

氏 名	大 西 新 造 おおにし しんぞう
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	工 博 第 565 号
学位授与の日付	昭 和 53 年 7 月 24 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 電 子 工 学 専 攻
学位論文題目	ZnO の圧電性配向薄膜と光導波路用単結晶薄膜の作製
論文調査委員	(主 査) 教 授 川 端 昭 教 授 田 中 哲 郎 教 授 佐々木昭夫

論 文 内 容 の 要 旨

この論文は超音波トランスジューサあるいは光導波路に用いることを目的とした ZnO 薄膜の作製方法を検討し、成長条件と得られた膜の性質との関連性を系統的にしらべ、ZnO 膜の成長機構について考察を試みたもので、9 章からなっている。

第 1 章は序論で、ZnO 薄膜と ZnO 単結晶育成に関する歴史的背景を概説し、本研究の位置づけとその目的とが述べられている。とくに圧電性薄膜についてはその成長速度の向上が要求されていること、および光導波路用薄膜については表面平坦性を得るため表面研磨の加工が必要とされている現状について述べている。

第 2 章では ZnO 焼結体をターゲットとした高周波スパッタリングによる ZnO 圧電性配向薄膜の作製条件と得られた膜の性質について述べている。すなわち基板としてはガラス、熔融石英およびサファイア結晶をとり上げ、雰囲気ガスの種類、ガス圧、基板温度、基板位置および高周波電力などのスパッタリング条件を種々変えて実験を行ない、得られたスパッタ膜の析出速度、膜厚の均一性および結晶軸配向性などを測定し、圧電性の優れた ZnO 薄膜の成長条件を見出している。とくにターゲットの下側に永久磁石を設置し、スパッタリングに際して 100 ガウス程度の磁界を加えることにより析出速度が約 10 倍 ($4 \mu\text{m/hr}$) ほど高速化されることを示した。磁界により放電プラズマ中の電子が閉じ込められ、基板に衝突する電子数が低減されるため析出速度が向上すること、および析出膜の表面平坦性や膜厚の均一化、さらには透明度や結晶軸配向性が改善されると説明している。基板にガラスを用いた場合、酸素とアルゴン混合ガスの圧力が 10^{-2}torr 、基板温度が 300°C 以上で c 軸配向性のよい圧電性 ZnO 膜が得られ、測定された実効電気機械結合定数の値は単結晶で期待される値の 80~90% に及ぶことを報告している。また (0001) 面あるいは (01 $\bar{1}$ 2) 面をもつサファイア基板上にはそれぞれ (0001) 面あるいは (11 $\bar{2}$ 0) 面をもつ ZnO 薄膜がエピタキシャル成長することを示し、磁界印加により従来より低温の基板温度で、より高速化が達成されることを報告している。

第 3 章ではサファイア基板を用いて CVD (化学気相輸送) 法による ZnO 薄膜単結晶の成長に関する実

験結果をまとめている。まず $\text{ZnO}-\text{Br}_2-\text{O}_2$ 気相成長系を用いた方法では Br_2 ガスをキャリアとして用いるため炉の構成が複雑になり、成長速度の遅い欠点を指摘している。また ZnCl_2-O_2 気相成長系では成長速度の向上は認められるが、きびしい温度制御が要求されることを示している。これらの経験に基づき、 $\text{ZnO}-\text{H}_2-\text{H}_2\text{O}-\text{O}_2$ 気相成長系を採用することにより温度制御の容易さ、成長速度の向上および成長層表面の平滑化が達成できることを示した。とくにサファイア面に $2000 \text{ \AA}$ 以下の薄い ZnO スパッタ膜を予め成長させておくことと成長層表面の平坦性が著しく改善され、鏡面状表面をもった単結晶膜が再現性よく成長することを報告している。

