

ミスト CVD 法による低 Mg 組成 RS-MgZnO 薄膜成長における成長温度依存性

Growth temperature dependency in mist CVD growth of low Mg composition rocksalt-structured MgZnO films

田中 恭輔¹⁾

指導教員 尾沼 猛儀^{1,2)},

研究協力者 小川 広太郎²⁾, 山口 智広²⁾, 本田 徹²⁾

1) 工学院大学 先進工学部 応用物理学科 固体物性研究室

2) 工学院大学大学院 工学研究科 電気・電子工学専攻

ミスト CVD 法により低 Mg 組成 RS-Mg_xZn_{1-x}O 薄膜の成長を行った。Mg 組成が下がるにつれ成長温度を低減する必要があることを示唆し、 $x=0.21$ まで単結晶 RS-Mg_xZn_{1-x}O 薄膜の成長を実現した。この結果は、RS-MgZnO ベースの発光素子製作に向けた重要な成果となる。

キーワード： ワイドギャップ半導体、酸化マグネシウム亜鉛、ミスト CVD

1. 背景

波長 280 nm 以下の UVC 紫外線は、深紫外線(DUV)と真空紫外線(VUV)に分類され、ウイリスの不活化や水処理、微細加工技術などの様々な分野で利用されている。しかし、これらの光源は主に放電ランプであり、発光波長の制限や環境負荷が大きいなどの問題がある。そのため本研究室では、DUV、VUV 域の半導体発光材料として岩塩構造酸化マグネシウム亜鉛(RS-Mg_xZn_{1-x}O)に注目している。半導体を用いた光源の製作にはドーピングによる導電性の制御が必須である。MgO は一般に絶縁体としてよく知られるが、RS-Mg_xZn_{1-x}O においては、MgO モル分率 x が 0.7 以下の組成において、n 型ドーピングを実現できる可能性が理論計算により示唆されている^[1]。しかし、 $0.37 \leq x \leq 0.6$ の組成では、岩塩構造とウルツ鉱構造との混相組成域となり、それ以下の組成では ZnO の熱安定相であるウルツ鉱構造が支配的な組成域となる^[2]。このことから、 $x \leq 0.6$ の RS-Mg_xZn_{1-x}O 単結晶薄膜の成長は困難となっている。本研究では、ミスト化学気相堆積(CVD)法により、 $x \leq 0.6$ の RS-Mg_xZn_{1-x}O 単結晶

薄膜成長を実現し、成長温度による変化を検討することを目的とした。

2. 実験方法

ミスト CVD 法により MgO(100)基板上へ Mg_xZn_{1-x}O を成長させた。前駆体溶液の溶媒には酢酸を 5 倍希釈したものをを用い、溶質には酢酸マグネシウム四水和物(Mg(CH₃COO)₂·4H₂O)と酢酸亜鉛二水和物(Zn(CH₃COO)₂·2H₂O)を用いた。溶液中の金属イオン濃度は 0.01 mol/L とし、Mg と Zn のモル比([Mg]¹⁺=[Mg]/([Mg]+[Zn]))が 0.5、0.4、0.3、0.2 となるように調整した。成長温度は 725°C と 675°C、成長時間は 30 分とした。

3. 結果と考察

図 1 に XRD θ -2 θ 測定の結果を示す。[Mg]¹⁺=0.5~0.2 の試料において MgO 基板の 200 回折ピークの低角度側に RS-Mg_xZn_{1-x}O の回折ピークを観測し、それ以外のピークは観られなかった。また、RSM 測定から決定^[3]した MgO モル分率 x は、それぞれ 0.56、0.46、0.22、0.21 であった。このことからウルツ鉱構造へ

の相転移が懸念される組成域において、ミス
ト CVD による単結晶 RS-Mg_xZn_{1-x}O 薄膜の成
長の実現を確認した。図 2 には、[Mg]^l=0.5 で
の X 線回折における逆格子空間マッピング
(RSM)測定の結果を示す。プロットは、薄膜の
回折ピークの重心を示している。図 2 からわ
かるように、成長温度を下げることで緩和率
が低減した。これは、MgO と ZnO の熱膨張係
数差^[3]により発生する熱応力の影響が、成長温
度の低下により小さくなったためと考えられ
る。図 3 には成長温度 725°C と 675°C の
[Mg]^l=0.5 および比較として成長温度 725°C の
[Mg]^l=0.95 の表面走査電子顕微鏡(SEM)像を
示す。[Mg]^l=0.5 においては、成長温度 725°C
で見られたピットや析出物が成長温度を下げ
ることで大幅に低減することが分かった。
x=0.9 以上では 725°C において平坦な表面が得
られることが分かっているため^[4]、低 Mg 組成
の RS-MgZnO 成長では成長温度を低減する必
要があることが分かった。

