第5章 CBE による GaInP 成長

5.1 はじめに

Ga_xIn_{1-x}P はその組成によって 1.35-2.26 eV の広い範囲でバンドギャップを変 化させることのできる混晶半導体である。特に Ga0.51 In0.49 Pの組成を持つものは GaAs と格子整合することからよく利用され、単に GaInP といえばこの組成を指 すことが多い(本章でも以降この例に倣う)。このときの GaInP のバンドギャップ は 1.9 eV で波長に直すと約 650 nm の赤色領域にあたる。またこの組成では直接遷 移をすることから主に赤色発光デバイスの材料として使われる。その他では GaAs とのバンドギャップの差を利用したデバイスにも用いられ、例えば HBT (hetero bipolar transistor) やタンデム型太陽電池がそれにあたる。しかし我々がここで注 目するのは AlGaAs の代替材料としての用途である。AlGaAs は GaAs との組み 合わせにおいて非常に有用な材料であるが、その一方で DX センターによる深い 準位の形成や Al を含むことによる酸素の混入等の問題がつきまとう¹⁾。特に我々 にとって特に問題となるのは GaAs/Siのような高密度の転位を含むような系では、 Alの存在がデバイスの寿命を著しく低下させる原因となっていることである²⁾。し かし逆に考えるとこれは Al をまったく含まない構造を用いることで、デバイスの 寿命を向上させることができるということでもある。AlGaAs を置き換えるため には GaAs に格子整合しておりかつバンドギャップが GaAs よりも十分に大きい 材料が必要である。現在このような条件を満たす材料としては3元化合物の中で は GaInP が唯一の選択肢となる。AlGaAs の代わりに GaInP を用いることの利 点は他にもある。GaInP/GaAs 界面でのキャリアの再結合速度は AlGaAs/GaAs のそれに比べて非常に小さいという報告がある³⁾。また, GaInP が大量の In を含 んでいるために前章で述べたような転位に対する効果についても期待できる。さ らには GaAs/Si の上に GaInP を成長させたときに GaInP 層には応力がかから ないという報告もある4)。

一方 GaInP そのものの研究について目を向けると、これまでの成長に関する 報告は MOVPE を用いた例が圧倒的に多く MBE を用いた例というのは少なかっ た。これは固体ソースを用いる従来型の MBE では蒸気圧の高い P の制御が難し かったことが原因である。しかし GSMBE や CBE の登場によって高真空を用い る成長法でも P を含む材料の成長が容易に行えるようになり,現在ではこれらを 用いた成長例についても数多く報告されている⁵⁻⁷⁾。特に MOVPE でしばしば問 題とされる GaInP と GaAs の界面制御性に関しては,原料の切り替えの速さと 比較的低い基板温度でも成長が可能なこれらの成長法の得意とするところであり 今後の発展が期待される。

さて我々が今回 GaInP の研究を行った大きな目的には先に述べたように Si 基 板上デバイスにおける AlGaAs を GaInP で代替することによって寿命を始めと した特性の改善を図るということがある。しかしもう一つの目的として Si 基板上 の可視発光デバイスの実現ということを今回掲げた。これは GaAs は赤外で発光 する材料であるため、応用分野も通信などに限られデバイスに要求される性能も 一般に高くなる傾向があるが、可視発光 LED であればたとえ性能が低くても人間 の目に見えさえすれば十分に実用になるという理由による。ただし今回の実験で は CBE で作製された GaInP の基礎的理解を深める意味合いから主に GaAs 基板 上での成長を行い評価した。Si 基板上への成長については本章の後半で触れるも のとする。

5.2 実験

5.2.1 GaInP/GaAs

本実験では第3章で用いたものと同じ *epi-ready* タイプの (001) SI-GaAs 基板 を用いた。基板の前処理方法についても同様とした。原料には III 族にトリエチル ガリウム (TEGa) とトリメチルインジウム (TMIn) を, V 族には 100% 濃度の ホスフィン (PH₃) をそれぞれ用いた。また GaAs バッファ層の成長には TEGa と 100% 濃度のアルシン (AsH₃) を用いた。PH₃ と AsH₃ は共にガスインジェク ターで 1000°C でクラッキングして供給した。p 型ドーピングの実験にはジエチル ジンク (DEZn) を, また n 型ドーピングの実験には水素希釈ジシラン (Si₂H₆) をそれぞれ用いた。有機金属系セルの温度はすべて 100°C とした。

