

令和 4 年 6 月 20 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04503

研究課題名(和文) -Ga203のフェルミオロジーと物性

研究課題名(英文) Fermiology and physical properties of beta-Ga203

研究代表者

伊藤 利充 (Ito, Toshimitsu)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・研究主幹

研究者番号：80356485

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：重要な基礎物性であるバンド構造により、電子物性、更にはデバイス特性について考察する目的で、酸化ガリウムの高品質結晶を育成し、異方的な抵抗率やShubnikov de Haas (SdH) 効果の測定を行った。b方向の抵抗率が低く、b軸方向に磁場を印加した場合にSdHの振動数が大きいことから、b方向にバンド分散が大きく、有効質量の小さいことが推測された。パワー半導体として用いる場合の発熱を最小限に抑えるためには、b方向に電流を流す構造のデバイスが望ましいことが理解できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

-Ga203は第三世代パワー半導体として注目され、デバイス試作の成功例も数多く報告されてきた。これらの研究は経験則からのアプローチであり、必ずしも基礎物性からの理解は十分ではなかった。本研究は基礎物性からデバイス特性について検討を試みたものであり、経験則を越えた学術的理解の第一歩となるものと言える。実用化に向けて研究が加速されることが期待される。また、バンド構造の理解が進み、基礎的な固体物理の観点からも重要な成果が得られた。

研究成果の概要(英文)：In order to discuss the electronic properties and device properties of Ga203 from its band structure, I measured anisotropic resistivity and Shubnikov de Haas (SdH) effect using high-quality crystals grown by myself. Resistivity is lowest along b direction and SdH frequency is highest for $H // b$, from which it is suggested that the band dispersion is largest and the effective mass is smallest along b direction. In order to suppress heating of Ga203 power devices effectively, current should flow along b direction in them.

研究分野：結晶成長、物性測定

キーワード：酸化ガリウム フェルミオロジー

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

-Ga₂O₃ は第三世代パワー半導体として注目され、デバイス試作の成功例も数多く報告されてきた。これらの研究は経験則からのアプローチであり、必ずしも基礎物性からの理解は十分ではなかった。例えば、成膜の難易度の観点から基板の結晶面方位は検討されているが、デバイス特性に有利な結晶面方位について物性からの理解が十分に進んでいない状況であり、早急な物性解明が必要とされていた。

2. 研究の目的

バンド構造は特に重要な基礎物性であるので、フェルミオロジー(フェルミ面の物性)の研究を推進し、バンド構造および電子物性、更にはデバイス特性について考察することが、本研究の目的である。高純度大型結晶育成技術を発展させてドナー濃度を精密制御した上で物性測定を行う点に本研究の特徴がある。

3. 研究の方法

フェルミオロジーの研究においては、不純物や欠陥を最小限に抑えた高品質な単結晶を用いた高精度な物性測定がカギとなるため、以下の方法で研究を推進した。

(1) 高品質単結晶の育成

独自開発手法である LDFZ 法(レーザダイオード加熱によるフローティングゾーン法)により可能になった高純度大型結晶育成技術を発展させて、ドナー濃度を精密制御し、欠陥の少ない無双晶の結晶を育成する。

(2) 異方的な電気抵抗率の測定

-Ga₂O₃ は単斜晶系であるため、抵抗率が異方的であることが予想される。この異方性は有効質量等の異方性で説明できると考えられ、フェルミオロジーと関係付けられる可能性が大きい。異方性を測定するために、電流を流す方向を a* 方向(b 方向と c 方向の両方に垂直な方向)、b 方向、c 方向とした長い短冊形状に単結晶を切り出し、四端子測定用電極として金属 In を超音波はんだ付けした後に 900 °C でアニールした。PPMS(物理特性評価装置)を用いて、2 K から室温までの温度範囲で抵抗率を測定した。測定結果をフェルミオロジーの観点から考察した。

(3) de Haas van Alphen 効果及び Shubnikov de Haas 効果の測定

de Haas van Alphen (dHvA) 効果は、5 mm 角程度の大きさの単結晶を用い、MPMS(磁気特性評価装置)により温度 2 K において 0~70 kOe の磁場範囲で磁化測定を行った。Shubnikov de Haas (SdH) 効果は、(2) と同じ単結晶を用い、PPMS により温度 2 K において 0~90 kOe の磁場範囲で抵抗率測定を行った。測定結果をフェルミオロジーの観点から考察した。

