

京都大学	博士(工学)	氏名	赤池 良太
論文題目	MOVPE of Semipolar r-plane AlGaIn-based Semiconductors toward Highly Efficient Solid-state UVC Emitters (高効率固体 UVC 光源開発に向けた半極性 r 面 AlGaIn 系半導体の MOVPE 成長に関する研究)		

(論文内容の要旨)

本論文は、波長 230 nm 以下で発光する far-UVC 光の固体光源開発を目指して、有機金属気相エピタキシー (MOVPE) による半極性 r 面 AlN 単結晶基板への AlGaIn 系半導体のエピタキシャル成長を行ったものであり、AlGaIn 中に発生するピット生成と消滅の機構を明らかにすることで、産業応用重要な低圧化で低ピット密度の半極性 AlGaIn を成長することに成功している。また、光物性評価によって、far-UVC 領域において AlGaIn 量子井戸の発光の内部量子効率 (IQE) に関して、従来の極性 c 面上と比較して r 面上の方が 3~4 倍程度 IQE が高くなっていることを示すとともにその物理機構を解明している。さらに、波長 270nm の UVC 領域で半極性面 AlGaIn 系発光ダイオード (LED) の試作に成功しており、全 6 章からなっている。

第 1 章「序論」では、UVC 光および far-UVC 光の応用について述べている。すなわち、波長 265 nm で発光する UVC 光は DNA を破壊することによる殺菌作用があることについて述べた後、波長 230 nm 以下で発光する far-UVC 光は殺菌作用があることに加えて人体に無害であり、コロナウイルスの不活性化に貢献しうる技術として紹介している。つぎに、AlN と GaN の混晶である AlGaIn 半導体を用いた UVC 光源の問題点として外部量子効率 (EQE) が低いことを述べ、従来の極性 c 面上 AlGaIn 系半導体では、EQE の決定因子の 1 つである量子井戸における発光の IQE が低い現状にあることを指摘し、解決方法として半極性 r 面の利用を挙げている。

第 2 章「Far UVC LED 高効率化の観点からの半極性 r 面 AlGaIn の利点」では、EQE が IQE、光取り出し効率 (LEE)、電流注入効率 (CIE) の積として書けることから、それぞれの効率について半極性 r 面の優位性を検討している。IQE は輻射再結合レートと非輻射再結合レートの兼ね合いで決定されることから、前者に関連して波動関数の重なり積分の解析、後者に関連して臨界膜厚の計算予測を行っており、半極性 r 面の優位性を定量的に示している。また、LEE については、半極性 r 面が far-UVC 領域において従来の c 面と比べて優位性を示すことを、光学遷移行列要素の計算から明らかにしている。さらに、CIE については、デバイスシミュレータにより様々な面方位について電流注入効率を計算し、c 面から面を傾けすぎると電流注入効率が悪化することを示している。すなわち、r 面程度の面の傾きであれば電流注入効率が十分高く保たれ、電流注入効率以外の効率との兼ね合いを考えると、r 面が最も UVC LED に有望な面であることを明らかにしている。

第 3 章「半極性 r 面 AlGaIn 薄膜の成長」では、半極性 r 面 AlGaIn の MOVPE 成長

条件の探索を行っている。すなわち、気相中での原料ガスの前駆反応を低減できる低圧化の成長が、高成長速度と高原料利用効率の観点から重要であることを指摘し、低圧化において AlGa_N 表面へのピット形成抑制に取り組んでいる。その結果、ピット密度はピット生成とピット消滅の競合で決定されると理解され、低 NH₃ 流量または低 Al 組成であるほどピットが生成されにくい、一方、ピット消滅の観点からは、成長中の吸着原子のマイグレーション長を短くすることが望ましく、両者の兼ね合いで AlGa_N 中の Al 組成に応じて最適な成長条件が存在することを明らかにしている。つぎに、半極性 r 面 AlGa_N 薄膜の格子緩和について、半極性 r 面 AlGa_N は [1-101] 方向には予測されるとおりに緩和が起こるが、[11-20] 方向には格子緩和が起こりづらく、異方的な格子緩和が生じていることを実験的に明らかにしている。また、透過電子顕微鏡 (TEM) 観察によって発生した転位は大部分が界面近くにとどまっており、非輻射再結合という観点からは量子井戸層に多大な影響は及ぼさないと期待できることを見出している。

