

氏名	前田 哲利
博士の専攻分野の名称	博士（工学）
学位記号番号	博理工甲第 946 号
学位授与年月日	平成 26 年 3 月 24 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	AlGa _N 系深紫外 LED の高効率化に関する研究
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

波長 270nm 付近の深紫外光は直接生物の DNA に作用することから、殺菌効果が高く、殺菌波長とも呼ばれる。殺菌応用に用いられる光源には、現在主流は水銀灯であるが、ガス光源であるため小型化が難しい。深紫外光による人体への影響を考慮すると、その汎用利用のためには点光源化できることが望ましい。LED は半導体による固体点光源であり、薬品を使用しない殺菌・浄水、アトピーなどの皮膚治療・医療応用に向く。また、高効率化、低コスト化が実現されれば、さらなる応用分野の広がりが期待できる。Ⅲ族窒化物混晶である AlGa_N は深紫外光に対応するワイドバンドギャップエネルギーをもつ直接遷移型の半導体であり、深紫外 LED の有力な半導体素材の 1 つである。

本論文では、AlGa_N 系深紫外 LED の高効率化を目的とし、AlGa_N 系結晶成長の基礎結晶である AlN 結晶の表面状態の高品質化のために行った研究内容を第 3 章で述べる。また、AlGa_N 系深紫外 LED の光取り出し効率向上のために行った透明 p 型 AlGa_N コンタクト層を用いた AlGa_N 系深紫外 LED の高効率化に関する研究内容を第 4 章で述べる。

第 3 章では、C 面サファイア基板上 AlN テンプレート結晶表面にはマクロステップが発生する場合があります、これを解決するために先行知見に基づき検討した結果、サファイア基板の C 面上オフ角方向を m 軸から a 軸方向に変更することにより、MOCVD 成長法においても、容易に問題が解決できることを述べた。また、m 軸から a 軸オフ角への変更によるマクロステップ以外の影響についても調査を行い、その結果、AlN 結晶の異常核、クラック、および、AlN 上に成長した AlGa_N の特性に関して、オフ角方向変更による影響を確認した。これらのオフ角方向に依存するものの殆どの効果は、オフ角方向によるステップエッジ面やステップエッジラインの形状の違いによって説明できる。a 軸オフ角のステップエッジラインは安定な直線状であり、平坦性の高い原子ステップモフォロジー表面が容易に得られた。このような結晶表面特性が、ナノオーダーのヘテロ界面構造をもつ LED を作製の際、あるいは薄膜電極形成の際に必要とされることが明らかにされた。

第4章では、透明p型AlGaInコンタクト層の導入初期に抽出された課題からその解決に至るまでのプロセスと光取り出し効率改善アプローチにより、実際に殺菌波長に対応するAlGaIn系深紫外LEDの高効率化(279nm発光波長で外部量子効率7%等)が実現するまでのプロセスについて述べた。現在AlGaIn系深紫外LEDの効率は、青色あるいは紫外LEDと比較してまだ1/10程度と低い。これは、AlGaInのp型化が難しいことに起因して、AlGaIn系深紫外LEDのp-コンタクト層にはp-GaNを使用しているためである。p-GaNコンタクト層は、深紫外発光の再吸収層となるため、AlGaIn系LEDの光取り出し効率は8%程度と現状低い。p-GaNコンタクト層による光取り出し効率の低下がAlGaIn系深紫外LED効率低下の最大の課題となっている。本研究では、従来のp-GaNコンタクト層の代わりに透明p-AlGaInコンタクト層を、また、従来のp型Ni/Au電極の代わりに高反射Ni/Al電極を用いることによる、光取り出し効率改善アプローチを提案した。この改善アプローチにより、光取り出し効率を現状の8%から数10%へ飛躍的に向上させることが期待できる。研究では、p型AlGaIn層の結晶成長の開拓と電子・ホール注入効率を考慮した層構造の設計最適化を行った。その結果、透明度の高いp型AlGaInを用いた深紫外LEDの良好な動作に、世界で初めて成功した。光取り出し効率の飛躍的な向上(1.7倍)が得られ、世界最高レベルの外部量子効率7%を実現した。透明p型AlGaInを用いたLEDの成功により、今後さらにフォトニック光取り出し構造と集積することにより、深紫外LEDの効率が青色LEDの効率と同等の数%に向上する可能性が示された。

本研究では、深紫外LEDの高効率化の為に必要な基礎技術を確認し、現行の世界最高レベル高効率深紫外LEDを実現した。本研究で得られた知見は、深紫外LEDの今後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。

