

戦略的国際共同研究プログラム(SICORP)

日本－中国共同研究

終了報告書 概要

1. 研究課題名：「有害物質分解システムに向けた高性能紫外線レーザーダイオードの研究」
2. 研究期間：2016年8月～2019年3月
3. 主な参加研究者名：
日本側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	天野 浩	センター長・教授	名古屋大学 未来材料・システム研究所 未来エレクトロニクス集積研究センター	研究総括
主たる共同研究者	三宅 秀人	研究科長・教授	三重大学地域イノベーション学研究所	結晶成長及び構造評価
主たる共同研究者	本田 善央	准教授	名古屋大学 未来材料・システム研究所 未来エレクトロニクス集積研究センター	光・電気物性の評価
研究参加者	久志本 真希	助教	名古屋大学大学院工学研究科電子工学専攻	光励起システムの構築
研究参加者	正直 花奈子	助教	三重大学大学院工学研究科 電気電子工学専攻	MOVPE 結晶成長と評価
研究参加者	Xiao Shiyu	助教	三重大学大学院地域イノベーション学研究所	HVPE 結晶成長と評価
研究期間中の全参加研究者数			12名	

中国側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	Yuhuai Liu	教授	鄭州大学	研究総括
主たる共同研究者	王永進	教授	南京郵電大学	光集積チップの作製と評価
主たる共同研究者	賈玉萍	助教	中国科学院長春光学精密機械及び物理研究所	UV検知器の作製と評価
主たる共同研究者	徐俞	エンジニア	蘇州ナノウィン社	AlN基板の作製と評価
研究参加者	楊守義	教授	鄭州大学	通信システムの構築
研究参加者	王芳	准教授	鄭州大学	光素子の設計
研究期間中の全参加研究者数			33名	

4. 国際共同研究の概要

現在、紫外線光源の産業、医療などの分野への応用が広がっている。従来の紫外線ランプには水銀成分が含まれており、環境には望ましくない。そこで、窒化物半導体を用いる環境にやさしい紫外線発光ダイオードが注目されている。しかしながら、現状では波長 260 nm 程度で出力数十ミリワットであり、環境有害物質分解の応用には不十分である。その解決には、高出力紫外線レーザーダイオード(UV-LD)が求められており、基板から素子応用システムまでの要素技術開発が必要である。

本研究では、環境有害物質処理のニーズに応じて、高出力の UV-LD の要素技術の開発を行った。日本側は窒化アルミニウム(AIN)基板の高品質化及び UV-LD の作製を行い、中国側は物性評価、UV 検知器の作製、素子の集積及びシステムの試作を行った。これにより、高品質窒化アルミニウム基板/テンプレート作製技術、新規素子の製造、集積化を基盤技術として、それを ICT 監視システムとして結合した環境保全インフラに発展させる技術を確認した。

5. 国際共同研究の成果

5-1 共同研究の学術成果

レーザーダイオード作製に必須の基板作製に関しては、最初昇華法によるバルク AIN 成長を目指したが、本研究の目指す高性能 UV-LD の実現に必要なサイズと品質の結晶を得るには、プロジェクト期間より長い時間を要することが判明したため、実用化が容易なスパッタリング法によるバッファ層と、その熱処理を組み合わせた薄膜成長法に変更し、十分な品質の結晶を得ることに成功した。その結果レーザーダイオード設計に必要な物性パラメータを明らかにすることができ、応用例としてモノリシック光カプラの試作にも成功した。

5-2 国際連携による相乗効果

鄭州大学劉教授および南京郵電大学王教授は、名古屋大学に複数回滞在し、それぞれ三重大学とも共同で実用化が容易なテンプレート基板結晶作製とその高品質化、および紫外光発信器と光受信機を有するモノリシック環境モニタリング集積チップを 1 回の結晶成長で実現できる手法の構築に成功した。これらはそれぞれ世界唯一であり、相互協力によりなしえた成果である。また、年一回本グループ全員で相互に訪問し、進捗状況の報告を行うことにより、適切な研究計画の作成と研究進捗管理運営ができた。

