Preparation of GaN by alkoxide process using $\text{Ga}(\text{i-OC}_3\text{H}_7)_3$ as raw material

$\text{Ga}(\text{i-OC}_3\text{H}_7)_3$ を出発原料に用いたアルコキシド法による窒化ガリウムの合成

Tomomi NAGAO, Yoichi ISHIMOTO and Jun-ichi MATSUSHITA

Department of Applied Chemistry, School of Engineering, Tokai University

1117 Kitakaname, Hiratsuka 259-1292, Japan

TEL: 81-463-58-1211(ext.4186), FAX: 81-463-50-2012

(Received 15, November 1999 Accepted 2, March 2000)

The Group-III nitrides have attracted much attention for applications of blue light emitters and high temperature electronic devices. The synthesis of single-phase gallium nitride (GaN) powder has been achieved by reacting gallium oxide or gallium triisopropoxide with ammonia (NH_3) flowing in a hot wall tube furnace.

Keywords: Gallium nitride, Alkoxide

I. INTRODUCTION

GaN 系半導体による高輝度青色系発光素子が開発されて以来、GaN の結晶成長技術が急速に進歩し、これにより室温連続発振レーザーも開発されている。さらに、GaN 系半導体は、ワイドバンドギャップ半導体として非常に魅力的な物性値をもち、電子デバイスとして重要な材料である。¹

21 世紀に向けて省エネルギー対策が重要な問題になっている。そして省電力化のひとつの対策として、電力変換に伴う損失のさらなる低減が要求される。ワイドバンドギャップ半導体には、GaN、AlN などの III-V 族窒化物半導体、そして IV 族半導体材料として SiC、ダイヤモンドなどがある。これらの材料はバンドギャップが大きいだけでなく、原子間の結合距離が小さく、結合エネルギーが大きいため、融点が高く、熱化学的に安定であり、ハードエレクトロニクス材料とも呼ばれ、青～紫色の短波長レーザーや大電力超高電圧パワーエレクトロニクスデバイスなどへの応用が可能である。そしてデータの記録密度を桁違いに増加させ、電力変換と輸送の高効率そして低損失化を通して、エネルギー供給と環境問題の解決に貢献でき、かつ、先進的パワーエレクトロニクスシステムが構築可能である。耐熱、耐振動の大出力高周波トランジスタが実現すると、日用家電からモバイル・マルチメディア通信まで、さまざまな分野での応用が可能となる。また、GaN は全く無害な元素からできており、地球環境に優しいことも大きな魅力である。

そこで本研究では、スパッタ用ターゲット材料として、従来高価であった GaN 粉末を安価に合成することを目的として、① 出発原料として 3 酸化 2 ガリウム (Ga_2O_3) を用いる方法 (酸化物法) および ② 出発原料にガリウムトリイソプロポキシド ($\text{Ga}(\text{i-OC}_3\text{H}_7)_3$) を用いる方法 (アルコキシド法) の 2 種類により検討を行った。

II. EXPERIMENTAL

Figure 1 に、本研究で用いた合成装置図を示す。マスフローコントローラーを用いて制御したアンモニアガスまたは窒素ガスを、電気炉に設置された石英反応管内に導入し、原料と反応させる装置である。過剰のアンモニアガスは、反応管から接続されている硝酸バブラーにて吸収される。

FIG.1. Apparatus for synthesis of GaN powder.

Figure 2 に、本研究で用いた酸化物法とアルコキシド法による GaN の合成手順を示す。原料には、 Ga_2O_3 (フルウチ化学製)、 $\text{Ga}(\text{i-OC}_3\text{H}_7)_3$ (トリケミカル研究所製)、アンモニアガス (昭和電工製)、窒素ガス (日本酸素製) を用いた。試料を設置した石英反応管を、窒素気流下、473 K、0.5 h 乾燥後、アンモニアガスに切りかえ、所定の温度にて 1 h 熱処理を行った。熱処理温度は 100 K おきに、773~1273 K の温度とした。原料に $\text{Ga}(\text{i-OC}_3\text{H}_7)_3$ を用いた場合は、アルコキシド基の熱分解が 723~773 K の温度で起こるため、773 K にて 1 h 保持し、熱分解して残留している炭素を炭化

FIG.2. Schematic diagram of preparation for GaN.

水素に転化させ、反応系外に放出する手順を用いた。原料に Ga_2O_3 を用いた場合は、所定の温度にて 1 h 熱処理を行った。どちらの原料を用いた場合についても、所定の時間の熱処理終了後は、473 K までアンモニア気流下にて放冷後、ふたたび窒素に切りかえ、室温まで放冷して生成物の取り出しを行った。

III. RESULTS AND DISCUSSION

Figure 3 および 4 に、それぞれ酸化物法およびアルコキシド法により合成した生成物の X 線回折分析法による結晶相の同定結果を示す。どちらの場合も、1073 K から窒化が始まり、1173 K では酸化物のピークは消滅した。得られた生成物は、1173 K 以上の温度で熱処理した試料では淡黄色粉末であったが、それ以外の温度で熱処理した試料では白色粉末であった。アルコキシド法では、873 K 以下の温度での熱処理では、XRD パターンがアモルファスであることを示した。1273 K 熱処理試料においては、酸化物法とアルコキシド法いずれの場合も、GaN 単相を示した。

IV. CONCLUSION

酸化物法およびアルコキシド法いずれの方法においても、熱処理温度 1173 K で GaN 単相を示し、従来の酸化物法と

FIG.3. X-ray diffraction patterns of GaN synthesized by using reaction of Ga_2O_3 and NH_3 .

A : 773 K, B : 873 K, C : 973 K, D : 1073 K, E : 1173 K, F : 1273 K

FIG.4. X-ray diffraction patterns of GaN synthesized by using reaction of $\text{Ga}(\text{i-OC}_3\text{H}_7)_3$ and NH_3 .

A : 973 K, B : 1073 K, C : 1173 K, D : 1273 K

同様に、今回初めて $\text{Ga}(\text{i-OC}_3\text{H}_7)_3$ を用いて GaN の合成が可能であることが明らかになった。

REFERENCE

- ¹ C. M. Balkas, C. Basceri and R. F. Davis, Powder Diffraction, 10, 266 (1995).

Presented at '99 SAS Intelligent Symposium