GaInP の成長を開始する前に酸化膜除去のために AsH₃ 雰囲気中で 590°C, 5 分間のプリベーキングを行い, さらにバッファ層として 100 nm の GaAs 層を基 板温度 550°C, V/III 比 20 の条件で成長させた。そしてチャンバ内の雰囲気ガス を置換するために As 抜け防止のために流してある AsH₃ を PH₃ に切り替えて 10 秒待ってから GaInP の成長を開始した。GaInP 成長時の基板温度は 430–530°C の範囲で変化させた。このときの成長シーケンスを fig. 5.1 に示しておく。

得られた試料について,表面モホロジー,成長速度,組成制御および電気的・光 学的特性について評価を行った。表面モホロジーの評価にはノマルスキー顕微鏡





を,また成長速度(膜厚)の確認のため SEM による断面観察を行った。組成に ついては二結晶X線回折法により得られた基板と成長層の回折ピークの差より求 めた。

$5.2.2 \quad Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si$

実験の手順について説明する前に今回なぜ Ga0.7 Ino.3P という一見中途半端のよ うに見える組成を選択したかについて説明しておく必要がある。今回の実験では Si 基板上の赤色発光デバイスへの応用を想定している。単純 pn 接合型の LED で あれば Ga0.51 In0.49 P を用いれば良く、この場合前章で述べた GaAs /Si の技術を 応用することができるという利点がある。しかしながら高効率 LED や レーザ へ の応用ということになると DH (double hetero) 構造や QW (quantum well) 構 造の導入が必要である。Gan 51 Inn 49 を用いた場合,これに格子整合しなおかつ バンドギャップが大きい材料となると (AlGa)0.51 In0.49P しか存在しない。しかし 今回の実験では Al free なデバイスの実現ということがテーマの一つとなっており (AlGa)_{0.51}In_{0.49}P を用いることはこれに矛盾してしまう。そこで今回, GaAs_{0.6}P_{0.4} を活性層とし、Gao 7 Ino 3P をバリア層とした新しい DH 構造を考案した。その構 造について (AlGa)_{0.51}In_{0.49}P の場合と共に fig. 5.2 に示す。GaAs_{0.6}P_{0.4} は tab. 5.1 に示すように室温で 1.9 eV のバンドギャップを持ち, 650 nm 付近で発光する赤色 LED の材料に使われた実績がある。一方 Gao 7 Ino 3P は室温で 2.2 eV のバンド ギャップを持つ。このとき GaAs0.6P0.4 とのバンドギャップ差は約 0.3 eV あり、こ の差はバリア層を形成するに十分な大きさである。これらの材料の格子定数は共 に 5.57 Å で格子整合しているため活性層とバリア層の間での応力は発生しない。 また Si との格子不整合率は約2.5% で GaAs の4.2% に比べて小さいことも有利 に働くものと思われる。ゆえに今回はこの2つの材料のうち Gao.7Ino.3P について 実験を行った次第である。

Table 5.1: 各 DH 構造の物性値

	$Ga_{0.51}In_{0.49}P/(AlGa)_{0.51}In_{0.49}P$	$GaAs_{0.6}P_{0.4}/Ga_{0.7}In_{0.3}P$
	5,65	5.57
熱膨張係数	5.0/?	5.8/5.2
バンドギャップ [eV]	1.88/2.25	1.91/2.20
屈折率	3.45/3.03 - 3.45	3.45 - 3.66 / 3.45

さて実験の内容についてであるが、基板には第4章で用いたものと同じ (110) 方



GaInP/AlGaInP on Si double hetero structure

Ga0.71In0.29P clad layer GaAs0.6P0.4 active layer Ga0.71In0.29P clad layer Si substrate

