

水熱合成 ZnO ターゲットを用いた ZnO 薄膜のヘリコン波励起プラズマスパッタエピタキシー (4) : 遷移金属不純物に関する考察

Helicon-Wave-Excited-Plasma Sputtering Epitaxy of ZnO films using the hydrothermal ZnO target (4) : about transition metal impurities

東北大多元研¹, 筑波大物理工² °岩橋咲弥¹, 山崎芳樹¹, 小島一信¹,

古澤健太郎¹, 上殿明良², 秩父重英¹

IMRAM-Tohoku Univ.¹, Univ. Tsukuba² °S. Iwahashi¹, Y. Yamazaki¹, K. Kojima¹,

K. Furusawa¹, A. Uedono², and S. F. Chichibu¹

E-mail: chichibulab@yahoo.co.jp

【はじめに】ZnO は、バンドギャップが広く励起子束縛エネルギーが大きい等の特徴を有し、環境親和性も高く構成元素が豊富に存在する魅力的な材料である。我々は、装置構成が簡便で大面積化・低コスト化が可能な「スパッタ法」に基づくエピタキシャル成長法として「ヘリコン波励起プラズマスパッタエピタキシー(HWPSE)法」¹⁾を開発し、ZnO 薄膜の高品質化に取り組んできた^{2,3)}。これまでに、スパッタガスの酸素流量比率 $f(\text{O}_2) (= [\text{O}_2]/[\text{Ar} + \text{O}_2]) = 0.35$ において、 $0.85 \mu\text{m}$ のテラス幅を有する単分子層ステップが観測できるほど表面状態の優れた薄膜の成長に成功している³⁾。しかしながら、HWPSE 成長 ZnO 薄膜のバンド端発光の室温におけるフォトルミネッセンス寿命(τ_{PL})は最長でも 52 ps と短く²⁾、非輻射再結合が支配的である^{2,3)}。室温における τ_{PL} が短い原因として、Zn 空孔複合体と同定された⁴⁾非輻射再結合中心(NRC)よりも、Mn, Fe, Ni 等の遷移金属不純物濃度([TM])が高く、主たる NRC として働く指摘した³⁾。本講演では、残留不純物の種類・密度と τ_{PL} の関係を定量化し、NRC の起源について明らかにした結果を報告する。

【実験方法】水熱合成 ZnO 単結晶をターゲットとして用い、HWPSE 法にて水熱合成 Zn 極性 ZnO 基板上に膜厚約 300 nm の ZnO を成長した。残留不純物濃度は二次イオン質量分析 (SIMS)により測定し、点欠陥は低速陽電子消滅法にて検出した。また、バンド端励起子発光の時間分解 PL 測定を行うことにより τ_{PL} を評価した。

【結果】 $f(\text{O}_2) = 0.40$ および 0.35 で成長した試料の評価結果を赤い四角で図 1 に示す。SIMS 分析した結果、Al, Ni, Fe が検出され、C, Si, Li, B, Cr は検出下限以下であった。 $f(\text{O}_2) = 0.40$ の試料では $[\text{TM}] = 3.1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 、 $f(\text{O}_2) = 0.35$ の試料では $[\text{TM}] = 5.9 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ であった。各々の試料の室温における τ_{PL} は 65 ps, 26 ps であり、等価内部量子効率率は 0.64 %, 0.24 % であった。参考のために、過去に作製した[TM]の高い試料のデータを図中白丸で示した。たしかに、室温における τ_{PL} は[TM]の増加に従い減少する。詳細は当日議論する。

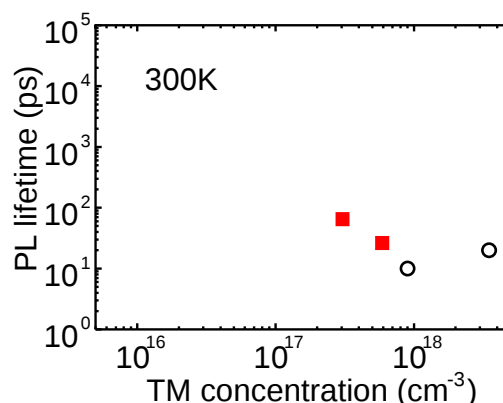


図 1 τ_{PL} の遷移金属濃度依存性。

【謝辞】本研究の一部は科研費#22246037、附置研究所間アライアンスの援助を受けた。

【参考文献】1) 秩父他 JAP **91**, 874 (2002). 2) 澤井, 羽豆, 秩父 JAP **108**, 063541 (2010). 3) 古澤他 JJAP **53**, 100301 (2014). 4) 秩父他 JAP **99**, 093505 (2006).