

令和 3 年 6 月 18 日現在

機関番号：14303

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K22143

研究課題名（和文）-(In_{1-x}Al_x)₂O₃系格子整合ヘテロ接合デバイスの開拓研究課題名（英文）Hetero-junction devices of lattice matched alpha-(In_{1-x}Al_x)₂O₃ semiconductors

研究代表者

西中 浩之（Nishinaka, Hiroyuki）

京都工芸繊維大学・電気電子工学系・准教授

研究者番号：70754399

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、大きなバンドギャップを持つ α -Ga₂O₃のヘテロ接合デバイスの実現に向け、新しい材料である α -(In_xAl_{1-x})₂O₃の材料開拓とその物性評価を行った。従来の α -Ga₂O₃のヘテロ接合では α -(Al_xGa_{1-x})₂O₃/ α -Ga₂O₃では格子不整合の大きさからそのデバイス設計は困難であった。そこで本研究では、 α -Ga₂O₃と格子整合する α -(In_xAl_{1-x})₂O₃を形成して、ヘテロ接合デバイスに必要な物性の評価を行った。その α -(In_xAl_{1-x})₂O₃は α -Ga₂O₃との伝導帯オフセットが大きな値を有しており、ヘテロ接合デバイスに好適な材料であることを示すことができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では新しい材料である α -(In_xAl_{1-x})₂O₃の材料開拓を行い、その材料の魅力的な物性を明らかにした。特にこの α -(In_xAl_{1-x})₂O₃と α -Ga₂O₃のバンドラインナップを明らかにしたことは、ヘテロ接合デバイスの形成に向けて重要な意義を持つ。また α -Ga₂O₃は大きなバンドギャップを持つことから省エネパワー半導体として利用が提案されているが、この α -(In_xAl_{1-x})₂O₃と組み合わせることで、より広範な利用が期待され、省エネ社会へ貢献する社会的意義の大きな研究である。

研究成果の概要（英文）：In this research, we developed a novel wide-bandgap semiconductor α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ thin films for heterojunction devices of α -Ga₂O₃. The α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ alloying with a certain composition is lattice-matched to α -Ga₂O₃. We grew the α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ lattice-matched to α -Ga₂O₃ by mist CVD, and investigated the band alignment between α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ and α -Ga₂O₃. The α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ has a large conduction band offset from α -Ga₂O₃, indicating that it is a suitable material for heterojunction devices.

研究分野：結晶工学

キーワード：ミストCVD 格子整合 酸化ガリウム ヘテロ接合デバイス

1. 研究開始当初の背景

大きなバンドギャップを有する α 相の酸化ガリウム(約 5.3 eV : α -Ga₂O₃)は、炭化珪素(SiC : 3.2 eV)や窒化ガリウム(GaN : 3.4 eV)より低オン抵抗で高耐圧なスイッチング素子への応用として大きな期待を浴びている。この α -Ga₂O₃ はミスト CVD 法でサファイア基板上に高品質な結晶が容易に作製することが可能であり、従来の SiC を超える低オン抵抗のショットキーバリアダイオード特性が実証されるなど、その物性を発揮しつつある。また α 相の Ga₂O₃ は、同じ 13 族の金属酸化物である Al₂O₃ や In₂O₃ が同じ結晶構造を持つために、これらの材料と広範に固溶することが報告されている。この特性を活かしたヘテロ接合デバイス応用に向けた基礎研究も進んでおり、 α -(Al_xGa_{1-x})₂O₃/Ga₂O₃ のバンドラインナップの評価や不純物ドーピングなどの報告もなされている。しかしながら、ヘテロ接合デバイスを作製する環境が揃っていないながら、いまだにそのデバイス報告はなされていない。

2. 研究の目的

本研究では、これらの停滞を打ち破るため、新しい材料系である α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ 半導体の開拓を行い、 α -(In_xAl_{1-x})₂O₃/ α -Ga₂O₃ の格子整合系ヘテロ接合トランジスタに向けた二次元電子ガス(2DEG)形成を目的とする。従来のヘテロ接合トランジスタである Al_xGa_{1-x}As/GaAs では、GaAs と AlAs の格子不整合は 0.1% と小さく、そのデバイス設計は比較的容易であった。一方で現在検討されている α -(Al_xGa_{1-x})₂O₃/ α -Ga₂O₃ では、 α -Ga₂O₃ と α -Al₂O₃ の格子不整合は 4.7% と非常に大きく(比較的大きいとされる GaN と AlN で 2.2%)、そのデバイス設計は困難を極める。申請者の提案する α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ は α -Ga₂O₃ と格子整合する組成が存在し、かつ大きなバンドオフセットが得られることが想定される(図 1)。また、この α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ はまだ形成例がなく、その物性やデバイスなどは未開拓である。この未開拓な材料の結晶成長と物性の解明を行い、新しい材料系の開拓を行う。

