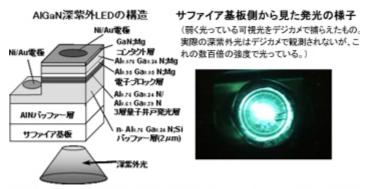
2007 年 9 月 4 日 独立行政法人 理化学研究所 国立大学法人 埼玉大学

### 実用可能な最短波長深紫外発光ダイオードを開発

- 半導体紫外殺菌灯の実現に向けて大きく前進 -

燦燦と照りつける太陽光を浴び続けると、太陽光に含まれる紫外線が引起す日焼けやシミが心配になります。一方で、波長の短い紫外領域の光は、そのエネルギーの高さから、バクテリアや病原菌を殺菌する効果があり、浄水や医療の分野で利用されています。また、ダイオキシンやポリ塩化ビフェニル、窒素酸化物などを簡単に分解し、地球環境汚染の元凶となっている物質を処理する光として期待されています。さらに、情報化社会に欠かせないエレクトロニクス素子の製造や化学工業など、産業に欠かせない光として活用されています。

理研フロンティア研究システムのテラヘルツ光研究プログラムのテラヘルツ量子素子研究チームは、埼玉大学と協力して、実用可能な最短波長の深紫外線を発光する発光ダイオード(LED)の開発に成功、殺菌に最も効果のあるとされている波長 260 ナノメートルの深紫外線を約2ミリワットという高出力で発光させました。これまで、半導体を使った深紫外線の発光は、強度が弱く、実用化が難しいとされていましたが、同研究グループは「アンモニアパルス供給多層成長法」を考案し、発光層の下に高品質な窒化アルミニウム層を製造する技術を実現しました。この手法を用いて開発したLED は、発光効率が約30倍増強しました。まだ窒化アルミニウム層の高品質化や光の取り出し効率の向上が見込めるため、さらに性能のアップを望むことができます。小型・高出力・携帯用の紫外線光源として、威力を発揮し、浄水の殺菌、医療分野はもちろん、さまざまな分野で利用されると期待されます。



開発した最短波長・高輝度 LED(227.5-261 nm の発光波長 を実現)

2007 年 9 月 4 日 独立行政法人 理化学研究所 国立大学法人 埼玉大学

## 実用可能な最短波長深紫外発光ダイオードを開発

- 半導体紫外殺菌灯の実現に向けて大きく前進 -

#### ◇ポイント◇

- 実用可能な最短波長深紫外発光ダイオード(波長 227.5nm)を実現
- 殺菌に最も有効な波長 260nm で市販発光ダイオードと同等の輝度を実現
- 半導体深紫外発光効率の飛躍的向上に貢献

独立行政法人理化学研究所(野依良治理事長)は、国立大学法人埼玉大学(田隅三生学長)と共同で、実用可能な最短波長深紫外\*1の発光ダイオード(LED)を開発し、同時に殺菌に最も有効な波長の高輝度LEDの実現に成功しました。本成果は、理研フロンティア研究システム(玉尾皓平システム長)テラヘルツ光研究プログラム・テラヘルツ量子素子研究チーム 平山秀樹チームリーダーと埼玉大学理工学研究科 鎌田憲彦教授による成果です。

波長 230nm~350nm帯の深紫外光を発する高輝度LEDや同波長のレーザを発する 深紫外半導体レーザ(LD)は、殺菌・浄水、各種医療分野、高密度光記録、高演色 LED照明、紫外硬化樹脂などの化学工業、ダイオキシンやPCB(ポリ塩化ビフェニル)、NOx(窒素酸化物ガス)など公害物質の高速分解処理、バイオ工学、各種情報 センシングなど、大変幅広い分野での応用が期待されています。特に、直接殺菌の効 果が最も強い 250~270nmの半導体紫外光源が実現すると、医療や家庭で用いる小型 殺菌灯などとしての用途が大きく広がります。しかし、これまで深紫外における半導 体からの発光が弱かったため、高輝度深紫外発光素子は実現できていませんでした。

