

一般セッション(口頭講演) | 6 薄膜・表面：6.3 酸化物エレクトロニクス

📅 2024年9月20日(金) 9:30 ~ 11:30 📍 B3 (展示ホールB)

[20a-B3-1~8] 6.3 酸化物エレクトロニクス

島 久(産総研)

9:30 ~ 9:45

[20a-B3-1]

リチウム吸蔵反応におけるチタン酸リチウム ($\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$) 相転移機構の高分解能 TEM 観察○橘田 晃宜¹、田口 昇¹、尾崎 弘幸¹、清林 哲¹ (1.産総研)

9:45 ~ 10:00

[20a-B3-2]

リチウム過剰系層状酸化物正極における遷移金属比と原子配列の変化

○廣井 慧¹、小林 健太郎¹、尾原 幸治¹、濱本 楽²、中塚 海斗²、乙倉 悠人²、大石 昌嗣² (1.島根大材工
ネ、2.徳島大工)

10:00 ~ 10:15

[20a-B3-3]

チタニア/ポリアニリン多孔体ペレットを蓄電層とした光蓄電池

○(M1)松本 大空¹、前田 俊祐¹、北山 公貴¹、野見山 輝明¹、堀江 雄二¹ (1.鹿児島大院)

10:15 ~ 10:30

[20a-B3-4]

キトサン/クエン酸と共にアニーリングした酸化亜鉛ナノ粒子
の光触媒活性増強効果○國本 虎太郎¹、川上 烈生¹、柳谷 伸一郎^{1,2}、中野 由崇³、新部 正人⁴ (1.徳島大理工、2.徳島大
pLED、3.中部大、4.東京大)

10:30 ~ 10:45

[20a-B3-5]

大気下における蒸着重合を用いたロッド状 $\text{g-C}_3\text{N}_4$ の作製と光触媒への応用○菱木 裕基¹、青木 瑞稀¹、大谷 直毅¹ (1.同志社大)

10:45 ~ 11:00

[20a-B3-6]

n型層として TiO_2 薄膜を用いたヘテロ接合 Cu_2O 薄膜太陽電池の光起電力特性○石田 竜也¹、神崎 凌馬¹、宮田 俊弘¹ (1.金工大)

📌 英語発表

11:00 ~ 11:15

[20a-B3-7]

Single-Atom Platinum Anchored Graphitic Carbon Nitride Nanosheets for Photoreforming
Plastic to Hydrogen○(P)Chang YinHsuan¹、CiaoYun Huang¹、TingHan Lin¹、JiaMao Chang¹、MingChung Wu¹
(1.Chang Gung Univ.)

11:15 ~ 11:30

[20a-B3-8]

液体ターゲットを用いたスパッタ法による酸化ガリウム薄膜の形成

○小柳 剛¹、山田 直樹¹、藤井 隆満² (1.山口大院創成科学、2.TAK薄膜デバイス)

リチウム吸蔵反応における
チタン酸リチウム ($\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$) 相転移機構の高分解能 TEM 観察
Transmission electron microscopy investigation of the phase transition of
 $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ upon the lithiation

産総研 ○橋田 晃宜, 田口 昇, 尾崎 弘幸, 清林 哲

AIST ○Mitsunori Kitta, Noboru Taguchi, Hiroyuki Ozaki, Tetsu Kiyobayashi

E-mail: m-kitta@aist.go.jp

【はじめに】 リチウムイオン電池の高性能化において、電極活物質の反応機構の理解が重要である。電池の充放電過程で、電極活物質はリチウムイオンの吸蔵と放出を繰り返す。すなわちリチウム吸蔵相と脱離相間の相変化は、電池反応の基礎であり、その遷移過程の詳細を理解することが望まれる。^[1] ところで、充放電時に格子定数の変化を伴う材料に比べて、いわゆる無歪系材料の相遷移過程の詳細は未だ明らかではない。本発表では、透過電子顕微鏡 (TEM) による格子分解能観察を通じて、無歪材料系の代表とされる、チタン酸リチウム ($\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$) の相遷移過程を議論する。

【実験】 $\text{TiO}_2(110)$ 基板を機械研磨とイオンミリングによって薄片化した。さらに水酸化リチウム一水和物 ($\text{LiOH}\cdot\text{H}_2\text{O}$) と共に 850 度で 15 時間ほど大気中焼成し $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}(100)$ 観察試料を得た。^[2] 得られた試料に対して、酸化リチウム (Li_2O) をコートし TEM 観察を実施した。