5-3 共同研究成果から期待される波及効果

学術的には、紫外線レーザーダイオードの構造設計に必要なパラメータ抽出に成功し、その実現のための学術的基礎を構築できた。社会的波及効果としては蘇州ナノウィン社が基板を製品化、中国科学院長春精密光学および物理研究所グループが吉林省政府からベンチャー資金を獲得し窒化物半導体検知器作製技術の事業化を展開、南京郵電大学グループも江蘇省政府からのベンチャー出資の意向を得ている。本研究で得られた成果は全て実用化が容易な方法で行っており、特に環境モニタリング集積チップの試作に成功したことは、SDGs 達成への大きな貢献が期待できる。

Strategic International Collaborative Research Program (SICORP)
Japan—China Joint Research Program
Executive Summary of Final Report

1. Project title : 「Development of Nitride Semiconductor-based High Power Ultraviolet Laser Diodes for Hazardous Substances Decomposition Systems 」
2. Research period : Aug. 2016 ~ Mar. 2019
3. Main participants :

Japan-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Hiroshi Amano	Professor	Nagoya University	Project Leader
Co-PI	Hideto Miyake	Professor	Mie University	Crystal growth and structural characterization
Co-PI	Yoshio Honda	Associate Professor	Nagoya University	Characterization of optical and electrical properties
Collaborator	Maki Kushimoto	Assistant Professor	Nagoya University	Establishment of optical excitation system
Collaborator	Kanako Shojiki	Assistant Professor	Mie University	Crystal growth by MOVPE and characterization of the layers
Collaborator	Xiao Shiyu	Assistant Professor	Mie University	Crystal growth by HVPE and characterization of the layer
Total number of participants throughout the research period: 12 Members				

China-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Yuhuai Liu	Professor	Zhengzhou University	
Co-PI	Yongjin Wang	Professor	Nanjing University of Post and Telecommunication	Optoelectronics chip fabrication
Co-PI	Yuping Jia	Assistant Professor	Changchun Institute of Optics and Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences	UV detector fabrication
Co-PI	Yu Xu	Engineer	Suzhou Nanowin Technology Co. Ltd.	AlN substrate fabrication
Collaborator	Shouyi Yang	Professor	Zhengzhou University	Communication system
Collaborator	Fang Wang	Associate Professor	Zhengzhou University	Optical device design
Total number of participants throughout the research period: 33 Members				

4. Summary of the international joint research

The range of applications of ultraviolet (UV) light sources to industry such as medical applications is expanding. Conventional UV lamps contain mercury (Hg), which is environmentally hazardous. Therefore, much attention has been paid to nitride-based UV light-emitting diodes (LEDs) as Hg-free UV light sources. However, the output power of UV LEDs is at most only on the orders of 10 mW at a wavelength of 260 nm, which is not sufficient to decompose environmentally hazardous substances. To overcome this problem, fundamental research on substrates, devices, and system applications to realize UV laser diodes (UV-LDs) with high output power is strongly desired.

In this project, we developed fundamental technology on high-output-power UV-LDs. Teams at Nagoya University and Mie University focused on growing high-quality AlN substrates and the fabrication of UV-LDs, whereas Chinese teams characterized crystalline quality of AlN, fabricated UV detector, and integrated a UV-LED with the UV detector. As a result of this collaboration, we succeeded in realizing a high-quality AlN template and fabricating integrated devices with new functions. Coupling this achievement with an ICT system is expected to result in the development of a new environment-monitoring system.

5. Outcomes of the international joint research

5-1 Scientific outputs and implemented activities of the joint research

First, we attempted to grow a bulk AlN substrate by the sublimation method. However, during the project, it was found that it would take too long to realize a bulk AlN substrate. Therefore, we started to utilize thin-film AlN on a sapphire substrate by sputtering. By optimizing the annealing conditions after deposition, we succeeded in realizing an AlN buffer layer of sufficient quality to realize a UV laser. Then, we clarified the optical properties of AlGaIn, which is necessary to design the structure of the UV-LD. We also succeeded in fabricating the world's first monolithic UV coupler.

