

氏 名	さくら い けい ちろう 櫻 井 啓 一 郎
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学位記番号	工 博 第 2045 号
学位授与の日付	平 成 13 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 電 子 物 性 工 学 専 攻
学位論文題目	MBE growth and properties of ZnO and ZnCdO thin films (ZnO および ZnCdO 薄膜の MBE 成長と物性に関する研究)
論文調査委員	(主 査) 教 授 藤 田 茂 夫 教 授 松 波 弘 之 教 授 石 川 順 三

論 文 内 容 の 要 旨

II-VI 族酸化物である ZnO は多様な機能を持つため、古くから圧電材料、透明導電材料、ガス検知材料さらにはバリスト材料として広く利用されてきた。一方 ZnO は、禁制帯幅が 3.4eV という紫外領域に対応するワイドギャップ材料であり、さらに 60meV という大きな励起子の結合エネルギーを持つため、励起子光物性を応用した発光・受光など光半導体デバイス材料として位置づけた研究に興味を持たれ、近年盛んに研究されている。とくに、励起子多体効果である励起子分子に基づく誘導放出は、低しきい値短波長動作半導体レーザなどの光デバイスの実現が期待されるほか、このような機能を従来機能と集積することによって新しい集積光電子機能デバイスの構築が可能であるため、現在注目を集めているワイドギャップ材料の一つで、そのデバイス応用が期待されているものである。

本論文は、紫外から可視短波長領域に対応する光デバイスや集積光電子機能デバイス用材料として期待される ZnO や ZnCdO に対して、そのようなデバイス応用に不可欠な高品質単結晶薄膜成長技術を確認するという観点、さらには、実際の応用に際して重要な量子井戸構造の構築という観点から、分子線エピタキシャル (MBE) 法による ZnO ならびに三元混晶 ZnCdO 単結晶薄膜の成長条件とそれらの諸物性を詳細に検討し、薄膜の高品質化成長技術に関する基礎的知見を得ることを目的として行った研究を纏めたもので、以下の 5 章から成っている。

第 1 章は序論であり、ZnO 系材料を光機能性ワイドギャップ半導体材料として見たとき、従来までの研究の歴史的展開を論じるとともに、そのようなデバイス応用を実現するためには薄膜単結晶の高品質化技術の確認が不可欠であることを述べて、本論文の意義と位置付けを行っている。そして、そのための研究課題を抽出して、本論文の研究目的を明確にしている。

第 2 章では、MBE 法による ZnO 単結晶薄膜作製技術において、酸素原料の供給法が未だ確立されていない現状に鑑み、初めて酸化窒素を酸素原料として用いて成長させた結果を述べている。酸化窒素を酸素原料とすることにより超高真空下において原料の熱クラッキングやプラズマ化を行うことなく ZnO 薄膜が成長することを見出している。さらにこのような原料系を用いて、サファイア基板結晶上に予めバッファ層の低温成長導入という 2 段階成長法により表面モフォロジーが改善されることを見出している。

第 3 章では、酸素原料として酸素ラジカルを用いた MBE 法の成長技術の確認という観点から、ZnO 薄膜成長に関する種々の成長パラメータ依存性について述べている。すなわち、ZnO 薄膜の結晶性、表面形態、光学的特性等に対する基板面方位、基板温度、原料供給比や酸素ラジカルセル構造など種々の成長条件依存性について実験的に調べ、成長条件の最適化を求めている。まず、過剰の酸素ラジカル供給により荒れた表面形態がもたらされるが、この荒れは基板となるサファイアの c 軸の極性にも依存すること、一般に用いられるサファイアの c 面よりも a 面の方が良好な特性が得られることなどを明らかにしている。さらに、薄膜の結晶性に及ぼす基板傾斜角依存性を調べ、c 面基板では傾斜基板を用いることにより結晶性の向上に寄与すること、a 面基板では ZnO の結晶軸が基板表面に対して傾斜することを見出している。

第4章においては、ZnOとCdOの混晶であるZnCdO材料がその組成によってバンドギャップが変調可能であり、量子井戸構造の井戸層として機能する可能性があることに着目して、この混晶薄膜のMBE成長について述べている。ZnOからCdOまで混晶薄膜の組成を変化して成長させても、Cd組成は不均一な混和が発生することを示すとともに、特定の成長条件において、初めて強い青色発光を示すZnCdO薄膜の作製に成功している。さらに、この青色発光の発光起源に関して、走査型電子顕微鏡、微小領域エネルギー分散X線分析や、光物性測定の結果などから考察を行い、この混晶薄膜が、励起子による高効率発光のポテンシャルを有することを明らかにしている。

第5章は結論であり、本研究で得られた結果を纏めて要約している。

論文審査の結果の要旨

II-VI族酸化物であるZnO系材料は、紫外領域に対応する大きなバンドギャップを有するとともに、励起子結合エネルギーが60meVという大きな値を持つため、可視領域から紫外領域で動作する励起子が関与した光機能デバイス材料として有望な材料である。しかしながら、光機能デバイスに応用し得る高品質薄膜結晶の成長技術や物性制御技術が未熟でその確立が望まれていた。本論文は、このようなZnOやZnCdOの薄膜の分子線エピタキシャル成長(MBE)技術により、成長条件の最適化と物性評価を通じて、これらの薄膜の高品質化を達成することを目的として研究した結果を纏めたもので、得られた主な成果は以下の通りである。

1. ZnOのMBE成長において代通常酸素原料はプラズマ化して供給されるが、本研究では初めて酸素原料に酸化窒素(N_2O および NO_2)を用い、熱によるクラッキングやプラズマ化などを行うことなくZnO薄膜が成長可能なことを実験的に見出している。

2. 酸素ラジカルを用いたZnOのMBE成長において、サファイアを基板とした場合の基板面方位や基板温度をパラメータとして、さらに酸素ラジカル発生用セル構造に工夫を加えて、成長層の結晶性に与える影響について詳細に検討することによって、ZnO薄膜成長の最適化条件に対する知見を得ている。

3. ZnOとCdOの混晶であるZnCdO材料はそのバンドギャップが組成によって変調可能であることに注目して、ZnCdO薄膜のMBE成長を行い、Cd組成の不均一な混和が発生することを示すとともに、特定の成長条件によって初めて強い青色発光を呈するZnCdO薄膜の作製に成功している。また、この青色発光の起源について、走査型電子顕微鏡、微小領域エネルギー分散X線分析や光物性測定などの結果と併せて考察を行い、励起子による高効率発光のポテンシャルを有することを明らかにしている。

以上を要するに本論文は、ZnOおよびZnCdOのMBE成長において、光機能デバイスに応用し得る高品質化と高効率発光に対する成長条件に関して有用な知見を与えたもので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13年2月20日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。