

京都大学	博士 (工学)	氏名	辻村 歩
論文題目	Epitaxial Growth of Wide Bandgap Compound Semiconductors for Laser Diodes (半導体レーザ用ワイドバンドギャップ化合物半導体のエピタキシャル成長)		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>本論文は、可視短波長光源として期待される ZnSe 系および GaN 系半導体レーザの実現に向けて開発したエピタキシャル成長技術と作製したレーザ素子の動作特性や発振機構を調べた結果をまとめたものであって、以下の序論と 3 章と結論からなっている。</p> <p>序論では、研究の背景として可視短波長半導体レーザ (LD) 開発の歴史的展開を述べるとともに、解決すべき課題を抽出して本研究の位置づけと目的を明確にしたうえで、各章の要約をしている。</p> <p>第 1 章は、ZnSe 系青緑色 LD の作製および評価について記述している。GaAs 基板上に GaAs バッファ層なしで分子線エピタキシャル (MBE) 成長をさせて作製した $Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe$ 単一量子井戸 (SQW) LD を 77K でパルスレーザ動作させることに成功している。レーザ発振波長は活性層の Cd 混晶比に依存して $X=0.15$ のとき 477nm、$X=0.31$ のとき 520nm であり、しきい値電流密度は $160A/cm^2$ と低いことを示している。さらに端面の高反射コートにより、室温でパルス発振および 77K で連続発振させている。</p> <p>77K で外部微分量子効率およびしきい値電流密度の共振器長依存性を調べ、内部損失 $1.5cm^{-1}$、誘導放出内部量子効率 61%、反転分布電流密度 $1.8kA/cm^2\mu m$ を得ている。反転分布電流密度はバルク GaAs よりも 3~4 倍大きかったが、転位密度を低減すれば自然放出内部量子効率が向上し、動作電流を低減できることを示している。</p> <p>また、光利得スペクトルを室温で光励起長を変えて調べ、$100kW/cm^2$ の励起に対してエキシトン吸収ピークの裾で数 $10cm^{-1}$ の利得を得ている。これに基づき、利得機構は不均一広がりを持ったエキシトンの位相-空間充填効果であると論じている。</p> <p>一方、LD 作製プロセス技術も開発し、青緑色領域での垂直共振器型面発光レーザおよび低非点収差の実屈折率導波レーザを初めて実現させている。実屈折率導波構造は低屈折率および高抵抗の ZnO 埋め込み層で実現させ、18mW までの安定な単一横モード動作を得ている。</p> <p>第 2 章は、GaN 系 LD・LED の作製および評価について記述している。結晶成長に用いる有機金属気相エピタキシャル成長 (MOVPE) 炉の 3 次元熱流体シミュレーションを圧力やガス流速に注目して行い、結晶成長速度の面内分布を支配する主要パラメータは、分離渦の形成に影響を及ぼすガス流量であることを明らかにしている。</p> <p>In 混晶比 0.07~0.11 の InGaN/GaN 多重量子井戸 (MQW) (井戸層厚 3nm) に対して、増幅自然放出 (ASE) スペクトルと In 混晶比との関係を調べ、In が少ないほどバンドギャップの不均一性が小さいことを示している。これに基づいて作製した InGaN/GaN MQW LD は、In が少ないほどパルス発振しきい値電流密度は低く、In 混晶比 0.07 のときに連続発振している。したがって 400nm 帯 InGaN LD は、井戸層の In 混晶比を最適化してバンドギャップ不均一性を抑制する必要があることを指摘している。</p> <p>さらに、励起光パワー密度や温度を変えて光利得の起源を系統的に調べ、井戸層の In 混晶揺らぎは利得スペクトルの線幅を増大させ、利得値を低下させることを明らかにしている。自然放出スペクトルの高エネルギー端で観測された誘導放出は、移動度端近傍の電子-ホールプラズマによる光利得から生じると論じている。</p>			

