

研究課題構想・概要

課題名 「次世代照明を齎す半導体基板結晶製造技術」
経費受給機関代表者名(所属機関名)「齋藤文良 (東北大学多元物質科学研究所)」
共同研究機関代表者名(所属機関名)「藤森俊成 (三菱化学株式会社)」

研究の目標・概要

1. 共同研究の主旨

高輝度青色LEDにより実現される白色全固体照明は省エネ、環境の観点から必須であり、世界的な開発競争が展開されている。共同研究の主旨は白色LED製造技術を有する三菱化学株のニーズ(高品質バルクGaN単結晶基板、p-型ZnO基板とその製造法、高効率蛍光体等)を東北大学のニーズ(高品質GaN、p-型ZnO技術、希土類錯体等)にマッチングさせ、技術を完成させることにある。これにより日本が国際的な開発競争に勝つことを目標とする。

2. 目標

研究開始後1年目の目標:高品質バルクGaN結晶合成炉の導入、反応経路の効率化、新規高効率蛍光体の探索、基板評価技術の確立
研究開始後2年目の目標:高品質バルクGaN結晶の大型化、p-型ZnO基板の開発、基板評価、新規蛍光体の評価
研究開始後3年目の目標:2インチ高品質バルク結晶の作製技術の確立、LED効率総合評価

3. 内容

高効率全固体白色照明技術の確立においてニーズとされる高品質GaN単結晶基板製造技術の開発と高効率蛍光体の開発を中心にp-型ZnO技術などの発展的技術開発をも含めた研究を展開する。半導体LEDの高効率化の鍵となる高品質GaNバルク基板結晶の製造技術の確立:ソルバシタル法の技術確立に向けて3本柱の前駆体、超臨界溶媒、鉍化剤を本格検討する。また、基板評価として結晶性、欠陥、不純物、熱伝導率等の詳細な解析を行なう。希土類錯体等を用いた高効率蛍光体開発:蛍光体の光変換効率の向上も本格検討する。事業化の観点からトータルロス評価。

4. 共同研究体制

当該プロジェクトは東北大学多元物質科学研究所副所長である齋藤教授が研究総括にあたる。高品質GaN単結晶作製技術はソルバシタル法を中心の方法論に据え、GaNの反応経路の検討および炉の設計を福田教授が担当する。検討項目となる3つのパラメータ(超臨界溶媒、鉍化剤、前駆体)のうち、超臨界フェーズにおける溶解度研究を横山教授が、鉍化剤の検討を吉川助教が、高活性前駆体の合成を齋藤教授が担当する体制を取る。高品質結晶作製に必須の低欠陥種結晶は山根教授の世界最高品質の溶液法作製結晶を用いる。また、基板の高品質化処理においても山根教授が主体となって溶液法を適用する。デバイス側においては、新規高効率蛍光体の開発を笠井助手、石坂博士が、基板の評価として、基板の結晶性、熱伝導率を早稲田教授が、PLを用いた発光特性評価を猿倉助教が、電子顕微鏡を用いた転位の評価および成膜チェックを八百教授が担当する。また、p-ZnOなどへの展開は福田教授および吉川助教が担当する。三菱化学側からは共同研究機関の代表者である藤森副所長が研究総括を補佐する形で、逐次、事業化展開の観点からのトータル評価を行なう。折戸次長が事業化を前提とした基板結晶評価を、川端主任研究員が電気伝導性・PL評価、藤井グループマネージャがLEDデバイス設計、清見主任研究員がMOVPEによる成膜を、金田主任研究員が蛍光体の効率評価をそれぞれ担当する。

研究開発の現状等

山口大学 田口常正教授、国内13社、4大学 研究名 "高効率電光変換化合物半導体開発(21世紀のあかり)", 1998~2003年 新エネルギー産業技術総合開発機構(NEDO) 全固体照明の開発を目的としGaN半導体デバイスや蛍光体などの研究開発が行われた。ポロランド科学アカデミー超高压研が研究している超高温超高压溶液法を導入し、約1500、1~2GPaの高窒素ガス圧下で、20×20mm²を越す板状GaN単結晶を育成した。固体照明の重要性を示し平成14年度で終了。

大阪大学大学院工学研究科、佐々木孝友教授の研究室では、本申請デバイスである山根教授らの研究を基にNa融液を用いたGaN単結晶育成を行いバルク結晶成長に成功した。ただし、LPEは成長時間が遅いため、歴史上バルク結晶の事業化に結びついた例はない。この方法のみを日本のGaNバルク作製法の本命に据えるのはリスクが高い。

