

論文内容の要旨

論文題目 AIN 薄膜貫通転位を利用したナノ細線の作製

氏名 徳本有紀

結晶中の格子欠陥は、結晶のバルク領域を特性の起源として利用する場合、その特性に悪影響を及ぼすことが多い。例えば、本研究で取り扱うⅢ族窒化物はワイドギャップ半導体であり、短波長光デバイスとして広く応用されているが、Ⅲ族窒化物薄膜中には高密度な貫通転位が存在し、バルク領域のデバイス特性を低下させることが知られている。したがって、バルク領域を発光特性の起源として利用する際には貫通転位を低減させることが求められる。しかしながら、着眼点を変えて、この貫通転位を特性の起源として有効利用することができれば、薄膜中に異方性のある物性を示す新たなデバイスとしての可能性が示される。これまで、転位を材料物性制御に応用することを試みた例として、Nakamura らによる、絶縁体であるサファイア(α - Al_2O_3 単結晶)中の転位へ導電性を付与したという報告がある。彼らは、サファイア中に一方向に揃った転位を導入し、それらの転位に沿って Ti を偏析させ、局所的に一方向導電性を発現させることに成功している。この一方向導電性を発現させる一方向に揃った転位を導入するために、サファイアに2段階の高温塑性変形を施した後薄片化し、さらに熱処理により薄片表面に対して直立化させるという特殊な手法がとられていた。これに対し現在、このような異種元素の導入による転位への物性付与の技術を新規デバイス創成の方法論として確立し、より多くの材料に応用することが期待されている。

そこで本研究は、“転位の材料物性制御への応用”の新たな展開として、Ⅲ族窒化物薄膜作製の際に導入される高密度かつ高配向な薄膜貫通転位を利用し、特異な物性を示すナノ細線を作製することを目的とした。本論文は以下に述べる全5章から構成される。第1章で転位の構造・特性の説明、転位の材料物性制御への応用例など、本研究の背景や目的について記述した。続く第2章においては、 α - Al_2O_3 (0001)基板上に堆積した AIN 薄膜をモデル材料として用い、AIN 薄膜貫通転位の配列の解析に基づき、貫通転位の形成メカニズムについて調べた。続いて第3章において

は、AlN/ α -Al₂O₃ 界面の原子構造を解析し、貫通転位の形成メカニズムの起源について考察した。さらに、第4章においてそのAlN 薄膜貫通転位への金属元素偏析を試みた。添加金属元素としては、電気伝導性や強磁性などの出現が期待できる Mn を選択し、Mn 偏析による電気伝導性の変化についても調べた。最後に第5章として本研究の総括を述べた。

以下に第2章から第4章の概要を述べる。

第2章 AlN 薄膜貫通転位の配列の解析

AlN 薄膜貫通転位の形成メカニズムを明らかにすることを目的とし、AlN 薄膜試料の[0001]方向から透過型電子顕微鏡(TEM)観察および高分解能透過型電子顕微鏡(HRTEM)観察を行った。

TEM 観察の結果、約 $5 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ の貫通転位が観察された。また、AlN 薄膜は単結晶であるものの、転位列に囲まれた亜結晶粒からなることが示唆された。さらに HRTEM 観察を行い、バーガスベクトルを解析した結果、貫通転位の大部分が Fig. 1(a)に示すような $b = 1/3 \langle 1\bar{2}10 \rangle$ の刃状転位であることがわかった。この転位は、Fig. 1(b)に示すように転位芯において赤線で示す2枚の余分な原子面が終端する構造となっている。この刃状転位は、 $\{11\bar{2}0\}$ 面および $\{10\bar{1}0\}$ 面といった特定の原子面に沿って規則性を持って配列していることがわかった。これらの刃状転位のバーガスベクトルは転位の配列した面に対して垂直な成分を有しており、転位列は隣接する亜結晶粒間の微小な傾角を補償するように導入され、小傾角粒界を形成していた。この結果から、AlN 薄膜貫通転位はいわゆる“モザイク成長”の結果導入されるものであることが示された。このモザイク成長は、AlN 成長粒が α -Al₂O₃ 基板に対して法線周りに微小な角度だけ面内回転した状態で堆積するので、その結果 AlN 成長粒同士の界面における微小な傾角を補償するために転位が導入される、というものである。

