

論文の内容の要旨

論文題目 ドレスト光子フォノンを用いたpnホモ接合GaP可視発光素子

氏名 金 俊亨

本論文は間接遷移型半導体であるガリウム燐(GaP)にドレスト光子フォノン援用アニール(以後、DPP援用アニール)と呼ばれる加工法を施して発光素子を作製した結果について報告するものである。単に先行研究において提案されたDPP援用アニールをGaPに適用するだけに留まらず、DPP援用アニールのメカニズムを究明し、正しい理論モデルを作り上げることを目標としている。

化合物半導体を用いた発光素子の歴史はおよそ100年に及ぶ。研究の初期には単に不思議な発光現象に過ぎなかったものが、1960年代のGaAs LEDとLDの実現、さらには1980年代後半の窒化物系化合物半導体を用いた発光素子の実現を経て、現在には照明やディスプレイにまで広範囲に適用され、人類にとって最も大事な光源の一つになっている。しかし本論文の第1章において詳述するが、現在光デバイスと呼ばれている素子を扱う理論枠における主役は電子である。光子はあくまで道具として位置付けられ、電子の遷移の際にエネルギー保存のために吸収または放出されるエネルギーの塊として扱われる。現在の発光素子には改善すべき部分はいくつか存在する。その中には結晶成長における 이슈を解決することで得られるはずのグリーンギャップ問題の解決やさらなる高効率化のための挑戦等、現在の理論枠内で解決できるものも存在する。しかし材料の中の電子状態にのみ注目する現理論枠内では解決の難しい問題が存在する。

電子状態を主役として扱う量子力学の指導のもとで、光デバイスとして望ましい材料系を求めて来た。候補となる材料系のほとんどは天然には存在しない未知のもので、さらに合成が難しかったので新たな成長技術が開発されて来た。つまり100年に及ぶ半導体発光素子の歴史は、材料内部の電子状態を求めめるための理論の開発、材料の探索、成長技術の革新の歴史であった。このような科学と技術の協業によってもたらされた革新が現在の発光素子とも言える。しかし今は従来の理論枠を超える質的な変革が要求されている。例として、今の理論において光子の放出は電子の直接遷移によるものであり、発光のスペクトルがシャープである。つまり純度の高い色の光を発する。しかし照明やディスプレイ等の応用の多くは白色を必要とする。そのために用いられる手法の一つが蛍光体の適用である。しかし蛍光体を適用することによって発光素子の効率が急激に下がったり、蛍光体は毒性元素と希土類を含むので環境負荷が増加したりする。つまり化合物半導体発光素子の持つメリットが無くなってしまうのである。詳細については本文を参照されたい。

以上が本研究の背景となっている。そして従来の理論枠を超えて光と材料の相互作用を考えることで、既存のデバイスに質的な変革をもたらすことができると言うの

が本研究のモチベーションとなっている。そして従来の理論枠を超える理論として近年台頭して来たドレスト光子工学に着目した。ドレスト光子(以後DP)とはナノ寸法領域における電子・正孔対と光子との相互作用を記述する場を称し、電子・正孔対と光子とが結合した状態を表す準粒子である。またこのDPは格子の振動と強く相互作用し、マルチモードのコヒーレントフォノンと結合する。このDPとマルチモードコヒーレントフォノンとが結合した状態を表す準粒子概念がドレスト光子フォノン(以後DPP)である。このDPPが生成される条件として、結晶内部において結晶を構成する母体原子より軽い不純物対が互いに隣接している必要がある。さらに不純物対が Γ -X方向に並んでいると、そこに局在するフォノンはGaP中の電子・正孔対の発光再結合に必要な運動量を供給することができる。よって間接遷移型半導体内部においても高い確率で発光再結合が起こる。従来は不純物の巨視的濃度にしか注目していなかったが、不純物間の位置関係に新しい秩序が導入された時に明らかになる現象がDPPを介した発光とも言える。

しかし一般的に不純物はランダムに分布する。ランダムな不純物分布に秩序を与えて、DPP準位を介した発光に適するように加工するプロセスがDPP援用アニールである。DPP援用アニールでは素子のpn接合部にレーザ光を照射しながら電流を注入する。このようなプロセスによって何故不純物分布がDPP準位を介した発光に適した分布に変化して行くのかを究明するのが本論文の目標の一つである。また不純物の分布に新しい構造・秩序を導入することは結晶内部のエントロピーを下げることになるので、DPP援用アニールとは外部から与えるエネルギー(電流注入、レーザ光照射)によって半導体結晶内部のエントロピーを下げて今まで知られていなかった新現象を実現することと定義することもできる。