米国カリフォルニア大学サタマール校(中村修二教授、J.S. Speck教授) "中村不均一結晶:Growth of perfect GaN bulk crystals by high pressure solution growth and vapor phase growth", 2001~2006年創造科学技術推進事業(ERATO)JST 気相法その他に安熱合成法のGaN単結晶合成も研究。大型単結晶作製に成功したとの報告はない。

米国Office of Naval Research (DOD Muri プラザ) "Growth of Bulk Wide Bandgap Nitrides and Wafering", 2001~2006年米軍2研究所と米国5大学からなる。ZnO、GaNなどの基板用バルク単結晶の作製と評価を行う。単結晶育成法は、気相法、金属溶媒結晶育成法、安熱合成法。注目はプロセッサ法で、ZnOの水熱合成を先行させ、安熱合成によるGaN技術開発へ展開するという我々と全く同じ方針を描いている。2000気圧を超える高圧下でGaNの再結晶化に成功している。同じ材料であるが、ZnOの大きさ、結晶性、純度ともに我々が勝っており、また、我々はGaNを500~1200気圧という事業化可能条件下で再結晶化に成功しており、現段階では当方がリードしている。

米国GE Global Research Center 高温超高压法(人工ダイヤを作る方法)によるGaN単結晶作成法の研究を展開中。

2000、5~10GPaという超高温超高压のため、量産には不適。

ドイツ フォクホーファー研究所 2002年より5年計画でGaNのバルク単結晶の作製を研究。フェーズ中でのGaNの安定性に関する基礎研究や金属融液とフェーズとの反応による単結晶育成法の研究を始めた。

ポロランド科学アカデミー超高压研からズィンアウトしたUNI PRESS 超高温超高压溶液法を用いた研究。1500の高温と1~2GPaの高窒素圧でGa融液に窒素を溶存させ結晶成長。300mm²の板状GaN単結晶を得たが量産には不適。

