報告番号	甲　第　14235　号

主　論　文　の　要　旨

論文題目　AlGaN ホモ接合トンネルジャンクション深紫外線発光素子に関する研究 (Study on AlGaN homojunction tunnel junction deep UV light emitting diode)

氏　　名　永田　賢吾

論　文　内　容　の　要　旨

2022 年，現在，持続可能な開発目標（Sustainable Development Goals: SDGs）が掲げられ，2030 年までに環境課題に対して明確なガイドラインやターゲットが設けられている．SDGs のターゲットである GOAL 6“すべての人が安全な水と衛生的な環境を使えるようにする”ために，水，空気の殺菌向けの新しい光源として注目を集めているのが，アルミニウムガリウムナイトライド(Aluminum Gallium Nitride: AlGaN)を用いた深紫外線発光ダイオード(light emitting diode: LED)である．深紫外線 LED は，AlGaN の Al 組成を変えることで，発光波長を 200 nm から 365 nm まで変化させることができる．波長 280 nm 以下の光はウィルスや菌に対して殺菌効率が高いため，浄水器，浄水場などへの適応が期待されている．そのため深紫外線 LED の高効率化が望まれている．しかし，現状の深紫外線 LED の電力変換効率は，10 %以下と低い．p 型コンタクト層に厚膜 p 型 GaN を用いる，発光層から p 型 GaN へ放出された光のすべてがこの GaN で光吸収されるため電力変換効率が低い．本研究では，p 型 GaN を用いないデバイス構造である AlGaN トンネルジャンクション(Tunnel junction: TJ) LED に着目し，電力変換効率の向上を試みた．

AlGaN TJ LED は，n-pn 構造で構成するため，n 型 AlGaN にアノード及びカソードの

電極形成同時にできる. そのため, TJ LED の製造コストは安価にできる. また, n 型 AlGaN と電極とのコンタクト抵抗は，p 型 GaN や p 型 AlGaN と比べると低くできる．加えて，深紫外線領域で高い反射率を有する Al を主とした電極にすることができるため，高い光取り出し効率が期待できる．しかし，本研究以前までに報告されている AlGaN TJ LED の動作電圧は高い．特に，光吸収層を用いない AlGaN ホモ接合 TJ LED の動作電圧は，14－32Ｖ程度と非常に高い．本研究では，深紫外線に対して透明な高 Al 組成 AlGaN ホモ接合 TJ 深紫外線 LED の電力変換効率を向上させる.

AlGaN TJ LED の動作電圧が高い要因の一つに，TJ 抵抗が高いことが挙げられる．Al 組成が高くなるにつれて TJ 部のキャリアのトンネリング確率が低下するため，TJ 抵抗が増大する．その他には，TJ 部の高 Si ドープした n 型 AlGaN 及び高 Mg ドープした p 型 AlGaN が高抵抗化することが挙げられる. TJ 部への不純物ドーピングは，キャリアのトンネリング確率を高くするために，10^{20} cm^{-3} 以上の高濃度ドーピングする必要がある．しかし，ドーパントを高濃度にドーピングすると，p 型 AlGaN 及び n 型 AlGaN は高抵抗化する．n 型 AlGaN は，Ⅲ族空孔と Si の複合欠陥(cation vacancy－Si complexes: V_{III}－nSi, n = 1, 2, or 3)の形成により，キャリアの自己補償を及ぼす．先行研究では Si ドーピング濃度は 2×10^{19} cm^{-3} までに制限され，それ以上の高ドーピングにおいては，n 型 AlGaN は高抵抗化した．AlGaN TJ 部の n^{+}型 AlGaN には，TJ 部のキャリアのトンネリング確率を高くするために，Si を高濃度にドーピングする必要がある．しかし，V_{III}－nSi の複合欠陥を抑制するための n 型 AlGaN の結晶成長条件に関する報告例は少なく, 結晶成長技術が未確立である．また，Si 濃度が 1×10^{19} cm^{-3} では縮退伝導が確認されているが，1×10^{19} cm^{-3} 以上の高 Si ドーピング領域では，V_{III}－nSi の複合欠陥の影響を受け，フェルミ準位が伝導帯から下がる可能性がある．しかし，高 Si ドーピングした n 型 AlGaN において，V_{III}－nSi の複合欠陥が電気特性に与える影響は未解明である.

