

論文の内容の要旨

論文題目 Growth and characterization of AlN based nitrides
by pulsed laser deposition
(パルスレーザー堆積法によるAlN系窒化物半導体の成長と評価)

氏名 上野 耕平

本論文はパルスレーザー堆積法(PLD法)を応用した基板薄膜界面制御によるAlN系窒化物半導体薄膜の高品質化、非極性・半極性面上へ結晶成長プロセス開発・メカニズム解明を通して、高効率紫外半導体発光素子材料の開発について述べたものである。

AlNおよびAlGa_{0.5}N混晶は3.4~6.0 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、かつ高い熱伝導率を有していることから紫外半導体発光素子材料として期待されている。これまでは、熱的・化学的安定性からc面サファイア基板上への結晶成長が行われてきたが、基板と薄膜との結晶構造や格子定数の違いに起因して高密度の結晶欠陥のため素子構造の高効率化は困難であった。またAlNおよび高Al組成AlGa_{0.5}Nでは、c面上に素子構造を作製した場合、素子表面からの光取り出し効率が低下してしまうという本質的な問題があった。本論文はこれらの問題に対して、PLD法による低温成長技術を応用して、サファイアに代わる新しい格子整合基板の利用、非極性・半極性面上への結晶成長という2つのアプローチから紫外半導体発光素子材料の開発について論じている。

本論文は以下の7章から構成されている。

第1章では、AlN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、紫外発光素子の高効率化に向けた課題とその解決策について論じている。以上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、PLD法による窒化サファイア基板上へのAlNホモエピタキシャル成長について論じられている。窒化サファイア基板とは、c面サファイア基板の表面原子数層のみを窒化しAlNを形成した疑似バルク基板であり、この基板を利用することで結晶品質の向上が期待できる。素子構造の作製にはエピタキシャル成長技術が必要不可欠であるが、非常に膜厚が薄いためにAlN成長メカニズムについて不明な点が多かった。本研究では、成長前の基板表面窒化処理により界面構造を制御することで、窒化サファイア基板上へのAlNエピタキシャル成長に取り組んだ。窒化サファイア基板上に前処理を施さずAlNを成長した場合、基板表面の不均一さからAlNはダブルドメイン構造を形成してしまうことが分か

った。一方、成長前に表面窒化処理を施すことでダブルドメインの混入を抑制でき、高品質な AlN 薄膜のエピタキシャル成長を実現した。

第 3 章では、PLD 法による ZnO 基板上への AlN 室温エピタキシャル成長について論じられている。ZnO は AlN と同じ結晶構造をもち格子定数も近いことから、基板材料として利用することで AlN 薄膜の高品質化が期待できる。また近年の水熱合成法の発達により大型のバルク単結晶が得られることから、所望の結晶面を切削・研磨することで、大面積非極性・半極性面基板の利用が可能である。しかしながら、ZnO は高温において化学的に不安定なため、ZnO 基板の利点を活かすためには成長温度に着目した基板薄膜界面の制御が必要である。そこで、III 族原料を高エネルギー状態で供給し成長温度を低減可能な PLD 法により、*c* 面 ZnO(000-1)基板上への AlN 薄膜成長プロセスの開発・成長メカニズムの解明を行うことを目的とした。500°C 以上の成長温度では、ZnO 基板と AlN 薄膜とのヘテロ界面の荒れが顕著に観察され、AlN 薄膜の結晶品質が劣化してしまうことが分かった。一方、成長温度を 300°C 以下に低減することで問題となっていた界面反応を抑制でき、原子レベルで急峻な AlN/ZnO 界面を実現した。また作製した *c* 面 AlN 薄膜の結晶品質は大幅に改善しており、その表面は原子レベルで平坦なステップアンドテラス構造を有していることが明らかになった。またその成長温度は室温にまで低減可能であり、ZnO 基板上への *c* 面 AlN 薄膜の室温エピタキシャル成長に初めて成功した。さらにその成長モードを解析したところ、ZnO 基板上の AlN 薄膜の低温成長は Layer-by-layer の 2 次元成長モードで進行していることが明らかになった。このように、PLD 法による低温成長技術を利用することで、界面構造及び成長モードを制御することで、ZnO 基板の結晶性を引き継いだ高品質な *c* 面 AlN 薄膜のエピタキシャル成長を実現が可能であることが明らかになった。

