

イオンプレーティング GZO 薄膜をバッファ層に用いた ZnO 薄膜の大気圧 CVD 成長

Atmospheric-pressure CVD Growth of ZnO Films on Ion-plated GZO Buffer Layers

愛媛大院理工¹, 愛媛大工², 香川高専³, 高知工科大総研⁴

○寺迫 智昭¹, 越智 洋平², 宮田 晃², 矢木 正和³, 野本 淳一⁴, 山本 哲也⁴

Grad. School Sci. & Eng., Ehime Univ.¹, Fac. Eng., Ehime Univ.²,

Natl. Inst. Technol., Kagawa Coll.³, Research Inst., Kochi Univ. Technol.⁴,

○Tomoaki Terasako¹, Yohei Ochi², Akira Miyata², Masakazu Yagi³,

Junichi Nomoto⁴, Tetsuya Yamamoto⁴

E-mail: terasako.tomoaki.mz@ehime-u.ac.jp

【序論】酸化亜鉛 (ZnO) は、 $\sim 3.37\text{eV}$ のワイドバンドギャップ、 $\sim 60\text{meV}$ の励起子結合エネルギー、透明導電性、圧電性などの機能性を有し、近紫外及び可視短波長発光及び受光デバイス、透明電界効果トランジスタ、電界放出素子、ガスセンサなど多岐に渡る応用が期待されている。ガラスや石英などの比較的安価な透明基板材料上への ZnO 配向膜の実現は、ZnO ベース光デバイスの可能性を大きく切り拓くものと期待される。我々はこれまでに Zn 粉末と水 (H_2O) を原料に用いた大気圧 CVD (AP-CVD) 法によって *c* 面及び *r* 面サファイア基板上へ ZnO 薄膜の成長を行い、特に後者においてエピタキシャル成長を確認している[1,2]。本研究では、イオンプレーティング (IP) 法によって石英基板上に堆積した Ga 添加 ZnO (GZO) バッファ層上に AP-CVD 法によって基板温度をパラメータとして ZnO 薄膜を堆積し、基板温度と構造特性及びフォトルミネッセンス (PL) 特性との関係を明らかにする。

【実験方法】 Zn 原料には Zn 粉末、O 原料には H_2O を用いた。基板には、4.0 wt% の Ga_2O_3 を含有する ZnO 焼結体ターゲットを用いて IP 法によって 200 nm 厚 GZO 薄膜を堆積した石英ガラスを用いた。CVD 装置は二温度領域横型電気炉を有し、上流側領域は Zn 粉末を載せたアルミナ製ボートの加熱、下流側領域は GZO/石英基板の加熱に用いた。Zn 粉末の加熱は 700°C で行った。蒸気圧の高い H_2O は電気炉本体とは別に設けた蒸発器で気化した後 (蒸発器温度 54°C)、窒素 (N_2) キャリアガスによって反応管内に輸送された。基板温度 (T_s) は $550\text{--}950^\circ\text{C}$ の範囲で変化させた。成長時間は、15 min とした。

【実験結果と議論】 すべての薄膜の X線回折 (XRD) パターンにおいて、ZnO(002)ピークが支配的であり、*c* 軸配向が優先的であった。 $T_s=550\text{--}600^\circ\text{C}$ で成長した薄膜は、丸みを帯びた球 (半球) 状の結晶粒から構成され、そのサイズは T_s とともに増加していた。 $T_s=700^\circ\text{C}$ 以上で成長した薄膜はテラス状表面に岩状 3D 構造が点在した表

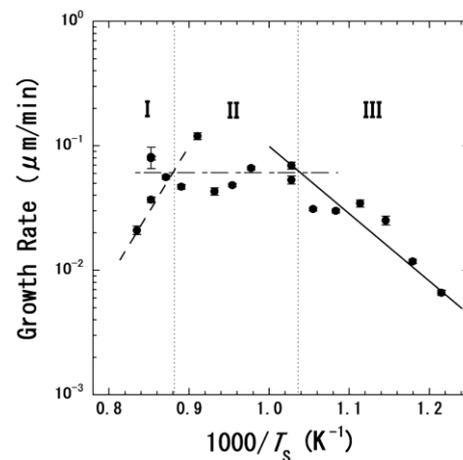


Fig. 1 $1000/T_s$ vs. growth rate.

面モフォロジーを有し、テラスサイズは T_s とともに増加していた。 $T_s=900\text{--}925^\circ\text{C}$ 間で表面モフォロジーが急激に変化し、 $T_s=925^\circ\text{C}$ の表面は直径 100-270 nm、高さ 100-900 nm のこぶで覆われていた。Fig.1 には、基板温度の逆数 ($1000/T_s$) と成長速度との関係を示している。高 $1000/T_s$ (低 T_s) 側から $1000/T_s$ の低下 (T_s の上昇) に伴い、 $1000/T_s=1.04$ 付近まで成長速度が上昇している (領域 III)。 $1000/T_s$ が $0.88\text{--}1.04$ の領域では、成長速度に明確な $1000/T_s$ 依存性が見られない (領域 II)。さらに $1000/T_s < 0.88$ (高 T_s の領域) では、 $1000/T_s$ の低下 (T_s の上昇) とともに成長速度が低下している (領域 I)。領域 I, II 及び III はそれぞれ寄生付着・脱離律速領域、物質輸送律速領域及び表面反応律速領域と相当すると考えられる。

これらの薄膜の PL スペクトルは、 $\sim 380\text{nm}$ にピークを持つバンド端 (NBE) 発光と緑色領域にピークを持つブロードな発光帯 (GB 発光) からなる。GB 発光に対する NBE 発光の強度は T_s によって変化し、物質輸送律速領域に相当する $1000/T_s=0.93\text{--}0.95$ で最も大きかった。

【参考文献】 [1] Terasako *et al.*: Thin Solid Films **516** (2007) 159. [2] Terasako *et al.*: J. Vac. Sci. Technol. B **27** (2009) 1646.