

令和 6 年 6 月 26 日現在

機関番号：14301

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化(A））

研究期間：2022～2023

課題番号：21KK0260

研究課題名（和文）ミストCVD法によるLiドーピングNiMgO単結晶を用いた酸化物パワーデバイスの実現

研究課題名（英文）Realization of oxide power device using Li-doped NiMgO single crystal grown by mist CVD method

研究代表者

池之上 卓己（IKENOUE, Takumi）

京都大学・エネルギー科学研究科・助教

研究者番号：00633538

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 11,900,000円

渡航期間：14ヶ月

研究成果の概要（和文）：ミストCVD法を用いた岩塩構造のNiOまたはNiO-MgO-ZnOの成長とデバイス応用に関する知見として、以下のことを明らかにした。 $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 上へのNiOまたはNiMgOのエピタキシャル成長とその基板方位依存性を明らかにし、Liによるp型ドーピングの有用性を示した。また、 $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 基板とNiOまたはNiMgOとの接合界面について、NiMgOのMg組成や成長温度によるヘテロ接合のバンド構造の変化を調べた。さらに、HVPEまたはミストCVDで成長させた $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ とのヘテロ接合を有するデバイスを試作した。また、MgO基板と格子整合するNiO-MgO-ZnO薄膜を単結晶成長した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ワイドバンドギャップ材料を用いたデバイスへの社会からの要請が高まっており、酸化物材料による高性能デバイスの実現が期待されている。酸化物材料の多くは、p型化が難しいとされ、主に研究されているワイドバンドギャップ酸化物である Ga_2O_3 も例外ではない。そこで、 Ga_2O_3 とワイドバンドギャップかつp型を示すNiOまたはNiMgOとのヘテロ接合を見据えて研究を遂行した。 Ga_2O_3 上へのNiOまたはNiMgOの結晶成長からドーピング、デバイス作製、評価を行っており、実用化に必要な知見・技術を得た。さらに、ミストCVD法という環境負荷の小さな手法でこれらの成果を得たことは、実用化に繋がることを期待できる。

研究成果の概要（英文）：We have achieved the following points for the growth of rock-salt NiO or NiO-MgO-ZnO using the mist CVD method and its device applications. In heterojunction devices with $\text{-Ga}_2\text{O}_3$, the epitaxial growth of NiO or NiMgO on $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ and its dependence on the substrate orientation were clarified, and p-type doping with Li was demonstrated. The band structure of the hetero-junction interface between the $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ and NiO or NiMgO which depends the Mg composition of NiMgO and/or the growth temperature were investigated. Furthermore, devices with heterojunctions with $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ grown by HVPE or mist CVD were fabricated. In addition, single crystals of NiO-MgO-ZnO thin films lattice-matched to MgO substrates were grown and various evaluations were performed.

研究分野：電子工学

キーワード：ミストCVD法 酸化物半導体 ワイドバンドギャップ半導体

1. 研究開始当初の背景

ワイドバンドギャップ半導体は高耐圧・高周波・高耐熱・短波長を実現できることから注目を集めており、SiC (E_g : 3.3 eV) や GaN (E_g : 3.4 eV) は既に実用化段階にある。ワイドバンドギャップなほど光デバイスとしては短波長であるため、近年ではウイルス殺菌に有用な深紫外線 LED への応用が期待されている。電力デバイスとしては、高耐圧で低損失を実現可能となるので鉄道や車載用の電力変換素子応用への期待が大きい。ワイドバンドギャップ半導体研究を先導した SiC は pn 両型を容易に実現でき、高信頼性の電力デバイスが実現されている

