

(論文内容の要旨)

InGaN を活性層とする窒化物半導体の発光素子は、近紫外から青色領域の超高効率発光ダイオード(LED)の開発で、近年目覚ましい発展を遂げている。しかしながら、発光波長が青緑色より長波長となると、LEDの発光効率が著しく低下し、緑色域では、高効率LEDが存在しないのが現状である。この課題に対して、本論文では、 $\{11\bar{2}2\}$ 半極性面のGaN基板を用いることを提案し、そこでの結晶成長や光物性に関する主として実験的な研究を通じて、InGaN LEDの高効率化・高性能化に対する指針を与えることを目的とした。論文は、以下に要旨を示す7章からなっている。

第1章は、窒化物半導体光デバイスの研究背景について紹介した後、InGaN量子井戸LEDの長波長化における問題を議論している。すなわち、緑・黄・橙・赤などの長波長発光を実現するにはIn組成比を増加させることが必須となるが、このことはInGaNとGaN障壁層との格子不整合を通してInGaN層を歪ませ、巨大なピエゾ分極を引き起こす。ピエゾ分極は量子井戸に強い量子閉じ込めシュタルク効果(QCSE)を誘起する原因となり、輻射再結合確率を抑制する要因となるため、QCSEを低減できる半極性面や無極性面が注目されている。ここでは、その結晶成長に関して研究の現状と課題を明確にしている。

第2章では $\{11\bar{2}2\}$ 半極性面GaN基板上へのGaNホモエピタキシャル成長について、基本的な成長条件の検討と光学特性について述べている。成長方法としては、窒化物半導体で一般に用いられる有機金属気相成長法を採用した。結晶成長速度を考慮した成長条件の設定により、表面が原子レベルで平坦なGaN成長層を得ることに成功した。また、その薄膜の光学特性評価では、(a)自由励起子発光が支配的、(b)ドナー束縛励起子の発光半値幅が0.6meV、(c)反射特性に異方性があるといった特徴が明らかとなり、半極性GaN成長層の品質の高さが裏付けられた。

第3章では、前章で作製したGaN成長層の上にInGaN/GaN量子井戸構造を作製し、その物性評価を行った。まず、X線回折測定からInGaN中の歪みの状態を解析した。歪は、半導体中の電子状態に強い変調を与えるため、その正確な理解は物性の理解のために不可欠である。実験

結果より、従来報告されていた解析方法では半極性面上 InGaN の歪を正しく記述できないことを指摘し、新たに歪みテンソルの表式を導出した。また、結晶が歪んだ結果として誘起される内部電界の大きさを、時間分解発光分光や電子線ホログラフィーで評価し、 $\{11\bar{2}2\}$ 面 $\text{In}_{0.23}\text{Ga}_{0.77}\text{N}/\text{GaN}$ 量子井戸中の電界は、検出限界 (0.2MV/cm) 以下であることを実証した。

第4章では、InGaN 量子井戸を発光層とする発光ダイオード(LED)を GaN $\{11\bar{2}2\}$ 半極性基板上に試作した。発光波長 420nm(青色)~620nm(赤色)の LED の作製に成功し、約 4%の外部量子効率を青~緑色領域で達成した。これまでに 0.1%に満たなかった非極性面上 LED の特性を实用レベルにまで向上させた。

第5章では、作製した半極性量子井戸と LED を用い、それらにおける発光の偏光特性を検討した。偏光特性は、価電子帯の3つのバンドのオーダリングによって支配されているため、それに影響を与える In 組成や量子井戸幅の影響を詳細に調べた。その結果、In 組成 30%以下では、偏光方向は $[1\bar{1}00]$ 方向と従来の報告と一致していたが、In 組成 30%以上では 90 度回転し、 $[\bar{1}\bar{1}23]$ 方向となることを見出した。一方で、偏光方向は、井戸層膜厚にはほとんど依存しなかった。これらの実験結果を踏まえ、 $k\cdot p$ 摂動法から導出された近似式を用いて解析を行い、これまで不確定であった InN の変形ポテンシャルの値を提示した。

第6章では、さらに強いキャリア閉じ込めを実現するため、 $\{11\bar{2}2\}$ 半極性面上 InGaN 量子ドットを作製、評価している。歪による分極効果の大きな窒化物半導体では、極性面や無極性面上にドットを作製すると、成長方向か成長面内のいずれかに大きな内部電界が発生してしまい、発光再結合確率を低下させる要因となる。これに対して、半極性面は、そのどちらも最少化できる可能性を持っていることを理論計算で指摘している。実際に、膜厚の分子層揺らぎを利用した InGaN 量子ドット構造を作製し、その発光の時間分解分光から、高い再結合確率を実証し、 $\{11\bar{2}2\}$ 半極性面上 InGaN 量子ドットのポテンシャルの高さを示した。

第7章は、結論であり、各章で得た成果を纏めるとともに今後の展望について述べている。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、InGaN系量子構造における発光の高効率化を目的として、半極性面を用いた結晶成長および光物性に関する研究を纏めたものである。従来の極性面上では、500nm帯の緑色波長域での高効率化が難しいと考えられていた。この課題に対して、本研究では、半極性面を用いることの有効性に関する詳細な検討を行い、以下のように成果を得た。

(1) 有機金属気相成長法を用いた GaN{ $11\bar{2}2$ } 半極性面基板上への GaN ホモエピタキシャル成長に関して、結晶成長速度を考慮した成長条件の設定により、表面が原子レベルで平坦であり、光学的にも自由励起子発光が支配的である高品質な GaN 成長層を得ることに成功した。さらに、その GaN 成長層の上に、発光層となる InGaN/GaN 量子井戸構造を作製するための結晶成長条件を見出した。InGaN/GaN 量子井戸では、ピエゾ分極誘起の電界が低減されていることを時間分解フォトルミネッセンスや電子線ホログラフィー法によって実証した。

(2) InGaN 量子井戸を発光層とする発光ダイオード(LED)を GaN{ $11\bar{2}2$ } 半極性基板上に試作した。発光波長 420nm(青色)~620nm(赤色)の LED の作製に成功し、約 4%の外部量子効率を青~緑色領域で達成した。これまでに 0.1%に満たなかった非極性面上 LED の特性を実用レベルにまで向上させた。

(3) { $11\bar{2}2$ } 半極性 InGaN 量子井戸および LED について、発光の偏光特性を評価し、In 組成により偏光方向が 90 度回転することを初めて見出した。実験結果を理論的に解析し、現象の物理的背景として、GaN との格子不整合によって InGaN 層に蓄えられる歪、特に、半極性面特有のせん断歪が偏光回転の要因であることを見出した。この解析に基づき、これまで不明確であった InN の変形ポテンシャルの値を導出した。

(4) 半極性面を利用すれば、量子ドット構造においてもピエゾ分極誘起の電界を小さくできることに着目し、GaN{ $11\bar{2}2$ } 半極性基板上へ InGaN 量子ドットを作製する方法を検討した。分子層揺らぎによる量子ドットの作製に成功し、またその発光再結合確率がこれまで窒化物半導体で報告されている量子ドットの中で最高値であることを光学測定から示した。

以上、本論文は半極性 InGaN 量子構造およびそれに基づいた LED の結晶成長法や光物性を特に実験的に検討し、半極性面の持つ基礎的な物性からデバイス応用までそのポテンシャルを明確にしたものであり、学術上及び実際上の寄与が少なくない。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、平成21年2月24日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。