【結果と考察】 図には試料の高分解能透過電子顕微鏡像を示した。観察開始直後の図(a)にはスピネル型格子の特徴を反映する {022} 格子縞が明瞭に観察され、その二次元フーリエ変換パターン (挿入図) 中のスポットの先鋭さから、高い結晶性が確認できた。一方で図(b)に示した、観察後 30 秒経過後の像中には {022} 格子縞の情報はほとんど確認できなかった。これは電子線照射によって $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12} \rightarrow \text{Li}_7\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ のリチウム吸蔵反応が進行したことを意味している。^[3] さらにその遷移過程の詳細は当日議論する。

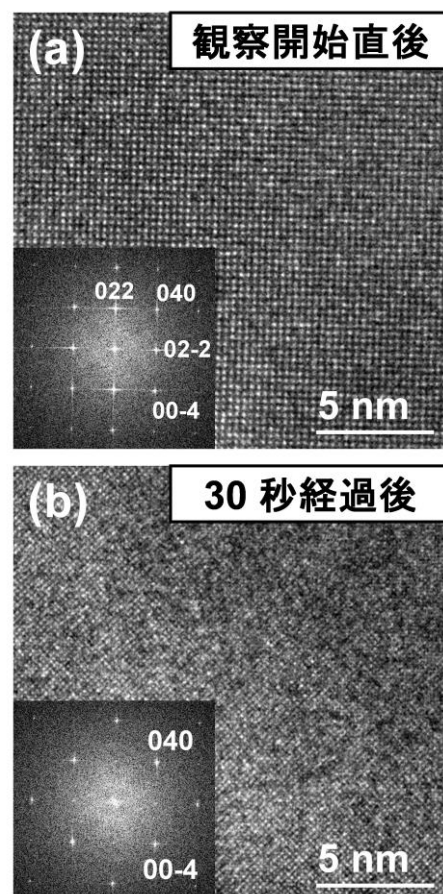


Figure TEM images of the sample for (a) initial and (b) after the observation, respectively.

[1] Sci. Chin. Chem. 67 (2024) 291-311. <https://doi.org/10.1007/s11426-022-1486-1>

[2] Surf. Interface Anal. 46 (2013) 1245-1248. <https://doi.org/10.1002/sia.5560>

[3] Phys. Chem. Chem. Phys. 19 (2017) 11581-11587. <https://doi.org/10.1039/C7CP00185A>

リチウム過剰系層状酸化物正極における遷移金属比と原子配列の変化

Transition-metal-concentration dependence of atomic configuration

in Li-rich layered materials

島根大材エネ¹, 徳島大理工² °廣井 慧¹, 小林 健太郎¹, 尾原 幸治¹,濱本 楽², 中塚 海斗², 乙倉 悠人², 大石 昌嗣²Shimane Univ.¹, Tokushima Univ.²

E-mail: s_hiroi@mat.shimane-u.ac.jp

$\text{Li}_2\text{MnO}_3\text{-LiMeO}_2$ (Me = Ni, Co, Mn) で記述される Li 過剰系層状酸化物 (Li-rich layered oxides, LLO) は、250 mAh/g 以上の充放電容量を示すことから、次世代のリチウムイオン二次電池正極の有力な候補として期待されている。我々のグループでは、atomic pair distribution function (PDF) を利用した結晶構造解析を通じて、Mn rich となる LLO において充電状態でも結晶相の崩壊を防ぐメカニズムである「アダプティブピラー」を提唱した^[1]。本研究では、Co または Ni rich LLO に対しても同様に X 線全散乱測定を行い、PDF を詳細に解析することによって、LLO の高い電池特性を実現する遷移金属元素の機能の解明を試みた。

測定対象の LLO 試料は、前駆体の遷移金属炭酸塩を液相法にて作製し、得られた前駆体と Li 源を固相法により合成し、900 °C または 950 °C で熱処理をした。試料の仕込み組成はそれぞれ、 $\text{Li}_{1.13}\text{Ni}_{0.05}\text{Co}_{0.50}\text{Mn}_{0.32}\text{O}_2$ (Co rich) および $\text{Li}_{1.13}\text{Ni}_{0.50}\text{Co}_{0.05}\text{Mn}_{0.32}\text{O}_2$ (Ni rich) である。充放電による影響の評価を目的として、各試料の pristine のほか、20 回充電/放電試料を用意した。各試料の PDF を得るために、SPring-8 の高エネルギー X 線回折ビームライン BL04B2 にて X 線全散乱測定を実施した。Figure 1 に、X 線全散乱測定によって得られた各試料の構造因子 $S(Q)$ を示す。Co rich および Ni rich とともに、 $S(Q)$ より空間群 $R\bar{3}m$ と思われる結晶相由来の Bragg ピークプロファイルが確認された。講演では、得られた $S(Q)$ を基に結晶 PDF 解析を実行し、電池特性に寄与する原子配列についての議論を予定している。

[1] S. Hiroi et al., *Small* **18**(42), 2203412 (2022).