第 4 章では、第 3 章で実現した ZnO 基板上への AlN 室温エピタキシャル成長技術を応用した非極性・半極性面 ZnO 基板上への AlN 薄膜のエピタキシャル成長について論じている。

従来の *c* 面上に素子構造を作製した場合には、AlN 及び高 Al 組成 AlGa_N の発光は E||*c* に強く偏光しているため、その発光は面内方向に伝播し、*c* 面表面から取り出すことができない。この問題は、非極性・半極性面と呼ばれる結晶面上に素子構造を作製することで回避できる。そこで所望の結晶方位を有する ZnO 基板を利用することで、非極性・半極性面 AlN 薄膜成長プロセスの開発を行い、各結晶面上に作製した AlN 薄膜の構造特性を比較・検討した。PLD 法による低温成長技術による界面制御を行うことで、任意の非極性・半極性面 AlN 薄膜のエピタキシャル成長を実現した。また半極性面上では、格子緩和の際に導入されるミスフィット転位列が小傾角粒界を形成するという現象を発見し、*c* 面の場合とは薄膜中の転位構造が異なることを見出した。さらに各結晶面上に成長した AlN 薄膜の結晶性、表面平坦性を比較・検討したところ、*c* 軸配向性の高い AlN では、半極性面上への結晶成長が有望であることを見出した。

第 5 章では、ZnO 基板表面に周期的ナノ構造を導入することで、半極性面 AlN 薄膜の結晶品質を改善するという新しい手法について述べている。まず R 面 ZnO(1-102)基板に大気

中アニール処理を施すことで、その表面に数 μm にわたって[11-20]方向に伸長し 10^5 cm^{-1} 以上の高密度に規則配列したナノストライプ構造が形成することを見出した。このような基板表面の周期的ナノ構造は、基板薄膜間のミスフィット応力に影響を与えるのではないかという着想に基づき、ナノストライプ ZnO 基板上に AlN 薄膜成長を試みた。作製した R 面 AlN 薄膜の結晶性を X 線ロックアップ測定により評価したところ、結晶の揺らぎを表わす半値幅は 500 arcsec と極めて狭いことが分かった。この値はナノ構造を導入していない基板上に成長した R 面 AlN 薄膜に比べて小さく、ナノストライプ構造にはヘテロ界面におけるミスフィット応力を緩和し、結晶品質を改善する効果があると考えられる。

第 6 章では、半極性面 AlGaIn/AlN ヘテロ構造を作製し、発光層となる AlGaIn 薄膜の偏光特性を評価することで、表面からの光取り出し効率を検討した結果について論じている。

第 4 章、第 5 章の成果に基づき ZnO 基板上に R 面 AlGaIn/AlN(1-102)ヘテロ構造を作製し、その光学特性を偏光フォトルミネセンス測定により評価することで光取り出し効率について検討を行った。発光波長 300 nm 以下に相当する Al 組成 50%以上の AlGaIn では、薄膜表面からの発光は $E\parallel c$ に偏光していることが確認された。このような偏光特性を有している場合、 c 面よりも R 面の方が光取り出し効率が高いことが予想され、R 面 ZnO(1-102)基板上に紫外発光素子構造を作製することで、その特性の向上が期待される。

第 7 章では本論文のまとめと今後の展望について述べる。

以上、本論文は PLD 法による界面制御技術を応用して、格子整合基板を利用した AlN 系窒化物半導体薄膜の高品質化、非極性・半極性面上へ結晶成長プロセス開発・メカニズム解明を通して、高効率紫外半導体発光素子材料の開発について述べたものである。基板材料として窒化サファイアおよび ZnO を利用することで、所望の結晶方位を有する AlN 系窒化物半導体薄膜の高品質化を実現した。各結晶面上に成長した薄膜の構造特性・光学特性を比較・検討したところ、結晶性・光取り出し効率に優れた半極性面 AlN 薄膜上へ素子構造を作製することで、紫外半導体発光素子の高効率化が期待できることを見出した。本論文で得られた知見は、紫外発光素子の高効率化・高出力化に向けて一役を担うものと考えられる。