

ハライド気相成長法による ZnO 薄膜成長の酸素源の検討

Study of oxygen source of ZnO thin film grown by halide vapor phase epitaxy

東京農工大院工¹, 東京エレクトロン (株)²○神崎 直人¹, 伊佐 雄太¹, 康 松潤², 富樫 理恵¹, 村上 尚¹,熊谷 義直¹, 柏木 勇作², 額 明伯¹Dept. of Appl. Chemistry, Tokyo Univ. of Agri. and Tech.¹, Tokyo Electron Ltd.²,○Naoto Kanzaki¹, Yuta Isa¹, Song-Yun Kang², Rie Togashi¹, Hisashi Murakami¹,Yoshinao Kumagai¹, Yusaku Kashiwagi², Akinori Koukitu¹

E-mail: 50013642107@st.tuat.ac.jp

背景 ZnO の気相成長では、含 Zn ガス種の付着係数が問題となり成長温度の上限が制限を受けるケースがあった。我々のグループは、Zn 源に塩化物 (ZnCl_2)、O 源に水 (H_2O) を用いるハライド気相成長 (HVPE) 法でこの問題を解決し、例の無かった 1000°C 以上での ZnO 成長を実現している[1]。特に、初期基板に水熱合成 ZnO(0001)パルク基板を用いたホモエピタキシャル成長では、高さ $c/2$ のステップと基板オフ角で決まるテラス幅から構成される原子レベルで平坦な成長表面が得られることも確認され、ステップフロー成長を確認した[2]。一方、酸素源として用いている H_2O はその供給分圧確保が比較的困難であった。そこで今回、酸素源として H_2O に代わり O_2 ガスを用いることを試み、 H_2O を用いた HVPE 成長同様に ZnO の HVPE 成長が可能かどうか検討したので報告する。

実験及び結果 石英製の大気圧 HVPE 成長炉の上流部に設置した高純度 Zn 金属 (7N グレード) 上に Cl_2 ガスを導入して ZnCl_2 ガスを生成した[1]。窒素キャリアガスで ZnCl_2 を下流 (成長) 部へ輸送し、別途導入した O_2 ガスと反応させて ZnO を成長した。成長温度は $700-1000^\circ\text{C}$, ZnCl_2 供給分圧 2.2×10^{-4} atm, VI/II 供給比 20-2400 で成長を実施した。図は O_2 および H_2O を原料として用いて 1000°C で成長した ZnO ホモエピタキシャル層の表面 AFM 像である。 O_2 を酸素源として用いても H_2O を用いた場合同様に原子レベルで平坦な ZnO 成長が可能であることが分かった。一方、両者共に成長速度 ($0.5 \mu\text{m}/\text{h}$) は同程度であるが、 O_2 を原料に用いる場合には原料供給分圧が H_2O を用いる場合よりも 1 桁以上高くなることが分かった。これは ZnCl_2 と O_2 , H_2O 間の反応の平衡定数の大小関係に起因しているものと考えられる。SIMS 測定から O_2 を原料に用いた HVPE 成長でも高純度 ZnO 成長が実現していることも確認できた。

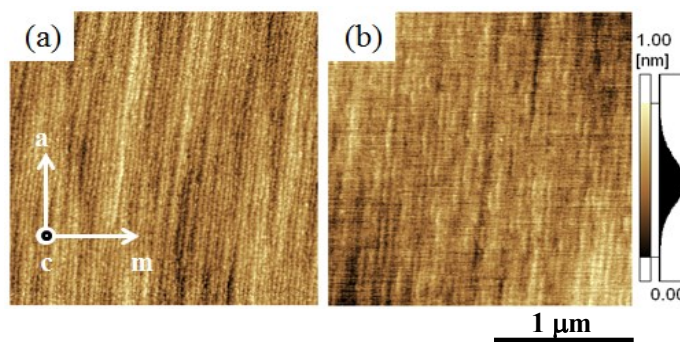


Fig. 1. AFM images of ZnO homoepitaxial layers grown by HVPE at 1000°C using O_2 (a) and H_2O (b) as O sources. Input partial pressure of ZnCl_2 and input VI/II ratio were 2.2×10^{-4} atm and 462 for (a), and 2.2×10^{-5} atm and 20 for (b), respectively.

[1] T. Fujii et al., J. Cryst. Growth **311** (2009) 1056., [2] R. Masuda et al., J. Cryst. Growth **312** (2010) 2324.