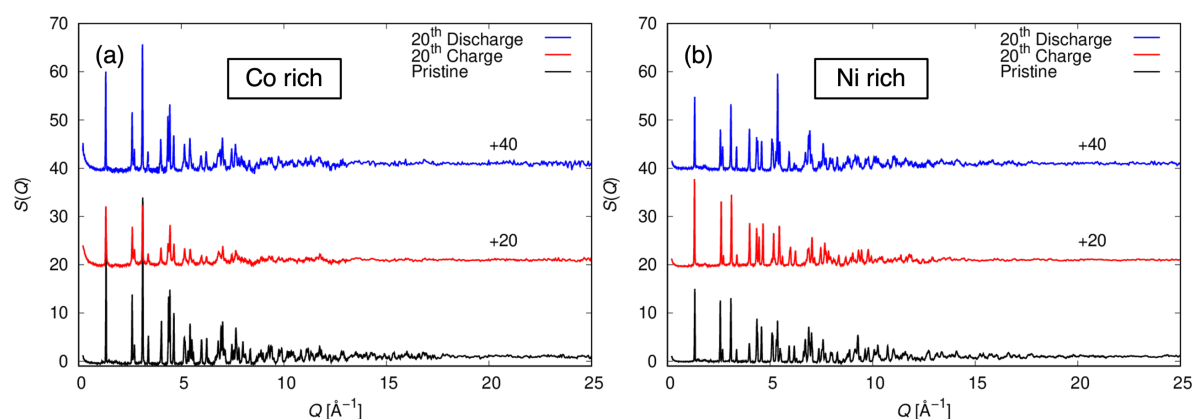


Fig. 1 X 線全散乱測定から得られた構造因子 $S(Q)$ 。(a) Co rich 試料。(b) Ni rich 試料。

チタニア/ポリアニリン多孔体ペレットを蓄電層とした光蓄電池 Photorechargeable battery using porous titania/polyaniline-pellets as the storage layer

鹿児島大院[○](M1) 松本 大空, 前田 俊祐, 北山 公貴, 野見山 輝明, 堀江 雄二

Kagoshima Univ., [○]T. Matsumoto, S. Maeda, N. Kitayama, T. Nomiyama, Y. Horie

E-mail: k8199281@kadai.jp

【はじめに】太陽電池は出力変動が大きいので、蓄電による平滑化が不可欠である。そこで、太陽電池発電層の直下に蓄電層を置くことで、2つの機能を単一電極に統合した積層型光蓄電池を開発している。この蓄電層として数十 μm 厚の TiO_2 多孔体薄膜にポリアニリンを電着したチタニア/ポリアニリン (TP) 複合体薄膜を開発した。現在、実用化に向け、1 mm 厚のチタニア多孔体ペレットに TP 領域を形成することで、高容量化を試みている。これまでに 1 mm 厚のペレットへの集電極の形成が可能になったが、安定な電着や充放電ができていない。この不安定さは、多孔質内部への電解質の浸透が不十分なためと考えられる。本報告では、電解質溶液を減圧浸透させて、電着や充放電プロセスを改善した結果について述べる。

【実験】Fig. 1(a) のような直径 13 mm, 厚さ 1 mm のチタニア多孔体ペレットを準備し、CVD により FTO 集電極を形成した。このペレットを減圧チャンバ中に入れて Fig. 1(b) のように電着電解質を減圧浸透させた後、ポリアニリンを電着して多孔質中に 2 つの TP 領域を形成した。これらを両極とした TPTP セルの充放電特性を種々の条件下で調べた。

【結果と考察】Fig. 2(a) に TP 薄膜と同じ条件での、ペレットの充放電特性を示す。TP 薄膜と同じ条件では、ペレットは充放電できないことが分かる。Fig. 2(b) に電池電解質を減圧浸透させ充放電電位幅を狭くしたときのペレットの充放電特性を示す。この条件下では、内部抵抗が小さくなり電位の不安定さが抑えられて、ペレットで安定な充放電が得られている。これは、減圧浸透による多孔質内部への電解質の十分な侵入と、高い電位での不可逆な反応の防止ができたためだと考えられる。講演では、電着の不安定さを電着電解質を減圧浸透させて改善した結果についても報告する。

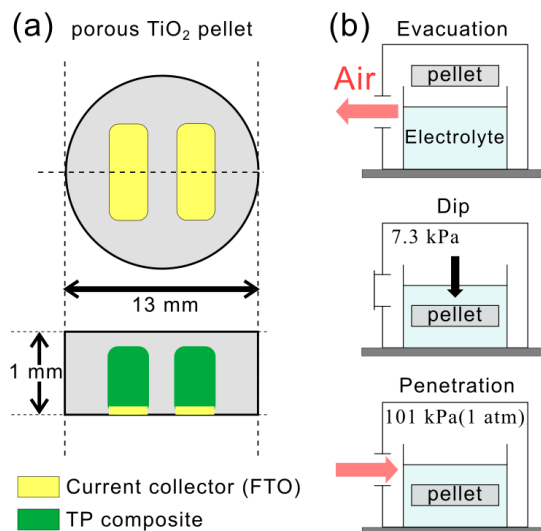


Fig.1 (a) Porous TiO_2 pellet with current collector (FTO) and TP composite within the pellet. (b) Process of vacuum impregnation.

