

L-63

赤外光支援パルスレーザ堆積法による p 型酸化亜鉛の低温成膜
 Low Temperature synthesis of p-type Zinc Oxide by Infrared Assist Pulsed Laser Deposition

○佐藤広基¹, 平出利博², 胡桃聡³, 鈴木薫³

*Hiroki Sato¹, Toshihiro Hiraide², Satoshi Kurumi³ and Kaoru Suzuki³

Zinc Oxide (ZnO) has wide band gap of 3.37 [eV], large exciton binding energy of 60 [meV] and strong emission intensity of ultraviolet light emitting diode. The ZnO is generally n-type semiconductor because of the oxygen defect. Therefore production a p-type ZnO is difficult. To synthesize the p-type ZnO film, we choose the Infrared-light Assist Pulsed Laser Deposition (IRA-PLD). The infrared light could advance the crystalline of film. Furthermore, acceptor is doped by N₂ plasma assist.

1. はじめに

酸化亜鉛 (ZnO) はバンドギャップエネルギー: E_g=3.37[eV]で、380[nm]付近にエキシトン発光する直接遷移型のワイドギャップ半導体であり、青色 LED の材料として研究が盛んに行われている。現在、青色 LED の主な材料は窒化ガリウム(GaN)系となっているが、Ga は価格が高いことが問題となっている。そこで、Ga に比べ低価格である ZnO に着目した。

過去にパルスレーザ堆積法 (PLD:Pulsed Laser Deposition) により ZnO の PN 接合し青色発光が発現しているが^[1]、PN 接合を作製するためには非常に純度の高い ZnO ターゲット、格子整合率の高い ScAlMgO₄(SCAM)基板を、高温成膜という条件を用いている。そこで赤外光支援を用いて熱的・光学的な支援を行うことで比較的純度の低いサファイア基板 (0001)を用いて、ZnO の p 型化を図った。我々は過去にこの条件において、赤外光支援 PLD 法により基板温度 400℃において ZnO の p 型化に成功した^[2]。本研究では赤外光支援に加え窒素プラズマ支援を行い、p 型 ZnO のさらなる低温成膜を目指した。

2. 方法

ZnO の成膜には PLD 法を用いた。Figure1 に PLD 法の図を示す。PLD 法では、雰囲気調整されたチャンバー内に置かれたターゲットバルクにパルスレーザを照射し、アブレーションプラズマを発生させて基板上に薄膜化する。特徴として、真空度や雰囲気の種類、また、レーザ出力や成膜温度の調整が可能であることがあげられる。V 族の窒素プラズマをアブレーションプラズマに照射し、窒素イオンをドーピングすることで酸素欠損による n 型化を抑制し、p 型化をねらう。

また、赤外光支援によりバルク及び基板の温度を上昇させ、アブレーションプラズマを熱的・光学的に再励起することで ZnO 薄膜の結晶性の向上を目指した。

成膜条件を Table1 に示す。X 線回折(XRD:X-ray diffraction)、透過測定、PL 測定によってそれぞれ結晶性、吸収波長、発光波長を評価した。

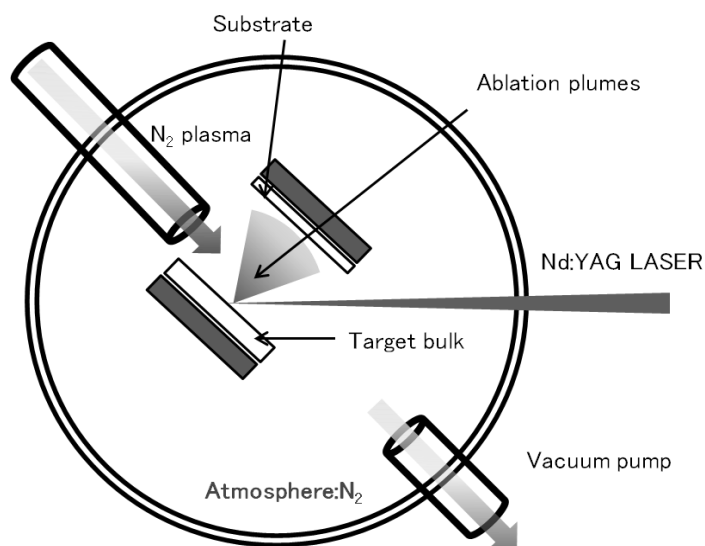


Figure1 Pulsed Laser Deposition

Table1 Deposit condition

Target bulk	ZnO (99.99%)
Substrate	Suphire (0001)
Pressure	4.0 (×10 ⁻²) [Torr]
Atmosphere	N ₂
Plasma wattage	400 [W]
Target to substrate distance	20 [mm]
Laser	Nd : YAG
Laser power	300 [mJ]
Laser wave length	355 [nm]
Substrate temperature	300 (RT), 373, 473, 573 [K]

