

内98-41

早稲田大学大学院理工学研究科

# 博 士 論 文 概 要

## 論 文 題 目

GaN 及び InGaN の光学的特性  
に関する研究

申 請 者

出口 隆弘

Takahiro Deguchi

電気工学 光物性工学

1998年12月  
(西暦)

半導体発光素子はその高い発光効率、速い応答時間、そして長寿命であることから究極の光源であると考えられている。Ⅲ-V族窒化物系半導体はそのⅢ族組成を変えることによって近赤外から紫外域まで幅広い範囲の波長を選択的に発光させることが可能であることから早い時期からさまざまな波長の光源として、もつとも期待されてきた。現在では、これまでの半導体発光ダイオードを高輝度、安定性、長寿命の点で凌駕する琥珀色、緑色、青色、またこれまでなかった白色発光ダイオードが市販され、次世代 DVD の信号読み取り装置用青色レーザーダイオードも実験段階では実現し、製品化も間近い状況である。

ところが、このような製造技術の進歩とは対照的にⅢ族窒化物が難合成化合物であり、多くの研究機関でつい最近まで高品質の結晶が作成できなかったため、その物質固有の性質についての研究は未だ十分にはなされていない。

本論文では実用化されたデバイスと同じ品質を持つ有機金属気相成長法により作成した GaN、InGaN の光学的特性をそれらの単膜、単一及び多重量子井戸構造をもつ試料を用いて調べた結果について報告する。

本論文は以下の 7 章で構成される。

第 1 章は序論であり、本研究の目的、研究の背景、従来の研究について概説している。

第 2 章では GaN の構造的特性及び振動特性を X 線回折、ラマン散乱、そしてブリルアン散乱を基に論じている。本章と第 3 章ではサファイア基板上に低温バッファ層を介して直接成長した貫通転位密度  $10^{10}\text{cm}^{-2}$  程度の GaN 薄膜と、横方向エピタキシャル技術を用いて成長した低貫通転位密度 GaN 基板の 2 種類の試料を用い、両者の比較を行った。高分解能 X 線回折装置を用いボンド法で測定した格子定数は GaN 薄膜では、バルクの格子定数として報告されている値と比較して a 軸が縮み c 軸が伸びていた。このことから GaN 薄膜中に 2 軸性歪が残っていることが確認された。一方 GaN 基板では主回折ピークの両脇に肩が現れていることを見出した。その原因が横方向に成長した GaN が互いにぶつかるときに両者の結晶軸が基板の c 軸からわずかに傾いているためであることをつきとめた。平均格子定数は報告されているバルクの値とほぼ同じであることから残留歪はほとんど存在しないことを見出した。ラマン散乱を行った結果 GaN 基板では GaN 薄膜と比較して低い振動数をもつ  $E_2$  モード以外のフォノンの振動が  $2\text{--}3\text{cm}^{-1}$  低振動数側にシフトし、光学モードの振動数は残留歪の大きさが大きいほど高くなることを考慮すると、前者の残留歪は後者よりも小さくなっていることがわかった。ブリルアン散乱の結果から弾性定数を求めた。c 軸方向の歪量と ab 面の歪量を結びつけるパラメータ  $2C_{13}/C_{33}$  は GaN 基板では 0.416 となり、これは従来報告されている歪が緩和したと考えられる GaN 薄膜の場合の値 0.38 とかなり近い値が得られた。これらのことから GaN 基板においては残留歪が非常に小さくなっているものと結論できる。

第 3 章では GaN の光学的特性を吸収係数、弱励起フォトルミネッセンス(PL)スペクトル、反射スペクトルで調べた結果を用いて論じている。厚さ  $0.83\mu\text{m}$  の GaN 薄膜の吸収係数を 10K から室温まで測定し、室温で自由励起子吸収が明瞭に観測されることを見出すとともに、さらに基礎吸収端において吸収係数は  $1\times 10^5\text{cm}^{-1}$  となることを示した。次に弱励起 PL 測定