5-2 Synergistic effects of the joint research

Professor Liu from the University of Zhangzhou and Professor Wang from Nanjing University of Posts and Telecommunications visited Nagoya University and Mie University several times and developed the technology to grow the UV-LED and UV detector by a single MOVPE process. This mutual cooperation led to the realization of the entirely new technology. In addition, all the team members in Japan and China gathered once a year and discussed the overall research plan and the progress of each area of research.

5-3 Scientific, industrial, and societal impacts/effects of the outputs

From the academic viewpoint, we succeeded in extracting parameters necessary to realize an UV-LD. From the industrial viewpoint, the Suzhou Nanowin team has started an AlN template business, National Institute of Precision Optics and Physics, Director-General of The Chinese Science Council team has obtained a grant for a startup company from the government of Jilin province, and the Nanjing University of Posts and Telecommunications team received a positive response to their application for a grant for a startup company from Jiangsu province. The results obtained in this project, especially the fabrication of an environment-monitoring chip, are easy to apply to mass production; therefore, a huge contribution to sustainable development goals, so called SDGs can be expected.

共同研究における主要な研究成果リスト

1. 論文発表等

*原著論文 (相手側研究チームとの共著論文)

・査読有り：発表件数：計6件

X. Yang, S. Nitta, K. Nagamatsu, M. Pristovsek, Y. Liu, Y. Honda, and H. Amano, Growth of hexagonal boron nitride on sapphire substrate by pulsed-mode metalorganic vapor phase epitaxy, *Journal of Crystal Growth*, 482, 1-8, 2018.

Xu Yang, Shugo Nitta, Markus Pristovsek, Yuhuai Liu, Kentaro Nagamatsu, Maki Kushimoto, Yoshio Honda and Hiroshi Amano, Interface amorphization in hexagonal boron nitride films on sapphire substrate grown by metalorganic vapor phase, epitaxy, *Applied Physics Express*, 11, 51002, 2018

Chuan Qin, Xumin Gao, Jialei Yuan, Zheng Shi, Yuan Jiang, Yuhuai Liu, Yongjin Wang, and Hiroshi Amano, Transferrable monolithic multicomponent system for near-ultraviolet optoelectronics. *Appl. Phys. Express* 11 (2018) 051201

Yongjin Wang, Xin Wang, Bingcheng Zhu, Zheng Shi, Jialei Yuan, Xumin Gao, Yuhuai Liu, Xiaojuan Sun, Dabing Li, and Hiroshi Amano, "Full-duplex light communication with a monolithic multicomponent system," *Light: Science & Applications* 7, 83(2018)

Jialei Yuan, Yan Jiang, Zheng Shi, Xumin Gao, Yongjin Wang, Xiaojuan Sun, Dabing Li, Yuhuai Liu, and Hiroshi Amano, "286nm monolithic multicomponent system", *Japanese Journal of Applied Physics* 58, 010909 (2019)

Cai, Wei; Yuan, Jialei; Ni, Shuyu; Shi, Zheng; Zhou, Weidong; Liu, Yuhuai; Wang, Yongjin; Amano, Hiroshi "GaN-on-Si resonant-cavity light-emitting diode incorporating top and bottom dielectric distributed Bragg reflectors" *Applied Physics Express* 12, 032004 (2019)

・査読無し：発表件数：計0件

例) I. T. Kagaku and H. Science. XXX ~ Title~, *JST scope.*, 2016, 4(1), 23-42

*原著論文 (相手側研究チームを含まない日本側研究チームの論文)：発表件数：計6件

・査読有り：発表件数：計6件

H. Miyake, C.H. Lin, K. Tokoro, K. Hiramatsu, Preparation of high-quality AlN on sapphire by high-temperature face-to-face annealing, *Journal of Crystal Growth*, 456, 155-159, 2016

