

# 論文内容要旨 (和文)

平成25年度入学 大学院博士後期課程

電子情報工学専攻

氏 名 P. PUNGBOON PANSILA



論文題目 Growth kinetics study of gallium oxide and gallium nitride by using plasma enhanced atomic layer deposition  
(プラズマ励起原子層堆積による酸化ガリウム・窒化ガリウムの成長機構に関する研究)

アモルファス酸化ガリウムは太陽電池などの光エレクトロニクス素子に用いられる。また、アモルファスの窒化ガリウムは窒化ガリウムを用いた電子デバイスにおいてエピタキシャル層の格子不整合を抑制する緩衝層として用いられている。本研究では、サーマルバジェットを抑制することで、フレキシブルエレクトロニクス向けに活用できる、プラズマ励起原子層堆積を用いた酸化ガリウムと窒化ガリウムの形成を試みた。本研究の目的は次の3つである。1) 酸化ガリウムの室温原子層堆積法を確立する。2) 窒化ガリウムの近室温原子層堆積法を確立する。3) 酸化ガリウムと窒化ガリウムの成長過程を明らかにすることである。本研究では表面に対して高い感度を持つ多重内部反射型赤外吸収分光法を用いて、反応過程をその場観察できる装置を構築し、反応機構の研究を行った。その場観察から得られた情報をもとに、酸化ガリウムにおいては室温堆積、窒化ガリウムにおいては近室温である115°Cでのプロセスを設計し、酸化ガリウムと窒化ガリウムの製膜の実証を目指した。上記の研究背景と研究目的を1章にまとめている。

2章では、本研究で用いた実験装置、特に原子層堆積装置の詳細と関連する分析手法についてまとめた。

3章では、酸化ガリウムの室温原子層堆積に関する実験結果を記載した。本章では、原料ガスにトリメチルガリウム (TMG) と酸化ガスとして加湿酸素プラズマガスを用いて製膜を行った。製膜速度として0.055 nm/cycleが得られた。膜厚がサイクル数に対して線形に増加していることからALDモードでの製膜が示された。また、表面反応の検討として、加湿酸素プラズマガスはTMGの吸着サイトとなるOH基の形成に効果があること、表面に発生する炭化水素濃度の解析から、TMGは水酸基終端表面に対して2サイト型の吸着、すなわち解離吸着機構を取ることが見出された。それを基に飽和のための原料ガスの照射量、被覆率と照射量の関係、反応モデルを提示した。

4章は、窒化ガリウムの原子層堆積を低温化するための機構解明に関わる、窒化のその場観察研究の結果を記載した。本章では、多重内部赤外吸収分光法を用いて、アンモニアガスとプラズマ化したアンモニアガスによるSi (100) 基板表面の窒化過程の観察を行った。また、X線光電子分光法を用いて表面分析を行った。この結果より、プラズマ化したア

ンモニアガスはプラズマなしと比べて低温でSi基板表面を窒化できることが明らかになった。このことより、窒化ガリウム原子層堆積を低温化するための可能性を見出した。

5章は、窒化ガリウムの近室温原子層堆積に関する実験結果を記載した。本章では、原料ガスにTMGと窒化ガスとしてプラズマ化したアンモニアを用いて製膜を行った。製膜速度として0.045 nm/cycleが得られた。膜厚がサイクル数に対して線形に増加していることからALDモードでの製膜が示唆された。また、表面反応の検討として、表面に発生する炭化水素濃度の解析から、TMGは水素終端表面に対して2サイト型の吸着機構、すなわち解離吸着機構を取ることが見出された。それを基に飽和のための原料ガスの照射量、被覆率と照射量の関係、反応モデルを提示した。さらに、窒化時に基板温度を115 °Cで加熱することで吸着したTMGの炭化水素が除去されて、TMGが再吸着可能な状態になることが示された。この結果より、TMGの吸着時は基板温度を室温にし、吸着量を増大せしめ、窒化時には基板温度を上げる、温度制御型の原子層堆積プロセスを構築した。本プロセスを用いることで、従来法と比較して低温で窒化ガリウムを製膜することに成功した。この低温化によって、従来法では困難であったフレキシブル・ソフトマテリアル上への窒化ガリウムの製膜の可能性を示した。

