OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	光子モード制御によるEu添加GaN赤色発光ダイオードの高輝度化に関する研究
Author(s)	稲葉, 智宏
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/69567
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　　名　（稲葉　智宏）	
論文題名	光子モード制御によるEu添加GaN赤色発光ダイオードの高輝度化に関する研究

論文内容の要旨

現在の可視光発光ダイオード(LED)のうち青・緑色は$In_xGa_{1-x}N$、赤色は$Al_xIn_yGa_{1-x-y}P$が発光層に用いられている。GaN系材料を用いた赤色LEDが実用化されれば、光の3原色を同一基板上に集積可能となり、小型で高精細なμ-ディスプレイが作製できる。$In_xGa_{1-x}N$を用いた赤色LEDは材料物性の観点から高効率化が困難なことから、希土類元素であるEuの4f殻内遷移を用いたEu添加GaN（GaN:Eu）を活性層とした赤色LEDが研究されている。その光出力は年々増大しているが、更なる高輝度化が求められている。本論文では、GaN:Eu赤色LEDの高輝度化のために、発光強度の律速過程がEuの発光遷移確率であることを定量的に特定し、微小共振器を用いて発光遷移確率増大に伴った発光強度増大に関する研究を行った。

本論文は、以下の全7章から構成されている。

第1章では、序論として研究の背景や目的について述べた。

第2章では、希土類添加半導体の特徴と光子モード制御の物理について述べた。

第3章では、GaN:Euの発光メカニズムを定量的に解析するために、時間分解フォトルミネッセンス(TR-PL)の初期信号解析を行った。GaN:Euの発光に関する各過程の時定数よりも十分短いパルス光でGaN:Euを励起し、TR-PLの信号を立ち上がり部分からモデルに基づいたレート方程式を用いて解析することで、非輻射過程も含めて各過程の時定数が明らかとなった。その結果、GaN:Euの発光強度はEu発光遷移確率により律速されていることが分かった。また、様々な成長条件のGaN:Euを解析した結果、発光強度増大には、GaN母体における非輻射過程の低減、GaN母体からEuへのエネルギー輸送レート、Euの添加濃度の増大も重要であることが明らかになった。さらに、解析により得られた値と、GaN:Euの発光効率や発光強度との間に普遍的な相関が確認された。

第4章では、微小共振器の作製に必要となる分布ブラッグ反射鏡(DBR)のような超格子構造によりGaN:Euが圧縮応力を印加された際の発光特性を評価した。圧縮応力に依存してPL強度が変化し、その原因はEuの発光遷移確率、GaNからEuへのエネルギー輸送効率、Eu発光サイトの存在比率の変化であるとの結論に至った。

第5章では、第3章で発光強度の律速過程であると特定したEu発光遷移確率を増大するために、垂直微小共振器中にGaN:Euを作製し、その発光強度増大を試みた。まず、上部反射鏡にZrO_2/SiO_2 DBR下部反射鏡が無添加AlInN/GaN DBRにより形成される微小共振器中にGaN:Euを作製したところ、12.9倍のPL強度(積分PL強度は10.6倍)の増強が得られた。そこで、微小共振器に電流注入をするためにn型AlInN/GaN DBRを作製し、電流注入可能な垂直微小共振器構造を作製したところ、微小共振器構造無しのLEDと比較してエレクトロルミネッセンス(EL)強度が10.9倍(積分EL強度は4.6倍)に増大した。

第6章では、GaN:Eu赤色レーザーダイオード実現のために2次元フォトニック結晶構造(PhC)を作製した。まずは、高性能PhCの構造最適化を計算で行ったところ、PhC構造を基板から600 nm離さなければならないことが分かった。そこで、犠牲層として用いるAlInNの厚膜成長を検討した。AlInNはIn組成が18%でGaNと格子整合するために厚膜成長に適している材料であるが、厚膜になると表面にInが析出し、平坦性が損なわれることが報告されている。そこで、平坦性が保たれる膜厚でAlInNの成長を中断しキャップ層を成長後、昇温によりIn析出物を除去し、降温後再度AlInNの成長を再開する温度変調エピタキシー法を提案した。その結果、膜厚100 nm以下のAlInN と遜色のない表面平坦性を有する600 nmの高品質AlInNを得ることに成功した。

