

大面積成膜に向けた Mist CVD 法による α - Al_2O_3 基板上 α - Ga_2O_3 成長の成長温度依存性 Growth Temperature Dependence of α - Ga_2O_3 Grown by Mist CVD Toward Large Area Film Formation

飯田隆真¹⁾

指導教員 山口智広^{1, 2)}

研究協力者 山田琴乃²⁾, 杉谷諒²⁾, 山口勇豪²⁾, 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) 工学院大学大学院 工学研究科 電気・電子工学専攻

3) 工学院大学 先進工学部 応用物理学科

本研究では、大面積成膜に向け、ミスト化学気相成長 (Mist Chemical Vapor Deposition: Mist CVD) 法による α - Al_2O_3 基板上 α - Ga_2O_3 成長の成長温度依存性に着目し、単一相制御、表面平坦化、膜厚の観点から、大面積成膜における成長温度制御の重要性について検討・考察を行った。

キーワード: α - Ga_2O_3 , Mist CVD 法, 成長温度依存性, α - Al_2O_3 基板, 大面積成膜

1. 背景

近年、多くの電子部品には半導体が使われている。その多くは、Si の材料を用いられている。しかし、パワーデバイス応用において、Si の代替材料として、高いバンドギャップエネルギーを持つ SiC や GaN に加え、 Ga_2O_3 が近年注目されている。パワーデバイス応用において、高耐圧化を目指すためには厚膜化は重要な要素である^[1]。

Ga_2O_3 は 6 個の結晶構造(α , β , δ , ϵ , γ , κ)を持つ酸化半導体である^[2]。コランダム構造 α - Ga_2O_3 は熱的に準安定相であるが、 Ga_2O_3 の中で 5.3-5.6 eV と最も高いバンドギャップエネルギーを有するため、パワーデバイス材料としてのポテンシャルが最も高い^[1, 3]。また、 α - Ga_2O_3 は汎用的な α - Al_2O_3 基板と同じ結晶構造であるため、デバイス化におけるコスト効率と高い性能が期待されている^[4]。 α - Al_2O_3 基板上への準安定相 α - Ga_2O_3 の成膜は、ミスト化学気相成長 (Mist Chemical Vapor Deposition: Mist CVD) 法で広く報告されている^[1-6]。

Mist CVD 法は金属粉末と塩酸を、超純水により調製した原料溶液を超音波振動子により霧状にし、キャリアガスにより反応炉内の加熱された基板まで運び、熱分解により成膜する手法である。Mist CVD 法における α - Ga_2O_3 の課題点として、 α 相単一相制御や高品質な薄膜を持つ大口径化が困難であることが挙げられる^[4]。Ha 等は、Mist CVD 法で 2 インチ α - Al_2O_3 基板上に成長を行う場合、ミストを流すことにより上流部と下流部で 20°C 程度の温度差がつくことを報告している^[4]。本研究では、この報告例を踏まえ、大面積成膜に向けた α - Al_2O_3 基板上 Mist CVD 法 α - Ga_2O_3 成長の成長温度依存性に着目した。

質な薄膜を持つ大口径化が困難であることが挙げられる^[4]。Ha 等は、Mist CVD 法で 2 インチ α - Al_2O_3 基板上に成長を行う場合、ミストを流すことにより上流部と下流部で 20°C 程度の温度差がつくことを報告している^[4]。本研究では、この報告例を踏まえ、大面積成膜に向けた α - Al_2O_3 基板上 Mist CVD 法 α - Ga_2O_3 成長の成長温度依存性に着目した。

2. 実験条件

Mist CVD 法により、1 cm 角の(0001) α - Al_2O_3 基板上に α - Ga_2O_3 膜を成長時間 1 時間で成膜した。基板の前処理として、アセトン・EL メタノール・超純水で各 5 分ずつ超音波洗浄機を用いて有機洗浄を行った。原料溶液には、ガリウムアセチルアセトナート $\text{Ga}(\text{C}_5\text{H}_7\text{O}_2)_3$ の濃度が 0.05 mol/L、37% 希釈の塩酸の濃度が 0.09 mol/L となるように、超純水を用いて調製した。成長条件は、成長温度を 400-460°C に変化させ、キャリアガス・希釈ガスにはそれぞれ酸素ガスを用い、ガス流量は 3.0 atm·L/min、0.5 atm·L/min とした。評価方法として、走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM) による表面観察・膜厚測定、X 線回折 (X-Ray Diffraction: XRD) θ -2 θ 測定による結晶構造評価を行った。

3. 実験結果及び考察

Fig. 1 に、異なる温度で成長した Ga_2O_3 膜の XRD θ -2 θ 測定結果を示す. 成長温度が 400, 420°C において、 α 相のみが成長した. 一方で、成長温度が 440, 460°C において、 α 相が主体的に成長したものの、 ϵ 相の混入を確認した.