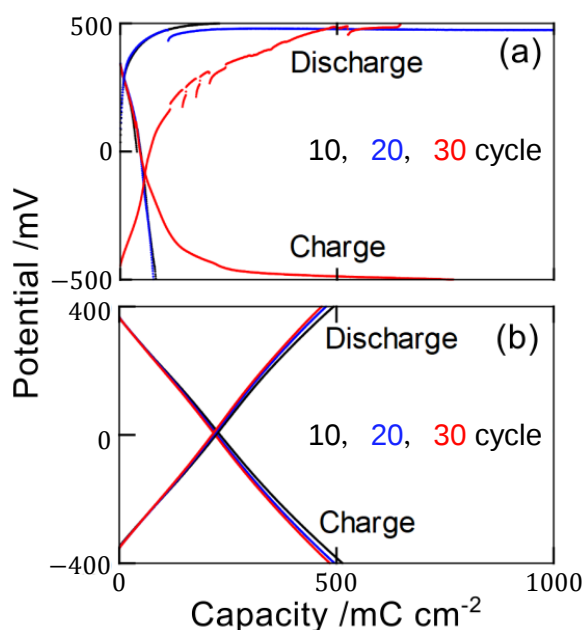


Fig.2 Potential profile of TP-TP cell under constant current charge/discharge test: (a) the potential area ruled from -500 to $+500$ mV without vacuum impregnation, (b) from -400 to $+400$ mV with vacuum impregnation.

1) T. Nomiyama *et al.*: MRS Proceedings, **1606** (2014) jsapmrs-13-1606-6052.

【謝辞】本研究は JSPS 科研費 24K00930, 21K04156, 18K04240 の助成を受けたものである。

キトサン/クエン酸と共にアニーリングした酸化亜鉛ナノ粒子の光触媒活性増強効果

Enhanced Photocatalytic Activity of Zinc Oxide Nanoparticles Annealed with Chitosan/Citric Acid

徳島大理工¹, 徳島大 pLED², 中部大³, 東京大⁴

○(M1) 國本 虎太郎¹, 川上 烈生¹, 柳谷 伸一郎^{1,2}, 中野 由崇³, 新部 正人⁴

Tokushima Univ.¹, pLED, Tokushima Univ.², Chubu Univ.³, The Univ. Tokyo⁴

○Kotaro Kunimoto¹, Retsuo Kawakami¹, Shin-ichiro Yanagiya^{1,2},

Yoshitaka Nakano³, Masahito Niibe⁴

E-mail: kunimoto.kotaro@ee.tokushima-u.ac.jp

1. 背景と目的

近年, 様々な感染症のリスクが高まっている. この問題に対処すべく, 光照射のみで殺菌・抗菌作用を持つ半導体光触媒に着目した. 特に, ZnOは抗菌性を有し低コストである点が魅力的である. しかしながら, ZnOはバンドギャップ (3.2–3.4 eV) が大きく, 可視光照射下での反応性が低く直接遷移型のため再結合率が高いといった課題がある.

そこで炭素源として, 有機物であるキトサン (CS) とクエン酸 (CA) によるZnOへの炭素ドーピングに着目した. CS及びCAも同様に抗菌性を有し, CA添加によりCSの溶解性を高めることが期待できる.

本研究では, CS/CAのアニーリング (AN) によりZnOの可視光下での光触媒活性が増強するのか明らかにしたことを報告する. 特に, 光触媒活性が向上する有機物 (CS/CA) 混合割合を明らかにした.

2. 実験方法

純水20 mLにCSを0.25 g (W_{CS}), CAを0.25 g (W_{CA}) を入れ, 温度80 °Cで12時間攪拌させCSを溶解させた. その後, ZnOナノ粒子 ($W_{ZnO} = 0-1.17$ g) を入れ1時間攪拌させて, 混合液を作製した. その混合溶液5 mLを焼成ボートに移し, 温度60 °Cで15時間乾燥させた. この焼成ボートをアルミホイルで覆い, これを管状電気炉に置き, 1時間のアニーリング処理を行った. 有機物 (CS/CA) 混合割合 ($W_{CS} + W_{CA} / (W_{ZnO} + W_{CS} + W_{CA}) \times 100$) を0~90%で変化させた.

作製した試料の光触媒活性は殺菌と相関性のあるメチレンブルー (MB) 溶液の光分解により評価した. 光触媒光源は405 nm LEDを使った.

