

氏 名	美濃 卓哉
博士の専攻分野の名称	博士（工学）
学位記番号	博理工甲第 905 号
学位授与年月日	平成 25 年 3 月 22 日
学位授与の条件	学位規則第 4 条第 1 項該当
学位論文題目	AlGaIn 系深紫外 LED の高効率化・量産対応化に関する研究
論文審査委員	委員長 連携教授 平山 秀樹 委 員 教 授 鎌田 憲彦 委 員 教 授 矢口 裕之 委 員 准教授 田井野 徹

## 論文の内容の要旨

現在、日本をはじめとする先進国は、衣食住、及び、衛生環境分野において、安心・安全な暮らしを享受している。この生活水準の高い状態を支えてきた技術の一つが、殺菌技術であり、上下水道や工業用水などの水殺菌技術、食品・製薬工場内で使用される表面殺菌、及び、空気殺菌技術がよく知られている。また、近年、新興国においても、経済発展に伴い、衛生環境分野の改善に対する要望が高まっており、上記の殺菌技術が大きな注目を集めている。近年、水銀灯に替わる殺菌デバイスとして、紫外線を放射する発光ダイオード（Light Emitting Diode, LED）が注目されている。最近では波長 280nm 帯において、外部量子効率が 10% を越える深紫外 LED が開発されたが、一方、実際に販売やサンプル出荷されている紫外、及び、深紫外 LED については、現状では外部量子効率 1% 程度である。しかも、寿命が 1000 時間程度と、LED の特徴である長寿命が生かせていない。また、価格も数万円程度と、水銀灯の置き換えや機器への組み込みを狙っていくには、非常に高価である。そこで、本研究では、外部量子効率が 3% と高効率で、寿命が数 1000 時間、コストが 1 万円以下となる、殺菌用途の深紫外 LED の実現を目指し、研究に取り組んだ。研究当初から、量産による低コスト化を意識して、青色 LED の量産対応 MOVPE 装置を用いて、深紫外 LED の作製に着手した。

平山らが提案したアンモニアパルス供給成長法を使って、2 インチ×3 枚用の大面積サセプタを有する量産対応型 MOVPE 装置を用いて、サファイア基板上に AlN テンプレートを形成した。従来からの同時成長法のためのテンプレートと比較して、貫通転位密度と相関のある (10-12) 面の半値幅が 650 から 450 arcsec にまで低減することができた。さらに、同時成長法では、表面状態において明らかに 2 インチウエハ内ではばらつきがあり、ウエハの半分程度で白濁が見られたのに対し、アンモニアパルス供給成長法を組み合わせることで、面内ばらつきまでも改善することができた。また、AlN の成長初期に見られる AlN 初期核に着目し、貫通転位密度低減モデルを考案した。初期核密度を、初期核形成温度を用いて制御し、初期核密度が小さくなるほど、(10-12) 面の半値幅が小さくなり、貫通転位密度も低減することを実証した。さらに、初期核形成温度を 2 段構成にし、1 段目を 1100℃、2 段目を 1300℃ とすることで、低貫通転位密度のまま、異常核、及び、クラックの抑制に成功した。また、半値幅のウエハ間、及び、ウエハ面内における均一性が 5% 以内

であったことから、高品質 AlN テンプレートの作製により、深紫外 LED の高効率化、高歩留まり化に貢献できると考えられる。

上記で作製した高品質 AlN テンプレート上に深紫外 LED を作製した。深紫外 LED の高効率化に向け、量子井戸層のトップバリア層を薄くすることが、高効率化には重要であることを明らかにした。また、トップバリア層が LED の長寿命化に貢献していることを寿命試験より示した。そして、トップバリア層の膜厚が、LED の高効率化と長寿命化に対して、トレードオフの関係にあることから、最適値として、膜厚 2 ～ 7nm 程度がよいとすることができる。そして、素子劣化モデルとして、トップバリア層による Mg 拡散防止が、素子の長寿命化につながっていることを提案した。本研究による最終的な LED の特性は、最高 EQE2.7%、寿命 1,500 時間以上を達成した。

