

【公開版】

平成28年度
戦略的基盤技術高度化・連携支援事業
戦略的基盤技術高度化支援事業

「波長254nm紫外線LED母材向けの表面窒化AlGaO
テンプレート開発」

研究開発成果等報告書

平成29年3月

担当局 近畿経済産業局
補助事業者 公益財団法人 京都高度技術研究所

【公開版】

目 次

第1章 研究開発の概要	1
1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標	1
1-2 研究体制	3
(研究組織・管理体制)	
1-3 成果概要	5
1-4 当該研究開発の連絡窓口	6
第2章 本論	7
・サブテーマ1 AlGaO膜組成の検討：格子整合する条件を検討（立命館大学）	
・サブテーマ2 AlGaO膜の高品質化（株式会社FLOSFIA）	
・サブテーマ3 大口径化（株式会社FLOSFIA）	
・サブテーマ4 AlGaN膜の実証試作（立命館大学）	
最終章 全体総括	9

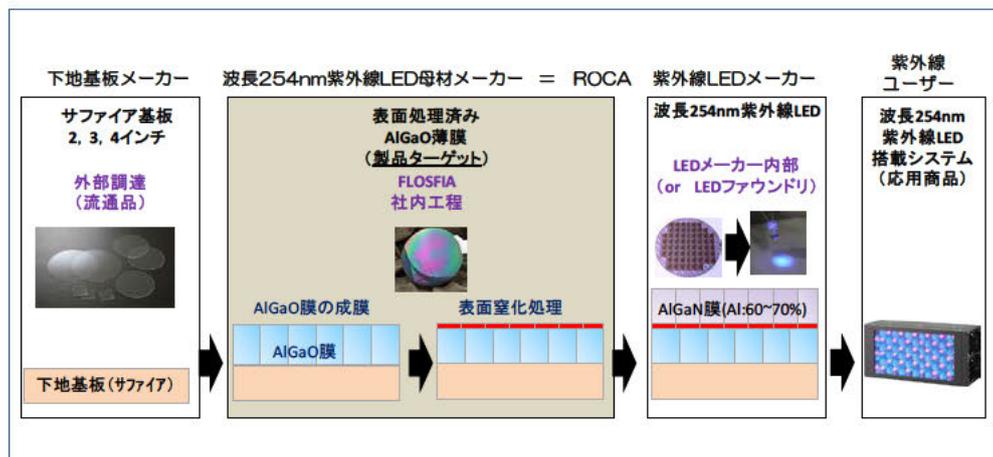
【公開版】

第1章 研究開発の概要

1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標

1-1-1 研究開発の背景・研究目的

波長254nmの高輝度紫外線LEDを実現するために有用な表面窒化AlGaO薄膜を、紫外線LEDメーカー向けに提供することを目指す。下流工程であるAlGaIn膜の成膜・LED化はLEDメーカー、紫外線システムへの組み込みは紫外線システムユーザーや紫外線ユーザーが行う。



図表1-1 製品ターゲットとサプライチェーン

【紫外線ユーザー（下流側）の課題およびニーズ】

波長350nm以下の短波長領域では高輝度の紫外線LEDが存在しない。その中でも、特に波長254nmは殺菌・滅菌に用いられ、応用分野が広く大きいことから、事業化ニーズが最も高い波長の一つである。波長254nm高輝度紫外線LEDとしては、例えば、以下の応用分野が考えられる。

(i) 既存紫外線ランプの置き換え

(差別化対象) 既存紫外線ランプ（殺菌ランプ等）

- (差別化ポイント) ①高輝度なので生産工程で高スループットが可能
②水銀フリーなので環境負荷が小さい

(応用例) ベルトコンベアー、流水の殺菌工程、海水のフジツボ、又メリ対策等既存紫外線ランプは水銀が不可欠なので全ての殺菌用紫外線ランプの置き換え（食品、医薬品、海水淡水化・発電所等のプラント等）