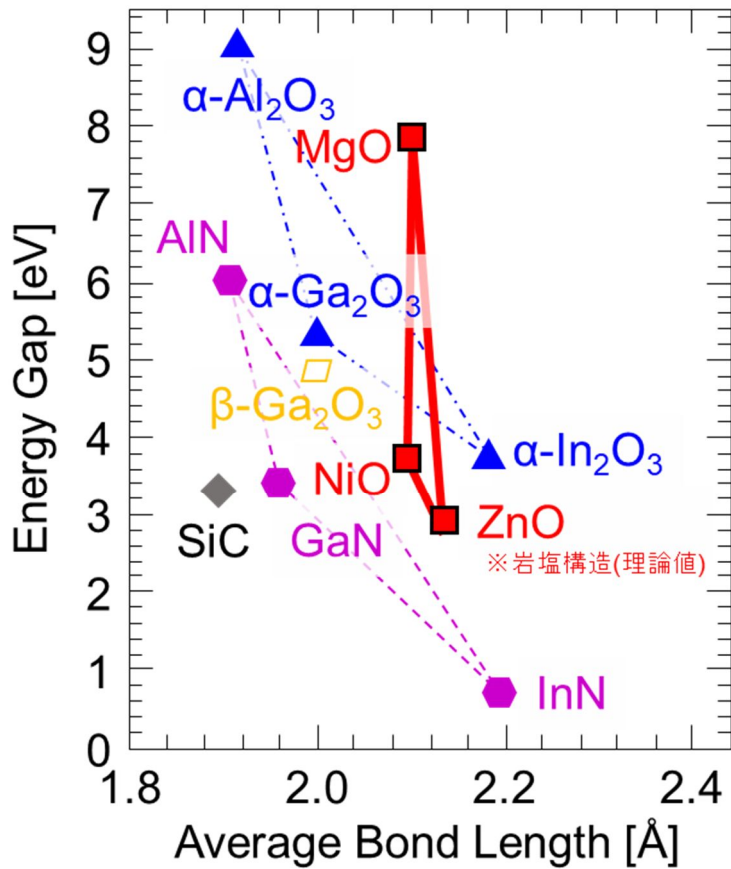


図1 様々なワイドギャップ材料のバンドギャップと平均格子長の関係

ものの、バンドギャップ拡大が不可能なため、大幅な高性能化は見込めない。発光素子としても有名な GaN は、AlN との混晶半導体とすることで 6eV 程度までバンドギャップが拡大できる。一方で、GaN で困難とされた p 型化は AlGaIn とすることでさらに難しくなる。また、ワイドバンドギャップを目指した酸化物半導体では Ga_2O_3 (E_g : 4.8~5.2 eV) を筆頭に、高い性能と高い生産性の両立を期待して研究が進められている。しかし、 Ga_2O_3 の p 型化は困難とされる。図 1 にはこれらの材料のバンドギャップと平均結合距離およびその特徴を示している。この図からは、バンドギャップを制御するために混晶組成を変えると、その格子定数も変わることで格子不整合も大きくなる問題もわかる。そこで本研究では、岩塩構造 NiO-MgO-ZnO 系に注目した。この系は格子定数の変化が小さいため、高品質な結晶成長が期待できるだけでなく、NiMgO として p 型、ZnMgO として n 型が実現されている系である。このような背景を踏まえて、この NiO-MgO-ZnO 系が、高性能なパワーデバイスの実現に資する材料が検討する。

2. 研究の目的

ワイドバンドギャップ半導体として期待できる岩塩構造 NiO-MgO-ZnO について、ミスト CVD 法によって結晶成長が可能となった。そこで、この材料のパワーデバイスへの応用可能性について検討するために、 β - Ga_2O_3 上へのエピタキシャル成長、ヘテロ接合界面のバンド構造評価を行い、デバイスの試作を行う。また、MgO と格子整合する NiO-MgO-ZnO 薄膜のエピタキシャル成長と特性評価を目的とする。

3. 研究の方法

NiO-MgO-ZnO 薄膜はミス CVD 法を用いて結晶成長させた。ミス CVD 法は、安全・安定な材料を利用して大気圧下で高品質な結晶成長が可能な手法で、産業応用に直結する手法である。このミス CVD 法を利用した NiO-MgO-ZnO 薄膜と β -Ga₂O₃ のヘテロ接合デバイスの実現を見据えて、まずは β -Ga₂O₃ 上への NiO および NiMgO のエピタキシャル成長に取り組んだ。 β -Ga₂O₃ のデバイスとして頻りに利用される、(100)、(010)、(001)など面方位を有する β -Ga₂O₃ 基板上へのエピタキシャル成長とその評価を行った。また、ヘテロ接合界面のバンド構造を評価した。また、Li ドープにより導電性を制御した NiO と β -Ga₂O₃ のヘテロ接合デバイスを試作する。

次に、NiO-MgO-ZnO を用いたホモ接合デバイスを見据えて、安価な単結晶基板である MgO 基板上に、MgO と格子不整合のない NiO-MgO-ZnO 薄膜を成長する。この格子整合 NiO-MgO-ZnO 薄膜の結晶性評価や pn 導電性制御に取り組む。