本研究では，高 Si ドーピング領域での V_{III}－nSi の複合欠陥を抑制するため，高 Al 組成 n 型 AlGaN の電気特性と成長条件の関係を明らかにし，n 型 AlGaN の成長技術を確立する．加えて，高 Si ドーピング領域での n 型 AlGaN の電気特性を詳細に解析し，V_{III}－nSi の複合欠陥が電気特性に与える影響を解明する. 続いて, AlGaN ホモ接合 TJ LED の動作電圧を低減させるため, V_{III}－nSi の複合欠陥の形成を抑制した成長条件を用いて, AlGaN ホモ接合 TJ LED を作製し，電気特性・発光特性を評価した．更に，AlGaN ホモ接合 TJ の伝導メカニズムを解明するため，AlGaN ホモ接合 TJ 部の電位分布を可視化する．AlGaN ホモ接合 TJ LED の動作電圧を更に低減するために，様々な構造の AlGaN TJ LED を試作，評価し，AlGaN ホモ接合 TJ の構造を最適化した.

n 型 AlGaN の電気特性を制御するため, 様々な成長条件で成長した n 型 $Al_{0.62}Ga_{0.38}N$ の電気特性, 光学特性を評価した. 抵抗率については, Si 濃度が 3.2×10^{19} cm^{-3} で 6.6×10^{-3} Ω cm を達成した．キャリア濃度は，Si 濃度が 3.2×10^{19} cm^{-3} まで Si 濃度と線形の関係を示した．Si 濃度が 4×10^{19} cm^{-3} 以上では，V_{III}－nSi の複合欠陥によるキャリア補償を受け，キ

ャリア濃度の急激な低下が起こった．光学特性評価より，V_{III}－nSi の複合欠陥に起因する 2.3-2.4 eV のバンド発光強度は，成長温度 1100 ℃以上，または，V/III 比が 2000 以上の成長条件で顕著に増加した．V/III 比を最適な条件で成長することで V_{III}－nSi の複合欠陥を抑制することができた. 抵抗率の最も低い試料では, V_{III}－nSi の複合欠陥に起因した 2.4 eV と窒素サイトのカーボン(Nitrogen site carbon: C_N)に起因した 3.2 eV の両方の発光ピークが抑制されていた．高 Al 組成 n 型 AlGaN の低抵抗化のためには，成長条件制御し，キャリア補償欠陥の形成を抑制することが重要であることを明らかにした．n 型 $Al_{0.62}Ga_{0.38}N$ の縮退リミット(フェルミ準位が伝導帯と重なりはじめる不純物濃度)は，実効ドナー濃度が 9.5×10^{18} cm^{-3} と算出され，n 型 GaN の約 6 倍高いことがわかった．また，Si の単一占有ドナー状態から伝導帯への活性化エネルギー($E_{d,0}$)は，62 meV と算出された．Si 濃度が 4×10^{19} cm^{-3} 以上である場合では，V_{III}－nSi の複合欠陥の影響を受け，非縮退伝導となることが明らかになった.

次に，n 型 AlGaN の複合欠陥を抑制した成長条件を TJ 部に採用し，AlGaN ホモ接合 TJ LED の動作電圧低減を試みた．p 型 AlGaN の Al 組成を変えた TJ LED や，TJ 部の n 型 AlGaN の成長条件を変更した．AlGaN ホモ接合 TJ LED を作製し，電気特性・発光特性を評価した．AlGaN ホモ接合 TJ LED の動作電圧は，TJ 部の n^+型 AlGaN の C 濃度低減及び高 Si ドーピングすることで低減した．C 濃度が 1.8×10^{18} cm^{-3} の場合， V_{III}－Si の複合欠陥及び C_N の影響により TJ 接合部の n^+型 AlGaN は半絶縁となり，TJ LED の動作電圧は，4 Acm^{-2} 印加時 12-16 V であった．一方，C 濃度が 6.5×10^{17} cm^{-3} の場合，AlGaN TJ LED の動作電圧は DC 63 Acm^{-2} 印加時 10.4 V であった．C 濃度を 6.5×10^{17} cm^{-3} に低減した n 型 AlGaN では，Si 濃度が $1.2\text{-}1.8\times10^{20}$ cm^{-3} の範囲でも n 型伝導を示した.

p 型 AlGaN の Al 組成を 50 %から 60 %に増加すると，AlGaN ホモ接合 TJ LED の動作電圧は DC 63 Acm^{-2} 印加時 10.8 V を示した. 光出力, 外部量子効率, 及び電力変換効率は, DC 63 Acm^{-2} 印加時それぞれ 27.6 mW，1.7 %，及び 0.7 %を示した.

