

氏 名	おがわ けんいち <b>小川 健一</b>
学位(専攻分野)	博 士 ( 工 学 )
学 位 記 番 号	博 甲 第 1 0 6 1 号
学位授与の日付	令和 4 年 9 月 26 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研 究 科 ・ 専 攻	工芸科学研究科 電子システム工学専攻
学 位 論 文 題 目	<b>パワーデバイス向け <math>\beta</math> 型酸化ガリウム基板に導入された結晶欠陥の分類ならびにその微細構造に関する電子顕微鏡学的研究</b>
審 査 委 員	(主査)教授 一色俊之 教授 吉本昌広 准教授 西中浩之

## 論文内容の要旨

近年のエネルギー消費を鑑みると地球環境保全の面から、再生エネルギーの活用や電力の利用効率の向上は急務である。電力の利用効率の向上には、パワーデバイスの活用が有効であり、デバイス特性の更なる向上が望まれる。これまで、デバイス開発はシリコン (Si) をベースに進められてきたがその性能は限界に近付きつつある。そこで、炭化ケイ素 (Silicon carbide : SiC) や窒化ガリウム (Gallium nitride : GaN) などのワイドギャップ半導体を利用したパワーデバイスの利用が開始されつつある。しかし、これら材料は、安価に高品質な結晶成長を可能とする融液成長法で育成することが出来ない。それ故、製造コストに課題を抱える。 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は、融液成長法で単結晶バルクを育成可能であり、バンドギャップエネルギーは、SiC、GaN を超える 4.85 eV であることから、SiC、GaN に続く次世代パワーデバイスの材料として注目されている。しかしながら、導入される結晶欠陥の種類、結晶欠陥が生じるメカニズム、結晶欠陥の実デバイス特性への影響など明確になっていないことが多い。そこで、本研究は、 $\beta$  型酸化ガリウム基板ならびにその基板上にホモエピタキシャル成長させた結晶層に導入される結晶欠陥について、主に電子顕微鏡評価法を用い、欠陥種の分類と欠陥の微細構造を明確化させる事を目的とする。具体的には、以下の 3 項目に注力する。①走査電子顕微鏡 (scanning electron microscope : SEM)、原子間力顕微鏡 (atomic force microscope : AFM) を用いて、(001) 面を主面とする縁部限定薄膜供給結晶成長 (Edge-defined film-fed growth : EFG) で作製された  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (001) に導入されている結晶欠陥の分類。② 表面からの観察では把握できない結晶内部の欠陥に対し、デュアルビーム走査電子顕微鏡 (focused ion beam and scanning electron microscope : FIB - SEM) を用いて 3 次的に観察する手法の有用性の検証と実際に観察されたエッチピットへの適用。③ エピタキシャル成長 (ハライド気相成長 / Halide Vapor Phase Epitaxy : HVPE) させた Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層に導入された結晶欠陥の原子スケール解析。

本論文は、全 5 章で構成している。第 1 章では、本研究の背景、課題、目的を述べている。第 2 章では、本研究で対象としたワイドギャップ半導体  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の特徴 (結晶構造、物性値、製法) を述べた後、一般的な結晶欠陥、先行研究にて報告されている  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> バルク結晶の欠陥について触れている。また、後半では、本研究で用いた評価手法を中心に、結晶欠陥評価技術について述べている。第 3 章では、EFG 法で成長させた  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (001) バルク結晶に導入された結晶欠陥を

