

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名：サノーピン・サクンタム (Sanorpin, Sakuntam)

本論文は「Structural and Optical Properties of III-III-V-N Type Alloy Films and Their Quantum Wells (和訳 III-III-V-N 型混晶薄膜および量子井戸の構造的および光学的性質)」と題し、有機金属気相成長(MOVPE)法を用いて作製した低N濃度域InGaAsN混晶薄膜および量子井戸構造に関して、構造的および光学的性質を、混晶薄膜作製条件および混晶組成との関係において、詳細な実験により明らかにしたことを述べたものである。InGaAsNはGaAsないしAlGaAsとのヘテロ構造において伝導帯の高い電子障壁を実現できる材料として、通信用波長域において従来のInGaAsP系に代わる高温動作特性に優れたレーザーダイオードや、太陽電池、さらには超高速電子デバイスなどへの応用上の価値が示唆されている。その一方で、Nとその他のV族元素を含む系特有の非混和性にかかわる結晶成長上の困難、さらにはN元素の混入に伴う欠陥や発光および非発光中心の挙動に関してほとんど明らかにされていないのが現状であった。本研究は、結晶成長条件を広く変化させて、現状において最も広い組成範囲でInGaAsN混晶薄膜を実現し、欠陥、組成分布、発光および非発光中心の素性と挙動を初めて系統的に明らかにしたことが中心的な成果となっている。これらの成果は、InGaAsN混晶材料が現状においても、一定組成範囲で十分にデバイス応用可能な結晶品質を有していることを示すと同時に、適用性の限界の存在をも示している。これらの知見はさらに他のIII-III-V-N型混晶薄膜の性質や応用の可能性にも多くの示唆を与えるものとなっている。本文は英文で記され、全10章から構成されている。

第1章は序論であり、本研究の目的と論文の構成について述べている。III-III-V-N型混晶半導体に属するInGaAsN混晶は、高温動作特性に優れたレーザーダイオードなどへの応用上の価値が示唆されている一方で、Nの混入に伴う構造的および光学的性質に特有の問題を含んでいることを述べた上で、これらの物質に特徴的な性質を、結晶作製条件および混晶組成との関係において、系統的に明らかにすることが学術上の意義を有し、かつ本研究の目的であることを述べている。

第2章は、「A survey of III-III-V-N type alloy semiconductors (III-III-V-N型混晶半導体の概要)」と題し、III-III-V-N型混晶半導体に関する従来の研究について概観し、本研究の動機となった背景について詳述している。III-(III)-V-N型3元および4元混晶の特徴的な性質として知られている巨大バンドギャップボウイングなどについて主に実験的観点から概括した。

第3章は、「MOVPE growth and structural characterization of InGaAsN alloys (InGaAsN混晶のMOVPE成長と構造的評価)」と題し、本研究におけるInGaAsN混晶薄膜試料の作製方法および成長特性と、構造的評価について述べている。成長温度530°Cないし600°CにおけるGaAs基板上のMOVPE成長において、低In濃度域(11.6%および13.5%)では、N添加は混晶層のIn濃度に影響しないが、高In濃度域(30%近傍)ではその影響が顕著となる。低In濃度域ではNを最大濃度3%近傍まで添加すると、混晶層の歪が著しく低減し、成長表面モフォロジーが改善する。またN濃度の増加とともにミスフィット転位が減少する。一方、高In濃度域では、大きい格子不整合に起因する、高密度の貫通転位が観察される。さらに、N濃度の増加に伴い、N原子近傍にInが選択的に凝集する傾向が明らかである。

第4章は、「Photoreflectance spectroscopy of dilute nitride InGaAsN alloy layers (低N濃度InGaAsN混晶層のフォトリフレクタンス分光)」と題し、InGaAsN混晶層のフォトリフレクタンス(PR)評価の結果を述べている。バンドギャップに相当する信号が、室温において0.91~1.26eVに得られた。バンドギャップの温度依存性は、N添加によって顕著に減少する。信号のスペクトル幅は、N濃度の増加とともに、組成の不均一性の増大に起因して増大する。

