

京都大学	博士（工学）	氏 名	金子 光顕
論文題目	Strain-Controlled AlN Growth on SiC Substrates (SiC 基板上への歪み制御 AlN 層の成長)		
(論文内容の要旨)			
本論文は、次世代の光・電子デバイス用半導体として有望な高Al組成AlGaIn混晶の高品質結晶成長に向けて、SiC基板上のAlNエピタキシャル成長、物性評価およびAlN層の歪み制御に関する基礎研究をまとめたもので、6章からなる。 第1章では、Ⅲ族窒化物半導体の性質とこれを用いた短波長発光デバイスおよび電子デバイスの研究開発に関する現状を紹介した後、さらなる短波長化や高電力密度化を達成するためには高Al組成AlGaIn混晶の高品質結晶成長が必要であることを述べている。しかしながら、高Al組成AlGaInに格子整合する単結晶基板が存在しないため、異種基板上にヘテロエピタキシャル成長する必要があることを指摘し、これを実現するためには歪みを制御したAlN層を大口径SiC基板上に作製し、これをAlGaInの下地層として用いることが有望であることを提案している。次に、これを達成するために予測される課題と関連する先行研究を整理し、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、本研究において扱う分子線エピタキシー成長装置の概要ならびに成長条件の検討について述べている。SiC基板表面の原子ステップ高さ制御の効果を説明した後、成長初期における窒素とアルミの原料供給比（Al/N比）の精密制御が高品質AlN層を得る上で極めて重要であることを述べている。従来、SiC基板表面の窒化現象を抑制するために、窒素源である窒素プラズマ点灯直後にAlN成長を開始する手法を採用してきたが、プラズマ点灯直後の過渡特性をプラズマ発光分光測定により定量的に評価し、プラズマ点灯直後は活性窒素の供給が不足し、過度にAl過剰となっていることを明らかにした。このプラズマの過渡特性解析を元に、プラズマ点灯から若干の待機時間（60秒）を設けてAlNの成長を開始すると、成長初期から最適な原料供給比（Al/N比）を維持することができ、高品質AlN層を再現性良く成長できることを示した。 第3章では、SiC基板上に成長したAlN層の歪み量および物性評価について述べている。具体的には、SiC(0001)基板上にコヒーレント成長したAlN層の格子定数、光学的性質と格子振動数について調べ、歪みがAlNの物性に与える影響について議論している。まず、高分解能X線回折により格子定数の測定を行い、SiC基板にほぼ完全に格子整合したAlN層では予測どおり非常に大きな圧縮歪みが存在することを明らかにしている。その後、低温フォトルミネセンス測定と光学的反射測定を行い、AlNの価電子帯頂上付近に存在する3種類のバンドからの遷移を偏光特性から同定し、光学的反射測定に関しては理論式によるフィッティングを行うことで遷移エネルギーを求めている。先述の歪み量と近年報告された伝導帯および価電子帯の変形ポテンシャルの値から計算した遷移エネルギー変化量が、今回得られた結果と概ね一致するものの、わずかに異なることを指摘している。さらに、ラマン散乱測定を行い、c軸入射・後方散乱の光学配置でラマン活性な全てのモード（E₂(low)、E₂(high)、A₁(LO)）に対して格子振動数（フォノン周波数）を測定し、フォノン変形ポテンシャルを			

