

# スパッタリング法で成膜した ZnO 薄膜の酸素分圧依存性と熱処理効果

1180083 杉浦 怜也 (光・エネルギー研究室)  
 (指導教員 李 朝陽 教授)

## 1. 背景と目的

現在、半導体薄膜の材料としてインジウムを主原料とした薄膜が高性能な特徴を有するため工業製品、半導体デバイス等に広く用いられている。高性能な特徴を有する反面、インジウムは希少金属でありコストも高く、供給の安定性に疑問があり、近年の需要の増大もあって、現在のままでは枯渇の危機すらあるといわれている。そこで、理論的にはインジウムを用いた半導体薄膜と同等以上の特性を持ちうる酸化亜鉛薄膜に注目し、蛍光体やフラットパネルディスプレイ、薄膜太陽電池への応用を目指し研究を進めている。

本研究では、デバイス性能の向上に欠かすことのできない酸化亜鉛の結晶欠陥の制御に着目し、結晶性の向上を目指して成膜時における酸素分圧依存性を評価及び分析により、良好な成膜条件について考察すること。また、成膜した酸化亜鉛に熱処理を施し、酸化亜鉛の結晶性の向上とナノ構造の成長における酸素分圧依存性の影響を分析及び評価により解析を行うことを目的とした。

## 2. 実験方法

本研究は酸化亜鉛薄膜を RF マグネトロンスパッタ法で、ガラス基板上とアルミニウムドープ酸化亜鉛 (以下 AZO) 上に成膜した。成膜時のスパッタガスには酸素とアルゴンを用いて、2つのガスの割合を変更し、酸素濃度 100%、75%、50%、25%、0%の条件で成膜を行った。

また、成膜後の薄膜に熱処理を加えて、薄膜の結晶欠陥の改善を試みた。さらに、水素による熱処理を行うことで酸化亜鉛のナノ構造を成長させた。水素による熱処理はプロセスの最適化によるナノ構造の成長の様子を比較した。水素による熱処理プロセスを表 1 に示す。

それぞれの実験での酸素濃度依存性を構造特性、光学特性、電気的特性の分析を行うことで評価した。

表 1. 水素による熱処理のプロセス

温度(°C)	ガス	時間 (分)	ステップ名
300	FG	120	予備アニーリング
450	FG	180	
450	O <sub>2</sub>	40	サイクル 1
450	FG	120	
450	O <sub>2</sub>	40	サイクル 2
450	FG	120	
450	O <sub>2</sub>	40	サイクル 3
450	FG	120	

## 3. 実験結果

図 1 の AZO 基板上の酸化亜鉛薄膜の X 線回折パターンから、酸化亜鉛の C 軸上に結晶が成長していることを示す (002) ピークは酸素濃度 50% の酸化亜鉛薄膜が最もピーク強度が高い。図 2 の XRD 回折による、薄膜内部の残留応力とピークの角度のシフトの解析結果より、酸素濃度が高くなるにつれて薄膜内部の残留応力が小さくなり -1GPa 程度の応力が薄膜に生じていることが分かり、酸素濃度 25% のピークの角度が酸化亜鉛のバルク状態でのピークの角度、34.42° に最も近く、酸素濃度が高くなるにつれてピークの角度が小さくなる傾向にあることが分かった。

水素による熱処理を行い、ナノ構造の様子を観察するため

にトップ面と断面の測定を行った。図 3 に示す酸素濃度 25% の SEM 像より、酸化亜鉛のナノ構造が C 軸上に成長していることが分かった。また、熱処理の時間経過に伴い酸化亜鉛が還元反応によりエッチングされ、酸化亜鉛の層の厚みが減少していることが分かった。

## 4. まとめ

成膜時のスパッタガスに酸素とアルゴンを用い、導入する酸素の割合を変更して作製した酸化亜鉛薄膜は、酸素濃度依存性を持つことが分かった。酸素濃度 50% のピーク強度が最も高く、薄膜内部の残留応力も少ないため結晶状態が良いことが分かった。

水素による熱処理で酸化亜鉛のナノ構造の C 軸方向への成長が確認できた。酸化亜鉛薄膜は、水素による異なる熱処理プロセスにより酸化亜鉛ナノ構造の結晶性の向上が確認でき、結晶の成長が制御できることを確認した。

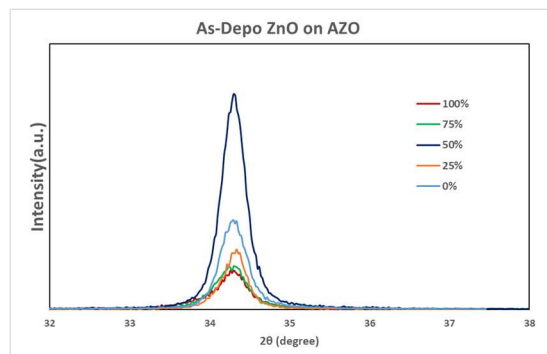


図 1. X 線回折パターン

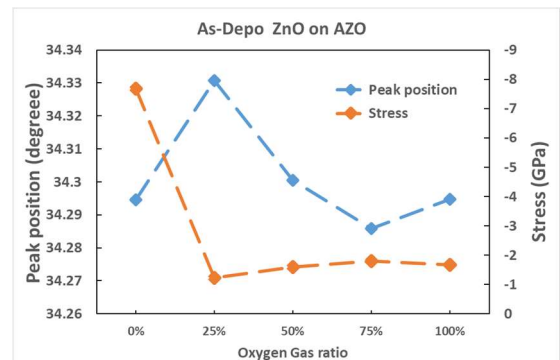


図 2. 薄膜内部の残留応力とピークの角度のシフト

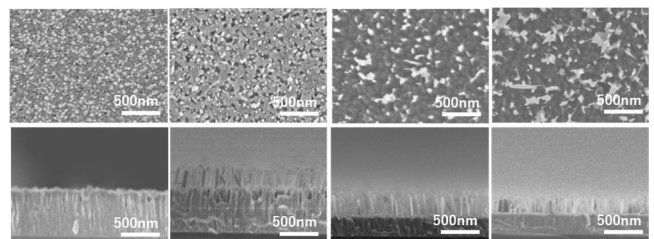


図 3. 酸素濃度 25% の水素によるアニーリング処理の SEM 像 (左から、予備アニーリング、サイクル 1、2、3)