



東北大学

報道機関 各位

平成 22 年 9 月 14 日  
東北大学多元物質科学研究所

## 新しい窒化アルミニウム単結晶作製技術の開発に成功 ～深紫外発光素子の開発を加速～

東北大学 多元物質科学研究所(所長:河村純一教授) 福山博之教授の研究グループは、住友金属鉱山との共同研究により、常圧で窒化サファイア基板[1](注 1)上に単結晶窒化アルミニウム(AIN)膜を作製する技術の開発に成功しました。本研究成果によって、深紫外発光素子(LED)(注2)の外部量子効率(注3)の飛躍的な向上が期待されます。

紫外発光 LED は、以下のように多くの産業分野での応用が期待される次世代光源です。

- ・次世代照明:RGB 蛍光体と組み合わせ、演色性の良い白色 LED となります。白熱電球や蛍光灯の代替として、長寿命・省電力化、水銀フリーによる低環境負荷が期待されます。国内の白色 LED の市場規模は、2012 年には 578 億円を超え、今後急速に拡大するものと予想されています。
- ・光触媒励起光源:水質、土壌、大気の浄化、抗菌、防汚
- ・医療・バイオ分野の蛍光光源:特殊色素による腫瘍細胞選別、殺菌
- ・情報分野:高密度 DVD 用レーザー
- ・ナノテク加工:精密レーザー加工、リソグラフィー

特に、深紫外 LED では、DNA の吸収波長が 260～280 nm であり、殺菌効果が高いので、医療やバイオ分野での応用が期待されています。これまで、波長 410～365nm の近紫外 LED では、外部量子効率 30%が達成されていますが、さらに外部量子効率を上げること、350nm 以下の波長の深紫外 LED の発光効率の向上、そして低コスト化が課題となっています[2]。

深紫外 LED は、AlGaIn という窒化物半導体を積層して作製しますが、外部量子効率を上げるためには、AlGaIn 結晶中の貫通転位密度を減らすことが重要であると言われています。貫通転位密度を減らすためには、格子整合性の良い基板(テンプレート)を使う必要があります。このテンプレートには、格子整合性の他に、紫外光に対する高い透過性が要求されます。これは、AlGaIn 素子が発光した紫外光をロスなく外部に取り出す必要があるためです。

AIN 単結晶は、AlGaIn 素子との良好な格子整合性及び紫外光の透過率の高さに加えて熱伝導率が高いとい

う優れた性質があることから紫外 LED の基板として有望視される材料です。本研究成果によって得られた単結晶 AlN 膜は、まさに AlN テンプレートとして、この要求を満たすものであり、このテンプレート上に作製された AlGaIn 層中の貫通転位密度を減少させ、深紫外 LED の外部量子効率の飛躍的な向上につながるものと期待されます。また、GaIn 結晶基板が開発されていますが、AlN 結晶は、レアメタルである Ga の代替材料としても注目されます。

#### **本研究で開発した結晶成長法—新しい液相成長法(LPE法)(注4)**

本研究では、Ga-Al 系フラックスを用いた新しい液相成長法(LPE 法)を開発しました。この方法の特徴は、従来の窒化物結晶作製の LPE 法で用いられているような高压容器を使用することなく、常圧の窒素ガス雰囲気中で結晶成長を行える点です。

**従来のLPE法:** LPE法では、これまでに、亀井ら[3]がCu-Alフラックスを用い、1873-1973Kの高温でSiC基板上に膜厚 180 $\mu$ mのAlNを成長させたこと、および、磯部ら[4]がCa-Sn-Alフラックスを用い、1173K、5 気圧の窒素雰囲気下で96 時間保持することでMOCVD法により作製されたサファイア上のAlN薄膜を膜厚 1.8 $\mu$ mまで成長させたことを報告していました。