Ryo Yoshizawa, Hideto Miyake, and Kazumasa Hiramatsu, Effect of thermal annealing on AlN films grown on sputtered AlN templates by metalorganic vapor phase epitaxy, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2018, 57, 01AD05/1-4

Yusuke Hayashi, Ryuji Katayama, Toru Akiyama, Tomonori Ito, and Hideto Miyake, Polarity inversion of aluminum nitride by direct wafer bonding, Appl. Phys. Exp., 2018, 11, 031003/1-4

Yusuke Hayashi, Ryuji Katayama, Toru Akiyama, Tomonori Ito, Hideto Miyake, “Polarity inversion of aluminum nitride by direct wafer bonding”, Applied Physics Express, 2018, 11(3), 031003

Hideto Miyake, Yusuke Hayashi, Shi-yu Xiao, Kazumasa Hiramatsu, “High-temperature annealing of AlN on sapphire using face-to-face method”, Gallium Nitride Materials and Devices XIII, 2018, 10532, 1053202

Shiyu Xiao, Ryoya Suzuki, Hideto Miyake, Shunta Harada, Toru Ujihara, “Improvement mechanism of sputtered AlN films by high-temperature annealing”, Journal of Crystal Growth, 2018, 502, 41-44

・査読無し：発表件数：計 0 件

*その他の著作物（相手側研究チームとの共著総説、書籍など）：発表件数：計 0 件
例）該当なし

*その他の著作物（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの総説、書籍など）：発表件数：計 0 件

2. 学会発表

*口頭発表（相手側研究チームとの連名発表）

発表件数：計 9 件（うち招待講演：4 件）

Xu Yang(Speaker), Shugo Nitta, Kentaro Nagamatsu, Yuhuai Liu, Zheng Sun, Zheng Ye, Junya Matsushita, Yoshio Honda, and Hiroshi Amano, “The Influence of Residual Boron in Reactor on the Quality of GaN Crystal Grown via MOVPE”, International Workshop on Nitride semiconductors, Florida, USA, October 2-7, 2016.

X. Yang(Speaker), S. Nitta, K. Nagamatsu, M. Pristovsek, Y. Liu, Y. Honda, and H. Amano, “Growth and Structural Characterization of Hexagonal Boron Nitride on Sapphire”, Th-P28, The 2nd International Workshop on UV Materials and Devices (IWUMD2017), November 14-18, 2017, Fukuoka, Japan.

X. Yang(Speaker), S. Nitta, K. Nagamatsu, M. Pristovsek, Y. Liu, Y. Honda, and H. Amano, “The surface evolution of hexagonal boron nitride on sapphire by

pulsed-mode MOVPE”, The 12th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS2017), July 24-28, 2017, Strasbourg, France.

Y. Liu(Speaker), X. Yang , S. Nitta , K. Nagamatsu , M. Pristovsek , Y. Honda , and H. Amano, “Pulsed-mode MOVPE growth of hexagonal boron nitride on sapphire substrate” , Invited Talk, 2017 International Symposium on Single Crystal Diamond and Electronics(SCDE 2017), June 10-14, 2017, Xi’an, China.

X. Yang(Speaker) , S. Nitta , K. Nagamatsu , M. Pristovsek , Y. Liu, Y. Honda , and H. Amano, “Impact of temperature on pulsed-mode MOCVD hexagonal boron nitride on sapphire”, 29 January 2018. SPIE OPTO, “2D Photonic Materials and Devices”, 27 January - 1 February 2018, San Francisco, California, United States.

Maki Kushimoto(Speaker), Yang Xu, Yuhuai Liu, Yoshio Honda, and Hiroshi Amano, “Optical properties of AlGa_N based UVC laser structures on annealed AlN template”December 11,2018, International Workshop onUV Materials and Devices(IWUMD) December 9-12, 2018Kunming Yunan Conference Hotel,Kunming, China, 2018

X. Yang(Speaker) , S. Nitta , K. Nagamatsu , M. Pristovsek , Y. Liu, Y. Honda , and H. Amano, Impact of temperature on pulsed-mode MOCVD hexagonal boron nitride on sapphire, Oral presentation, 29 January 2018. SPIE OPTO, “2D Photonic Materials and Devices”, 27 January - 1 February 2018, San Francisco, California, United States.

