

## 審査の結果の要旨

氏名 古賀 裕明

立方晶窒化ホウ素 (cBN) は次世代ワイドギャップ半導体として注目されているが、エピタキシャル成長の報告例がほとんどなく、現行の cBN 蒸着プロセスは照射イオンによる損傷のためデバイス作製に適さない可能性がある。よって高品質膜作製のための新しいプロセスの開発が強く望まれている。本論文は、化合物の各原子層を単原子種蒸着により成長させる拡散促進エピタクシー (Migration Enhanced Epitaxy: MEE) 法の cBN への適用を提案し、その実現可能性を第一原理計算により示したものである。本論文は 7 章からなる。

第 1 章は緒言であり、cBN の構造、物性、用途について述べると共に、cBN に関するこれまでの実験および理論研究をまとめている。そして、イオン衝撃を用いないエピタキシャル成長法の開発がまだ不十分であることと薄膜成長素過程に対する第一原理計算が未だなされていないことを指摘して、本研究の目的を明確にした。

第 2 章では、本研究の計算の基盤となる密度汎関数法と擬ポテンシャル法の概略を述べている。また、本研究で必須となる原子構造最適化についても手法の概略を述べている。

第 3 章では、本研究の計算方法の詳細を述べている。具体的には、用いた表面構造モデルを述べ、供給ガスの吸着エネルギー、反応経路、反応速度等の計算法を説明している。さらに、いくつかの表面及び分子について予備計算を行ない、計算条件の信頼性が十分であることを確認している。

第 4 章では、cBN(001)面上における MEE の可能性を第一原理計算で検討した結果を述べている。まず、cBN(001)N 面上の B 層のエピタキシャル成長について、(1) 清浄な N 面上では B 格子位置が非格子位置より 3eV 以上安定なので、蒸着初期では B 原子は B 格子位置に取込まれること、(2) N 面上の B 被覆領域が大きくなっても被覆領域上の吸着サイトより B 格子位置の方が吸着 B 原子にとって安定なので、B 層がエピタキシャルに成長すると考えられること、および (3) さらに被覆率が大きくなった場合に B 原子で覆われている領域に B 原子が入射して生じる B アンチサイト欠陥は、B 原子が B 被覆領域上を拡散してすみやかに空の B 格子位置に取込まれることによって修復されること、を第一原理計算によって明らかにした。次に、cBN(001)B 面上の N 層のエピタキシャル成長について同様に検討し、(1) 蒸着初期では N 原子は N 格子位置に取込まれること、(2) B 面上の N 被覆領域が大きくなっても吸着 N 原子はほとんど N 格子位置に取込まれること、および (3) さらに被覆率が大きくなった場合に生じる N アンチサイト欠陥の寿命が 700K で約 10ns という短時間であり、このため N の被覆率は 1 原子層を越えないこと、を明らかにした。さらに、窒素脱離にもかかわらず残存した N アンチサイト欠陥と入射原子との相互作用を調べ、入射 B 原子が N-N 結合に割り込んでアンチサイト欠陥を cBN の原子構造と互

換性のある局所構造に変化させることを明らかにした。同様の計算により、B アンチサイト欠陥が N 原子との交換反応により修復されることも見出した。以上の結果から、cBN 上で MEE が実現可能であると結論している。

第 5 章では、cBN と格子整合がよく、数センチ角の基板も作製されているために cBN 用基板として最適なダイヤモンド(001)面上で、MEE による cBN ヘテロエピタクシーの可能性を検討している。まずダイヤモンド基板上に N を先に蒸着する場合には、窒素分子脱離のため N 原子層の形成が困難であることを明らかにした。次に B を先に蒸着する場合については、初めの 2 層について平坦面が安定であることと、3 層目以降の吸着エネルギーが cBN(001)上の時とほぼ一致することを明らかにした。後者は、3 層目以降の表面素過程が cBN(001)を基板とする場合と同じと見なせることを示している。以上より、B 単原子層蒸着を先に行う場合には、cBN/ダイヤモンド(001)ヘテロエピタクシーの MEE による実現が期待できると結論している。

第 6 章は総括である。

第 7 章は補遺であり、cBN 上の MEE 成長を実際的な時間スケールで追跡するための動的モンテカルロ計算を試みた予備的な結果と、種々のプロセスの検討に際して有用と考えられる水素終端 cBN 表面の構造と反応性の理論的検討の結果について述べている。

以上のように、本論文は、cBN およびダイヤモンド基板上の拡散促進エピタクシーによる高品質 cBN 薄膜作製の可能性を第一原理計算により検討した。蒸着の各段階で起こりうる様々な状況についてエネルギー論および運動論の面から解析することにより、拡散促進エピタクシーが高品質 cBN 薄膜成長の方法としてきわめて有望であることを明らかにした。よって本論文の薄膜プロセス工学、表面物性工学への寄与は大きい。

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。