

格子不整合サファイア基板上への単結晶 ZnO 膜のスパッタリング成膜: ZnON バッファー層の効果

Growth of single-crystalline ZnO films on lattice-mismatched sapphire substrates by RF magnetron sputtering using ZnON buffer layers

九大シ情¹, 自然科学研究機構², °三石遼¹, 矢高功太郎¹, 山下尚人¹, 奥村賢直¹, 鎌滝晋礼¹,
古閑一憲^{1,2}, 白谷正治¹, 板垣奈穂¹

Kyushu Univ.¹, NINS², °R. Mitsuishi¹, K. Yataka¹, N. Yamashita¹, T. Okumura¹, K. Kamataki¹,
K. Koga^{1,2}, M. Shiratani¹, N. Itagaki¹

E-mail: r.mitsuishi@plasma.ed.kyushu-u.ac.jp

ZnO は 60 meV の高い励起子束縛エネルギーを有し、励起子トランジスタなど次世代光電子デバイスへの応用が期待されている。最近我々は、ZnON バッファー層を用いることで、18%もの格子不整合率を有するサファイア基板上への単結晶膜成長に成功した [1,2]。上記バッファー層は高配向・超平坦ナノ結晶粒からなり、高密度に導入された粒界が格子不整合に起因した歪エネルギーを解放し、転移発生を伴わない格子緩和をもたらしたと考えられる。このような超微小結晶粒の作製は従来困難であったが、非固溶系の不純物である窒素を導入し表面エネルギーを制御することでこれを実現した [1]。本研究では、ZnO 膜の更なる高品質化を目指し、ZnON バッファー層作製時の N₂ 導入量が最終的に形成される単結晶 ZnO 膜の表面モフォロジーと結晶品質に及ぼす影響を調べたので報告する。

全ての膜をマグネトロンスパッタリング法により作製した。まず膜厚 10 nm の ZnON バッファー層を Ar/N₂ 雰囲気中、基板温度 780°C にて作製した。N₂ 流量比 (FR_{N2}) は 0-4%とした。次に、ZnON バッファー層上に膜厚 1000 nm の ZnO 膜を Ar/O₂ 雰囲気中、基板温度 800°C にて作製した。

バッファー層形成時の N₂ 流量比は 2% に最適値があり、このとき形成された単結晶 ZnO 膜は単原子層ステップ表面を有することが確認された (図 1 挿入図)。(002) 面ロックングカーブ半値幅 (FWHM₀₀₂) と二乗平均平方根粗さ (R_q) はそれぞれ 0.02° および 0.5 nm であり、サファイア基板直上に作製した ZnO 膜 (FWHM₀₀₂ = 0.05°, R_q = 12.6 nm) と比べると、バッファー層導入が結晶品質の向上に極めて有効であることが分かる。この効果は、しかし FR_{N2} ≥ 3% の領域で低下し、FR_{N2} = 3% で R_q は 5.3 nm の値を示した。バッファー層自体の R_q は FR_{N2} に依存せず一定の値を示したことから、膜中に欠陥として取り込まれた過剰 N 原子が面内・面外配向性を低下させ、ZnO 層の 3 次元的な成長を誘発したことで、平坦性が低下したと考えられる。この影響を定量的に議論するため、ZnO 膜の性能指数 (FOM) をその R_q と FWHM₀₀₂ の積の逆数として定義し、これをバッファー層の R_q と FWHM₀₀₂ ならびに FWHM₁₀₁ の積の逆数に対してプロットした (図 1)。相関係数 0.96 の非常に強い正の相関が見られ、これは、個々のパラメータに対する相関と比べて顕著に高い値であった。以上の結果は、ZnO 膜の品質が、バッファー層の配向性や表面粗さが複合的に影響を及ぼし合って決定づけられることを示す。本研究の一部は JSPS 科研費 JP21H01372, JP21K18731, JP22H05000 の助成を受けた。

[1] N. Itagaki, et al., Sci. Rep. 10, 4669 (2020).

[2] Y. Nakamura, et al., Cryst. Growth Des. (2022).

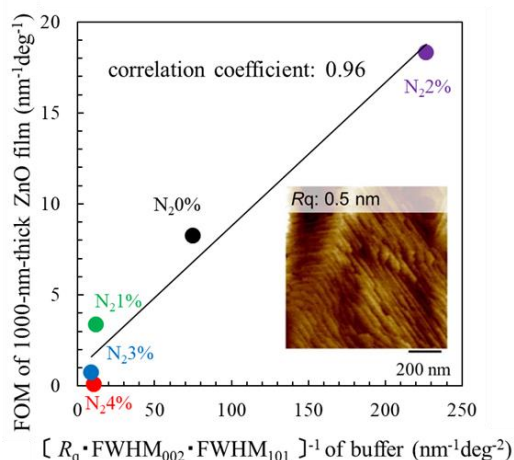


Fig. 1. FOM of ZnO films v.s. reciprocal of the product of R_q, FWHM₀₀₂ and FWHM₁₀₁ of the buffer layers. Inset shows the AFM image of the ZnO film on the buffer fabricated at FR_{N2} = 2%.