4. 研究成果

まず、 β -Ga₂O₃ 基板上に NiO をミス CVD 法で成長させ、エピタキシャル成長の方位関係を明らかにした。 β -Ga₂O₃ (100) 上には NiO (100) がエピタキシャル成長する。NiO と β -Ga₂O₃ のヘテロ接合としては格子不整合も小さく回転ドメインも生じないことから結晶成長としては最も有用な面方位であると考えられる。ただし、 β -Ga₂O₃ (100) を基板とするのは、デバイス応用を考えると量産の観点から適さない。同様に、 β -Ga₂O₃ (010) および β -Ga₂O₃ (001) 上にはそれぞれ NiO (110)、NiO (133) が成長する。基板表面の酸素元素の配置に応じて回転ドメインが生じるものもあるが、いずれにしても高品質なエピタキシャル成長が可能となった。

次に、 β -Ga₂O₃ と NiO または NiMgO ヘテロ接合界面のバンド構造を評価した。ヘテロ接合界面のバンド構造は NiO でも NiMgO でもタイプ II であった。NiO を NiMgO としてバンドギャップが大きくなると、価電子帯、伝導帯のオフセットも増加する結果となった。また、興味深いことに、Mg 組成が同一の NiMgO で、バンドギャップが同一であっても、ミス CVD での成長温度によって価電子帯オフセットが変化することがわかった。デバイス応用の際に、有用なバンドオフセットの制御を成膜温度の制御で行える可能性を示した。

最終的に、 β -Ga₂O₃ と NiO のヘテロ接合を有するデバイスを試作した。デバイス特性の詳細は未だ評価を継続中であるが、これまでに報告されているデバイスと同等以上の性能が得られている。従来のデバイスの多くは、スパッタ法などの真空装置を利用して作製されるのに対し、ミス CVD 法では大気圧下での作製が可能である。さらに、スパッタ法では酸素分圧で制御されるキャリア濃度は Li のドーピングで制御できるため、制御範囲が広いなどの特長があり、デバイス設計や製造に直結するメリットも有している。

また、NiO-MgO-ZnO を用いたホモ接合デバイスの実現のために、MgO 基板上への格子不整合のないエピタキシャル成長と pn 導電性制御にも取り組んだ。前駆体の濃度を精密に制御して、MgO と格子整合する NiO-MgO-ZnO 薄膜をエピタキシャル成長させた。これらの薄膜のバンドギャップは Mg 組成で制御可能で、Mg 組成の増加に伴ってバンドギャップが上昇することが確認された。p 型導電性には NiO と同様に Li のドーピングが有効であることがわかった。一方、n 型導電性の実現にも取り組んでいるが、現時点では達成できていない。今後は、ドーパントの検討だけでなく、成膜後の後処理なども検討し、n 型導電性の実現を目指す。最終的には、NiO-MgO-ZnO ホモ接合デバイスを試作したいと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 飯田真太郎, 池之上卓己, 三宅正男, 平藤哲司
2. 発表標題 MgO 基板と格子整合する MgO-NiO-ZnO 混晶半導体
3. 学会等名 第 83 回 応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shintaro Iida, Takumi Ikenoue, Masao Miyake, and Tetsuji Hirato
2. 発表標題 The relationship between the composition and lattice constant of MgO-NiO-ZnO semiconductors
3. 学会等名 41st Electronic Materials Symposium
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takumi Ikenoue, YongJin Cho, Vladimir Protasenko, Chandrashekhar Prakash Savant, Bennett J Cromer, Masao Miyake, Tetsuji Hirato, Michael Thompson, Debdeep Jena, Huili Grace Xing
2. 発表標題 Epitaxial Growth of α -Ga ₂ O ₃ Films on MgO Substrate via Mist Chemical Vapor Deposition Method
3. 学会等名 The 6th U.S. Gallium Oxide Workshop (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takumi Ikenoue, Shintaro Iida, YongJin Cho, Vladimir Protasenko, Bennett J Cromer, Chandrashekhar Prakash Savant, Masao Miyake, Tetsuji Hirato, Michael Thompson, Debdeep Jena, Huili Grace Xing
2. 発表標題 Epitaxial Growth of Lattice-Matched NiMgZnO Films on MgO Substrate via Mist Chemical Vapor Deposition
3. 学会等名 65th Electronic Materials Conference (国際学会)
4. 発表年 2023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
	シン グレース (Xing Grace)	米国コーネル大学・Electrical and Computer Engineering・Professor	

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		
米国	Cornell University		