

アセチルアセトナート化した亜鉛原料水溶液を用いた a 面サファイア基板上酸化亜鉛薄膜のミスト CVD 成長

Growth of zinc oxide thin films on a-sapphire substrates
by mist chemical vapor deposition using acetylacetonated Zn source solutions

○ 宇野 和行, 西岡 恵 (和歌山大システム工)

○ Kazuyuki Uno and Megumi Nishioka (Wakayama University)

E-mail: kuno@wakayama-u.ac.jp

【はじめに】酸化亜鉛 (ZnO) は禁制帯幅 3.4 eV、励起子結合エネルギー約 60 meV をもつワイドギャップ半導体 [1] であり、UV-A 領域をカバーする光デバイス用材料として重要である。我々は過去に、電気化学的方法 [2] やミスト CVD 法 [3] によって酸化亜鉛薄膜を成長し、その成長メカニズムの解明と応用を行ってきた。その知見をもとに、酸化ガリウム系薄膜のミスト CVD 成長において、アセチルアセトナート化した Al や Ga イオンを含む水溶液を用いると、アンカリング機構によって強いエピタキシャル成長を示すことを見出した [4,5]。今回は、アセチルアセトナート化した亜鉛イオンを用いて、サファイア基板上にミスト CVD 法によって ZnO 薄膜を成長することを試みた。その際、a 面サファイア基板上に疑似的なエピタキシャル関係をもって ZnO 単結晶薄膜が成長するという Fons らの報告 [6] に注目し、基板には a 面サファイア基板を用いた。

【実験方法】アセチルアセトン (Hacac) 水溶液 [Hacac]=0.06M に、塩化亜鉛 [ZnCl₂]=0.03M を添加して原料水溶液を調整した。塩酸添加しないと塩化亜鉛水溶液は白濁するが、原料水溶液は透明であった。これは水溶液が acac 錯化されたことを示している。a 面サファイア基板は 1050 °C で 10 時間アニールして原子層ステップテラス構造を有するように前処理を行ったものを用いた。ミスト CVD 成長にあたっては、チャンネルフロー型のサセプタを用いとし、キャリアガスに窒素ガスを、希薄ガスに酸素ガスをを用いた。

【結果と考察】図 1 に成長温度 500 °C および 600 °C で作製した ZnO 薄膜の AFM 像を示す。0.5-3 μm 程度の結晶粒の集合体であり、それぞれの結晶粒の表面の平坦性は高かった。700 °C 以上で成長したときには、膜としては成長しなかった。図 2(a) に 2θ/ω XRD 測定結果を示す。ZnO は c 面配向性が強い結晶として知られているが、成長温度 500-700 °C では 10-11 配向が主で、800 °C では 0002 配向となった。成長温度 600 °C, 700 °C のときの 11-20 回折の φ スキャン XRD 測定結果からは、2 回対称のピークが 80° ずれた位置に 2 組現れた。これは ZnO 結晶が双晶を形成していることを示している。この結果は、双晶の形成を抑制することができれば、サファイア基板上に良好な ZnO 薄膜が成長できる可能性を示している。

【参考文献】[1] Ü. Özgür, et al., JAP98, 041301 (2005), [2] 宇野, 材料 66, 312 (2017), [3] K. Uno, et al., APEX10, 015502 (2017), [4] K. Uno, et al., APL117, 052106 (2020), [5] M. Ohta, et al., APEX15, 055502 (2022), [6] P. Fons, et al., APL77, 1801 (2000).

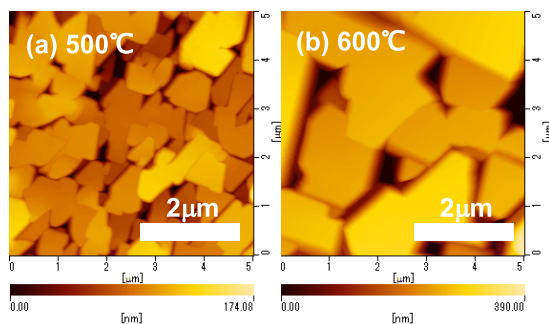


図 1 : (a) 成長温度 500 °C、(b) 600 °C で成長した ZnO 薄膜の AFM 像。

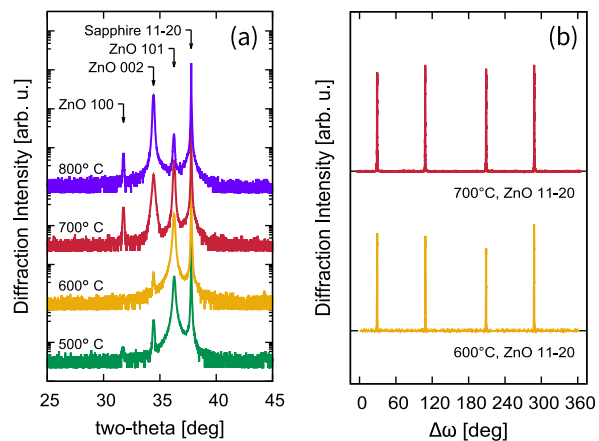


図 2 : (a) 成長温度 500-800 °C のときの XRD 測定結果。
(b) 成長温度 600, 700 °C のときの 11-20 ZnO 回折 φ スキャン XRD 測定結果。