

Mist CVD β 型酸化ガリウム成長に塩酸が与える影響

Impact of hydrochloric acid on growth of β -type gallium oxide by Mist CVD

杉谷 諒¹⁾

指導教員 山口 智広^{2,3)}

研究協力者 田口 義士³⁾, 山田 梨詠³⁾, 山本 拓実³⁾, 尾沼 猛儀^{2,3)}, 本田 徹^{2,3)}

1) 工学院大学 先進工学部 応用物理学科 結晶成長研究室

2) 工学院大学 先進工学部 応用物理学科

3) 工学院大学大学院 工学研究科 電気・電子工学専攻

キーワード : Mist CVD, 塩酸, 結晶成長, β -Ga₂O₃, 成長速度

1. 背景

近年ワイドギャップ半導体材料として酸化ガリウム(Ga₂O₃)が注目されている。応用例として、パワー半導体やソーラーブラインド光検出器などがあげられる¹⁾。酸化ガリウムには、 α , β , γ , δ , ϵ , κ と6つの構造がある²⁾。本研究では、 β 型酸化ガリウムに着目した。 β 型酸化ガリウムは、4.7~4.9 eV¹⁾の高いバンドギャップエネルギーをもち、熱的に最安定相である。また、大口径かつ高品質な β 型酸化ガリウム単結晶基板が、融液成長法により実現されている³⁾。Mist CVD(Mist Chemical Vapor Deposition)法を用いることで β 相の制御も可能なことが報告されている⁴⁾。

Mist CVD法では、原料溶液として、金属粉末を塩酸などで溶解し超純水により調整したものを用いる。この原料溶液を超音波振動子で霧状にしたものをキャリアガスによって反応炉へ運び熱分解によって成膜する手法である。大気圧下で成膜が可能であることから、簡単で安価な装置構成であり、大量生産が可能である。しかし、他の成長法に比べ歴史がまだ浅いことから、成長メカニズムは完全には解明されていない⁴⁾。

先行研究による Mist CVD 法 α 型酸化ガリウム成長において、原料溶液中の塩酸濃度増加に伴い、成長速度が向上することが報告されている⁵⁾。高品質な β 型酸化ガリウムを得るためには、高い成

長速度が必要であると考えられ、Mist CVD β 型酸化ガリウム成長においても、原料溶液中の塩酸濃度を増加させることで成長速度の増加が期待できる。

本研究では、Mist CVD β 型酸化ガリウム成長において、原料溶液中の塩酸濃度を変化させることにより、成長にどのように影響を与えるのかを検討した。

2. 実験方法

Mist CVD法によって(0001) α -Al₂O₃基板上に酸化ガリウム薄膜の成長を行った。出発原料には、ガリウムアセチルアセトナート[Ga(C₅H₇O₂)₃]を用いた。出発原料を超純水で0.05 mol/Lの濃度になるように調整した。36%の塩酸を原料溶液中で0.01 mol/L, 1.2 mol/Lと変化させた。成長条件は、成長温度800°C, キャリア(O₂)ガス流量3.0 L/min. 希釈(O₂)ガス流量0.5 L/min. で60分間成長した。評価方法には、走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)による表面および断面の観察, X線回折(X-ray Diffraction: XRD)による θ -2 θ 測定, X線Rocking curve(X-ray Rocking Curve: XRC)測定を行った。

3. 実験結果および考察

SEMによる表面および断面の観察結果をFig. 1

に示す。塩酸濃度 0.01 mol/L の試料では、2 次元的な成長を確認した。塩酸濃度 1.2 mol/L の試料では、3 次元的な成長を確認した。このことより、塩酸濃度を変化させることで、成長様式が大きく変化し、膜厚が増加したと考えられる。

XRD θ -2 θ 測定の結果を Fig. 2 に示す。塩酸濃度 0.01 mol/L の試料では、 β 相で単層成長していることを確認した。塩酸濃度 1.2 mol/L の試料では、 ϵ 相の混入を確認した。このことから、成長速度の増加により、 ϵ 相が混入したと考えられる。

XRC による $-402 \beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 測定の半値全幅 (FWHM) の結果を Fig. 3 に示す。 $-402 \beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の FWHM の値は塩酸濃度を増加させることで、大きく減少した。