4. 研究成果

各研究項目について以下の成果が得られた。

(1) 高品質単結晶の育成

抵抗率が低温に向けて激しく増大する半導体的温度依存性を示すと、温度変化の影響が大きくなりわずかな温度ゆらぎで抵抗率の磁場依存性の正確な測定が困難になるため、ドナー濃度を高くして抵抗率の温度依存性が小さくなるよう結晶育成を行った。ドナーの分配係数が 1 より小さくドナーが排除される傾向があるため、10 cm 程度と十分に長い結晶を育成し、育成最後の方の結晶を用いた。その結果、Si ドナーの濃度が上限に近い $4.6 \times 10^{18}/\text{cm}^3$ (ICP-MS による測定)の結晶を得た。また、双晶を取り除くため、結晶育成を繰り返して無双晶の種結晶を作製し、その種結晶を用いることにより無双晶単結晶を得ることができた。結晶の一例を図 1 に示す。

(2) 異方的な電気抵抗率の測定

-Ga₂O₃(Si ドナー濃度 $4.6 \times 10^{18}/\text{cm}^3$)の異方的抵抗率の温度依存性を図 2 に示す。温度依存性はいずれの方向でもほぼ同じである。(わずかなドナー濃度の違いで温度依存性が変わってしまうため、低温での抵抗率上昇の程度の差異は切り出した場所によってわずかにドナー濃度が異なることが原因と考えられる。) a* 及び c 方向は同程度の抵抗率を示すが、b 方向は一桁程度小さな抵抗率を示す。この原因が有効質量の違いだと仮定すると、b 方向には有効質量が一桁程度小さいことになる。この物質のバンド計算が多くのグループによって示されているが、伝導帯の底にあたる Γ 点近辺のバンド分散については文献によって差異がある。等方的だとする文献が多いが、異方的だとする文献もあるので、今後更に検討が必要だと考えられる。図 2 の実験結果からはフェルミ面は球を b 軸方向に 1/3 程度にまで押しつぶしたような形状であることが推測される。

(3) de Haas van Alphen 効果及び Shubnikov de Haas 効果の測定

dHvA 効果を検出する目的で MPMS による磁化測定を a^* 、 b 、 c の 3 方向について行ったが、温度 2 K で磁場 70 kOe までの範囲ではノイズレベルよりも大きな振動成分は観測されなかった。サイクロトロン運動を 1 周する条件 $\omega_c \tau \sim 2\pi$ より 100 テスラ程度の大きさの磁束密度が必要と見積もることができ、磁場が不十分な可能性が考えられる。

SdH 効果を検出する目的で PPMS による c 方向の抵抗率測定を温度 2 K において 0 ~ 90 kOe の範囲で a^* あるいは b 方向に磁場を印加して行った (図 3)。図のスケールでは磁場振動成分は認識できない。抵抗率を磁場のべき関数でフィッティングし、差し引くことを試みた。例として図 4 に 6 次関数で差し引いた結果を示す。60 ~ 90 kOe の範囲で、 b 方向の磁場で 5 回程度、 a^* 方向の磁場で 3 回程度の振動が見られる。5 次関数などで試みても同様の振動は見られるので、べき関数の極大極小により人為的に作られた振動ではないと考える。振動の振幅はノイズレベルよりは大きいので有意だと考える。また、磁場を c 方向に印加して同様な実験を行い、フィッティングした 6 次関数を差し引いてみると振動は見られなかった。磁場と電流の向きが一致すると顕著な振動は見られないはずなので当然の結果であり、振動の検出は可能な精度が出ていると考える。電流と磁場が直交するときの振動は有意であることを示唆する。

この振動の振動数 F (Oe) ($1/H$ の周期の逆数) は、磁場に垂直なフェルミ面断面の極値を S_F (cm^2) として

$$F = \hbar S_F / 2\pi e = 1.05 \times 10^{-8} S_F$$

と表される。ここで \hbar はプランク定数、 e は素電荷である。図 4 から算出される $1/H$ の周期より

$$S_F = 8.6 \times 10^{13} \text{ (cm}^2\text{)} \text{ (H // b のとき)}$$

$$S_F = 5.1 \times 10^{13} \text{ (cm}^2\text{)} \text{ (H // } a^* \text{ のとき)}$$