(ii) 新規用途の創造

- (差別化対象) ①紫外線以外の手法からの置き換え。例えば塩素、オゾン殺菌の代替
- (差別化ポイント) ②殺菌・滅菌困難だったものを気軽に殺菌・滅菌
- (応用例) 高輝度、低温殺菌可能 (LEDは熱が出にくい)、小型
小型滅菌水製造装置や業務・家庭用の殺菌・滅菌システム、
ウェアラブル殺菌・滅菌システム (一般家庭、医療介護分野、
宿泊施設等)

(iii) その他

現在の照明用LEDはInGaN発光層が用いられているが、太陽光や蛍光灯由来の照明と比較して特定波長の照度が強い、いびつな波長分布を有するという問題がある。

その対策の一つとして、照射波長254nmの紫外線LEDを用い、従来型蛍光灯用に用いられている蛍光剤を用いて、照明光源を作るという手法が考えられている。現時点では十分な照度を実現する波長254nm紫外線LEDが存在しないため、この手法は実現の目途が立っていない。もしも高輝度な波長254nm紫外線LEDが実現すれば、照明用LEDとしての応用展開も期待される。

こうした波長254nm紫外線LED市場においては、100~1000mW/cm²を実現するための基礎となる、1W以上・外部量子効率50%以上で、且つ発熱が小さい環境温度50℃以下を実現できる紫外線LEDが期待される。しかしながら、従来の波長254nm紫外線LEDは、高輝度化が困難で10mW/cm²以下、20mW以下のチップしか実現できず、50℃以上の環境温度になるなど問題があり、紫外線ユーザーニーズに添えられていない。

1-1-2 研究開発の目標

本研究開発は4つのサブテーマから構成されており、それぞれの目標を以下に示す。
(カッコ内は研究等実施機関)

サブテーマ1 AlGaO膜組成の検討：格子整合する条件を検討 (立命館大学)

波長254nm紫外線LEDの母材として適した、Al濃度60~70%の範囲にあるAlGaO膜との格子不整合を1%以内に抑えた格子定数を有する表面窒化AlGaO薄膜を実現する。

サブテーマ2 AlGaO膜の高品質化 (株式会社FLOSFIA)

【公開版】

上記1) で明らかとなったAl濃度60%~70%のAlGaO膜組成に最適化したAlGaO薄膜について、X線半値幅を50arcsec以下の高品質単結晶、波長254nm紫外線の透過率80%以上を実現する。

サブテーマ3 大口径化（株式会社FLOSFIA）

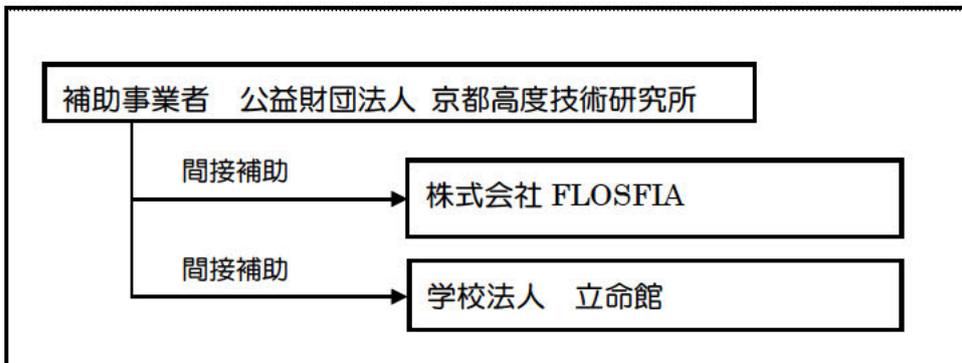
産業応用可能なサイズである、表面処理済みAlGaO薄膜の大口径化（4インチ化）を実現する。具体的には、4インチ化を実現し、膜厚分布±10%以内、面内の90%以上でX線半値幅50arcsecを切り、波長254nm紫外線の透過率80%以上の高品質単結晶を実現する。