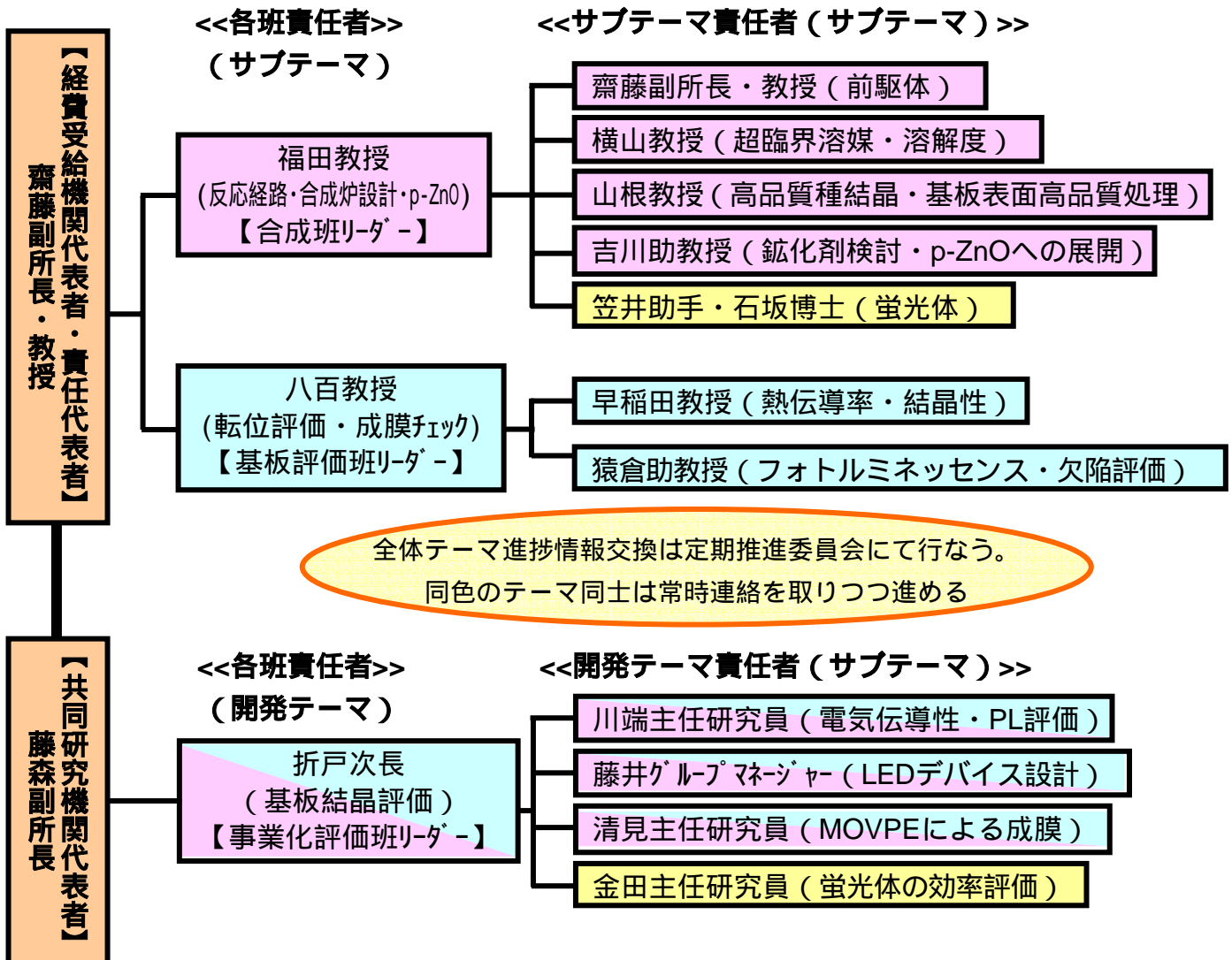
研究進展・成果がもたらす利点

サブマイ等、非GaN結晶基板上的ヘテロエピタキシャル成長によるGaN p-n接合を作製する限り、現行のいかなる方法を用いても格子不整合起因の転位の影響は避けられない。Lateral overgrowthで10⁵/cm²台の領域が得られているが、高転位密度領域が残る問題がある。転位はp-n接合からのリーク電流の増加・キャリア寿命低減の原因となる。GaNは転位が動きにくくGaAs並の低転位密度基板は求められないが、10⁴/cm²以下という技術的ニーズがある。本研究で用いるソルバシタル法は比較的低温での成長であるため、熱歪の少ない良質大型結晶が得られる利点を持ち低転位密度基板結晶製造技術の本命とされる。高品質GaN基板を用いたホモエピタキシャル成長により転位低減が実現すれば、固体照明の効率が現状の60lm/Wから120lm/Wへ向上することになり、白熱電球のみならず蛍光灯や車のヘッドライトを担う新規全固体照明が実現する。更にp型ZnO基板を用いたpn接合で375nmの発光が実現できれば、GaNの405nmと比較し、蛍光体の発光効率がRGBで更なる2~4倍の増加が期待され、p型ZnO基板技術実現の意義も極めて大きい。

共同研究体制

課題名 「次世代照明を^{もたら}す半導体基板結晶製造技術」
 経費受給機関代表者名(所属機関名) 「齋藤文良 (東北大学多元物質科学研究所)」
 共同研究機関代表者名(所属機関名) 「藤森俊成 (三菱化学株式会社)」

当該プロジェクトは東北大学多元物質科学研究所副所長である齋藤教授が研究総括にあたる。高品質GaN単結晶作製技術はソルボサーマル法を中心の方法論に据え、GaNの反応経路の検討および炉の設計、p-ZnO技術への展開を福田教授が担当する。検討項目となる3つのパラメータ(前駆体、超臨界溶媒、鉍化剤)のうち、高活性前駆体の合成を齋藤教授が、超臨界アンモニアにおける溶解度研究を横山教授が、鉍化剤の検討を吉川助教授が担当する体制を取る。高品質結晶作製に必須の低欠陥種結晶は山根教授が世界最高品質の溶液法作製結晶を用いる。また、基板の高品質化処理においても山根教授が溶液法を適用する。デバイス側においては、新規高効率蛍光体の開発を笠井助手、石坂博士が、基板の評価として、基板の結晶性、熱伝導率を早稲田教授が、PLを用いた発光特性評価を猿倉助教授が、電子顕微鏡を用いた転位の評価および成膜チェックを八百教授が担当する。また、p-ZnOなどへの展開は福田教授および吉川助教授が担当する。三菱化学側からは共同研究機関の代表者である藤森副所長が研究総括を補佐する形で、逐次、事業化展開の観点からのトータル評価を行なう。折戸次長が事業化を前提とした基板結晶評価を、川端主任研究員が電気伝導性・PL評価、藤井グループマネージャーがLEDデバイス設計、清見主任研究員がMOVPEによる成膜を、金田主任研究員が蛍光体の効率評価をそれぞれ担当する。



課題名 「次世代照明を^{もたら}す半導体基板結晶製造技術」
 経費受給機関代表者名(所属機関名) 「齋藤文良 (東北大学多元物質科学研究所)」
 共同研究機関代表者名(所属機関名) 「藤森俊成 (三菱化学株式会社)」

GaN・ZnO基板結晶の応用分野

次世代照明としての**固体照明の実現**

真空管 トランジスタ <低消費電力・小型化>

ランプ・蛍光灯 発光素子 <低消費電力・小型化・水銀フリー・砒素フリー> **環境調和**



ソルボサーマル法におけるZnOからGaNへの展開

