

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名: 230-350nm 帯 InAlGa_N 系深紫外高効率発光デバイスの研究

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点):

研究代表者

平山 秀樹((独)理化学研究所 主任研究員)

主たる共同研究者

鎌田 憲彦(埼玉大学大学院理工学研究科 教授)

益子 信郎((独)情報通信研究機構 執行役)(平成 22 年 4 月～)

3. 研究実施概要

波長が 230-350nm 帯の深紫外高効率 LED・深紫外半導体レーザは、殺菌・浄水、医療、生化学産業、高密度光記録、公害物質の高速浄化、高演色 LED 照明、各種情報センシングなど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。本研究では、広い深紫外発光領域を持つ AlGa_N 系半導体を用い、230-350nm 帯の深紫外高効率発光素子を実現することを目的として研究を行った。AlGa_N 系材料では、結晶成長や各種材料物性に起因する問題から、十分な性能を有するバッファ層、発光層、ドーピング層の実現が難しいため、高効率深紫外発光素子の実現が難しい現状であった。本研究では、AlGa_N 系ワイドギャップ結晶の結晶成長技術とナノ構造形成技術を進化させることにより、低貫通転位 AlN バッファ層、In 組成変調高効率発光層、多重量子障壁による電子リーク抑制法、フォトニック結晶を用いた光取出し改善などを実現し、深紫外発光素子の発光効率を当初に比べ飛躍的に向上させた。これらの手法を用いて、幅広い波長帯(222-351nm)で深紫外 LED の実現を可能にし、さらに、4%程度の高い外部量子効率とシングルチップで 30mW 以上の高出力を発する深紫外 LED を実現した。

高効率深紫外 LED の開発は、理研と埼玉大鎌田研究室が連携して行ってきた。当初、高効率深紫外 LED を実現するためには、まず内部量子効率の向上させることが最も重要な課題であった。本研究では、低貫通転位密度 AlN バッファ層を作製する新手法として我々が独自に発案した「アンモニアパルス供給多段成長法」を展開・最適化させ、サファイア基板上に世界トップクラスの高品質 AlN 結晶を成膜することに成功した。この方法を用い AlN の刃状転位密度を従来比 1/80 程度である $3 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$ 程度に低減し、さらに表面の平坦性も RMS 値 0.16nm と世界最高品質を実現した。また大面積(4 インチ 1 枚または 2 インチ×3 枚)均一化も行い、深紫外 LED・LD 用途として実用レベルのテンプレート基板を供給可能とした。低貫通転位 AlN バッファ層を用いることで、従来 0.5%程度であった AlGa_N 量子井戸の内部量子効率を 50%以上まで向上させた。また、ELO(横方向埋め込み成長)法を用いることで、AlN の貫通転位密度を $7 \times 10^7 \text{cm}^{-2}$ まで低減させ、高効率深紫外 LED・LD 実現への土台を築いた。

AlGa_N に 1%以下の組成で In(インジウム)を混入することにより形成される In 組成変調領域へのキャリア局在効果を用い、80%程度の非常に高い内部量子効率を初めて実現した。また、In 混入により p 型 AlGa_N のホール濃度も向上することを見出した。高品質 AlN バッファ層上に AlGa_N 系深紫外 LED を作製し、AlGa_N 系の最短波長を含む 222nm-280nm の LED を実現した。さらに、InAlGa_N 系 LED を作製し、282nm の殺菌用途波長で実用レベル高出力(>10mW)の深紫外 LED を世界初実現した。

短波長深紫外 LED では、p 型 AlGa_N のホール濃度が極めて低い($< 10^{14} \text{cm}^{-3}$)ため、発光層への電子注入効率が低いことが問題であった。短波長 LED では、電子ブロック効果の高い AlN 電子ブロック層を用いた場合でも、電子注入効率が 20%程度と低いことを明らかにした。本研究では、多重量子障壁(MQB)を用いることにより、電子ブロックの実効的な高さを最大で 2 倍程度に高くできることを計算から明らかにした。MQBを用いた深紫外 LED を作製し、波長 250nm の深紫外 LED で電子注入効率をは 20%程度から 80%以上に改善させた。

深紫外 LED の光取出し効率は、p 型コンタクト層と電極による光吸収のため、8%程度と非常に小さくなることが問題であり、今後、大幅な改善が必要とされている。本研究では①Al 系高反射 p 型電極と透明 p-AlGa_N コンタクト層導入、②次元フォトニック結晶(2D-PhC)形成、③結合ピラー AlN バッファ層導入、による光取出し効率の改善を検討した。Al 系高反射 p 型電極、ならびにサファイア裏面の 2D-PhC 導入によりそれぞれ 1.3 倍、1.2 倍の光取出し効率向上を実現した。また、サファイア基板上の結合ピラー AlN バッファ層の形成に成功し、今後、光取出し効率と内部量子効率の改善に大きな効果が期待できる。

