

## 高品質ルチル型 GeO<sub>2</sub> 薄膜の結晶成長および構造解析

### Crystal growth of high-quality rutile GeO<sub>2</sub> thin film and its structural analysis

京大院工<sup>1</sup>, (株)FLOSFIA<sup>2</sup> ◯(M2)高根 倫史<sup>1</sup>, 柳生 慎悟<sup>2</sup>, 四戸 孝<sup>2</sup>, 金子 健太郎<sup>1</sup>

Kyoto Univ.<sup>1</sup>, FLOSFIA Inc.<sup>2</sup>, ◯Hitoshi Takane<sup>1</sup>, Shingo Yagyu<sup>2</sup>, Takashi Shinohe<sup>2</sup>, Kentaro Kaneko<sup>1</sup>

E-mail: takane.hitoshi.33v@st.kyoto-u.ac.jp

近年、酸化ガリウム (Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 等の超ワイドバンドギャップ (UWBG) 半導体が、高耐圧かつ低オン抵抗を両立する次世代のパワーデバイス材料として大きな注目を集めている[1,2]。一方で、酸化物の UWBG 半導体は p 型伝導が困難であることが知られ、バイポーラ素子等への応用において大きな障害となっている。そんな中、現在、4.68 eV [3]のバンドギャップを持つルチル型酸化ゲルマニウム (r-GeO<sub>2</sub>) が p, n 両型伝導可能であること[4]、高い熱伝導率を有すること[5]からパワーデバイス応用に適した材料として提案されている。しかし、深い準安定相である石英型、アモルファスの存在から、r-GeO<sub>2</sub> の成膜は極めて困難であり、唯一の r-GeO<sub>2</sub> 薄膜成長に関する報告は、限られた条件下かつ低成長レート (10 nm/h) のものであり[6]、さらなる研究が必要不可欠である。

本研究では、前駆体である 2-カルボキシエチルゲルマニウムセスキオキシド(C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>Ge<sub>2</sub>O<sub>7</sub>)の熱重量・示差熱測定 (TG-DTA) による成長条件決定の後、ミスト化学気相成長 (CVD) 法を用いたルチル型 TiO<sub>2</sub> 基板上への r-GeO<sub>2</sub> 薄膜成長を行った。TG-DTA より、550°C以上の温度領域にて、C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>Ge<sub>2</sub>O<sub>7</sub> から GeO<sub>2</sub> が生成することが確認された。図 1 に 675-800 °Cで成長した薄膜の XRD 2θ/ω スキャンプロファイルを示す。成長温度 700-775 °Cにおいて、(001) 配向の r-GeO<sub>2</sub> 薄膜の成長が確認された。ロックン グカーブ半値幅は 900-1500 arcsec 程度であった。また、XRD {220} φ スキャンにおいて、r-TiO<sub>2</sub> 基板と同一の 2 回対称ピークに加え、90°回転した位置にピークが出現したことから、90°の回転ドメインが存在することが示唆される。各成長温度における成長レートは 1.2-1.7 μm/h であり、先行研究 (10 nm/h) [6] に比べ非常に高い値が得られた。また、700-775°Cの成長温度領域において、反応律速過程の変化が見られた。さらに、結晶性向上を目的として、成長レートを落とした条件下 (50 nm/h)での成長により半値幅 560 arcsec を示す比較的高い結晶性の r-GeO<sub>2</sub> 薄膜が得られ、TEM 観察における電子線回折パターンにて TiO<sub>2</sub> 基板および r-GeO<sub>2</sub> 薄膜のピークが確認された。

本研究の一部は、JSPS 科研費 21H01811、および内閣府総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)「IoE 社会のエネルギーシステム」(管理法人: JST)の助成を受けたものである。

[1] M. Higashiwaki et al., APL **100**, 013504 (2012). [2] M. Oda et al., APEX **9**, 021101 (2016).

[3] M. Stapelbroek et al., Solid State Commun. **25**, 959 (1978). [4] S. Chae et al., APL **114**, 102104 (2019).

[5] S. Chae et al., APL **117**, 102106 (2020). [6] S. Chae et al., APL **117**, 072105 (2020).

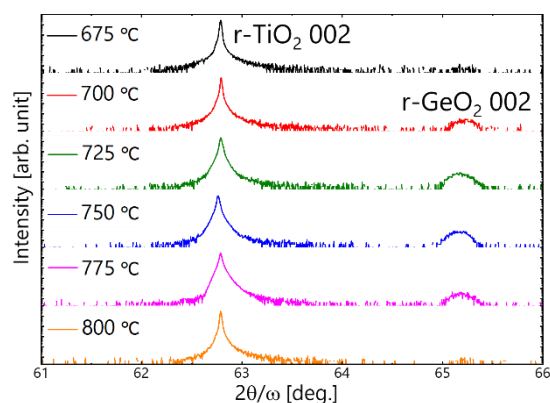


Fig. 1 XRD 2θ/ω scan profile of the films grown at fixed source concentration of 0.025 mol/L and temperature range of 675-800 °C.