

## 審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 吳 豪 振

有機金属ガスを原料として用いる MOVPE（有機金属気相エピタキシー）法による化合物半導体の単結晶薄膜合成は、良質な単結晶を大面積基板上に一括して成長できることから、半導体レーザや光スイッチなどの光電子デバイス量産に不可欠な技術となっている。一方、GaAs や InP などの III-V 族系化合物半導体単結晶ウェハは大口径化が進み、6 インチウェハでの操業が行われるようになってきた。このようなウェハ大口径化に対して組成や膜厚の均一性を保障するには MOVPE の反応機構を良く理解し、原理原則に基づく反応器設計やプロセス開発が求められているが、そのような反応機構解析方法および装置設計方法はまだ確立されておらず、試行錯誤的な開発が行われているのが現状である。

本論文は “ A study on InP/GaAs MOVPE process optimization by multiscale analysis ”（マルチスケール解析を用いた InP/GaAs MOVPE プロセスの高度化）と題し、上記課題に対して選択成長を活用したプロセス解析・設計手法に関する研究成果をまとめたものであり、全部で 5 章からなる。

第 1 章では MOVPE 技術の概要と反応機構解析手法に関する既往の研究を取りまとめ、本研究にて提唱するマルチスケール解析の概要、ミクロスケールおよびマクロスケール解析の有用性などを説明している。

第 2 章では MOVPE 反応器内の製膜速度分布、組成分布を熱流体解析ソフトによるシミュレーションにより解析した結果をまとめている。通常の MOVPE 反応条件では、製膜分子種の基板への拡散輸送が律速となることに着目し、MOVPE 反応器内での成長速度分布から実際の製膜種の拡散係数を抽出可能なことを示している。これにより、GaAs、InP などの成長速度分布から Ga や In 分子種の拡散係数を実操業条件下で初めて定量的に評価することに成功している。また、得られた拡散係数の値は、分子径を適切に見積もれば Chapman-Enskog の式にて予測される値とほぼ一致することを確認した。これにより、MOVPE プロセスにおける主要なプロセスパラメータである拡散係数の妥当な値を明確にした。

第 3 章では、面積選択 MOVPE 成長の解析により、表面反応速度定数を評価する手法についてまとめ、実際に GaAs や InP の合成系に適応した結果をまとめている。まず、選択成長領域を数十ミクロン以上の大きさに設定する広幅面積選択成長では、選択成長領域における製膜速度分布は表面拡散の影響が無視でき、気相拡散係数  $D$  と表面反応速度  $k_s$  の比（ $D/k_s$ ）によって分布が決定されることを示している。従って、広幅面積選択成長の分布を 2 次元シミュレーションを用いて評価検討すると、 $D/k_s$  を得ることができ、さらに  $D$  の

値を基に  $k_s$  が推算可能になることを提案している。このとき、 $D$  に関しては前章にて実験的に求めた値を用いることにより、精度の良い解析が可能となっている。 $D$  はマクロスケールの解析、 $D/k_s$  はミクロスケールの解析に基づくことから、これをマルチスケール解析と呼んでいる。本手法を基に、GaAs および InP 合成系を解析した結果、Ga 製膜種および In 製膜種の表面反応速度  $k_s$  を定量的に精密に評価すること成功した。 $k_s$  の温度依存性、原料濃度依存性、V 族原料依存性、成長面方位依存性などを広範に検討した結果、In 製膜種は一般に Ga 製膜種よりも反応確率が高いこと、その結果、InGaP などの混晶成長では成長領域内にて In/Ga 組成比の分布がついてしまうこと、その解決策として、V 族原料に有機 V 族ガスを用いると良いことなどを提唱している。さらに、マスク上の核発生現象にも着目し、核発生がマスク上の製膜種濃度がある一定の過飽和度を満たすときに起こることを見出し、気相拡散による製膜種濃度の局所的な高濃度化が核発生の主要因である可能性を指摘している。

第4章では、上記の解析結果を実際の反応器最適条件設計や選択成長マスクのパターン最適化にフィードバックした結果についてまとめている。例えば、熱流体解析ソフトによる反応器内製膜速度シミュレーションに関しては、得られた表面反応速度の温度依存性をもとに、より精密な予測が可能であること、選択成長マスクパターンの設計においては、組成の急峻な切り替えを実現するマスクパターンの設計などを実際に行い、得られたモデルや反応速度の妥当性をまとめている。さらに、これらの成果を基に、選択成長を利用した光集積回路作製における TCAD 構築を試み、簡単な導波路構造設計試作における有用性を実証している。化合物半導体デバイスは単結晶状態を利用するがゆえ、エッチングなどに伴うダメージが蓄積すると物性劣化が著しく、デバイス製造歩留まりを引き下げる。従って、面積選択 MOVPE プロセスを活用し、極力少ない回数の薄膜堆積・エッチング（微細加工）の繰り返しによって各種デバイスをモノリシックインテグレーションした光集積回路作製はこのような問題を打破する有効な解決策であり、そのプロセスを論理的に設計できる指針を打ち立てたことが本章の成果と評価できる。

第5章はこれらの検討結果をまとめ、今後の研究の発展に関して展望を述べている。

このように、本論文は光集積回路のモノリシックインテグレーションを実現する選択成長プロセスや、MOVPE リアクター設計など、マテリアルプロセスへの高度な要求に対し、その最適化方法論を構築したものであり、マテリアル工学の発展に多大な寄与をなしている。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。