京都大学	博士 (工学)	氏名	辻村 歩
<p>また、活性層をはさむアンドープバリア層 (BLDH) を導入した AlGaIn 系 LED で室温紫外発光 (波長 339nm) を観測している。注入電流の増加とともに非発光再結合は抑制され、拡散電流による再結合が支配的となることを示している。さらに、紫外 LD 動作の可能性を検討するために作製したリッジストライプ BLDH 構造では、370nm の発光ピークが強くなったことから、高効率な紫外動作には長波長側の発光を抑制するためにキャリアオーバーフローを阻止することが不可欠であると論じている。</p> <p>第3章は、第1章および第2章で述べた ZnSe 系 LD および GaN 系 LD のためにそれぞれ新しく開発したエピタキシャル成長技術について述べている。まず、ZnSe 系 LD の作製に適した化合物原料 MBE (CSMBE) 法を開発している。CSMBE 法では従来の MBE 法で用いる金属原料の代わりに化合物原料を用いるので、原料数、VI 族/II 族原子供給比 (VI/II 比) などの制御すべき成長パラメータを減らすことができ、混晶の組成均一性や再現性を向上できる。VI/II 比が 1 という条件にもかかわらず、成長表面は VI 族安定化面になっていることを明らかにし、従来 MBE 法と成長メカニズムが違うことを論じている。CSMBE 法は原料分子が高い運動エネルギーを持っているので、成長表面で表面マイグレーション促進効果を発揮するためであると推察している。格子整合系の ZnMgSSe 四元混晶 LD が室温連続発振したことにより、本方法は ZnSe 系 LD の作製に有効であることを示している。さらに、表面マイグレーション増強効果を利用して、従来より数倍速い 2μm/h 程度の高速成長を検討し、室温発振する ZnMgSSe 四元混晶 LD が成長時間 80min で得られたことを示している。CSMBE 法は従来課題であった II-VI 族 MBE 成長の低生産性を解決できると述べている。</p> <p>次に、低圧 MOVPE 法を用いて GaN 薄膜の新しいエアブリッジ横方向選択成長 (ABLEG) 技術を開発している。断面 TEM 解析により、シード領域の転位は上方に伸張し (密度約 $1 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$)、フリースタANDING に横方向成長したウイング領域には拡散しない (約 $1 \times 10^6 \text{cm}^{-2}$) ことを示している。</p> <p>ABLEG-GaN 上 GaN および InGaIn/GaN MQW の発光再結合過程を時空間分解 PL で調べ、ウイング領域とシード領域の室温 PL 寿命を比較した結果、InGaIn/GaN MQW では GaN ほど大きな差がなく、貫通転位は InGaIn では GaN ほどキャリア再結合過程に影響しないことを示している。これは InGaIn 活性層でのキャリア局在化によると考えられ、その起源は In 混晶揺らぎであると論じている。さらに、非発光再結合過程を顕微鏡分光法で調べ、GaN の貫通転位は非発光再結合中心として作用するが、室温では発光強度にはあまり影響を及ぼさないと指摘している。</p> <p>結論では、本研究の成果をまとめるとともに、ABLEG 技術および CSMBE 法は、現在課題となっている緑色 LD の実現に向けた解決手段となりうることを述べている。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

緑色～紫色の可視短波長領域で動作する半導体レーザーは、高密度光ディスクやフルカラーディスプレイ、高効率固体照明などの光源として必須の素子であるが、結晶成長が困難なため、長年に亘る研究にもかかわらず実用レベルの素子は未だ実現されていなかった。本論文は、その実現のために ZnSe 系および GaN 系レーザー構造の結晶成長技術を確立することを目的として研究した成果についてまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. MBE 法で作製した ZnCdSe/ZnSe 単一量子井戸レーザーの 77K でのパルス発振に成功し、その共振器パラメータを明らかにするとともに、室温発振に向けて格子整合系ヘテロ構造を提案している。また、室温での光利得の起源は、不均一広がりを持ったエキシトンの位相-空間充填効果であることを明らかにしている。さらに、ZnO 埋込層の導入により、実用上不可欠な低非点収差の実屈折率導波型レーザーを初めて実現させている。
2. MOVPE 法で作製した InGaN/GaN 多重量子井戸レーザーについて、ASE スペクトル評価などから、光利得の向上には In 混晶揺らぎに伴うバンドギャップ不均一の抑制が重要であることを明らかにしている。また、アンドープバリア層の採用によりキャリアオーバーフローを抑制した AlGaIn ダブルヘテロ構造紫外 LED の作製にも成功している。
3. ZnSe 系四元混晶成長の制御性を高めるため、新たに CSMBE 法を開発し、ZnMgSSe 格子整合系レーザー構造で室温連続発振に成功するとともに、表面マイグレーション促進効果を利用した高速成長も実証している。本方法は従来 MBE 法の多くの課題を解決する方法として期待される。
4. レーザー構造に必須の低転位密度 GaN 膜を得るため、低転位領域の c 軸チルト角が小さい ABLEG 法の開発に成功している。また、ABLEG 法により作製した GaN に対して顕微時間分解 PL でキャリア再結合過程を評価し、InGaIn 量子井戸ではキャリア局在化のため、再結合過程に及ぼす転位の影響は小さいことを解明している。

本論文は、ZnSe 系および GaN 系結晶成長技術の開発により半導体レーザーを実現し、その利得機構も明らかにするなど、実用化に大きく貢献したもので、得られた成果は学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 24 年 8 月 24 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。