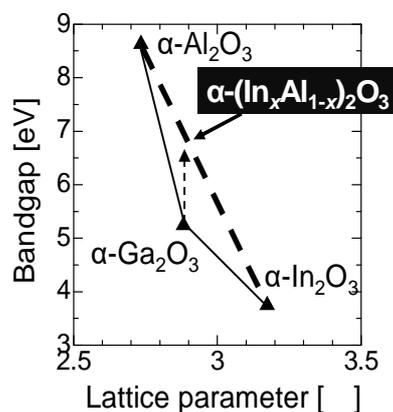


図 1 α -Ga₂O₃ 系材料の格子定数とバンドギャップの関係

3. 研究の方法

本研究では、ミスト CVD 法を用いて α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ の成長技術の開拓とその物性解明を行う。ミスト CVD 法は、成膜材料の前駆体を溶液に溶解させ、その溶液をミスト化したものを原料とする。この技術は、溶液にできればどんな溶液も利用できるという特徴がある。その特徴を活かして、In 原料と Al 原料を同時に溶解させ、結晶成長を行った。まずサファイア基板上に直接 α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ の成長を試みた。また同じ結晶構造である α -In₂O₃ のバッファ層上に α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ の成長も行った。成長した α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ について、その結晶構造評価、バンドギャップ、バンドラインナップなどヘテロ接合デバイスに向けた重要な物性の調査を行った。

4. 研究成果

図 2 は、c 面サファイア上に成長した α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ の Al 原料を変更した時の XRD 2 θ - ω スキャンの結果である。In 原料には In(acac)₃ を使い、その濃度は 0.03 M で一定とした。Al 原料には Al(Acac)₃ を用いて、その濃度を 0 ~ 0.17 M と変えることで、膜中の Al 組成を調整した。図よりわかるように Al 濃度が 0.14 M 以下では bcc 構造の(In_xAl_{1-x})₂O₃ が形成されていた。これは安定相の bcc-(In_xAl_{1-x})₂O₃ が低濃度の Al 組成では形成されやすいためと考えられる。一方で Al 濃度が 0.145 M 以上では、bcc 構造が観察されず、単相の α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ が形成されていることが確認できた。この時の α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ はコヒーレント成長しているため、ベガード則で組成を算出することはできないが、その In 組成は高々数%程度である。一方で α -Ga₂O₃ と格子整合する In 組成は 30%程度であることから、サファイア基板上に目標の α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ を形成することは難しいと判断した。そこでより In 組成を高濃度化するために、 α -In₂O₃ をバッファ層として利用することで高濃度の In 組成の α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ の形成を試みた。 α -In₂O₃ のバッファ層はサファイア基板に直接形成することは難しいために、まず α -Ga₂O₃ を形成し、その上に α -In₂O₃ をバッファ層として成膜した。この α -In₂O₃/ α -Ga₂O₃ 上に形成した、高濃度 In 組成の α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ の XRD 2 θ - ω スキャンと逆格子マッピングの結果を図 3 に示す。図のように、 α -Ga₂O₃ の重なるように α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ が形成していることが分かった。この α -In₂O₃ と α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ の格子ミスマッチは大きく、 α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ の膜厚が 100 nm と厚いことから、十分に格子緩和していると想定される。そこでベガード則から In 組成を算出したところ、その In 組成は 24%であった。また逆格子マッピングの結果を見てみると、バッファ層の α -Ga₂O₃ のすぐ近くに α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ の回折スポットが観察された。このピーク位置は隣接しており、格子定数が近い α -(In_xAl_{1-x})₂O₃ が形成できた

