

# ワイドギャップ半導体酸化亜鉛の高品質量子ヘテロ構造の開発

## Development of high quality quantum heterostructure of a widegap semiconductor ZnO

研究代表者 東北大学金属材料研究所 助手 福村 知昭  
Institute for Materials Research, Tohoku University,  
Research Associate, Tomoteru FUKUMURA

### 和文アブストラクト

酸化亜鉛は酸化物半導体の一つで古くから知られている材料で、今まで触媒、化粧品、透明導電膜などに用いられてきた。しかし、室温紫外レーザー発振が見つかって以来、半導体として見直されはじめている。様々な半導体量子デバイスへと展開するには、量子ヘテロ構造の作製が不可欠である。そこで、原子レベルで平坦な表面を有する良質な酸化亜鉛の作製と酸化亜鉛に対してヘテロエピタキシャル成長する材料を決定し、酸化亜鉛をベースとした量子ヘテロ接合作製のための土台とする。量子ヘテロ構造が実現すれば、高移動度トランジスタ、電界効果型トランジスタ、量子カスケードレーザーといった量子デバイスへの展開が開かれる。酸化亜鉛は透明であるため、窓ガラスに透明な電子回路を作りつけたりして省エネ・省スペースに役立たせることが可能である。

### Abstract

High-quality interface between an insulator and ZnO as a wide-band-gap semiconductor should realize devices based on field-effect carrier modulation or superlattices. We demonstrate heteroepitaxy of LiGaO<sub>2</sub> on ZnO films giving atomically sharp interface and fairly good exciton-related optical properties in the ZnO underlayer. In addition, we demonstrate an operation of a field effect transistor having single crystalline ZnO channel.

### 1. 研究目的

酸化亜鉛 (ZnO) は酸化物半導体の一つで古くから知られている材料で、今まで触媒、化粧品などに主に用いられてきた。電子デバイス材料としての用途もあったが今までは透明導電膜として用いられることが

ほとんどであった。最近になって室温紫外レーザー発振が見つかって以来、エレクトロニクス材料として見直されはじめている。現在では単結晶レベルの品質の薄膜の作製も可能になってきており、電界効果トランジスタへの応用研究も始まっている。この

材料のエレクトロニクスへの応用には、量子ヘテロ構造の作製が不可欠である。そこで、原子レベルで平坦な表面を有する良質な ZnO の作製と ZnO に対してヘテロエピタキシャル成長する材料を決定し、ZnO をベースとした量子ヘテロ接合作製のための土台とする。そして、実用化レベルのデバイス特性を見据えた電界効果トランジスタの作製も行う。ZnO は透明であるため、窓ガラスに透明な電子回路を作りつけたりして省エネ・省スペースに役立たせることが可能である。本研究が「透明酸化物エレクトロニクス」に寄与することが期待される。

## 2. 研究経過

### 2.1 高品質 ZnO エピタキシャル薄膜上へのワイドギャップ絶縁層 LiGaO<sub>2</sub> のヘテロエピタキシャル成長

一般に化合物半導体は酸化すると界面特性が良くないため、Si に対する SiO<sub>2</sub> のよう

な良好な絶縁性酸化物がない。一方で、ZnO のような酸化物半導体は元々酸化されている材料であるため、絶縁性酸化物の選択肢は豊富である。したがって、界面特性を低下させないような ZnO との格子整合性の良い絶縁性酸化物を選べば、ZnO の量子ヘテロ構造の絶縁層として有用であることが期待される。Figure 1 に示すように、LiGaO<sub>2</sub> は、ZnO のウルツ鉱構造において Zn サイトを Li と Ga を交互に並べた構造を持ち、さらに格子非整合も 1.5% と小さい。したがって、ZnO 上へのヘテロエピタキシャル成長に適している。しかし、今まで LiGaO<sub>2</sub> 薄膜を ZnO 上にヘテロエピタキシャル成長した報告は無かった。

エキシマレーザーを用いたパルスレーザー堆積法を用いて量子ヘテロ構造を作製した。まず、ScAlMgO<sub>4</sub> (0001) 基板上に ZnO (0001) 薄膜をエピタキシャル成長させ、その ZnO 薄膜上に LiGaO<sub>2</sub> (001) 薄膜を堆積させた。成長条件は基板温度 600°C、酸素分圧  $1 \times 10^{-5}$  Torr である。LiGaO<sub>2</sub> 薄膜の(002)ブラッグピークの半値幅は 0.16° と結晶性が高いことが示された。同様に  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001) 基板上への成長を試みたが、ZnO と LiGaO<sub>2</sub> ともに大きな格子非整合性を持つため、良質なヘテロ構造の作製はできなかった。

