

科学研究費補助金（学術創成研究費）公表用資料  
〔事後評価用〕

平成15年度採択分

平成20年 3月31日現在

研究課題名（和文）

ナノテクノロジーを用いた深紫外半導体発光デバイスの開発とその応用

研究課題名（英文）

Development and Application of Deep UV Semiconductor Light Emitting Devices using Nano-technology

研究代表者

青柳克信(Yoshinobu Aoyagi)

立命館大学・COE研究推進機構・特別招聘教授



研究の概要：

深紫外領域の発光は水等の環境の浄化、医療、家庭での殺菌、PCB等の難分解性物質の分解に必要不可欠であるが、特にこれらの応用目的に重要な高出力深紫外発光固体素子の開発が急務である。本研究は、ナノテクノロジーを用いて深紫外発光素子高出力化技術を開発する。具体的には、深紫外発光を可能とするAlGa<sub>N</sub>系素材について、未だ解明されていないエピタキシャル結晶成長機構を明らかにするとともに、深紫外発光素子の高出力化に必須な技術である縦型素子構造を提案し、実証する。また、非線形フォトニック結晶の概念を新たに提案しHe-Cdレーザーに取って代わる固体レーザーを実現させ、さらに新規な高効率非線形材料を開発、及びZnOのp形の高ドーピングを可能にする方法を明らかにする。これらに基づき最終的にワットクラスの高出力深紫外発光素子の実現のための基礎を確立する。

研究分野：光・電子材料デバイス

科研費の分科・細目：応用物性・結晶工学

キーワード：深紫外発光素子、縦型発光素子、AlGa<sub>N</sub>、非線形フォトニック結晶

1. 研究開始当初の背景

我々は早くから深紫外発光素子の重要性を指摘してきた。しかしながら、扱う材料であるAlGa<sub>N</sub>系の結晶成長の難しさから、当時は発光の報告がわずかに出始めた程度であった。この素材を上記の様な環境改善素子等への応用を考えた際、高出力化は必要不可欠であるが、方法論は無く全くの手探りからの開始であった。結晶成長機構の解明といった点についても、短波長発光素子の成功を収めたGa<sub>N</sub>系素材についてアプローチが始まったところで、AlGa<sub>N</sub>系素材については全くの未知のものであった。非線形フォトニック結晶については、概念そのものが無く、我々が初めて提起したものであり、もちろん、これによって深紫外レーザーを実現しようとする試みも全く斬新なものであった。高効率非線形材料の研究もフラックス法という新手法は行われていなかった。ZnOの紫外発光素子は実現がなされかけていたところであった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、実用に耐える深紫外発光素子を実現することであり、新規な素子構造の提案とともに、深紫外域発光を達成する結晶素材の成長機構を明らかにして結晶品質を普遍的に向上させ得る方法論を確立することを目指した。AlGa<sub>N</sub>系素材では、その低い量子効率を向上させるために、結晶成長そ

の場合観察法をフル活用して結晶成長機構を明らかにし、新たに高出力化が可能な縦型深紫外発光素子を実現することを目的とした。また、量子効率向上に重要な高濃度p-AlGa<sub>N</sub>の実現を試みた。さらに、新たに非線形フォトニック結晶を提示し、その性質を明らかにすると同時に、これを用いてHe-Cdレーザーに変わる325nmで発振するレーザーを実現することを目的とした。さらに、フラックス法を用い新たな高効率非線形材料の開発を行い、また高p形ドーピング法をZnOで開発し、紫外高効率発光を目指した。

3. 研究の方法

本研究ではMOCVDにおいて波長可変反射干渉装置、並びに反りモニタを同時に結晶成長中にその場観測に用い、結晶成長の初期核成長からその平坦化の課程、並びにクラックとドーピングの関係等を明らかにすることを試み、AlGa<sub>N</sub>層の高品質化を行った。また、縦型発光デバイスを深紫外領域で初めて導入することによって高出力化の方法論を明らかにした。さらに、ヘテロ非線形フォトニック結晶の作製方法を開発し、その性質を明らかにすると同時にこれを用いて高調波発生により深紫外レーザーを得ることを試みた。また、フラックス法の最適化、並びに温度変調法によりZnOの高p形ドーピングを試みた。

#### 4. 研究の主な成果

1. 本研究では、深紫外領域波長での発光デバイスへの応用が、環境浄化、殺菌、難分解性分子の分解などといった高出力であることが必要不可欠なものとなることから、スケール則が成り立ち、本質的に高出力化が容易である縦型深紫外発光素子の開発を行い、それに成功した。従来、深紫外発光素子は、レーザーはく離法のレーザー光に対して透明となるバッドギャップを有する素材で構成されておりレーザーはく離は不可法だと考えられていたが、我々は新たに超格子を用いたレーザーはく離層を導入し、基板はく離に成功した。280 nm で発光する縦型深紫外発光素子の試作にも成功した。また、1 cm 角のレーザーはく離にも成功しており、通常の 100  $\mu\text{m}$  角で 1 mW が得られるとすると、そのまま量子効率を改善することなく 1 cm 角では 10 W 級の深紫外発光素子が得られることとなる。これらの結果は一部新聞にも取り上げられ注目を集めた。