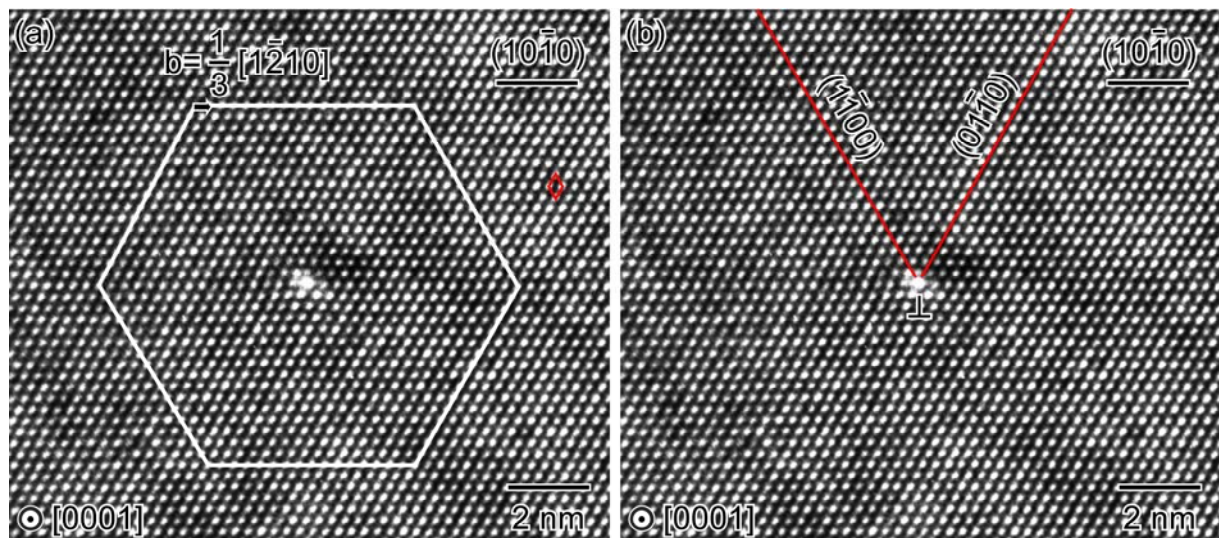


Fig. 1. (a) HRTEM image of a dislocation core with the Burgers circuit. The dislocation is an edge-type dislocation, which has a perfect Burgers vector of $b = 1/3 [1\bar{2}10]$. The rhombus indicates the primitive cell. (b) The HRTEM image same as in (a). 2 extra half-planes, $(1\bar{1}00)$ and $(01\bar{1}0)$, are indicated by red lines.

第3章 AlN/ α -Al₂O₃ 界面の原子構造解析

薄膜貫通転位形成の起源となっているモザイク成長は、基板に対する薄膜成長粒の微小な回転を伴うものであるため、薄膜と基板の界面構造と密接に関係すると考えられる。そこで HRTEM 観察および格子静力学法による構造最適化計算を行うことにより、AlN/ α -Al₂O₃ 界面における原子

構造およびその緩和挙動を調べた。さらに界面構造とモザイク成長との関連についての考察を行った。

断面 TEM 観察の結果、AIN 薄膜は $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 基板に対して $[1\bar{1}00]_{\text{AIN}} // [11\bar{2}0]_{\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3}$ 、 $(0001)_{\text{AIN}} // (0001)_{\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3}$ の方位関係を有していることが確認された。この方位関係における AIN と $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ の格子不整合は約 12%と大きく、この AIN/ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 界面は非整合界面に分類される。HRTEM 観察および格子静力学計算の結果、界面の Al 原子の配位数が 6 配位、5 配位および 4 配位と界面に沿って周期的に変化していることがわかった。さらに、4 配位の Al サイトは AIN に類似した配位環境をとり、5 配位および 6 配位の Al サイトは $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ に類似した配位環境をとるよう緩和していることが見出された。このことから、界面原子の配位数の違いに応じて、異なる安定な配位環境をとるよう構造緩和が起こる結果、格子不整合の大きい場合でも異相界面の強度が保たれているものと考えられる。

