

卒業論文要旨

ミスト CVD 法による酸化アルミニウムガリウムの組成制御に関する研究

Study on Composition Control of Aluminum Gallium Oxide by Mist CVD Method

システム工学群

川原村研究室 1240038 岡田 達樹

1. 背景

地球上に存在する物質はすべて酸化されるため、酸化物は存在自体が安定しており、経時的安定性が高い。酸化物半導体は電気耐性が高く、高寿命・高耐圧であり、次世代パワーデバイス材料として期待されている。現在、パワーデバイスの材料にはシリコン(Si)が主力であるが、省エネルギー技術として課題がある。そのため、Si よりも高耐圧かつ低損失なパワーデバイスの実現として期待されているシリコンカーバイド(SiC)や窒化ガリウム(GaN)などのワイドバンドギャップ材料が注目されている。我々の研究グループではさらにバンドギャップが大きいだけでなく、誘電率、および電界強度も大きい材料、さらに性能向上が望める酸化アルミニウムガリウム α -($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ に注目し、開発を進めている。

2. 先行研究と目的

先行研究では、アルミニウム(Al)源とガリウム(Ga)源の原料ガス供給量を調整することによって、 α -($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ の組成比制御に成功している^[3]。その実験サンプルの XRD 測定結果を図 1 に示す。図内左上のグラフはロックイングカーブ測定結果である。酸化ガリウム(α - Ga_2O_3)のピークは 40.3°であり、酸化アルミニウム(α - Al_2O_3)のピークは 41.7°である。実験結果を見ると明らかに組成制御に成功していることが分かる。一方、当時の実験では Al 源の仕込み濃度が 40 mmol/L で固定されていたため、本実験では Al 源の仕込み濃度を変化させた際どのような変化が見られるかの調査を目的とした。また、Al の成膜速度は Ga の成膜速度よりも遅いことが先行研究より判明しているため、Al 源の仕込み濃度を高くすることで α -($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}$) $_2\text{O}_3$ の成膜速度がどのように変化するかの調査を行った。混晶膜の成膜は一般的に困難である組成比の制御に対し、Ga 源と Al 源とキャリアガス流量比を調整するだけで、薄膜内の Ga 元と Al 元を一致させる方法で実験と測定を行った。また、膜品質についても調査を行った。

3. ミスト化学気相成長法

ミスト化学気相成長法(ミスト CVD 法)は、それぞれの原料溶液を超音波によって別々にミスト化し、ミスト混合器で攪拌した後、Fine Channel (FC) 式反応炉に供給し、反応炉に到達した溶液成分が熱分解反応により基板上に薄膜を成膜する手法である。以下では今回の実験における装置構成について簡単に示す。

3.1 Fine Channel 式反応炉

ミスト CVD 法は、反応炉の違いによっていくつかの方式が存在し、本研究では図 2 に示す FC 式反応炉を用いた。左部の原料供給部では超音波によって溶液がミスト化され、キャ

リアガス(c.g.)によって右部の FC 式反応炉に運ばれる。FC 式反応炉に搬送された原料ミストガスは、整流部で整流された後急激に狭くなった峽差二平板構造を有する反応空間に導入される。反応空間に導入された原料ミストガスは効率よく加熱され反応温度に達し、基板上に薄膜を形成する。

