

京都大学	博士（工学）	氏名	若松 岳
論文題目	Study on Preparation, Characterization and Device Application of α -Ga ₂ O ₃ Thin Film (α -Ga ₂ O ₃ 薄膜の作製, 特性評価, デバイス応用に関する研究)		
(論文内容の要旨)			
本論文は、パワーデバイスや高周波デバイスへの応用が期待されるワイドバンドギャップ（WBG）半導体の一種である α-Ga₂O₃ のエピタキシャル薄膜を合成し、基礎的な電気伝導特性を調べ、デバイスへの応用を試みた結果をまとめたものであり、7 章からなっている。 第 1 章は序章であり、パワーデバイスや高周波デバイスが求められている背景について述べるとともに、WBG 半導体がこの種のデバイスとして優れている理由をバリガ性能指数の概念に基づいて説明している。なかでも Ga₂O₃ が大きなバンドギャップを持つ WBG 半導体であることを指摘し、特に、一連の Ga₂O₃ の多形のなかでも熱力学的に安定な β-Ga₂O₃ ではなく準安定でコランダム型構造をとる α-Ga₂O₃ に着目した理由として、この物質が 5.5 eV 程度のきわめて大きなバンドギャップを有すること、薄膜成長に汎用的なサファイア基板を利用できること、他のコランダム型酸化物との混晶化によるバンドギャップの制御が可能であることを挙げている。また、α-Ga₂O₃ のエピタキシャル薄膜を作製するうえで効果的なミスト化学気相成長法（ミスト CVD 法）の原理を説明するとともに、α-Ga₂O₃ 薄膜のデバイス応用を考えるうえで克服すべき課題として、制御可能なキャリア密度の範囲が狭い、電子移動度が低い、デバイス特性が不十分であるといった点を指摘している。 第 2 章では、ミスト CVD プロセスにおける原料溶液に含まれる酸の種類と濃度ならびに薄膜の成長温度が、生成する Ga₂O₃ 相に及ぼす影響を調べている。酸として HNO₃ を用いると α-Ga₂O₃ 薄膜の成長がきわめて遅く、β-Ga₂O₃ が混在するのに対し、HCl を用いると広い合成条件下で α-Ga₂O₃ が単相でサファイア基板上にエピタキシャル成長した薄膜が得られることを明らかにし、また、HCl を用いたときに条件によっては κ-Ga₂O₃ が生じるが、HCl 濃度を上げれば高温でも κ-Ga₂O₃ 相を抑制できること、薄膜の成長速度が最大となる最適の HCl 濃度が存在することを見いだしている。さらに、原子間力顕微鏡観察に基づき、HCl 濃度と成長温度が高くなるほど薄膜の表面粗さが減少することを明らかにしている。以上のことから、原料溶液中の塩化物イオンの存在が良質の α-Ga₂O₃ 薄膜を得るうえで効果的であることを指摘している。 第 3 章では、第 2 章で用いた HCl と同様のハロゲン化水素酸である HBr の利用が良質の α-Ga₂O₃ 薄膜を作製するうえで有効であることを明らかにするとともに、n 型ドーパントとして Ge を選択し、半導体としての特性の向上に効果的な Ge の原料を検討している。その結果、有機ゲルマニウム化合物の一種である (GeOCH₂CH₂COOH)₂O が、制御可能なキャリア密度の範囲を広げ、電子移動度を高めるうえで優れた原料であることを見いだしている。室温での Hall 効果測定の結果から、制御可能なキャリア密度の範囲が $8.2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3} \sim 1.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ であり、最大の電子移動度が $66 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ となることを明らかにしている。また、2 次イオン質量分析法（SIMS）に基づいて薄膜の深さ方向に対する元素分析を行い、α-Ga₂O₃ 薄膜の表面から基板との界面まで Ge が均質に分布しており、SIMS から得られる Ge 濃度と Hall 効果測定から見積もられるキャリア密度がよい相関を示すことを見いだしている。			

