

Mist CVD 法を用いた(001)SrTiO₃ 基板上 Cu₃N 成長Cu₃N Growth by Mist CVD on (001)SrTiO₃ Substrate

工学院大学, °(M1)月岡 知里, 吉田 将吾, 杉田 直樹, 永井 裕己, 尾沼 猛儀, 本田 徹, 山口 智広

Kogakuin Univ., °(M1) C. Tsukioka, S. Yoshida, N. Sugita,

H. Nagai, T. Onuma, T. Honda and T. Yamaguchi

E-mail: cm24031@ns.kogakuin.ac.jp

[はじめに]

窒化銅(Cu₃N)は、地球上に豊富に存在する窒素と銅で構成される半導体材料である。約1.0 eVのバンドギャップを持ち、可視光領域で高い光吸収係数を有することから、希少元素を含まない薄膜太陽電池材料への応用が期待される^[1]。本研究室では、ミスト化学気相成長(Mist Chemical Vapor Deposition: Mist CVD)法を用いてα-Al₂O₃基板上へのCu₃N成長に成功している^[2]。しかし、成長温度300°Cの条件において、[001]_{Cu₃N}//[0001]_{α-Al₂O₃}配向を有する単相Cu₃Nを得たものの、成長面内での回転ドメイン形成を報告している。さらに、成長温度の違いによる結晶配向性の変化を確認している^[2]。これは、Cu₃Nとα-Al₂O₃の結晶系が異なることが要因と考えられる。回転ドメイン形成を抑制し単結晶Cu₃N薄膜を得るために、新たな基板としてCu₃Nと同じ結晶系で格子定数が近いSrTiO₃に注目した。本研究では、Mist CVD法を用いてSrTiO₃基板上へのCu₃Nの結晶成長と、その配向性を評価した。

[実験]

縦型 Mist CVD 装置を用いて、(0001)α-Al₂O₃基板上と(001)SrTiO₃基板上にCu₃Nの結晶成長を試みた。原料溶液は100 mLとし、Cu(C₂H₃O₂)₂を0.020 mol/Lになるように濃度28%のアンモニア水(NH₃(aq.))を用いて調製した。調製した原料溶液は、周波数2.4 MHzの超音波振動により霧状にし、ガスを用いて基板に輸送した。成長温度は200~500°Cで変化させ、成長時間はいずれも60 min.とした。また、キャリアガスと希釈ガスには共にN₂ガスを用い、ガス流量は、それぞれ3.0 L/min., 0.3 L/min.とした。試料の配向性をX線回折(XRD)装置で調べた。

[結果]

成長温度300°Cの条件において、XRD θ-2θ測定結果より、α-Al₂O₃基板上、SrTiO₃基板上で共に[001]配向の単相Cu₃Nを得た。各基板上における、111 Cu₃Nに対するXRD φ scan測定結果をFig. 1に示す。α-Al₂O₃基板上ではCu₃Nの12本の回折ピークを観測した。[001]配向Cu₃Nに対し{111}面は、4回の面内対称性を持つため、測定結果より結晶が30°ずつ回転して成長していることがわかる。一方、SrTiO₃基板上ではSrTiO₃と同φ位置にCu₃Nの4本の回折ピークを得たことから、結晶が基板面内で回転することなく[110]_{Cu₃N}//[110]_{SrTiO₃}の配向関係を持った単結晶膜として成長した。また、各成長温度で成膜した試料のXRD θ-2θ測定結果より、α-Al₂O₃基板上では、250~350°Cで[001]配向の単相Cu₃N、400°C以上で[111]配向Cu₃Nの混入を確認したのに対し、SrTiO₃基板上では、250~400°Cで[001]配向の単相Cu₃N、450°C以上で[111]配向Cu₃Nの混入を確認し、α-Al₂O₃基板上よりも広い成長温度域で[001]配向の単相Cu₃Nが得られた。

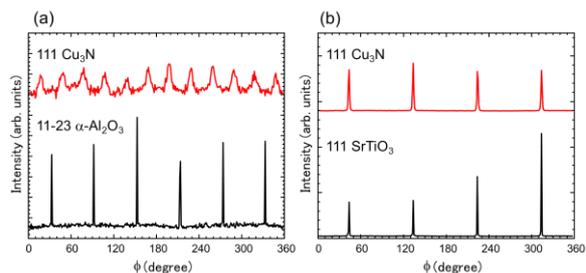


Fig. 1. Results of XRD φ scan for samples on (a) α-Al₂O₃ and (b) SrTiO₃ substrates grown at 300°C.

[参考文献]

- [1] K. Matsuzaki *et al.*, *Adv. Mater.* **30**, 1801968 (2018).
 [2] T. Yamaguchi *et al.*, *Appl. Phys. Express* **13**, 075505 (2020).