

研究種目：特定領域研究

研究期間：2006～2010

課題番号：18069001

研究課題名（和文）

III 族窒化物半導体の点欠陥と発光ダイナミックスの研究

研究課題名（英文）

Study of point defects and light-emitting dynamics in group-III nitride semiconductors

研究代表者

上殿 明良 (Uedono Akira)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・准教授

研究者番号 20213374

研究分野:工学

科研費の分科・細目:応用物理学・工学基礎 薄膜・表面界面物性

キーワード:III 族窒化物半導体, 点欠陥, 発光ダイナミックス

1. 研究計画の概要

本研究の目的は、陽電子消滅と高精度時間分解 PL 測定法等の光学特性評価を組み合わせ、AlGaInN の発光効率を支配する輻射・非輻射再結合寿命を定量化し、非輻射再結合中心である点欠陥(空孔型欠陥や格子間型欠陥)の密度と種類との相関を明らかにすることにある。さらに、第一原理計算を用いて各種欠陥の原子・電子構造や表面・界面のバンド構造等について知見を得て、実験結果を理論的側面からバックアップする。

2. 研究の進捗状況

高分解能陽電子電子消滅ガンマ線ドップラー拡がりスペクトル測定システムを構築した。本装置により、実験で得たドップラー拡がりスペクトルと第一原理計算を用いて得た欠陥中で消滅した陽電子消滅に対応するスペクトルとを比較検討でき、欠陥の同定や密度の定量が可能となった。チタンサファイヤレーザーシステムを用いて AlN のバンド端発光の時間分解 PL 測定を行うため、高出力レーザー励起システム、高繰り返し深 UV 波発生器等からなるシステムを構築した。また、アンモニアソース分子線エピタキシー法・MOVPE 法を用い、種々の条件で成長した AlN 薄膜の陽電子消滅や陰極線蛍光を測定することにより、点欠陥が光学特性に与える影響を定量的に評価した。また、アモナル法によるバルク GaN 結晶、非極性 m 面 GaN, InGaIn 薄膜および LED・LD デバイスの光学的特性を、時間分解 PL 法や空間分解 CL 法等を用いて評価した。

第一原理計算により、InGaIn における窒素空孔の荷電状態は正であることを明らかにした。InN の狭いバンドギャップの起源を解明し、In 系

窒化物においては、第二近接相互作用である In-In 相互作用が重要であることを見出した。当該研究結果により In 系窒化物を考える際に必要な新しい物質観を獲得した。また、Gd ドープ GaN においては、Ga 空孔が巨大磁性発現の原因となることを見出した。

3. 現在までの達成度

当初の計画以上に進展している。

理由:本研究では、陽電子消滅法、光学測定、第一原理計算等により III 族窒化物半導体の点欠陥の物理を研究し、その知見を領域内グループに還元することを目的としていた。このため、立命館大学・名西教授および千葉大学・吉川教授と InN への Mg ドーピングとキャリア制御に関する共同研究をおこなったところ、当初計画では想定できなかった高品質 InN 作製に必須の詳細な情報を提供できることがわかった。さらに、第一原理計算により In 系窒化物についての新しい物質観を確立するとともに、InN の物性を解き明かすことは透明電極で知られる ITO をはじめとする In 系物質群を発展させるための礎となることを示せた。

4. 今後の研究の推進方策

点欠陥の光応答性を研究するため、レーザー照射装置を低速陽電子ビームラインに導入し、励起過程下における点欠陥の振る舞いを研究する。評価試料は、AlN, GaN, InN に加えて混晶の評価を加え、点欠陥形成エネルギーとモル分率の関係を明らかにする。また、領域内各グループとの共同研究を引き続き行うことにより、高品質結晶育成へ貢献する。

5. 代表的な研究成果

[雑誌論文] (計 21 件)