6章は、酸化ガリウム、窒化ガリウムの原子層堆積の実験より得られた結論をまとめた。また、見出された知見が同分野へもたらす効果と開発技術の応用の可能性についても記載した。

上記の結果は査読付きの英語論文3報と2つの国際会議で議論を行った。

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成 28 年 2 月 12 日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 廣瀬 文彦

副査 石井 修

副査 齊藤 敦

副査 久保田 繁



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

論文申請者	電子情報工学専攻 氏名 P. PUNGBOON PANSILA		
論文題目	Growth kinetics study of gallium oxide and gallium nitride by using plasma enhanced atomic layer deposition (プラズマ励起原子層堆積による酸化ガリウム・窒化ガリウムの成長機構に関する研究)		
学位論文審査結果	合格	論文審査年月日	平成 28 年 1 月 26 日～ 平成 28 年 2 月 5 日
論文公聴会	平成 28 年 2 月 5 日	場 所	工学部 4-211 教室
最終試験結果	合格	最終試験年月日	平成 28 年 2 月 5 日

学位論文の審査結果の要旨 (1,000 字程度)

本研究は、半導体デバイスの絶縁膜やチャンネル膜、太陽電池等の機能修飾膜として活用される酸化ガリウムおよび窒化ガリウムの低温形成法に関する。従来、微細な構造を有する複雑表面へ当該薄膜を形成する場合、原子層堆積法が試みられてきた。しかし、典型的な膜形成温度は 200 から 300℃と高温であり、フレキシブルエレクトロニクスなどの低融点基材への適用が困難であった。本研究では、プロセス温度の低減にむけて、反応素過程のその場観察研究に取り組み、プロセス設計を行い、酸化ガリウムでは室温形成に成功し、窒化ガリウムにおいては窒化工程を除き全て室温化する温度変動型原子層堆積法の実証に至っている。

第一章において、当該薄膜の適用分野や事例、作製技術について解説している。さらに、原子層堆積法の研究動向の調査から、表面反応機構の解明とプロセス温度の室温域までの低温化を目標としたことと、本論の構成について述べられている。

第二章では、本研究で用いた実験装置、表面反応のその場観察に利用した多重内部反射赤外吸収分光、そのほかの評価技術についてまとめられている。

第三章から五章まで実験結果について記載されている。第三章では、酸化ガリウムに関する、原料ガスの飽和吸着過程、励起加温酸素による酸化過程のその場観察、反応のモデル化、室温堆積の実証についてまとめられている。第四章では、窒化プロセスで活用されるアンモニアプラズマと Si 表面との反応過程についてまとめられ、アンモニアプラズマの Si 上窒化ガリウムの初期形成過程での影響について論じている。第五章では、窒化ガリウムに関する温度変動型原子層堆積の開発に至るまでの表面反応研究と、そのプロセス実証についてまとめられている。

第六章では、本研究の結果をまとめ、応用可能性について論じている。

本研究の価値は、工業的な面として、従来未踏であった室温での酸化ガリウム形成、近室温での温度変動型堆積法による窒化ガリウム形成を実現し、当該薄膜のフレキシブルエレクトロニクスなどへの応用可能性を見出した点にある。科学的な面として、当該プロセスの表面反応に関する観察事例は少なく、得られた反応ダイナミクスに関する情報は同分野の研究の進展に寄与するものと思われる。本研究で構築された、当該薄膜の室温域での形成法は、工業のみならず医療、表面装飾の分野でも広く活用される可能性があり、学際的な波及効果も期待される。

本論の内容は、査読付き英文論文誌に 3 件、国際会議で 2 件、内容公開されており、当該専攻の審査基準を満たしている。以上の理由から、本学位論文審査は合格と判定した。

最終試験の結果の要旨

1 時間 10 分の学位論文に関する発表と質疑応答による討論をもって試験とした。発表内容から、当該分野の他者研究を十分に整理した上で本研究の特徴が明瞭に説明されており、十分に当該分野の技術理解がされていると判断した。当該技術の背景とニーズを踏まえて設定された目標に対して、適切に実験を行い、結果の解釈においても、十分に考察が行われ、論理的に述べられていると判断された。質疑応答からも、当該分野について十分な知識を有していると判断された。以上の結果をもって、博士の学位を授与するのに十分な知識と能力を有していると判断した。最終試験は合格と判定した。