また、AIN 薄膜と $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 基板の相対方位関係について、逆格子一致法(CRLP)により解析した結果、実験で得られた方位関係は、界面に垂直な格子面の整合性が最も高い方位関係ではないことがわかった。AIN 薄膜が $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 基板に堆積するときの相対方位関係は、薄膜と基板の格子の整合性が高い方位関係よりも、界面原子が配位数の違いに応じてそれぞれ異なる安定な配位環境をとり得る方位関係が優先的になると考えられる。ただし、幾何学的な考察から、 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 基板に対する AIN 薄膜の法線周りの回転角が $1\sim 2^\circ$ 程度の範囲であれば、界面原子の配位環境の変化が小さく面内回転の自由度が生じることが示唆された。したがって、面内回転に対する拘束力と自由度との兼ね合いで、基板に対する薄膜の回転角が $\pm 1\sim 2^\circ$ 程度の範囲でモザイク成長が生じるものと考えられる。

第 4 章 AIN 薄膜貫通転位への金属元素偏析

高密度な貫通転位を含む AIN 薄膜試料を用い、試料表面に Mn を蒸着し、熱処理を施すことにより転位に沿って拡散・偏析させることを試みた。その結果、バーガースベクトルが $1/3\langle 1\bar{2}10 \rangle$ の刃状転位に沿って、転位芯近傍に Mn を偏析させることに成功した。走査型透過電子顕微鏡(STEM)を用いた電子エネルギー損失分光法(EELS)による元素マッピングの結果を Fig. 2 に示す。Fig. 2(a)は転位芯近傍の ADF(Annular dark-field)像である。この ADF 像にフーリエフィルター処理を施し、Fig. 2(b),(c)に示すように 2 枚の余分な原子面を明瞭化させた。これら 2 枚の余分な原子面の終端する点が転位芯の位置に相当する。この転位芯の原子カラムの位置を、Fig. 2(a),(d),(e)において丸で囲んで示す。Fig. 2(d),(e)はそれぞれ Al および Mn に対応する元素マップである。この結果から、Mn の偏析している領域は転位芯近傍約 $1\sim 2\text{nm}$ であり、特に余分な原子面とは反対側の引っ張りひずみの存在する領域に優先的に偏析していることが明らかとなった。また、Mn の検出された領域において Al の濃度が減少しており、Mn が Al サイトを置換していることが示唆された。これらの結果から、Al よりイオン半径の大きい Mn と転位芯近傍の応力場との間に弾性的相互作用が働いたために偏析が起こったものと考えられる。

さらに、コンタクト電流モードの原子間力顕微鏡(AFM)による電気伝導測定の結果、Fig. 3 に示すように局所的に電流のピークが検出された。この電流のピークは TEM で観察された貫通転位の配列様式および密度とほぼ対応していた。このことから、AIN 薄膜貫通転位に沿って一方向電気伝導性を発現させることに成功したといえる。

本実験の結果から、薄膜試料表面への金属蒸着および熱処理による拡散といった手法により、薄膜貫通転位に沿ってナノ細線を作製することが可能であることを示すことができた。