と考えている。

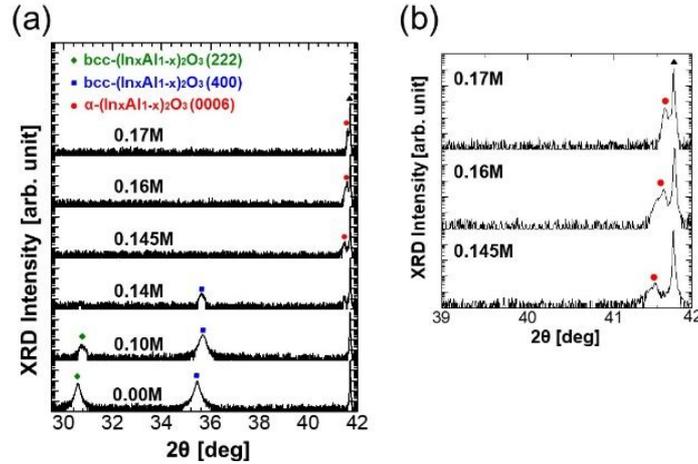


図 2. サファイア基板上に形成した α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ の XRD 2 θ - ω の結果

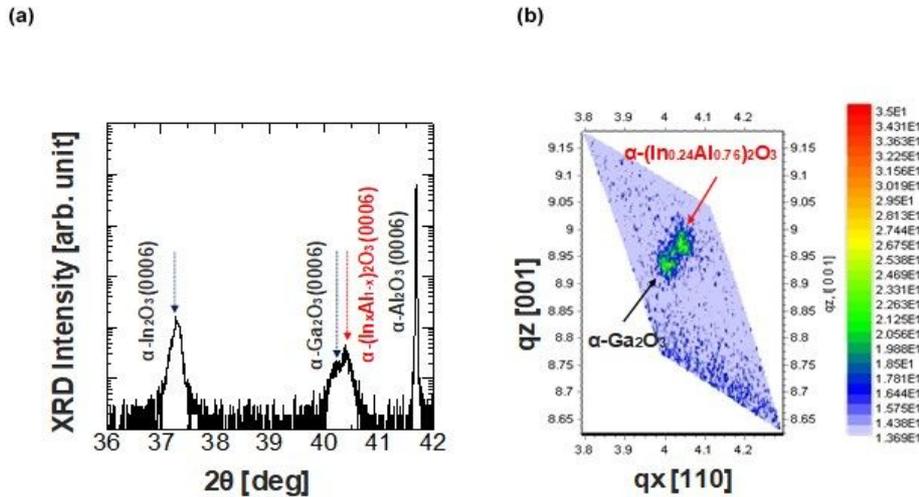


図 3. α - $\text{In}_2\text{O}_3/\alpha$ - Ga_2O_3 バッファ層上に形成した α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ の XRD 2 θ - ω と逆格子マッピングの結果

上記の α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ では、そのバッファ層厚みは α - In_2O_3 が 80 nm と厚い膜であったために、よりバンドギャップの小さな α - In_2O_3 の吸収によって光学バンドギャップの評価を行うことが難しい。そこで、バッファ層の α - In_2O_3 を 5 nm、 α - Ga_2O_3 を 5 nm の厚みとした条件で α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ の成膜を行った。その XRD 2 θ - ω の結果を図 4 に示す。図 4 より薄いバッファ層でも α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ が形成されていた。また、この時の In 組成は 21% であった。形成した α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ の光学バンドギャップを算出するため、透過率測定を行った (図 5(a))。比較として α - Ga_2O_3 の透過率も図 5(a) に示す。図から分かるように、 α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ は α - Ga_2O_3 より吸収端が短波長側にあることが分かる。この透過率測定結果から、 $(ah\nu)^2$ プロットを用いて光学バンドギャップを評価した (図 5(b))。図 5(b) から、形成した α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ のバンドギャップは 5.7 eV と見積もられた。 α - Ga_2O_3 は 5.3 eV であり、 α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ のバンドギャップは α - Ga_2O_3 より大きくなることが分かった。

ヘテロ構造を形成する場合に、その伝導帯側のバンドオフセットの評価が重要である。そこで XPS によって、 α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ と α - Ga_2O_3 のバンドオフセットの評価を行った。図 6(a) はその XPS の結果である。図より α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ と α - Ga_2O_3 の価電子帯のバンドオフセットは 0.8 eV であることが分かった。このバンドオフセットと光学バンドギャップから決定したバンドアライメントを図 6(b) に示す。この概略図より伝導帯側のバンドオフセットは 1.4 eV を分かった。この図よりバンドの不連続は Type-II であるといえる。 α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ と α - Ga_2O_3 のヘテロ接合による高電子移動度トランジスタの形成を考えた場合、この大きな伝導帯側のバンドオフセットによる