評価し、その結果について考察している。ここでは、まず、熔融アルカリエッチング法を用いバルク結晶表面にエッチピットを形成させた後、SEM、AFM 評価を実施している。形成されたエッチピットを 6 種類（「Cicada I type」、「Cicada II type」、「cannon ball type」、「Trapezoidal type」、「Bar type」、「Shell type」）に分類し、それら形状の解析から、「Cicada I type」、「Cicada II type」は平面欠陥由来、「Cannon ball type」は転位由来、「Trapezoidal type」、「Bar type」、「Shell type」は表面形態に由来していると結論付けている。次に、エッチピット形状が複雑、且つピットサイズが小さい場合において、FIB-SEM を用いて 3 次元的に結晶欠陥を観察する手法（Slice & View 法）は、AFM より正確にピット形状の把握が可能となる事、結晶内部の変化を直接的に把握できることから有用であることを検証している。また、本手法を「Cicada I type」、「Cicada II type」のエッチピットに適用し、「Cicada I type」は板状のピット（ボイド）と積層欠陥が混在した欠陥、「Cicada II type」は主に積層欠陥に起因したエッチピット形状と推測できる結果を得たことを述べている。第 4 章では、EFG  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (001) 基板上に、HVPE  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を 5 $\mu$ m 成長させたウェハに導入された結晶欠陥を評価し、その結果について考察している。結晶欠陥の評価は、走査透過電子顕微鏡（scanning transmission electron microscope : STEM）を用い、熔融アルカリエッチングによってウェハ表面にエッチピットを形成させた後、そのピットを目印に進めている。取得した原子スケールの高解像度高角度環状暗視野（high-resolution high-angle annular dark field / HRHAADF）-STEM 像の考察から、3 種類の結晶欠陥の存在を明らかにしている。1 つ目は、(-310) 面積層欠陥の存在である。{-310} 面は、 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のすべり面として知られていることから、この欠陥は、結晶成長方法によらず導入される欠陥と結論付けている。ここで、原子スケール解析によって、Ga 原子サイトの空孔を明瞭にとらえることにも成功しており、{-310} 積層欠陥は、この空孔によって導入されることを明らかにしている。2 つ目は、(1-11) 面積層欠陥の存在である。{1-11} 面は、 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のすべり面ではないため、この積層欠陥は、比較的高いエネルギーを持つと予想し、気相成長によって不安定な堆積物が組み込まれ導入された HVPE 成長特有の欠陥と結論付けている。3 つ目は、{111} 面と {727} 面の積層欠陥が繰り返されるリボン折り畳み欠陥の存在である。この欠陥は、[001] 方向に伸びていること、リボン状の一つの積層欠陥が {111} 面に導入されていることから、HVPE 特有の積層欠陥と結論付けている。なお、これら 3 種類の欠陥は、いずれも表層から 3  $\mu$ m 以下の深さから導入されていることから、EFG  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (001) 基板の影響を受けず、エピタキシャル層内で導入された欠陥であることを明らかにしている。第 5 章は、本研究で得られた成果を総括し、今後の研究課題について考察することで 本論文の結論としている。

## 論文審査の結果の要旨

エネルギー問題や環境問題解決のため、パワーデバイスを用いた電力制御・高効率利用の推進が期待される。ワイドバンドギャップ半導体である SiC や GaN を用いたパワーデバイスの実用化が急速に進んでいる一方、より高性能なパワーデバイスの実現に向けて、酸化ガリウムやダイヤモンドといった新素材の研究も精力的に進められている。申請者の研究は、パワーデバイス用途の酸化ガリウム基板に内在する欠陥の電子顕微鏡を用いた評価・解析に関するもので、デバイス実用化において性能向上や信頼性確保に結びつく重要な研究テーマである。まず、SiC や GaN の欠陥解析において実績のあるアルカリ熔融塩エッチング法を用いて酸化ガリウム基板中の欠陥の

分類識別が可能であることを示すとともに、原子間力顕微鏡計測によるエッチピット形状の詳細評価も行っている。また面状欠陥に対応するエッチピットに対して集束イオンビーム加工と走査型電子顕微鏡観察を繰り返す手法を用いて、基板内の空洞を伴う欠陥構造を立体的に解明し、この手法の有効性を示している。エピタキシャル成長で導入された積層欠陥に対しては、原子カラム分解能を有する環状暗視野走査透過型電子顕微鏡法を用いて評価し、既報の{310}積層欠陥、{111}積層欠陥について欠陥面の原子配列を明らかにしていることに加え、{111}積層欠陥を含む連続的な折り畳み構造を持つ特異な形状の積層欠陥を発見し、その構造についても解析を行っている。これらの研究では、今後の酸化ガリウムを用いたパワーデバイス開発において有用な知見が得られていると認められる。また、研究に用いられた観察手法は対象とする欠陥に応じて適切に選択されており、各種電子顕微鏡法を駆使して得られた研究成果であると評価できる。

本学位論文は、いずれもレフェリー制度のある、学術雑誌論文2編および国際会議プロシーディングス1編を基に作成されたもので、3編すべての論文において申請者が筆頭著者である。

#### 【学位論文の基礎となった論文】

- (1) Kenichi Ogawa, Naoya Ogawa, Ryo Kosaka, Toshiyuki Isshiki, Toru Aiso, Masato Iyoki, Yongzhao Yao and Yukari Ishikawa, AFM Observation of Etch-Pit Shapes on  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (001) Surface Formed by Molten Alkali Etching, Materials Science Forum, **1004**, 512-518 (2020).
- (2) KENICHI OGAWA, NAOYA OGAWA, RYO KOSAKA, TOSHIYUKI ISSHIKI, YONGZHAO YAO, and YUKARI ISHIKAWA, Three-Dimensional Observation of Internal Defects in a  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (001) Wafer Using the FIB-SEM Serial Sectioning Method, Journal of Electronic Materials, **49**, 5190-5195 (2020).
- (3) Kenichi Ogawa, Kenji Kobayashi, Noriyuki Hasuike, and Toshiyuki Isshiki Crystal structure analysis of stacking faults through scanning transmission electron microscopy of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (001) layer grown via halide vapor phase epitaxy, Journal of Vacuum Science & Technology A, **40**, 032701 1-10 (2022).