3. 結果と考察

Fig. 1(a)のように, CAと共にアニーリングした場合では光触媒活性の向上はほとんど見られなかった. 対照的にCSと共にアニーリングした場合では約1.5倍の光分解を示した. CS/CAと共にアニーリングした場合は約2倍にまで向上した. このことから, CAは光触媒活性の増強にあまり関与していないことが分かる. また, ZnOにCSのみを混合するのではなく, CSとCAの両方を混合するとより光触媒活性が増強することが分かった.

Fig. 1(b) のように, 作製した光触媒の光分解力は, CS/CA混合割合が70%まではその混合割合と共に増加した. しかしながら, さらに混合割合を増加させると, 光分解力は減少に転じた. 70%では, 未処理のZnOと比べ約3倍の光分解力を示した. この向上は, CS/CAからの炭素ドーピングにより光吸収端波長が赤方遷移し, 光励起キャリア密度が増加し, 生成されるラジカルが増えたためと考える.

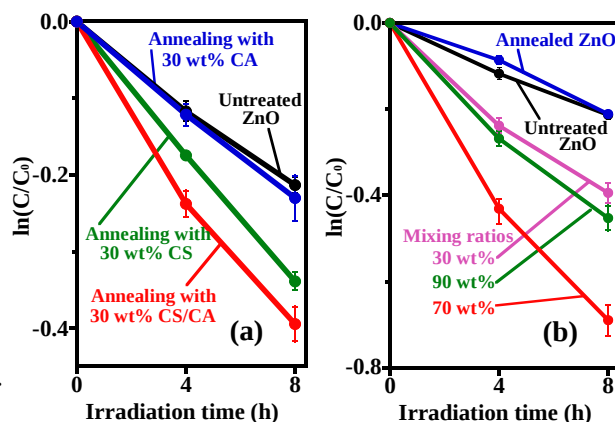


Fig. 1. (a) MB decomposition of 30% CA-annealed, 30% CS-annealed, 30% CS/CA-annealed ZnO nanoparticles. (b) MB decomposition of ZnO annealed 300 °C with various mixing ratios of CS/CA to ZnO.

大気下における蒸着重合を用いたロッド状 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ の作製と 光触媒への応用

Preparation of rod $g\text{-C}_3\text{N}_4$ using vapor deposition polymerization under atmospheric conditions and its application to photocatalysts

同志社大, 理工学研究科 ○(M1)菱木 裕基, 青木 瑞稀, 大谷 直毅

Doshisha Univ., Graduate School of Science and Engineering,

Yuki Hishiki, Mizuki Aoki, and Naoki Ohtani

E-mail: ctwk0306@mail4.doshisha.ac.jp

現在光触媒で最も研究が盛んである TiO_2 は太陽光の 3% 程度である 400nm 以下の光の波長しか吸収できないが、グラファイト状窒化炭素($g\text{-C}_3\text{N}_4$)は、450nm 以下の波長の光を吸収できることから[1,2]、注目が集まっている。またメラミンや尿素等の焼成という比較的安価な方法で製造できるという長所がある。

光触媒は表面で作用するため、表面積が大きければ光触媒活性が高いことが考えられる。そこでロッド状の $g\text{-C}_3\text{N}_4$ を作製することにより表面積を増加させ、光触媒活性の向上を図る。また、大気下で作製することによる作製コストの低下と作製手順の簡易化を図る。

本研究では加熱材料にメラミンを用い、試験管の底にメラミン粉末を敷き詰め、粉末から 1.5cm および 3cm の距離にガラス基板を設置する。そしてチューブ型電気炉を用いて加熱を行った。加熱温度は 510°C-550°C とし昇温速度は 1°C/m として作製を行った。Fig.1 は(a)焼成温度 510°C 試料からの距離 1.5cm(b)焼成温度 550°C 試料からの距離 3cm で作製したサンプルの SEM 画像を示す。焼成温度を上げることによって、ロッド構造が増加していることが分かる。Fig.2 は水溶液にサンプルを入れ、3 時間疑似太陽光で照射した時に水の分解で発生する水素量を表したグラフである。ロッドの密度が高い方が、水素量が多くなっていることがわかる。つまり表面積の増加による光触媒活性の向上があったと考えられる。