となる。(2) で議論したようにフェルミ面が球を押しつぶしたような形状であると仮定すると、フェルミ波数は

$$k_{Fa^*} = k_{Fc} = 5.2 \times 10^6 \text{ (cm}^{-1}\text{)}$$

$$k_{Fb} = 3.1 \times 10^6 \text{ (cm}^{-1}\text{)}$$

となる。 b 軸方向のフェルミ波数は他方向の半分程度であり、抵抗率の異方性から見積もったフェルミ面ほど押しつぶされてはいないが、半定量的には同様な形状と言ってもいいかもしれない。以上の数値を用いれば、フェルミ面内の体積を求めることができる。その体積は第一ブリュリアンゾーンの体積の 0.03% 程度に該当し、ドナー密度に換算すれば 10^{19} cm^{-3} になり、ICP-MS より求めた値の $4.6 \times 10^{18} / \text{cm}^3$ にかなり近い。

しかしながら、以上の結果は微小なシグナルに基づき不確定性が大きいので、更に高磁場での実験を行って確認することが望ましいと考える。

以上より $-\text{Ga}_2\text{O}_3$ のフェルミ面の性質について考察が進んだ。ショットキーバリアダイオードなどのようにパワー半導体として使用する際には、バンド分散の大きな b 方向に電流を流す配置が適していると言える。文献によると過去のデバイス研究では(010)面の基板の上にショットキーバリアダイオードを作製していることも多かったため、偶然とは言え最適な方向に電流を流していたことになる。今後更に物性を基にしたデバイス設計が進むものと期待される。



図 1 (左) $-\text{Ga}_2\text{O}_3$ の単結晶の外観。(右) 無双晶単結晶の断面。

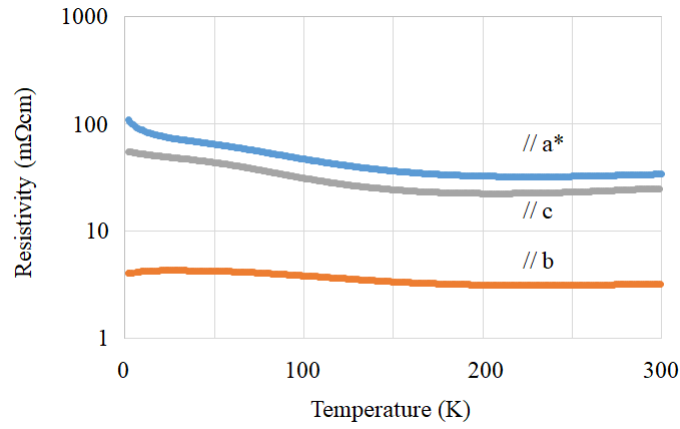


図2 $-\text{Ga}_2\text{O}_3$ (Si ドナー濃度 $4.6 \times 10^{18}/\text{cm}^3$) の異方的抵抗率の温度依存性

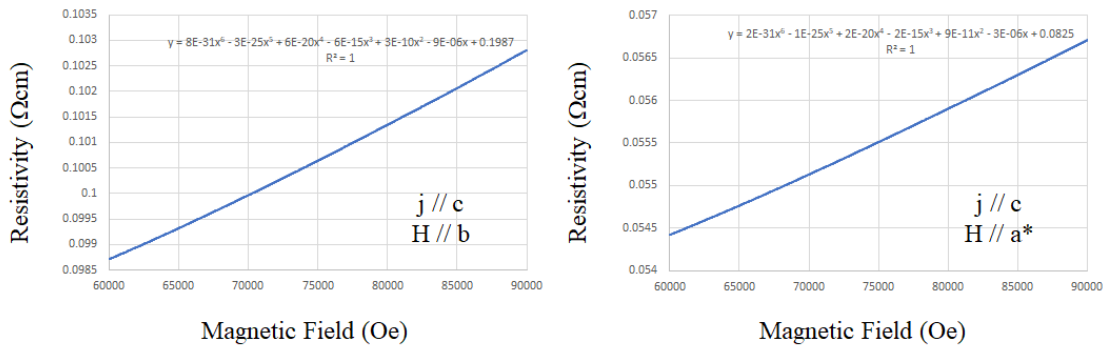


図3 $-\text{Ga}_2\text{O}_3$ (Si ドナー濃度 $4.6 \times 10^{18}/\text{cm}^3$) の c 方向の抵抗率の磁場依存性。