サブテーマ4 AlGaN膜の実証試作（立命館大学）

サファイア上に形成された表面窒化AlGaO膜を用いてX線半値幅300arcsec以下のAlGaN膜を実現する

1-2 研究体制

研究組織（全体）



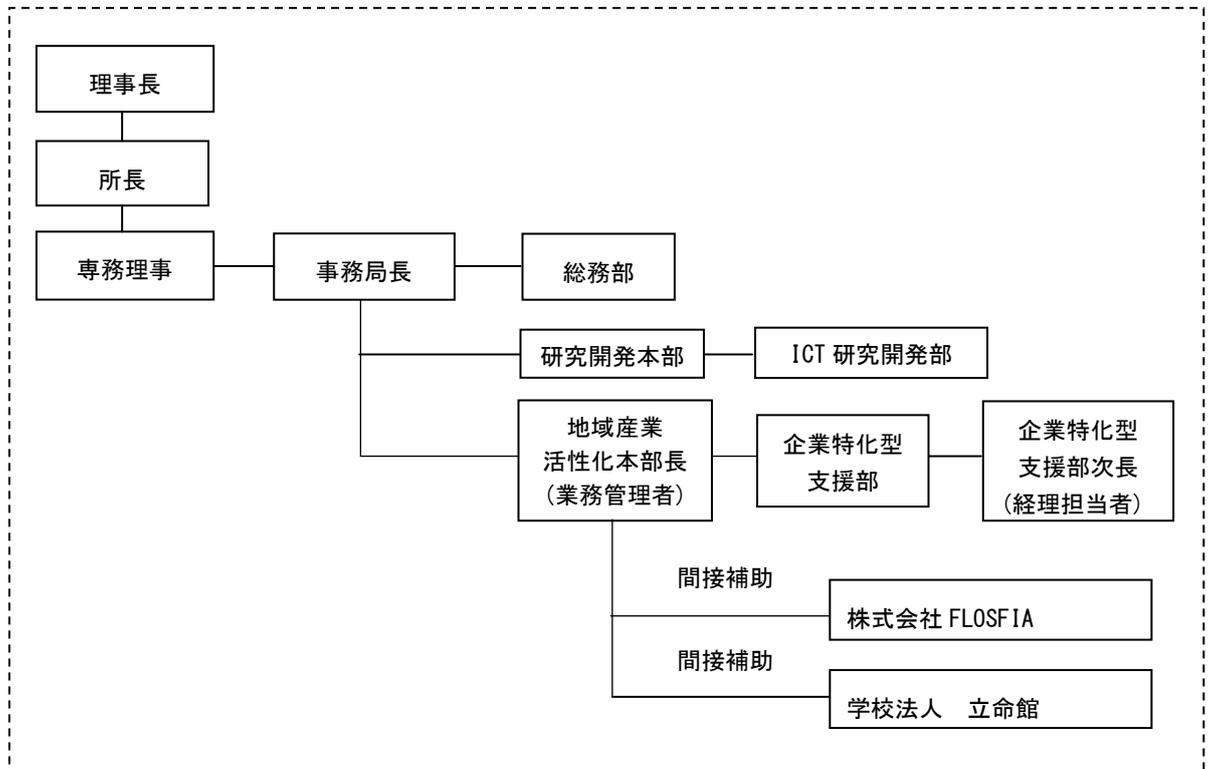
総括研究代表者（PL）
株式会社 FLOSFIA
代表取締役社長 人羅 俊実

副総括研究代表者（SL）
立命館大学 理工学部 電気電子工学科
教授 荒木 努

管理体制

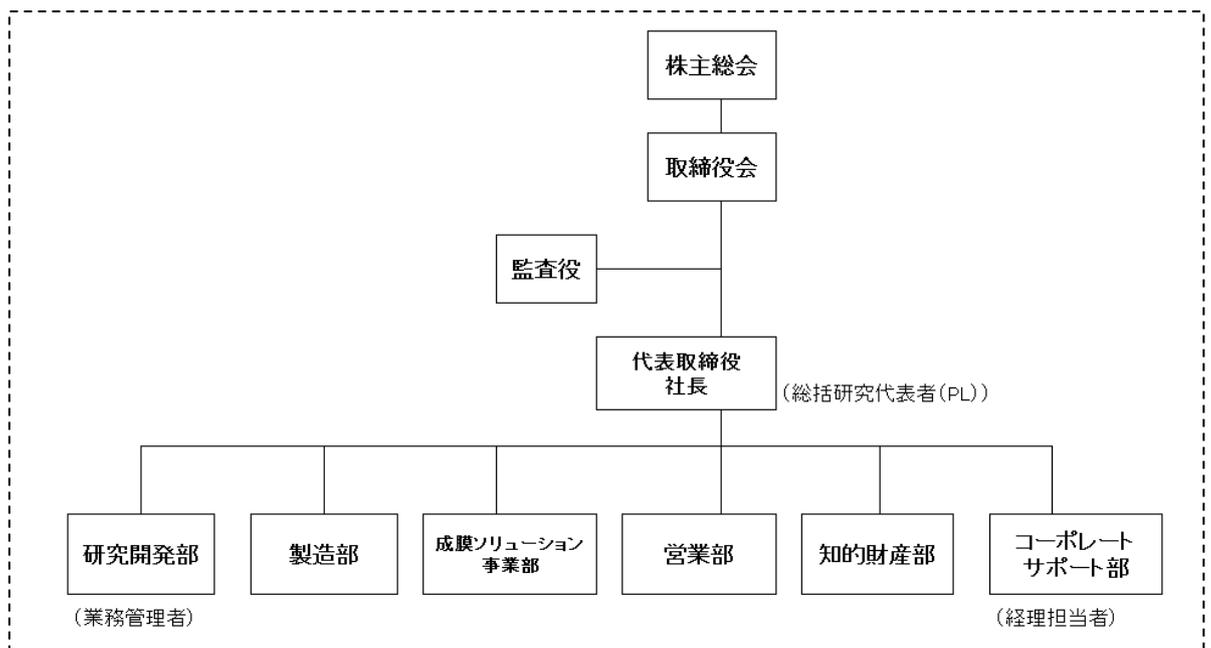
①事業管理機関

公益財団法人 京都高度技術研究所

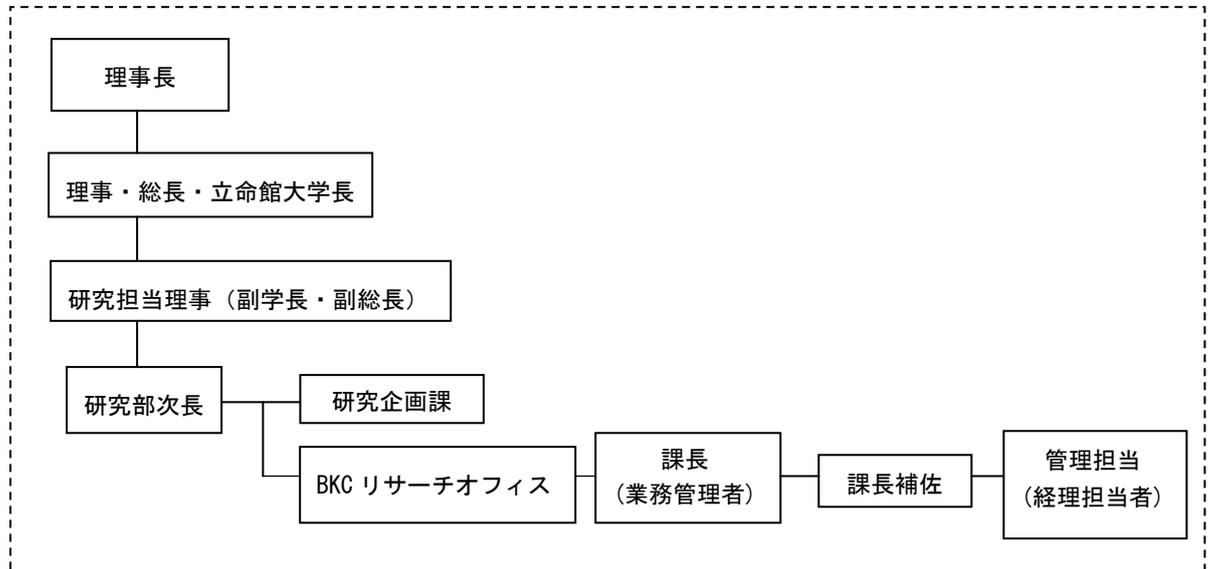


②間接補助事業者

株式会社 FLOSFIA



学校法人立命館 立命館大学



1-3 成果概要

波長254nmの紫外線LEDには、高品質AlGaIn膜の下地材料となるテンプレート開発が重要である。当該テンプレートに要求される仕様としては、①AlGaIn層と相性が良いこと（結晶構造が同一あるいは類似していて、格子定数が近いこと）、②結晶性が良いこと、③大口径（4インチ）であり産業応用上のコスト競争力があること、④波長254nmの紫外線を吸収しないこと、が挙げられる。本研究開発では、当該テンプレートとして期待できる新材料、表面窒化AlGaOを用いたテンプレートの開発に取り組んだ。