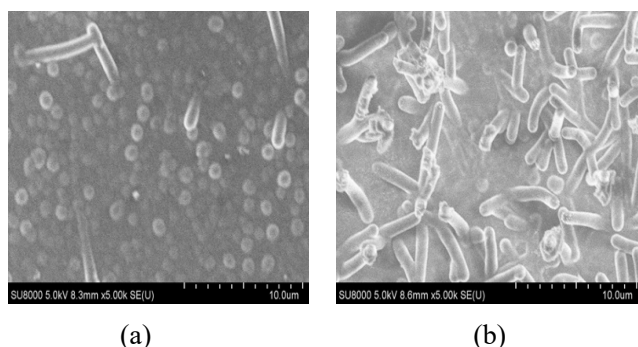


Fig.1 SEM images of $g\text{-C}_3\text{N}_4$

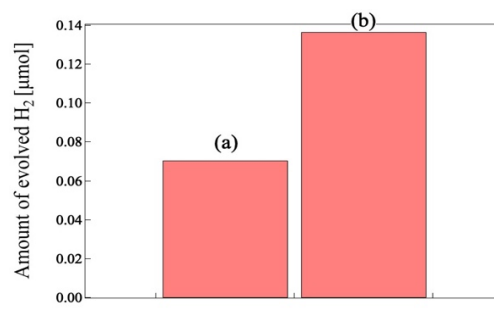


Fig.2 H_2 production amount of $g\text{-C}_3\text{N}_4$ samples after 3-hours irradiation.

[1] H. Habuchi et al, Diamond & Related Materials, **65**, 83 (2016).

[2] Y. Kurita et al, JJAP, **63**, 01SP30 (2024).

n 型層として TiO₂ 薄膜を用いたヘテロ接合 Cu₂O 薄膜太陽電池の光起電力特性

Photovoltaic properties of heterojunction Cu₂O thin film solar cells
with n-type TiO₂ thin films.

金沢工大 ○ (M2) 石田 竜也、(B) 神崎 凌馬、宮田 俊弘

KIT OEDS R&D Center.¹, Tatsuya Ishida¹, Ryoma Kanzaki and Toshihiro Miyata

E-mail: tmiyata@neptune.kanazawa-it.ac.jp

【はじめに】現在の太陽電池はシリコン系(Si)が主に実用化され、発電効率は単結晶型で約 22~23[%]程度が限界といわれており、単セルの太陽電池ではこれ以上の変換効率向上が困難である。そのため、本研究室では、変換効率をさらに向上させることを目的として、Si 太陽電池をボトムセルとし、その上に透過型 Cu₂O 太陽電池をトップセルとして組み合わせたタンデム型太陽電池を想定し研究を行っている[1]。

今回新規の n 型層として TiO₂ 薄膜を採用するトップセル用 FTO/n-TiO₂/p-Cu₂O/Au ヘテロ接合薄膜太陽電池を作製し、n-TiO₂ 及び p-Cu₂O 薄膜の各種形成条件と、光起電力との関係を詳細に検討したので報告する。

【実験方法】下部透明電極として F 添加 SnO₂ (FTO) 薄膜が形成された市販の透明電極付きガラス基板上に、n 型層として TiO₂ 薄膜を成膜電力:rf-100[W]、スパッタ時間:5~90[min]、スパッタガス圧:0.6[Pa]、スパッタガス:Ar の条件下で成膜し、その上に成膜電力 : rf-50[W]、スパッタ時間を 120~240[min]、スパッタガス圧 : 0.6Pa、スパッタガス:Ar+H₂ (H₂含有量 3%)の条件下で p-Cu₂O 薄膜の成膜を行った。また、作製した p-Cu₂O 薄膜上に Au を蒸着しヘテロ結合 Cu₂O 薄膜太陽電池を作製した。作製した TiO₂ 薄膜及び Cu₂O 薄膜の結晶学的特性は X 線回析 (XRD) 法を用いて評価を行った。Cu₂O 薄膜太陽電池の電気的特性及び光電変換特性は、太陽光シミュレータを用いて AM1.5G 照射下、素子温度室温にて評価した。

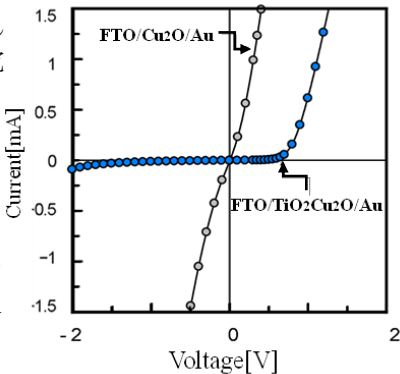


Fig1. I-V characteristics of thin film solar cells prepared with FTO/n-TiO₂/p-Cu₂O/Au and FTO/Cu₂O/Au

【結果・考察】一例として、Fig.1 に FTO/TiO₂/Cu₂O/Au 及び FTO/Cu₂O/Au 薄膜太陽電池の I-V 特性をそれぞれ示す。新たに n 型層に TiO₂ を使用したことにより FTO/Cu₂O/Au で作成したヘテロ結合太陽電池と比べ漏れ電流が大幅に抑えられ、I-V 特性が飛躍的に改善でき、解放電圧 0.28V、胆略電流 0.016mA、曲線因子 0.39、発電効率 0.22%の光起電力を実現することができた。また、Fig2 に TiO₂ 薄膜の膜厚を変化させて作製した、FTO/TiO₂/Cu₂O/Au 薄膜太陽電池の Voc、Isc、FF、及び η の TiO₂ 膜厚依存性を示す。同図に示すように、光起電力特性は、TiO₂ 膜厚に大きく依存し、TiO₂ 膜厚 225nm において最も優れた光起電力特性を実現できた。