今まで述べて来たことの多くはすでにSiを用いた先行研究によって実現されたものである。本研究では上記の議論を深めることを目標としている。本研究の目標は次の3つである。一、DPP援用アニールによる発光素子作製プロセスの汎用性を調べるためにSiとは異なる材料であるGaPを用いる。二、DPP援用アニールの条件依存性を調べて最適化条件を導くことで、DPP援用アニールに対する理解を深める。三、まだDPP援用アニールに関して不明な部分が多いので、実験結果をもとにDPP援用アニールを正しく記述する理論モデルを提案する。

本論文は7つの章で構成され、上記の3つの研究目標に的を絞って書かれている。以下に各章の内容を紹介する。

第1章では化合物半導体発光素子と量子論の歴史を概観する。本要旨の冒頭でも述べられたように、主に材料系と成長技術に焦点が置かれていたことを見て行く。そして量子論の歴史と比較することで現在の光デバイスの理論は1927年に一通り体系の整った量子論に根拠していることが分かる。そして電子が議論の主役であり、光子はあくまで道具として使われて来たことを納得できると思う。同時に現在の発光素子の持っている問題点の多くが実はこのような事情に基づくものであることも説明する。第1章の最後の部分では現在の理論枠を超える理論としてドレスト光子工学の台頭を説明し、本研究の意義と目標、そして本論文の構成について説明する。

第2章では基本となる原理をまとめる。まずナノ寸法領域において、電子・正孔対と光子は互いに独立に扱えないことを説明する。そして光子側から両者の相互作用を記述するための準粒子概念、つまりDPの概念を導く。結果的に電子・正孔対と

光子は互いのエネルギーをまとった状態になり、エネルギーの変調を受ける。またこのDPは格子振動と強く相互作用するが、このことからDPPと言う新しい準粒子概念が導かれる。DPPはDPがフォノンをまとった状態を表すが、その結果としてDPのエネルギーと運動量は変調される。特に運動量の変調効果によって間接遷移型半導体内部においても発光が可能となり、エネルギーの変調効果によって材料のバンドギャップエネルギーとは無関係な発光が可能となることを説明して行く。第2章の後半においては実際の3次元結晶内部においてDPP準位を介した発光が生じるための条件を議論し、DPP援用アニールに関して説明する。

第3章ではまずGaPそのものの物性とメリット、そしてドレスト光子工学の側面から見た時のメリットに関して説明する。その後はイオン注入法によるGaP pnホモ接合の形成と素子化プロセスについて具体的に説明する。続いていよいよGaP pnホモ接合ダイオードにDPP援用アニールを施した結果について説明する。そこではDPP援用アニールを施すことによってバンドギャップエネルギーより高いエネルギーを持つ光子を放出するようになったことを説明する。さらに本発光現象はイオン注入時に惹起される表面アモルファス化によるものではないこと、そしてDPP援用アニール時のレーザ光照射の有無による結果を比較することでDPP援用アニールの妥当性を議論する。

第4章ではDPP援用アニール時の最適条件を探索する。まずDPP援用アニール時の注入電流値と照射レーザ光パワーによって作製されたデバイスのELスペクトルが変化することを説明し、最適条件を探索して行く。結果的に注入電流値と照射レーザ光パワーをそれぞれ電子数と光子数に換算した時、両者の比が1に近い時に最適化できることが分かった。これは加工条件の最適化であるだけでなく、DPP援用アニールによる不純物分布の自律的変化は誘導放出によると言うことに対する根拠にもなる。

第5章では2準位2状態モデルを提案しDPP援用アニールを説明する。まずDPP援用アニール時には電子が励起準位に注入され、さらに電子状態に影響を及ぼす外場(直流電場とレーザ光)が存在することに着目することで、室温に近い温度においても不純物分布が変化し得ることを説明する。また材料中の電子が励起準位にあるか基底準位にあるかによって不純物拡散のためのポテンシャル障壁高さが変わることに着目しDPP援用アニールのメカニズムを説明する。また2準位2状態モデルを用いることで第3章と第4章の全ての実験結果が説明できることを見せることで本モデルの妥当性を立証する。

第6章では本研究を進める時に得られた知見をもとに、ドーパント種と濃度がDPPを用いた発光素子に与える影響を調べることで理論をさらに深く理解するために、そして将来的に効率を論ずるための基礎的知見になると展望を述べている。

第7章では本論文のまとめとして、本研究で得られた知見と意義について記している。