

|             |                                    |
|-------------|------------------------------------|
| 氏 名         | 安 田 俊 輝                            |
| 国 籍 ・ 本 籍   | 愛知県                                |
| 学 位 の 種 別   | 博士（工学）                             |
| 学 位 の 番 号   | 甲第274号                             |
| 学位授与の日付     | 平成29年 3 月17日                       |
| 学位授与の要件     | 名城大学学位規程第 3 条第 3 項該当               |
| 学 位 論 文 題 目 | III 族窒化物半導体の分極電荷による導電性<br>制御に関する研究 |
| 論文審査委員      | 主 査 竹 内 哲 也                        |
|             | 副 査 赤 崎 勇                          |
|             | 副 査 上 山 智                          |
|             | 副 査 岩 谷 素 顕                        |

## 論 文 内 容 の 要 旨

現在、紫外発光素子は水・空気の殺菌、皮膚治療、リソグラフィやレーザ加工装置等に用いられている。その光源は水銀ランプやエキシマレーザであり、発光効率、サイズ、寿命の面に課題がある。これらの問題は光源を紫外発光ダイオード（LED）や紫外レーザダイオード（LD）に置き換えることで解決が期待される。紫外発光領域が可能な半導体材料として、ダイヤモンドや酸化亜鉛（ZnO）・セレン化亜鉛（ZnSe）に代表されるⅡ－Ⅵ族半導体、窒化物半導体がある。しかし、ダイヤモンドは間接遷移型のバンド構造を有するため高効率発光は難しく、Ⅱ－Ⅵ族半導体はイオン結合が原子結合に占める割合が大きくなるため脆い。これに対し窒化物半導体は機械的に堅牢かつ化学的に安定であるため、紫外発光素子に優れた材料である。また、窒化物半導体はすでに高効率青色 LED が作製されているため、紫外発光領域でも高効率発光素子の実現が期待できる。

しかしながら、窒化物半導体紫外 LED は発光波長が短くなるにつれて発光効率が低くなる現状である。深紫外領域における発光効率は高くても 10%程度であり、まだ改善の余地が多い。紫外 LED の低発光効率の原因には、高品質下地基板（窒化アルミニウム（AlN））の作製が困難、窒化アルミニウムガリウム（AlGaIn）の p 型電気伝導特性が悪い、p 型 AlGaIn とオーミック接触となる電極が作製困難、p 型 GaN 使用による紫外光の内部吸収が挙げられる。本研究では p 型層の課題解決に着目した。

p 型 AlGaIn は Mg を添加することで作製することが可能である。しかし、Mg はイオン化エネル

ギーが室温の熱エネルギーより大きいため、正孔が生成されにくい。また、このイオン化エネルギーは AlN モル分率が高くなるほど大きくなる。そのため、高 AlN モル分率の AlGaIn では良好な p 型伝導が得られていない。良好な p 型電気伝導特性を有する AlGaIn を作製するために、窒化物半導体特有の大きな分極に注目した。この分極には電荷中性条件を満たすように逆符号の自由キャリアが蓄積することが多数報告されており、高濃度 2 次元正孔ガスの報告もされている。また、AlN モル分率を連続的に変化させた p 型 AlGaIn (組成傾斜 p 型 AlGaIn) では、分極によりアクセプタ不純物の Mg がイオン化され易くなり、良好な p 型電気的特性が得られたという報告もある。上記のように分極に対してキャリアが蓄積するという分極を利用した新しいドーピング技術が提案されている。しかしながら、これまでに報告された例は下地に GaN を用いた低 AlN モル分率 AlGaIn ばかりであり、この分極によるドーピング技術を紫外 LED に用いるためには不明な点が多く、基礎検討から必要となる。

本研究では以下の点を GaN 上 AlGaIn 層および AlN 上 AlGaIn 層にて検討した。

- ・ どの AlN モル分率においても分極によりキャリアが蓄積するか (特に高 AlN モル分率領域)
- ・ そのキャリア濃度はしっかりと制御できるのか
- ・ 分極によるキャリア生成は LED 構造においても効果があるか

上記検討を行うためにそれぞれ次のように行った。

分極は材料によって異なるため AlGaIn の組成を変化させることで蓄積するキャリア濃度を制御することができる。従って、GaN/AlGaIn ヘテロ接合の 2 次元ホールガス濃度による確認を行った。

実際のデバイスに用いる際は 3 次元状の分布が求められる。組成傾斜法は 2 次元ホールガスを 3 次元状に分散させることができる。従って、組成傾斜 AlGaIn における導電特性を確認した。

そして、分極の配置を制御した LED を作製して動作特性を確認した。

まず GaN 上の AlGaIn について述べる。AlGaIn の AlN モル分率の異なる GaN/AlGaIn ヘテロ接合を作製してホール効果測定を行った。その結果  $10^{13}\text{cm}^{-2}$  という高濃度のシート正孔濃度が観測された。GaN 上の高 AlN モル分率 AlGaIn では格子不整合による異常成長が見られ、理論計算分極電荷密度より低い結果となった。しかし、低 AlN モル分率 AlGaIn では、AlGaIn/GaN 界面に生じる分極密度と一致した正孔濃度の AlN モル分率依存性が得られた。このことより AlN モル分率 0.5 以下の領域で AlGaIn の AlN モル分率を制御することで蓄積する正孔濃度を制御できることを明らかにした。