GaAsP/GaInP on Si double hetero structure

Figure 5.2: Si 基板上の赤色発光デバイスの基本構造

向に 4° オフセットさせた (001) n-Si 基板を用いた。また用いた原料についても AsH₃ を用いていない点を除いて上で述べた GaAs 基板の時と同じものを同じ条件 で用いた。HM エピタキシーでは普通低温成長バッファ層を導入する二段階成長法 が用いられる。今回の実験ではこれを改良して,低温バッファ層の構造を2層構造 とした。最初に Si 基板表面の自然酸化膜を取り除くために 500°C, 5 分間のプリ ベーキングを行った後,まず 380°C で 1 層目の低温バッファ層を 10–50 nm 堆積さ せた。またこのとき TEGa と TMIn の供給比 (TMIn/TEGa+TMIn) は 0–0.27 の範囲で変化させた。次に基板温度を 420°C まで上げ, 2 つ目のバッファ層とな る GaInP の堆積を行った。このときの III 族原料供給比は 1 層目の成長時の値と 次に続くメイン層成長時の時の値 (0.2) のちょうど中間となるように設定した。そして最終的に基板温度を 460°C まで上げてメインとなる GaInP を約 0.6 μ m 成長させた。このときの成長シーケンスについて fig. 5.3 に示す。

試料の評価は主に表面モホロジー観察と二結晶X線回折法およびラマン散乱に よる結晶配列性に関して行った。また特性改善を図るために RTA (rapid thermal annealing) によるアニールを試みた。

5.3 GaInP/GaAs の評価と考察

5.3.1 組成制御と表面モホロジー

GaInP は Ga と In の組成比によって格子定数が大きく変化するため、GaAs 基板を用いた場合 AlGaAs に比べて組成の自由度が低い。前節で述べたように





 $Ga_x In_{1-x}P$ が GaAs に格子整合するのは x = 0.51 のときのみであり、この組成から離れるほど結晶性が悪化する。したがって高品質な結晶を得るためには、様々な成長パラメータが組成に対してどのような影響を及ぼすのかを把握しておく必要がある。

はじめに GaAs 基板との整合条件を得るために,組成の決定に対して最も影響を 持つであろう原料の流量比との関係を調べた。まず,TMGa の供給量を 0.1 sccm に固定し,TMIn の供給量のみを変えていった状態で GaInP の成長を行い,いく つかの組成の試料を得た。Figure 5.4 に基板温度 480°C の場合の TEGa と TMIn の原料流量比と組成との関係を示す。組成は二結晶X線回折法を用いて測定した 基板の回折ピークと成長層の回折ピークとの位相差から求めた。ただし試料の膜 厚は約 1 µm と十分に厚く応力による歪みは緩和されているものとして考え,ポ アソン比による補正は行っていない。この結果,流量比と組成の関係は良い直線 性を示すことがわかった。グラフが示すように TEG と TMI の供給比が 10:7 の とき GaInP は GaAs に格子整合しこのとき表面は鏡面となった。原料供給比と 実際の組成比が一致しないのは,有機金属原料の吸着率がそれぞれ異なるためで, これは原料の分解温度の違いからきているものである。

次にこの整合条件が基板温度の変化に対してどのように変化するかについて調べた。基板温度を 430-525°C の範囲で変化させて、それぞれの温度において TEGa 流量固定の状態で TMIn の流量のみを変えることによって基板に格子整合させた。これらの結果から得られた基板温度と格子整合する流量比の関係を fig. 5.5 に示す。今回測定を行った範囲内では基板温度が上昇するほど整合するのに必要な TMIn の量が増加していることが分かる。また fig. 5.5 は単純な増加傾向を示しておらず 450°C を境としてその傾きに変化が現れている。後で示すことになるがこの温度 範囲においては基板温度の上昇と成長速度の増加は比例関係にある。つまりこの 格子整合条件の変化は基板温度の上昇によって Ga の取り込み率が増加したこと によるものである。なお、今回得られた結果は他の研究機関からの報告ともおお むね一致していることを確認している⁵。

さて GaInP がその組成によって格子定数を大きく変化させることは先に述べた とおりであるが、このとき表面モホロジーもその組成に対して敏感に反応する。表 面モホロジーの様子と基板との不整合率との関係を fig. 5.6 に示す。図からわかる ように格子整合のときの表面は完全に鏡面となるが、この組成から遠ざかるに従 い線状の模様(ストライプパターン)があらわれる。さらに不整合率が大きくな るとクロスハッチパターンとなり、最終的にはランダムなパターンへと変化した。

-271-



Figure 5.4: 基板温度 480°C における TMIn の供給量と GaInP の組成との関係。 ただし TEGa 流量は 0.1 sccm で図中の波線は GaAs の格子定数。