Y. Liu(Speaker), X. Yang , S. Nitta , K. Nagamatsu , M. Pristovsek , Y. Honda , and H. Amano, Pulsed-mode MOVPE growth of hexagonal boron nitride on sapphire substrate , Invited Talk, 2018 International Symposium on Single Crystal Diamond and Electronics(SCDE 2018), June 10-14, 2018, Xi’an, China.

Y. Liu(Speaker), X. Yang , S. Nitta , K. Nagamatsu , M. Pristovsek , Y. Honda , and H. Amano, “Growth Mechanisms of h-BN on Sapphire Substrate by Pulsed Mode Metal Organic Vapor Phase Epitaxy” , The 15th International Forum on Wide Bandgap Semiconductors, Oct. 23-25, 2018, Shenzhen, China.

* 口頭発表（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの発表）
発表件数：計 18 件（うち招待講演：16 件）

三宅秀人「サファイア上スパッタ AlN の N₂ 高温アニール」、日本学術振興会 第 161 委員会、大阪、2016/11/18

Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, Fabrication of High-Quality AlN Template for Deep-Ultraviolet-Light Source, MNRG 2016, 2016 年 12 月 6-7 日

鈴木崇文他、「Si 基板上半極性(1-101)GaN ストライプレーザー端面への反射膜作製」、応用物理学会、3月17日

Ryo Yoshizawa, Shinya Tamaki, Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, Effect of thermal annealing on AlN film grown on sputtered AlN templates, ISPlasma 2017, 名古屋市、2017年3月2日

Hideto Miyake, Shiyu Xiao, Kazumasa Hiramatsu, High-temperature Annealing of Sputtered AlN Films on Sapphire, ICMASS2017, 名古屋大学, 2017/9/29

Hideto Miyake, Yusuke Hayashi, Kazumasa Hiramatsu, Fabrication of high-quality AlN template by high temperature annealing for UV devices, APWS2017, Qingdao, 2017/9/27

三宅 秀人, 深紫外 LED のための AlN/sapphire 基板開発, 日本真空工業会 関西支部, 日本真空学会関西支部 秋季合同講演会, 大阪, 2017/9/28

Shiyu Xiao, Hideto Miyake, Investigation of the qualitative improvement process of sputtered AlN films by high-temperature annealing, IFWS 2017, Beijing, China, 2017/11/1

三宅 秀人, 正直 花奈子, Shiyu Xiao, 林 侑介, 平松 和政, サファイア基板上 AlN テンプレートの高温アニール, 第 46 回結晶成長国内会議 (JCCG-46) シンポジウム, 浜松, 2017/11/27

三宅 秀人, 正直 花奈子, Shiyu Xiao, 林 侑介, 平松 和政, サファイアを基板に用いた基板作製技術, 日本真空学会東海支部 12 月研究例会, 津, 2017/12/2

Hideto Miyake, Shiyu Xiao, Yusuke Hayashi, Kanako Shojiki, Kazumasa Hiramatsu, Fabrication of high-quality AlN on sapphire by face-to-face annealing, OPTIC2017, Kaohsiung city, Taiwan, 2017/12/8

Hideto Miyake, Shiyu Xiao, Yusuke Hayashi, Kanako Shojiki, "Fabrication of High-Quality AlN on Sapphire for Deep UV LED", 2018tSSL, Taiwan, 2018/4/25

Kanako Shojiki, Xiaotong Liu, Shoya Kawai, Hideto Miyake, "Fabrication of High-Quality AlN Template on Sapphire Using High-Temperature Annealing, CSW2018, MIT, BOSTON, 2018/5/30

Hideto Miyake, "Fabrication of High-quality AlN Template by High Temperature Annealing", CIMTEC, Padova, Italy, 2018/6/15"

