

平山 秀樹

(独)理化学研究所 基幹研究所  
テラヘルツ量子素子研究チーム チームリーダー

230-350nm 帯 InAlGa<sub>N</sub> 系深紫外高効率発光デバイスの研究

## § 1. 研究実施体制

### (1)「平山(理研)」グループ

- ① 研究分担グループ長:平山 秀樹((独)理化学研究所基幹研究所テラヘルツ量子素子研究チーム、チームリーダー)
- ② 研究項目
  - ・ 低貫通転位 AlN バッファーの実現
  - ・ AlGa<sub>N</sub> 系、InAlGa<sub>N</sub> 系量子井戸の深紫外・高内部量子効率の実現
  - ・ AlGa<sub>N</sub> 系 220-280nm 帯深紫外 LED の実現と高効率化
  - ・ InAlGa<sub>N</sub> 系 250-340nm 帯深紫外 LED の実現と高効率化
  - ・ ELO 法を用いた AlN の貫通転位低減と LED 実現
  - ・ 多重量子障壁を用いた電子注入効率の向上
  - ・ 高反射 p 型電極を用いた光取り出し効率の向上
  - ・ AlN バンド構造に起因した横方向放射特性の調査
  - ・ 紫外量子ドット LED の開発
  - ・ p 型 AlGa<sub>N</sub> の高ホール濃度化
  - ・ 無極性 AlN/AlGa<sub>N</sub> バッファーの結晶成長
  - ・ フォトニック結晶を用いた光取り出し効率の向上
  - ・ AlGa<sub>N</sub> 系深紫外 LD の検討

### (2)「鎌田(埼玉大)」グループ

- ① 研究分担グループ長:鎌田 憲彦(埼玉大学大学院理工学研究科、教授)
- ② 研究項目
  - ・ AlGa<sub>N</sub> 系、InAlGa<sub>N</sub> 系量子井戸の紫外光学特性評価
  - ・ 窒化物半導体結晶の深紫外発光メカニズムの解明

(3)「益子(NICT)」グループ

① 研究分担グループ長:益子 信郎((独)情報通信研究機構総合企画部、研究企画部長)

② 研究項目

- ・ サファイア基板上へのフォトニック結晶作製と深紫外 LED 光取り出し改善
- ・ ナノインプリント金属マスクを用いた高アスペクト比フォトニック結晶の形成

## § 2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)に対応する)

波長 230nm-350nm 帯の紫外高効率発光ダイオード(LED)、半導体レーザー(LD)は、殺菌・浄水、各種医療分野、高密度光記録、高演色 LED 照明、紫外硬化樹脂等の化学工業、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など幅広い分野での応用が期待されている。本研究では、AlGaIn 系窒化物半導体を用いて波長 230nm-350nm 帯の深紫外高効率 LED、深紫外 LD を実現することを目標としている。

これまでの研究で、深紫外 LED の効率の大幅な改善を実現してきた。AlN バッファ層の貫通転位密度の低減により、AlGaIn 量子井戸の内部量子効率(IQE)を 0.5%以下から 80%程度まで向上させ、また多重量子障壁(MQB)の導入により、電子注入効率(EIE)を 20%程度から 80%以上の値に向上させた。これらの改善により、最高外部量子効率(EQE)3.8%、最高出力 33mW の深紫外 LED を実現した。しかし、深紫外 LED の外部量子効率(EQE)は依然低い。効率の内訳について考察を進めた結果、光取り出し効率(LEE)が 10%以下と低くその改善が極めて重要であることが分かり、本研究では LEE 向上の研究を始めた。本年度は、フォトニックナノ構造を取り入れた光取り出し効率の改善を試み基礎的な成果を得た。これらに加え、将来的な大面積・超高出力・低コストな殺菌用・深紫外 LED の実現をめざし Si 基板上の深紫外 LED の実現を行った。

### ● a 軸傾斜サファイア基板を用いた高品質 AlN 成長と LED の高効率化

a 軸傾斜及び m 軸傾斜サファイア基板上的 AlN 成膜において、a 軸傾斜サファイア基板を用いた方が欠陥の少ない AlN バッファ層を形成できることを明らかにした。図 1 に、a 軸傾斜及び m 軸傾斜サファイア基板上的 AlN 成長時の原子配列、及び、a 軸傾斜サファイア基板に作製した深紫外 LED の動作特性を示す。