まず、上述の①（AlGaIn層と相性が良いこと）を満足させるための検討を行った。サファイア基板上に作製したAlGaO膜の表面窒化に成功し、当該窒化処理によりAlGaIn膜と格子不整合を1%以内に低減させ、AlGaIn膜と相性が良い表面状態を実現した。

次に、上述の②（結晶性が良いこと）を満足させるための検討を進めた。Al濃度60%～70%の範囲において、X線半値幅80arcsec以下とするAlGaO膜の高品質化に成功した。

さらに、上述の③（4インチ化）を満足させるための検討を行った。産業応用可能なサイズである、表面処理済みAlGaO薄膜の大口径化（4インチ化）を実現した。同時にAlGaO膜の高品質化を進めX線半値幅80arcsecを実現した。

このようにして作成したAlGaO膜は、上述の④（波長254nmの紫外線を吸収し

【公開版】

ないこと)を満足し、波長254nmの紫外線に対して、透過率80%以上であることを確認した。

最後に、表面窒化AlGaOテンプレートを用いて、AlGaN膜の実証試作に成功したところ、X線半値幅1600arcsecであるAlGaN結晶膜を実現することができた。このとき、表面窒化AlGaOテンプレートを用いた方が、表面窒化処理なしのAlGaOテンプレートを用いるよりもAlGaN膜のX線半値幅が小さく高品質であること、結晶性の良好なAlGaOテンプレートの方が結晶性の劣るAlGaOテンプレートよりも、作製されたAlGaN膜のX線半値幅が小さく高品質であることを確認することができ、表面窒化AlGaOテンプレートは、高品質AlGaN膜を実現するための良好なテンプレートとして期待できることが明らかとなった。

