高電子移動度トランジスタ応用を目指した 高熱伝導率基板上への酸化ガリウム薄膜の 結晶成長技術に関する研究

大阪工業大学 工学部 電気電子システム工学科 小山 政俊

1. はじめに

Ga₂O₃ は約 4.5~5.3 eV のバンドギャップを持つ半導体材料として,深紫外光検出デバイスや パワーデバイス,極限環境デバイスへの応用に向けて近年研究が盛んに行われている.Ga₂O₃ は 5 つの結晶構造をもち,その中でも熱力学的に最も安定な構造であるβ-Ga₂O₃は,バルク基 板が市販されることもあり,基礎研究・応用研究ともに最も盛んに進められている[1].Ga₂O₃ の結晶構造の中で熱力学的に準安定な構造も,それらの物性上の特徴から興味深く,特に orthorhombic 構造のκ-Ga₂O₃ は自発分極を持つことが報告されており[2,3],強誘電体薄膜や分 極に起因する二次元電子ガスを用いたデバイスへの応用が期待される.κ-Ga₂O₃ は,これまで ハイドライド気相成長法[4]や有機金属化学気相堆積(Chemical Vapor Deposition, CVD)法[5], ミスト CVD 法[6]などの種々の方法で結晶成長が報告されている.これらの結晶成長には,β-Ga₂O₃ 基板やサファイア基板,GaN 基板上への成長が報告されているが,κ-Ga₂O₃ の分極電荷 を利用した高電子移動度トランジスタのようなヘテロ構造デバイスの形成を目指した場合,こ れらの基板の比較的低い熱伝導率によって動作中のチャネル温度の上昇が課題となる可能性 が高い.

そこで本研究では、 κ -Ga₂O₃を成長する基板として 3C-SiC に注目している. これまで、4H-SiC や、6H-SiC は熱伝導率が高いことが知られてきたが、3C-SiC はそれらを上回る 500 Wm⁻¹K⁻¹ 以上の高い熱伝導率をもつことが近年実験的に示された[7]. 3C-SiC 上への κ -Ga₂O₃ の成 膜は、2016 年に Boschi らが有機金属気相成長法で成膜したことを報告している[5]. 筆者らは Si (111) 基板上に成長された 3C-SiC (111) テンプレート基板上にミスト CVD 法によって κ -Ga₂O₃ が成膜できることを発表してきた[8,9]. 本研究では、 κ -Ga₂O₃ を用いた高電子移動度ト ランジスタに代表されるヘテロ構造デバイス応用を目指し、 κ -Ga₂O₃ に In₂O₃ を混晶化した (In_xGa_{1-x})₂O₃ 薄膜を 3C-SiC (111)上に成膜することを検討した.

2. (In_xGa_{1-x})₂O₃薄膜の成膜方法と成膜条件

Ga₂O₃と In₂O₃を混晶化した(In_xGa_{1-x})₂O₃ 混晶薄膜の成膜に用いた 3C-SiC(111)は, Si (111) 基 板上に有機金属 CVD 法で 3C-SiC (111) を 900 nm 成長したテンプレート基板 (エア・ウォー ター社製)を用いた. 成膜手法は,図1に示すファインチャネル方式のミスト CVD 法を用い た. 原料となる前駆体溶液の溶質には,Ga アセチルアセトナート([CH₃COCH=C(O-)CH₃]₃Ga, 以下,Ga(acac)₃, Sigma-Aldrich 社製,純度:99.99%)と,In アセチルアセトナート

([CH₃COCH=C(O-)CH₃]₃In,以下,In(acac)₃,Sigma-Aldrich 社製,純度:99.99%)を用いた.
Ga(acac)₃を 0.02 mol/L の濃度で超純水に溶解させた溶液中に,In(acac)₃を混合し溶解させた.
溶質を完全に溶解させるために塩酸を添加した.前駆体溶液中の Ga(acac)₃のモル濃度([Ga])

に対して In(acac)₃のモル濃度([In])の割 合([In]/([Ga]+[In]))が $0 \sim 0.30$ となる溶 液を成膜に用い,成膜後の薄膜の In 組成 xをエネルギー分散型 X 線分光(Energydispersive X-ray spectroscopy,以下 EDS) によって評価した.原料ミストの供給を行 う搬送ガス,希釈ガスには N₂ ガスを用い, それぞれ 2.0, 0.5 L/min の流量で成膜した. 成膜温度は 450℃,成長時間は 1 h とした.



図 1 ミスト CVD 装置の概要

3. (In_xGa_{1-x})₂O₃薄膜の結晶構造とIn 組成

成膜した (In_xGa_{1-x})₂O₃ 薄膜の結晶構造を調べるために X 線回折 (X-ray Diffraction, 以下 XRD) $2\theta/\omega$ スキャン測定を行った (図 2). 前駆体溶液中の In (acac)₃ のモル濃度比が 0~0.20 で成膜した薄膜において c 軸に配向した orthorhombic 構造の κ -(In_xGa_{1-x})₂O₃ 薄膜が成長され たことがわかる. 前駆体溶液中の In (acac)₃ のモル濃度比が増加するに連れて κ -Ga₂O₃ (004) 回 折のピークは低角度側にシフトした. これは, In (acac)₃ のモル濃度比の増加に伴って In 原子 と Ga 原子の置換が進み, 面間隔が広がったためと考えられる. 一方, In (acac)₃ のモル濃度比 が 0.25 以上では orthorhombic 構造に由来するピークが消失し, 非晶質の Ga₂O₃ 薄膜が成膜さ れた. また, In (acac)₃ のモル濃度の比 0.05 の前駆体溶液で成膜した薄膜を用いて, XRD φ ス



図 2 (In_xGa_{1-x})₂O₃薄膜の XRD パターン

キャンによって κ-(In_xGa_{1-x})₂O₃ と 3C-SiC の面内配向関係を調べた結果, κ-(In_xGa_{1-x})₂O₃ 薄膜に おいても κ-Ga₂O₃ 同様[8,9], 直方晶の orthorhombic 構造が面内で 120°ずつ回転した回転ドメ インを有する構造であることがわかった.