2. 波長可変反射干渉装置、並びに反りモニタを同時に結晶成長その場観察に導入し、今まで経験と試行に頼っていた良好な結晶成長条件を見いだす方法を、結晶成長の核形成からその平坦化に至る過程をつぶさに観測することで、どのような条件が最適か、あるいは炉が変わっても条件の再現を最短で行えるかといった方法論を確立することができた。また、クラックとドーピングの関係等、種々の情報が得ることができ、AlGaIn 結晶の成長メカニズムをほぼ明らかにすることができた。この二光束その場観測法の成果は世界に先んじたもので、今後結晶成長法の標準化を行い得る技術として普遍的に有用な手法となると考えられる。

3. 非線形フォトニック結晶という新たな概念を提案し、そのヘテロ構造を作ることにより、通常の 300 倍以上の非線形性が得られることが明らかとなった。これを用い、我々は He-Cd レーザーの波長である 325 nm の波長での固体レーザーの実現に成功し、将来の全固体化への道を開いた。また、非線形フォトニック結晶の性質も明らかにし、Phys. Rev. Letters に高い評価で掲載され、多くの新聞に取り上げられ、さらに受賞の対象となった。

4. フラックス法を新たに開発し高効率非線形材料の形成に成功した。これは将来高効率深紫外発光レーザーをさらに発展させる原動力となると考えられる。

5. ZnO 青色発光素子では高ドーピングの p 形層の形成がもっとも重要な課題であるが、本研究ではコンビナトリアル手法並びに温度変調結晶成長法により、高ドーピング化に成功し将来の高効率 ZnO 紫外発光素子実現への道を開いた。

#### 5. 得られた成果の世界・日本における位置づけとインパクト

・縦型深紫外発光素子の開発は世界に先んじたものであり、将来の大出力化のために不可欠な技術であり、新聞報道されるなど大きなインパクトを与えた。・二光束その場観測法を世界に先駆け提案実行し、その結果 AlGaIn の結晶成長の初期核形成から平坦化課程、あるいはクラックとドーピングの関係、成長温度、V/III 比の関係を初めて明らかにすることができ、結晶成長を偶然に良い条件を試行から見つけるのではなく、科学的根拠を持って議論する方法論を見いだした。・ヘテロ非線形フォトニック結晶の概念を新たに提唱し、この結果は phy. Rev. Letters 誌に高い評価で掲載され、多くの新聞報道、又実際行った若手の幾つかの受賞に結びついた。これらは幾つかの国際会議の招待講演を受け、広く世界に発信された。

#### 6. 主な発表論文

(研究代表者は太字、研究分担者には下線)

1. **K. Kawasaki**, C. Koike, **Y. Aoyagi**, M. Takeuchi: “Vertical AlGaIn deep ultraviolet light emitting diode emitting at 322 nm fabricated by the laser lift-off technique”, Appl. Phys. Lett., **89** (2006) 261114 1-3.
2. M. Takeuchi, S. Ooishi, T. Ohtsuka, T. Maegawa, T. Koyama, S.F. Chichibu, **Y. Aoyagi**: “Improvement of Al-polar AlN layer quality by three-stage flow-modulation metalorganic chemical vapor deposition”, Applied Phys. Express, **1** (2008) 021102 1-3.
3. M. Takeuchi, H. Shimizu, R. Kajitani, K. Kawasaki, T. Kinoshita, K. Takada, H. Muratami, Y. Kumagai, A. Koukitu, T. Koyama, S.F. Chichibu, **Y. Aoyagi**: “Al- and N-polar AlN layers grown on c-plane sapphire substrates by modified flow-modulation MOCVD”, J. Cryst. Growth, **305** (2007) 360-365.
4. S. Inoue, **Y. Aoyagi**: “Design and fabrication of two-dimensional photonic crystals with predetermined nonlinear optical properties”, Phys. Rev. Lett., **94** (2005) 103904 1-4.
5. S. Inoue, **Y. Aoyagi**: “Ultraviolet second-harmonic generation and sum frequency mixing in two-dimensional nonlinear optical polymer photonic crystals”, Jpn. J. Appl. Phys., **45** (2006) 6103-6107.

ホームページ等

代表者の所属が変わったこともあり、現在特にこの研究課題専用には作っていない。