

審査の結果の要旨

氏名：中野貴之

GaAs, InP などの III-V 族化合物半導体は、直接遷移型であることから発光デバイス、キャリア移動度が大きいことから高速電子デバイスに活用されている。また、III 族ないしは V 族元素を適宜置換することにより格子整合する特性の異なる材料を積層させることができる。このようなヘテロ接合を利用して、多重量子井戸構造など人為的に物性を制御した新規デバイスの創製も可能となっている。その作製方法としては、有機金属原料ガスを用いた気相エピタキシャル成長 (MOVPE) が量産性に優れ、実用化されている。一方、物理的手法である分子線エピタキシー (MBE) は量産性に劣るものの、成長表面のその場観察手法が活用できるなど、薄膜構造制御性に優れている。

本論文は「有機金属気相エピタキシー法による化合物半導体結晶成長機構の解析と精密界面構造制御」と題し、全 9 章からなる。具体的には、InGaP/GaAs という III 族と V 族が同時に切り替わるヘテロ界面の MOVPE 形成におけるガス切り替えシーケンスの検討を中心に、その場観察手法の構築等を行い、界面急峻性向上を目指した検討を行った。

第 1 章は序論であり、化合物半導体のデバイス応用と結晶成長に関する既存の研究ならびに開発状況について述べ、特に MOVPE 成長の長所・短所についてまとめている。第 2 章では研究に用いた MOVPE 装置および各種分析手法についてまとめている。

第 3 章および 4 章では、InGaP/GaAs 界面形成において、V 族元素の界面分布に着目して、その組成切り替えを急峻にする手法について検討したものであり、本論文の前半を構成する。具体的には、分光エリプソメトリーにより MOVPE 成長表面状態のその場観察が可能なることを見出し、本手法を活用して、新規ガス切り替えシーケンスの創製、最適切り替え時間の導出などを行っている。まず、第 3 章では GaAs 上に InGaP を形成する場合について検討を行っている。分光エリプソメトリーにより成長表面の誘電関数と反射率を測定すると、As の脱離や P の染込み(拡散)による変化がその場観察できることを確認し、本手法を用いて本界面形成では GaAs 上に残存する As の脱離、P の拡散による GaAsP 形成が無視できない問題であることを明らかにした。特に As の脱離には長時間かかるため、InGaP 層を形成する際に Ga 原料を In 原料よりも先に供給し始め、残存 As 原子を GaAs として定着させる方法を提案した。また、P が高速に下地 GaAs 層に拡散する問題についても InGa 層を先に形成するという手法を構築した。また、第 4 章では InGaP 上に GaAs を形成する場合について検討し、その場観察手法を活用して切り替え時間の最適化を行った。これらの新規シーケンスを用いて作製した InGaP/GaAs/InGaP 量子井戸構造からのフォトルミネッセンス (PL) スペクトルは、GaAsP 層の形成が抑制されたことを反映して、PL ピークの長波長化やピーク強度の増大などが認められた。また、多重量子井戸構造の高角度分解能 X 線回折 (HR-XRD) からは、界面急峻性の向上が確認できた。

第 5 章では、まず、上記のように V 族ガス切り替えを最適化したシーケンスにより作製

した InGaP/GaAs ヘテロ構造を透過型電子顕微鏡 (TEM) による高分解能観察を行い、界面付近の格子定数分布をフーリエ変換マッピング (FTTM) により測定している。その結果、今までは認識されていなかった III 族元素、具体的には In 原子、の分布による急峻性劣化が確認され、第 5 ~ 8 章により形成される後半部分の主要課題とした。このため、まず、InGaP 層内の In 組成分布を高分解能 2 次イオン質量分析測定 (SIMS) やグロー放電分析 (GDA) などを利用して測定し、InGaP 層の表面から 10nm 程度の範囲に In 過剰層が形成されていることを見出した。

第 6 章ではこのような In 表面偏析現象を説明するモデルとして、成長最表面に完全な結晶ではない凝縮層 (サブサーフェイス) の存在を仮定するサブサーフェイスモデルを提案した。このサブサーフェイスの存在を確認するため、GaAs, InP 2 元系結晶成長において、III 族原料の供給を間歇的に行う流量変調操作 (Flow Modulation, FM) による成長を提案した。FM 操作における III 族原料供給時間ならびに遮断時間を系統的に変化させたときの成長膜厚変化から、サブサーフェイスは確実に存在すること、また、サブサーフェイス形成、消滅に関連するいくつかの速度定数の抽出を行っている。第 7 章では、FM 操作によるサブサーフェイス解析を InGaP 成長に発展させ、サブサーフェイス膜厚やサブサーフェイスからの InGaP 結晶層形成速度定数などを得ている。これらの解析を基に、InGaP 層形成初期には In 原子が GaAs 基板への格子整合条件よりも少ない InGaP 層が形成されていること、また、InGaP 層形成終了時にはサブサーフェイス層の組成を反映して In 過剰層が形成されることを説明している。また、実際に InGaP 層を FM 操作により複数回に分けて成長すると、上記の現象を反映して In 組成が変化した InGaP が成長することを HR-XRD により確認し、本モデルの妥当性を検証している。

第 8 章では、これらサブサーフェイスモデルを用いた解析に基づき、流量変調操作を活用して In 偏析制御も考慮した新しい界面形成シーケンスを考案している。この III 族最適化シーケンスにより作製した InGaP/GaAs 界面を操作型 TEM (STEM) による原子番号コントラスト観察を行った結果、従来シーケンスでは界面切り替わりに約 2nm を要していたものが、1nm に改善されたことを確認している。

第 9 章はこれらの結果を総括し、MOVPE 法によるヘテロ界面構造形成改善に関する指針をまとめている。

このように、本論文は MOVPE 法による化合物半導体ヘテロ界面形成における組成切替の急峻性に着目し、最適シーケンスを構築するだけでなく、MOVPE 表面結晶成長機構に関する詳細な解析も行い、デバイス応用展開までも取りまとめている。マテリアルプロセス工学の発展に大いに資するものである。よって、本論文は博士 (工学) の論文として合格と認められる。