1-4 当該研究開発の連絡窓口

(事業管理機関)

公益財団法人 京都高度技術研究所
地域産業活性化本部長 孝本 浩基
〒600-8813
京都市下京区中堂寺南町134番地
Tel: 075-315-3625 (代表) Fax: 075-315-3614
E-mail: komo@astem.or.jp

(間接補助事業者)

株式会社FLOSFIA
代表取締役社長 人羅 俊実(PL)
〒615-8245
京都市西京区御陵大原1番36号
Tel: 075-963-5202 Fax: 075-320-1712
E-mail: info@flosfia.com

(間接補助事業者)

立命館大学 理工学部 電気電子工学科 光電子物性デバイス研究室
教授 荒木 努(SL)
〒525-8577
滋賀県草津市野路東1-1-1
Tel: 077-561-5030 Fax: 077-561-3994
E-mail: tara@se.ritsumeai.ac.jp

第2章 本論

サブテーマ1 AlGaO膜組成の検討：格子整合する条件を検討（立命館大学）

まず、ミストCVD法で作製したAl組成60%の $(AlGa)_2O_3$ 薄膜に対して、RF-MBEチャンバー内での窒素プラズマを用いた窒化処理の基礎検討を実施した。窒化温度、時間の影響を確認し、 $(AlGa)_2O_3$ 結晶の厚み方向全体に影響を及ぼさない最適条件範囲の指針を得た。窒化処理により $(AlGa)_2O_3$ 膜全体の構造変化がないことをXRD、AFMを用いて確認した。