以上の結果より、原料溶液中の塩酸濃度を増加させることにより、成長速度を増加させ、結晶性を向上させることができた一方で、成長表面での原子マイグレーション抑制により準安定構造 $\epsilon\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 相が混在しやすくなったと考えられる。

4. 結論

本研究では、Mist CVD β 型酸化ガリウム成長において、原料溶液中の塩酸濃度を変化させることにより、成長にどのように影響を与えるのかを検討した。塩酸濃度を増加させることで、成長速度が増加し、結晶性が向上した。一方で、 ϵ 相の混入が確認されたことから成長速度増加に伴う準安定構造混入の制御が今後の課題である。

5. 参考文献

- 1) 東脇正高 他, 表面科学 **35**, 102 (2014).
- 2) F. P. Sabino *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 155206(2014).
- 3) 東脇正高 他, 電子情報通信学会論文誌 C **J99-C** 448-455 (2016).
- 4) T. Kawaharamura, Dr. Thesis, Faculty of Engineering, Kyoto University, Kyoto(2008).
- 5) T. Yasuoka *et al.*, AIP Advances **11**, 045123 (2021).

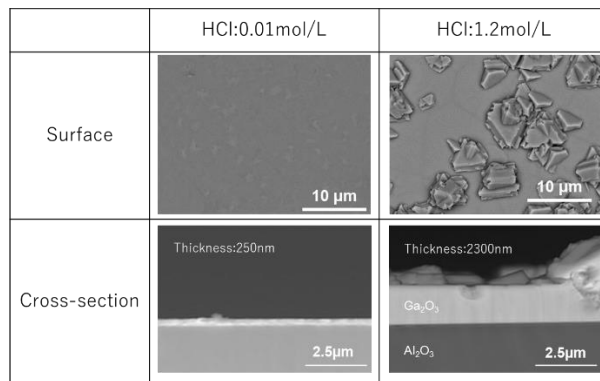


Fig. 1 塩酸濃度が異なる溶液ごとの表面および断面 SEM の結果

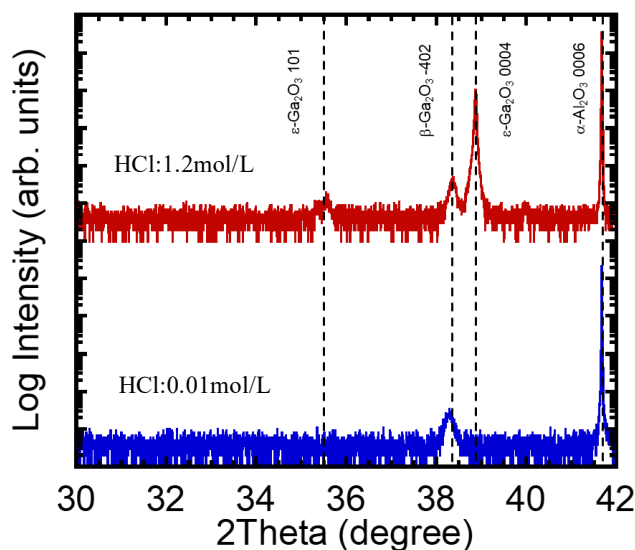


Fig. 2 塩酸濃度が異なる溶液ごとの XRD θ -2 θ 測定の結果

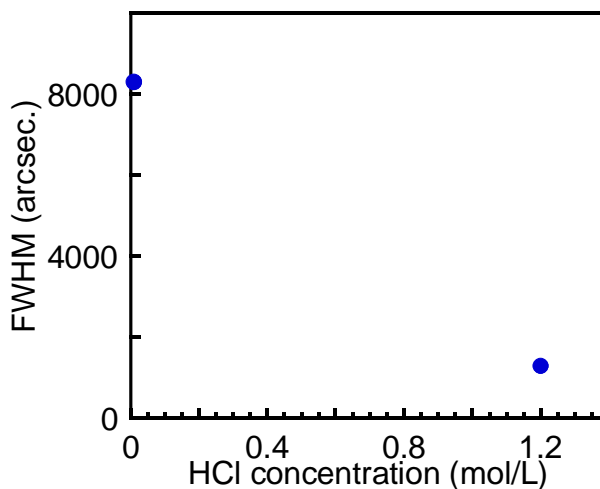


Fig. 3 塩酸濃度が異なる溶液ごとの $-402 \beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ XRC 測定の FWHM 値