

氏名(本籍)	ベンジャミン ディエル (フランス)		
学位の種類	博士(工学)		
学位記番号	博甲第5306号		
学位授与年月日	平成22年3月25日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審査研究科	数理物質科学研究科		
学位論文題目	Cathodoluminescence study of ZnO bulk and nanostructures (カソードルミネッセンスによる酸化亜鉛のバルクとナノ構造の研究)		

主査	筑波大学教授	理学博士	関口隆史
副査	筑波大学准教授	Ph. D.	Dmitri Golburg
副査	筑波大学准教授	博士(工学)	末益崇
副査	物質・材料研究機構 主幹研究員	博士(工学)	解栄軍
副査	ENSICAEN Director	Ph. D.	Richard Rizk

論文の内容の要旨

これまでナノ構造の発光特性評価は、ナノ構造の集合体を光や電子で励起して、得られる光を分光して行なわれることが一般であった。ところが、ナノ構造は必ずしも一様であるとは限らず、それどころか、ある特異な構造が機能を担っている場合が多い。このため、ナノ材料の評価では、個々のナノ構造を抽出して評価することが必要になる。この目的には、カソードルミネッセンス (CL) が最適である。CL では、電子顕微鏡を用いて、nm サイズに絞った電子線を試料に照射するので、高い空間分解能で材料の発光特性を評価することができる。しかしながら CL でナノ構造を評価する場合には、試料の密度や電子線による損傷を考慮しなくてはならない。

本研究では、CL データを定量的に解析する際に大きな問題となる、信号の信頼性について検討する。多くの材料は CL 観察中に発光強度が減少するが、その原因はこれまで殆ど議論されてこなかった。本論文では、酸化亜鉛 (ZnO) を用い、CL 発光強度の変化を系統的に観察し、これを結晶中あるいは表面に吸着している水素や酸素欠陥の挙動を用いて説明した。

以下に主な成果を述べる。

1. ZnO 結晶における CL 発光の電子線照射効果

ZnO 単結晶の O 面、Zn 面における CL 発光の時間変化を、励起電子のエネルギー、電流量を変えて測定した。その結果、O 面では CL 強度は単調減少、Zn 面では一旦増加したのちに減少することがわかった。これらの結果は、強度を規格化し、電子線のドーズ量を用いて整理すると、全て同様の曲線に重なった。また、指数関数でフィットすると、減少成分は O 面、Zn 面ともに同様の強度と時定数で変化していた。さらに、照射を一旦停止した後に再開すると、減少成分だけは部分的に回復することがわかった。

2. 表面脱離との関係

CL 発光の変化が表面反応であるかどうかを検証するために、飛行時間分解電子線刺激脱理法 (TOF-ESD)

を用いて、吸着原子の表面脱離反応を調べた。その結果、水素の脱離と微弱な酸素の脱離が検出され、電子線照射によって、これらの表面反応が起こっていることが明らかになった。CLの時間変化との対応から、CL強度の減少には、表面からの水素脱離が関係していることが結論された。

3. バルク反応

電子線照射を停止して時間を置くと、発光の減少成分が回復する。停止時間依存性を解析した結果、この回復は、水素が電子線非照射領域から照射領域に拡散してくることを考慮すると無理なく説明できることが明らかになった。

4. 統一の見解

上記の結果や解析をまとめると、ZnO結晶におけるCL強度の時間変化は、電子線照射による(1)表面に吸着したHの離脱、(2)ZnO結晶中の水素と欠陥の複合体の解離。さらには、(3)非照射領域から照射領域へのHの拡散。これらの3つの現象で説明される。

以上の結果より、ZnOにおけるCLの電子線照射効果とそのメカニズムが明らかになった。この知見は、他の材料における同効果を調べる際の良い指標になるばかりでなく、CLデータの信頼性を検討する際に重要な要素を提供する。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本研究は、ZnOのCL発光の電子線照射による影響を系統的に調べ、発光の減少は、ZnO結晶の表面とバルク領域での水素の挙動によって説明できることを明らかにした。この研究によって、電子線照射効果に関する理解が進み、半導体材料のCL評価の信頼性が向上した。

以上の理由から、本論文は博士論文として十分と判断された。

よって、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。