次に、 $(AlGa)_2O_3$ 表面の構造・組成変化を確認した。RHEEDによる回折パターンの変化から、表面に原子層レベルでのウルツァイト構造AlGa層が存在していることを確認した。EELSによる元素分析結果の断面プロファイルも確認することで、 $\alpha-(AlGa)_2O_3$ の最表面部約4 nmの領域においてのみ窒素Nが検出されており、表面に窒化層が形成されていることが確認できた。

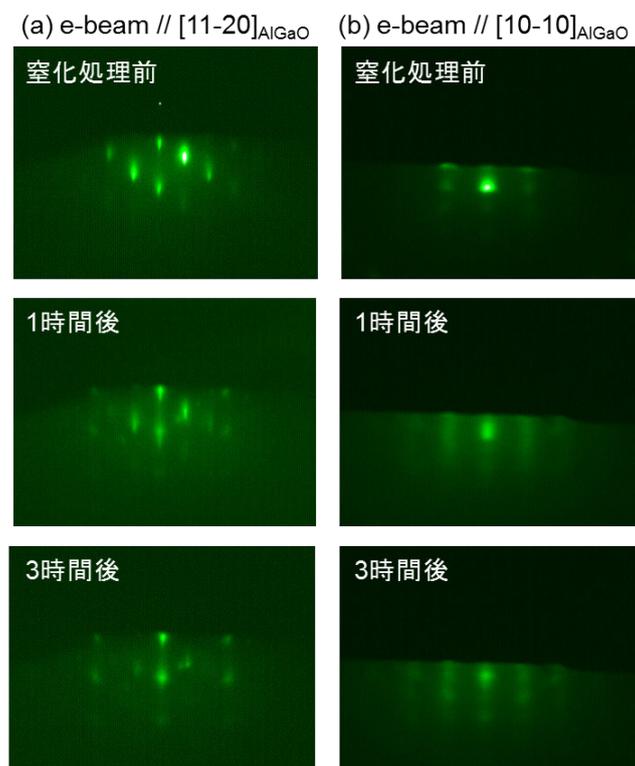


図2-1 窒化温度 500°Cでの窒化処理中の RHEED パターン変化

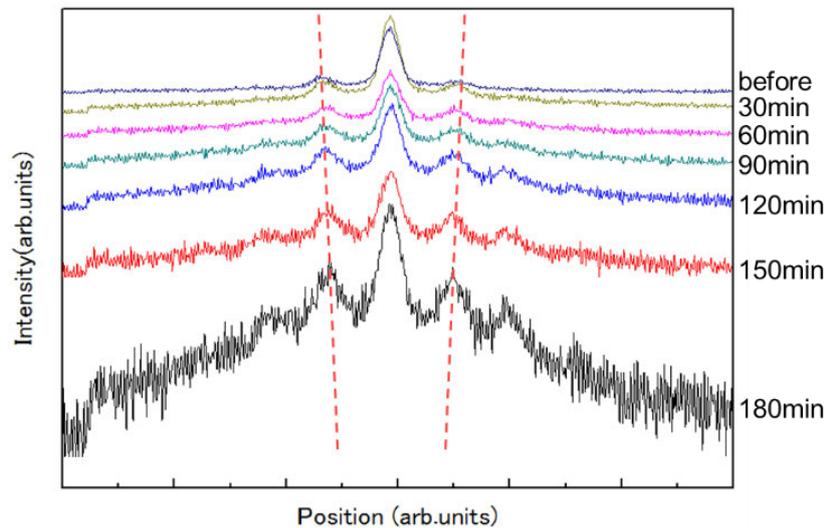


図2-2 電子線入射方位 e-beam//[10-10]_{AlGaO}時の RHEED パターン強度のラインプロファイル変化

波長254nm紫外線LEDの母材として適した、Al濃度60~70%の範囲にあるAlGa_xN膜との格子不整合を1%以内に抑えた格子定数を有する表面窒化AlGaO薄膜を作製可能であることが明らかとなった。

