

| | |
|--------------|---|
| Title | Structural investigations of III-V nitrides under high pressure |
| Author(s) | 上野, 昌紀 |
| Citation | 大阪大学, 1998, 博士論文 |
| Version Type | |
| URL | https://hdl.handle.net/11094/40997 |
| rights | |
| Note | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。 |

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

| | |
|------------|--|
| 氏名 | 上野昌紀 |
| 博士の専攻分野の名称 | 博士 (理学) |
| 学位記番号 | 第 13543 号 |
| 学位授与年月日 | 平成 10 年 2 月 18 日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第 4 条第 2 項該当 |
| 学位論文名 | Structural investigations of III-V nitrides under high pressure (III-V 族窒化物の高圧下での結晶構造の研究) |
| 論文審査委員 | (主査) 教授 山中高光 (副査) 教授 鈴木 直 教授 中島 尚男 助教授 小野寺昭史 |

論文内容の要旨

III-V 族窒化物 (AlN, GaN, InN) は常圧で全てウルツ鉱型構造をとり、広いバンドギャップと高い熱伝導度を有する物質群である。これらの物質についてメガバール領域の超高压下で、X線回折による研究を行った。またウルツ鉱型の BN (wBN) — (これは高压下で合成される BN の高密度相の一つであるが) — も研究対象とした。多くの場合、放射光とイメージングプレートの組み合わせで実験を行った。

本研究によって得られた III-V 族窒化物の特徴は以下の通りである。

- (1) wBN 以外の窒化物で岩塩型相への構造相転移が観測された。転移圧力はそれぞれ、22.9 GPa (AlN), 52.2 GPa (GaN), 12.1 GPa, (InN) である。wBN では室温 - 110 GPa から 700°C - 100 GPa までの温度-圧力範囲で相転移は観測されなかった。
- (2) AlN, GaN, InN における岩塩型の高圧相は、第一原理計算の予測と一致する。またそれはイオン性の尺度による $A^N B^{3-N}$ 物質の高圧相の分類と矛盾しない。
- (3) 窒化物の転移圧力は、他の陰イオン種からなる III-V 族化合物よりも高い。
- (4) III-V 族窒化物の転移圧力をいくつかのイオン性の尺度や体積弾性率に対してプロットすると、他の $A^N B^{3-N}$ 物質に対して成り立つスケールリングが破綻する。すなわち窒化物は特殊な一群に帰される。
- (5) III-V 族化合物でアンチモン化合物以外の全ての物質群では、Ga 化合物が転移圧力の最大値を示す。
- (6) AlN と InN のウルツ鉱型相の軸比は圧力により理想値から大きく逸脱していく。一方 GaN では圧力による軸比の変化はほとんどない。すなわち GaN の 4 面体構造における結合角度は、変形されないまま保たれる。
- (7) N と対応する陽イオンの電子エネルギー順位に基づく検討の結果、GaN では AlN や InN に比べて d 軌道と p 軌道の混成が弱いことが示された。これは GaN における AlN や InN と異なった振る舞いを、定性的に説明できる。

論文審査の結果の要旨

III-V族半導体に関する半導体電子系諸物性の議論は多くなされてきた。III-V族窒化物 (BN, AlN, GaN, InN) は、広いバンドギャップや高い熱伝導度を示し、青色発光ダイオードの半導体デバイスと共にヒートシンクへの応用も行なわれている。従って格子系の圧力や応力による変動の研究が重要である。

本論文は常温常圧ではウルツ鉱型であるIII-V族窒素化合物 (BN, AlN, GaN, InN) について、高圧下での結晶構造と圧力誘起相転移の系統的な研究を行なった。100 GPa (100万気圧) 以上を越す高圧極端条件下でのX線回折実験を行なうためダイヤモンドアンビル加圧装置を用い、X線源として高エネルギー物理学研究所の放射光、検出器にイメージングプレートを利用した回折実験システムを開発、改良した。

そのシステムを用いて従来困難であった非常に高圧で圧力誘起構造転移を高い実験精度で始めて観測した。以下の実験事実を明かにした。

- (1)第一原理の予測通り、ウルツ鉱型構造 ($P6_3mc$) から岩塩構造 ($F43m$) に高圧転移によって4配位から6配位に配位数の増加し高密度化する。III-V属のP, As, Sb化合物より窒化物は著しく転移圧力が高い。転移圧は、22.9 GPa (AlN), 52.2 GPa (GaN), 12.1 GPa (InN) であり、BNは700°Cで110 GPaまで加圧しても転移しなかった。
- (2)また状態方程式から得られたウルツ鉱、岩塩型構造それぞれの体積弾性率 (非圧縮率) は窒素化合物が最も高い値を各々示す。
- (3)Al, Ga, Inの転移圧力はN, P, As, Sb化合物に対して原子番号と直線関係にある。
- (4)二元系半導体物質のイオン性について、理論、準実験的方法で報告されてきた。その結果イオン性の高いほど転移圧力が低いことが確認された。

GaNの転移圧力と体積弾性率はAlN, InNのそれらと比較して高いことから、このような考察がその後の理論研究を誘発した。色々なモデルのうちIII-V族で $B < Ga < Al < In$ の順でイオン性が増す Christensen. et al. (1987) や Garcia et. al. (1993) の理論が妥当であることが明らかになった。さらにGaNはAlNとInNと異なった振るまいをし、GaNにおける電子エネルギー順位の特異性に起因することを示唆した。本実験結果の解析結果からIII-V族半導体の新しい多くの知見を得た。よって本論文を理学博士論文として価値あるものと認める。