第7章では、本研究で得られた知見を総括した。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　稲葉　智宏　）	
論文審査担当者	（職）　氏　名 主査　教授　藤原　康文 副査　教授　掛下　知行 副査　教授　山下　弘巳

論文審査の結果の要旨

超スマート社会の到来に向けて、携帯端末に搭載可能な超小型・高精細マイクロディスプレイが求められている。現在、可視域発光ダイオード(LED)のうち青・緑色は $In_xGa_{1-x}N$/GaN、赤色は $Al_xIn_yGa_{1-x-y}P$/GaAs が発光層に用いられている。GaN 系材料を用いた赤色 LED が作製できれば、光の 3 原色 LED を同一結晶基板上に集積することが可能となり、無機 LED を用いたマイクロディスプレイを実現することができる。InGaN を用いた赤色 LED は材料物性の観点から高効率化が困難なことから、Eu 添加 GaN（GaN:Eu）を発光層とし、Eu^{3+}イオンの 4f 殻内遷移を用いた赤色 LED が精力的に研究されている。本論文では、GaN:Eu 赤色 LED の高輝度化を目的に、Eu 発光強度を律速する過程の理解と微小共振器を用いた発光強度の増強に取り組んでおり、以下の知見を得ている。

（1） Eu 発光メカニズムを定量的に解析するために、時間分解フォトルミネッセンスの信号を、モデルに基づいたレート方程式を用いて立ち上がり部分から解析することにより、非輻射過程も含めた各過程の時定数を明らかにしている。その結果、Eu 発光強度は Eu イオンの輻射再結合確率により律速されていることを見出している。また、様々な成長条件で作製した GaN:Eu を解析し、Eu 発光強度増大には、GaN 母体における非輻射過程の低減、GaN 母体から Eu へのエネルギー輸送効率や Eu 添加濃度の増大も重要であることを明らかにしている。さらに、解析により得られた各過程の時定数と、Eu 発光効率や Eu 発光強度との間に普遍的な相関を見出している。

（2） Eu 発光強度の律速過程であると特定した Eu 輻射再結合確率をフォトン場制御により増大させるために、分布ブラッグ反射鏡(DBR)を有する微小共振器の作製に取り組んでいる。DBR 作製に不可欠な $Al_xGa_{1-x}N$/AlN 超格子構造上に成長した GaN:Eu には格子不整合により２次元的な圧縮応力が印加されるが、その Eu 発光特性を評価している。圧縮応力とともに Eu 発光強度が増大し、それが GaN から Eu へのエネルギー輸送効率と Eu 発光サイトの存在比率の変化に起因することを明らかにしている。

（3） ZrO_2/SiO_2 DBR と格子整合系 $Al_{0.82}In_{0.18}N$/GaN DBR により構成される垂直微小共振器中に GaN:Eu を配置し、その Eu 発光特性を調べている。まず、下部 DBR に無添加 AlInN/GaN を用いた DBR 微小共振器中に GaN:Eu を配置し、12.9 倍の Eu 発光強度の増強を観測している。また、その増強は Eu 輻射再結合確率と光取り出し効率の増大に起因することを明らかにしている。次に、n 型 AlInN/GaN DBR を用いて電流注入可能な垂直微小共振器構造 LED を作製したところ、4.6 倍のエレクトロルミネッセンス強度の増強を確認し、その有用性を明らかにしている。

（4） GaN:Eu 赤色レーザダイオードの実現を目指した 2 次元フォトニック結晶構造(2D-PhC)の作製を目的に、その要素技術の構築に取り組んでいる。犠牲層として用いる $Al_{0.82}In_{0.18}N$ は GaN と格子整合するために厚膜成長に適している材料であるが、厚膜になると表面に In が析出し、平坦性が損なわれる。そこで、平坦性が保たれる膜厚 70 nm 近傍で AlInN の成長を中断し、キャップ層を成長後、昇温により In 析出物を除去し、降温後、再度 AlInN の成長を再開する温度変調エピタキシー法を独自に提案している。その結果、膜厚 100 nm 以下の AlInN と遜色のない表面平坦性を有する膜厚 600 nm の AlInN を実現し、それが犠牲層として機能することを確認している。

以上のように、本論文は次世代マイクロ LED ディスプレイを可能とする GaN:Eu 赤色 LED において、発光メカニズムの定量的解析に留まらず、フォトン場制御による Eu 発光強度の増強を実証しており、材料工学分野に寄与するところが大きい。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。