光取出し向上のための 2D-PhC の形成技術開拓は NICT の研究グループが担当し、最近その形成技術は大幅に進歩した。金属マスクとナノインプリントを用いた形成法の開発により、サファイア基板上に周期 300nm アスペクト比 1 程度の大面積 2D-PhC の形成ができるようになった。

以上の効果を用いて、本研究では深紫外 LED の飛躍的な効率向上、高出力、及び発光波長の拡大を実現してきた。また、これらの効果で世界をリードしてきた。2010 年以降、多くの研究グループが深紫外 LED 研究に新たに参画し、開発競争は激しさを増し、深紫外 LED の効率は加速的に向上し始めている。本研究では現在、外部量子効率 4% 程度、シングルチップ出力 30mW 以上を実現している。今後、最後に残された課題である、p 型 AlGaIn の開発と光取出し効率の向上を進めることにより、深紫外 LED の効率は青色 LED の値に近づいていくものと考えられる。また、本研究で開発が間に合わなかった深紫外 LED 開発も前進すると考えられる。

4. 事後評価結果

4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

研究者の発案による「アンモニアパルス供給多段成長法」および「横方向埋め込み成長法(ELO 法)」を用いて、AlN バッファ層の貫通転移密度を $7 \times 10^7 \text{cm}^{-2}$ に低減、これによって AlGaIn 量子井戸の内部効率を > 50% まで向上、さらに、AlGaIn の In 組成変調を用いて 80% の内部量子効率を達成、これらの成果を統合して、222~280nm 波長帯で LED を実現、InAlGaIn 系 LED を試作し、世界に先駆けて、殺菌用途波長 282nm で出力 > 10mW の実用レベルの高出力深紫外 LED を実現した。また、多重量子障壁(MQB)を用いた深紫外 LED を作製し、波長 250nm で電子注入効率を 20% から > 80% に改善している。

このように、本 CREST 研究では、深紫外 LED の飛躍的な内部発光効率の向上、高出力および発光波長の拡大を実現した。殺菌・医療応用の光源の実用化を目指して、数多くの研究グループが深紫外 LED 開発に参入する中で、本研究グループは世界をリードしており、波長 282nm で実用レベルの高出力 LED を実現したことは大いに評価できる。

なお、p 型 AlGaIn の開発と光取出し効率の向上はなお技術課題として残されているが、これは紫外 LED のさらなる性能向上の可能性を意味しており、今後の発展が大いに期待される。

研究成果は、国際ジャーナルを中心に積極的に公表しており、国際会議、国内会議を含めて、数多くの外部発表を行っている。本研究課題に関わる応用分野は多岐にわたり、競争も激しくなると予測されることから、研究代表者は、知的財産権の出願に積極的に取り組み、国内 9 件、海外 12 件の出願を行っていることは評価に値する。

4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

波長 230~350nm の深紫外光源の開発は、殺菌・医療応用や公害物質の高速処理などの社会的ニーズが大きく、本 CREST 研究の成果は学会のみならず社会的に大きなインパクトがある。

今後、光取出し効率の更なる向上が実現し、深紫外 LED の効率が青色 LED のそれに近づいていけば、殺菌・浄水、医療、生化学産業、高密度光記録、公害物質の高速浄化、高演色 LED 照明、情報センシングなどの幅広い分野への応用の道が拓け、社会的なインパクトは大きく、戦略目標の一つである「究極的な光の発生技術とその検知技術の創出」に貢献するものと期待される。

4-3. 総合的評価

波長 230~350 nm 帯の深紫外 LED の外部量子効率は、内部量子効率、電子注入効率、光取出し効率の掛け算で与えられる。本研究では、まず、内部量子効率に関して、貫通転位密度の低減化によって AlGaIn 量子井戸の内部量子効率を 60% にまで向上させるとともに、In 混入効果によって内部量子効率 80% を達成している。次に、電子注入効率に関しては、MQB を導入することによって電子注入効率を大幅に向上させ、250~280 nm 殺菌用途 LED において、実用レベルの高出力(20~30 mW 程度)を達成している。最後の光取出し効率に関しては、高反射電極とコンタクト層の薄膜化によって、光取出し効率を 1.4 倍、フォトニック結晶を導入することによって、1.2 倍向上させることに成功している。光取出し効率については、まだ十分とは言えず、今後、大幅な向上が必要であるが、現在、270 nm 殺菌波長帯では、シングルチップで 33 mW を実現する

とともに、237 nm の短波長領域では、世界を大きくリードする 4.8 mW を実現するなど、研究領域の趣旨にてらして、十分な成果が得られていると評価できる。