

氏名	松田 一 宏
学位の専攻分野の名称	博士 (理学)
学位記番号	甲理第135号 (文部科学省への報告番号甲第396号)
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
学位授与年月日	2011年11月16日
学位論文題目	Direct patterning of thin oxide layer of compound semiconductors by low-energy electron-beam lithography for successive selective area growth
論文審査委員	(主査) 教授 高 橋 功 (副査) 教授 大 谷 昇 教授 金 子 忠 昭

論文内容の要旨

分子線エピタキシャル成長法 (MBE 法) を用いた化合物半導体の薄膜結晶成長技術は、原子層オーダーの表面平坦性と界面急峻性を保証する二次元積層制御のための基盤技術である。この材料プロセス技術の進展により、二次元量子井戸構造を応用した半導体レーザや高電子移動度トランジスタなどの量子デバイスの開発が進展したことは周知の事実である。近年の半導体ナノテクノロジー分野の研究では、さらなる高度な低次元量子閉じ込め機能発現のための三次元微細構造を実現する革新的プロセスの開発が求められている。一般的な半導体ウェハー上の微細加工では、有機レジスト塗布膜に任意の微細パターンを形成するためのリソグラフィ工程を必要とする。このとき形成された有機レジスト微細パターンを下地基板上に予め蒸着された SiO_2 酸化膜等へ転写することにより、熱的に安定で耐反応性を有する酸化膜微細マスクパターンが完成する。目的とする微細な三次元構造へ発展させるには、この酸化膜パターンをテンプレートに用いて選択エッチングを行う必要がある。これら従来型の三次元微細加工法は、それぞれが独立した多数のプロセスで構成されていることから、工程数の多さと複雑さによる加工精度の悪化が避けがたく、簡便で制御性の高いプロセスの開発が喫緊の課題であった。本論文の著者はその解決法として、化合物半導体材料の中でも表面物性や結晶成長機構についての基礎的知見の蓄積が最も多い GaAs を対象に、MBE 法の成長機能と電子線リソグラフィの直接描画機能のみの組み合わせからなる簡便かつ新たな三次元微細加工 “その場” プロセス法を提案した。具体的には、トップダウン型微細加工法の中核技術の一つである電子線リソグラフィ法を用いて、厚さ 1 nm の Ga_2O_3 酸化膜に 1 kV 低加速電子線の照射を施すことで十分な熱耐性をもつ酸化膜マスクパターンが直接形成でき、このマスクパターン領域に対して後工程のボトムアップ型プロセスである MBE 法を用いた選択成長が吸着原子の表面拡散制御のみにより十分機能することを明瞭に示してくれた。

本論文は五章より構成されている。第一章では、トップダウン型二次元表面パターンニング法としての電子線リソグラフィのプロセス概要と、ボトムアップ型三次元微細構造制御法として MBE 法を用いた選択成長に関する物理機構について述べている。最初に電子線リソグラフィにおいて、レジストとの反応機構の観点から、有機レジストと無機レジストを含む各種レジスト材料の分子量の違いにより電子線照射時の感度特性と解像度がどのような傾向をもつか概要を示している。酸化膜材料を含む無機レジストは有機レジストと比較して低分子量材料で構成されるため高分解能を得るのに有利ではあるが高感度特性が得られず、両特

性を満足する汎用無機レジストは存在しなかった。本論文で取り扱う新たな酸化膜無機レジスト材料 Ga_2O_3 に期待され、解決されるべき課題である。次に MBE 法を用いた選択成長において、GaAs 成長中の吸着原子の表面拡散長に関する過去からの知見から、酸化膜マスク材料として汎用的に用いられてきた SiO_2 を用いたマスクパターン上では選択成長に必要な十分な拡散長を得るのが極めて困難であることを示した。選択成長の観点からも新たな酸化膜マスクパターン材料により克服されるべき問題点のひとつである。