深紫外 LED のさらなる低コスト化を狙い、シリコン基板上への作製を試みた。クラックは横方向成長を用いることで解決した。基板のオリフラに平行方向にストライプパターンを形成することで、AlN はコアレスセンスし、溝 2 $\mu$ m/ テラス 8 $\mu$ m のパターン周期を用いることで、ほとんどのクラックを抑制することができた。また、(10-12) 面の半値幅は、980arcsec を達成し、シリコン基板上 AlN テンプレートとしては、世界最小値となった。今後はクラックフリーでさらなる低転位化を目指し、パターン形状の検討を行なう予定である。さらに、このテンプレート上に深紫外 LED を作製した結果、世界で初めて、波長 260 ～ 280nm 帯の発光をシリコン基板上深紫外 LED から得ることに成功した。今後は光取り出しを含めて、LED の高効率化を達成する予定である。

以上の研究から、サファイア基板上深紫外 LED の高効率化、及び、量産対応化を達成した。さらには、シリコン基板上への深紫外 LED 成長も検討した結果、将来的な低コスト化についても成功したと考えている。今後、さらなる効率向上を狙い、光取り出しの向上を検討していきたいと考えている。

## 論文の審査結果の要旨

申請者の学位論文は、近年、殺菌用途として利用が大きな注目を集めている「深紫外 LED」の実用化を目的に、基礎技術の確立、高効率化・量産対応化技術の開拓を行った内容について記述されている。論文は、全 6 章で構成されており、第 1 章「序論」、第 2 章「実験方法」、第 3 章「大面積均一 AlN テンプレートの高品質化」、第 4 章「高効率 AlGaIn 系深紫外 LED の実現と長寿命化」、第 5 章「シリコン基板上への深紫外 LED の作製」、及び、最後に第 6 章「総括」でまとめられている。

第 1 章の序論では、まず、申請者が深紫外 LED の研究を行った研究の背景、開発を行った深紫外 LED の応用分野とそれが達成されたときの世界経済への影響、ならびにこの分野の国内外の研究の動向について述べられた。さらに、そのような背景の中行った研究について、研究の目的と論文の章構成、要旨について述べられている。近年、水銀灯に替わる殺菌デバイスとして、深紫外 LED が注目されている。民生市場を狙った組み込み型の小型殺菌デバイスとして、市場の拡大が期待されていることから深紫外 LED の開発競争は活発化している。しかしながら、実際に販売されている深紫外 LED については外部量子効率 1% 以下であり、しかも寿命は 1000 時間程度と短く、また、価格も数万円程度と高い。この商品レベルにおける特性の低下については、窒化物半導体である AlGaIn のエピタキシャル成長のウエハ面内均一性、及び、再現性が現状では低いことが考えられる。そこで本研究では、研究開始時から均一性・再現性の向上を意識して、量産対応有機金属気相成長装置 (MOVPE) を用いて深紫外 LED の作製に着手した。そして、高効率化、長寿命化、及び、低コスト化の達成を目的とし、エピタキシャル成長技術の開発を進めた。その結果、殺菌用深紫外 LED の商品化に必要であると考えられる外部量子効率 2% 以上、寿命 5000 時間以上、面内均一性 30% 以上の仕様を満足する深紫外 LED の開発に成功した。

第 2 章では「実験方法」について述べられ、量産対応 MOCVD による窒化物半導体のエピタキシャル成長技術と各種結晶評価技術、LED デバイスの作製とその評価技術について紹介された。

