

|             |   |
|-------------|---|
| 氏 名         | きむ じゅんごん<br><b>金 廷坤</b>   |
| 学位(専攻分野)    | 博 士 ( 工 学 )   |
| 学 位 記 番 号   | 博 甲 第 6 3 7 号   |
| 学位授与の日付     | 平成 24 年 3 月 26 日  |
| 学位授与の要件     | 学位規則第 4 条第 1 項該当  |
| 研 究 科 ・ 専 攻 | 工芸科学研究科 設計工学専攻  |
| 学 位 論 文 題 目 | <b>Raman scattering studies of group-III nitride semiconductors</b><br>(Ⅲ族窒化物半導体のラマン散乱研究) |
| 審 査 委 員     | (主査)教授 播磨 弘<br>教授 吉本昌広<br>教授 武田 実   |

## 論文内容の要旨

Ⅲ 族窒化物半導体(GaN、AlN、InN)とそれらの間の 3 元混晶半導体のバンドギャップエネルギーは 6.2~0.7 eV の広範囲に及び、将来の光・電子デバイスや高電力・高周波デバイスへの応用をめざして現在大いに注目を集めている。しかし、これらの多くは良質の結晶成長が困難で、基礎的性質であってもまだ未解明のまま残されている課題が多い。そこで本研究では、InN、高 In 組成の  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 、さらに高 Al 組成の  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  混晶を取り上げ、それらのフォノンおよび電子的性質について、可視光や紫外光を励起光源に用いた顕微ラマン散乱法で調べた。研究成果の大略は以下の通りである。

- (1) 加圧型有機金属気相エピタキシーによる高品質 InN の最適成長条件を見出した。成長炉背圧を従来の 1 気圧以下から今回最大 3 気圧まで高めることにより、成長面からの窒素脱離などを抑制して結晶性が向上することを示し、さらに成長温度やⅤ族/Ⅲ族原料供給比などの成長条件の最適化を行った。
- (2) InN 結晶の電気的性質を LO フォノン-プラズモン結合モードのスペクトル形状により調べるとともに、この解析より電子有効質量を求め、他の実験手法から得られた結果や理論解析と比較検討した。
- (3) 高 In 組成の一連の  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  混晶に対して、深紫外光 (波長 266nm) 励起ラマン測定を行うことにより、蛍光に妨害されずにフォノンスペクトル観察できる事を示し、 $\text{B}_1$  フォノンモード周波数の精密測定に初めて成功し、理論予測と比較検討した。
- (4) 高 Al 組成の一連の  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  混晶に対して、ラマン観察されたフォノン周波数よりその Al モル分率を見積もった。これを X 線回折による詳しい解析や精密な電子プローブ局所分析(EPMA)と比較することにより、ラマン解析で重要となる格子歪みの効果を詳しく評価した。
- (5) Al モル分率を  $x=0.67$  に固定し、キャリア濃度を系統的に変えた一連の n 型  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  混晶を用いて LO フォノン-プラズモン結合モードのラマン観測に初めて成功した。またモード形状の解析からキャリア濃度と移動度が見積もられ、さらに電子有効質量の評価が行える事を示した。
- (6) 発光素子構造中の Mg ドープ  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  混晶層に対して顕微ラマン散乱観察を行い、不純物水素の振る舞いのように Mg の p 型活性化に関与する重要な過程の非接触評価が可能な事を示した。

以上の結果は、III 族窒化物半導体デバイスを作成するうえで、可視・紫外光励起顕微ラマン散乱が非接触・非破壊の局所評価手法として大いに有力であることを明瞭に示している。

## 論文審査の結果の要旨

申請者は、将来の光・電子デバイスや高電力・高周波デバイスへの応用が期待される III 族窒化物半導体(GaN、AlN、InN)とそれらの間の 3 元混晶半導体 ( $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ,  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ) の基礎的なフォノンおよび電子的性質、さらに高品質結晶成長法に関し、可視光および紫外光を励起光源に用いた顕微ラマン散乱を中心とする分光学的手法により多くの新事実を明らかにしている。また、今後 III 族窒化物半導体デバイスを作成するうえで、顕微ラマン評価が非接触・非破壊の局所分析手法として大いに有力であることを明瞭に示した。