Figure 2 に作製したヘテロ構造の逆格子マッピングを示す。ScAlMgO<sub>4</sub> 基板上に ZnO 薄膜がコヒーレント成長を示していることがわかる。一方、LiGaO<sub>2</sub> 薄膜はバルクとほぼ同じ格子定数を示し、リラックスしていることがわかる。 $\phi$  スキャンの測定から、

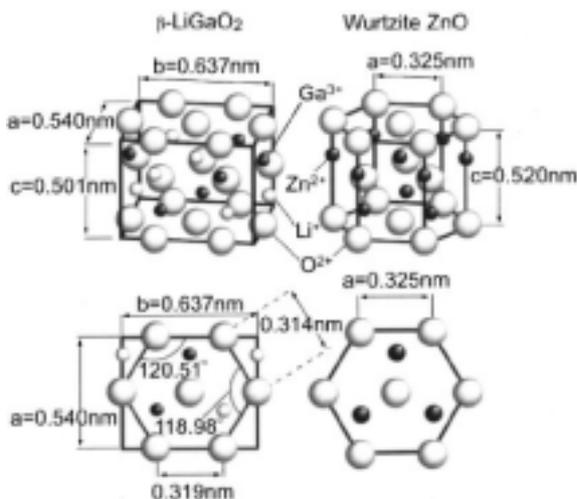


Fig. 1 Crystal structures and basal-plane atomic arrangements for  $\beta$ -LiGaO<sub>2</sub> and wurtzite ZnO.

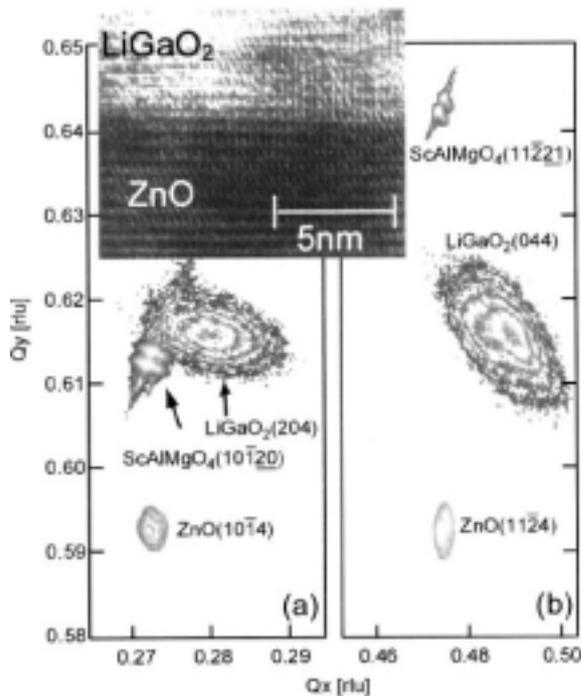


Fig. 2 The reciprocal mapping around (a) (204) and (b) (044) diffractions of LiGaO<sub>2</sub> in a heterostructure of LiGaO<sub>2</sub> (250 nm)/ZnO (80 nm)/ScAlMgO<sub>4</sub> substrate. The inset shows a cross-sectional transmission electron microscope image of LiGaO<sub>2</sub>/ZnO interface.

LiGaO<sub>2</sub> 薄膜が面内に 120° ずつ回転した 3 個のドメイン構造を有していることがわかった。Figure 2 の挿入図は LiGaO<sub>2</sub>/ZnO 界面の透過型電子顕微鏡像であるが、界面が急峻で析出物が無いことがわかる。

Figure 3 の挿入図から、3.3 eV 付近の ZnO の励起子共鳴吸収を除けば 5 eV 以上まで透明であり、バルク LiGaO<sub>2</sub> のバンドギャップの 5.6 eV とコンシステントであることがわかる。Figure 3 のフォトルミネッセンススペクトルから、ZnO の 3.3 eV の束縛励起子の発光が観測され、深い準位の発光は見えていない。したがって、LiGaO<sub>2</sub> を積層したこ

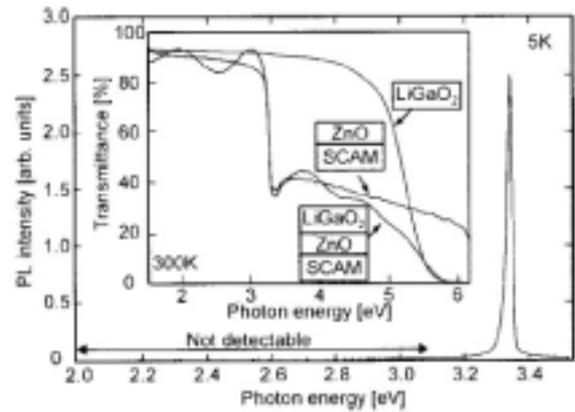


Fig. 4 Photoluminescence spectrum at 5 K for LiGaO<sub>2</sub> (200 nm)/ZnO (20 nm)/ScAlMgO<sub>4</sub> heterostructure. Inset shows transmittance spectra at 300 K for LiGaO<sub>2</sub> single crystal, ZnO (50 nm)/ScAlMgO<sub>4</sub> substrate, and LiGaO<sub>2</sub> (200 nm)/ZnO (50 nm)/ScAlMgO<sub>4</sub> heterostructure.