第 3 章では「大面積均一 AlN テンプレートの高品質化」について述べられ、特に世界最高品質のサファイア上 AlN 結晶テンプレートを、2 インチ 3 枚の大面積化において均一に結晶成長する技術の開拓について詳細に述べられた。高品質テンプレートの成功によって数々のトップデータの創出を含む深紫外 LED 開発が可能になった。深紫外 LED の高効率化のためには、AlN テンプレートにおける貫通転位密度の低減が重要である。そこで、大面積サセプタを有する量産対応型 MOVPE 装置を用いて、アンモニアパルス供給成長法を適用し、サファイア基板上 AlN テンプレートの高品質化を行った。AlN の成長初期に見られる AlN 核の密度が核形成温度により制御できることを見出すとともに、核密度を疎にすることで AlN テンプレートの貫通転位密度の低減を実現した。さらに、AlN 核形成温度を 2 段構成にし、1 段目を 1100℃、2 段目を 1300℃とすることで LED のリークの原因となる異常核の抑制を実現した、以上の技術を用いて大面積、かつ、均一な AlN テンプレートの高品質化に成功した。

第 4 章では「高効率 AlGaIn 系深紫外 LED の実現と長寿命化」について述べられた。前記の高品質 AlN テンプレート上に、量産型 MOVPE 装置を用いて深紫外 LED を作製し、電子注入効率の向上と長寿命化に取り組んだ。LED 構造設計を行なった結果、p 型層に最も近い量子井戸層と電子ブロック層との間にあるトップバリア層の膜厚が LED の高効率化、及び、長寿命化に重要であるとともに、トレードオフの関係にあることを見出した。そして、トップバリア層の膜厚を最適化することで、定格出力を約 2 倍に向上させ 70% 寿命 2000 時間以上を達成した。また、トップバリア層膜厚と寿命の関係から、素子劣化モデルについて考察した。エレクトロルミネッセンスのスペクトル、及び SIMS 測定から、Al、Ga、Mg の拡散が原因ではなく、p 型 AlGaIn 層で発生する窒素空孔が劣化原因であることを提案した。さらに、最終的な高効率深

紫外 LED のための層構造の検討とパッケージの放熱性向上により、波長 272nm、定格出力 2.5mW、最高 EQE2.7%、寿命 5000 時間以上、面内均一性 36% を示した。これらの結果は、他企業から商品化されている深紫外 LED のスペックの中でも、群を抜いた優れた特性である。

第 5 章では、深紫外 LED のさらなる低コスト化を狙い、「シリコン基板上への深紫外 LED の作製」について述べられた。シリコン基板上に AlN テンプレートを形成した際、窒化シリコン突起の発生、クラックの発生、結晶性の低下という、3 つの課題が抽出された。窒化シリコン突起は、基板と窒素成分が高温で反応することが原因であることを明らかにし、中温 AlN パッファ層の導入によりその抑制に成功した。また、クラックは横方向成長法 (ELO) を用いることで解決した。これらの方法で、Si 基板上としては最高品質の AlN 成長に成功した。Si/AlN テンプレート上に深紫外 LED を作製した結果、世界で初めて波長 250 ~ 280nm 帯の深紫外発光をシリコン基板上深紫外 LED から得ることに成功した。

第 6 章では「総括」について述べられた。本研究では、深紫外 LED の高性能化と実用化の為に必要な基礎技術、ならびに高効率化と量産対応化技術を確立し、現行の商品開発として世界差高スペックの深紫外 LED を世の中に示した。本研究で得られた知見は、深紫外 LED の実用化に必要な不可欠な技術を多く含んでおり、光産業分野の発展に多大に貢献するものと期待されることが述べられた。

本論分は、研究の背景、研究の技術的内容、達成事項と結果の意義、学術的な考察が的確に記述されており、博士論文としての体裁を整えている。記述されている研究成果は、半導体結晶成長、ならびに、半導体光デバイスの分野において学術的に大変重要な意味をもつ成果を含んでおり、また、半導体電子・光デバイス産業の分野に大きな貢献をもたらす成果である。また、関係する国内外の各学会からも高く評価された。さらに、今後予想される各応用分野への貢献度も大きく、新規産業の創出という点からの評価も高い。このような内容を含んでいることから、本論文は学位論文として十分な内容であると判断された。