京都大学	博士（工学）	氏名	若松 岳
第4章では、ミスト CVD 法における α-Ga₂O₃ の成膜条件をさらに検討し、半導体特性のさらなる向上を目指すとともに、電気伝導機構について考察している。特に主な電子散乱因子となりうる転位の状態について調べている。第3章で用いた合成条件に対し、成膜速度を下げ、成長温度を上げることにより、Ge ドープ α-Ga₂O₃ 薄膜におけるキャリア密度の下限を $6.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ まで低減するとともに、電子移動度を $99 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ まで上昇させることに成功している。また、2 種類の Ge ドープ α-Ga₂O₃ 薄膜（室温でのキャリア密度が $1.7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ で電子移動度が $89 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ の試料 1 と、これらが $5.8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$、$99 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ の試料 2）に対して温度を変えながら Hall 効果測定を行い、電子移動度の温度依存性の解析から電子散乱因子を検討し、高温ではいずれの試料でも光学フォノンが主な散乱因子になるのに対し、低温では試料 1 では転位散乱が、試料 2 ではイオン化不純物散乱が支配的となることを明らかにしている。さらに X 線回折に基づき転位の状態を解析し、Ge のドープ量に依らず転位密度は $1.7 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ 程度となることを見いだすとともに、この値が電子移動度の温度依存性から見積もられる値とよく一致することを明らかにしている。 第5章では Ge ドープ α-Ga₂O₃ 薄膜を用いて金属－半導体電界効果トランジスタ（MESFET）を試作し、チャネル層の基礎的な電気物性を見積もるとともにデバイス特性を評価している。Hall 効果測定からチャネル層のキャリア密度と電子移動度はそれぞれ $2.1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ならびに $44 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であること、静電容量と電圧の関係の解析から薄膜表面から 120 nm の深さまでの実効的なドナー密度が $2.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ であることを見だし、ドナー密度は Hall 効果測定から得られるキャリア密度の値とよく一致することを確認している。さらに、本研究で作製した MESFET は、ドレイン電流の最大値が 24 mA/mm、整流比が 10^9、オン抵抗が $587 \Omega \text{ mm}$ であり、これらの物理量の観点から、これまでに報告されている Si ドープあるいは Sn ドープの α-Ga₂O₃ 薄膜を用いた MESFET あるいは MOSFET（金属酸化膜半導体電界効果トランジスタ）と比較して優れた特性を有することを明らかにしている。 第6章では、Ge ドープ α-Ga₂O₃ 薄膜を用いてショットキーバリアダイオード（SBD）を作製し、マイクロ波を直流に変換するデバイスであるレクテナに応用することを試みている。低いオン抵抗と低い静電容量が高い変換効率に求められることから、アノード径を $4 \mu\text{m}$ まで小さくした複数の SBD を作製し、それらが整流作用を示すことを確認したのち、16 個の SBD からなるレクテナを作製して、まず、1 MHz の交流を入力したときの全波整流回路の動作を確認している。その後、2.45 GHz のマイクロ波を用いた測定を行い、直流への変換を実現するとともに、入力が 1.7 W の際の変換効率が 13.9%となることを明らかにしている。 第7章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、ワイドバンドギャップ半導体の一種である $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ に着目し、ミスト化学気相成長法(ミスト CVD 法)を用いた薄膜の作製条件の検討、Ge ドープ $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 薄膜の電気伝導特性の評価、金属-半導体電界効果トランジスタ(MESFET)やレクテナなどのデバイスの試作を行ったものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. ミスト CVD プロセスにおいて、原料溶液の種類が薄膜成長に及ぼす影響を調べ、塩化物イオンや臭化物イオンの存在が、準安定相である $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の安定化に効果的であることを見いだした。特に塩化物イオンを含む系では、 $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ が単相で生成し、かつ、表面粗さが低減されたエピタキシャル薄膜が成長する条件を明らかにした。

2. $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 薄膜の Ge による n 型ドーピングにおいて、キャリア密度を広い範囲で制御し、高い電子移動度を実現するうえで、Ge の原料として有機ゲルマニウム化合物の一種である $(\text{GeOCH}_2\text{CH}_2\text{COOH})_2\text{O}$ が効果的であることを見だし、キャリア密度を $6.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ から $1.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の比較的広い範囲で制御できることを示した。また、室温での電子移動度が $99 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ に達する $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 薄膜の作製に成功した。これは、これまでに得られている $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 薄膜の移動度として最高の値である。さらに、電子移動度の温度依存性を解析し、高温では光学フォノンが主な電子散乱因子であり、低温ではドーパント量に依存して転位とイオン化不純物が主として伝導電子の散乱中心となることを明らかにした。

3. Ge ドープ $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 薄膜を用いて MESFET を試作し、最大のドレイン電流として 24 mA/mm 、整流比として 10^9 、オン抵抗として $587 \text{ } \Omega \text{ mm}$ の値を得た。これらはいずれも、これまでに報告されている Si あるいは Sn をドーパントとした $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 薄膜からなる MESFET あるいは MOSFET (金属酸化膜半導体電界効果トランジスタ) を凌ぐ特性である。さらに、アノード径を $4 \text{ } \mu\text{m}$ まで小さくしたショットキーバリアダイオード(SBD)を作製し、これらが良好な整流作用を示すことを実証するとともに、16 個の SBD から構成されるレクテナを試作して、 2.4 GHz のマイクロ波を直流へ変換することに成功した。

以上、本論文では、ミスト CVD 法に用いる原料溶液に含まれる化学種を検討することにより、高い電子移動度を有する Ge ドープ $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ エピタキシャル薄膜の作製に成功し、電気伝導機構にかかわる電子の散乱因子を特定するとともに、MESFET やレクテナなどのデバイスも作製し、それらのトランジスタ特性やマイクロ波特性を明らかにしており、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、令和 8 年 2 月 19 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。

なお、本論文は、京都大学学位規程第 14 条第 2 項に該当するものと判断し、公表に際しては、当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。