第4章、第5章および第6章では ZnO 膜の成長条件と得られた膜の性質との関連性について系統的に検討を加え、成長機構について考察を加えている。すなわち光学顕微鏡による成長層の観察、表面あらさ計による表面平坦性の測定、X線回折図形やロッキング曲線から求められる結晶軸の配向度およびX線ラウエ写真などによる結晶性の評価を行なっている。これらの結果からサファイア基板上に直接 CVD 法によっても ZnO がエピタキシャル成長するが、一般に粒子状結晶が成長し易く、成長層の平面性が得られにくいことを示している。しかしサファイア基板上にごく薄いスパッタ膜を設けて CVD 法で膜成長させる場合には、スパッタ膜の ZnO が結晶成長の核となるため、結晶核の高密度化が達成され、鏡面状表面をもつ成長層が容易に得られると結論している。

第7章では前章の結論をもとに矩形状断面をもつ光導波路の実用化に適した形成方法を提案している。すなわち、サファイア基板上に光導波路のパターン、いかえると ZnO 気相成長層の必要な部分にのみスパッタ膜を設けておくと、選択的にその部分にのみ気相成長層が形成され、表面研磨などの加工を加えることなしに光導波路が作製できることを示している。

第8章では光導波路用に作製された ZnO 膜の光学的性質について述べている。波長 $0.4\sim 2.3 \mu\text{m}$ の領域で透明であり、 He-Ne レーザ光源を用いて光導波路に光ビームを伝播させて光の減衰率を測定しているが、0次の TEモードで 0.7 dB/cm という小さい値を得ており、光 IC 回路として実用し得ることを述べている。

第9章は結論を述べたもので、以上得られた成果を要約したものである。

論文審査の結果の要旨

ZnO 結晶は圧電性を示し、可視光から近赤外光の領域で透明であることが知られている。本論文は超音波トランスジューサあるいは光導波路として用いることを目的とした ZnO 薄膜の作製方法について検討を加え、得られた結果をまとめたもので主な成果は次のとおりである。

(1) ZnO 焼結体をターゲットとした高周波スパッタリング法による ZnO 薄膜の成長には、基板表面近くに 100 ガウス程度の磁界を加えることにより成長速度の高速化が達成できることを示し、 $4 \mu\text{m/hr}$ なる値を得て工業化の見通しを与えている。そしてこの原因は磁界により放電プラズマ中の電子が閉じ込められて、基板に衝突する電子数が減小させられるため、膜の成長速度を向上させるだけでなく、成長膜表面の平坦性、膜厚の均一化ならびに結晶軸配向性なども改善されることを見出している。またガラス基板上に成長させた ZnO 膜では、実効電気機械結合定数の値にして単結晶で得られる値の 90% に及ぶことを

示している。

(2) サファイア基板上に CVD (化学気相輸送) 法による ZnO 単結晶薄膜の成長を試み、 $\text{ZnO-H}_2\text{-H}_2\text{O-O}_2$ 気相成長系が温度制御の容易さ、成長速度の早さおよび成長層表面の平滑さなど優れた特徴をもつことを示した。とくにサファイア表面に $200\sim 2000\text{ \AA}$ 程度の薄い ZnO スパッタ膜を予め成長させておくと、CVD 法により成長させた膜表面の平坦性が著しく改善されることを見出している。この原因を究明するため成長条件と得られた膜の性質との関連性を系統的に検討し、その結果スパッタ膜の ZnO が結晶成長の核となり、結晶核の高密度化により鏡面状表面をもつエピタキシャル単結晶膜が容易に、しかも再現性よく成長させ得ると結論している。

(3) 上記の成長機構に関する知見を積極的に利用した矩形状断面をもつ光導波路の形成方法を提案している。すなわちサファイア基板上に必要とする光導波路のパターンと同じパターンの薄い ZnO スパッタ膜を成長させ、その上に CVD 法により気相成長させると、スパッタ膜の存在する部分にのみ鏡面状表面をもった ZnO 単結晶がエピタキシャル成長することを示した。

(4) CVD 法により得られた ZnO 単結晶薄膜に He-Ne レーザ光ビームを閉じ込めて伝播させ、減衰率を測定した結果、TE モードの 0 次光で 0.7 dB/cm という小さい値を得ており、光 IC 回路の光導波路として実用し得る可能性を明らかにした。

以上要するに、この論文は高周波スパッタリング法あるいは CVD 法による ZnO 薄膜の作製法に関する多くの知見を提供し、圧電トランスジューサ素子あるいは光導波路素子として実用できることを示したもので、学術上、工学上寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。