

多様な安定相の熱的安定性: $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$ を例に

Thermal Stability of Diverse Stable Phases: $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$ as an Example

京大院工¹, 和歌山大システム工² °神野 莉衣奈¹, 宇野 和行², 金子 健太郎¹, 藤田 静雄¹

Kyoto Univ.¹, Wakayama Univ.², °Riena Jinno¹, Kazuyuki Uno², Kentaro Kaneko¹, Shizuo Fujita¹

E-mail: jinno.riena.68a@st.kyoto-u.ac.jp; fujitasz@kuee.kyoto-u.ac.jp

酸化物は多様な安定相を持つ代表的な物質である。例えば酸化ガリウム (Ga_2O_3) は、 α 、 β 、 γ 、 σ 、 ε と表記される相を持ち、ミスト CVD 法を用いて α 相/サファイア[1,2]、 β 相/YSZ[3]、 γ 相/スピネル[4]、 ε 相/ AlN [5,6]など、基板の結晶構造に引き込まれて多様な安定相の Ga_2O_3 および $(\text{Al,Ga})_2\text{O}_3$ が成長することが報告されている。興味あることは、ミスト CVD 法を用いると、基板の結晶形をフォローして、最安定相ではない多様な安定相の材料が得られやすいことである。

ミスト CVD 法による Ga_2O_3 の成長では、原料水溶液をアセチルアセトナート化することで、Fig.1 のように基板表面でのエノール化を経て表面水酸基が形成され、脱水して固相が得られるという成長モデルが考えられる。これは同位体水を使った成長や錯化制御した水溶液による成長によって実験的に説明できる[7]。このことはミスト CVD 法が水溶液の配位子制御による表面反応制御性があり、多様な安定相の実現に有効な手法であることを意味している。

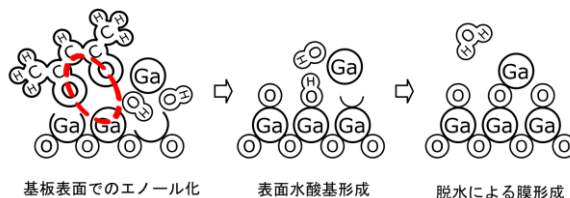


Fig1: Growth mechanism of Ga_2O_3 in the mist-CVD system.

本講演では、「安定相の熱安定性」について

議論したい。 Ga_2O_3 において、最安定相 (β 相) ではない準安定相 (α 相) では、熱処理により最安定相に移るが、Fig.2 のようにこれは基板の効果が少ない表面から生じている。膜厚依存性から、歪が安定相を保つ条件であることがわかった。多元系 α 相 $(\text{Al,Ga})_2\text{O}_3$ では、Al 組成が小さいと最安定相が β 相であることから、熱処理により β 相に相転移する。一方、Al 組成が大きいと最安定相が α 相であるにもかかわらず、熱処理すると α 相からの構造変化が見られた。これは、多元系であるために局所的に α 相からずれる要素 (β 相 Ga_2O_3 が安定なこと) が内包されているためと考えられる。実際、 α 相の Al_2O_3 は、熱処理によっても α 相を保つ。多様な安定相でも熱的には安定ではなく、また最安定相であっても、多元系では熱的に安定でない要素をもとに構造変化が生じる。このような構造変化の要因を、今後明らかにして多様な安定相の実用化につなげる必要がある。

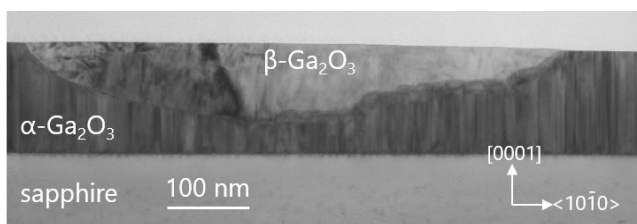


Fig. 2: Cross sectional TEM image of an α - Ga_2O_3 /sapphire sample after annealing at 670 °C, resulting in phase change to β from the surface.

[1] D. Shinohara et al., JJAP 47, 7311 (2008).

[2] G. Dang et al., APL 113, 062102 (2018).

[3] K. Kaneko et al., PSSC 10, 1596 (2013).

[4] T. Oshima et al., JCG 359, 60 (2012).

[6] D. Tahara et al., APL 112, 152102 (2018).

[5] D. Tahara et al., JJAP 56, 078004 (2017).

[7] 宇野他、本講演会合同 K.