



Title	Intrinsic and extrinsic control of Eu luminescence in Eu, O-codoped GaN
Author(s)	岩谷, 孟学
Citation	大阪大学, 2024, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/96067
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (岩 谷 孟 学)

論文題名

Intrinsic and extrinsic control of Eu luminescence in Eu,O-codoped GaN
(Eu,O共添加GaNにおけるEu発光のイントリンジック／エキストリンジック制御)

論文内容の要旨

スマート社会の到来により、現実世界と遜色ない、高精細な画像出力が可能なAR/VRグラスの開発が期待されている。実現に向けて、素子サイズが数 μm 程度のLEDを集積した、マイクロLEDディスプレイが有力な技術候補である。GaN系材料を用いた高効率な赤色LEDの開発により、同一基板上への三原色LEDの集積が期待されているものの、半導体のバンド間遷移を利用したGaN系赤色LEDは、発光色の安定性や色純度・発光効率に多くの課題を有している。一方、赤色発光を示すEuを酸素と共にGaNに添加した材料(GaN:Eu,O)は、Euの殻内遷移に由来する発光を示し、高い発光色の安定性と高い色純度を実現できる。しかしながら、GaN:Eu,Oを用いたLEDの現状の発光効率は、青・緑色LEDと比較して低く、高効率化に向けては、大きな励起断面積(発光効率)を有するEu発光中心を選択的に形成するための「イントリンジック制御」が必要である。さらに、GaN:Eu,Oは、安定した発光波長などの優れた発光特性から、次世代のレーザディスプレイ応用に向けたレーザ光源としての活用が期待されている。実現に向けては、Eu発光の輻射場を制御可能な、高い光閉じ込め効果(共振器Q値)を有する光共振器を導入する必要があり、Eu発光を「エキストリンジック制御」するための技術開発が求められている。

本論文は、以下の6章から構成されている。第1章では、研究分野の現状や取り組むべき課題について述べた。

第2章では、Eu発光の高効率化に向けて、高温熱処理の効果を検討した。GaN:Eu,Oの成長後に高温で熱処理を行った結果、原子の拡散が促され、励起断面積が小さな発光中心が、励起断面積が大きな発光中心へと変化することが分かった。これにより、熱処理を施していない試料と比較して、1100 $^{\circ}\text{C}$ で10分間熱処理を施した試料は、最大で5.1倍の発光強度の増大を示した。

第3章では、本研究で新たに認識された、非常に大きな励起断面積を有する発光中心(OMVPE-X)に着目し、その発光特性を評価した。その結果、この発光中心は、励起断面積が大きいうえに温度消光度が小さく、LED応用に最適な発光中心であることが示唆された。さらに、熱処理技術をLED作製に応用した結果、熱処理を施したLEDは、従来のLEDと比較して最大で2.5倍程の大きな発光強度を示した。また、OMVPE-XはLED動作時においても高効率に発光し、電流注入下でも大きな励起断面積を有していることが明らかとなった。

第4章では、GaN:Eu,Oを用いた発光デバイスのより広い応用に向けて、2次元フォトリック結晶共振器による、Eu発光の「エキストリンジック制御」を目指した要素技術開発に取り組んだ。Eu発光の制御には、高い共振器Q値を有する共振器が必要である。しかしながら、GaN系材料では、試料作製時に導入されるフォトリック結晶の構造乱れ(作製誤差)により大きくQ値が減少するという課題があり、可視光域においては、これまでに 5×10^3 程度のQ値しか報告されていない。そこで、実験的な構造乱れを電磁界シミュレーションで再現したうえで、構造乱れが生じた場合でも高いQ値を実現できる共振器構造の検討を行った。その結果、H3型と呼ばれる共振器は、構造乱れに対して高いロバスト性を示し、実験で導入される程度の構造乱れが生じた際でも、高いQ値を実現できることが明らかとなった。

第5章では、実際にフォトリック結晶共振器を作製し、その光学評価を行った。H3共振器を作製してPL測定を行った結果、最大で 7.5×10^3 の実験Q値を観測した。さらに、PL測定結果とシミュレーション結果との比較から、H3共振器のQ値を律速している支配的な要因は、H3共振器の設計Q値であることが示された。さらなる高Q値化に向けて、より高い設計Q値を有する2次元ヘテロ共振器に着目した。適切な共振器構造を設計したうえで、実際に試料を作製してPL測定を行った結果、2次元ヘテロ共振器は 1.1×10^4 と非常に高い実験Q値を示した。これは、現在報告されているGaN系微小共振器の中で、可視光域では世界最高値である。これらの結果より、GaN系材料を用いた2次元フォトリック結晶共振器の高Q値化においては、構造乱れを考慮した共振器設計が必要不可欠であることが示唆された。

第6章では、本論文の総括を行い、GaN:Eu,Oを用いた発光デバイスの実用化に向けて、今後取り組むべき研究方針について述べた。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (岩谷 孟学)			
論文審査担当者	(職)		氏 名
	主 査	教 授	藤原 康文
	副 査	教 授	中谷 亮一
	副 査	教 授	山下 弘巳
	副 査	准教授	舘林 潤

