

ミスト CVD 法によるバッファ層上 ZnO 結晶薄膜の面内異方性 In-plane anisotropy of ZnO crystal on ZnO buffer layer formed by mist-CVD

田中 雄大¹, 田之上 博信¹, 竹之内 真人¹, 永岡 昭二^{3,4}, 谷田部 然治^{1,2}, 中村 有水^{1,4}

(熊本大学自然科学研究科¹, 熊本大学大学院先端機構², 熊本産業技術センター³, くまもと有機薄膜センター⁴)

Y. Tanaka¹, H. Tanoue¹, M. Takenouchi¹, S. Nagaoka^{3,4}, Z. Yatabe^{1,2}, Y. Nakamura^{1,4}

(Kumamoto Univ. GSST¹, Kumamoto Univ. POIE², Kumamoto Industrial Research Institute³, Phoenix⁴)

1. 研究背景及び目的

酸化亜鉛(ZnO)は資源が豊富で安価であり、ワイドバンドギャップ(3.37eV)、発光効率が良いという特徴を持つことから、新たな LED の材料として期待されている。本研究では ZnO を用いて、作製方法に真空装置が不要なミスト CVD 法[1]を採用することで、材料・作製コストともに低価格な LED の実現を目指している。

我々のグループでは、ミストを基板面に平行に流す従来型ミスト CVD 装置を改良し、ミストを基板に対して垂直に供給しながら、基板を高速回転させる構成の装置を開発している。この装置により、2 インチのサファイア基板全面にほぼ均一な膜厚・膜質を有し、高い発光効率が期待される非極性面(m 面)の ZnO 単結晶薄膜を形成することに成功している[2]。

本研究では、通常真空成膜を必要とするバッファ層作製にミスト CVD 法を用いることで、ZnO 薄膜の結晶性を向上させることを目的とする。

2. 実験方法

ZnO バッファ層(ZnO-BL)及び ZnO 薄膜の成膜をミスト CVD 法にて行った。初めに従来型のミストを基板面に平行に流す方式で、m 面サファイア基板の上に ZnO-BL を形成させた。使用溶液は 0.1mol/L の酢酸亜鉛($Zn(CH_3COOH)_2$)水溶液で、成膜時間は 30min、キャリアガスに流量 10L/min の窒素(N_2)を用い、成膜温度は 325°C~500°C とした。次に、基板を高速回転させる方式で ZnO 薄膜を ZnO-BL 上にさせた。使用溶液は 0.1mol/L の塩化亜鉛($ZnCl_2$)水溶液で、成膜時間は 30min、キャリアガスに流量 5L/min の窒素(N_2)を用い、成膜温度は 725°C とした。

3. 実験結果及び考察

図 1 に今回作製したサンプルの概略図を示す。ZnO-BL の成膜温度が 350°C~450°C の時、粒径 30nm 程度の微結晶が密に形成されていることが確認された。これは、 $Zn(CH_3COOH)_2$ 水溶液中の炭素(C)が、結晶成長における原子の拡散を抑制したためと考えられる。これらの ZnO-BL 上に形成した m 面 ZnO 薄膜では、透明な薄膜が得られ表面の平坦性も高い結果となった。図 2 に m 面

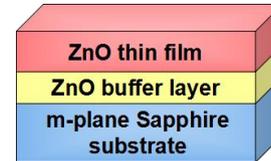


図 1 : ZnO バッファ層上 ZnO 薄膜

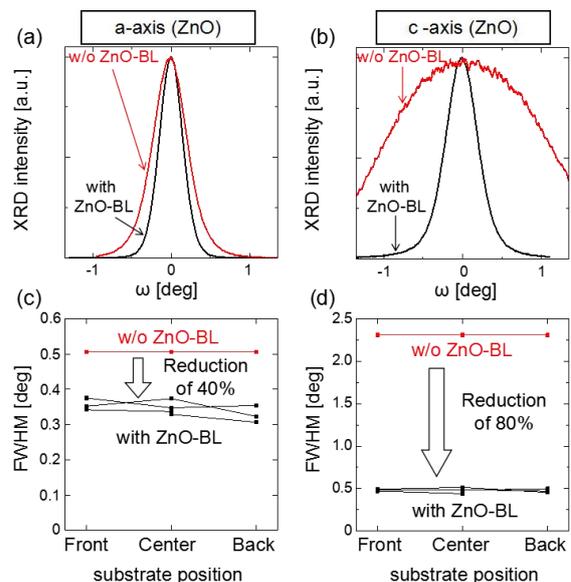


図 2 : (a)(b)ZnO 薄膜の ω ロッキングカーブ

(c)(d) ω ロッキングカーブの半値幅

ZnO 薄膜の ω ロッキングカーブとその半値幅を示す。ZnO-BL を導入することで ZnO 薄膜の半値幅は ZnO の a 軸方向で約 40%、c 軸方向で約 80% 減少しており、結晶性の向上が見られた。この結果より、特に格子不整合率が大きい ZnO の c 軸方向でバッファ層が効果的に寄与し、結晶性の向上に繋がったと考えられる。

4. まとめ

今回、成膜の過程で真空環境を用いないミスト CVD 法にて、ZnO バッファ層及び m 面 ZnO 薄膜を形成した。その結果、ZnO-BL 上の ZnO 薄膜にて半値幅が大幅に減少し、結晶性の向上に顕著な面内異方性が観測された。

5. 参考文献

- [1] J.G.Lu, et al., Journal of Crystal Growth **299** (2007) 1-10.
[2] H. Tanoue, et al., Applied Physics Express **8**, 125502 (2015).