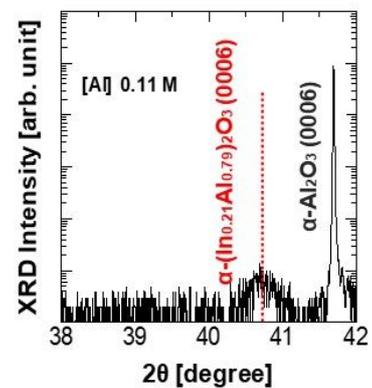


図 4. 薄い α - $\text{In}_2\text{O}_3/\alpha$ - Ga_2O_3 バッファ層上に形成した α -($\text{In}_x\text{Al}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ の XRD 2 θ - ω の結果

ポテンシャル障壁は、二次元電子ガスのキャリア閉じ込めに有効であると考えられる。

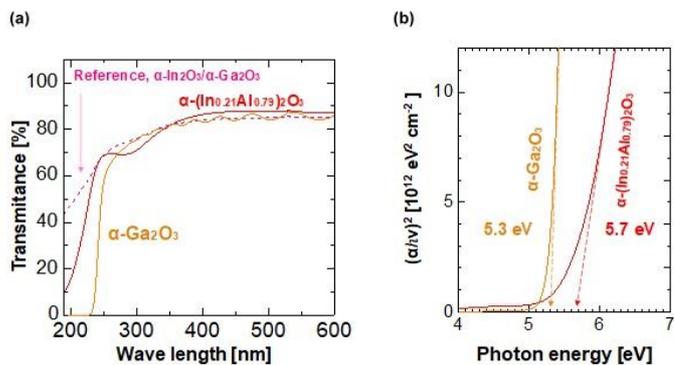


図 5. $\alpha\text{-(In}_x\text{Al}_{1-x})_2\text{O}_3$ の透過率と光学バンドギャップの算出結果

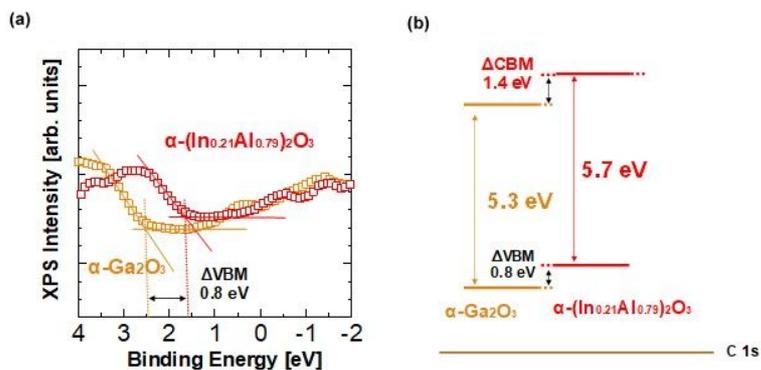


図 6. $\alpha\text{-(In}_x\text{Al}_{1-x})_2\text{O}_3$ の XPS の結果とバンドアライメント

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Shimazoe Kazuki, Nishinaka Hiroyuki, Arata Yuta, Tahara Daisuke, Yoshimoto Masahiro	4. 巻 10
2. 論文標題 Phase control of - and -Ga2O3 epitaxial growth on LiNbO3 and LiTaO3 substrates using - Fe2O3 buffer layers	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 055310 ~ 055310
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0006137	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Horie Ryuto, Nishinaka Hiroyuki, Tahara Daisuke, Yoshimoto Masahiro	4. 巻 851
2. 論文標題 Epitaxial growth of -(AlxGa1-x)2O3 alloy thin films on spinel substrates via mist chemical vapor deposition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 156927 ~ 156927
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2020.156927	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18件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 7件）

