

平成 30 年 6 月 12 日現在

機関番号：17201

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13673

研究課題名(和文) 7 eVのバンドギャップを持つ半導体の作製

研究課題名(英文) Fabrication of an ultra-wide-band-gap semiconductor having a 7-eV band gap

研究代表者

大島 孝仁 (Oshima, Takayoshi)

佐賀大学・理工学部・准教授

研究者番号：60583151

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：準安定相酸化ガリウム混晶エレクトロニクス発展に繋がる以下の成果を得た。
(1) 型酸化アルミニウムガリウム単結晶混晶薄膜の作製にスピネル基板を用いて成功した。薄膜は、全率固溶可能であり、バンドギャップは5.0から7.0 eVまで制御可能であった。
(2) 型酸化ガリウムと酸化アルミニウムの超格子を初めて作製し、デバイス応用上好ましいコヒーレント界面であることを確認した。型についても同様の超格子が作製できることを示した。

研究成果の概要(英文)：(1) Growth of $(\text{Al},\text{Ga})\text{2O}_3$ single crystalline alloy films with entire alloy compositions were using MgAl_2O_4 substrates. The band gap of the alloy can be tuned in a wide range between 5.0 and 7.0 eV. (2) -, and $(\text{Al},\text{Ga})\text{2O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ superlattices were fabricated on sapphire and MgAl_2O_4 substrates, respectively. Both superlattices revealed to have coherent interfaces, which is desirable for heterojunction device applications. These results will encourage the studies on meta-stable phase $(\text{Al},\text{Ga})\text{2O}_3$ -based electronics.

研究分野：結晶工学

キーワード：酸化ガリウム 混晶 超格子

1. 研究開始当初の背景

(1) 半導体の基礎物性で最も重要なバンドギャップについて、その最大の値は現在 AlN 半導体の 6.3 eV である。しかしながら、AlN の n 型化以前はダイヤモンドの 5.5 eV が最大の値であった。このように、バンドギャップが最大の半導体は新規半導体材料開拓により更新されてきた。

(2) そして本研究は、(Al,Ga)₂O₃ 新規混晶系により、AlN のバンドギャップを超える半導体 (おおよそ 7 eV) の実現を目指して開始した。この (Al,Ga)₂O₃ 混晶系については、幾つかの結晶多形が候補としてあげられるが、研究開始当初は図 1 のように 8.8 eV までバンドギャップを拡大できるコランダム型構造の α 型が全率固溶可能で最も有望と考えていた。

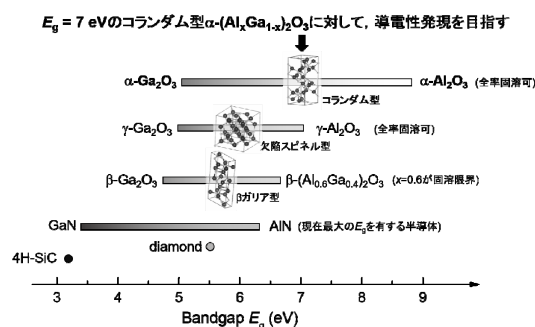


図 1 各種半導体のバンドギャップ。γ 型については、研究開始当初には混晶のデータ無し (本研究成果により追加)。

(3) しかしながら、本研究で実際に用いた薄膜成長装置である分子線エピタキシーでは、結晶性を維持した厚い α-(Al,Ga)₂O₃ 混晶薄膜の作製が困難であることが分かった。そこで本研究では、当初の目標を変更して、試行錯誤の段階で得られた欠陥スピネル構造を持つ新しい混晶系 γ-(Al,Ga)₂O₃ や準安定相超格子について研究を進めた。

2. 研究の目的

(1) (Al,Ga)₂O₃ 系混晶エレクトロニクスは、Ga₂O₃ パワーエレクトロニクスの急速な発展により徐々に注目されてきた。特に β-(Al,Ga)₂O₃ 系では変調ドープトランジスタなどのデバイス応用が精力的に研究され実際に本研究期間中に試作デバイスが報告された。一方で、他の準安定相の (Al,Ga)₂O₃ 混晶系に関する研究は非常に少なく、これから研究開発が本格化すると考えられる。そのような中で研究代表者は本萌芽プロジェクトに取り組み中で、以下のテーマについても有意義であると判断して実施した。

