

H₂-O₂ 触媒反応生成高エネルギーH₂O を用いて堆積した ZnO 薄膜の結晶構造

Crystalline structure of a ZnO film grown on a-plane sapphire substrate using high-energy H₂O generated by a catalytic reaction

長岡技科大工 [○]山口 直也, 竹内 智彦, 永富 瑛智, 玉山 泰宏, 安井 寛治
Nagaoka Univ. Technol., [○]N. Yamaguchi, T. Takeuchi, E. Nagatomi, Y. Tamayama, K. Yasui*
*E-mail: kyasui@vos. nagaokaut.ac.jp

1. はじめに

分子線エピタキシー(MBE)法やパルスレーザ堆積(PLD)法によって半導体特性を有する高品質な ZnO エピタキシャル膜の成長について多数報告されている[1-8]。将来の電子デバイスへの実用化を見据えたとき、装置構造が単純で大面積基板への適用が容易な CVD 法による高品質結晶膜の成長法が望まれるが、一般的に MBE 法や PLD 法に比べその結晶品質は低い。我々は、白金(Pt)ナノ粒子表面での水素と酸素の燃焼反応により生成した高エネルギーH₂Oと有機金属ガスを気相中で反応させ生成した ZnO プリカーサを基板に供給する方法を考案し、A 面サファイア基板上にエピタキシャル膜の成長を試みた結果、室温で約 190 cm²/Vs の大きな Hall 移動度を示す薄膜を得た。今回この a 面サファイア基板上に成長した ZnO 膜の結晶構造について断面 TEM 観察を行ったので報告する。

2. 実験方法

作製方法はこれまで報告したものと同じで CVD 装置内にジルコニア粒子の表面に Pt ナノ粒子を担持させた白金担持触媒を充填した触媒反応容器を設置し、水素(99.9999%)及び酸素ガス(99.9995%)を供給し、触媒表面で反応させ、高エネルギー水分子を生成した。この高温水分子を真空チャンバー内にガス噴出ノズルから噴出させ、亜鉛原料の DMZn と気相中で反応させ、高エネルギー ZnO プリカーサを生成し基板に供給した。成長時の基板温度は 500°C で a 面サファイア基板上にバッファ層の挿入をせず直接成長させた。堆積時間は 60 min で得られた膜は n 型である。観察したサンプルの膜厚は約 4.5μm、室温での Hall 移動度 187 cm²/Vs、電子濃度 2.5×10^{17} cm⁻³ である。断面 TEM 観察には転位、結晶粒界を評価し易くするため FIB を用いて 100~200nm とやや厚く加工し、サファイアの c 軸に沿って観察した。

3. 結果と考察

Fig. 1 に得られた ZnO 膜の断面 TEM 像を示す。加工厚さの揺らぎによる干渉でコントラストが見られ分かり難いが、転位線は観察されるものの ZnO 膜中に明らかな結晶粒界は確認されなかった。また回折像よりサファイア基板と ZnO エピタキシャル膜の結晶方位の関係は、 $[11\bar{2}0]\text{ZnO}/[0001]\text{Al}_2\text{O}_3$, $[1\bar{1}00]\text{ZnO}/[1\bar{1}00]\text{Al}_2\text{O}_3$ であった。Ham の方法により転位密度を求めたところ、膜表面近傍に比べ基板・エピ膜界面近傍の方が高密度に観察された。基板・エピ膜界面近傍の転位密度は、らせん転位: 約 2.7×10^8 cm⁻²、混合転位: 約 3.0×10^8 cm⁻²であった。刃状転位密度は当日報告する。

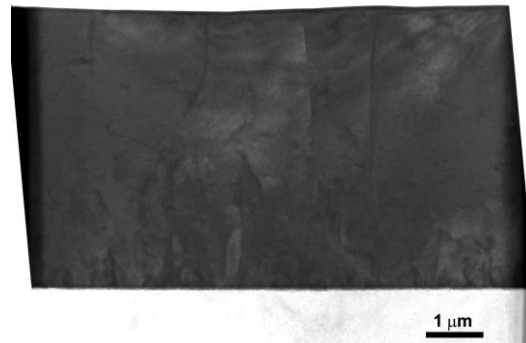


Fig. 1 Cress sectional TEM image of a ZnO film grown on an A-plane sapphire substrate

謝辞

本研究の一部は(独)日本学術振興会科学研究費基盤研究(No. 24360014)の助成を受けて行われた。

参考文献

1. M. Sano et al., J. Appl. Phys., 42 (2003) L1050
2. H. Tampo et al, Appl. Phys. Lett. 84 (2004) 4412.
3. K. Miyamoto et al, J. Cryst. Growth 265 (2004) 34.
4. A. Ohtomo et al, J. Cryst. Growth 214/215 (2000) 284.
5. E. M. Kaidashev et al.: Appl. Phys. Lett. 82 (2003) 3901.
6. A. Ohtomo et al, Semicond. Sci. Technol. 20 (2005) S1.
7. J. Dai et al, Appl. Phys. A 89 (2007) 645.
8. J. Dai et al, J. Cryst. Growth 290 (2006) 426