論文中の主たる成果として、(1) 加圧型有機金属気相エピタキシーによる高品質 InN の最適成長条件を見出した。成長炉背圧を従来の 1 気圧以下から今回最大 3 気圧まで高めることにより、成長面からの窒素脱離などを抑制して結晶性が向上することを示し、さらに成長温度等の作成条件最適化を行った。(2) InN 結晶の電氣的性質をラマンスペクトル形状解析により調べるとともに、電子有効質量を求め、理論解析等と比較検討した。(3) 高 In 組成  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  混晶に対して、深紫外光(266nm)励起ラマン測定を行うことで、蛍光に妨害されずにフォノン観察ができる事を示し、未報告フォノンモード周波数の精密測定に成功した。(4) 高 Al 組成  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  混晶に対して、フォノン周波数観察よりその Al モル分率を見積もり、これを X 線回折解析や電子プローブ局所分析と比較することにより、ラマン解析で重要な格子歪みの効果を詳しく評価した。(5) Al モル分率が  $x=0.67$  で一定、キャリア濃度の異なる n 型  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  混晶を用いて LO フォノン-プラズモン結合モードのラマン観測に初めて成功し、モード形状解析からキャリア濃度や移動度、さらに電子有効質量の評価が行える事を示した。(6) 発光素子構造中の Mg ドープ  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  混晶層に対して、水素不純物の関与する Mg 不純物活性化過程の非接触評価が可能な事を示した。

本論文は、以下に示すように、審査を経て掲載され申請者が筆頭筆者である 6 篇の論文をもとに構成されている。

- (1) **Jung Gon Kim**, Hiroaki Yamamoto, Yasuhito Kamei, Noriyuki Hasuike, Hiroshi Harima, Kenji Kisoda, Masaya Ishida, Katsuki Furukawa, and Mototaka Taneya, "Raman scattering characterization of p-type  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  Layers", *Phys. Stat. Sol. (B)*, **247**, 1725 (2010).
- (2) **Jung Gon Kim**, Yasuhito Kamei, Noriyuki Hasuike, Hiroshi Harima, Kenji Kisoda, Kouhei Sasamoto, and Akio Yamamoto, "Effective mass of InN estimated by Raman scattering", *Phys. Stat. Sol. (C)*, **7**, 1887 (2010).
- (3) **Jung Gon Kim**, Atsuhito Kimura, Yasuhito Kamei, Noriyuki Hasuike, Hiroshi Harima, Kenji Kisoda, Yuki Simahara, Hideto Miyake, and Kazumasa Hiramatsu, "Determination of Al molar fraction in  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  films by Raman scattering", *J. Appl. Phys.*, **110**, 033511 (2011).
- (4) **Jung Gon Kim**, Yasuhito Kamei, Atsuhito Kimura, Noriyuki Hasuike, Hiroshi Harima, Kenji Kisoda, Yu Huai Liu, and Takashi Matsuoka, "Raman-scattering characterization of InN films grown by pressurized metal organic vapor phase epitaxy", *Phys. Stat. Sol. (B)*, **1-5** (2011).
- (5) **Jung Gon Kim**, Atsuhito Kimura, Yasuhito Kamei, Noriyuki Hasuike, Hiroshi Harima, Kenji Kisoda, Yuki Simahara, Hideto Miyake, and Kazumasa Hiramatsu, "Observation of longitudinal-optic-phonon-plasmon-coupled mode in n-type AlGaIn alloy films", *Appl. Phys. Lett.* **99**, 251904 (2011).
- (6) **Jung Gon Kim**, Yasuhito Kamei, Atsuhito Kimura, Noriyuki Hasuike, Hiroshi Harima, Kenji Kisoda, Toru Hotta, Kouhei Sasamoto, and Akio Yamamoto, "Observation of  $A_1(\text{LO})$ ,  $E_2(\text{high})$  and  $B_1(\text{high})$

phonon modes in  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  alloys with  $x=0.11-0.54$ ", *Phys. Stat. Sol. (C)*, **1-3** (2011) / (DOI 10.1002/pssc.201100401, online published 15 Dec. 2011).

以上、本論文では、Ⅲ族窒化物半導体の種々のデバイス開発に向けて極めて重要な材料物性と結晶成長法に係わる知見を与え、更にそれに至る分光評価手法の実用性を示しており、この成果は学術的価値や産業応用面から重要性が高いことを各審査委員が認めた。