第5章は、「Photoluminescence properties of MOVPE grown dilute nitride InGaAsN alloy layers (MOVPE成長低N濃度InGaAsN混晶層のフォトルミネッセンス特性)」と題し、InGaAsN混晶層のフォトルミネッセンス(PL)評価について述べている。低In濃度域では、低温(<100K)において、バンドギャップ近傍の2つの発光ピークと、それより低エネルギーの強く局在した準位に

よる発光ピークが特徴的であるが、高温(>100K)では、バンドギャップに相当する単一の発光ピークに収束する。これらの振る舞いは、キャリアないし励起子の局在化により説明される。自由励起子の解離エネルギーは 18~36meV であり、N 濃度の増加とともに増大する。一方、高 In 濃度でかつ高N濃度(>2.2%)域では、PL 発光は広スペクトル幅のものとなるが、これは組成ゆらぎが顕著となって生じる In ないし N 過多の擬似的量子ドット領域からの発光と考えられる。

第 6 章は、「Rapid thermal annealing of InGaAsN grown by MOVPE and its effects on optical properties (MOVPE 成長 InGaAsN 層の急速熱処理とその光学的性質に対する効果)」と題し、急速熱処理 (RTA) が、混晶層の光学的性質に及ぼす効果を述べている。RTA によって InGaAsN 混晶層の発光特性は劇的に改善する。低 In 濃度では、RTA により発光ピークエネルギーは高エネルギー側へシフトする。このシフトはバンド端発光に付随したものであり、RTA によって組成分布の均一化が促進された結果である。一方、高 In 濃度の場合には、RTA により発光ピークは低エネルギー側へシフトする。これは、擬似的量子ドット領域のサイズの増大によるものと考えられる。

第 7 章は、「Micro-structural and compositional analysis of InGaAsN alloy layers (InGaAsN 混晶層の微構造および組成評価)」と題し、混晶層の組成分布の直接観察について述べている。低 In 濃度域では均一性の優れた混晶層が得られているのに対し、高 In 濃度域では In および Ga の分布に 10nm スケールでの組成不均一が存在することがエネルギー分散型 X 線分光(EDX)により明らかにされた。RTA での結晶品質の改善は、組成の均一性の向上および欠陥の低減に対応している。

第 8 章は、「Optical investigations of InGaAsN quantum wells (InGaAsN 量子井戸の光学的評価)」と題し、InGaAsN/GaAs ヘテロ構造に基づく量子井戸構造の PR および PL 評価結果について述べている。量子閉じ込め効果により発光強度はバルク層に比し顕著な増大を示した。低温の PL スペクトルには、束縛励起子および組成ゆらぎに起因する局在準位の関与した発光が確認された。RTA の効果は顕著であり、欠陥起因の非発光中心の減少により発光強度が増大するとともに、組成ゆらぎに起因する局在準位関与の発光は減少した。

第 9 章は、「MOVPE growth and characterization of high-N content InGaPN alloy films lattice-matched to GaP (GaP に格子整合する InGaPN 混晶層の MOVPE 成長と評価)」と題する付加的章であり、GaP 基板上の InGaPN 混晶層(In 濃度 17.6%、N 濃度 0~8.7%)の MOVPE 成長と構造および光学的評価を述べている。N 濃度 8.7%まで低欠陥であり、III-III-V-N 型の混晶として最大の N 濃度が実現している。N 濃度の増加とともに、バンドギャップは低エネルギー側へシフトする。N 濃度 3.4%~8.7%で、GaP 基板に対しほぼコヒーレントに歪んだ混晶層が得られた。

第 10 章は本論文の結論を総括的に述べており、InGaAsN 混晶薄膜の構造的性質および光学的性質が N 起因の局在準位および組成不均一に大きく支配されているなどの知見が要約されているとともに、これらの成果が III-III-V-N 型混晶半導体一般の物性を理解する上でも基本的に有用であることを述べている。

以上をまとめると、本論文では、有機金属気相成長法を用いて作製した InGaAsN 混晶薄膜および量子井戸構造に関して、構造的性質および光学的性質が詳細にわたり明らかにされている。それによりこれらの物質に代表される III-III-V-N 型混晶薄膜の光デバイス材料としての応用を切り拓く上での主要な物理的・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。