

Title	Control of rare-earth luminescence by local environment engineering in III-nitrides
Author(s)	高津, 潤一
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/72392
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、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

論文内容の要旨

氏名 (高津 潤一)

論文題名

Control of rare-earth luminescence by local environment engineering in III-nitrides
(窒化物半導体における周辺局所構造エンジニアリングによる希土類発光機能制御)

論文内容の要旨

近年、話題となっているエネルギー消費量削減のためには、エネルギー消費効率の高い機器の使用が望まれる。一例としては、エネルギー消費効率が2%を切る液晶ディスプレイをLEDディスプレイへ替えることが考えられる。LEDディスプレイ実現のためには、ウルトラハイビジョン(UHDTV)への対応や本体の小型高精細化が求められるため、単色性の高い光の三原色のLED光源を1つの基板に集積配置することが求められる。しかしながら、現在のLEDは光の三原色のうち、赤色がGaAs系材料、青色と緑色がGaN系材料を用いて作られるため、1つの基板に集積配置するには赤色をGaN系材料で実現する必要がある。さらに、青色と緑色に関しても現状のものは単色性が高いとはいえない。そこで、本研究ではGaN系半導体への希土類添加に着目した。半導体中の希土類イオンは添加母体に影響され難い4f殻内遷移に起因する鋭い発光スペクトルを示すため、単色性の高い光の三原色を同一基板上で実現することができる。これまでの研究により、希土類イオン周辺局所構造によって、発光特性や発光効率に変化することが明らかになっており、これら周辺局所構造の制御は重要な課題である。本研究では窒化物半導体(GaN, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$)への希土類添加を行い、その周辺局所構造の希土類発光機能への影響を調べるとともに、周辺局所構造制御の可能性について議論した。添加元素として、赤色発光を呈するEuと青色発光を呈するTmに着目した。

本論文は、以下の全8章から構成されている。

【第1章】本研究の背景、目的、及び、論文の構成について述べた。

【第2章】希土類元素の特徴と発光機構について述べた。

【第3章】試料作製に用いる有機金属気相成長法(OMVPE法)の説明と、試料の作製方法、及び、試料の光学的特性評価方法について述べた。光学的特性評価として、フォトルミネッセンス(PL)測定、時間分解PL(TRPL)測定、Combined Excitation-Emission Spectroscopy (CEES)測定を用いた。

【第4章】反応特性の異なる酸素原料ガス(O_2/NO)を利用して、Eu添加GaNにおける酸素共添加の普遍的な効果について議論した。その普遍的効果として、表面モフォロジーの改善、PL強度の増大、酸素に関わるEu周辺局所構造の形成を実現した。また、酸素共添加によるEu周辺局所構造制御の可能性を示した。

【第5章】Eu添加をInGaNに適用することにより、新規なPL発光ピーク(～621.8 nmおよび～622.7 nm)が観測された。また、InGaN中のIn組成増大にともない、これら新規ピークの、他の発光ピークに対する相対強度が増大することが判明した。さらに、この発光ピークはInに関わる新規発光中心であることが示された。この発光がIn組成に依存して大きく相対強度を変化させることから、Eu発光の解析によってIn偏析を検出できる可能性を示した。

【第6章】希土類添加青色LEDの実現をめざし、OMVPE法では世界初となる、Tm添加GaN、及び、Tm添加AlGaNの作製に成功した。作製した試料について、その発光特性を評価したところ、Tm添加AlGaNにおいて Tm^{3+} イオンの内殻遷移に起因する青色発光が465 nm付近と480 nm付近にて観測された。さらに、これら発光の温度消光特性が異なることから、母体からTmへのエネルギー輸送過程が465 nm発光と480 nm発光において、それぞれ異なることが示唆された。このことはTm添加AlGaNにおいてTmの青色発光機能制御の可能性を意味している。

【第7章】Tm添加AlGaNのTm由来の青色発光機能への歪による影響を調べるため、異なるテンプレート上に成長した試料について発光特性を評価した。発光特性評価の過程で、Alの存在が Tm^{3+} イオンからの青色発光に必要な不可欠であることが明らかになった。また、465 nm発光と480 nm発光に対する歪の効果を比較すると、無歪み状態となることで465 nm発光の強度が480 nm発光に比べて、相対的に増大した。このことから、AlGaN:Tmにおける青色発光機能制御に歪を用いることの有効性が示された。また、この発光強度比が変化する要因として、AlGaN中における Tm^{3+} 励起のためのエネルギー準位(欠陥準位やチャージトランスファー準位)から Tm^{3+} イオンへのエネルギー輸送効率が歪によって変化することが示唆された。