(2) γ-(Al,Ga)₂O₃ 混晶系が実現可能かどうか検討した。この混晶系は、γ-Ga₂O₃ と γ-Al₂O₃ の混晶であり、どちらも準安定相である。

(3) 準安定相である α-(Al,Ga)₂O₃ や γ-(Al,Ga)₂O₃ のヘテロ接合、超格子の実現可能性を検討した。最も簡単な検討方法は、混晶の母材同士の超格子、すなわち Ga₂O₃/Al₂O₃ 超格子が作製可能か試みることである。

3. 研究の方法

(1) 酸素ラジカル支援分子線エピタキシー法により、γ-(Al,Ga)₂O₃ 混晶や α-Ga₂O₃/Al₂O₃ 超格子、γ-Ga₂O₃/Al₂O₃ 超格子の作製を試みた。γ 型についてはスピネル構造を持つ MgAl₂O₄ (001) を基板とし、α 型についてはコランダム構造を持つ α-Al₂O₃(01-12) を基板とした。

(2) 得られた薄膜について、結晶構造解析を X 線回折により行った。γ-(Al,Ga)₂O₃ 混晶については、透過率測定からバンドギャップを評価した。また、α-Ga₂O₃/Al₂O₃ 超格子については、光電子分光によりバンドオフセットも評価した。

4. 研究成果

(1) γ-(Al,Ga)₂O₃ 混晶について、図 2 に種々の Al 組成の X 線回折パターンを示す。x = 0 の γ-Ga₂O₃ から 1 の γ-Al₂O₃ まで連続的にピークがシフトしていることが確認でき、混晶半導体の全率での組成制御に成功した。これは、母材が準安定相であることを考慮すれば、非常に興味深い結果である。なお、γ-Ga₂O₃ よりも混晶の方がよい結晶性を示すため、準安定相の安定化には Al₂O₃ の寄与が大きいと考えられる。

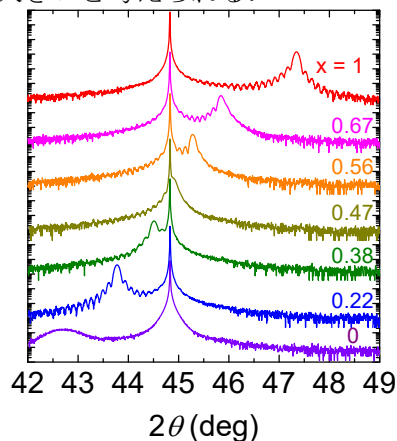


図 2 γ-(Al,Ga)₂O₃ 混晶の X 線回折パターン。(004) 面である。

(2) 作製した γ-(Al,Ga)₂O₃ 混晶の透過率より求めたバンドギャップを図 3 に示す。バンドギャップが組成増大とともに連続的に増加していることが分かる。直接遷移を仮定したときは、バンドギャップが 7 eV まで拡大できた。これは、現状の β-(Al,Ga)₂O₃ の制御上限 6.5 eV よりも大きい。この成果は、(Al,Ga)₂O₃ 混晶に γ 型の選択肢があることを示した重要なものであると考えている。

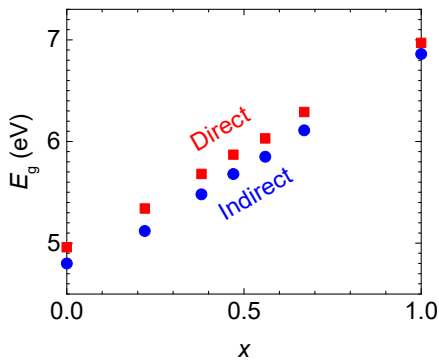


図3 γ -(Al,Ga) $_2$ O $_3$ 混晶の組成とバンドギャップの関係. 直接遷移と間接遷移の2つの仮定をしている.

(3) α -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ 超格子について, 10 周期サンプルの X 線回折パターンを図 4 に示す. α -Ga $_2$ O $_3$ 層厚をパラメータとしており, サンプル A, B, C の α -Ga $_2$ O $_3$ 層厚はそれぞれ 0.5, 1.0, 1.3 nm である. 一見して分かる通り, その厚みが 1.0 nm 以下では明瞭なサテライトピークが確認でき, 高結晶性の超格子が作製できたことが分かった.

また, 図 5 に示す逆格子マップから α -Ga $_2$ O $_3$ 層厚が 1.0 nm ではヘテロ接合界面がコヒーレントであることが分かった. 格子不整合度が約 4%であることを考慮すると妥当な結果と言える. なお, 今回は α -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ の組み合わせであったが, α -Ga $_2$ O $_3$ /(Al,Ga) $_2$ O $_3$ ではより α -Ga $_2$ O $_3$ 層厚を大きくできるので, より自由度の高いヘテロ接合や超格子が作製できると考えられる.