Fig. 2 に、異なる温度で成長した Ga_2O_3 膜の表面 SEM 像を示す. 成長温度が 400, 420°C において、SEM 像のコントラスト差による表面の凹凸が確認した. 一方で、成長温度が 440, 460°C において、コントラスト差による凹凸が低減されていることを確認した.

Fig. 3 に、異なる温度で成長した Ga_2O_3 膜の膜厚を示す. 成長温度 400°C で 500 nm の膜厚が得られるのに対し、成長温度を上げることで、2.5 nm/°C 程度の割合で膜厚が増加することを確認した.

以上の結果を踏まえると、20°C 程度の温度差を考慮した上で大面積 α - Al_2O_3 基板上に α - Ga_2O_3 単一相膜を成長させるためには、この温度域において可能な限り低温で成長することが求められる. 一方、平坦な膜を成長させるためには、可能な限り高温で成長することが求められる. また、均一な膜厚を得るためには、基板の上流部と下流部での温度差を可能な限り小さくする必要があると言える.

4. 結論

基板の上流部と下流部での 20°C 程度の温度差を考慮した上で、Mist CVD 法を用いて大面積 α - Al_2O_3 基板上に単一相 α - Ga_2O_3 膜を実現させるためには、本実験温度域において可能な限り低温で、平坦膜を実現させるためには、可能な限り高温で成長することが求められる. ただし、均一な膜厚を得るためには、その温度差を可能な限り小さくする必要がある.

参考文献

- [1] 西中浩之, Science & Technology セミナー, 「酸化ガリウム(Ga_2O_3)の結晶成長・薄膜形成とデバイス応用」(2022).
 [2] T. Kawaharamura, Jpn. J. Appl. Phys. **53**, 05FF08 (2014).
 [3] K. Uno *et al.*, Appl. Phys. Lett. **117**, 052106 (2020).

[4] Minh-Tan Ha *et al.*, ECS J. Sol. Stat. Sci. Technol. **8**, Q3206 (2019).

[5] F. P. Sabino *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 155206 (2014).

[6] Y. Wang *et al.*, J. Mater. Chem. C **10**, 13395 (2022).

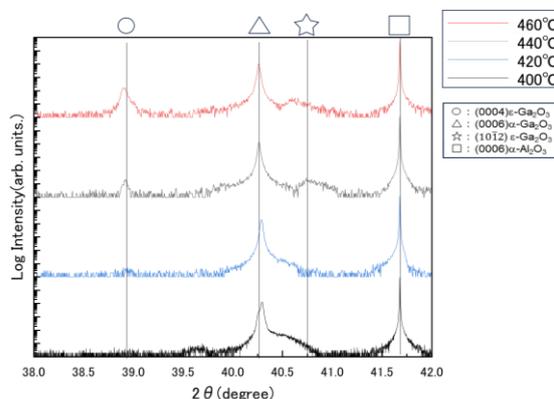


Fig. 1 成長温度変化における XRD θ -2 θ 測定結果

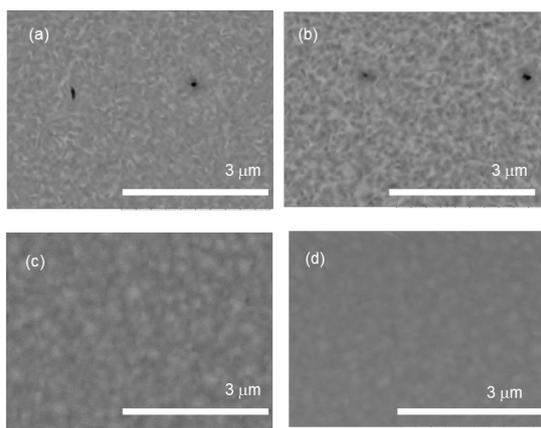


Fig. 2 成長温度変化における表面 SEM 像の結果
(a)400°C (b) 420°C (c) 440°C (d) 460°C

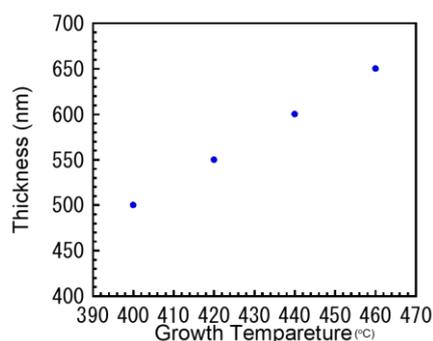


Fig. 3 成長温度変化における膜厚依存性の結果