

氏 名	いち みや まさ よし 一 宮 正 義
学位の種類	博 士 (人間・環境学)
学位記番号	人 博 第 214 号
学位授与の日付	平成 16 年 1 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	人間・環境学研究科環境相関研究専攻
学位論文題目	GaNとその混晶におけるキャリア再結合過程と一軸性応力効果

論文調査委員 (主査) 教授 林 哲介 教授 宮本嘉久 教授 前川 覚

論 文 内 容 の 要 旨

Ⅲ-V族化合物半導体のなかでも、バンドギャップの大きいGaNは青紫色発光素子の材料として注目され、半導体レーザーや各種照明装置等の材料として開発研究が精力的に進められている化合物である。実用性の観点からすると、発光素子は常温において高い発光効率を持つことが不可欠であるが、多くの半導体では、低温で発光効率が高くても、温度上昇に伴って急速に低下するのが一般的である。半導体の発光は電流注入や光励起によって生じた励起電子・正孔対(キャリア)の輻射再結合に起因するが、GaNでは、電子・正孔共に大きな有効質量をもち、また誘電率が低いために電子・正孔のクーロン引力による結合(励起子結合)エネルギーが大きいことによって、高い温度域まで発光効率が維持され、これがこの物質の有用性をもたらしていると考えられてきた。しかし、この化合物の励起子結合エネルギー(約26meV)は室温の熱エネルギーに匹敵し、常温付近では励起子が自由電子・正孔に熱解離する確率は無視できない。発光効率を高め、また発振波長(色)を人為的に制御するために、GaNの同族化合物であるInNやAlNを混ぜた混晶や、さらに混晶を素材とした多重量子井戸(MQW)が用いられる。これらにおいては、単にGaN本来の物性のみならず、混晶によるキャリアの局在化や量子井戸による閉じこめ等の新たな効果が生じる。GaNとその混晶およびMQWにおける励起子や自由電子・正孔の挙動、すなわちキャリア再結合のダイナミクスが、種々の温度における発光過程にどのように機能しているかという問題は、まだ十分には解明されておらず、素材開発の基礎となる物性物理学上の興味深い課題である。

本論文はこのような問題認識に基づいて、GaN結晶、InGaN、AlGaN混晶の発光過程における光励起キャリアの挙動、とりわけ発光効率の温度変化のメカニズムを明らかにし、さらに実用上有益なInGaNMQWにおける発光過程とレーザー発振の源としての誘導発光を支配するキャリア再結合過程を解明したものである。

はじめに本研究の背景と用いた試料の概要を示した後、第1章ではウルツ鉱型GaN結晶の基礎的な物性と発光スペクトルを中心とした光学応答の知見、本研究で用いる10%以下の低濃度混晶AlGaN、InGaNにおけるバンドギャップと発光スペクトル、とりわけ局在励起子の特性等の基礎的事項を概観している。

第2章では、3種の結晶における発光効率の温度依存性を支配するキャリア再結合過程を明らかにすることを目的として、発光効率と発光寿命に関する実験結果を示し検討を行っている。GaNにおいては、発光効率と発光寿命が異なる温度変化をし、これらから求められる輻射再結合確率の温度依存性は励起子のバンド分散に由来した特徴的な振る舞いを示す。2種の混晶においても同様の結果が得られ、混晶の浅い局在状態においては局在励起子であっても空間的な拡がりを持ちバンド分散があることを明らかにした。これに基づいて、3つの結晶における発光効率の温度依存性の相違が励起子の局在効果に起因していることを明らかにした。温度が高くなると励起子の熱解離がおり、再結合には自由電子・正孔が寄与することが、発光効率の励起強度依存性の測定から確認できる。すべての結晶において、励起子の熱解離が温度のみでなく励起密度に依存し、励起子の多体効果が役割を果たしていることを見いだした。

InGaNMQWにおける誘導発光と光学利得については、レーザー発振の源としてこれまでも多くの研究報告があるが、

励起子の局在効果や多体効果, MQW構造に由来する歪み効果等, 種々の効果がどのように作用しているかの理解は整理されたものではなかった。第3章では, 混晶MQWにおけるキャリア再結合過程の複雑さが光学利得にどのように作用するかを明らかにするために, ストライプ励起の方法を用いて, 異なるキャリア密度における利得の精密な測定結果を示した。低密度においては局在励起子発光における誘導が生じ, 密度の増大に伴って反転分布の閾値エネルギーが上昇し, これがいわゆる「励起子易動度端」を越えると, 電子・正孔プラズマによる利得へと質的に変化することを明らかにした。

続いて第4章では, この誘導発光・光学利得に対する一軸性応力効果を調べた結果を示している。ウルツ鉱型Ga_{0.9}In_{0.1}Nでは, 結晶のc面内に一軸性応力を加えると価電子帯上端における状態(A, B)の分裂が促進されて状態密度が減少し, これが反転分布の閾値を低下させ誘導発光に有利に働くことが理論的に指摘されていた。そこで著者はこの指摘が実際の系, 特に局在励起子が重要な役割を演じているInGa_{0.9}NMQWにおいてどのように発現するか注目し, 一軸性応力効果の実験に取り組んだ。

まず純粋Ga_{0.9}N結晶では, 理論の予測どおり, 応力によってA, B励起子のエネルギー差が広がり, これに伴う励起子密度の分布変化が発光スペクトルに現れることを見いだした。次にInGa_{0.9}NMQWにおいては, 誘導発光を生じる励起子密度の閾値が一軸性応力によって明瞭に低下することを確認した。キャリア密度が高く電子・正孔プラズマによる誘導発光が生じる場合には理論的な評価と一致する利得の増大があることを明らかにした。他方, 低密度において観測される局在励起子の誘導発光の場合には, 応力により閾値の低下と共に発振波長が長波長にシフトすることを見いだした。このような応力効果の現れ方に対して, 再結合ダイナミクスに基づいた整合性のある説明を与えた。室温における結果を含めて, 発光と利得における一軸性応力効果を実験的に示した初めての成果である。

