

(論文内容の要旨)

本論文は、深紫外発光デバイスや新機能デバイス用半導体材料として有望な AlN(窒化アルミニウム)の SiC(炭化珪素)無極性面上エピタキシャル成長と物性評価、デバイス応用に関する研究をまとめたもので、7章からなる。

第1章では、AlN 半導体の物性、結晶成長とこれを用いた短波長発光デバイス、ならびに SiC パワーデバイスの現状を紹介した後、高品質無極性面 AlN の必要性を述べ、これを達成するためには、4H-SiC 無極性面上への AlN のポリタイプ整合成長が有効であることを論じている。次に、これを実現するための研究課題を整理して当該分野における本研究の位置付けと目的を明らかにしている。

第2章では、本研究で扱う分子線エピタキシー成長装置の概要と、SiC 基板上へ AlN 成長を行う際に必要となる基板の表面処理について述べている。SiC(0001)面においてこれまで確立された表面処理方法として、HCl ガスエッチングおよび Ga 蒸着脱離処理があり、HCl ガスエッチングは原子レベルでの表面平坦化、Ga 蒸着脱離処理は表面残留酸素の除去を目的としている。本研究で用いる無極性(11 $\bar{2}$ 0)面および(1 $\bar{1}$ 00)面 SiC 基板に対するこれらの表面処理の効果について検討し、HCl ガスエッチングを行うことによって、(11 $\bar{2}$ 0)および(1 $\bar{1}$ 00)各無極性面において原子レベルで平坦な表面が得られることを見出した。また、Ga 蒸着脱離処理については、各無極性面において、(0001)と同様に表面残留酸素の低減に有効であることを明らかにしている。

第3章では、(11 $\bar{2}$ 0)、(1 $\bar{1}$ 00)各無極性面について、4H-SiC 基板上にポリタイプ整合成長した 4H-AlN の高品質化について述べている。まず、(11 $\bar{2}$ 0)面においては、HCl ガスエッチングによって原子レベルで平坦な SiC 基板表面を実現し、さらに AlN 成長を行う条件(V/III 比)の最適化を行うことで成長中の表面荒れを大幅に低減している。この SiC 基板表面および AlN 成長表面の平坦化によりポリタイプ整合成長を促進することで、これまでの結果と比較して約 10 倍の広範囲においてポリタイプ整合成長を実現している。得られた AlN の透過電子顕微鏡(TEM)観察から、積層欠陥密度を $2 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ 、貫通転位密度を $8 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$ まで低減することに成功している。これらの欠陥密度は従来に比べて一桁以上低く、最高水準の高品質 AlN の成長に成功したと言える。また(1 $\bar{1}$ 00)面においては、平坦化した SiC 基板上に AlN 成長を行うことで、100 周期以上の安定な反射電子線回折(RHEED)振動を観測し、かつ AlN 成長初期の表面モフォロジー観察において明瞭な二次元島を観察した。無極性面上での AlN の二次元 layer-by-layer 成長が実現可能であることを初めて示した。この layer-by-layer 成長を実現した AlN では、積層欠陥密度が $1 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ であり、従来の結果と比較して約 1/5 に低減されている。また、この積層欠陥の発生箇所について調べ、従来問題となっていた AlN 成長中の積層欠陥の発生を抑制することに成功し、そのほとんどが AlN/SiC 界面より発生していることを明らかにしている。

第4章では、4H-AlN(11 $\bar{2}$ 0)、(1 $\bar{1}$ 00)成長層の欠陥構造と基礎物性を評価している。まず、4H-AlN/4H-SiC 界面の高分解能 TEM 観察により、一般的なウルツ鉱(2H)構造 GaN において報告されているものとは異なるショックレー型積層欠陥が支配的であることを明らかにしている。次に、この積層欠陥が X 線回折に与える影響について理論的考察を行い、

TEMにおいて観察された4H-AlNの積層欠陥はX線回折半値幅に影響しないことを明らかにしている。また、高分解能X線回折による4H-AlNの格子定数の精密測定を行っている。4H-SiC上に成長した4H-AlNの格子定数を複数の回折を利用して測定したところ、基板からの面内異方性ひずみによって、本来六方晶である結晶の対称性が低下し、斜方晶へと変形していることを明らかにしている。通常のSiC(0001)極性面上の成長においては、AlNは膜厚数十nmで緩和することが知られているのに対して、無極性面4H-AlNでは膜厚300nm以上のものにおいても面内格子定数が基板と同一の値を有するコヒーレント成長が実現されていることが分かった。また、カソードルミネセンスと反射率測定により4H-AlNの禁制帯幅を決定している。さらに、ラマン分光法によって4H-AlNにおける格子振動モードを決定し、積層構造がAlNの物性に及ぼす影響を論じている。

