

令和 2 年 5 月 1 日現在

機関番号：11301
研究種目：若手研究
研究期間：2018～2019
課題番号：18K13792
研究課題名（和文）ファセット構造を利用したサファイア基板上テルル化亜鉛薄膜の面方位制御技術の開発

研究課題名（英文）Development of the orientation control technique of the ZnTe epilayer on the sapphire substrate with faceted structure

研究代表者
中須 大蔵（Nakasu, Taizo）

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：40801254
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 1,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題は、サファイア基板上ZnTe薄膜の配向性を制御するため、熱処理を用いたファセット基板の作製と分子線エピタキシーにより作製したサファイア基板上ZnTe薄膜の配向性の検討を行った。熱処理によりファセット構造が生じる基板面方位は複数あった。(10-11)ファセット面上ZnTe成長を利用し、(1-100)面オフ基板上ZnTe薄膜のオフ角制御によりZnTe薄膜の面方位制御が可能である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現段階では電磁波検出素子として他の半導体周辺回路と組み合わせが容易かつ安全な材料系はZnTeのみであると考えられ、本課題は電磁波検出の改善技術として重要な位置づけである。サファイア基板に生じるファセット構造を使った薄膜の配向制御により、ZnTeの成長方位に関する新たな知見を提供することで、これまでのGaN等のサファイア基板を用いたヘテロ成長に加え、様々な材料の結晶成長を可能とする重要な情報になると考えている。

研究成果の概要（英文）：The preparation of the faceted sapphire substrate by annealing and the growth of the ZnTe epilayer on sapphire substrate with faceted structure by molecular beam epitaxy were investigated to control the orientation of the ZnTe epilayer on the sapphire substrate. The faceted structure was formed by the annealing when sapphire substrates with various orientations were used. It is possible to control the crystal orientation of the ZnTe epilayer by changing the off-angle of the (1-100) sapphire substrate.

研究分野：結晶工学

キーワード：II-VI族化合物半導体 テルル化亜鉛 サファイア 分子線エピタキシー 極点図法

1. 研究開始当初の背景

近年、光と電波の間の波長領域であるテラヘルツ波への注目が高まり、その光源や高感度検出器の研究が積極的に行われている。テラヘルツ波技術を応用すると、金属探知器では見逃されていたセラミックナイフの検知や通常の方法では探査が不可能だった封筒内に隠された薬物の検知なども可能となる等、社会的に応用範囲が広いことが既に知られている。テラヘルツ波の検出方法の1つに、電気光学効果を用いた方法がある。電気光学効果はLiNbO₃などの酸化物材料や閃亜鉛鉱構造のCdTeなどで強く発現することが知られている。酸化物材料は入射したテラヘルツ波を効率良く結晶外へ取り出すことが難しく、半導体デバイスに信号を引き渡すことが容易でない。またCdTeは環境面で問題のある材料であること、更にはデバイスやシステムの光軸調整が困難になるという問題がある。これらの問題を解消する材料として、閃亜鉛鉱構造を有するZnTeに注目が集まっている。

電気光学効果は結晶が薄いほど感度が高くなる。また他の面方位に比べて(110)面からは高い電気光学効果が得られることが知られている。これらのことから、ZnTeを用いた検出器は、(110)面配向した薄膜を用いることが好ましい。本研究では、透明で電気光学効果をほとんど示さず、しかも安価であるサファイアを基板として用い、その上に高品質なZnTe薄膜を作製することを目指した。しかし、ZnTeは立方晶、サファイアは擬似六方晶と互いの結晶構造の違いや大きな格子不整合がZnTeの単結晶化を妨げ、異なる方位を持つ複数の結晶ドメインに分かれて成長する可能性が高い。そのようなZnTe薄膜は高感度テラヘルツ波検出素子に利用することが出来ないため、ZnTe薄膜の結晶性を改善する必要がある。

従来の研究では、分子線エピタキシー法を用いてサファイアの面方位を制御することでZnTeの面方位の制御を試みてきた。サファイア基板の面方位がZnTeの面方位へ与える影響に規則性があること、また、(110)面のような無極性面では単に基板の面方位制御によって配向制御することが難しいという知見が得られた。同時に、結晶構造の違いによる結晶性低下を防ぐ試みも行っている。特に、基板に熱処理により形成される表面のファセット化や低温バッファ層の導入に注目した。サファイアを熱処理すると、表面は原子的に平坦なファセットが形成される。また、成長前に100℃程度の低い基板温度でZnTeを数nm堆積させ成長直前に高温でアニールすることで、バッファ層表面が結晶化し高品質なZnTe薄膜が得られている。

結晶成長の観点から、結晶構造の異なるヘテロエピタキシャルの系において、成長方位を自在に制御出来るかという学術的な問いが存在する。これまでの研究成果では、サファイア基板を利用して(110)面に配向制御したZnTeを作製することは困難なのか、という問いが明らかとなっていない。サファイア(0001)面や(10-11)面、(11-20)面基板上に成長させたZnTe薄膜は格子不整合による結晶性低下という問題はあるものの良好なエピタキシャル成長をしている。この配向関係を利用し、サファイア基板上ZnTe薄膜の配向性が制御できないか問われる。また、基板の熱処理や低温バッファ層による結晶性の改善に関する知見を俯瞰し、結晶構造の異なるヘテロエピタキシャル成長に関する良好な結晶成長条件について調査したい。