第 4 章 「半極性 r 面 AlGa_N 量子井戸の光物性評価」では、作製された c 面、r 面 AlGa_N 量子井戸について、フォトルミネセンス (PL) 測定によって光学的な評価を行っている。まず、発光波長が短波長になるほど発光強度が低下すること、r 面では発光強度の低下度合いが小さくなっており、特に far-UVC 領域において c 面と比べて 3~4 倍程度 IQE が高くなっていることを見出している。そして、時間分解 PL (TRPL) によって特に波長 225 nm の far-UVC 領域において発光する c 面および r 面 AlGa_N 系量子井戸の解析を行い、r 面で IQE が高くなっている理由として、r 面のほうが輻射再結合レートが速くなっていることに加え、非輻射再結合レートが遅くなっていることを定量的に明らかにしている。

第 5 章 「半極性 r 面 AlGa_N 系 UVC-LED の試作」では、第 3 章にて確立した高品質な半極性 r 面 AlGa_N の結晶成長技術をベースとして、ドーピング条件の検討を行っている。すなわち、Si 添加 n 型 AlGa_N を c 面と r 面上に同条件で作製すると、r 面の方が c 面より Al 組成が低くなること、そのためにキャリア密度が高くなることを見出している。さらに、r 面 AlGa_N 上に p 型 Ga_N を成長させる条件を確立しており、これらの知見をもとに、r 面 AlN 基板上に波長 270nm の LED を作製し、半極性面 AlGa_N 系において UVC 領域での LED 動作を世界で初めて実証している。

第 6 章 「結論と今後の展望」では、本論文の纏とともに UVC 領域および far-UVC 領域においてさらなる高効率化に向けた今後の課題について述べている。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、有機金属気相エピタキシー (MOVPE) による半極性 r 面 AlGaIn 単結晶基板上への AlGaIn 系半導体の成長を行ったものであり、同構造における高品質化に成功している。また、波長 230 nm 以下の far-UVC 光において、従来の c 面と比較して r 面の優位性を、理論的および実験的に実証しており、波長 270nm の UVC 領域において、半極性面 AlGaIn 量子井戸を用いた発光ダイオード (LED) の試作に初めて成功している。これら成果は、UVC 領域および far-UVC 領域の固体光源の高効率化に繋がるものであり、以下の内容に纏めることができる。

1. Far UVC LED 高効率化の観点から半極性 r 面 AlGaIn の物性予測
 - ・波動関数の重なり積分の解析により半極性 r 面の優位性を定量的評価。
 - ・光学遷移行列要素の計算から半極性 r 面の優位性を定量的評価。
 - ・電流注入効率の計算から総合的に r 面が最も有望であることを予測。
2. 半極性 r 面 AlGaIn 薄膜のエピタキシャル成長
 - ・気相中での原料ガスの前駆反応を低減できる低圧成長の重要性を指摘。
 - ・AlGaIn 表面のピット生成と消滅の競合でピット密度が決定されると理解。
 - ・上記観点から AlGaIn 中の Al 組成に応じて最適な成長条件を確立。
 - ・半極性 r 面 AlGaIn 薄膜の格子緩和の異方性発見と欠陥評価。
3. 半極性 r 面 AlGaIn 量子井戸の光物性評価
 - ・Far-UVC 領域において r 面 AlGaIn 量子井戸が c 面と比べて 3~4 倍程度 IQE が高くなっていることをフォトルミネッセンス (PL) 測定により実証。
 - ・時間分解 PL による c 面および r 面 AlGaIn 系量子井戸の再結合過程評価。
 - ・輻射・非輻射再結合レートの観点から r 面の優位性を実験的に実証。
4. 半極性 r 面 AlGaIn 系 UVC-LED の試作
 - ・半極性 r 面 AlGaIn 系におけるデバイス設計とドーピング条件の確立。
 - ・r 面 AlN 基板上に波長 270nm の LED を作製し、半極性面 AlGaIn 系において UVC 領域での LED 動作を世界で初めて実証。

本論文は、紫外域の固体光源を目指すにあたって、新しい基板として半極性 r 面 AlN 単結晶基板に着目し、MOVPE 成長による AlGaIn 系半導体の高品質化を実現している。また、同基板上へ成長した AlGaIn 量子井戸における輻射、非輻射再結合寿命の評価を行い、高効率化の物理機構について論じている。さらに、同基板上への UVC 領域で発光する LED の試作に成功しており、紫外域の固体光源の応用上において寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。また、令和 5 年 2 月 13 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。