京都大学	博士（工学）	氏 名	金子 光顕
近年報告された弾性スティフネス定数を用いて補正することで、歪み量と格子振動数変化の定量的な関係を示すことに成功している。 第4章では、AlNより格子定数の大きい極薄Ga₂N層の導入を利用した歪み制御AlN層の成長について述べている。まず、SiC(0001)基板上にコヒーレント成長したAlN層の上に、様々な条件で極薄Ga₂N層の成長を試み、わずかにAl過剰の成長条件において良好な極薄Ga₂N層の成長が可能であることを示した。同条件で極薄Ga₂N層の膜厚を変化させた試料を作製し、2分子層のGa₂N層はコヒーレント成長するが、3分子層のGa₂N層は格子緩和を起こすことを見出した。ここで、極薄Ga₂N層の格子定数は、その緩和度に応じてSiCの格子定数（コヒーレント成長）からバルクGa₂Nの格子定数（完全緩和）まで変化させることができる。そこで、極薄Ga₂N層を中間層として挿入し、緩和度（Ga₂N膜厚）を変化させることで、その上に成長したAlN層の歪み制御を行った。このようなAlN成長層を作製してラマン散乱測定を行い、AlN層の歪み量を解析したところ、Ga₂N層の緩和度に応じてAlN層の面内歪みを-0.53%の圧縮から+0.07%の引張り歪みの広い範囲で制御できることを示した。また、AlN/Ga₂N短周期超格子の作製も試み、平均Gaモル分率14-20%となるAlN/Ga₂N超格子のコヒーレント成長に成功している。 第5章では、SiC(0001)基板表面に存在する原子ステップ端に生成される界面局在ミスフィット転位を活用したAlN層の歪み制御について述べている。本研究ではSiCとAlNのポリタイプ不整合に起因する面欠陥発生を抑制するために、SiC基板に高温水素ガスエッチングを施し、ステップ高さ制御を行っているが、その上に成長したAlN層にはSiC基板のステップ端に沿って長く伸びたU字形の転位ハーフループとして刃状転位が存在している。このU字形転位ハーフループの底部はAlN/SiC界面に存在するため、界面に局在したミスフィット転位と見なせる。そこで、ステップ高さ制御SiC基板上にAlN層を成長した試料に対して、AlN(0002) 対称面近傍のX線回折逆格子空間マッピングを行うと、q_x方向（横方向、面内方向）にサテライトピークが±4次まで観測されること、およびそのピーク間隔から求めた実空間での周期は1.0 μmとなり、原子間力顕微鏡で求めたSiC基板表面のステップ間隔と良く一致することを示した。この横方向サテライトピークの観測は、基板表面のステップによりミスフィット転位の導入を制御し、かつ界面に局在させる可能性を示すものである。そこで、オフ角を積極的に導入することで、より歪みを緩和したAlN層を得ることを目指した。オフ角が0.08°および0.25°のSiC(0001)基板上にAlN層を成長し、AlN(0002) 対称面についてロッキングカーブ測定（q_x方向のスキャン）を行うと、どちらも横方向サテライトピークが観測されたが、ピーク間隔が異なることを示した。つまり、基板のステップ間隔を変化させることにより、ミスフィット転位密度が異なるAlN層が成長できたと言える。オフ角が0.25°基板上のAlN層は0.08°のAlN層より歪みが小さくなっていることを明らかにしている。これらの結果を元に、さらにオフ角を大きくすることでより緩和度の大きい（歪みの小さい）AlN層が成長できることを提案している。 第6章は結論であり、本研究において得られたAlN単層の高品質成長の実現、歪みAlNの物性評価、歪み制御AlN層成長に関する知見をまとめている。また、当該分野における今後の研究課題を提示し、これらの課題解決に向けた研究指針を提案している。			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、次世代の光・電子デバイス用半導体として有望な高Al組成AlGa_{0.1}N_{0.9}混晶の高品質結晶成長に向けて、その下地層となりうるSiC基板上の歪み制御AlN成長、および歪みを有するAlN結晶の物性評価に関する基礎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. 窒素源である窒素プラズマ点灯直後にAlN成長を開始する手法を採用してきたが、発光分光測定により、プラズマ点灯直後は活性窒素の供給が不足し、過度にAl過剰となっていることを明らかにした。このプラズマの過渡特性解析を元に、若干の待機時間を設けてAlNの成長を開始することにより、成長初期から最適な原料供給比 (Al/N比) を維持することができ、高品質AlN層を再現性良く成長できることを示した。
2. SiC(0001)基板上にコヒーレント成長したAlN層の格子定数、光学的性質と格子振動数について調べ、歪みがAlNの物性に与える影響を明らかにした。特に、歪み量とエネルギーバンドの変形ポテンシャルから計算したAlNの光学的遷移エネルギーの変化量が、実験的に得られた値と概ね一致するものの、わずかに異なることを指摘した。また、ラマン散乱測定により求めた格子振動数 (フォノン周波数) を解析し、歪み量と格子振動数変化の定量的な関係を示すことに成功した。
3. AlNより格子定数の大きい極薄Ga_{0.1}N_{0.9}中間層の導入を利用した歪み制御AlN層の成長を試み、極薄Ga_{0.1}N_{0.9}層の緩和度に応じてAlN層の面内歪みを-0.53%の圧縮から+0.07%の引張り歪みの広い範囲で制御できることを示した。また、AlN/GaN短周期超格子の作製も試み、平均Gaモル分率14-20%となるAlN/GaN超格子のコヒーレント成長に成功した。
4. SiC(0001)基板表面に存在する原子ステップ端に生成される界面局在ミスフィット転位を活用したAlN層の歪み制御を試み、SiC基板表面のステップ間隔を変化させることにより、ミスフィット転位密度が異なるAlN層を成長できることを示した。これにより、SiC基板のオフ角を変えることによりAlN層の歪みを制御できる可能性を提案し、その機構について論じた。

以上、要するに、本論文はSiC基板上に高品質AlN層を再現性よく成長するプロセスを確立した後、SiC基板に格子整合して成長した強い圧縮歪みを有するAlNの物性を明らかにし、さらに極薄Ga_{0.1}N_{0.9}中間層の導入やSiC基板表面のステップ構造を活用することによってAlN層の面内歪み量を圧縮から引張りの広い範囲で制御することに成功したもので、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28年8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って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。