Figure 5.5: GaAs に格子整合するために必要な TMIn 流量の基板温度依存性。ただし TEGa 流量は 0.1 sccm。





5.3.2 成長速度

Figure 5.7 に基板温度と成長レートの関係を示す。図が示すように 430-510°C の範囲では基板温度の上昇に伴って成長速度が増加している。しかもこれは単純な 増加ではなく 450°C まで成長速度が急激に増加し、一旦緩やかになった後 470°C 以上で再び急激に増加するという複雑な反応を示している。450°C 以下での振る 舞いについては単純に基板温度が増加したことにより TEG の分解・吸着率が増加 したためであると考えられる。これは fig. 5.5 の結果からも明らかで、また GaAs の場合になるが 450°C 以下の領域でやはり成長速度の急激な増加が見られるとの 報告がある⁸⁾。問題は 470°C 以上の領域での急激な増加の原因についてであるが, これは TEGa と TMIn の相互反応の結果であるものと推測される。例えば TEGa と AsH3 用いて GaAs を成長中の In の存在はそれがたとえ僅かであっても GaAs の成長速度に大きな影響を与えることが知られている⁹⁾。As と P との違いはあっ ても成長速度は主に III 族原料によって支配されるため GaInP でも同様の結果を 示すことは十分に考えられる。なお基板温度 530°C で成長速度が大きく落ち込ん でいることが分かる。このとき表面モホロジーは悪化した。ゆえにこれは先の III 族原料同士の相互反応によるもののほか,結晶中の P 原子の解離の影響があるた めではないかと考えられる。

5.4 Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si の評価と考察

5.4.1 バッファ層への In 添加と表面モホロジー

・始めに fig. 5.8 に Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si のノマルスキー表面写真を示す。3つの写真は それぞれ1 層目のバッファ層の組成が異なっている。ただし現時点で正確な組成が 不明であるため、ここでは Ga と In の原料の供給比で表す。(a) の写真は TMIn 流量がゼロ、すなわち GaP の場合である。このとき表面は荒れており (110) 方向 に対する配向性も僅かながら見られる。次に (b) の写真は1 層目の TMIn の比率 が 0.09–0.2 の時のものである。このとき Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si の表面モホロジーは劇的 に向上し、写真が示すような鏡面が得られた。そして (c) の写真は TMIn の比率 が 0.2 以上の時のものであるが、表面モホロジーは再び悪化する方向に転じた。さ てこのようにバッファ層第1 層目の In 組成が表面モホロジーに大きな影響を与え ていることが分かる。また In 組成の増加に対して一旦平坦性が向上した後再び悪 化するという傾向は、前章で示した GaAs/Si への In ドーピングの場合と似てい るということも興味深い。これは GaP の場合においても結晶中に In が含まれる と格子歪みの緩和が行われていると考えられる。今回最終的な表面モホロジーに



Figure 5.7: GaInP/GaAs 成長における基板温度と成長速度の関係。

対する影響の強い成長極初期において In を添加したことにより、3次元成長モードの抑制が行われたのではないだろうか。また In ドープ GaAs/Si と同様に過剰な In の存在は逆に格子歪みを増加させ、表面モホロジーが再び悪化したものと考えることができる。



Figure 5.8: Nomarski 顕微鏡で見た Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si の表面モホロジー。低温バッファ層の1層目成長時の TMIn の供給比率はそれぞれ (a)0, (b)0.09, (c)0.23。

5.4.2 Ga_{0.7}In_{0.3}P の結晶性評価

次に上で得られた $Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si$ の鏡面試料について,二結晶X線回折法により 求めた(004)面の回折ロッキングカーブの一例を fig. 5.9 に示す。GaAs/Si 等と 比べると $Ga_{0.7}In_{0.3}P$ の回折ピーク半値幅は非常にブロードであることがわかる。 半値幅の値はバッファ層の膜厚(第一層と第二層を足した膜厚)に対して変化を 見せた。この関係を fig. 5.10 に示す。半値幅はバッファ層の膜厚が 30 nm 付近の ときが狭く,最も小さいときで 1800 arcsec であった。

