% 以上に向上が可能であると考えられる。今後は、これらの基礎効果の実証を基に、AIN ピラー構造と

透明コンタクト層を Si 基板を用いて集積化し、高効率・高出力深紫外 LED の実現が可能になると考えられる。

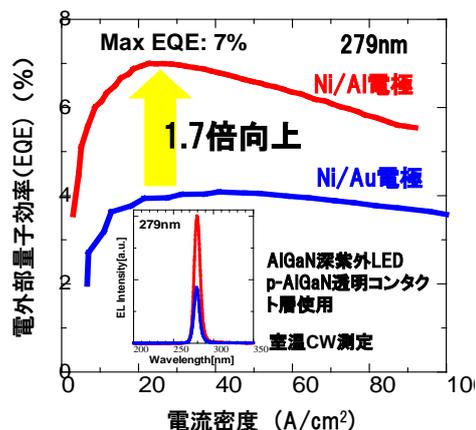


図 7. 透明コンタクト層と高反射電極を用いた深紫外 LED の LEE 向上

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 15 件)

- ① J. Yun, J. I. Shim, H. Hirayama, “Analysis of efficiency droop in 280 nm AlGaIn multiple-quantum-well light-emitting diodes based on carrier rate equation”, Appl. Phys. Express, 査読有, vol. 8, 2015, 022104, DOI: 10.7567/apex.8.022104.
- ② H. Hirayama, N. Maeda, S. Fujikawa, S. Toyota and N. Kamata, “Recent progress and future prospects of AlGaIn-based high-efficiency deep-ultraviolet light-emitting diodes”, Jap. J. Appl. Phys. (Selected Topic), 査読有, vol. 53, No. 10, 2014, pp. 100209 1-10, DOI: 10.7567/jjap.53.100209.
- ③ N. Maeda and H. Hirayama, “Realization of high-efficiency deep-UV LEDs using transparent p-AlGaIn contact layer”, Phys. Status Solidi (c), 査読有, Vol. 10, No. 11, 2013, pp. 1521-1524, DOI: 10.1002/pssc.201300278.
- ④ T. Mino, H. Hirayama, T. Takano, K. Tsubaki, and M. Sugiyama: “Characteristics of epitaxial lateral overgrowth AlN templates on (111) Si substrates for AlGaIn deep-UV LEDs fabricated on different direction stripe patterns”, Phys. Status Solidi (c), 査読有, Vol. 9, No. 3-4, 2012, pp. 802-805, DOI: 10.1002/pssc.201100380.
- ⑤ T. Mino, H. Hirayama, T. Takano, N. Noguchi, and K. Tsubaki, “Highly-uniform 260 nm-band AlGaIn-based deep-ultraviolet light-emitting diodes developed by 2-inch×3

MOVPE system”, Phys. Status Solidi (c), 査読有, Vol. 9, No. 3-4, 2012, pp. 749-752, DOI: 10.1002/pssc.201100358.

- ⑥ S. Fujikawa, H. Hirayama and N. Maeda, “High-efficiency AlGaIn deep-UV LEDs fabricated on a- and m-axis oriented c-plane sapphire substrates”, Phys. Status Solidi (c), 査読有, Vol. 9, No. 3-4, 2012, pp. 790-793, DOI: 10.1002/pssc.201100453.

その他

[学会発表] (計 66 件)

- ① H. Hirayama, “Recent Progress and Future Prospects of AlGaIn-based Deep-UV LEDs”, Light, Energy and the Environment Congress 2014, December 2-5, Canberra, Australia, 2014.
- ② H. Hirayama, “Recent progress and future prospects of AlGaIn deep-UV LEDs”, The 3rd International Symposium on Next-Generation Electronics (ISNE2014), May 7-10, Chang Gung University, Taoyuan, Taiwan, 2014.
- ③ H. Hirayama, “Recent progress of AlGaIn UVC LED by improving light-extraction efficiency”, Conference on LED and its Industrial Application (LEDIA’14), April 22-24, Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan, 2014.
- ④ H. Hirayama, N. Maeda, S. Toyoda and N. Kamata, “Improvement of Light-Extraction Efficiency of Deep-UV LED Using Transparent p-AlGaIn Contact Layer”, The 10th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-10), August 25-30, Washington, DC, USA, 2013.
- ⑤ H. Hirayama, N. Maeda, S. Fujikawa and N. Kamata, “Progresses of AlGaIn Deep-UV LEDs by Improving Light-Extraction Efficiency”, Asian Pacific Workshop on Nitride Semiconductors (APWS2013), May 12-15, Tamsui, Taiwan, 2013.
- ⑥ H. Hirayama, “Recent Progress and Future Prospects of AlGaIn-based Deep-UV LEDs”, LED, 50th Anniversary Symposium, October 24-25, Illinois, USA, 2012.
- ⑦ H. Hirayama, “Recent Progress and Future Prospects of AlGaIn-based Deep-UV LEDs”, 2012 German-Japanese-Spanish Joint Workshop on Frontier Photonic and Electronic Materials and Devices, July 21-22, Berlin, Germany, 2012.

その他

[図書] (計 3 件)

- ① H. Hirayama, Woodhead Publishing, “Nitride Semiconductor Light-Emitting Diodes (LEDs), Materials, Performance and Applications”, Chapter 17, “Ultraviolet LEDs”, December, 2013, pp. 497-532, ISBN 978-0857-099-303.
- ② 平山秀樹、培風館、「ワイドギャップ半導体」、監修：吉川明彦、編著：赤崎勇・松波弘之、第3.5章、「近未来光エコデバイスへの展開」、2013年3月、pp. 242-250、ISBN 978-4-563-06787-8.

その他

[産業財産権]

○出願状況 (計 6 件)

- ① 名称：紫外発光素子
発明者：平山秀樹
権利者：同上
種類：特許
番号：特許願2012-242516
出願年月日：平成 24 年 11 月 2 日
国内外の別：国内
- ② 名称：紫外発光ダイオードおよびそれを備える電気機器
発明者：平山秀樹、前田哲利、定昌史
権利者：同上
種類：特許
番号：特許願2014-090632
出願年月日：平成 26 年 4 月 24 日
国内外の別：国内

その他

○取得状況 (計 1 件)

- ① 名称：発光素子およびその製造方法
発明者：平山秀樹、鹿嶋行雄、松浦恵里子、西原浩巳、田代貴晴、大川貴史、藤川紗千恵、尹成圓、高木秀樹、上村隆一郎、長田大和
権利者：同上
種類：特許
番号：特許第 5315513 号
出願年月日：2012 年 5 月 25 日
取得年月日：2013 年 5 月 25 日
国内外の別：国内

[その他]

ホームページ

<http://www.riken.jp/lab/optodevice/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

平山 秀樹 (HIRAYAMA, Hideki)

理化学研究所・平山量子光素子研究室・主任
研究員

研究者番号：70270593

(2)研究分担者

藤川 紗知恵 (FUJIKAWA, Sachie)

理化学研究所・平山量子光素子研究室・研究員

研究者番号： 90550327