Hideto Miyake, Kanako Shojiki, Xiaotong Liu, Yusuke Hayashi, Xiao Shiyu, Kenjiro Uesugi, "Homoepitaxy of AlN on annealed AlN/sapphire template", ISGN-7, Warsaw, Poland, 2018/8/5-10

三宅 秀人, 正直 花奈子, 林 侑介, Shiyu Xiao, 上杉 謙次郎, 永松 謙太郎, 深紫外 LED 実用化の鍵となる基板作製技術, 電子情報通信学会, 金沢大学, 2018年9月11日"

永松 謙太郎, 上杉 謙次郎, 正直 花奈子, 吉田 治正, 三宅 秀人, スパッタ法 AlN 膜の高温アニールとその基板上への AlGaIn 深紫外 LED 作製, 応用物理学会シンポジウム, 名古屋国際会議場, 2018 年 9 月 18 日 ”

三宅 秀人, 正直 花奈子, 林 侑介, 肖 世玉, 上杉 謙次郎, 永松 謙太郎, 『AlN テンプレート高品質化の進展』～深紫外 LED 実用化の鍵となる基板作製技術～, 日本学術振興会第 162 委員会, 東京大学 駒場Ⅱ, 2018 年 9 月 27 日”

*ポスター発表（相手側研究チームとの連名発表）

発表件数：計 X 件

*ポスター発表（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの発表）

発表件数：計 X 件

3. 主催したワークショップ・セミナー・シンポジウム等の開催

1. JST-SICORP 日中共同研究プロジェクト・キックオフ会議
主催者：天野 浩（名古屋大学・教授）日本、名古屋市 2016/12/20
参加者数 20 名
2. International Workshop on UV Materials and Devices (IWUMD 2017) 深紫外材料及びデバイスに関する国際会議
主催者：天野 浩（名古屋大学・教授）Fukuoka, Japan 2017/11/14～2017/11/16
参加者数 293 名
3. International Workshop on Regional Innovation Studies, アジアを中心に地域イノベーションを目的に開催される国際ワークショップ
主催者：三宅 秀人（三重大学・教授）2017/10 月 日本、津市、三重大学
参加者数 163 名
4. International Workshop on Regional Innovation Studies, アジアを中心に地域イノベーションを目的に開催される国際ワークショップ
主催者：三宅 秀人（三重大学・教授）日本、津市、三重大学, 2018/10/18～2018/10/19 参加者数 146 名

4. 研究交流の実績

- ・2018 年 4 月 1 日～4 月 4 日
2018 年日中 JST-MOST 共同ワークショップ（中国蘇州）
日本側共同研究者（3 名）
名古屋大学（2 名）久志本 真希、楊 旭
三重大学（1 名）三宅 秀人
中国側共同研究者（8 名）
鄭州大学（1 名）劉 玉懷
ナノウィン社（3 名）徐 科、王 建峰、徐 翕
中国科学院長春光学精密機械及び物理研究所（3 名）

黎 大兵、孫 曉娟、賈 玉萍
南京郵電大学（1名）王 永進
有害物質分解システムに向けた高性能紫外線レーザーダイオードの研究についての
打ち合わせ

- ・2018年12月7日～12日 中国昆明、蘇州、Suzhou Nanowin Co. Ltd.
日本側共同研究者（2名） 三重大学：三宅秀人、名古屋大学：久志本真希
- ① 日本-中国(都市における環境問題または都市におけるエネルギー問題に関する
研 究)についての打ち合わせ
- ② 日中共同研究成果報告のため IWUMD 学会に出席し、研究発表、情報収集を行っ
た。
- 他（2016年度2件、2017年度1件）

5. 特許出願

研究期間累積出願件数：7 件

6. 受賞・新聞報道等

受賞：

1. 知的財産最優秀出願賞、三宅秀人、2017/11/29

報道：

1. 中日新聞、「省エネ、殺菌 輝く未来」、三宅秀人、2017/5/19

7. その他

以上