次に，伝導メカニズムを解明するため，$Al_{0.6}Ga_{0.4}N$ ホモ接合 TJ LED の TJ 部を電子線ホログラフィーにより，位相分布を観測し，解析することで電位分布を可視化した．更に，電位分布から電荷密度分布を算出し，バンドシュミレーションを用いて算出した電荷密度分布と比較した．AlGaN TJ の位相は，ドーパントタイプ，ドーパント濃度に対応した分布が得られ，AlGaN ホモ接合 TJ は p-n 接合が形成されていることが明らかになった．空乏層幅は，TJ 部の位相差からおおよそ 10 nm と算出された．電位分布から算出された電荷密度分布より，TJ 付近の n^+型 AlGaN と p^+型 AlGaN の電荷密度分布は，共に 1.1×10^{20} cm^{-3} であった．つまり，TJ 付近では，Mg と Si は，ほとんどイオン化していることが明らかになった．不純物分布は，Mg と Si が TJ の界面より 20 nm から 30 nm 程度拡散している．電位分布から算出された電荷密度分布は，シミュレーションによって Mg と Si の拡散を考慮して計算された電荷密度分布とよく一致した. つまり, Mg と Si の不純物拡散によって, TJ 部の空乏層幅を拡げていることが示唆された.

AlGaN ホモ接合 TJ LED の動作電圧を更に低減するために，AlGaN TJ 構造の最適化検討を行った. AlGaN TJ 層の n^+型 AlGaN と p^+型 AlGaN のそれぞれのドーピング濃度及び膜厚を変更し，AlGaN ホモ接合 TJ LED の電気特性・発光特性を評価した.

n^+型 AlGaN への高 Si ドーピングは，動作電圧を低減のために効果的であった．n^+型 AlGaN の Si 濃度が 2.4×10^{20} cm^{-3} までは，動作電圧が低減した．高 Si ドーピングによって，TJ の空乏層幅が縮小し，TJ LED の動作電圧が減少したと考えられる．しかし，Si 濃度が 3×10^{20} cm^{-3} 以上では，$V_{III}-nSi$ の複合体の影響を強く受け TJ 部の n^+型 AlGaN が高抵抗するため，TJ LED の動作電圧が増加した．n^+型 AlGaN の Si ドーピング濃度において，TJ の空乏層幅の縮小と $V_{III}-nSi$ の複合体の自己補償による抵抗率の増大のトレードオフがあることがわかった.

p^+型 AlGaN の高 Mg ドーピングにおいても，AlGaN ホモ接合 TJ LED の動作電圧を低減のために効果的であった．p^+型 AlGaN の Mg 濃度が 1.5×10^{20} cm^{-3} までは，動作電圧が低減した. 高 Mg ドーピングにより TJ の空乏層幅が狭くなったことで TJ LED の動作電圧が低下したと考えられる．しかし，Mg 濃度が 2×10^{20} cm^{-3} 以上では，V_N^{3+}の影響を強く受け p^+型 AlGaN が高抵抗するため，TJ LED の動作電圧が増加した．p^+型 AlGaN の Mg ドーピング濃度には, TJ の空乏層幅の縮小と V_N^{3+}の自己補償による抵抗率の増大のトレードオフがあることがわかった.

次に，AlGaN TJ 層の総膜厚を変え，TJ LED の電気特性を評価した．AlGaN TJ LED の動作電圧は TJ の総膜厚が約 12 nm まで線形に減少した．AlGaN TJ の薄膜化は動作電圧低減に有効であることがわかった．AlGaN ホモ接合 TJ LED の最も低い動作電圧は，63 Acm^{-2} 印加時に 8.8 V であった. 特に, p 型 AlGaN の抵抗率はおおよそ 5000 Ωcm と高く，p^+型 AlGaN の薄膜化は動作電圧低減に大きく寄与することがわかった．また，TJ の総膜厚が約 12 nm 以下になると動作電圧は急激に増加した．動作電圧が著しく増加した TJ の層膜厚は, バンドシュミレーションによって計算された空乏層幅より薄い. つまり, AlGaN TJ の総膜厚が 12 nm 以下になると空乏層幅が拡がり，その結果，AlGaN TJ LED の動作電圧が増加したと考えられる.

本研究によって，AlGaN ホモ接合 TJ 深紫外線 LED の動作電圧を大幅に低減した．電力変換効率は電流密度 63 Acm^{-2} 印加時で 0.64 %まで向上した．しかし，この電力変換効率は, 水銀ランプと比較すると低い. AlGaN TJ LED の更なる電力変換効率向上のためには，本研究で至らなかった，更なる TJ 抵抗の低減，n 型 AlGaN とのオーミックコンタクト及び高反射を両立した電極形成，光の干渉効果を考慮したデバイス構造設計が必要不可欠である．将来，深紫外線 LED の電力変換効率が 20%を超え，環境問題，社会問題の解決に繋がることを期待する.