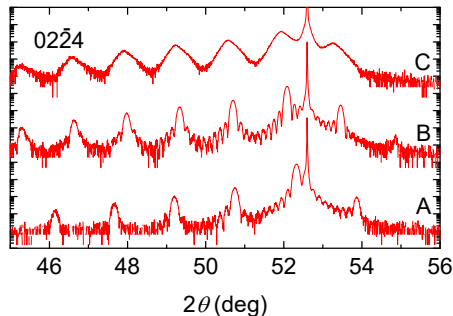


図 4 10 周期 α -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ 超格子の X 線回折パターン.

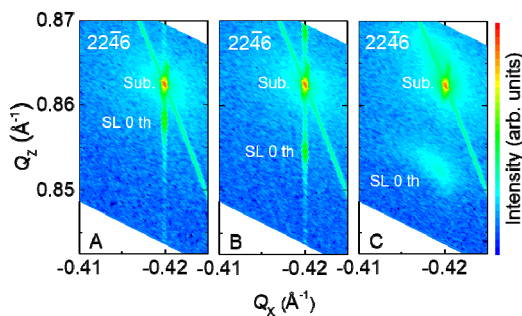


図 5 α -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ 超格子の X 線回折逆格子マップ.

(4) このコヒーレントな α -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ ヘテロ接合について, バンドアライメントを光電子分光により測定した. 詳細は省略するが, 測定結果を分析し図 6 のとおりアライメントを描くことができた. α -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ ヘテロ接合のバンドオフセットに関する測定報告はこれが初めてである.

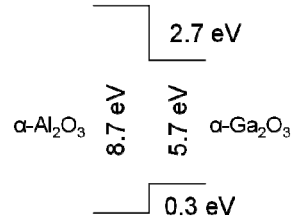


図 6 光電子分光測定より得られたバンドアライメント.

(5) γ -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ 超格子については, 図 2 に示すように, 基板である MgAl $_2$ O $_4$ の格子定数が γ -Ga $_2$ O $_3$ と γ -Al $_2$ O $_3$ の間に位置している. そのため, γ -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ 超格子の各層の比率を制御することで, 超格子の平均格子定数を基板に整合させることができる. そのような調整をして作製した 10 周期 γ -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ 超格子の X 線回折パターンを図 7 に示す. 基板のピークと超格子の 0 時ピークがほぼ重なっており, ほぼ格子整合の条件で作製できていることが分かる. また, 逆格子マップからコヒーレントであることが分かった. これらの結果は, γ 型混晶系においても, ヘテロ接合や超格子デバイスが想定可能であることを示唆している.

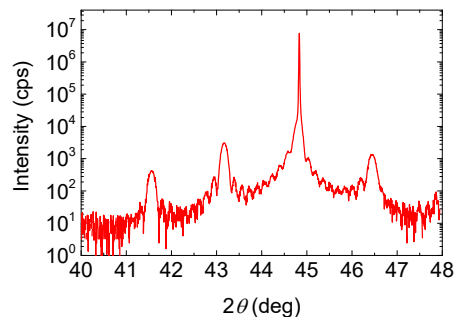


図 7 10 周期 γ -Ga $_2$ O $_3$ /Al $_2$ O $_3$ 超格子の (004) 面 X 線回折パターン.

(6) 以上, 当初の計画とは大幅に異なったが, 新しい混晶系材料の開拓ならびに, 超格子作製について取り組んだ. これらの結果は, 結晶工学分野にとって, 大きな前進となると考えられる.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