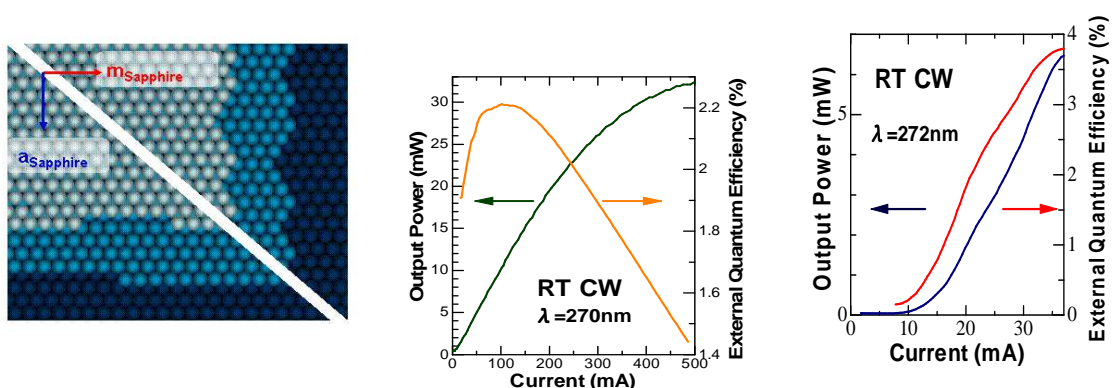


図 1、a 軸傾斜及び m 軸傾斜サファイア基板上的 AlN 成長時の原子配列、及び、a 軸傾斜サファイア基板に作製した深紫外 LED の動作特性。(a 軸傾斜基板を用いた方が平坦かつ転位の少ない AlN バッファ層が形成され、高出力、高効率深紫外 LED の作製に成功した。)

図 1 に示すように、m 軸傾斜の場合のステップの原子配列はジグザグなのに対し、a 軸傾斜の場合

合はフラットである。このことが a 軸傾斜を用いたほうで平坦かつ転位の少ない AlN バッファーを形成する要因であると考えられる。本研究では、a 軸傾斜サファイア上に AlN を形成することで高い外部量子効率(3.8%)、及び最高 CW 出力(33mW)を得た。

### ●深紫外 LED の光取出し効率を向上させる様々な試みと効果の実証

深紫外 LED の光取出し効率向上の試みについて図 2 にまとめる。本研究では、①サファイア裏面への 2 次元フォトニック結晶(2D-PhC)形成による LEE 向上、②パターン形成サファイア基板(PSS)上の AlN-ELO 成長を用いた結合ピラー構造の形成による、貫通転位低減と LEE 向上、③極薄 p-GaN コンタクト層と Al ベース高反射 p 型電極を用いた LEE の向上などの試みを行った。ナノインプリントとドライエッチングを用い、サファイア基板上に周期数 250-300nm の 2D-PhC パターンを形成し(図 3 参照)、深紫外 LED の LEE の向上を行った。2D-PhC を有する 270nm 帯深紫外 LED の構造とその効果を図 4 に示す。フォトニックパターンのアスペクト比を 1 程度取ることで、1.2 倍程度の光り取り出し効率向上を実現した。本研究ではまた、3 角格子状の 2 次元凹凸パターンを形成したサファイア基板(PSS:Patterned Sapphire Substrate)上に AlN 結晶成長を行い、AlN 隣接ロッド構造の作製に成功した。隣接ロッド構造は深紫外 LED の光取り出し効率を向上させるために極めて有効である。また隣接ロッド構造の平坦埋め込みにも成功し、AlN の貫通転位低減を実現した。形状の制御された 2 次元 ELO 構造の実現により、光り取り出し効率と内部量子効率が高効率化し、深紫外 LED の飛躍的な高出力化が期待できる。また、深紫外 LED の p-GaN コンタクト層は結晶歪のため平坦化しないのが問題であったが、本研究ではパルス供給成長を行うことで薄膜・平坦化することに成功した。その上に Ni(1nm)/Al(150nm)高反射 p 型電極を形成することで 1.5 倍程度の光取出し効率向上を実現した。

