

SiO₂ 埋込み CO₂ レーザーアニールにより形成した ZnO 薄膜の結晶性と光応答特性

The Crystallinity and Photoresponse Property of ZnO Film Formed by CO₂ Laser Annealing in SiO₂ Matrix

九州大学, °山崎 恒太, 池上 浩, 下垣 哲也, 渡邊 陽介, 中村 大輔, 岡田 龍雄
Kyushu Univ., °Kota Yamasaki, Hiroshi Ikenoue, Tetsuya Shimogaki, Yousuke Watanabe,
Daisuke Nakamura and Tatsuo Okada
E-mail: yamasaki@laserlab.ees.kyushu-u.ac.jp

1. 序論

酸化亜鉛 (ZnO) は, 3.37 eV のバンドギャップを持つワイドバンドギャップ半導体であり, その特性から発光デバイスや各種センサへの応用が期待されている. しかし, ZnO は酸素欠陥や格子間亜鉛などの格子欠陥が形成されやすく, これらの欠陥に起因する深いレベルの準位が発光特性や電気特性を低下させる要因となっている. 我々が提案する手法では, ZnO 薄膜を SiO₂ 内に埋め込んで CO₂ レーザーを照射し, 上下 SiO₂ と ZnO を同時にアニールする. 照射されたレーザー光は上下の SiO₂ 層で効率よく吸収され, その熱が拡散することにより ZnO 薄膜を均一にアニールすることが可能になると考えた. 我々はこれまで, SiO₂ 薄膜を堆積させることによるパシベーション効果に伴う紫外発光の増加, 及び CO₂ レーザーアニールによる内部欠陥の減少に伴う可視発光の減少を確認している. 本発表においては, 形成した ZnO 薄膜の結晶性及び, 光応答特性について報告をする.

2. 実験

サンプルの構造は SiO₂/ZnO/Quartz sub. であり, ZnO 薄膜はパルスレーザー堆積法 (PLD 法), 上層 SiO₂ 薄膜はスパッタ法にて成膜した. その膜厚はそれぞれ 10 nm, 70 nm であった. PLD 法による ZnO 薄膜の成膜では, O₂ ガス 3 Pa (ガス流量 5 sccm) を充填した真空チャンバー内にて ZnO 焼結体ターゲットを Nd:YAG レーザーの第 3 高調波 ($\lambda = 355$ nm) でアブレーションし, 基板温度 500 °C の合成石英基板上に堆積させた. SiO₂ 薄膜はスパッタ法により ZnO 薄膜の上に堆積させた. Ar ガス流量は 15 sccm, Ar 分圧は 1.0 Pa であった. アニールに用いたレーザーは Q スイッチ CO₂ レーザーであり, パルス幅は約 10 ns, 波長は 10.6 μ m であった. 光応答特性の評価は, タングステンプローブを用いてオーミック接合をとり, パルス幅約 4 ns の Q スイッチ YAG 第 3 高調波を照射したときの光電流の変化を観測することにより評価をした.

3. 結果及び考察

レーザーアニール後の ZnO 薄膜の TEM 像及び TED パターンを図 1 に示す. レーザー照射条件は繰り返し周波数 40 kHz, フルエンス 130 mJ/cm², 照射回数 450 shots であった. 図 1 より, TEM 像のコントラストは膜中央を除いて全体的に様であること, また TED パターンは明瞭なスポットパターンを示すことからアニール前の多結晶状態から大きな結晶粒に成長していることが分かる. 膜中央のコントラストが変化した領域は転移など結晶歪の生成を示すが, 膜全体としてはレーザーアニールにより結晶欠陥が大きく減少していると考えられる. レーザーアニール後の薄膜に Q スイッチ YAG 第 3 高調波を照射したときに得られた光電流の測定結果を図 2 に示す. この時の電極間距離 L は 500 μ m, 電極間電圧 V は 10 V であった. 励起光のフルエンスは 150 mJ/cm² であった. 光励起されたキャリアが薄膜内を移動するのに必要とする時間は, 次式で与えられる [1].

$$T_{tr} = L^2 / V \mu_n \quad (1)$$

(1)式より電子の移動度 μ_n を 10 cm²/Vs とした場合の T_{tr} は 25 μ s となる. 図 2 により, アニール前の ZnO 薄膜は光応答の立ち上がりは 3.5 ns で, その後約 15 ns でピーク値の 1/e に減少し, 100 ns 程で 1/e² に減少することが分かる. これはアニール前の薄膜では膜中欠陥が多く, 生成されたキャリアが欠陥にトラップされ瞬時再結合したためと考えられる. アニール後の ZnO 薄膜では光応答が 6 ns で立ち上がり, 約 30 ns でピーク値の 1/e に減少し, 10 μ s 程で 1/e² に減少する. これは, 薄膜内部の欠陥が減少しキャリアのライフタイムが長くなり理論値程度のオーダーの減衰時間が得られたと考えられる.

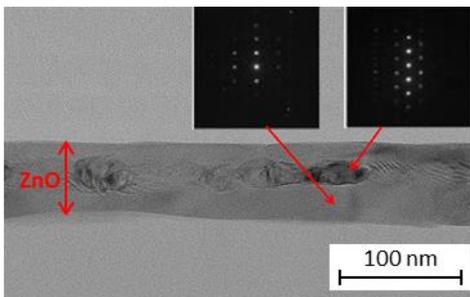


図 1. レーザーアニール後の ZnO 薄膜 TEM 画像
($f = 40$ kHz, $F = 130$ mJ/cm², $N = 450$ shots)

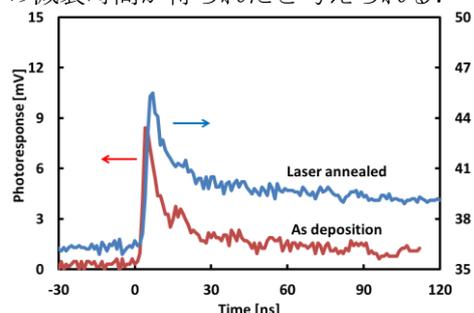


図 2. レーザーアニール前後の光応答
($L = 500$ μ m, $V = 10$ V, $F = 150$ mJ/cm²)

[1] K.W. Liu et al., Solid-State Electronics, **51**, 757 (2007).