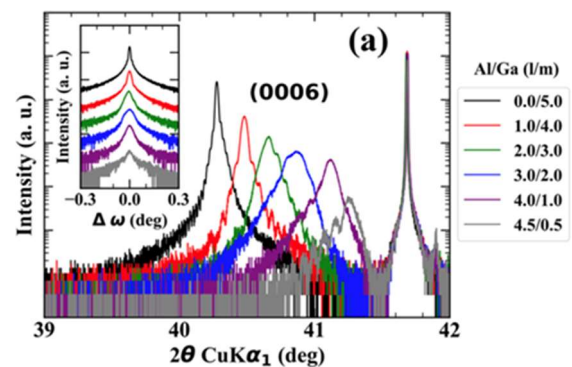


Fig. 1 XRD measurement results

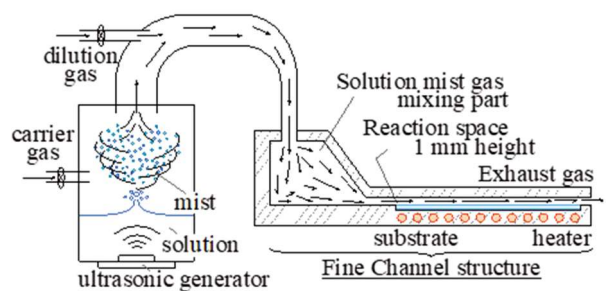


Fig. 2 Mist CVD system with Fine Channel reactor

3.2 まぜまぜ器

本研究では成膜に複数の原料を使用するため図 3 に示すまぜまぜ器を使用した。これはそれぞれの原料供給部から搬送されたミストを集め、異なる原料ミストを均一に分散した状態で成膜部まで導入することが可能である。一般に、混晶薄膜を成膜する際には複数の原料をまとめて溶解し1つの溶液とする。原料によっては原料を混合した際に化学反応やイオン化傾向の違いによる沈殿が起こる可能性がある。まぜまぜ器を実験に使用することで原料同士が成膜部以外で反応するのを防ぐことが可能である。

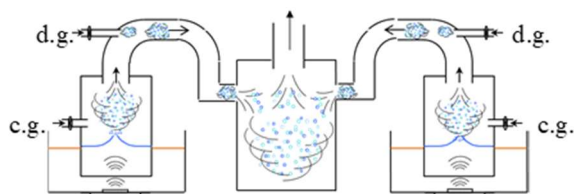


Fig. 3 Mixer

4. 実験内容

本研究では、ガリウムアセチルアセトナート $\{Ga(acac)_3\}$ 、アルミニウムアセチルアセトナート $\{Al(acac)_3\}$ を前駆体として原料溶液を調合し、薄膜作製を行った。

4.1 Al 源の仕込み濃度操作による薄膜作製実験

原料ガス流量を操作することによって組成制御が可能であるか調査した。また、Al 源を用いた Al_2O_3 薄膜の成膜速度が Ga 源を用いた Ga_2O_3 薄膜の成膜速度よりも遅いので、Ga 源の仕込み濃度は固定し、Al 源の仕込み濃度を Ga 源の仕込み濃度より高く設定し、 $\alpha-(Al_xGa_{1-x})_2O_3$ の成膜速度の変化について調査した。また、作製したサンプルの表面粗さを調査した。

5. 実験結果

5.1 XRD について

Al 源の仕込み濃度が 80 mmol/L の条件で作製したサンプルの XRD 測定結果を図 4 に示す。図の左に示す値は Ga 源の c. g. と Al 源の c. g. の流量 (L/min) を示している。Al 源の c. g. の増加に伴い、ピークは高角側へ推移している。つまり、 $\alpha-(Al_xGa_{1-x})_2O_3$ 薄膜中の Al 元の比率が高くなっていることを示す。

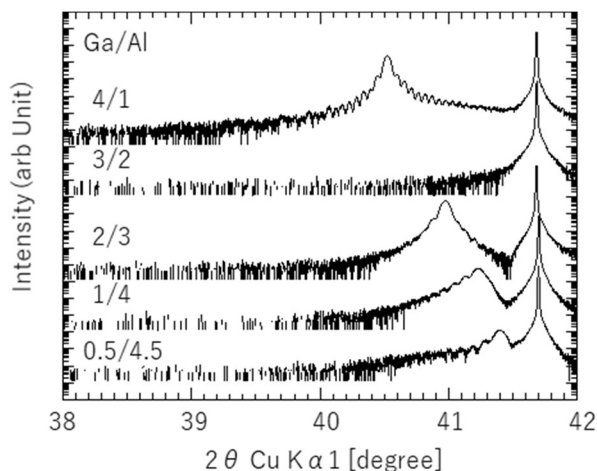


Fig. 4 XRD measurement results

5.2 薄膜内の Al 元の割合と成膜速度について

図 4 をもとに作成した c. g. の総流量に対し Al 源が占める割合に対して薄膜内の Al 元の比率を図 5 に示す。図 5 より、Ga 源と Al 源の原料ガス供給量比を操作することによって Ga 源と Al 源の c. g. 比と膜内の Ga 元と Al 元を一致させることに成功した。

