

氏名	藤原伸介
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	論工博第3745号
学位授与の日付	平成15年5月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当
学位論文題目	化合物半導体の結晶成長における輸送現象と結晶欠陥低減に関する研究

論文調査委員 (主査) 教授 木村健二 教授 小森 悟 教授 藤田静雄

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、化合物半導体であるZnSeとInGaAsの高品質バルク結晶を実現することを目的として、輸送現象を解明し、更にその制御方法を提案・実証したものである。また、結晶欠陥低減方法についても提案・実証しており、6章からなっている。

1章は、序論であり、これまで行われてきた化合物半導体の結晶成長に関する研究を整理して述べるとともに、本研究の目的と位置づけについて述べている。

2章では、PVT法によるZnSe結晶成長に関して述べている。まず、閉管アンブルを使用した結晶成長において、新規に考案した“輸送速度のその場測定法”を使用して、輸送速度と成長温度の関係を調べている。その結果から、閉管アンブル内のガス組成がZn過剰になっていることを明らかにし、アンブル内ガス組成の変動が、成長速度の変動を引き起こしていると推測した。この問題を解決するために、アンブル中のガス組成が自動的に制御される“Arガスを封止した擬開管アンブルを使用した結晶成長法”を提案し、結晶成長実験において、成長速度の高い再現性を確認し、擬開管アンブルの有効性を明らかにしている。さらに、結晶に加わる熱応力を低減するためにマルコフ法の手法を取り入れ、直径30mm、転位密度 $1 \times 10^4 \text{cm}^{-2}$ 以下のZnSe結晶の成長を実現している。

3章では、ヨウ素を輸送材として使用したCVT法によるZnSe結晶成長に関して述べている。CVT法によるZnSe結晶成長において、大口径結晶の安定成長が困難である原因として、アンブル内でガス対流が発生しやすいことに着目し、(1)自動移動式の対流抑止盤の導入、(2)水平に配置したアンブルをその中心軸を中心に等速で回転させる回転CVT法、の2つのガス対流抑制方法を提案している。いずれの方法でも直径1インチのZnSe単結晶の安定成長が可能になることを、結晶成長実験によって実証している。特に回転CVT法に対しては、数値計算と成長実験を組み合わせ、アンブル回転と対流抑制や成長界面安定性の関係を詳細に調べ、無次元変数で表記される安定成長条件を得ている。

4章では、結晶成長時に結晶に作用する熱応力の低減を図ると共に、種結晶からの転位の伝播特性を利用して、直径12mmと小口径ではあるが、転位密度が $1 \times 10^3 \text{cm}^{-2}$ 以下(部分的には無転位)の極めて結晶性に優れたZnSe基板の作製に成功している。さらに、この基板をZn雰囲気中で熱処理することによって、極めて結晶性に優れたn型の導電性を有するZnSe基板を実現している。また回転CVT法による大口径ZnSe単結晶成長においても、同様の熱応力の低減を図り、転位密度が $1 \sim 2 \times 10^4 \text{cm}^{-2}$ 程度の大口径・導電性ZnSe基板を実現している。

5章では、InAsとGaAsの混晶であるInGaAs結晶をブリッジマン法で成長させたときに発生する偏析の抑制に関して述べている。融液対流による溶質輸送を十分に抑制すれば、偏析が抑制されるとの理論的予測を実証するため、スペースシャトルを使用した微小重力環境下で結晶成長を行っている。その結果、微小重力環境下で結晶成長を行うことによって、地上でのHB法による結晶成長と比べ、偏析が緩和されることを実証している。更に、地上においてVB法で成長させると、偏析が発生せず均一な組成分布が実現することを見出し、結晶成長中の融液対流抑制には、微小重力環境の利用よりも、VB

法における重い境界層による対流抑制の方が効果的であることを明らかにしている。

6章では、本論文で得られた成果について総括するとともに、本研究成果の産業上の波及効果について述べている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、化合物半導体である ZnSe と InGaAs の高品質バルク結晶を成長させることを目的として、PVT法、CVT法、融液法における輸送現象の解明と結晶欠陥低減法に関する研究成果をまとめたものであり、得られた主な成果は以下のとおりである。

1. PVT法による ZnSe 結晶成長において、アンプル内のガス組成と原料ガス輸送の関係を調べ、成長速度変動の原因が原料ガスの組成変動であることを明らかにした。また、この組成変動を抑制する結晶成長方法を提案し、実験的にその効果を実証した。さらに、マルコフ法を援用することにより優れた結晶性を持つ大型 ZnSe 結晶の成長を実現した。
2. CVT法による ZnSe 結晶成長において、成長界面モフォロジーの悪化の原因として考えられるガス対流による物質輸送に着目し、ガス対流を抑制するために、水平に配置したアンプルを回転させる方法（回転 CVT法）を提案した。この回転 CVT法に関する数値シミュレーションを行った結果、回転数の増加に伴ってアンプル内のガス対流が渦流から振動流に遷移し、輸送に対する対流の寄与が激減することを明らかにした。また、振動流に遷移する回転数 (F_c) 付近で、成長速度の面内均一性が最も高くなることを見出した。実際に CVT法による ZnSe 結晶の成長を行い、実際の結晶成長がシミュレーションの結果とよく一致することを示した。さらに、 F_c 付近の回転数で結晶を成長させることにより、成長界面モフォロジーの悪化を抑制して、従来の方法では不可能であった、直径 1 インチサイズの大型 ZnSe 単結晶の安定成長を実現した。また、欠陥密度の低減も可能にした。
3. 融液法による 3 元系化合物半導体結晶の成長における偏析現象を調べるため、地上および微小重力環境下で InGaAs 結晶の成長を実施した。これにより微小重力を利用することによって偏析が緩和できることを実証した。さらに、偏析を完全に抑制するために必要とされる融液対流抑制に関する指標を示した。

以上要するに、本論文は化合物半導体の結晶成長における輸送現象を解明することにより、高品質バルク結晶成長を実現するための重要な指針を与えたものであり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また平成15年4月18日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行なった結果、合格と認めた。