

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 中平 篤

本論文は、「立方晶 III 族窒化物半導体の MOVPE 成長とその評価」と題し、有機金属気相エピタキシャル成長 (MOVPE) 法を用いた立方晶 GaN 薄膜および立方晶 AlGaIn 薄膜の成長特性および光学的性質を詳細な実験により明らかにし、さらに高品質の立方晶 GaN/AlGaIn ヘテロ構造結晶において誘導放出を初めて実現したことを述べたものであり、全 6 章から構成されている。

第 1 章は序論であり、本研究の背景、目的と論文の構成について述べている。GaN に代表される III 族窒化物半導体は、青色・紫外域の発光素子用材料として開発が進み、すでに半導体レーザーの実用化に至っているが、それらは六方晶系の結晶構造を有する通常相に限られており、サファイア基板を一般に用いているために、レーザー共振器端面形成プロセスに結晶の劈開を用いることが難しかったこと、これに対して、III 族窒化物半導体は立方晶系の結晶構造も可能であること、さらに GaAs を基板として立方晶に基づくレーザー構造を作製できれば、結晶の劈開を用いた端面形成が可能となり、安価で大量生産可能な III 族窒化物半導体レーザーの実現が期待できることなどの背景を述べた上で、レーザーへの応用が可能な品質の立方晶 III 族窒化物半導体結晶の成長技術を確立することが本研究の目的であることを述べている。

第 2 章では「GaAs 基板上的立方晶 GaN の MOVPE 成長」と題して、有機金属気相エピタキシャル成長 (MOVPE) 法による GaAs (100) 基板上的立方晶 GaN の成長とその最適化について述べている。低温成長 GaN バッファ層上に高温成長 GaN 層を得る二段階成長法が、高温成長層における転位密度の低減および基板結晶の熱分解防止に有効であることを明らかにし、従来の立方晶 GaN の成長温度より格段に高い 950°C で立方晶 GaN の成長を実現した。さらに V 族と III 族の原料供給比が比較的低い条件が立方晶 GaN 結晶の高品質化に重要であることを明らかにした。以上により、六方晶の混入がほとんどみられない立方晶 GaN の結晶成長に成功した。高品質結晶の室温でのバンド端近傍のフォトルミネッセンス発光ピークの半値幅は約 70 meV であり、従来の報告値である約 200 meV に比べてきわめて小さく、大幅な結晶品質の向上が実現している。

第 3 章では「立方晶 GaN のフォトルミネッセンス」と題して、高品質な立方晶 GaN の低温を主とするフォトルミネッセンスに関する詳細な検討結果について述べている。バンド端近傍の発光は 32-800 K の温度範囲で確認され、発光起源は 150 K 以下では束縛励起子、150-500 K では自由励起子、500 K 以上ではバンド間遷移によるものとみなせる。低温で強い発光を示すドナ - アクセプタ対発光は、150 K より高温では自由電子 - アクセプタ発光に遷移している。シリコン添加 GaN では、低温においてドナ - アクセプタ対発光の強度が無添加試料と比較して強く、またピークエネルギーは高エネルギー側にシフトしており、キャリア濃度の高い特徴を示した。また、マグネシウム添加 GaN では、マグネシウムの関与した二つのアクセプタ準位

が形成されることを見出している。さらに、窒素雰囲気中の熱処理によりマグネシウムが活性化されることを、熱処理により自由電子 - アクセプタ発光からドナ - アクセプタペア発光へ遷移することから明らかにした。

第4章では「立方晶 AlGa_xN 混晶の MOVPE 成長」と題して、立方晶 AlGa_xN 混晶の成長条件の検討と結晶の光学的評価結果について述べている。高温成長 GaN 薄膜上に AlGa_xN を成長することにより、六方晶相からの発光がほとんどない立方晶 AlGa_xN の成長にはじめて成功した。Al 濃度が大きくなるにつれて不純物炭素の取り込みが顕著となる課題があったが、分解性の高いトリエチルアルミニウムをアルミニウム原料として用いることで解決している。また、各組成の混晶の室温フォトルミネッセンス評価より、バンドギャップエネルギーとアルミニウム濃度 x との関係が、 $x < 0.5$ の範囲でほぼ $3.20 + 1.85x$ [eV] となることを見出した。アルミニウム濃度が 0.5 を越えると急激に発光効率が悪化するが、この原因としてバンド構造が直接遷移型から間接遷移型へ変化することによる可能性を指摘している。

第5章では「光励起による誘導放出光」と題して、レーザ構造に近い素子を作製し、レーザ応用へ向けた評価を行った結果について述べている。AlGa_xN 混晶層を用いることにより平坦性の良いヘテロ構造結晶の成長を実現した。また、劈開端面形成プロセスによりシングルヘテロ構造レーザ素子を作製し、窒素レーザ励起により、立方晶 III 族窒化物半導体として初めての誘導放出光の観測に成功した。さらに、ダブルヘテロ構造の素子において誘導放出光閾値の低下を確認している。以上により、本研究で得た立方晶 III 族窒化物半導体結晶がレーザ応用可能な品質であることを実証している。

第6章は、本論文の総括であり、本研究で明らかにされた高品質立方晶 GaN および AlGa_xN の結晶成長および発光特性に関する知見、さらに実証された光励起誘導放出に関する成果が要約されるとともに、立方晶 III 族窒化物半導体のレーザダイオードへの応用可能性への展望が示されている。

以上をまとめると、本論文では立方晶 GaN および AlGa_xN の有機金属気相成長における高品質結晶成長の要件および発光特性が詳細にわたり明らかにされており、またレーザダイオードへの応用の可能性が実証的に示されている。それにより窒化物半導体の新しい応用を切り開く物理的・技術的課題を解決している点で、物理工学への寄与は非常に大きい。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。