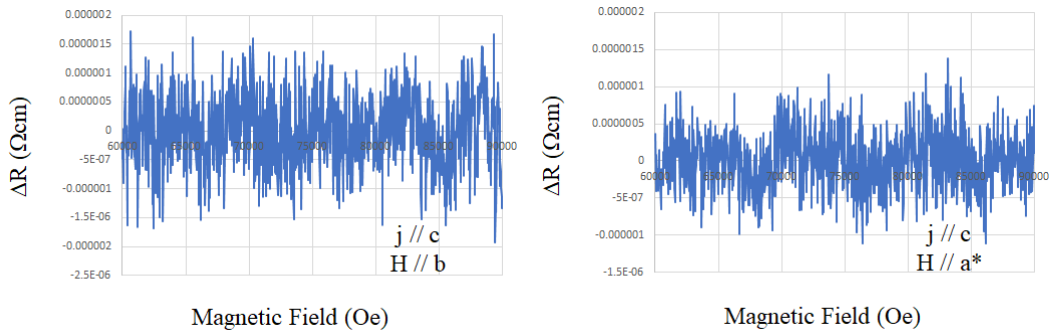


図4 $-\text{Ga}_2\text{O}_3$ (Si ドナー濃度 $4.6 \times 10^{18}/\text{cm}^3$) の c 方向の抵抗率の磁場振動成分の磁場依存性。
抵抗率 (図3) を磁場の6次関数でフィッティングし、差し引いた結果である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Takashi Matsumae, Yuichi Kurashima, Hitoshi Umezawa, Koji Tanaka, Toshimitsu Ito, Hideyuki Watanabe, and Hideki Takagi	4. 巻 116
2. 論文標題 Low-temperature direct bonding of α -Ga ₂ O ₃ and diamond substrates under atmospheric conditions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Lett.	6. 最初と最後の頁 141602 ~ 141602
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0002068	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Takashi Matsumae, Yuichi Kurashima, Hideki Takagi, Hitoshi Umezawa, Koji Tanaka, Toshimitsu Ito, Hideyuki Watanabe and Eiji Higurashi	4. 巻 98
2. 論文標題 Hetero-integration of α -Ga ₂ O ₃ and Diamond substrates by hydrophilic bonding technique	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ECS Trans.	6. 最初と最後の頁 17 ~ 20
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/09804.0017ecst	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ito Toshimitsu, Ozaki Yasuko, Tomioka Yasuhide	4. 巻 58
2. 論文標題 Purification of α -Ga ₂ O ₃ crystals by the zone refining method	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 110908 ~ 110908
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab4d20	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Tomioka Yasuhide, Ozaki Yasuko, Inaba Hideki, Ito Toshimitsu	4. 巻 58
2. 論文標題 Compensation effects between impurity cations in single crystals of a wide gap semiconductor α -Ga ₂ O ₃ prepared by the floating zone method	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 091009 ~ 091009
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab39be	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 松前貴司、倉島優一、高木秀樹、梅沢仁、田中孝治、伊藤利充、渡邊幸志、日暮栄治
2. 発表標題 -Ga203薄膜とダイヤモンド基板の低温直接接合
3. 学会等名 2020年度精密工学会 秋季大会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takashi Matsumae, Yuichi Kurashima, Hideki Takagi, Hitoshi Umezawa, Koji Tanaka, Toshimitsu Ito, Hideyuki Watanabe and Eiji Higurashi
2. 発表標題 Hetero-integration of -Ga203 and diamond substrates by hydrophilic bonding technique
3. 学会等名 Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid State Science 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Douest, C. Mannequin, T. Ito, Y. Ozaki, H. Okumura, E. Gheeraert, K. Akimoto, M. Sasaki, T. Teramoto, C. Dussarrat
2. 発表標題 Cyclic BC13-based plasma treatments for enhancing surface quality of (010) -Ga203 substrates
3. 学会等名 XXXIV International Conference on Phenomena in Ionized Gases (XXXIV ICPIG) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤利充、尾崎康子、稲葉英樹、富岡泰秀
2. 発表標題 ワイドギャップ半導体 -Ga203の結晶育成と評価
3. 学会等名 理研-産総研 第5回 量子技術イノベーションコアWorkshop
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Gouveia, A. Traore, H. Umezawa, H. Inaba, T. Ito, T. Sakurai
2. 発表標題 Effects of Polishing Damage on α -Ga ₂ O ₃ Schottky Diodes Electrical Properties
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

AIST: 産業技術総合研究所 https://www.aist.go.jp/
--

6. 研究組織		
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)
		備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------