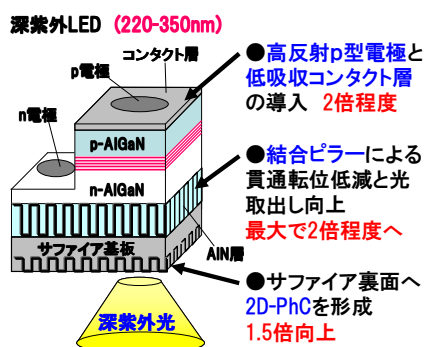


図 2、2D-PhC、結合ナノロッド、薄膜 p-GaN コンタクト層と Al ベース高反射電極を用いた光取出し効率(LEE)向上の概念。(LEE を現在の 8%から最高で 50%程度を目指す。)

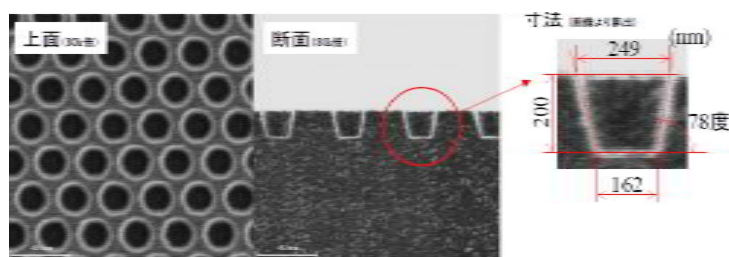


図 3、ナノインプリントと ICP ドライエッチングを用いたサファイア基板上の 2D-PhC パターン

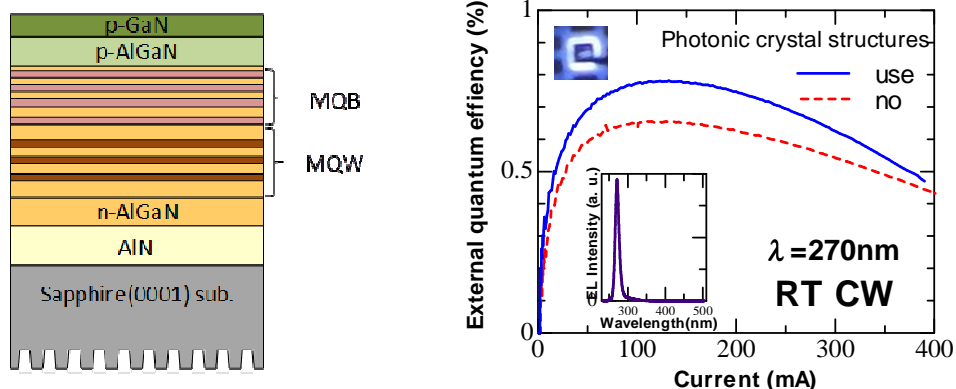


図 4、2D-PhC を有する 270nm 帯深紫外 LED の構造と PhC 効果による光取出し効率の向上

### •Si 基板上深紫外 LED の実現

Si 基板上の深紫外 LED は、将来、安価で大面積・高出力化が期待され、その開発は重要性が高い。本研究では、Si 基板上の高品質 AlN バッファ形成に成功し、Si 基板上の深紫外 LED を初めて実現した。Si 基板上 AlN 成長は結晶の熱膨張差の問題からクラックが入り難いが、本研究ではパルス供給成長法を用いてクラックの無い高品質 AlN 成長を行い、その上に波長 256-300nm の深紫外 LED を実現した。

