

審査の結果の要旨

氏名 太田 実雄

本論文は、パルスレーザー堆積法 (PLD 法) を 族窒化物薄膜成長に応用することによって、急峻なヘテロ界面形成を可能としたことによる新規基板材料の適用、室温成長の実現、窒化物薄膜ヘテロエピタキシャル成長のメカニズムについて述べたものである。

GaN 系 族窒化物半導体薄膜 (AlN, GaN, InN) は 0.7eV ~ 6.2eV の直接遷移型バンドギャップを有しており、光・電子デバイスへの応用に向けた活発な研究開発が展開されているが、詳細な薄膜成長メカニズムが不明であり、また、格子不整合や熱膨張係数差に起因した結晶欠陥の残留などの問題がある。本論文ではこれらの問題点を踏まえ、PLD 法による 族窒化物成長およびその評価について以下の 6 章に大別して論じている。

第 1 章では、 族窒化物薄膜ヘテロエピタキシャル成長の現状と問題点、そして本研究の目的が述べられている。

第 2 章では、本研究で構築した複合成長装置システムについて述べられている。 族窒化物薄膜と基板間の界面構造評価のため、PLD 装置と光電子分光 (XPS) チャンバーを真空中で連結したシステム的设计・作製を行った。さらにこのシステムに Si 用及び GaAs 用 MBE 装置を連結することにより、各材料を積層した多層構造の作製が可能となった。また、PLD 法の原理、基本構成、および 族窒化物薄膜成長における成長条件についても記されている。

第 3 章では、PLD 法による窒化物薄膜/基板間の界面急峻性の実現と、各種酸化物基板を窒化物ヘテロエピタキシャル成長に適用した結果について述べられている。PLD 法において窒素雰囲気下で 族窒化物薄膜の成長を行う場合、高温でも基板表面の窒化反応抑制が可能であり急峻な界面が実現されることが明らかとなったため、従来は使用が不可能であった多くの基板材料を使用できることが分かった。そこで、窒化物との格子不整合が小さい SrTiO₃、(La,Sr)(Al,Ta)O₃、(Mn,Zn)Fe₂O₄ 基板を用いて窒化物薄膜の成長を行った。その結果、全ての基板上への窒化物薄膜のヘテロエピタキシャル成長が確認された。しかしながら SrTiO₃、(La,Sr)(Al,Ta)O₃ 基板上の窒化物エピタキシャル成長では、その面内配向関係が予想したものより 30° 回転しており、格子不整合が大きくなる配向関係であることが明らかとなった。これは成長初期における界面での原子配列の安定な構造 (吸着構造) が、格子不整合から予想されたものと異なっているためだと考えられる。それに対し、窒化物/(Mn,Zn)Fe₂O₄ では、格子不整合が小さくなるような配向関係が実現され、高品質 GaN の成長に有望であることが分かった。

第 4 章では、 族窒化物薄膜の室温成長の実現について論じられている。PLD 法ではレ

ーザーによって昇華した粒子の持つ運動エネルギーが大きいことから、基板温度が低くても原子は十分なマイグレーションエネルギーを持ち、低温でも結晶化が可能だと考えられる。そこで、格子不整合が小さくなるような面内配向関係をとる(Mn,Zn)Fe₂O₄基板を用い、成長温度の低温化を試みた結果、成長条件を最適化することによって AlN、GaN、InN 薄膜の室温エピタキシャル成長に初めて成功した。さらに、格子歪みの緩和過程を示す成長様式の遷移が起こっていることから、室温においても基板表面における原子が十分なマイグレーションエネルギーを保持しているということが分かった。また、(Mn,Zn)Fe₂O₄ 上における窒化物薄膜成長では、基板/薄膜間の相互拡散によって形成される界面層が存在するが、成長温度を減少することによって界面層急峻性を向上できることが分かった。これらの結果から、PLD 法を用いることによって窒化物薄膜を低温で、格子不整合の小さい基板上に界面反応を抑制して成長することが可能であることが明らかとなり、窒化物薄膜ヘテロエピタキシャル成長において格子不整合と熱膨張係数差の問題を同時に解決できることが示唆された。

第5章では、窒化物薄膜ヘテロエピタキシャル成長における極性制御とエピタキシャル関係のメカニズムが述べられている。PLD 法を用いることによって原子レベルで急峻な界面を実現し、さらに第一原理計算によって界面構造を詳細に評価し、エピタキシャル関係および極性についてそのメカニズムを考察した。サファイア基板上へ様々なバッファー層を挿入し、GaN 薄膜成長を行った結果、面内配向関係は全ての実験において[10-10]nitride // [11-20] sapphire であり、また、GaN の極性は Al-rich AlN バッファー層を用いた場合にのみ Ga 極性になることが明らかとなった。サファイア表面上における吸着原子の安定位置の計算結果から、実験結果で得られた面内配向関係をよく説明できることが分かり、ヘテロエピタキシャル成長における面内配向関係では、成長初期での原子の安定位置が大きな影響を持っていると考えられる。また、GaN 薄膜の極性制御のメカニズムとして、サファイア表面第一層における吸着原子種が N 原子から Al 原子に変化することが本質であることを初めて見出した。

第6章では本研究のまとめ、及び今後の展開が述べられている。

以上、本論文では 族窒化物薄膜を PLD 法によって成長することにより、従来の成長手法では為し得なかった界面急峻性や室温成長を実現し、さらに新規基板材料の適用や成長メカニズム解明を行うことに成功している。本研究で得られた成果は 族窒化物ヘテロエピタキシャル成長の分野において新たな知見と大きなインパクトを与えられられる。

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。