

ミスト CVD 法による サファイア基板上 ZnS エピタキシャル層の結晶性向上 Improvement of crystallinity of ZnS epitaxial layer on sapphire substrate by mist-CVD

熊大院自然科学¹, 熊大先導機構², 熊本産技³, 熊本有機薄膜⁴

○沖田 晃史¹, 田之上 博信¹, 後藤 太希¹, 田中 雄大¹, 永岡 昭二^{3,4}, 谷田部 然治², 中村 有水^{1,4}

Kumamoto Univ.GSST¹, Kumamoto Univ.POIE², Kumamoto IRI³, Phoenix⁴

○K.Okita¹, H.Tanoue¹, T.Goto¹, Y.Tanaka¹, S.Nagaoka^{3,4}, Z.Yatabe², Y.Nakamura^{1,4}

1.はじめに

硫化亜鉛(ZnS)は資源が豊富で安価なワイドバンドギャップ半導体であることから、室温にて可視から紫外域で動作する発光デバイスの材料として期待されている。

当研究室の先行研究より、m面サファイア基板上にm面単結晶酸化亜鉛(ZnO)をミストCVD法で作製可能である[1]。我々の研究では、これを応用しm面サファイア基板上にm面単結晶ZnO/ZnSの2層構造を形成することで、高い発光効率が期待される非極性面ZnSのエピタキシャル層をミストCVD法で作製することに成功している[2]。しかし ω ロックンクカーブの半値幅は 1.89° と広く、大幅な結晶性の改善が必要である。

結晶性改善のために本研究では、m面単結晶ZnO層に着目し、ZnO層の結晶性を向上させることで、その上のZnS層の結晶性向上を目指した。ZnO層の結晶性向上にはZnOバッファ層を導入し、m面サファイア基板上にZnOバッファ層/m面単結晶ZnO/ZnSの3層構造を作製し、評価を行った。

2.実験方法

m面サファイア基板上のZnOバッファ層/m面単結晶ZnO/ZnSの3層構造全てをミストCVD法を用いて作製した。ZnOバッファ層の形成には原料溶液に0.1mol/Lの酢酸亜鉛水溶液($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2$)を用い、キャリアガス流量は10L/min、成膜温度は 400°C である。m面単結晶ZnOの形成には原料溶液に0.1mol/Lの塩化亜鉛水溶液(ZnCl_2)を用い、キャリアガス流量は8L/min、成膜温度は 600°C である。ZnSの形成には原料溶液に亜鉛源として0.1mol/Lの ZnCl_2 を50mL、硫黄源としては0.5mol/Lのチオ尿素水溶液($\text{CH}_4\text{N}_2\text{S}$)を10mL用意し、それらの混合溶液を用いた。このとき、Zn原子とS原子のmol比は1:1である。また、キャリアガス流量は1L/min、成膜温度は 425°C で作製した。3層全ての成膜時間は30min、キャリアガスは窒素である。結晶性を測る指標としては、XRD ω ロックンクカーブ(XRC)測定の半値幅を用いた。

3.実験結果と考察

図1にZnOバッファ層導入後の試料のXRD測定結果を示す。図1(a)の θ - 2θ スキャンでは、積層方向にm面ZnOとm面ZnSのみのピークが確認できる。また図1(b)の ϕ スキャンでは、

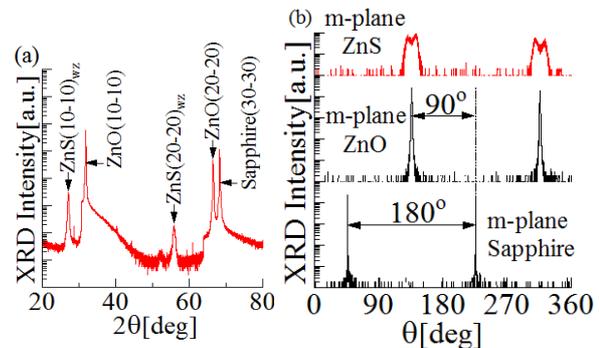


図1 XRD測定結果
(a) θ - 2θ スキャン (b) ϕ スキャン

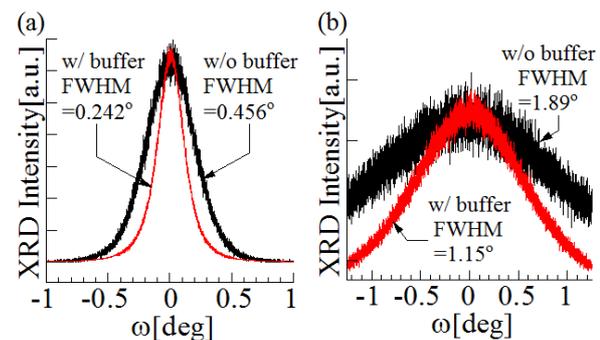


図2 XRC測定結果
(a) ZnO層のXRCと半値幅 (b) ZnS層のXRCと半値幅

ZnOとZnSにおいて、それぞれ二回対称のピークが確認できるため、m面サファイア基板上にZnO層とZnS層はエピタキシャル成長していることがわかる。次にZnOバッファ層導入前後でXRC測定を行い、半値幅を比較する。図2にZnO層とZnS層のXRCと半値幅を示す。図2(a)より、ZnOバッファ層導入によってZnO層の半値幅が約47%低減されたことがわかる。また図2(b)より、ZnOバッファ層導入によりZnS層の半値幅が約39%低減されたことがわかる。これは、ZnOバッファ層導入により、その上のZnO層の結晶性が向上することで、ZnS層の結晶性が向上したものと考えられる。

4.結論

ZnOバッファ層を導入し、m面サファイア基板上にZnOバッファ層/m面単結晶ZnO/ZnSの3層構造とすることで、ZnS層におけるXRCの半値幅を約39%低減することができた。

5.参考文献

- [1] H.Tanoue, et al, Applied Physics Express 8,125502(2015)
- [2] 沖田他, 応物春季学術講演会, 2017年, 17a-513-10