



(様式 5)

|             |   |
|-------------|---|
| 指導教員<br>承認印 |  |
|-------------|---|

平成 27 年 11 月 29 日

## 学位 (博士) 論文の和文要旨

|                 |   |   |
|-----------------|---|---|
| 論文提出者           | 工学府博士後期課程 応用化学専攻<br>平成 25 年度入学<br>学籍番号 13832104 氏名 野村 一城  |  |
| 主指導教員<br>氏 名    | 熊谷 義直   |   |
| 論文題目            | A study on homoepitaxial growth of $\beta$ -Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub> by halide vapor phase epitaxy<br>(ハライド気相成長法による酸化ガリウムのホモエピタキシャル成長に関する研究)  |   |
| 論文要旨 (2000 字程度) | <p>酸化ガリウム(<math>\beta</math>-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)は 4.5~4.8 eV ものワイドバンドギャップエネルギーを有し、n 形導電性の制御が可能なることから、高耐圧・高効率パワーデバイス材料として近年注目されている。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ため、既に長年研究されている次世代パワーデバイス材料(4H-SiC, GaN 等)と引けを取らない魅力的な材料であり、デバイス実現に向けて酸化ガリウム基板を用いたホモエピタキシャル成長の研究が活発に進められている。しかし、従来の成長法(MOVPE, MBE 等)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・高効率デバイス作製に必須の厚膜(&gt;10 <math>\mu</math>m)かつ低キャリア密度領域(<math>10^{15}</math> cm<sup>-3</sup> 台~)での導電性制御を実現できていない。この問題の根本的解決案の一つとして、高速厚膜成長および高純度成長が可能と目されるハライド気相成長(HVPE)法の利用が考えられるが、これまでに HVPE 法による酸化ガリウムのエピタキシャル成長の報告例はなかった。</p> <p>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、GaCl と O<sub>2</sub> を原料、窒素をキャリアガスとして用いることで、従来法では困難な最大約 20 <math>\mu</math>m/h の高速成長を達成し、基板とほぼ同じ結晶性を保ちながら残留キャリア(電子)密度が <math>10^{13}</math> cm<sup>-3</sup> 以下の高純度成長を実現した。更に、SiCl<sub>4</sub> をドーパントとした n 形 Si ドーピングにより <math>10^{15}</math> cm<sup>-3</sup> 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。</p> <p>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酸化ガリウムの従来の成長法およびその課題を紹介した。</p> |   |

第2章では、本研究で使用した各種装置および実験条件と、熱力学解析を用いた気相成長法の解析について示した。

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。窒素雰囲気下の熱処理では 1150°C から Ga 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、水素・窒素混合雰囲気下の熱処理における Ga ドロップレットの生成は Ga 蒸気圧よりも Ga ガス分圧が大きいことが原因であると示唆された。以上から、水素存在下で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<sub>2</sub> 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示唆された。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。

第5章では、第3章・第4章で得られた知見をもとに、GaCl と O<sub>2</sub> 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 μm/h の高速成長を実現した。SIMS 測定では Cl が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濃度以下と高純度であることが確認された。さらに、電気特性評価により、残留キャリア(電子)密度が 10<sup>13</sup> cm<sup>-3</sup> 以下であることが明らかとなった。熱力学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・予測可能であるとわかった。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示している。SiCl<sub>4</sub> をドーパントとして用い、GaCl との供給比を制御した結果、10<sup>15</sup>~10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup> の範囲で Si 濃度を制御できることが明らかとなった。さらに、成長層のキャリア密度は Si 濃度とほぼ 1 対 1 であり、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-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ホモエピタキシャル成長層のキャリア密度を 10<sup>15</sup> cm<sup>-3</sup> 台から制御でき、超高耐圧・高効率パワーデバイス作製に供することのできる導電性制御技術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の高速成長を実現し、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。



第2章では、本研究で使用した各種装置および実験条件と、熱力学解析を用いた気相成長法の解析について示した。

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。窒素雰囲気下の熱処理では 1150°C から Ga 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、水素・窒素混合雰囲気下の熱処理における Ga ドロップレットの生成は Ga 蒸気圧よりも Ga ガス分圧が大きいことが原因であると示唆された。以上から、水素存在下で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<sub>2</sub> 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示唆された。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。

第5章では、第3章・第4章で得られた知見をもとに、GaCl と O<sub>2</sub> 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 μm/h の高速成長を実現した。SIMS 測定では Cl が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濃度以下と高純度であることが確認された。さらに、電気特性評価により、残留キャリア(電子)密度が 10<sup>13</sup> cm<sup>-3</sup> 以下であることが明らかとなった。熱力学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・予測可能であるとわかった。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示している。SiCl<sub>4</sub> をドーパントとして用い、GaCl との供給比を制御した結果、10<sup>15</sup>~10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup> の範囲で Si 濃度を制御できることが明らかとなった。さらに、成長層のキャリア密度は Si 濃度とほぼ 1 対 1 であり、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-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ホモエピタキシャル成長層のキャリア密度を 10<sup>15</sup> cm<sup>-3</sup> 台から制御でき、超高耐圧・高効率パワーデバイス作製に供することのできる導電性制御技術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の高速成長を実現し、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。