

審査の結果の要旨

氏名 孫 政佑

本論文は、低温成長技術を用いて非晶質基板上に成長した窒化物半導体薄膜の構造制御と発光素子への応用について述べたものである。

窒化物半導体は、0.65 から 6.0 eV のバンドギャップをカバーする直接遷移型半導体であり、幅広い波長帯において高効率発光が可能な発光素子材料として期待されている。従来技術では、熱的・化学的安定性の観点から *c* 面サファイア基板上への結晶成長が行われてきたが、サファイアには高コスト、小面積、脆いといった問題があり、窒化物半導体系発光素子の応用は極めて狭い範囲に限られていた。一方、ガラスなどの基板上に高品質Ⅲ族窒化物薄膜の成長を実現できれば、安価で大面積な発光素子の作製が可能になると期待できる。しかしながら、ガラスは非晶質材料であり、また、軟化温度が低いため、従来の有機金属気相成長法による窒化物半導体の結晶成長は困難であった。

本論文ではこれらの問題に対して、パルススパッタ法(PSD法)による低温成長技術の利用と、高結晶配向性グラフェンをバッファ層として導入するアプローチを行い、非晶質基板上に成長した窒化物半導体薄膜の構造制御を行うとともに、窒化物半導体発光素子作製の実現可能性を論じている。本論文は以下の7章から構成されている。

第1章では、GaN系窒化物半導体の基本物性、及びヘテロエピタキシャル成長の現状について述べた後に、非晶質基板上へのGaN系LED作製に向けた課題とその解決策について論じている。また、これらの背景を踏まえた上で、本研究の目的が述べられている。

第2章では、PSD法による非晶質 SiO₂ 上への GaN 薄膜成長とその構造特性評価について述べられている。具体的には、高結晶配向性多層グラフェン層を導入した効果と、AlN 中間層導入の効果が明らかにされている。非晶質 SiO₂ 上に転写された多層グラフェンをバッファ層として用い、非晶質 SiO₂ 上への窒化物半導体薄膜の成長に取り組んだところ、グラフェン無しの場合では多結晶 GaN 薄膜が成長したのに対し、グラフェンを用いた場合では GaN 薄膜の結晶性や表面平坦性が劇的に改善されることが明らかになった。これは、グラフェン上に GaN 薄膜がエピタキシャル成長したことに由来している。また、GaN の最安定構造はウルツ鉱型構造であるが、グラフェン上に GaN 薄膜を直接成長した場合には GaN とグラフェンの界面で生じる界面反応に起因して、準安定構造の閃亜鉛型相が混入する。この界面反応を抑制するために AlN 中間層を導入したところ、ウルツ鉱型 GaN の相純度がほぼ 100%にまで高められ、高い相純度の GaN 薄膜を得ることが可能になった。さらに、グラフェン上に成長した GaN 薄膜の極性を制御するためのプロセス開発に取り組んだ。ウルツ鉱型構造では、*c* 軸方向 (0001) に反転対称性を持たないことから (000 $\bar{1}$) 面 (N 極性) と

(0001) 面(Ga 極性)が存在する。極性の混在による反転境界の形成は素子特性の劣化を引き起こすため、素子応用のためには GaN 薄膜の極性制御プロセスの開発が不可欠である。AlN 中間層の表面酸化の有無によって極性制御を試みたところ、表面酸化層が無い場合は N 極性、表面酸化層が有る場合は Ga 極性となることが見出された。このように、非晶質 SiO₂ 上への GaN 薄膜成長において、高結晶配向性グラフェンバッファ層と AlN 中間層を用いることによって、結晶性の改善、相純度の向上、極性制御を行うことが可能であることが明らかになった。

第 3 章では、グラフェン上に成長した窒化物薄膜の歪み評価について述べられている。異種材料上への薄膜成長では、格子不整や熱膨張係数差に起因した歪みが薄膜中に蓄積することが知られている。このような歪みは、薄膜の構造特性に大きな影響を与えるため、その場観察あるいは成長後の構造評価によって解析することが高品質薄膜を成長するために不可欠である。そこで、本研究では PSD 法による薄膜成長中に試料の曲率測定を行い、薄膜中の歪みをその場観察する手法を構築した。この手法を用いてグラフェン上への窒化物薄膜成長における歪みを評価したところ、成長中に蓄積する歪みは従来のサファイア基板上の場合に比べて著しく小さいことが明らかになった。また、試料作製後に行った X 線による構造解析からも同様の結果が得られた。

第4章では、多層グラフェンをバッファ層に用いた非晶質 SiO₂ 上への窒化物系 LED の試作について述べられている。In 組成 21% の InGa_N 井戸層と GaN バリア層からなる量子井戸構造を作製したところ、そのヘテロ界面は急峻であり、また光励起による発光特性評価を行ったところ、単結晶サファイア基板上の場合と比べても遜色のない発光を示すことが分かった。さらに、p 型 GaN、量子井戸構造、n 型 GaN を積層し、電極を形成して電流注入を行ったところ、正常な LED 動作が確認され、明瞭な電流注入発光が観測された。量子井戸構造内の InGa_N 井戸層の In 組成を変えることによって、赤・緑・青の 3 原色 LED の作製にも成功している。

第 5 章では本論文のまとめと今後の展望について述べている。

以上のように、本論文は、PSD 法による低温結晶成長技術と高結晶配向性の多層グラフェンを用いて、ガラスなどの非晶質基板上への GaN 系窒化物半導体薄膜の結晶成長を実現し、その高品位化、極性制御などの結晶成長プロセス開発およびメカニズム解明を通して、高効率半導体発光素子材料の開発について述べたものである。最終的に、非晶質基板上への 3 原色 LED の作製に成功しており、本技術がガラスなどの大面積基板上へのフルカラー LED 作製に極めて有望であることを見出している。

本論文で得られた成果は、今後の窒化物半導体の結晶成長および発光素子の新たな発展に大きく寄与するものとして高く評価できる。よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。