また、成膜速度について調査した結果を図 6 に示す。Al 源の仕込み濃度の増加に伴い、成膜速度の向上が見られた。一方、Al 源の c. g. 流量の増加に伴い、成膜速度が遅くなる傾向が見られた。これは同濃度の Al 源と Ga 源を用いてそれぞれ Al_2O_3 と Ga_2O_3 を成膜すると、Al 源を用いたときの方が Ga 源を用いたときよりも成膜速度が遅いからである。

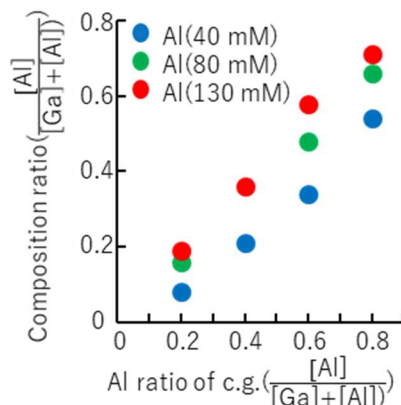


Fig. 5 Al ratio vs. Al carrier gas

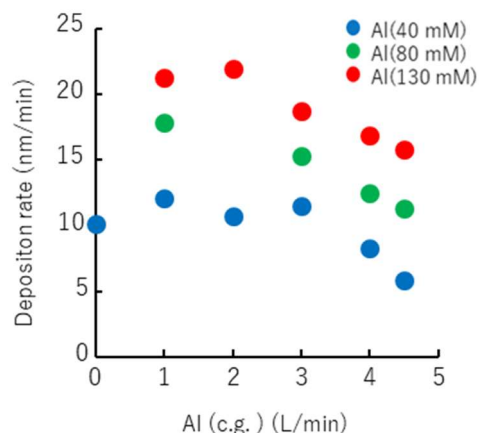


Fig. 6 Deposition rate vs. carrier gas flow rate of Al

5.3 表面粗さについて

Al 源の仕込み濃度と表面粗さの関係について調査した結果を図 7 に示す。また、AFM 像の上には表面粗さの二乗平均平方根(RMS)を記載した。AFM 測定結果より、表面粗さは Al の比率が増加すると粗くなることを確認した。図 7 は Al 源の c. g. の流量を 3.0 L/min に固定したときの AFM 像を示す。左から Al のモル濃度を 40, 80 mmol/L とする。

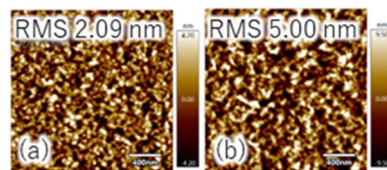


Fig. 7 AFM measurement results

6. 結言

本研究では、Al 源の仕込み濃度を变化させる実験で Ga 源と Al 源の熱分解速度の違いを確認し、Ga 源と Al 源の c. g. 流量比と膜内の Al 元を一致させる Al 源モル濃度を発見した。また、成膜速度向上に成功した。今後の展望として、HCl や他の支援材の導入、実験条件の変更等によりさらなる成膜速度向上や表面粗さの改善に取り組む。

文献

- (1) T.Kawaharamura:Ph.D.Thesis,KyotoUniversity, Kyoto(2008)
- (2) 須佐美大夢, 高知工科大学学士論文(2022)
- (3) Giang T. Dang, et al.APL Materials 8, (2020) 1011