- ① A. Uedono, H. Nakamori, K. Narita, and J. Suzuki, X. Wang, S.-B. Che, Y. Ishitani, A. Yoshikawa and S. Ishibashi, "Vacancy-type defects in Mg-doped InN probed by means of positron annihilation", *J. App. Phys.* **105**, 054507 (1-6) (2009). 査読有
- ② T. Onuma, T. Shibata, K. Kosaka, K. Asai, S. Sumiya, M. Tanaka, T. Sota, A. Uedono and S. F. Chichibu, "Free and bound exciton fine structures in AlN epilayers grown by low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy", *J. App. Phys.* **105**, 023529 (1-7) (2009). 査読有
- ③ Y. Gohda and A. Oshiyama, "Intrinsic ferromagnetism due to cation vacancies in Gd-doped GaN, "First principles simulation", *Phys. Rev. B* **78**, 161201(R) (1-4), (2008). 査読有
- ④ A. Uedono, C. Shaoqiang, S. Jongwon, K. Ito, H. Nakamori, N. Honda, S. Tomita, K. Akimoto, H. Kudo and S. Ishibashi, "Vacancy-type defects in Er-doped GaN studied by a monoenergetic positron beam", *J. App. Phys.* **103**, 104505 (1-5) (2008). 査読有
- ⑤ S. F. Chichibu, A. Uedono, T. Onuma, B. A. Haskell, A. Chakraborty, T. Koyama, P. T. Fini, S. Keller, S. P. Denbaars, J. S. Speck, U. K. Mishra, S. Nakamura, S. Yamaguchi, S. Kamiyama, H. Amano, I. Akasaki, J. Han and T. Sota, "Origin of localized excitations in In-containing three-dimensional bulk (Al,In,Ga)N alloy films probed by time-resolved photoluminescence and monoenergetic positron annihilation Techniques", *Philosophical Magazine* **87**, 2019-2039 (2007). 査読有

[学会発表] (計 64 件)

- ① 合田義弘, 押山淳, 窒化物半導体における陽イオン空孔による磁性, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学 2008 年 9 月 21 日 招待講演.
- ② A. Uedono, S. Ishibashi, T. Ohdaira, R. Suzuki, Point defects in group-III nitride semiconductors studied by positron annihilation, The 2nd International Symposium on Growth of III-Nitrides, Izu, Japan, 2008 年 7 月 6 日 招待講演.
- ③ S. F. Chichibu, T. Onuma, and A. Uedono, "Impacts of point defects on the recombination dynamics and emission efficiency of (Al,Ga)N", The Fourth Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology (CGCT-4), Sendai, Japan,

2008 年 5 月 23 日 基調講演

- ④ S. F. Chichibu, A. Uedono, T. Onuma, B. A. Haskell, A. Chakraborty, T. Koyama, P. T. Fini, S. Keller, S. P. DenBaars, J. S. Speck, U. K. Mishra, S. Nakamura, S. Yamaguchi, S. Kamiyama, H. Amano, I. Akasaki, J. Han, and T. Sota, "Radiative and nonradiative processes in (Al,In,Ga)N alloy films", 14th Semiconducting and Insulating Materials Conference, Fayetteville, Arkansas, USA, 2007 年 5 月 15 日 招待講演.

[図書] (計 1 件)

- ① *Advances in Light Emitting Materials*, edited by B. Monemar and H. Grimmeiss (Trans Tech Publications, Stafa-Zuerich, 2008) ISBN 0-87849-358-1 ISBN-13 978-0-87849-358-6 co-authored S. F. Chichibu, A. Uedono, T. Onuma, S. P. DenBaars, U. K. Mishra, J. S. Speck and S. Nakamura, "Impact of Point Defects on the Luminescence Properties of (Al,Ga)N", *Materials Science Forum* 590, pp.233-248 (2008). pages written 16 / total pages 278.

[産業財産権]

○出願状況(計 2 件)

- ① 名称: 紫外線窒化物半導体発光素子およびその製造方法
発明者: 秩父重英, 尾沼猛儀, 小山享宏, 宗田孝之, 池田大勝
権利者: 東北大学・早稲田大学
番号: 特願 2007-297191
出願年月日: 2007.11.15
国内外の別: 国内

[その他]

- ① 2008 年度 応用物理学会論文賞「JJAP 論文賞」, 論文名: K. Okamoto, H. Ohta, S. F. Chichibu, J. Ichihara, and H. Takasu, "Continuous-Wave Operation of m-Plane InGaN Multiple Quantum Well Laser Diodes", *Jpn. J. Appl. Phys.* **46**, 2007, L187-L189
- ② 第 7 回 (2008 年) ドコモ・モバイル・サイエンス賞 基礎科学部門優秀賞 「非視認通信および表示・照明用 III 族窒化物半導体の物性研究」