1. 発表者名 新田悠汰、西中浩之、田原大祐、島添和樹、伊藤雄祐、吉本昌広
2. 発表標題 合成雲母上へのパuffers層の挿入による曲げられる -Ga2O3薄膜のエピタキシャル成長
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田原大祐、西中浩之、新田悠汰、長谷川将、吉本昌広
2. 発表標題 ミストCVD法によるGa2O3薄膜成長におけるピスマス添加の効果
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 島添和樹、西中浩之、田原大祐、新田悠汰、吉本昌広
2. 発表標題 LiNbO ₃ , LiTaO ₃ 基板上の , -Ga ₂ O ₃ 薄膜のエピタキシャル成長
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Arata, H. Nishinaka, D. Tahara, K. Shimazoe, Y. Ito, M. Yoshimoto
2. 発表標題 Van der Waals epitaxy of flexible - and -Ga ₂ O ₃ films on cleaved mica by mist chemical vapor deposition
3. 学会等名 11th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Shimazoe, H. Nishinaka, M. Yoshimoto
2. 発表標題 Growth And Characterization of Single-Phase Metastable Rhombohedral Indium Tin Oxide Epitaxial Films on Various Plane - Al ₂ O ₃ Substrates with -Fe ₂ O ₃ Buffer Layers
3. 学会等名 11th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Shimazoe, H. Nishinaka, D. Tahara, Y. Arata, M. Yoshimoto
2. 発表標題 Growth of -and -Ga ₂ O ₃ Epitaxial Thin Films on LiTaO ₃ Substrate
3. 学会等名 The 2019 International Meeting for Future of Electron Devices, Kansai (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Arata, H. Nishinaka, D. Tahara, K. Shimazoe, Y. Ito, M. Yoshimoto
2. 発表標題 Fabrication of Flexible and Epitaxial Metastable Ga ₂ O ₃ Thin Films on Synthetic Mica Using Oxide Buffer Layer
3. 学会等名 The 2019 International Meeting for Future of Electron Devices, Kansai (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Shimazoe, H. Nishinaka, D. Tahara, Y. Arata, M. Yoshimoto
2. 発表標題 Growth and Characterization of Corundum Structure Oxide Semiconductor on α -Fe ₂ O ₃ Buffer Layers by The Mist CVD Method
3. 学会等名 2019 Materials Research Society Fall meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Arata, H. Nishinaka, D. Tahara, K. Shimazoe, Y. Ito, M. Yoshimoto
2. 発表標題 Fabrication of Flexible and Epitaxial Oxide Thin Films on Cleaved Synthetic Mica Using Mist Chemical Vapor Deposition
3. 学会等名 2019 Materials Research Society Fall meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 新田悠汰、西中浩之、田原大祐、吉本昌広
2. 発表標題 曲げられる準安定Ga ₂ O ₃ 薄膜のエピタキシャル成長
3. 学会等名 応用物理学会関西支部 2019年度 第2回講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 堀江竜斗、田原大祐、西中浩之、吉本昌広
2. 発表標題 ミスTVD法による $(Al_xGa_{1-x})_2O_3$ 混晶薄膜成長
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

1. 発表者名 島添和樹、西中浩之、田原大祐、新田悠汰、吉本昌広
2. 発表標題 ミスTVD法による準安定相 rh-ITO 薄膜のエピタキシャル成長と評価
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

1. 発表者名 新田悠汰、西中浩之、島添和樹、田原大祐、吉本昌広
2. 発表標題 ミスTVD法を用いたフレキシブルなワイドギャップ酸化物半導体のエピタキシャル成長
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

1. 発表者名 島添和樹、西中浩之、新田悠汰、伊藤雄祐、吉本昌広
2. 発表標題 酸化鉄を用いた準安定酸化物半導体の結晶相制御
3. 学会等名 日本材料学会半導体エレクトロニクス部門委員会令和2年度第1回研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 堀江 竜斗、田原 大祐、西中 浩之、吉本 昌広
2. 発表標題 スピネル基板上に格子整合して成長した $(Al_xGa_{1-x})_2O_3$ 混晶薄膜の界面の結晶構造解析
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 島添 和樹、西中 浩之、新田 悠汰、伊藤 雄祐、吉本 昌広
2. 発表標題 ミスTVD法によるLiTaO ₃ 基板上へのパフア層を用いないrh-ITOエピタキシャル薄膜の成長とその評価
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Shimazoe, H. Nishinaka, Y. Arata, Y. Ito, M. Yoshimoto
2. 発表標題 Growth of Metastable Rhombohedral Structured Oxides Using Alpha-Fe ₂ O ₃ Buffer Layers via Mist CVD Method
3. 学会等名 The 39th Electronic Materials Symposium
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Shimazoe, H. Nishinaka, Y. Arata, Y. Ito, M. Yoshimoto
2. 発表標題 Growth of Rhombohedral Indium Oxide Thin Films on LiTaO ₃ Substrate for Fabrication of Lattice Matched Indium Gallium Oxide Power Devices
3. 学会等名 International Meeting for Future of Electron Devices, Kansai 2020 Satellite event (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------	---------