1 : 日大理工・学部・電気 2 : 日大院・理工・電気 3 : 日大理工・電気・教員

3. 結果

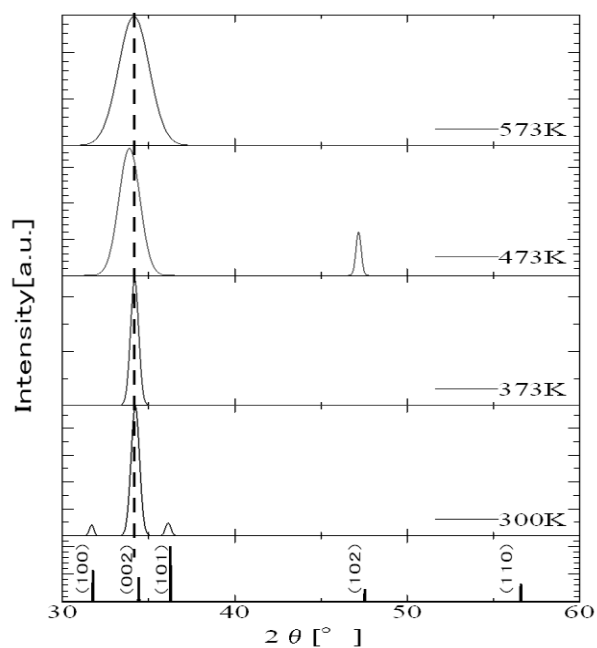


Figure2 Crystalline by XRD

Table2 Full Width Half Maximum

T _s [K]	PeakCenter[°]	FWHM[°]	Energy gap[eV]
300	34.22	0.576	3.03
373	34.18	0.54	3.01
473	33.88	1.434	2.96
573	34.14	2.10	2.96

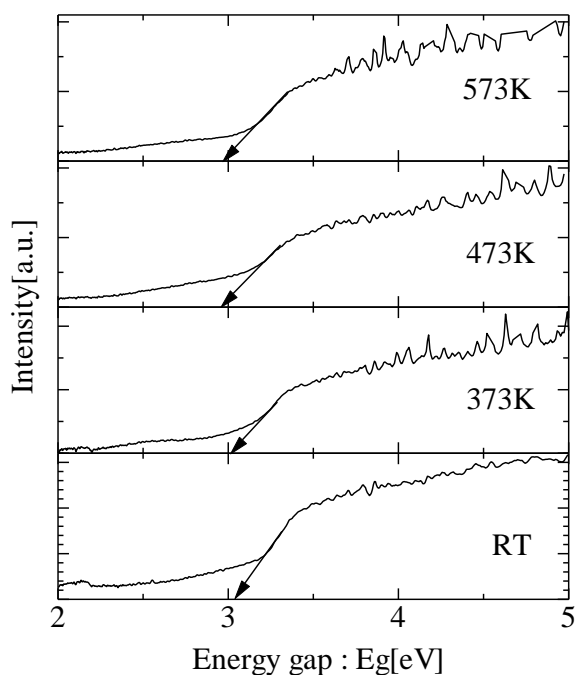


Figure3 Band gap by transmission measurement

Figure2 に XRD による結晶性の測定結果、Table2 に (002)面のピークの半値幅を示す。成膜温度の上昇に伴って半値幅が広がっている。これは薄膜への窒素の混入によるものである。

Figure3 に透過測定の測定結果から算出したバンドギャップを示す。温度を増すと窒素の混入により、吸収端が長波長側に広がり、バンドギャップが小さくなっている。

Figure4 に PL 測定による発光波長の測定結果を示す。380[nm]付近にエキシトン発光が確認できるが、成膜温度の上昇とともにやや長波長側にシフトしている。発光波長とバンドギャップは逆数の関係にあり、透過測定の結果よりバンドギャップが減少していることと一致している。

4. まとめ

XRD の結果、成膜温度を増すと窒素が混入がしている。PL 測定の結果、バンドギャップの減少により 380[nm]付近の発光が長波長側へシフトする。

5. 参考文献

[1]A. Tsukazaki, *et al*, “Repeated temperature modulation epitaxy for p-type doping and light-emitting diode base on ZnO”, LETTERS nature materials, Vol.4, JANUARY 2005, 42-46, 2004

[2]上原朋之, “赤外光支援パルスレーザー堆積法による酸化亜鉛の低温成膜”, 日本大学大学院理工学研究科修士論文, 2011

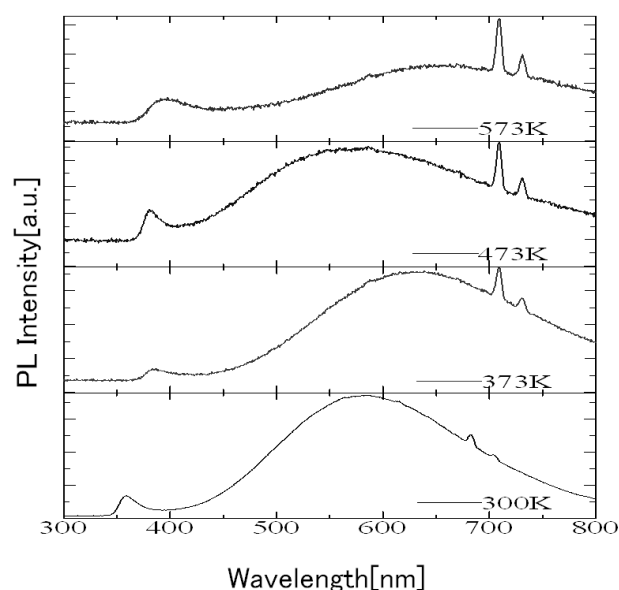


Figure4 Emission wave length by photoluminescence