GaAs/Si ではこの半値幅の改善に TCA(thermal cycle annealing)などの熱ア ニールを施すことが効果的であることが知られている。GaInP は In-P 結合が弱く 高温では P の解離が発生してしまうため、あまり高温で長時間のアニールをする ことができない。そこで P の解離を防ぐために今回は RTA を用いてアニールを 行った。RTA は窒素雰囲気内で行い、 $500-750^{\circ}$ C の範囲で 60 秒間の加熱を行っ た。その結果、RTA 温度が $500-650^{\circ}$ C のものでは試料の表面が鏡面のままであっ たが、 700° C 以上のものでは表面モホロジーが悪化した。これは P の解離による ものであると考えられる。また鏡面が得られた試料に対し再びX線測定を行った ところ、その半値幅には全く変化は見られなかった。つまり Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si に対



Figure 5.9: 二結晶X線回折法で得られた Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si のロッキングカーブ。



Figure 5.10: Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si のX線回折ピーク半値幅とバッファ層膜厚との関係。

しては熱アニールの効果はまったく無いということになる。この理由を探るために、試料の表面を走査型電子顕微鏡の反射電子を利用して観察した。その結果をfig. 5.11 に示す。一目見て分かるように非常にむらが大きい。図の明るい部分は質量の大きい領域でこの場合 In 組成が相対的に大きな領域に当たる。反対に暗い部分は質量が小さな領域で In が少ない箇所を表している。つまり $Ga_{0.7}In_{0.3}P$ はかなりの組成分離を起こしており、これがX線の半値幅が大きい原因となっていると考えられる。これだけの組成分離があると多少のアニールでは均一になるとはとうてい考えられない。もともと GaInP は厳密正則溶体モデルにおける組成不安定領域に属している¹⁰⁾。今回は $Ga_{0.7}In_{0.3}P$ の成長温度が 460°C と低かったため、成長時における組成分離が促進される形となったものと考えられる。



Figure 5.11: 走査型電子顕微鏡の反射電子で見た Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si の表面画像。

最後に今回得られた鏡面試料についてラマン散乱による測定を行った。Figure 5.12 はその結果である。図中に比較のために示した GaP のスペクトルと比較すると Ga_{0.7}In_{0.3}P の GaP ライク LO フォノンによるピークは非常にシャープであるこ とが分かる。X線による測定は主に結晶のマクロな情報を与えるが、ラマン散乱 では比較的ミクロな情報を与える。ゆえに結晶全体としては組成分離の問題があ るものの、部分的に見ればそれほど結晶性が悪いわけでは無いことがこの結果か ら伺える。



Figure 5.12: ラマン散乱による Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si のスペクトル。比較のために GaP についても示してある。

5.5 まとめ

本章では Si 基板上の Al free デバイスの実現に向けて GaAs 基板および Si 基板上に GaInP の成長を行い、その特性について評価を行った。

GaAs 基板上への成長では、まず GaInP の組成に対する原料供給量依存性及び基板温度依存性について調べた。その結果、GaAs 基板に格子整合する Ga_{0.51}In_{0.49}P の成長条件が得られた。また成長速度の基板温度依存性についても同様に調べ、その依存性が TEGa の分解特性と TEGa と TMIn の相互作用にあることを示した。。

Si 基板上への Ga_{0.7}In_{0.3}P の成長では、まずこの組成が Si 基板上に Al を用いず に赤色発光デバイスを実現する上で重要であることを示した。そして低温層を2 層に分けた改良型2段階成長法を導入し、鏡面試料を得ることに成功した。そして 1つ目のバッファ層成長時の In の有無が試料の表面モホロジーに与える影響が大 きいことを示した。さらに試料の二結晶X線回折測定により、Ga_{0.7}In_{0.3}P ピーク の半値幅が 1800 arcsec と GaAs/Si に比べると大きな値となっていることを示し た。そして走査型電子顕微鏡の反射電子像より半値幅が大きい原因が Ga_{0.7}In_{0.3}P の組成偏析にある可能性を示した。

今回の実験では Ga_{0.7}In_{0.3}P のフォトルミネッセンス発光が観測されていないな どまだ不十分な点は多い。しかし Ga_{0.7}In_{0.3}P/Si 構造の研究はほとんど行われて おらず,今後の研究への一つの足がかりを示すことはできたのではないかと思う。