4. まとめ

ミス ト CVD 法を用いて、MgO(100)基板上
に MgO モル分率 0.6 以下の Mg_xZn_{1-x}O の成長
を行った。この組成域ではウルツ鉱構造への
相転移が懸念されるが、XRD θ-2θ 測定の結果
から単結晶 RS-Mg_xZn_{1-x}O 薄膜が成長されてい
ることが分かった。また、成長温度を下げるこ
とにより、緩和率及び表面の析出物の低減が
みられ、低 Mg 組成の RS-MgZnO 成長では成
長温度を低減する必要があることが分かった。
これらの結果は、RS-MgZnO ベースの発光素
子製作に向けた重要な成果となる。

謝辞

本研究の一部はキャノン財団、科研費
(22K04952)及び工学院大学総合研究所プロジ
ェクト研究の援助を受けた。

参考文献

- [1] 太田他, 第 83 回応用物理学会秋季学術講
演会, 21a-B203-5 (2022).
- [2] I. Takeuchi *et al.*, J. Appl. Phys. **94**, 7336
(2003).
- [3] K. Ogawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **63**, 02SP30
(2024).
- [4] 小川他, 第 85 回応用物理学会秋季学術講
演会, 18p-A22-8 (2024).

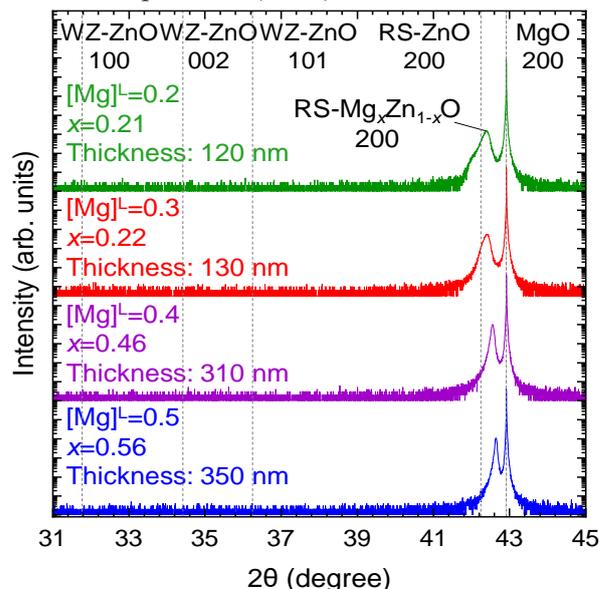


図 1. $x=0.56\sim 0.21$ における XRD θ - 2θ 測定結果

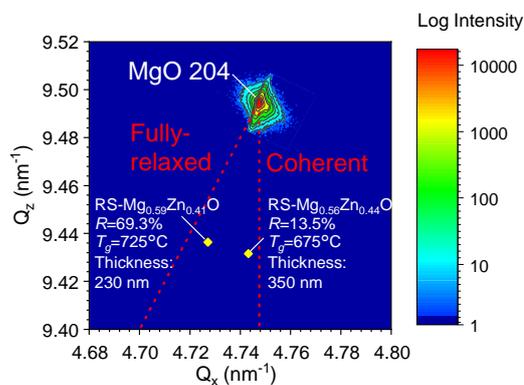


図 2. [Mg]^l=0.5 における RSM 測定結果

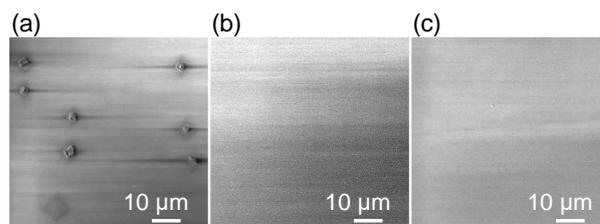


図 3. RS-Mg_xZn_{1-x}O の表面 SEM 像
(a) 成長温度 725°C ($x=0.59$)、(b) 成長温度
675°C ($x=0.56$)、(c) 成長温度 725°C ($x=0.96$)