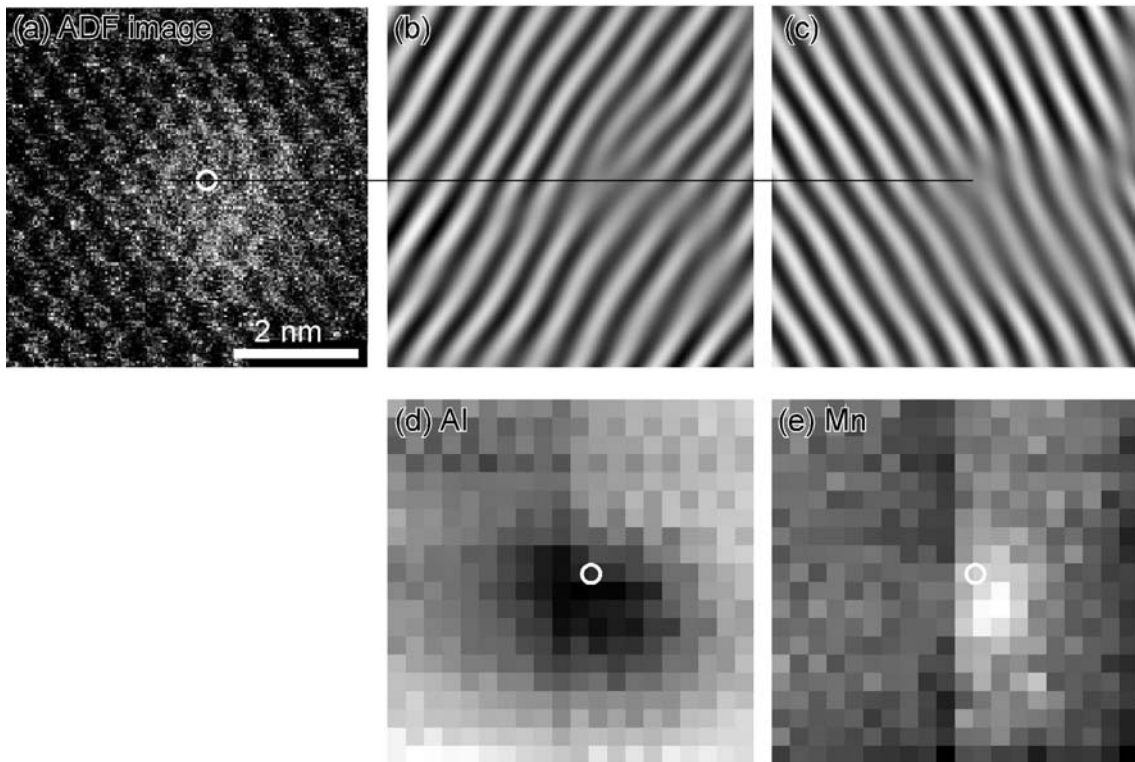


Fig. 2. (a) ADF image of an edge dislocation and (b), (c) Fourier-filtered images of (a). (d),(e) EELS mapping images of (d) Al and (e) Mn, obtained from the region corresponding (a). The position of the dislocation core was estimated from two extra half-planes in (b) and (c), and represented by solid circles in (a), (d) and (e).

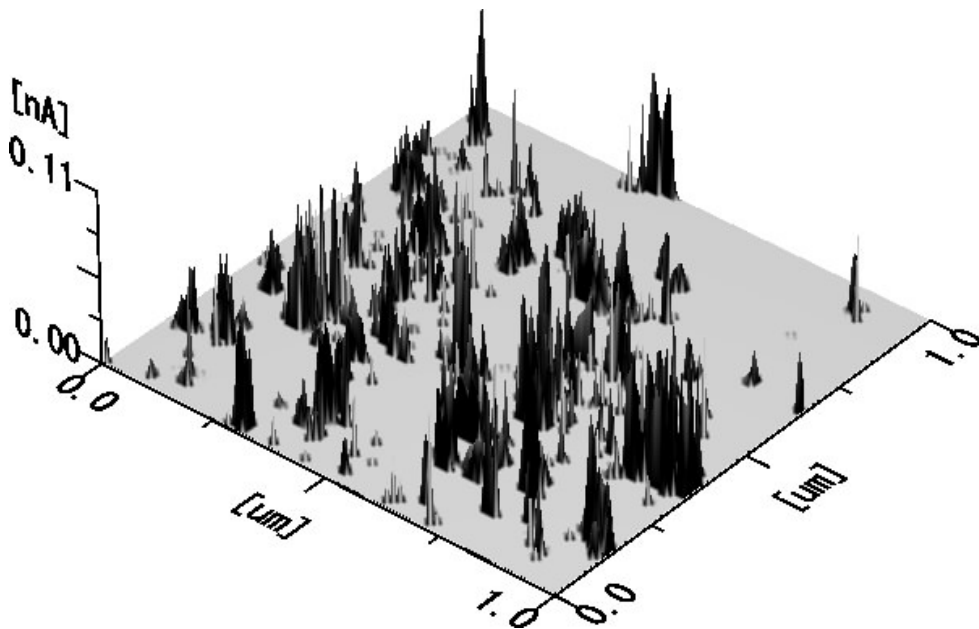


Fig. 3. Current mapping image obtained from the Mn-doped AlN using the contact-current mode of AFM.