参考文献

- 1) D. V. Lang and R. A. Logan, Phys. Rev. B 19 (1979) 1015.
- 2) H. Terao and H. Sunagawa, J. Cryst. Growth 68 (1984) 157.
- J. M. Olson, R. K. Ahrenkiel, D. J. Dunlavy, B. Keyes and A. E. Kibbler, Appl. Phys. Lett. 55 (1989) 1208.
- 4) T. Egawa, T. Jimbo, J. Dong, K. Matsumoto and M. Umeno, Appl. Phys. Lett. 67 (1995) 3605.
- 5) K. Ozawa, M. Yuri, S. Tanaka and H. Matsunami, J. Appl. Phys. 65 (1989) 2711.
- Ph. Maurel, Ph Bove, J. C. Garcia and C. Grattepain, Semicond. Sci. Technol. 6 (1991) 254.
- 7) R. M. Kapre, W. T. Tsang, Y. K. Chen, M. C. Wu, M. A. Chin and F. S. Choa, J. Cryst. Growth 124 (1992) L668.
- 8) H. Asahi, T. Kaneko, Y. Okuno, Y. Itani, K. Asami and S. Gonda, J. Cryst. Growth **120** (1992) 252.
- 9) G. J. Davies, P. J. Skevington, E. G. Scott, C. L. Furench and J. S. Foord, J. Cryst. Growth 107 (1991) 999.
- 10) K. Onabe, Jpn. J. Appl. Phys. Growth **21** (1982) L323.



第6章 総括

本論文では CBE 法を用いて III-V 族化合物半導体(GaAs, GaInP)の成長を 行った。そして様々な評価を通して CBE の特徴とこの成長法が持つ可能性につ いて論じた。それぞれの結果のまとめについては各章の終わりに記してあるので, ここでは本研究における成果と今後の課題について簡単に述べて総括とさせてい ただく。

GaAs は CBE 装置の運用開始当初から成長をおこなってきた材料である。本研 究では将来のデバイス開発の足がかりとするために表面モホロジーや成長レート, 電気的特性,光学的特性などについて実験と評価を行った。今回,これらのデー タが得られたことで上記の目的はある程度達せられたものと考える。またその過 程において V/III 比による伝導型の制御などこれまであまり知られていなかった ような興味深い知見を得ることができた。これが直接デバイスへの応用に結びつ くとは考えにくいが,単一ドーパントによる pn 接合の実現は技術的に見ておも しろいテーマであると思う。これらの実用化への検証も含めて,今後は実際にデ バイスを作製してその評価を行っていかなくてはならないだろうし,すでにその 時期にきていると考える。

Si 基板上への GaAs の成長について, はじめは GaAs/Si という材料に対する CBE のアドバンテージを見いだすことから始まった。もともと CBE は HM 成長 に特化した成長法というわけではなく,あくまでも通常のエピタキシーを前提と した成長法である。そのため実験開始当初は試行錯誤の連続でもあった。そのよ うな中で今回,成長の全プロセスの低温下という将来のデバイス開発において重 要な点で CBE が有望であるということを見いだすことができたのは大きな成果 であったといえよう。単純に低温成長ということでは MEE (migration enhanced epitaxy) などの有効性がすでに報じられているが,より生産性に優れる CBE に おいて低温成長の可能性を示したことの意味は大きいと考える。

GaInP/GaAs については研究期間が比較的短かったこともあって、今回は組成の制御と成長速度に関する研究を行うに留まった。しかしながら得られたデータは他の研究機関から報告されているものと良い一致を見せており、今後の研究においても期待が持てる。今後はデバイス作製に向けた電気的特性・光学的特性の評価やドーピング条件の確立などを早急に行う必要がある。もう一つ Si 基板上 Al

free 可視発光デバイスの実現に向けて今回 Ga_{0.7}In_{0.3}P の作製を行った。現時点で はまだ実用化云々を語ることのできる段階にはないが、少なくとも鏡面が得られ たことは大きな成果であった。また結晶中の微量 In の効果があらためて確認され たことも大きい。これについては研究が始まったばかりであり、今後の改善の余 地は十分に残されていると考える。

最後になるが、今回の研究は少々結果論に終始しすぎたきらいがある。今後は現象の因果関係を明確にし、より本質的な理解を深めていく必要があるだろう。しかしながら今回得られたデータと経験は今後の研究の足がかりとして大いに役立 つものと期待する。