ミスト CVD 法による サファイア基板上非極性面 ZnS のエピタキシャル成長

Epitaxial growth of nonpolar ZnS on sapphire substrate by mist chemical vapor deposition

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.GSST[1], Kumamoto Univ.POIE[2], Kumamoto IRI[3], Phoenics[4]
○K.Okita[1], H.Tanoue[1], T.Goto[1], Y.Tanaka[1], S.Nagaoka[3,4], Z.Yatabe[2], Y.Nakamura[1,4]

1.はじめに

硫化亜鉛(ZnS)は資源が豊富で安価な半導体であり、室温で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。

現在、ZnS の研究において、様々な方法で ZnS 単結晶を形成する研究が行われている。例えば、格子ミスマッチの比較的少ない GaAs や GaP 基板を用いた方法や、サファイア基板を用いて極性面 ZnS 単結晶を形成する方法等が報告されている。今回我々はミスト CVD 法によってサファイア基板上に非極性面 ZnS をエピタキシャル成長させる研究を行った。

我々の研究室では、ミスト CVD 法によって m 面サファイア基板上に m 面酸化亜鉛(ZnO)の単結晶を形成することに成功している[1]。また、ZnS と ZnO はどちらもウルツ鉱構造を有していることから、ZnO 上に ZnS がエピタキシャル成長する可能性を考え、m 面サファイア基板/m 面 ZnO/m 面 ZnS の構造にすることによって m 面 ZnS が形成できないかと考えた。

我々の最終目標は、ミスト CVD 法によって形成した ZnS[2]を用いて青色 LED を作製し、材料・作製コストの低価格化を実現すことである。そのためには、単結晶 ZnS の作製が必須であるため、本研究ではミスト CVD 法を用いた m 面 ZnS のエピタキシャル成長を目標としている。

2.実験方法

ZnS と ZnO はミスト CVD 法を用いて作製した。ZnO 層の形成には原料溶液に 0.1mol/L の塩化亜鉛($ZnCl_2$)水溶液を用い、ZnS 層の形成には亜鉛源として 0.1mol/L の $ZnCl_2$ 水溶液を 50mL、硫黄源としてチオ尿素(CH_4N_2S)の粉末を純水に溶かした 0.5mol/L の水溶液 10mL を用意し、それらを混ぜた混合溶液を用いた。このとき、$ZnCl_2$ 水溶液と CH_4N_2S 水溶液の濃度比は 1:1 である。本研究では ZnS 層の成膜温度を 400～600℃で変化させ、最適な成膜温度においてキャリアガスの流量を 1～8L/min で変化させ実験を行った。すべての実験において、基板には m 面サファイアを用い、ZnO 層の成膜温度は 600°C、流量は 8L/min である。また ZnO 層 ZnS 層のどちらにおいても成膜時間は 30min、キャリアガスは窒素である。

3.実験結果と考察

図 1 に成膜温度 400～600℃の試料の XRD 測定結果を示す。成膜温度 450°C 以上では ZnS の m 面以外のピークが現れている。また成膜温度を低くすると ZnS のピーク強度が全体的に小さくなる。これは膜厚が減少していることを示している。よって成膜温度は ZnS の m 面のピークのみで強度が十分な条件である 425°C に固定し、次に流量を 1～8L/min で変化させ、最適条件を求めた。

次に最適条件である成膜温度 425°C、流量 1L/min の試料において XRD-ϕ スキャンを行った。図 2 に XRD-ϕ スキャン測定結果を示す。図より ZnS の二回対称のピークが確認できることから、m 面 ZnS がエピタキシャル成長していることが分かる。また ZnS のピーク位置が ZnO と同じことから、m 面 ZnO と同じ向きに m 面 ZnS が成長していることがわかった。

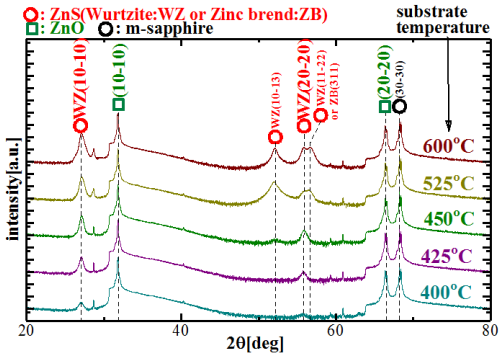

図 1　XRD 測定結果(成膜温度依存性)

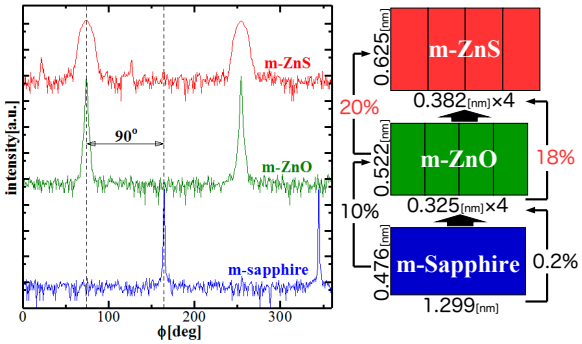

図 2　XRD-ϕ スキャン測定結果

4.結論

ミスト CVD 法を用いて m 面サファイア基板上に m 面 ZnO 層を成長させ、その上に ZnS を成長させることによって m 面 ZnS がエピタキシャル成長していることが確認できた。

5.参考文献

[1]H.Tanoue,et.al,Applied Physics Express 8,125502(2015)
[2]沖田,応物秋季学術講演会,2016 年,16p-A22-2