研究グループでは、高品質な窒化アルミニウム(AIN) $^{*2}$ 層をサファイア基板上で結晶成長させる新しい手法を考案し、それを用いて、深紫外発光強度を飛躍的に(約50 倍程度)増加させることに成功しました。この手法を用いて深紫外発光ダイオード(UV-LED)を作製し、実用可能な最短波長深紫外光を発するLED(波長227.5nm)、ならびに、殺菌効果が最も高いとされる 260nmの波長の光を 2mW(ミリワット:千分の1ワット)程度の強さで出力する高輝度LEDの開発に成功しました。この成果は、今後の医療、殺菌・浄水、生化学産業への応用に向け大きな前進になると考えられます。

本研究成果は、9月4日~8日に北海道工業大学で開催される2007年秋季第68回応用物理学会学術講演会、9月16日~21日に米国のラスベガスで開催される第7回窒化物半導体国際会議(ICNS-7)において、相次いで発表していきます。なお、本成果は、文部科学省科学研究費補助金、特定領域研究「窒化物光半導体のフロンティア」の研究テーマ「インジュウム・アルミニウム・ガリウム窒化物4元混晶を用いた紫外高効率発光デバイスの研究」の一環として行われたものです。

#### 1.背 景

波長が230nm~350nm帯の深紫外光を高効率に発する発光ダイオード(LED)や、半導体レーザ(LD)は、殺菌・浄水、各種医療分野、高密度光記録、高演色LED照明、紫外硬化樹脂などの化学工業、ダイオキシンやPCB、NOxガスなど公害物質の高速分解処理、バイオ工学、各種情報センシングなど、大変幅広い分野での応用が期待されています。特に、バクテリアなどの殺菌では、紫外光による直接殺菌の効果が最も高い250~270nm付近の波長域の光が応用され、有機物、ダスト、ダイオキシンなどの難分解性汚染物質の分解では、酸化チタンなどの光触媒に270~320nmの波長の紫外光を当て、効率よく分解する紫外線照射システムが注目されています(図 1)。これまで深紫外光源としては、エキシマレーザや各種SHGレーザ(第 2 高調波発生レーザ)などのガス・固体を媒体とする紫外レーザやガスランプなどしか存在しませんでした。これらは、大型で、寿命も短く、また高価であるため一般への応用が難しいのが現状でした。このため、半導体を使った深紫外高輝度LEDや深紫外LDが実現すると、コンパクトで安価・高効率・長寿命の紫外光源が得られることになり、応用分野が飛躍的に広がると考えられ、その開発が望まれていました。

室化アルミニウムガリウム(AlGaN)系材料は、(1)深紫外の200~360nm帯に発光範囲を持つ(2)高効率発光が可能である(3)材料が硬く素子の寿命が長い(4)ヒ素、水銀、鉛を含まず環境に無害である、などの特徴を持ちます。このため、実用可能な紫外発光素子を実現する材料として最も有力であると考えられ、多くの研究グループが、深紫外発光デバイスの実現に向け、激しい開発競争を繰り広げてきました。しかし、これまで、発光素子の下地基板となる材料の「窒化アルミニウム(AlN)」の高品質な結晶が作製できなかったため、深紫外における発光効率が大変低く、高輝度LEDの実現は難しい状況でした。今回、研究チームは、サファイア基板上に貫通転位密度\*\*3の少ないAlN層を結晶成長する新しい手法を開発し、高品質AlN層を形成することにより、半導体のAlGaN発光層からの深紫外発光強度を飛躍的に増強することに成功しました。また、この方法を用い、最短波長領域の深紫外高輝度LEDの実現を可能にしました。

#### 2. 研究手法と成果

これまで、AlGaN 発光層からの深紫外発光が弱かったために深紫外高輝度 LED の実現が困難でした。この課題を解決するために、LED の下地層(バッファー層)の高品質化に取り組みました。紫外 LED には、通常 AlN を用います。AlN を高品質化するためには、(1)結晶の貫通転位密度が低い(2)原子 1 層オーダーの平坦性を維持している(3)結晶にクラック(ひび割れ)が入らない、などの条件を満たさなければなりません。研究グループは、それらすべてを解決するために新たに"アンモニアパルス供給多層成長法"を考案しました(図 2)。

この方法は、有機金属気相成長法(MOCVD 法)を活用したもので、Al 材料ガスを連続供給し、アンモニアガスをパルス供給して、AlN を結晶成長させていきます。さらに、Al 材料ガスとアンモニアを両方連続供給する連続供給成長 AlN 層と、アンモニアのみパスル供給するパルス供給成長 AlN 層を交互に成長させ、多層のAlN 層を作製します。まずはじめに、AlN 核の形成とその埋込み成長をアンモニアパルス供給成長によって行います。この過程で AlN 結晶に発生する貫通転移密度を