In (acac)₃のモル濃度比 0.30 で成膜した薄膜で測定した EDS スペクトルを図 3 に, In 組成 x を前駆体溶液の In (acac)₃モル濃度の比に対してプロットした結果を図 4 に示す. モル濃度 の比が 0 ~ 0.20 の範囲では, (In_xGa_{1-x})₂O₃薄膜は κ 相の orthorhombic 構造を維持し, その In 組 成 x は 0 ~ 0.14 で変化することがわかった. ミスト CVD 法で c 面サファイア基板上に(In_xGa_{1-x})₂O₃薄膜を成長した先行研究では, In 組成 x が 0.20 まで κ 相が維持されることが報告され ており[10],本研究の結果はそれらと比較して In 組成が低い結果ではあるが,成長温度など条 件の最適化によって改善される可能性がある.



図 3 EDX スペクトル(前駆体溶液中の In (acac)3のモル濃度比 0.30)



図 4 前駆体溶液中の In (acac)₃のモル濃度比に対する(In_xGa_{1-x})₂O₃薄膜の In 組成

4. まとめ

本研究では、3C-SiC が有する高い熱伝導率に注目し、(111) 3C-SiC/(111)Si テンプレート基 板上にファインチャネル式ミスト CVD 法を用いて orthorhombic 構造を有する κ -(In_xGa_{1-x})₂O₃ 混晶薄膜の成長を試み、成長した薄膜の結晶構造、In 組成を調べた. 前駆体溶液中の In (acac)₃ モル濃度比を 0~0.30 の範囲で成膜した結果、0~0.20 の範囲で、 κ -(In_xGa_{1-x})₂O₃ 002 配向した薄膜が成長することが分かった. これらの薄膜の In 組成は 0 \leq x \leq 0.143 の範囲で 変化した. これまで、3C-SiC 上に κ -(In_xGa_{1-x})₂O₃ 薄膜を成膜した報告はなく、本研究におい て初めて成功した.

謝辞

本研究を遂行するにあたり、公益財団法人天野工業技術研究所から多大なご支援を頂きました。ここに記して謝意を示します。

参考文献

- S. Pearton, F. Ren, and M. Mastro, "Galium Oxide, Technology, Devices and Applications" ELSEVIER (2018).
- F. Mezzadri, G. Calestani, F. Boschi, D. Delmonte, M. Bosi and R. Fornari, Inorg. Chem. 55, 12079 (2016).
- 3) M. B. Maccioni and V. Fiorentini, Appl. Phys. Express 9, 041102 (2016).
- Y. Oshima, E. G. Villora, Y. Matsushita, S. Yamamoto and K. Shimamura, J. Appl. Phys. 118, 085301 (2015).
- 5) F. Boschi, M. Bosi, T. Berzina, E. Buffagni, C. Ferrari and R. Fornari, J. Cryst. Growth 443, 25 (2016).
- 6) H. Nishinaka, D. Tahara and M. Yoshimoto, Jpn. J. Appl. Phys. 55, 1202BC (2016).
- Z. Cheng, J. Liang, K. Kawamura, H. Zhou, H. Asamura, H. Uratani, J. Tiwari, S. Graham, Y. Ohno, Y. Nagai, T. Feng, N. Shigekawa and D. G. Cahill, Nature Communications 13, 7201 (2022).
- 8) T. Kaneko, M. Koyama, T. Maemoto and S. Sasa, Transparent Conductive Materials 2018, (2018).
- M. Koyama, T. Kaneko, S. Fujiwara, T. Maemoto and S. Sasa, 2019 Compound Semiconductor Week, (2019).
- H. Nishinaka, N. Miyauchi, D. Tahara, S. Morimoto and M. Yoshimoto, CrystEngComm 20, 1882 (2018).

学会発表

1. 田中悠馬, 宮嵜愛実, 山崎伊織, 小山政俊, 藤井彰彦, 前元利彦, (111) 3C-SiC 上へ κ-(In_xGa_{1-x})₂O₃ 混晶薄膜のミスト CVD 成長とその評価, 応用物理学会関西支部第 3 回講演会, 三菱電機株式会社 高周波光デバイス製作所(伊丹), 2025 年 1 月 31 日.

- 西川未咲, 榎駿介, 田中悠馬, 小山政俊, 藤井彰彦, 前元利彦, ミスト CVD 法による (111) 3C-SiC/Si テンプレート上 κ-(In_xGa_{1-x})₂O₃の成長, 第 86 回応用物理学会秋季学術講演会, 名城大学(名 古屋), 2025年9月10日(発表予定).
- 3. Masatoshi Koyama, Yuma Tanaka, Misaki Nishikawa, Shunsuke Enoki, Akihiko Fujii and Toshihiko Maemoto, Growth of orthorhombic κ -(In_xGa_{1-x})₂O₃ thin films on (111) 3C-SiC templates via mist chemical vapor deposition, The 2025 Fall Meeting of the European Material Research Society(E-MRS), University of Technology in Warsaw (Warsaw, Poland), submitted.