論文の審査結果の要旨

申請者の学位論文は、近年、殺菌用途としての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、高効率化のための基礎技術、特に、サファイア上 AlN テンプレートの高品質化と素子の光取出し効率の高効率化の検討を行った内容について記述されている。論文は、全5章で構成されており、第1章「序論」、第2章「実験方法」、第3章「a 軸オフ角 C 面サファイア基板による AlN 結晶表面上マクロステップの改善」、第4章「透明 p 型 AlGa_N コンタクト層を用いた AlGa_N 系 DUVLED の高効率化」、及び、最後に第5章「結言」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、深紫外 LED の外部量子効率 (EQE) は世界最高値でも 14% 程度と低く、青色 LED の最高値 84% に遠く及ばないのが現状である。深紫外 LED の効率が十分に上がらない理由は、基板の貫通転位による内部量子効率 (IQE) の低下と、p 型 GaN コンタクト層での光吸収による光取出し効率 (LEE) の低下が大きな原因である。IQE は現状で 60% 程度は実現されているが、さらに高効率化する必要がある。また、素子の歩留まりを向上させるためにも AlN テンプレートの高品質化が必要である。一方 LEE は現状で 8% 程度と低く、今後大幅に改善する必要がある。LEE を改善するためには現在の光吸収コンタクト層を、透明コンタクト層に置き換える必要がある。そこで本研究では、サファイア上 AlN テンプレートのマクロステップの改善の検討、ならびに、透明 p 型 AlGa_N コンタクト層を用いた高光取出し効率 LED の開発を行った。前者に関する課題に関しては、a 軸オフ角 C 面サファイア基板のマクロステップ低減への優位性示し、当時世界最高効率であった深紫外 LED の EQE3.8% を達成した。また後者の課題に関して、高 Al 組成 p 型 AlGa_N コンタクト層を用いた深紫外 LED の高効率動作に世界で初めて成功し、さらに、素子の透明化による光取出し効率の顕著な増加 (1.7 倍) を観測した。これらの効果を用いて現在、世界トップレベルである EQE7% の高効率深紫外 LED を実現した。

第2章では「実験方法」について述べられ、MOCVD 装置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「a 軸オフ角 C 面サファイア基板による AlN 結晶表面上マクロステップの改善」について述べられた。特に、サファイア基板の C 面オフ角方向を m 軸から a 軸方向に変更することによりマクロステップが大幅に低減でき、深紫外 LED 用の高品質なテンプレートが形成できることが示された。また、オフ角を m 軸から a 軸に変更することにより、AlN 結晶の異常核形成、クラック発生、AlN 上に成長した AlGa_N の諸特性に関しても詳細に調査が行われた。これらのオフ角方向に依存するものの説明は、オフ角方向によるステップエッジ面やステップエッジラインの形状の違いによって説明できることが明らかにされた。特に、a 軸オフ角のステップエッジラインは安定な直線状であり、平坦性の高い原子ステップモフォロジー表面が容易に得られることが明らかにされた。このような結晶表面特性が、ナノオーダーのヘテロ界面構造をもつ LED 素子作製の際、あるいは薄膜電極形成の際に重要であることが示された。

第4章では「透明 p 型 AlGa_N コンタクト層を用いた AlGa_N 系 DUVLED の高効率化」について述べられた。深紫外 LED は、p 型 GaN コンタクト層による光吸収により LEE が 8% に低減し、今後透明化が必要不可欠であることが示された。また、透明コンタクト層の導入に加え、フォトニックナノ構造 (表面フォ

トニック結晶や PSS 基板の利用)との相乗効果により 70%程度の高い LEE が将来実現可能であることも示された。研究ではまず、未だ世界的に実現していない高 Al 組成 p 型 AlGaIn コンタクト層を用いた LED の実現を行った。Al 組成が 70%程度の p 型 AlGaIn は、ホール濃度が極めて低いにも関わらず、それを用いた深紫外 LED の良好な動作に世界で初めて成功した。研究ではさらに、同一 LED ウェハに高反射電極と低反射電極の両方を形成して効率を比較することにより、LEE 向上係数を導出する方法を考案した。この方法を用いて、p 型 AlGaIn コンタクト層の透明度は非常に高い (> 95%) ことが明らかにされ、その効果を用いて 270-280nm 帯の深紫外 LED で LEE の 1.7 倍の増加を達成した。透明 p 型コンタクト層を用いた LEE の増加により、波長が 279nm で EQE が 7%の世界最高レベル高効率深紫外 LED が実現された。

第 5 章では「結言」が述べられた。本研究では、深紫外 LED の高効率化の為に必要な基礎技術を確立し、現行の世界最高レベル高効率深紫外 LED を実現した。本研究で得られた知見は、深紫外 LED の今後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。

本論文は、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。