大幅に減少させることができます。その後、アンモニアパルス供給層と連続供給層を多層に成長させることによって、原子層オーダーの平坦性を得ます。また、パルス供給層と連続供給層の多層成長は、結晶歪によるクラック(ひび割れ)を防止するために大変効果があります。

研究グループは、このアンモニアパルス供給多層成長法を用いて、AIN の貫通転位密度を、従来の数十分の一に低減させることに成功しました。この方法を用いて作製した高品質 AIN バッファー層の上に、深紫外発光する AIGaN 発光層を形成したところ、発光効率が従来に比べ 50 倍程度増強しました。さらに、LED を作製して発光の最短波長を測定した結果、これまで AIGaN 系 LED で報告されている最短波長である 227.5nm のシングルピークを確認しました。このときの出力は  $0.15 \,\mathrm{mW}$ 程度でした。これまで、AIN を発光層とした波長  $210 \,\mathrm{nm}$  で発光する LED がすでに他グループから報告されていますが、出力は  $0.02 \,\mathrm{\mu W}$  (マイクロワット: 百万分の  $1 \,\mathrm{U}$  ワット)と大変小さく、今後の高効率化も難しいと考えられます。したがって、今回の結果は今後実用可能な最短波長 LED といえます。 さらに研究チームは、殺菌に最も効力の高い  $250 \,\mathrm{v} \,\mathrm{v} \,\mathrm{c}$  で、253nm で  $1 \,\mathrm{m} \,\mathrm{w}$  、261nm で  $1.65 \,\mathrm{m} \,\mathrm{w}$ 、 $273 \,\mathrm{nm}$  で  $3.3 \,\mathrm{m} \,\mathrm{w}$  と、室温連続動作においていずれも  $1 \,\mathrm{m} \,\mathrm{w}$  以上の発光を得ることに成功しました(図 3)。これらの発光出力は、市販のイルミネーション用(青、赤、白色)LED などと同等レベルで、そのままでも殺菌灯として利用可能です。

#### 3. 今後の期待

今後、深紫外 LED は、素子作製過程で、AIN バッファー層のさらなる高品質化、 光取り出し効率の向上など、様々な改善を加えることにより、飛躍的な高効率・高 出力化が可能になります。小型・高出力・携帯用紫外光源として、殺菌・浄水、各 種医療分野、公害物質の高速分解処理など、多岐にわたる分野での応用が開花する と期待されます。

#### (問い合わせ先)

独立行政法人理化学研究所

フロンティア研究システム・テラヘルツ光研究プログラム テラヘルツ量子素子研究チーム

チームリーダー 平山 秀樹(ひらやま ひでき)

Tel: 048-462-1247 / Fax: 048-462-1276

#### (報道担当)

独立行政法人理化学研究所 広報室 報道担当

Tel: 048-467-9272 / Fax: 048-462-4715

Mail: koho@riken.jp

### <補足説明>

#### ※1 深紫外

紫外波長域でも 200~350nm 帯の波長を筆者らが定義して呼んでいる。可視(紫、藍、青、緑、黄色、橙、赤)の波長である 400~780nm と深紫外との間の領域を近紫外(350~400nm)としている。波長が 200nm 以下の短波は、空気中の酸素を分解してオゾンを発生させる波長域で真空紫外と呼ばれる。深紫外は、"殺菌"、つまりタンパク質の分解に最も効果的な波長である 260nm 帯や、皮膚の日焼けなどを起こす UV-B (280~315nm)の波長を含む。深紫外は DNA、タンパク質、生物・生体への作用が大きいことから、医療、殺菌・浄水、生化学分野への応用が重要である。また、酸化チタンなどの光触媒に照射することで、ダイオキシン、PCB、有機塩素化合物、各種環境ホルモンなどの難分解性汚染物質を高速分解処理できるなど、使い道は幅広い。

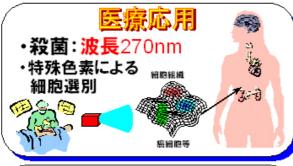
#### ※2 窒化アルミニウム(AlN)

