ミスト CVD 法を用いた硫黄添加酸化亜鉛薄膜の形成と評価

Evaluation of S-doped ZnO thin films formed by mist-CVD

〇里 善仁¹, 皆見 憲亮¹, 石原 卓也¹,

中 良弘^{1,3}, 永岡 昭二^{2,3}, 須恵 耕二¹, 中村 有水^{1,3}

(熊本大学大学院自然科学研究科¹, 熊本県産業技術センター², くまもと有機薄膜センター³)

〇Y. Sato¹, K. Minami¹, T. Ishihara¹, Y. Naka^{1,3}, S. Nagaoka^{2,3}, K. Sue¹, Y. Nakamura^{1,3}

(Kumamoto Univ. ¹, Kumamoto Industrial Research Institute ², Phoenix ³)

E-mail: yusui@cs.kumamoto-u.ac.jp

1. はじめに

近年、新たな照明光源として普及している窒化物青色 LED にはレアメタルである Ga や In が含まれ、特に In は枯渇や高価格化が懸念されている。当研究室では LED の材料として、豊富に存在する酸化亜鉛(ZnO)を用い、さらに作製方法に真空が不要なミスト CVD 法を用いることで、材料・作製コストともに低価格化を目指している [1,2]。

本研究はその中でも酸化亜鉛による LED の発光層の開発に向け研究を行った。LED の発光層で井戸型構造を実現する為、酸化亜鉛にカドミウムをドーピングし、バンドギャップを低減させた発光層が多く報告されているが、カドミウムは毒性が強い点が問題である。本研究ではこれに代わる代替材料として硫黄をドーパントとして用い [3]、硫黄の添加による格子定数の増加、およびバンドギャップの低減を試みた。またドーパント溶液となるチオ尿素水溶液と塩化亜鉛水溶液との混合比を変化させながらサンプルを作製した。

2. 実験方法

ミスト CVD 装置の概略図を Fig.1 に示す。超音波振動子でミスト化された溶液は、キャリアガス(N₂)により加熱した基板まで運ばれ、薄膜が形成される。用いた基板は 2 インチ m 面サファイアである。使用溶液は濃度 0.1mol/L の塩化亜鉛(ZnCl₂)水溶液とチオ尿素水溶液である。成膜時間を 1h、基板温度を 750℃一定とし、チオ尿素と塩化亜鉛水溶液の混合比を 0%~20%と変化させ、各サンプルの X 線回折(XRD)と光透過スペクトルを測定した。

Fig.1 Mist-CVD system

Fig. 2 Result of XRD measurement

Fig. 3 Bandgap of S-doped ZnO

3. 実験結果と考察

ドーパント溶液混合比を 0%~20%で変化させてサンプルを作製したところ、硫黄添加酸化亜鉛薄膜を作製することができた。

Fig.2 より、チオ尿素の溶液混合比を増加させることで格子定数が拡大している傾向が見られ、チオ尿素溶液混合比 20%のサンプルにおいて格子定数が最も大きくなった。

また Fig.3 から溶液混合比の増加によりバンドギャップの低下が見られ、20%のサンプルでは 0%の場合と比べてバンドギャップが 0.2eV 低下し最小となった。

4. 結論

本研究では、ミスト CVD 法を用いて硫黄を添加した酸化亜鉛薄膜を形成し、格子定数の拡大とバンドギャップの減少を観測することが出来た。

5. 参考文献

- [1]中村他, 応物春季学術講演会,2012 年,13p-H7-12
- [2]田之上他, 応物春季学術講演会,2015 年,12a-D1-1
- [3]B.K.Meyer. et al., Appl. Phys. Lett., 85(2004)4929.