を同じ温度範囲で測定し室温でも自由励起子発光が観測されることを見出した。10K においては不純物に束縛された励起子発光( $I_2$  ライン)、A 及び B 自由励起子発光、さらには A 自由励起子の第一励起状態からの発光も観測され、その結果から A 自由励起子の束縛エネルギーは  $26\text{meV}$  と見積もることができた。この値は室温の熱エネルギーと同等であり、さらに励起子と強く相互作用し解離に導く LO フォノンのエネルギーが GaN 中で約  $90\text{meV}$  と室温でほとんど励起されていないことから、室温でも GaN 中では励起子が存在していると考えられる。これらの励起子構造は反射スペクトルにも観測された。GaN 基板での反射率測定では A、B、C 自由励起子及び A、B 自由励起子の第一励起状態を反映した構造を明瞭に分離することができた。また弱励起 PL 測定では  $I_2$  ラインとは完全に分離された励起子ポラリトン発光を見出した。GaN 薄膜と GaN 基板を  $I_2$  ラインエネルギー位置、強度、半値幅で比較すると、後者ではエネルギー位置が低エネルギー側へシフトし、その強度は自由励起子発光強度と比べ小さくなり、半値幅は前者の  $4.8\text{meV}$  に比べ  $0.8\text{meV}$  まで狭くなっていた。これらのことから基板のほうは格子歪が緩和され、不純物も少なく、結晶性もかなり向上していることがわかった。さらに GaN 薄膜に Si、Mg を各々添加した試料の弱励起 PL を測定し、第 4 章以下のスペクトル解析の指針を示した。

第 4 章では GaN/AlGaIn 単一量子井戸構造の光学的性質について論じている。サファイア基板上に  $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}$  低温バッファ層を介し Si 添加  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$  厚膜を成長後 Si 添加  $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$  バリア、無添加 GaN(5nm)井戸、Mg 添加  $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$  バリア、Mg 添加 GaN でキャップしたものと、バッファ層と厚膜部分を GaN、Si 添加 GaN に変えた 2 種類の試料を用意し、弱励起 PL と透過スペクトルを測定した。ここで不純物添加量は二つの試料でほぼ等しい。また後者では井戸に少量の In を添加してある。前者の試料では GaN 薄膜の吸収端より  $130\text{meV}$  低エネルギー側に室温でも励起子吸収が観測されたがこの位置に発光は  $T=10\text{K}$  でも観測されなかった。後者の試料では吸収は下地の GaN に対応するエネルギーから始まり、 $T=10\text{K}$  で  $3.519\text{eV}$  に弱い発光が見られた。この結果はウルツ鉱構造 GaN は自発分極をもちかつピエゾ活性であることを考慮すると、残留歪、In 添加効果により前者の試料では内部電場による量子閉じ込めシュタルク効果が後者に比べて顕著に現れていると解釈できる。一方 YAG レーザーによる強励起 PL を行くと、前者の試料では弱励起の場合より高エネルギー側にピークが観測された。これは強励起によってキャリアが大量に存在するため内部電場が遮蔽され高エネルギー側にシフトしたと考えられる。

第 5 章では InGaIn/GaN 単一量子井戸構造の光学的特性について論じている。サファイア基板上に低温 GaN バッファ層を介して GaN 薄膜を成長後 In 組成を 0.05、0.2、0.5 と変えた厚さ 3nm の InGaIn 井戸を成長し、その後 GaN でキャップした 3 種類の試料を用いて透過スペクトルと弱励起 PL を測定した。In の組成の増加に伴い PL ピークは低エネルギー側へ急激にシフトしていくこと、In 組成 0.2、0.5 の試料では励起光強度を上げると PL ピークが青方偏移することを見出した。また発光強度は GaN 単一量子井戸と比べて非常に強いこともわかった。透過スペクトルには第 4 章で述べたような明瞭な励起子吸収は観測されなかった。実験結果を説明するには内部電場効果だけでなく、In 組成が面内で比較的狭い

領域ごとに揺動していることを反映してバンドギャップ不均一が存在し、バンドギャップの小さい領域へのキャリアの局在効果も考えるべきであることを見出した。

第6章では室温連続発振 InGaN 多重量子井戸(MQW)の光学的特性について論じている。成長条件を変えて作成した Si 添加  $\text{In}_{0.05}\text{Ga}_{0.95}\text{N}/\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$  多重量子井戸をもつ2つの試料を用い、まず透過スペクトル弱励起・強励起下での PL スペクトル、表面からの誘導放出スペクトルを測定した、これらの試料では共に内部電場効果はほとんどなく、PL スペクトルには成長条件の違いによるバンドギャップ不均一性の違いが現れた。従って第5章で述べた InGaN では内部電場効果と In 組成揺動に伴うバンドギャップ不均一が混在することが確認できた。さらに試料端面からの誘導放出スペクトルを測定し光学利得スペクトルを求めた。その結果どちらの試料も同程度の光学利得を得ることはできたがバンドギャップ不均一性が小さいほうはピークが一つであったのに対しそれが大きい方は複数のピークが観測された。これらはバンドギャップ不均一を反映したものとして理解できた。また InGaN の特徴として GaN と比較して光学利得飽和が起こりやすいことを見出した。

第7章ではまとめとして本論文で得られた知見を総括し、今後の課題について述べている。