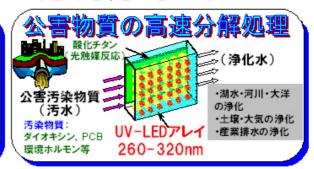
窒化物半導体材料の中で最も短い波長(高いエネルギー)で発光する半導体。窒化物半導体は窒化ガリウム(GaN)を中心に開拓された材料系で、窒化インジウムガリウムアルミニウム(InGaAlN)系混晶として利用可能である。市販されている青色高輝度 LED、青色 LD では、窒化インジウムガリウム(InGaN)が発光層に用いられている。深紫外発光デバイスの開発では、より高いエネルギーで発光する窒化アルミニウムガリウム(AlGaN)系材料が用いられる。

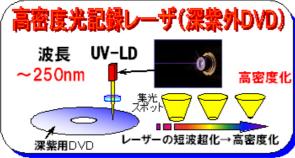
#### ※3 貫通転位密度

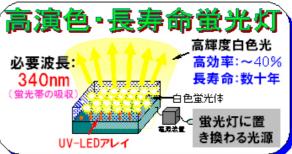
結晶格子間隔の異なる基板上に半導体を結晶成長する際に生じる、原子の位置のずれ。特に、結晶成長とともに消えることなく表面まで達するものを貫通転位と呼ぶ。 今回は、サファイア基板上に AlN を結晶成長しており、両者で結晶格子の間隔が異なるため、通常の結晶成長では貫通転移が大変発生しやすい。貫通転位の周辺では、発光強度が著しく減少するため、発光素子を作製する場合は大きな問題となる。

# 半導体深紫外光源の応用分野の広がり









その他の 応用分野:

- ●家庭用、殺菌・浄水・ 空気清浄機
- ●自動車排気ガスの高速 浄化(無公害車)
- ●各種光情報センシング(蛍光分析、 表面分析、紫外線センサー等)
- ●紫外硬化樹脂、生化学産業

図1 半導体深紫外光源の応用分野

# 高品質・窒化アルミニウム(AIN)結晶の作製

# アンモニアパルス供給多層成長法により実現

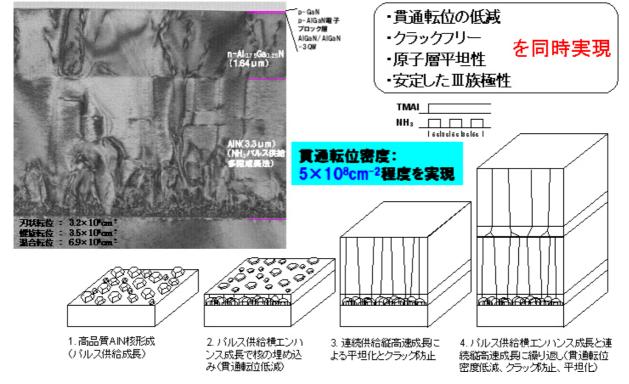
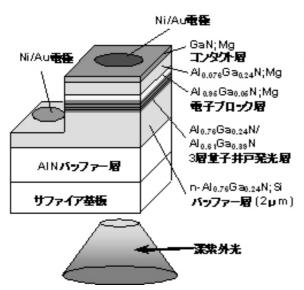


図2 アンモニアパルス供給多層成長法による高品質 AIN の作製

# 最短波長・高輝度LEDの実現(227.5-261nm)

#### AIGaN深紫外LEDの 構造



### サファイア基板側から見た発光の様子

(弱く光っている可視光をデジカメで捕らえたもの。 実際の深紫外光はデジカメで観測されないが、これの数百倍の強度で光っている。)



## AlGaN深紫外LEDの動作スペクトルと出力特性

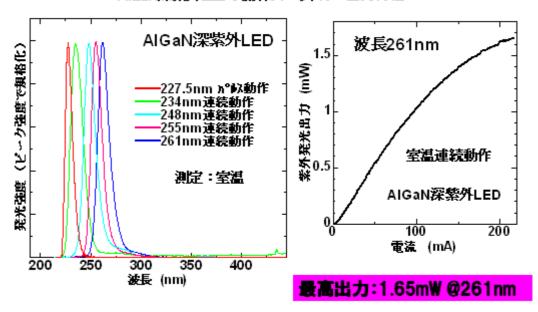


図 3 実現した深紫外最短波長・高輝度 LED