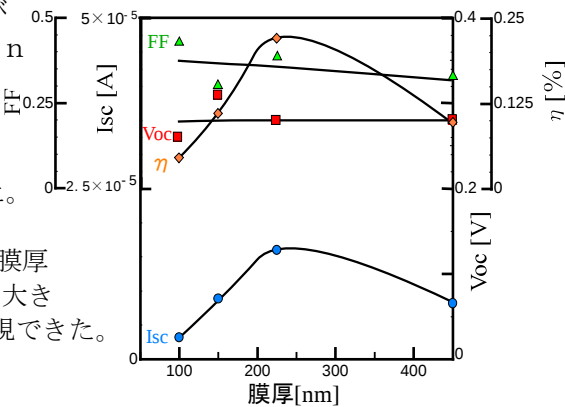


Fig2. Dependence of Voc, Isc, FF, and η on TiO₂ film thickness for FTO/TiO₂/Cu₂O/AZO thin film solar cells

[おわりに]新たに n 型層として TiO₂ を採用することで、Cu₂O 薄膜の結晶性を悪化させることなく、FTO/n-TiO₂/p-Cu₂O/Au ヘテロ接合太陽電池を作製できた。また、光起電力特性として解放電圧 0.28V、胆略電流 0.016[mA]、曲線因子 0.39、発電効率が 0.22%を実現することができた。

【参考文献】

[1] 石田竜也,他,第 84 回 応用物理学会秋季学術講演会,23p-A307-13,(2023)

Single-Atom Platinum Anchored Graphitic Carbon Nitride Nanosheets for Photoreforming Plastic to Hydrogen

Department of Chemical and Materials Engineering, Chang Gung Univ.¹

Center for Sustainability and Energy Technologies, Chang Gung Univ.²

°Yin-Hsuan Chang¹, Ciao-Yun Huang¹, Ting-Han Lin^{1,2}, Jia-Mao Chang¹, Ming-Chung Wu^{1,2*}

E-mail: mingchungwu@cgu.edu.tw

The development of photocatalysts is increasingly directed towards achieving high activity, stability, affordability, and non-toxicity. Solar-driven photoreforming of oxidized cellulose and plastics represents an innovative approach to converting biomass into hydrogen (H₂) fuel, supporting environmental sustainability by mitigating plastic pollution. In this study, bulk g-C₃N₄ was synthesized through thermal polymerization, and a 3-nm-thick g-C₃N₄ nanosheet (NS) was obtained via ultrasonic agitation. To boost photocatalytic performance, different weight percentages of Pt were deposited on g-C₃N₄ NS as cocatalysts. The 3.0 wt% Pt-loaded g-C₃N₄ NS demonstrated enhanced solar-driven activity attributed to the intramolecular synergistic effect. To establish photocatalytic performance, a variety of polymers were tested for photoreforming over C₃N₄-Pt. Photoreforming of PET, PVC, PMMA, PP, and PS were first evaluated on a sealed photocatalysis system equipped with Xe lamp. After 12 hours, PET photoreforming showed the highest hydrogen production of 533.18 μmol g⁻¹ h⁻¹. This can be attributed to the fact that the ester bonds in the PET polymer chain is easy to break under alkaline conditions, and resulting in the formation of terephthalic acid (TPA) and ethylene glycol (EG). Hydrolysis of PVC and PMMA using NaOH is not as straightforward as the hydrolysis of PET. The chemical structure of PVC and PMMA makes it resistant to hydrolysis under normal conditions because it does not contain the ester functional groups that are susceptible to hydrolysis reactions. However, under certain conditions, such as high temperatures and the presence of a strong base. PMMA's polymer backbone is made up of carbon-carbon bonds, which are resistant to hydrolysis under normal conditions. The ester groups in PMMA are pendant to the main chain and are sterically hindered, making them less reactive towards hydrolysis, especially in comparison to PET. For PP and PS, C-C bond is stable and not susceptible to breaking down in the presence of NaOH under normal conditions. The significant hydrogen production observed in PET photoreforming underscores the effectiveness of this approach.