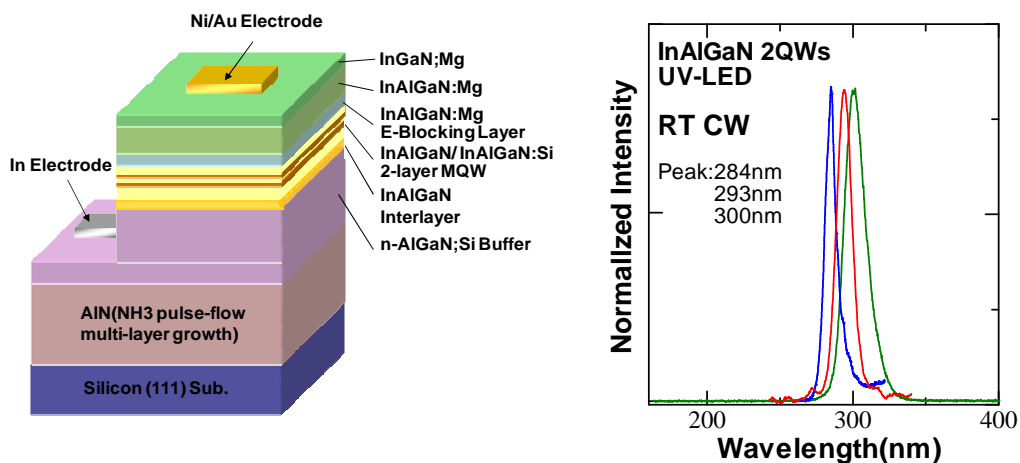


図 5、Si 基板上に形成した深紫外 LED の構造、及び LED の動作スペクトル

### § 3. 成果発表等

#### (3-1) 原著論文発表

##### ●論文詳細情報

1. T. Mino, H. Hirayama, T. Takano, K. Tsubaki, and M. Sugiyama: "Characteristics of epitaxial lateral overgrowth AlN templates on (111) Si substrates for AlGa<sub>N</sub> deep-UV LEDs fabricated on different direction stripe patterns", Phys. Status Solidi C, Vol. 9, No. 3-4, pp. 802-805 (2012). (DOI: 10.1002/ppsc.201100380)
2. T. Mino, H. Hirayama, T. Takano, N. Noguchi, and K. Tsubaki: "Highly-uniform 260 nm-band AlGa<sub>N</sub>-based deep-ultraviolet light-emitting diodes developed by 2-inch×3 MOVPE system", Phys. Status Solidi C, Vol. 9, No. 3-4, pp. 749-752 (2012). (DOI: 10.1002/ppsc.201100358)
3. S. Fujikawa, H. Hirayama and N. Maeda: "High-efficiency AlGa<sub>N</sub> deep-UV LEDs fabricated on a- and m-axis oriented c-plane sapphire substrates", Phys. Status Solidi C, Vol. 9, No. 3-4, pp. 790-793 (2012). (DOI: 10.1002/ppsc.201100453)
4. N. Maeda, H. Hirayama and S. Fujikawa: "Characteristics of AlN crystal growth depending on m- and a-axis oriented off-angle of c-sapphire substrate", Phys. Status Solidi C, Vol. 9, No. 3-4, pp. 810-813 (2012). (DOI: 10.1002/ppsc.201100425)
5. M. Akiba, H. Hirayama, Y. Tomita, Y. Tsukada, N. Maeda, and A. Kamata: "Growth of flat p-GaN contact layer by pulse flow method for high light-extraction AlGa<sub>N</sub> deep-UV LEDs with Al-based electrode", Phys. Status Solidi C, Vol. 9, No. 3-4, pp. 806-809 (2012). (DOI: 10.1002/ppsc.201100370)
6. 平山秀樹: "AlGa<sub>N</sub> 系深紫外 LED の進展", セラミックス, "特集:LED を支えるセラミックス", Vol. 47, No. 3, pp. 167-173, 2012 年 3 月号
7. 平山秀樹: "AlGa<sub>N</sub> 系深紫外 LED の進展と今後の展望", 未来材料 Review, Vol. 11, No. 10, pp. 22-32, 2011 年 10 月号
8. T. Mino, H. Hirayama, T. Takano, K. Tsubaki and M. Sugiyama: "Realization of 256-278 nm AlGa<sub>N</sub>-based Deep-Ultraviolet Light-Emitting Diodes on Si Substrates Using Epitaxial Lateral Overgrowth AlN Templates", Appl. Phys. Express, 4, 092104 (2011). (DOI: 10.1143/APEX.4.092104)

9. S. Fujikawa and H. Hirayama: “284-300 nm Quaternary InAlGaN-based Deep-Ultraviolet Light-Emitting Diodes on Si(111) Substrates”, Appl. Phys. Express, 4, 061002 (2011). (DOI: 10.1143/APEX.4.061002)
10. 平山秀樹、「AlGaIn 系深紫外光源の進展と展望」、光学、第 40 巻第 9 号 2011 年.

**(3-2) 知財出願**

- ① 平成 23 年度特許出願件数(国内 2 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 11 件)