第二章では、著者が本論文で提案する三次元微細構造制御のための新たなプロセス法の概略と具体的な実験条件についての詳細な記述がなされている。従来型のリソグラフィ法に対して、本研究では MBE 法を用いて半導体ウェハー上に直接作製した厚さ数 nm 以下のアモルファス GaAs 層が、水蒸気酸化させると酸化膜 Ga_2O_3 に改質され、さらに電子線描画を施すことで照射領域のみが選択的に強固な酸化膜となり、その後、MBE 成長環境中で昇温することで背景の酸化膜が熱脱離して、熱耐性をもつ酸化膜パターンが生成されることが記されている。本技術では、その場で高温環境下に保持することで選択的な熱エッチングが誘起され、また MBE 成長を開始することでその場で選択成長にスイッチすることも可能である。これらのわずかな工程数で三次元微細構造制御のための最終プロセスに移行できることは本研究の大きな成果である。まとめとして、MBE の成長機能は無機レジスト層の形成に用いていること、三次元形状制御も MBE 成長機能を用いていることから、電子線直接描画機能を併せ、これらの超高真空一貫の統合プロセス機能を改めて MBE-Litho と呼ぶことが著者によって提案されている。

第三章では、MBE-Litho を用いた場合の各プロセスがもつ特異な物理機構が明らかにされている。最初に電子線リソグラフィ工程に関しては、1 nm 厚の Ga_2O_3 酸化膜がもつ 1 kV 低加速電子線描画に対する感光感度が、高解像度有機レジストとして汎用的に用いられている PMMA (polymethyl methacrylate) を超える優れた高感度特性と高解像度特性をもつ点、形成されたマスクパターンが 700°C を超える熱耐性をもつ点、電子線照射に対する酸化膜改質が Ga_2O_3 中の酸素の解離と熱拡散によって誘起されること等が明らかにされている。次に MBE 選択成長の工程に関しては、従来の SiO_2 マスクを用いた場合と比較して、GaAs 成長中の Ga 吸着原子の拡散長が大幅に増大しており、温度にして 100°C 分に相当する増大幅を示すことが記されている。また、従来の MBE 成長からの知見では拡散長が短く選択成長が困難と考えられていた Al 吸着原子を用いた AlAs の選択成長に対しても、選択成長が可能であることを実証している。選択成長により形成されたファセット形状に関しては、吸着原子の表面拡散長が十分に長いため、得られるファセット形状は理論的予測から得られる熱平衡系に極めて近いものである。最終的なファセット形状は、三次元構造を構成する低指数結晶ファセット面がもつすべての表面エネルギーの和と、酸化膜に張り出した成長結晶領域と酸化膜間での界面エネルギーの総和で表されるが、この点を実証するため、敢えて酸化膜材料を Ga_2O_3 から In_2O_3 や Al_2O_3 に変化させ、界面エネルギーをパラメータにして GaAs ファセット形状の変化を観察した。その結果、それぞれの酸化膜表面がもつ表面エネルギーの違いを直接反映した形状変化が現れることを初めて明らかにした。

論文審査結果の要旨

本研究の目的は、分子線エピタキシャル成長法 (MBE 法) という原子層オーダーの二次元積層制御において確立された物理プロセス法を基盤技術に用いて、電子線リソグラフィを包括する簡便かつ統合的な化合物半導体の“その場”三次元微細加工法に展開することである。以下に本研究によりなされた重要な寄与、結論の主なものを示す。

- ① 単なる結晶成長法を用いただけの選択成長機構の解明だけではなく、新たな酸化膜材料からなるマスクパターンを選択成長時の重要な成長パラメータに含めることで、従来は不可能と考えられていた吸着

原子の拡散長の大幅な増大化を実現した。

- ② それにより、吸着原子のふるまいに対する詳細な物理機構が明らかになり、また詳細な三次元構造の形成過程を明らかにすることに成功した。
- ③ また、電子線リソグラフィー分野に対しても、高感度かつ高分解能の酸化膜無機レジストという産業応用においても重要な新材料 Ga_2O_3 がもつ新機能を明らかにすることに成功した。
- ④ MBE 法の新たな可能性、すなわち二次元平面展開から三次元展開を促し MBE-Litho という名称で総括される汎用的ナノテクノロジー法を確立した。

本論文の内容は、すでに *Physica Status Solidi*, *Applied Physics Express*, *Japanese Journal of Applied Physics* に 3 編の論文として公表されている。その他、4 件の特許の出願を行っている。

審査委員は本論文の内容を中心に面接と公開の論文発表会を行い、著者が論文内容と用いた技法について十分な理解とともに関連する分野についても学識を有し、また将来の研究遂行に対しても十分な能力を持つことを確認することが出来た。以上のことより、審査委員会は本論文の著者が博士（理学）の学位を授与されるに足る十分な資格を有するものと判定する。