アンドープ組成傾斜 AlGaIn を作製したところ、分極ドーピングにより  $2 \times 10^{18}\text{cm}^{-3}$  と従来の不純物ドーピング p 型 AlGaIn よりも 1 桁高い正孔濃度が観測された。このアンドープ組成傾斜 AlGaIn 層を波長 450nm の LED に応用したところ、不純物ドーピングが無いと正孔注入ができず発光しなかったが、組成傾斜構造ではアンドープにもかかわらず発光を確認、すなわち正孔の注入を確認した。一方で、その発光量は不純物ドーピングに比べて 1/10 であり、対となって生じる分極正電荷が導電に大きく影響していることが分かった。

次に AlGaIn 上の AlGaIn について述べる。本研究では GaN モル分率 1 % の AlGaIn テンプレートを使用した。AlGaIn の AlN モル分率の異なる GaN/AlGaIn ヘテロ接合を作製してホール効果測定を行った。その結果  $10^{13}\text{cm}^{-2}$  という高濃度のシート正孔濃度が観測された。しかし、AlN 上の低 AlN モル分率 AlGaIn では格子不整合による格子緩和が見られ、格子緩和が生じた界面では電気が流れ

なかった。しかし、高 AlN モル分率 AlGaN では、AlGaN/AlGaN 界面に生じる分極密度と一致した正孔濃度の AlN モル分率依存性が得られた。このことより AlN モル分率 0.5 以上の領域で AlGaN の AlN モル分率を制御することで蓄積する正孔濃度を制御できることを明らかにした。

アンドープ組成傾斜 AlGaN を作製したところ、本来正孔が蓄積するはずであったが n 型伝導が観測された。GaN/AlGaN ヘテロ構造同様、組成傾斜 AlGaN においても低 AlN モル分率 AlGaN では格子緩和が生じた。組成傾斜中に急激な緩和が生じることで、その部分では 2 次元電子ガスが生じてしまう。さらに今回は AlGaN 層中に酸素が取り込まれたことも加わり、n 型伝導したと考えられる。そこで、これらのドナー源を補償する目的でアクセプタである Mg を添加した。すると p 型伝導を得ることに成功した。室温における正孔濃度は  $3 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$  と従来の不純物ドーピング p 型 AlGaN よりも 1 桁以上高い正孔濃度が観測された。

最後に分極を制御した LED を作製した。Mg 添加組成傾斜 AlGaN 層を波長 290nm の LED に応用させた。その結果、通常用いられる p 型 GaN と同等の LED 動作特性が得られた。このことより、組成傾斜 AlGaN は p 型 GaN と同等の導電性を有していることが分かった。一方で先にも述べたように、どれだけ p 型層の正孔濃度が高くても対となって生じる分極正電荷によって発光層への正孔の注入が阻害されることが分かった。そのためこの分極正電荷を打ち消すことを検討した。電荷中性条件より分極正電荷を補償させるにはイオン化アクセプタが必要となる。そして、組成傾斜を用いることで分極密度を希釈させることができ、一般的な p 型層の Mg 濃度 ( $10^{19} \text{cm}^{-3}$  代) で補償することができる。その結果、高電流注入時に発光強度の向上が確認された。

これらの結果より本研究では以下のことが明らかとなった。

- ・ AlGaN においてどの組成を選択しても分極電荷にキャリアが蓄積して、キャリア濃度制御が  $5 \times 10^{12} \sim 5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$  の範囲（体積濃度にするると  $10^{18} \text{cm}^{-3}$  代程度）で可能である
- ・ 分極ドーピングを有効利用するには格子緩和が起きない組成領域の選択かつ不純物ドーピングとの併用が望まれる
- ・ 分極正電荷・負電荷の両方を制御することで、LED における正孔の導電性が改善できる

## 論文審査の結果の要旨

本論文では、不純物ドーピングによる導電性制御が不可能なワイドギャップ半導体、特に高 AlN モル分率 AlGaIn において、分極ドーピングによる導電性制御を検証し、それによる高効率紫外 LED の実現を目的としている。その結果、組成傾斜高 AlN モル分率 AlGaIn において高正孔濃度 ( $1 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$  相当) を実現し、深紫外 LED の光出力増大を実証した。全 6 章で構成されている。

第 1 章では、序論として深紫外 LED と分極ドーピングの現状と課題について述べ、本論文で行う検討内容について記載されている。第 2 章では、理論的検討、特に格子緩和が与える分極ドーピングへの影響を見積もっている。続く第 3 章から第 6 章が本論文の主要部分である。第 3 章では、分極ドーピングにおける AlN モル分率依存性を初めて明らかにし、ドーピング技術として十分機能することを実証した。第 4 章では高 AlN モル分率 AlGaIn に分極ドーピングを施し、この場合でも正孔が蓄積することを初めて明らかにした、一方で、縦電導に重要な組成傾斜構造に分極ドーピングを施した場合には、予想と異なり n 型伝導を示すことがわかった。組成傾斜層の格子緩和を詳細に調べ、それを考慮した分極生成を理論的に検討した結果、組成傾斜層の下部は格子歪が内在し、予想通り負の分極電荷が生成されるものの、上部では次第に格子緩和することによって逆符号の正の分極電荷が生成されることを明らかにした。この部分に Mg を添加することで組成傾斜層全体を p 型伝導させることに成功し、高正孔濃度を実現した。第 5 章では、この組成傾斜層を利用した深紫外 LED の光出力が増大することを実証した。第 6 章は総括である。

以上のように、本博士論文は学位論文としての条件を備えていると評価できる。従って、学位を授与することを妥当なものと判断する。