論文審査の結果の要旨

スマート社会の到来により、現実世界と遜色ない、高精細な画像出力が可能な拡張現実／仮想現実(AR/VR)グラスの開発が期待されている。実現に向けて、素子サイズが数 μm 程度の発光ダイオード(LED)を集積したマイクロ LED ディスプレイが有力な技術候補である。窒化ガリウム(GaN)系材料を用いた高効率な赤色 LED の開発により、同一基板上への三原色 LED の集積が期待されているものの、バンド間遷移を利用した GaN 系赤色 LED は発光色の安定性や色純度・発光効率に多くの課題を有している。一方、赤色発光を示すユーロピウム(Eu)を酸素(O)と共に GaN に添加した材料(GaN:Eu,O)は Eu^{3+} イオンの殻内遷移に由来する発光を示し、発光色の高い安定性と高い色純度を実現できる。しかしながら、GaN:Eu,O を用いた現状の LED の発光効率は、青・緑色 LED と比較して低く、さらなる高効率化が求められている。その実現には、大きな励起断面積(発光効率)を有する Eu 発光中心を選択的に形成するための「イントリンジック制御」が重要である。さらに、GaN:Eu,O は安定した発光波長などの優れた発光特性から、次世代のレーザディスプレイ応用に向けたレーザ光源としての活用が期待されている。その実現に向けて、Eu 発光の輻射場を制御可能な高い光閉じ込め効果(共振器 Q 値)を有する光共振器を導入する必要があり、Eu 発光を「エクストリンジック制御」するための技術開発が求められている。本研究では、GaN:Eu,O 赤色 LED の高効率化とレーザ光源への展開を念頭に、Eu 発光への「イントリンジック制御」と「エクストリンジック制御」の有用性を明らかにするとともに、内包する物理についても議論しており、下記の知見を得ている。

- (1) Eu 発光の高効率化を目指した「イントリンジック制御」として、高温熱処理の効果を検討している。GaN:Eu,O の成長後に高温で熱処理を施した結果、発光効率の低い発光中心が発光効率の高い発光中心へ変化することを見出している。これにより、1100℃で 10 分間熱処理を施した試料において、最大で 5.1 倍の発光強度の増大を実現している。
- (2) 本研究で新たに見出した、非常に高い発光効率を示す発光中心(OMVPE-X)に着目し、その発光特性を評価している。その結果、この発光中心は、発光効率が高い上に温度消光度が小さく、LED 応用に最適な発光中心であることを見出している。さらに、熱処理技術を LED 作製に応用した結果、最大で 2.5 倍の大きな発光増強を実証している。また、OMVPE-X は LED 動作時においても高効率に発光し、電流注入下でも大きな励起効率を有していることを明らかにしている。
- (3) レーザ光源への展開を目指した「エクストリンジック制御」として、2 次元フォトリソニック結晶共振器を用いた要素技術の開発に取り組んでいる。Eu 発光の制御には高い共振器 Q 値を有する共振器が必要である。しかしながら、GaN 系材料では、試料作製時に導入されるフォトリソニック結晶の構造乱れ(作製誤差)により大きく Q 値が減少するという課題があり、可視光域においては、これまでに 5×10^3 程度の Q 値しか報告されていない。そこで、実験的な構造乱れを電磁界シミュレーションで再現した上で、構造乱れが生じた場合でも高い Q 値を実現できる共振器構造の検討を行っている。その結果、H3 型と呼ばれる共振器が構造乱れに対して高いロバスト性を示し、実験で導入される構造乱れが生じた際でも、高い Q 値を実現できることを明らかにしている。
- (4) 実際に H3 型フォトリソニック結晶共振器を作製し、その光学特性を評価している。その結果、最大で 7.5×10^3 の実験 Q 値を観測している。さらに、シミュレーション結果との比較から、H3 型共振器の Q 値を律速している支配的な要因は設計 Q 値であることを明らかにしている。更なる高 Q 値化に向けて、より高い設計 Q 値を有する 2 次元ヘテロ共振器を設計した上で試料を作製し、特性を評価している。その結果、2 次元ヘテロ共振器は 1.1×10^4 と、現在報告されている GaN 系微小共振器の中で可視光域では世界最高値である高い実験 Q 値を示すことを実証している。これらの結果より、GaN 系材料を用いた 2 次元フォトリソニック結晶共振器の高 Q 値化においては、構造乱れを考慮した共振器設計が重要であることを明らかにしている。

以上のように、本論文は、従来の LED とは全く異なる原理で動作する GaN:Eu,O 赤色 LED の高輝度化とレーザ光源への展開に向けて、Eu 発光への「イントリンジック制御」と「エクストリンジック制御」に着目し、実験とシミュレーションの両面から、それらの制御が究極的な Eu 発光機能の抽出に極めて重要であることを明らかにしており、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。