

学位論文の内容の要約

氏名	野村 一城
学位の種類	博士 (工学)
学府又は研究科・専攻	大学院工学府 応用化学専攻
指導を受けた大学	東京農工大学
学位論文題目	A study on homoepitaxial growth of β -Ga ₂ O ₃ by halide vapor phase epitaxy.

【論文の内容の要約】

酸化ガリウム(β -Ga₂O₃)は 4.5~4.8 eV もの広いバンドギャップエネルギーを有し、絶縁破壊電界が 8 MV/cm と高いことから高耐圧・高効率パワーデバイス材料として期待されている。更に酸化ガリウムは融液成長法により低コストで高品質な大口径バルク結晶を得られることや、n 形導電性の制御が可能のため、他の次世代パワーデバイス材料(4H-SiC, GaN 等)と比べても魅力的な材料であり、デバイス実現に向けて研究が活発に行われている。しかしながら、MOVPE や MBE など従来の薄膜成長法では高純度酸化ガリウムの高速成長が困難であり、高耐圧・高効率パワーデバイス作製に必須な厚膜成長と低キャリア密度領域(10^{15} cm⁻³ 台)での導電性制御の両立は未だ実現できていないのが現状である。そこで、本研究ではこの問題を根本的に解決するため、高速厚膜成長および高純度成長が可能なハライド気相成長(HVPE)法を新たに提案した。本論文では HVPE 法による酸化ガリウムのホモエピタキシャル成長について理論解析から実際の実験まで一貫して行い、高純度酸化ガリウムの高速成長および厚膜かつ低キャリア密度領域での導電性制御を試みた。その結果、原料として GaCl と O₂ を、キャリアガスとして窒素を用いることで、従来法では困難な最大約 20 μ m/h の高速成長を達成した。さらに、基板とほぼ同じ結晶性であり、残留キャリア密度が 10^{13} cm⁻³ 以下と超高純度であった。更にこの成長技術を基に、SiCl₄ をドーパントとした n 形ドーピングを行い、超高耐圧・高効率デバイス作製に供することができる 10^{15} cm⁻³ 台からの導電性制御を世界で初めて実現した。以下に各章について簡単に紹介する。

第 1 章では、電力省エネルギー化の観点から、高耐圧パワーデバイスの高効率化の必要性を説明し、次世代材料として注目を集めている酸化ガリウムの基礎物性とその成長法および実現までの課題を紹介した。

第 2 章では、本研究で使用した装置および成長条件と、熱力学解析の気相成長法における有用性を示した。成長実験(第 5 章、第 6 章)に使用した装置は大気圧横型石英管であり、原料部と成長部にわかれている。原料部では 850°C にて Ga 金属と塩素ガスを反応させ、GaCl

ガスを選択的に生成させる。生成した GaCl ガスは成長部に輸送され、酸素と反応させて (001)面酸化ガリウム基板上へ酸化ガリウムを成長させる構造になっている。成長温度は 1000°C 付近、全流量は 1600 sccm である。また、酸化ガリウム基板の熱処理実験(第3章)では、RF加熱コイルを使用した大気圧横型石英管を用いており、上流部から供給した窒素と水素の混合雰囲気下(水素供給分圧比を $F^\circ = P^\circ_{\text{H}_2} / (P^\circ_{\text{N}_2} + P^\circ_{\text{H}_2})$ とした)雰囲気下において(010)面酸化ガリウム基板の熱処理を行った。

第3章では、酸化ガリウムのホモエピタキシャル成長や酸化ガリウム基板上への GaN 成長に向けた知見として、酸化ガリウム基板の熱的安定性について熱処理実験と熱力学解析の両手法で検討した結果を示した。熱処理は $250\sim 1450^\circ\text{C}$ にて行われた。窒素雰囲気下の熱処理では 1150°C からガリウムドロップレット生成せずに自己分解が生じたが、一方で水素窒素混合雰囲気下の熱処理では 350°C と極めて低い温度から水素による分解が生じ、同時にガリウムドロップレットが表面に発生することが明らかとなった。また、同条件の熱力学解析から、 Ga ドロップレット生成の原因は蒸気圧よりも Ga ガスが多く生成されたためと考えられる。一方で同じ III 族酸化物のサファイアでは窒素・水素混合雰囲気下では AlN ウィスカーが生成したが、これは Al ガスの蒸気圧が高いためにドロップレットにならなかったことが原因と考えられる。以上から、水素存在下での酸化ガリウム基板を成長に用いる場合はマスクをするなど表面を保護する必要があることが明らかとなった。

第4章では、熱力学解析を用いて HVPE 法による酸化ガリウム成長に向けて原料および成長条件を検討した結果を述べた。 GaCl と O_2 を原料、窒素をキャリアガスとして用いることで 1600°C までの高温で酸化ガリウム成長が可能であることがわかった。一方で、水素がキャリアガス中に数%でも存在する場合は 1000°C においても成長が見込めないことが示唆された。解析結果と成長実験によって得られた結果はよく一致しており、本研究で構築した成長装置では熱力学的に成長を制御・予測可能であることが示唆された。

第5章では、第3章、第4章の知見をもとに、 GaCl と O_2 を用いた HVPE 法による酸化ガリウムのホモエピタキシャル成長を行った結果を述べている。 1000°C 成長では基板と同等の結晶性を有した高品質結晶が得られ、最大約 $20\ \mu\text{m/h}$ の高速成長を実現した。さらに、SIMS 測定では Cl をわずかに検出されたもののその他の不純物はバックグラウンド以下と高純度であることが確認された。また、電気特性評価により、残留キャリア密度が 10^{13} cm^{-3} 未満であることが明らかとなった。以上から、HVPE 法によって高純度な酸化ガリウム成長の高速成長を実現でき、低キャリア密度領域からの導電性制御が可能であることが示唆された。

第6章では、HVPE 法による高純度酸化ガリウム成長技術を用いて、成長層の導電性制御を行った結果を報告した。 SiCl_4 をドーパントとして用い、 GaCl との供給比を R_{Si} として制御を行った。その結果、 $10^{15}\sim 10^{19}\text{ cm}^{-3}$ の範囲で Si 濃度を線形制御できることが明らかとなった。さらに、ホール測定から成長層のキャリア密度は Si 濃度とほぼ 1 対 1 であることがわかり、アクセプターによる補償はみられなかった。以上の結果より、HVPE 法により β -

Ga₂O₃ ホモエピタキシャル成長層のキャリア密度を 10¹⁵ cm⁻³ 台から制御でき、超高耐圧・低損失化が可能な導電性制御を世界で初めて実現した。

最後に第7章では、本論文の総括を行った。酸化ガリウムのエピタキシャル成長法にHVPE法を用いる事で、高純度酸化ガリウム的高速成長を実現し、さらに酸化ガリウム成長層の低キャリア密度領域での導電性制御に成功した。その結果、従来法では困難であった20kV級の超高耐圧・高効率パワーデバイスの実現に大きく貢献でき、本研究成果は学術的のみならず産業的にも大変意義のある成果となった。