論文審査の結果の要旨

省エネルギー・省スペース型の各種照明装置やレーザー光源の材料として, 半導体発光ダイオード(LED)やレーザーダイオード(LD)が精力的に開発, 応用されている。GaAs系化合物による赤色LED, LDはすでに開発研究の段階を終えているが, 青紫色さらには紫外の短波長域発光素子はおもに開発研究の途上にある。高安定・長寿命の青紫色発光素子材料として最も注目されているものとしてⅢ・Ⅴ族半導体Ga_{0.9}N系化合物がある。半導体素子における発光の起源は, 電流注入や光励起によって生じた励起電子・正孔対(キャリア)の輻射再結合であり, 省エネルギー化はもっぱらキャリア再結合発光における効率の高さに依拠する。Ga_{0.9}N系化合物において, 発振波長を人為的に制御するとともに高い発光効率を実現するために, 同族のIn_{0.1}NあるいはAl_{0.1}Nとの混晶(InGa_{0.9}N, AlGa_{0.9}N), さらにその多重量子井戸(MQW)が開発されている。しかし, これらの素子における発光の素過程としてのキャリア再結合ダイナミクスにはまだ十分に解明されていない基礎的問題がある。本論文はこの未解明な点に焦点をあて, Ga_{0.9}N系化合物やMQWにおける発光効率と光学利得を支配する基礎的なメカニズムを解明することを目的としたものである。

バンドギャップの大きい半導体におけるキャリア再結合過程の主要な問題は, 励起子の挙動にある。一般に半導体における励起電子・正孔対は低温ではそのクーロン引力によって励起子と呼ばれる擬粒子状態を形成する。温度が高くなり熱エネルギーがこの結合エネルギーを凌駕すると励起子は自由電子・正孔に解離する。励起子に比べて解離したキャリアは結晶の欠陥や不純物に捕獲される確率が高く, このため再結合発光の効率が低下する。Ga_{0.9}Nの励起子結合エネルギー, 約26meVは室温の熱エネルギーに匹敵しており, キャリア再結合過程が室温付近で温度にどのように影響を受けるかが重要な点となる。InGa_{0.9}N, AlGa_{0.9}N等の混晶では濃度の空間的な不均一性により励起子はポテンシャル井戸に局在する。局在化はキャリアの長寿命化をもたらし, これによって発光効率は高められる。このように励起子の熱解離や局在の効果が発光効率や誘導発光にどのように影響を与えるかを明らかにすることが本論文の狙いである。

本論文で示された主要な研究成果は以下の3点である。

(1) Ga_{0.9}N, AlGa_{0.9}NおよびInGa_{0.9}Nの3種の結晶における発光効率の温度依存性を比較した。特に発光寿命と効率の温度による変化を比較し, これらから励起子の輻射再結合確率の温度依存性を導き出し, AlGa_{0.9}N, InGa_{0.9}Nの局在励起子においても, 浅い局在状態では空間的な広がりを持つ, すなわちバンド分散をもつ励起子として振る舞っていることを明確にし, 3種の結晶における発光効率の温度依存性の相違が局在励起子の安定性と熱解離の効果によって系統的に説明されることを示

した。また、発光効率のキャリア密度依存性を調べた結果から、励起子の熱解離が単に温度のみによるのではなく、励起子密度に依存し、高密度になると励起子間のスクリーニング効果が励起子の解離に寄与することを明らかにした。

(2) InGaNMQWにおける光学利得のメカニズムを明らかにするために、異なる励起密度における光学利得スペクトルを求めた。混晶を素材にしたMQWでは、局在励起子が発光の源となっているために、レーザー発振のもととなる誘導発光のメカニズムは複雑である。キャリア密度を変化させることができるストライプ励起の方法によって利得測定を行った結果、励起子の多体効果が影響しない低いキャリア密度において、局在励起子状態における誘導発光が生じること、キャリア密度の増大に伴って誘導発光の波長は連続的に短波長に移動し、その波長が所謂局在励起子の易動度端を越えると、電子・正孔プラズマによる誘導発光に転化することを明らかにした。

(3) ウルツ鉱型GaNでは、結晶のc面内に一軸性応力を加えると価電子帯上端のエネルギー変化により状態密度が減少し、これが反転分布の閾値を低下させ誘導発光に有利に働くことが理論的に指摘されていた。このような効果が実際の系、特に実用上の中心をなすInGaNMQWにおいてどのように現れるかを調べるために、誘導発光、光学利得に対する一軸性応力効果を測定した。純粋GaN結晶では、発光スペクトルに対する一軸性応力の効果は理論が予測するものと一致する結果を得た。InGaNMQWにおいては、低キャリア密度における局在励起子による誘導発光の場合、一軸性応力は誘導発光波長の長波長へのシフトをもたらす。また高密度における電子・正孔プラズマによる誘導発光では一軸性応力による明瞭な利得の上昇が得られることを明らかにした。これらの結果に対して、局在励起子状態におけるキャリアの緩和ダイナミクスとGaNバンド構造の応力変化によって系統的な説明を与えた。

以上のように本学位申請論文は、省エネルギーに寄与する光学素子材料の開発の課題を視野に入れながら、その基礎としての物性物理学の課題、物質の光応答の解明に取組み顕著な成果を示したものであり、環境相関研究専攻物質環境相関論講座にふさわしい内容を備えたものと言える。

よって本論文は博士(人間・環境学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成15年11月25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。