サブテーマ2 AlGaO膜の高品質化（株式会社FLOSFIA）

まず、従来型ミストCVD装置を用い、AlGaO成膜を行った。Al組成60%~70%の範囲でのAlGaO膜の条件検討を推進し、新規方式・新規成膜チャンバーを用いて、良好な成膜条件を見出すことに成功した。

さらに、成膜原料への添加剤および、バッファ層の検討を実施し、種類および添加量について検討した結果、X線半値幅は90arcsecまで低減することに成功した。波長254nmの紫外線透過率に関してはAlGaO膜成膜条件だけでなく、基板前処理方法、薄膜後処理方法（研磨等）まで含めて実験、検討を重ねることで、透過率30%から84%へと大幅に向上した。

サブテーマ3 大口径化（株式会社FLOSFIA）

産業応用可能なサイズである、表面処理済みAlGaO薄膜の大口径化を目指した。新規ミストCVD装置を設計、試作し、成膜条件を検討した。その結果、4インチ化を実現し、ほぼ全面で膜厚分布±10%以内の成膜に成功した。結晶性の改善にも成功し、X線半値幅80arcsecを実現した。また、波長254nm紫外線の透過率80%以上を確認することができた。

サブテーマ4 A1Ga₂N膜の実証試作（立命館大学）

サファイア上に形成された表面窒化A1GaOテンプレートを用いてA1Ga₂N膜の実証試作をおこなった。まず、ミストCVD法でサファイア基板の上に作製した(A1Ga)₂O₃薄膜をRF-MBEチャンバー内で窒化処理し、MBE法でA1Ga₂Nを成長した。窒化処理時およびA1Ga₂N成長時の表面結晶構造の変化をRHEEDを用いてモニタリングすることで、A1Ga₂N成長に格子整合した表面窒化処理が行えていることを確認した。サブテーマ1において見出した最適窒化処理時間を用いて、窒化処理温度を変えた試料に対して評価を行った。MBE法で成長したA1Ga₂NのXRD半値幅は約2500 arcsecであったため、さらなる結晶性の向上を目指して、MOCVD法でのA1Ga₂N成長を試みた。その結果、MOCVD法でのより高温での結晶成長により、A1Ga₂NのXRD半値幅は数百 arcsec改善された。また、より結晶性の優れた(A1Ga)₂O₃薄膜をテンプレート基板として用いることで、A1Ga₂NのXRD半値幅は1600 arcsecまで低減できた。

最終章 全体総括

本研究開発を通じて、多くの技術的知見を獲得することができた。コランダム構造を有していたA1GaO表面が、表面窒化処理により、表面数原子層レベルでウルツァイト構造A1Ga₂N層に改質されたことは、本研究開発計画立案時の狙い通りの効果であり、高品質A1Ga₂N膜を実現するために、表面窒化A1GaOテンプレートを利用する方法が、非常に高い可能性を有することを示すものであると考えている。

他方で、表面窒化A1GaOテンプレートを用いて作製したA1Ga₂N膜の結晶性は本研究開発を通じて1600 arcsecにとどまり、一層の結晶性改善が求められている。この一因は、当初予測できなかった研究結果、例えば、A1組成比60~70%の(A1Ga)₂O₃膜の成膜条件検討が予想以上に困難であったこと、当該課題解決に成膜条件検討と成膜装置（チャンバー含む）の見直しを組み合わせるようになったこと、などにより条件検討が難航したことであった。

今後、A1Ga₂N膜の高品質化に向けて実施するべき開発項目は存在し、高品質化できる余地は大きい。今後、ミストCVD法を用いたA1GaO膜の結晶成長条件の更なる見直しや、表面窒化処理条件、MOCVD法を用いたA1Ga₂N膜の結晶成長条件の検討などを進めることで、高品質A1GaO膜が実現し、期待の大きな波長254nm紫外線LEDの実現を目指していきたい。