1. Takayoshi Oshima, Yuji Kato, Eiichi Kobayashi, Kazutoshi Takahashi
“Measurements of the band alignment at coherent α -Ga₂O₃/Al₂O₃ heterojunctions”
Japanese Journal of Applied Physics in press. 査読有
2. Takayoshi Oshima, Yuji Kato, Masataka Imura, Yoshiko Nakayama, Masaki Takeguchi
“ α -Al₂O₃/Ga₂O₃ superlattices coherently grown on r-plane sapphire”
Applied Physics Express 11 (2018) 065501 (4 pages). 査読有
3. Takayoshi Oshima, Akihiro Hashiguchi, Tomoya Moribayashi, Kimiyoshi Koshi, Kohei Sasaki, Akito Kuramata, Osamu Ueda, Toshiyuki Oishi, and Makoto Kasu
“Electrical properties of Schottky barrier diodes fabricated on (001) β -Ga₂O₃ substrates with crystal defects”
Japanese Journal of Applied Physics 56 (2017) 086501 (7 pages). 査読有
4. Takayoshi Oshima, Yuji Kato, Masaya Oda, Toshimi Hitora, and Makoto Kasu
“Epitaxial growth of γ -(Al_xGa_{1-x})₂O₃ alloy films for band-gap engineering”
Applied Physics Express 10 (2017) 051104 (4 pages). 査読有
5. Takayoshi Oshima, Yuji Kato, Naoto Kawano, Akito Kuramata, Shigenobu Yamakoshi, Shizuo Fujita, Toshiyuki Oishi, and Makoto Kasu
“Carrier confinement observed at modulation-doped β -(Al_xGa_{1-x})₂O₃/Ga₂O₃ heterojunction interface”
Applied Physics Express 10 (2017) 035701 (3 pages). 査読有
6. Takayoshi Oshima, Ryo Wakabayashi, Mai Hattori, Akihiro Hashiguchi, Naoto Kawano, Kohei Sasaki, Takekazu Masui, Akito Kuramata, Shigenobu Yamakoshi, Kohei Yoshimatsu, Akira Ohtomo, Toshiyuki Oishi, and Makoto Kasu
“Formation of indium-tin oxide ohmic contacts for β -Ga₂O₃”
Japanese Journal of Applied Physics Selected Topics in Applied Physics 55 (2016) 1202B7 (3 pages). 査読有

[学会発表] (計 24 件)

1. Takayoshi Oshima
“MBE grown coherent alpha-Al₂O₃/Ga₂O₃ superlattices”
European Materials Research Society,

Warsaw, Poland (Sep. 17–20, 2018) XXX (Oral, Invited)

2. Takayoshi Oshima
“High voltage operation of Ga₂O₃ MOS photodiodes”
Lester Eastman Conference, Columbus, USA (Aug. 12–14, 2018) XXX (Oral, Invited)
3. Takayoshi Oshima
“Ga₂O₃-based metal-insulator-semiconductor photodiodes”
SPIE Photonics West, San Francisco, USA (Jan. 27–Feb. 1, 2018) 10533-26 (Oral, Invited)
4. 大島孝仁
“(Al,Ga)₂O₃ 混晶系の現状について”
2017 年第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場, 福岡 (2017 年 9 月 5–8 日) 8p-A204-4. (招待)
5. Takayoshi Oshima
“Growth and characterization of (Al,Ga)₂O₃-based alloy and heterostructures”
The 5th International Conference on Light-Emitting Devices and Their Industrial Applications, Yokohama, Japan (April 19–21, 2017) LED5-1 (Oral, Invited)
6. 大島孝仁, 加藤勇次, 河野直士, 倉又朗人, 山腰茂伸, 藤田静雄, 大石敏之, 嘉数誠
“酸化ガリウム系ヘテロ接合界面におけるキャリア閉じ込めの観察”
電気学会 電子デバイス研究会 次世代化合物半導体デバイスの機能と応用, 絹の溪谷碧流, 栃木県 (2017 年 3 月 9–10 日) EDD-17-042. (招待)
7. 大島孝仁
“酸化ガリウム系半導体の薄膜成長”
第 1 回 ISYSE 研究会, 広島大学 (2016 年 8 月 26 日). (招待)
8. 大島孝仁
“Mist CVD 法の基礎と応用”
日本学術振興会透明酸化物光・電子材料第 166 委員会第 72 回研究会, 田町キャンパスイノベーションセンター, 東京都 (2016 年 7 月 15 日) I05. (招待)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 積層体および半導体装置

発明者：大島孝仁，四戸孝，高橋勲
権利者：株式会社 FLOSFIA
種類：特許
番号：特許出願 2018-036003
出願年月日：2018 年 2 月 28 日
国内外の別： 国内

[その他]

ホームページ等

<https://researchmap.jp/oshimatakayoshi/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大島 孝仁 (OSHIMA Takayoshi)

佐賀大学・理工学部・准教授

研究者番号：60583151

(2) 研究分担者

該当なし.

(3) 連携研究者

井村 将隆 (IMURA Masataka)

物質材料研究機構・主任研究員

研究者番号：80465971

高橋 和敏 (TAKAHASHI Kazutoshi)

佐賀大学・シンクロトロン光応用研究セン

ター・准教授

研究者番号：30332183

(4) 研究協力者

加藤 勇次 (KATO Yuji)

佐賀大学・理工学部・修士課程学生