液体ターゲットを用いたスパッタ法による酸化ガリウム薄膜の形成 Gallium oxide thin film preparation by sputtering using liquid target

山口大院・創成科学¹ (株)TAK 薄膜デバイス研究所²

○ 小柳 剛¹, 山田直樹¹, 藤井 隆満²

Yamaguchi Univ.¹, TAK Thin Film Device Lab.Inc.²

○ Tsuyoshi Koyanagi¹, Naoki Yamada¹, Takamichi Fujii²

E-mail: koyanagi@yamaguchi-u.ac.jp

諸言

Ga₂O₃ はパワー半導体用の材料として研究が進められている. その薄膜作製には主にミスト CVD 法¹⁾により行われているが, スパッタ法による薄膜作製も試みられている²⁾. 我々は rf スパッタ法により Ga₂O₃ 薄膜の作製を試みている³⁾. 本研究では, Ga の液体ターゲットを用いて, rf スパッタ法により薄膜の作製を行った結果について報告する.

実験

Ga₂O₃ 薄膜の作製は, 液体Gaを用い, Ar+O₂ 混合ガスを用いて rf スパッタ法により行った. 基板にはサファイアを用い, 基板温度は無加熱から850度 (ヒーター設定値) とした.

結果と考察

図1に成膜中の酸素濃度と成膜速度の関係を示す. 酸素濃度を上げていくと成膜速度は低下する傾向となった. これは液体Gaの表面が酸化され, オキサイドモードになっていると考えられる. 図2には50%O₂で成膜したサファイア基板上に基板温度を変化させて作製した Ga₂O₃ 薄膜のX線回析パターンを示す. 基板温度を上げるにつれて, β-Ga₂O₃の(201)とその高次のピークが見られ, ピークがシャープになっている. 図3に基板温度850度で形成した膜のΦ スキャンを示す. これはβ-Ga₂O₃がサファイア基板上にエピタキシャル成長していることを示している. 以上のように, 液体Gaをターゲットにして反応性スパッタすることにより, β-Ga₂O₃ 薄膜をサファイア基板上にエピタキシャル成長することができた. スパッタ法は汎用性が高いため応用展開が期待される.

謝辞: 本研究において実用化を考慮したスパッタ法/装置に関するアドバイスをいただきました株式会社神港精機の皆様に深く感謝いたします.

1) D. Shinohara *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47** (2008), 7311.

2) A. K. Saikumar *et al.*, *ECS J. Solid State Sci. Tech.*, **8** (2019), Q3064.

3) 蜂谷他2022年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会, Ep-8.

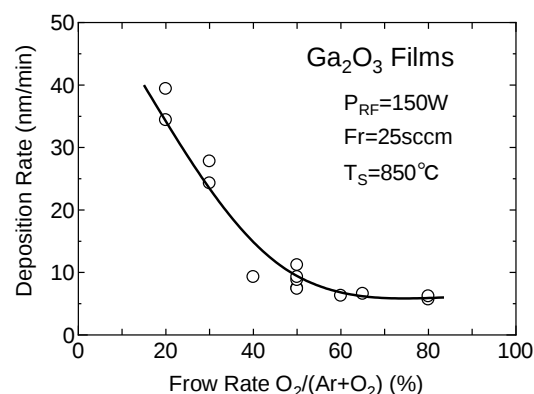


Fig1. Oxygen gas flow rate vs deposition rate.

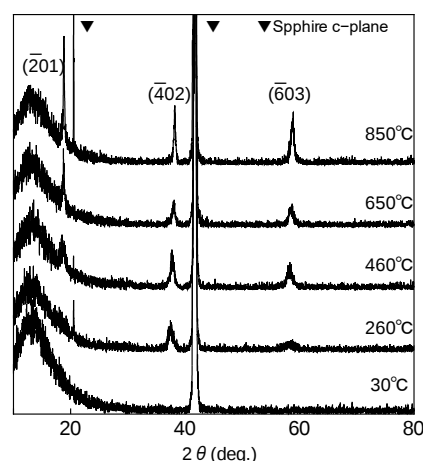


Fig2. X-ray diffraction patterns.

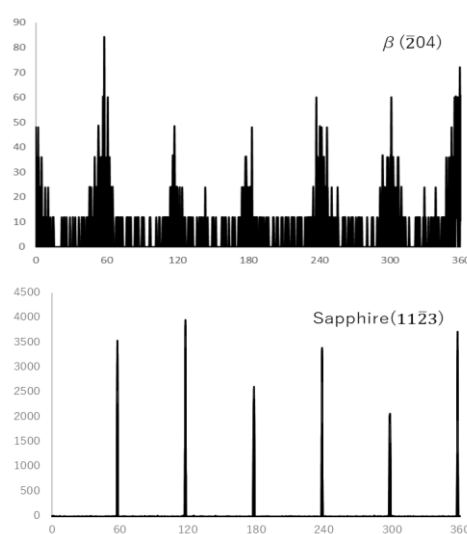


Fig3. XRD Φ-scan of (204) peak of Ga₂O₃ film.