本研究では、より低い成長温度で、かつ、常圧下で高品質かつ高速成長を実現できるフラックスの探索を行ない、Ga-Al二元系に注目しました。Gaは、302.8 Kの低融点であるにも関わらず、沸点は 2477 Kに達し、1600 Kにおいても蒸気圧は、高々 $10^{-3}$  barである液体状態で安定した元素です。また、Ga-Al系合金は典型的な共晶系を示し、高融点の金属間化合物も形成しません。Ga自身も窒化物を形成する元素ですが、GaNは窒素雰囲気中でも1273 Kに達すると分解しますので、Ga-Alフラックスを用いても、1273 K以上では、AlN結晶のみを成長させることが可能です。これらのGaの特徴からGa-Al二元系はAlN結晶のLPEプロセスに適したフラックスであることがわかりました。次に具体的な、結晶成長手順を示します。

反応容器中でGa-Al 合金を融解後、窒化サファイア基板を合金融液に浸し、温度を 1573 K で保持します。その後、アルミナ管を通じて窒素ガスを融液に導入し、融液内で窒素ガスの気泡とAlを反応させ、窒化サファイア基板上にAlNをエピタキシャル成長させます。得られたAlN膜の走査型電子顕微鏡観察画像の一例を図1に示します。Ga-40mol%Al の濃度で成長させた AlN では、ロッキングカーブの半値幅は(0002)面について 51 arcsec、(10-12)面について 640 arcsec となり、サファイア窒化膜の品質を受け継いだ配向性の高さも確認されました。

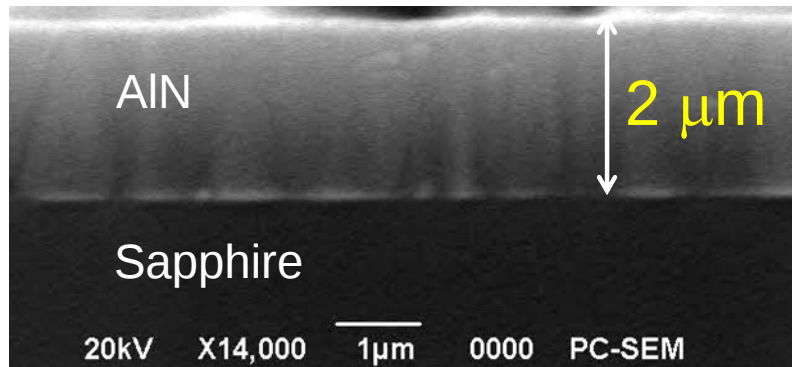


図 1 Ga-Al フラックスを用いてサファイア窒化基板上に 29 h 成長した AlN 膜

本研究の内容は、2010 年秋季第 71 回応用物理学会学術講演会（長崎大学，平成 22 年 9 月 14-17 日）及び窒化物半導体の国際ワークショップ IWN2010（米国，タンパ，2010 年 9 月 19-24 日）において発表される予定です。本研究は、科研費（20676007）の支援のもとに行われました。

#### 参考文献

- [1] H.Fukuyama *et al.*, J.Appl.Phys., 107 (2010) 043502.
- [2] LED の最新動向，株式会社東レリサーチセンター編集・発行，新明弘社印刷，2010 年 5 月
- [3] K.Kamei *et al.*, Phys.Stat.Sol.(c), 4 (2007) 2211.
- [4] H.Isobe *et al.*, Jpn.J.Appl.Phys., 44 (2005) L488.

#### （用語解説）

（注 1）窒化サファイア基板：窒化駆動力を制御して，サファイア表面を窒化することによって，単結晶 AlN 薄膜を形成したサファイア基板。この方法は，福山研究室で開発されました。

（注 2）深紫外発光素子（LED）：波長 200~350nm の紫外線を発する発光ダイオードを指す。AlGaN 層を積層して形成されます。

（注 3）外部量子効率：（内部量子効率）×（光取り出し効率）。ここで，内部量子効率は，発光層に注入された電気的エネルギーのうち，光エネルギーに変換される割合です。外部量子効率は，LED の発光効率の指標となります。

（注 4）液相成長法（LPE 法）：Liquid Phase Epitaxy 法，適切な溶媒（フラックス）を用いて，溶媒中で結晶を育成する方法。

#### （お問い合わせ先）

東北大学 多元物質科学研究所  
 担当者：教授 福山博之  
 fukuyama@tagen.tohoku.ac.jp  
 Tel: 022-217-5178