

FZ 法による Zn 添加 β -Ga₂O₃ 単結晶の育成

Growth of Zn-Doped β -Ga₂O₃ Single Crystals using the FZ method

山梨大¹ ^o(M1)漆畑 大地, 長尾 雅則¹, 丸山 祐樹¹, 綿打 敏司¹

Univ. of Yamanashi¹, ^oDaichi Urushibata¹, Masanori Nagao¹, Yuki Maruyama¹, Satoshi Watauchi¹

E-mail: g24tz004@yamanashi.ac.jp

[緒論]

β -Ga₂O₃ は SiC や GaN と比べ、バンドギャップが 4.8~4.9 eV と大きく、高い絶縁破壊電界を有するという点からパワーデバイス材料として期待されている。また、融解凝固により単結晶が育成できることから、低コストで単結晶基板が作製可能であるといった利点もある。 β -Ga₂O₃ はドナー不純物としての Si や Sn を添加することにより n 型化が可能であり、 10^{15} ~ 10^{20} cm⁻³ の広い範囲でキャリア(ドナー)密度の制御が実現している[1]。しかし、 p 型化は困難であり、未だデバイス応用可能な材料の作製に至っていない。その中、 β -Ga₂O₃ に対してアクセプター不純物として働く可能性が報告されている Zn(Zn²⁺)[2, 3]に着目した。本研究では、ルツボによる不純物混入のない浮遊帯域溶融法(FZ 法)により、Zn 添加 β -Ga₂O₃ 単結晶の育成を試み、Zn 添加が結晶育成に与える影響や育成した β -Ga₂O₃ 相の異相析出について調べた。

[実験方法]

Ga_{2-x}Zn_xO_{3-y}($x = 0.002 \sim 0.2$, Zn: 0.1~10 at%)となるように β -Ga₂O₃(4N)と ZnO(3N)の粉末を秤量した。その後、エタノールにより湿式混合し、700°Cと 1000°Cでそれぞれ 10 h 焼成を行った。作製した粉末をゴムチューブに詰め、冷間等方圧プレス機(CIP)により 300 MPa で加圧し棒状に成型したものを 1450°Cで 10 h 焼結し、原料棒とした。作製した原料棒は、およそ 7 mm ϕ となった。1.5 kW のハロゲンランプ 4 つを加熱光源(赤外線加熱)とした FZ 装置(株式会社クリスタルシステム : FZ-10000-H-III-VPS-YT)により結晶育成を行った。種結晶には<010>方位の無添加 β -Ga₂O₃ 単結晶を用いた。育成速度を 5 mm/h、雰囲気は合成空気を用いた。Zn 添加した原料粉末を、紫外可視近赤外分光法(UV-Vis)を用いて赤外線領域の吸収について評価した。育成した結晶は走査型電子顕微鏡(SEM)とエネルギー分散型 X 線分光法(EDS)を用いて異相の有無を調べた。また、Zn の固溶限界を調査するため、電子プローブマイクロアナライザー(EPMA)を用いて定量分析を行う予定である。

[実験結果]

無添加の β -Ga₂O₃ は、ハロゲンランプによる加熱(赤外線加熱)によって融解するのに対し、Zn 添加を行った原料棒では、同程度のランプ出力電力で融解が起こらなかった。Zn 添加 β -Ga₂O₃ と無添加 β -Ga₂O₃ 粉末について赤外線領域の吸収を調べたところ、赤外線吸収に大きな低下は確認されなかったことから、原料棒加熱時に酸素欠損が生じて Ga の還元が起こることで赤外線吸収が上昇し、原料棒が融解するものと考え、Zn 添加によって加熱時の酸素欠損が起こりにくくなったものと結論付けた。そこで、種結晶に用いている無添加 β -Ga₂O₃ を融解し、原料棒に接触させることで原料棒を融かし、溶融帯を形成することに成功した。また、Zn 添加量(原料棒)の増加に伴い、結晶育成時のランプ出力電力は低下した。Fig.1 に Zn 添加量 5 at%の原料棒を用いて育成した結晶(a)と育成初期部の SEM 像(b)を示す。原料棒中の Zn 添加量が 5 at%($x = 0.1$)以上になると育成結晶中に異相として ZnGa₂O₄ の析出が確認された。この母相部分(β -Ga₂O₃ 相)の Zn 濃度を定量することで β -Ga₂O₃ に対する Zn の固溶限界について考察を行う予定である。

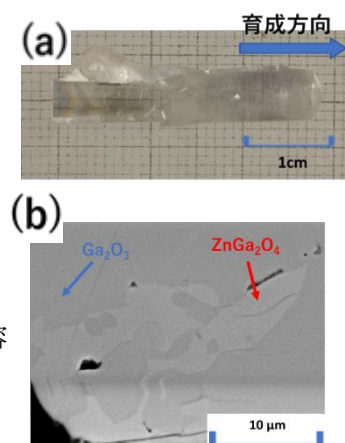


Fig.1 (a)Overall image (b)SEM image of the initial growth region of the grown crystal using 5 at% Zn doped feed rod.

- [1] 東脇正高, ペータ酸化ガリウムデバイス, 応用物理, 90 巻 5 号, 2021.
- [2] A. K. Singh *et al.* Structural and photoluminescence properties of Co-Sputtered p-type Zn-doped β -Ga₂O₃ thin films on sapphire substrates. Journal of Luminescence, 260 (2023) 119836.
- [3] Q. Feng *et al.* Catalytic growth and characterization of single crystalline Zn doped p-type β -Ga₂O₃ nanowires. Journal of Alloys and Compounds, 687 (2016) 964-968.