第5章では、発光デバイス応用の基礎検討として、4H-AlGaNの成長とAlN/AlGaN多重量子井戸(MQW)構造の作製およびその光学的特性について述べている。無極性面4H-SiC上への無極性面4H-AlGaN成長を行ったところ、Ga取り込み率に大きな面極性依存性を見出した。(1 $\bar{1}00$)面ではGa組成10%程度のAlGaNが成長するAl/Ga供給比においても、(11 $\bar{2}0$)面ではGaがほとんど取り込まれず、AlNが成長することが分かった。また、AlGaN成長後の反射電子線回折パターンが4H構造パターンを示したことから、AlGaNにおいてもポリタイプ整合成長(4H-AlGaN成長)が可能であることを明らかにしている。さらに、この4H-AlGaN(1 $\bar{1}00$)面を用いてAlN/AlGaN MQW構造の作製を行い、様々な評価を行っている。X線回折およびTEM観察から、急峻な多重量子井戸構造が形成されており、またAlN障壁層/AlGaN井戸層界面において新たな積層欠陥や転位が発生することなく、ポリタイプ整合成長が実現されていることが分かった。カソードルミネセンスによる発光スペクトルでは、5.3 eV (234 nm)に強いピークが観測され、励起パワー密度増大に伴う発光ピークのブルーシフトが観測されなかったことから、内部電界のない高品質AlGaN/AlN MQWが形成できていることを明らかにしている。

第6章では、電子デバイス応用の基礎検討として、4H-AlN/4H-SiC界面を活用する金属・絶縁膜・半導体電界効果トランジスタ(MISFET)を作製し、その特性を評価している。まず、MISキャパシタによる界面特性の評価を行い、界面近傍に存在する固定電荷密度や界面準位密度を明らかにしている。次に、SiCエピタキシャル成長、イオン注入、AlNポリタイプ整合成長、微細加工技術などを集約してnチャネル4H-AlN/4H-SiC MISFETを作製している。4H-SiC(11 $\bar{2}0$)面上の高品質4H-AlNを用いることにより、この材料系で初めて明確なトランジスタ特性を得ることに成功している。今後、改善すべき点はあるものの、価数の異なるヘテロバレント系の界面を用いたFET動作は特筆すべきである。また、作製したデバイス特性の解析から、変調ドーピング現象の可能性を議論している。

第7章は結論であり、本研究において得られた無極性面4H-SiC(11 $\bar{2}0$)面および(1 $\bar{1}00$)面上にポリタイプ整合成長した4H-AlNに関する結晶性、物性、デバイス応用の基礎に関する知見についてまとめている。また、4H-AlNを用いた光デバイスおよび電子デバイス実現に向けた課題と研究方針を提案している。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、深紫外発光デバイスや新機能デバイス用半導体材料として有望なAlN(窒化アルミニウム)のSiC(炭化珪素)無極性面上エピタキシャル成長と物性評価、デバイス応用に関する研究をまとめたものであり、得られた主な成果は以下の通りである。

1. 高品質AlN無極性面を得るために、4H-SiC(11 $\bar{2}$ 0)、(1 $\bar{1}$ 00)面を基板として採用し、AlNの分子線エピタキシャル成長におけるポリタイプ(結晶多形)引継ぎと高品質化を達成した。具体的には、SiC基板の高温ガスエッチングと成長時の原料供給比の精密制御により原子レベルで平坦な表面を維持することによって、従来のウルツ鉱(2H)構造ではなく、SiC基板の積層構造を引き継いだ4H構造のAlN(4H-AlN)を創成できることを示した。成長時の高速反射電子線回折やAlN成長層の表面モフォロジー観察からエピタキシャル成長機構を論じると共に、AlN成長層の高品質化を進め、従来に比べてAlN中の積層欠陥密度や転位密度を桁違いに低減することに成功した。
2. 4H-AlN(11 $\bar{2}$ 0)、(1 $\bar{1}$ 00)成長層の欠陥構造と物性を初めて明らかにした。具体的には、透過電子顕微鏡観察により4H-AlN特有の積層欠陥構造を明らかにし、高分解能X線回折により格子定数を決定した。また、カソードルミネセンスと反射率測定により4H-AlNの禁制帯幅を、ラマン散乱により格子振動モードを明らかにし、積層構造がAlNの物性に及ぼす影響を論じている。
3. 4H-AlN無極性面結晶を用いて、優れた発光デバイス応用、および電子デバイス応用の可能性を示した。発光デバイス応用の基礎検討として、4H-AlGaNの成長とAlN/AlGaN多重量子井戸構造の作製およびその光学的特性について詳細に調べ、結晶面によりGa取り込み効率が大きく異なることを見出し、(1 $\bar{1}$ 00)面が多重量子井戸構造の作製に有効であることを示した。さらに、4H構造を維持した多重量子井戸の作製に成功し、深紫外域に強いバンド端発光を得ている。次に、電子デバイス応用の基礎検討として、4H-AlN/4H-SiC界面を活用する金属-絶縁膜-半導体電界効果トランジスタ(MISFET)を作製し、その特性を評価した。4H-SiC(11 $\bar{2}$ 0)面上の高品質4H-AlNを用いることにより、この材料系で初めて明確なトランジスタ特性を得ることに成功すると共に、変調ドープ現象の可能性を議論している。

以上、要するに、本論文は、4H構造を有するAlN結晶を創成し、その固有物性や欠陥構造を解明すると共に、無極性面の特徴を活かした高効率深紫外発光デバイスの基本構造、および良好なAlN/SiC MISFETを実現したもので、学術上、實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21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。