2. 研究の目的

解明しつつあるサファイア基板上ZnTe薄膜の成長機構を利用することでZnTe薄膜の配向を制御し、様々な成長技術の改良によって単一ドメイン配向で大面積ドメインとして作製することを目的とする。また、その薄膜を用いたテラヘルツ波受光デバイス応用に関する知見を得ることを目的とする。

ZnTeにおいて結晶構造の異なる基板の面方位を変化させ、薄膜の面方位を制御するという提案を行ってきた。しかし、(110)のような無極性面ではサファイア基板の面方位制御によって配向制御することが難しいということで課題があった。その課題の解決策として、サファイア基板上に形成可能なファセット構造というものに注目した。

一般的には、サファイア基板を熱処理すると、原子高さのステップと平坦なテラスからなるファセット構造が形成される。しかし、(1-100)面のサファイア基板では、表面に(1-102)面と(10-11)面で構成された周期的なファセットが生じるという報告がある。このナノオーダーのファセット構造が周期的に表面に現れた基板上にZnTeを作製すると、(10-11)の原子配列の影響を受けたZnTeが配向するという結果が得られた。そこで、ファセット構造を利用し、ファセットの原子配列によりZnTeの配向を制御することで基板表面に特定の面が出ることを調整するという着想に至った。熱処理で基板表面にファセット構造が現れる面方位基板を調査すること、ファセットの生じる基板自体に傾き(オフ角)をつけ薄膜の面方位を制御することを目的の一つとした。

3. 研究の方法

熱処理により表面にファセット構造が形成される基板面方位の調査は、各種面方位基板やオフ角を設けた基板を大気下、1300 以上、10 h 以上の条件で熱処理し、原子間力顕微鏡による表面観察や透過型電子顕微鏡による断面観察により行った。ファセット面を形成させたサファイア基板上 ZnTe 薄膜の作製には分子線エピタキシーを用いた。特に、基板と薄膜の間に挿入するバッファ層とそのアニールは引き続き行われる薄膜成長に対して大きな影響を与えるため、バッファ層の形成条件の最適化には細心の注意を払った。X 線回折極点図法によりドメイン分布を評価し、サファイア基板と ZnTe 薄膜の面内方向の配向関係を詳細に検討した。

4. 研究成果

7 種類の異なる面方位の基板やそれらにオフ角を設けた基板を熱処理し、その基板表面を観察した結果、(11-20)面にわずかなオフ角を設けた基板においても(1-100)面基板の方向と同様の周期的な nm オーダーの構造が形成された。これは(11-20)面のテラスと nm オーダーのステップを有するステップ-テラス構造であることが断面の観察から明らかとなった。これらの結果から、(1-100)面と(11-20)面の基板では nm オーダーの異なる 2 種類の面方位からなるファセット基板が得られた。

サファイア(1-100)面基板にオフ角を設けると、熱処理により表面にナノファセット構造が形成されるまでの時間(潜伏時間)に変化が生じた。特に、[1-102]方向にサファイア(1-100)面基板を傾けたとき、ジャストのサファイア(1-100)面基板よりもはるかに潜伏時間が長いことが明らかになった。[1-102]方向に傾いたサファイア(1-100)面基板においても熱処理時間を長く伸ばすことで、より安定で周期的なナノファセット構造を得ることが出来るようになることが明らかになった。

ZnTe(111)//サファイア(10-11)の方位関係を利用し、ZnTe の配向制御を試みるため、(10-11)ファセット面が表面に形成される(1-100)面オフ基板上 ZnTe 薄膜成長に注目した。(1-100)面基板の[1-102]方向へのオフ角の大きさに従い、表面上の(1-102)ファセット面の表面積に占める割合が増加するため、(10-11)面由来の ZnTe 配向の阻害が考えられる。(1-102)面と(10-11)面の表面積の割合がサファイア基板上 ZnTe 薄膜の配向ドメインに及ぼす影響の解明のため、極点図解析により ZnTe 薄膜の配向性を詳細に検討した。(10-11)ファセット面を有する(1-100)面ジャスト基板上 ZnTe の X 線回折ピークの半値幅が最も小さい作製条件を用い、オフ角を変化させた基板に成長を行ったところ、(1-102):(10-11)=1:1 より(1-102)面の割合が少しでも大きくなると、(1-102)面由来の ZnTe 配向の割合が(10-11)面由来の配向より支配的となった。現状の成長条件では、ファセット基板上 ZnTe 成長は表面における面積の割合が大きなファセット由来の成長が支配的になることから、(10-11)ファセット面を利用した ZnTe 薄膜の配向性制御には薄膜作製条件の検討が必要である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 中須大蔵, 小林正和
2. 発表標題 分子線エピタキシー法を用いた各種面方位サファイア基板へのZnTe結晶成長
3. 学会等名 第5回ZAIKENフェスタ
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Nakasu, M. Kobayashi, and T. Asahi
2. 発表標題 Epitaxial Relationship Analysis of MBE grown ZnTe/sapphire Structure
3. 学会等名 20th European Workshop on Molecular Beam Epitaxy (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考