

(論文内容の要旨)

AlN をベースとした窒化物半導体発光素子の研究は、特に最近になって活発になってきた。しかしながら、その結晶成長技術はまだ未成熟であり、それが材料本来の特性を明らかにすることを妨げている。本論文は、AlN および高い Al 組成を持つ AlGaN/AlN 量子井戸の結晶成長と光物性について主に実験的研究を行ない、これらの材料の光デバイス応用に向けたポテンシャルを明らかにすることを目的としており、6 章からなっている。その要旨を以下に示す。

第 1 章は、窒化物半導体可視光デバイスの研究背景について紹介した後、AlN をベースとした深紫外領域への展開における問題を議論している。AlN では、Al と N の結合が強いため、良好な結晶を得るためには、高温での成長や、原料の交互供給など結晶成長上の工夫が必要であり、多くの研究者がさまざまな方法を提案している状況にある。ここでは、それら結晶成長に関して、研究の原状と課題を明確にしている。

第 2 章では、有機金属気相成長法によるサファイア(0001)面基板上への AlN の成長について検討した。いくつかの方法を比較検討した結果、Al 原料と N 原料を常に同時供給する方法と、完全に交互供給する方法(MEE 法)を組み合わせた Modified MEE 法を提案した。この方法では、おのおのの原料は交互供給されるが、それら供給パルス的一部分を重ねることにより同時供給も取り込んだ方法となっている。その結果、原子レベルで平坦な表面を得ることに成功した。この機構を解明するため、成長最初期の表面構造を調べたところ、成長最初期においてマイグレーションを制御し、適当な大きさの AlN 成長核を形成することが、表面の平坦化に向けて重要であることを見出した。また、2 次元成長核の密度から、Al 原料は、約 40nm マイグレーションすることが可能であることを示した。

第 3 章では、Modified MEE 法による AlN 成長に関して、成長条件の最適化を図った。また、その過程で得られた結果より、結晶品質を決定している要因は N 原料である NH_3 の分解である

と考察した。最適化後の結晶品質として、X線回折測定から、螺旋転位密度 $2 \times 10^6 / \text{cm}^2$ 、刃状転位密度 $7 \times 10^8 / \text{cm}^2$ と見積もった。これらの値は、報告されている中で最低レベルであり、高品質な AlN 薄膜が作製できたことを示している。また、光学特性としては、室温においても禁制幅近傍の発光が支配的であり、深い準位を形成する欠陥や不純物の混入が避けられていることを明らかにした。

第4章では、同様の Modified MEE 法により AlN 上に AlGaN/AlN 量子井戸を作製した。X線回折スペクトルにはサテライトピークが明瞭に観察され、良好な周期性を持った量子井戸構造の作製が確認された。また、発光の内部量子効率、 $\text{Al}_{0.79}\text{Ga}_{0.21}\text{N}(5\text{nm})/\text{AlN}$ 量子井戸で最も高い約 35% と見積もられ(このとき発光波長は 240 nm)、将来、光デバイスへの展開が十分可能なレベルであった。また、発光のメカニズムを解明する目的で、発光の光励起密度依存性を調べ、弱励起から順に、励起子発光 \Rightarrow 励起子多体効果 \Rightarrow 電子正孔プラズマによる発光が観察されていることを示唆する結果を得た。

第5章では、AlGaN/AlN 量子井戸における偏光異方性を評価した。従来、光学選択側のために高 Al 組成 AlGaN 薄膜の (0001) 面から強い発光を得ることは困難であるとされていた。これに対して本論文では、AlGaN/AlN 量子井戸構造とすることにより、Al 組成 82% 程度までは (0001) 面からの発光が優勢であることを初めて示した。このような偏光特性を支配する物理的要因を探るため、シュレディンガー波動方程式を解析した結果、(a) AlGaN と AlN 間の格子不整合に起因した歪、(b) 歪に誘起された内部電界、(c) 量子閉じ込め効果の3つの要因により、AlGaN の価電子バンドのオーダーリングが著しく変調され、高 Al 組成まで (0001) 面発光が得られることを明らかにした。この結果は、逆に、価電子構造のエンジニアリングにより、偏光制御が可能であることを示すものでもあり、光デバイスの設計に非常に有用な指針を与えている。

第6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、深紫外域での光デバイス用材料として高いポテンシャルを持つ AlN および高 Al 組成 AlGa_N/AlN 量子井戸構造について、それらの作製方法の確立と基礎光物性評価を目的とした研究を纏めたものである。従来、AlN および高 Al 組成 AlGa_N/AlN 量子井戸構造の結晶成長は難しく、しかも光学選択側のため高 Al 組成 AlGa_N の(0001)面から強い発光を得ることは困難であるとされていた。本研究では、これらの課題に対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サファイア(0001)面基板上への AlN のエピタキシャル成長に関して、Al 原料と N 原料を交互に供給することにより原子レベルで平坦な表面を得ることに成功した。成長最初期の核形成に着目してその原因を探索したところ、原料原子の表面マイグレーションを制御し、適当な大きさの成長核を形成することが要因であることを見出した。

(2) 作製した AlN 薄膜の X 線回折測定から、螺旋転位密度 $2 \times 10^6/\text{cm}^2$ 、刃状転位密度 $7 \times 10^8/\text{cm}^2$ と見積もった。これらの値は、報告されている中で最低レベルであり、高品質な AlN 薄膜が作製できたことを示している。また、光学特性としては、室温においても禁制幅近傍の発光が支配的であり、深い準位を形成する欠陥や不純物の混入が避けられていることを明らかにした。

(3) 同様の原料交互供給により AlN 上に AlGa_N/AlN 量子井戸を作製した。X 線回折スペクトルにはサテライトピークが明瞭に観察され、量子井戸構造の作製が確認された。また、発光の内部量子効率、Al_{0.79}Ga_{0.21}N(5nm)/AlN 量子井戸で最も高い約 35%と見積もられ、将来、光デバイスへの展開が十分可能なレベルであった。

(4) AlGa_N/AlN 量子井戸における偏光異方性を評価した。その結果、Al 組成 82%程度までは(0001)面からの発光が優勢であることがわかった。偏光特性を支配する物理的要因を探るため、波動方程式を解析した結果、AlGa_N と AlN 間の格子不整合に起因した歪と、量子閉じ込め効果により、高 Al 組成まで(0001)面発光が得られることを見出した。

以上、本論文は AlN および AlGa_N/AlN 量子井戸の結晶成長法や光物性を特に実験的に検討し、深紫外発光素子用としてのこれら材料の高い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。