

# ミスト CVD による超高品質コランダム系酸化物薄膜を用いた高性能デバイス作製の為の基礎研究

川原村研究室 須和祐太

## 1. 緒言

2014年、青色発光ダイオード(青色LED:窒化ガリウム系)の開発に対しノーベル物理学賞が授与された。それまで不可能とされた青色LEDの開発を成功させた重要な技術の一つは、基板と半導体層の格子不整合を緩和させる層(バッファ層)を導入し、歪を抑制する技術である<sup>(1)</sup>。一方、現在環境に配慮可能な安定材料である酸化物薄膜を用いたデバイスに注目が集まっている。そして近年サファイア( $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ )基板と同種である高品質なコランダム系酸化物( $\alpha$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 、 $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ )薄膜をミストCVDにより作製が可能であると報告され、低環境負荷プロセスによる酸化物デバイス開発が期待される<sup>(2-4)</sup>。デバイスに必要な要素として絶縁体、半導体、導電体があるが、導電体を担う $\text{In}_2\text{O}_3$ 薄膜では上述するような格子不整合の問題により未だ配向性の高い結晶を作製することが出来ず、高性能デバイスの実現には至っていない<sup>(5)</sup>。

そこで本研究では低環境負荷な高性能電子デバイス開発を見据えた基礎研究として、ミストCVD法による超高品質コランダム系酸化インジウム( $\text{rh-In}_2\text{O}_3$ )薄膜作製を試みた。

## 2. 実験方法・解析方法

成膜装置はファインチャンネル(FC)式を用いた<sup>(6)</sup>。詳細図をFig. 1に示す。これは超音波でミスト化した前駆体溶液を搬送ガスで反応炉に搬送し、熱分解によって化学反応させ基板に薄膜を作製する手法である。今回行った実験条件をTable 1に示す。本実験では $\text{In}_2\text{O}_3$ の前駆体として $\text{InCl}_3$ 、 $\text{Ga}_2\text{O}_3$ の前駆体として $\text{Ga}(\text{acac})_3$ を用いた。結晶構造解析にはX線回折(X-ray Diffraction: XRD, Rigaku製 ATX-G, Smart Lab.)測定、薄膜表面の観察には原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscopy: AFM, 東陽テクニカ製 Nano-RJ)を用い、光学測定にはカソードルミネッセンス(Cathode Luminescence: CL)、透過率測定には分光光度計(Ultra-Violet and Visible Spectrophotometric: UV-VIS 日立製 U-4100)を用いた。

## 3. 実験結果・考察

XRD測定結果をFig. 2に示す。基板へ直接 $\text{In}_2\text{O}_3$ を成長させた場合はピクスパイト構造が確認された(Fig. 2(a))。これは基板と $\text{In}_2\text{O}_3$ の格子不整合性が15.2%もあり、熱的に最も安定なピクスパイト構造を形成したと考えられる。一方

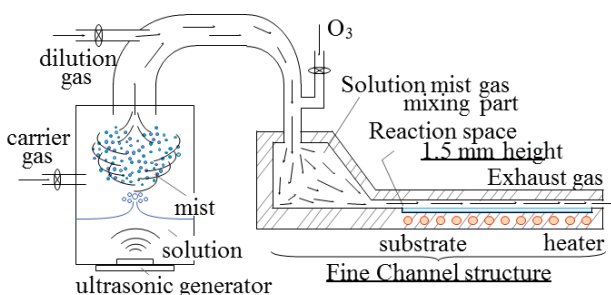


Fig. 1 FC式ミストCVD装置

Table 1 実験条件

	$\alpha$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$	$\text{rh-In}_2\text{O}_3$
Solute	$\text{Ga}(\text{acac})_3^{\text{a)}$	$\text{InCl}_3^{\text{c)}$
Solvent	$\text{DIW}^{\text{d)}$ , $\text{HCl}^{\text{e)}$ (99:1)	$\text{DIW}^{\text{d)}$
Solution Concentration	0.020 mol/L	
Substrate	c-plane sapphire (c-plane $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) <sup>f)</sup>	
Sub. Temperature	375°C	450°C
System	Fine Channel type mist CVD system (30 mm ver)	
Carrier gas	Air, 2.5 L/min	
Dilution gas	Air, 3.0 L/min	
Assistance gas	$\text{O}_3$ , 5000 ppm in air 1.5 L/min	
Ultrasonic transducer <sup>g)</sup>	2.4 MHz, 24 V·2 A, 3 (Frequency, Power, Number)	

<sup>a)</sup> HONDA ELECTRONICS, HM-2412, <sup>b)</sup> Gallium acetylacetonate; 99.99%, Sigma-Aldrich  
<sup>c)</sup> Indium Chloride, Sigma-Aldrich, <sup>d)</sup> Deionized water  
<sup>e)</sup> hydrochloric acid, 35-37%, <sup>f)</sup> Kyocera

で、バッファ層( $\alpha$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ )を導入した場合は $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 、 $\text{In}_2\text{O}_3$ ともにコランダム構造に起因するピークが現れ、結晶性が高いときのみ現れるラウエフリンジ(干渉縞)が確認された(Fig. 2(b))。ロックンガープの半値幅も190 arcsecと配向性の極めて良い高品質な $\text{rh-In}_2\text{O}_3$ 薄膜作製に世界で初めて成功した。これはバッファ層により格子不整合性が緩和し、界面における $\alpha$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ と $\text{rh-In}_2\text{O}_3$ の単位格子が11個分と10個分で一致することにより高結晶化へ至ったと考えられる。以上のことから、次世代を担う高性能な酸化物デバイス作製に期待が持てる結果となった。

発表ではミストCVD法の説明と今回の成果をより詳しく説明し、その結果に基づき展望を示す。

## 4. 文献

- (1) H.Amano, et. al, Appl. Phys. Lett. 48, 353 (1986)
- (2) D. Shinohara, et. al, Jpn. J. Appl. Phys. 47, 7311 (2008).
- (3) K. Kaneko, et. al, Appl. Phys. Express 2075501(2009).
- (4) T. Kawaharamura, et. al, Jpn. J. Appl. Phys. 51,040207 (2012).
- (5) N.Suzuki, et. al, J. Crystal Growth 36430(2013).
- (6) T. Kawaharamura: Ph. D. Thesis, Kyoto University, Kyoto (2008) [in Japanese].

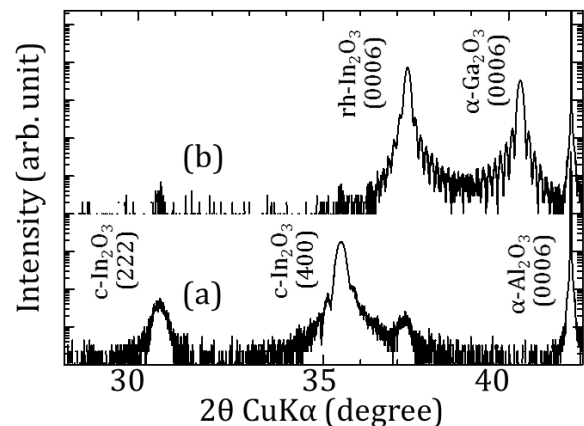


Fig. 2 XRD測定結果