【第8章】本研究の総括を行い、希土類添加半導体の今後の展望について述べた。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (高 津 潤 一)			
		(職)	氏 名
論文審査担当者	主査	教授	藤原 康文
	副査	教授	山下 弘巳
	副査	教授	保田 英洋
	副査	准教授	佐藤 和則

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・高精細マイクロ発光ダイオード(μ -LED)ディスプレイに対する社会的要請が高く、その実現に向けた様々な取り組みがなされている。超小型・高精細 μ -LEDディスプレイの実現には 3 原色 LED を同一結晶基板上に高密度に集積することが必須であるが、青色・緑色 LED には $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 、赤色 LED には $\text{Al}_x\text{In}_y\text{Ga}_{1-x-y}\text{P}/\text{GaAs}$ が発光層に用いられているため、その集積化は困難である。そのような背景の中、青色・緑色 LED と同じ GaN 系材料からなる赤色 LED の開発が急務となっている。近年、Eu 添加 GaN を発光層とし、 Eu^{3+} イオンの 4f 殻内遷移を用いた狭帯域赤色 LED が開発され、その光出力は年々、増大している。一方、ウルトラハイビジョン(UHDTV)への対応を考えると、既存の青色・緑色 LED の単色性は必ずしも高いとは言えない。本研究では、GaN 系半導体への Eu 添加と、狭帯域青色発光を呈する Tm 添加に着目している。これまでの研究により、希土類イオン周辺局所構造に依存して発光特性が変化することが知られており、これら周辺局所構造の制御は重要な研究課題である。本研究では、有機金属気相エピタキシャル(OMVPE)法により成長した Eu、あるいは Tm 添加窒化物半導体(GaN 、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 、 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$)において、その周辺局所構造が希土類発光機能へ与える影響を系統的に調べるとともに、周辺局所構造制御の可能性について議論しており、下記の知見を得ている。

- (1) 試料作製時に反応特性の異なる酸素原料ガス(O_2/NO)を用いて、Eu 添加 GaN における酸素共添加の普遍的な効果について議論している。その効果として、表面モフォロジーの改善や Eu 発光強度の増大を見出している。また、酸素共添加による Eu 周辺局所構造制御の可能性を明らかにしている。
- (2) Eu 添加を InGaN に適用することにより、新規な Eu 発光ピーク(~ 621.8 nm および ~ 622.7 nm)の出現を観測している。また、これら新規ピークの相対強度が InGaN 中の In 組成とともに増大することから、その起源として Eu 周辺局所構造に In が配置した発光中心であると結論している。また、その相対強度を解析することにより、InGaN に生じる In 偏析を検出するツールとしての可能性を示している。
- (3) 希土類添加青色 LED の実現をめざし、OMVPE 法では世界初となる、Tm 添加 GaN、および Tm 添加 AlGaN の成長に成功している。Tm 添加 AlGaN において Tm^{3+} イオンの 4f 内殻遷移に起因する狭帯域青色発光を 465 nm 付近と 480 nm 付近にて観測している。さらに、これら発光の温度消光特性を解析することにより、母体から Tm へのエネルギー輸送過程が両者で異なることを明らかにしている。
- (4) Tm 添加 AlGaN の Tm 発光機能への歪による影響を調べるため、異なるテンプレート上に成長した試料について発光特性を評価している。発光特性評価の過程で、Al の存在が Tm^{3+} イオンからの青色発光に必要な不可欠であることを明らかにしている。また、465 nm 発光と 480 nm 発光に対する歪の効果を比較し、無歪み状態において 465 nm 発光の強度が 480 nm 発光に比べて、相対的に増大することを観測している。このことから、Tm 添加 AlGaN における青色発光機能制御に歪を用いることの有効性を示している。

以上のように、本論文は次世代 μ -LEDディスプレイの実現に向けて、特徴的な狭帯域発光を示す希土類添加窒化物半導体に着目し、希土類周辺局所構造が発光特性に及ぼす影響とその制御の可能性について明らかにしており、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。