とによって、ZnO 薄膜が劣化していないことがわかる。

## 2.2 高品質 ZnO エピタキシャル薄膜を用いた金属-絶縁体-半導体構造電界効果トランジスタの作製

ScAlMgO<sub>4</sub> 基板上に ZnO エピタキシャル

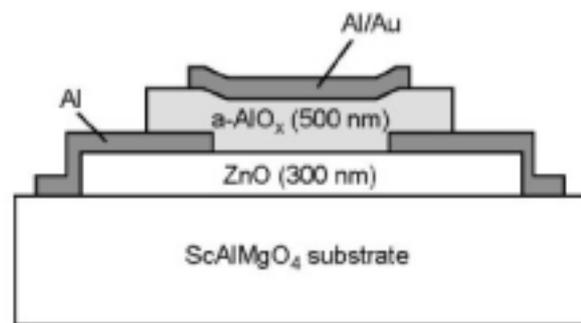


Fig. 4 Cross-sectional view of ZnO metal-insulator-semiconductor field effect transistor.

薄膜を作製した。電界効果トランジスタの作製プロセスは通常の写真リソグラフィを用いて、大気暴露下で行った。Figure 4 にトランジスタの断面構造を示す。ソースおよびドレイン電極は Al を用いた。ゲート絶縁体はアモルファス  $\text{AlO}_x$  を電子ビーム蒸着で作製した。ゲート電極は Al/Au を用いた。デバイス特性を室温で測定した結果、電界効果移動度が  $40 \text{ cm}^2/\text{Vsec}$  という高い値を示した。

### 3. 研究成果

最近、紫外発光材料として注目されている ZnO の量子ヘテロ構造作製のための、ワイドギャップ絶縁体として  $\text{LiGaO}_2$  が有用であることを見出した。また、ZnO の高品質エピタキシャル薄膜を用いて電界効果トランジスタを作製した結果、電界効果移動度が  $40 \text{ cm}^2/\text{Vsec}$  という高い値を示した。

### 4. 今後の課題と発展

発光デバイスとしての量子ヘテロ構造の作製には、本研究で見つけた  $\text{LiGaO}_2$  以外にも探索する必要がある。 $\text{LiGaO}_2$  薄膜の最適化に加えて色々なワイドギャップ絶縁体の探索を行っていく予定である。ZnO エピタキシャル薄膜との界面特性の良好な絶縁層が実現できれば、ZnO をベースとした量子エレクトロニクスが大きく展開する可能性がある。

電界効果トランジスタの研究に関しては、本研究のように、単結晶薄膜を用いてどれだけトランジスタ特性を向上できるかとい

う高品質化の方向と、実際のデバイスプロセスを利用したアモルファス薄膜でどれだけ実用レベルに迫れるか、という二つの方向がある。前者は酸化物半導体デバイスの基礎物性として、後者はアモルファスシリコンに置き換わるデバイスとして重要であるため、現在引き続き研究を行っている。実用化されているアモルファスシリコントランジスタの電界効果移動度を凌駕する可能性があるため、今後の展開に期待が持てる。

現在、デバイスシミュレーションを用いて、実験データを説明できるデバイスモデルを構築中である。

### 5. 発表論文リスト

“Heteroepitaxial growth of  $\beta\text{-LiGaO}_2$  thin films on ZnO”

I. Ohkubo, C. Hirose, K. Tamura, J. Nishii, H. Saito, H. Koinuma, P. Ahemt, T. Chikyow, T. Ishii, S. Miyazawa, Y. Segawa, T. Fukumura, M. Kawasaki

J. Appl. Phys. **92**, 5587-5589 (2002).

“ZnO Metal-Insulator-Semiconductor Field-Effect-Transistors” (投稿中)

J. Nishii, A. Ohtomo, T. Fukumura, K. Ohtani, F. Matsukura, Y. Ohno, H. Ohno, M. Kawasaki  
“Modeling and simulation of polycrystalline ZnO thin film transistors” (投稿準備中)

F. M. Hossain, J. Nishii, S. Takagi, A. Ohtomo, T. Fukumura, H. Fujioka, H. Ohno, H. Koinuma, M. Kawasaki