



Title	Chemical Vapor Deposition and Characterization of Silicon Oxide and Zinc Oxide Thin Films
Author(s)	山岡, 慶祐
Citation	大阪大学, 2009, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/49501
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、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏 名	やま おか けい すけ 山 岡 慶 祐
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 2 2 9 4 4 号
学 位 授 与 年 月 日	平 成 21 年 3 月 24 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科マテリアル生産科学専攻
学 位 論 文 名	Chemical Vapor Deposition and Characterization of Silicon Oxide and Zinc Oxide Thin Films (化学気相堆積法によるシリコン酸化膜および酸化亜鉛薄膜の作製と評価)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 藤原 康文 (副査) 教 授 掛下 知行 教 授 山下 弘巳 教 授 節原 裕一

論文内容の要旨

本研究では、シリコン酸化膜と酸化亜鉛膜を対象として化学気相堆積 (CVD) 法による作製と評価を行った。本論文は、プラズマCVD法により低温作製した炭素含有シリコン酸化 (SiOCH) 膜、有機金属 (MO) CVD法により作製したエルビウム添加酸化亜鉛 (ZnO:Er) 膜、RFスパッタ併用MOCVD法により作製した遷移金属添加ZnO膜について論じており、以下の7章から構成されている。

第1章では、酸化物材料におけるシリコン酸化膜、酸化亜鉛膜の位置づけと、それぞれの抱える課題について言及し、本研究の目的、構成について述べた。

第2章では、本研究で開発したSiOCH膜作製用のリモートプラズマCVD装置およびZnO:Er膜作製用のMOCVD装置について述べた。さらに、遷移金属添加ZnO膜作製用に開発したRFスパッタ併用MOCVD装置について述べた。

第3章では、SiOCH膜を基板温度27–53℃で作製し、構造および絶縁特性を評価した。RF電力を変えて成膜を行い、低RF電力で炭化水素基含有量が多くヒドロキシル基含有量が少ない膜が得られ、その膜は0.5 MV/cmの電界印加時に抵抗率 $10^{15} \Omega\text{cm}$ 代の高絶縁性を示した。SiOCH膜においてシロキサンネットワークの炭化水素基による終端がヒドロキシル基の低減に寄与し、トラップ準位を介した電気伝導の抑制によって高絶縁性が得られることを明らかにした。さらに、RF電力によって変化するプラズマ密度に着目し、成膜機構との関係について議論した。

第4章では、基板温度を変化させてSiOCH膜の作製を行った結果、膜形成時に多くの炭化水素基を取り込むためには室温程度の低基板温度が有効であることを明らかにした。一方、SiOCH膜中の炭化水素基は400℃程度まで膜中に存在し、良好な絶縁性が200℃まで保たれることを示した。また、炭化水素基を多く含有し、高絶縁性のSiOCH膜を形成するためには、O₂プラズマやN₂プラズマと比較してArプラズマが有効であることを明らかにした。

第5章では、ZnO:Er膜をMOCVD法により作製し、構造および発光特性を評価した。Er³⁺が示す波長1.5 μmのフォトルミネッセンス (PL) は、900℃程度の熱処理によって強度が最大となった。また、ZnO母体の励起を介してEr³⁺を励起する「間接励起」と、Er³⁺の4f電子の共鳴励起エネルギーで励起する「直接励起」においてPL強度の励起フォトンフラックス依存性を議論し、間接励起では励起されないEr³⁺が存在する可能性を示した。

第6章では、RFスパッタ併用MOCVD装置を用いたZnO膜への遷移金属元素添加を実証し、Cu添加ZnO膜の作製を通じてRF電力による添加量制御が可能であることを明らかにした。

第7章では、本研究で得られた成果を総括した。

論文審査の結果の要旨

本研究では機能性酸化膜としてシリコン酸化膜と酸化亜鉛膜を取り上げ、化学気相堆積 (CVD) 法による作製と構造及び特性の評価を行っている。本論文は、プラズマ CVD 法により低温作製した炭素含有シリコン酸化 (SiOCH) 膜、有機金属 (MO) CVD 法により作製したエルビウム添加酸化亜鉛 (ZnO:Er) 膜、RF スパッタ併用 MOCVD 法により作製した遷移金属元素添加 ZnO 膜について纏めたものであり、以下の知見を得ている。

- (1) 低 RF 電力を用いた Si 基板上 SiOCH 膜のプラズマ CVD 成膜において、炭化水素基含有量が多く、ヒドロキシル基含有量が少ない SiOCH 膜が室温程度の低基板温度で得られ、抵抗率 $10^{15} \Omega\text{cm}$ 台の高絶縁性を有することを明らかにしている。また、炭化水素基を多く含有し、高絶縁性の SiOCH 膜を形成するためには、O₂、N₂ と比較して Ar プラズマが有効であることを明らかにしている。
- (2) 室温で作製した SiOCH 膜中の炭化水素基は 400℃程度まで膜中に存在し、良好な絶縁性が 200℃まで保たれることを示している。また、作製条件依存性や熱処理効果の検討より、シロキサン (Si-O-Si) 結合の炭化水素基による終端がヒドロキシル基の低減に寄与し、トラップ準位を介した電気伝導が抑制される結果として高絶縁性が得られることを明らかにしている。
- (3) MOCVD 法によりサファイア基板上へ ZnO:Er 膜が作製できることを初めて明らかにしている。また、Er³⁺の 4f 殻内遷移に起因する波長 1.5 μm のフォトルミネッセンス (PL) が観測されること、その発光強度は 900℃程度の熱処理により最大となることを明らかにしている。さらに、ZnO 母体を介して Er³⁺を励起する「間接励起」の場合と、Er³⁺のスピンの軌道準位間の共鳴励起を介して励起する「直接励起」の場合とで発光強度の励起フォトンフラックス依存性を議論し、間接励起では励起されない Er が存在することを明らかにしている。
- (4) RF スパッタ併用 MOCVD 装置を独自に開発し、ZnO 膜への遷移金属元素添加を実証している。Cu 添加 ZnO 膜の作製において RF 電力による Cu 添加量制御が可能であること、Cu に起因する緑色発光が得られることを明らかにしている。

以上のように、本論文は機能性酸化膜としてシリコン酸化膜と酸化亜鉛膜を取り上げ、CVD 法による作製と評価を通じて、その構造および電気的・光学的特性の制御に関して新しい知見を与えており、材料工学分野に寄与するところが大きい。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。