

RF マグネトロンスパッタ法で成膜した下地 ZnO 膜が GZO 膜に与える効果

1200069 清水 義弘 (機能性薄膜工学研究室)

(指導教員 牧野 久雄 教授)

1. 背景と目的

本研究では、液晶ディスプレイや太陽電池の透明電極として期待されている、酸化亜鉛(ZnO)透明導電膜について研究を行った。ZnO は Zn が表面に表れる Zn 極性と O が表面に表れる O 極性の 2 つの極性がある。極性の異なる ZnO 膜上にガリウム(Ga)を添加した ZnO(GZO)を堆積させた膜が評価されており、Zn 極性上の GZO は O 極性上の GZO より電気特性がよい[1][2]。しかし、極性の制御が異なる成膜法であり、下地 ZnO の電気特性が GZO 膜の電気伝導性評価に影響を与えている可能性があるなど、極性による違いのみかという点で懸念がある。そこで、本研究では、RF マグネトロンスパッタ法で成膜した Zn 極性と O 極性の高抵抗 ZnO 膜上に GZO 膜を堆積させ、極性が電気特性に与える効果を検討することを目的とした。

2. 実験方法

RF マグネトロンスパッタ法で成膜する際、Ar と同時に酸素を流入して成膜すると Zn 極性 ZnO 膜ができ、この膜の下層に Ar のみを流入して 2 段階成膜すると O 極性になる[3]。本研究では、この極性制御における成膜条件について詳細な検討を行った。下地 ZnO 膜は RF マグネトロンスパッタ装置を用いて 10cm 角の無アルカリガラス基板に基板温度 300°C で成膜した。Zn 極性は酸素流量依存性について、O 極性は酸素流量依存性と Ar のみを流入したバッファ層膜厚依存性について検討し、極性制御された高抵抗な ZnO 膜の成膜を試みた。評価は X 線光電子分光法による極性評価と 2 重リング法によるシート抵抗の評価を行った。その後、極性制御した高抵抗 ZnO 膜上に DC マグネトロンスパッタ法で ZnO : Ga₂O₃(4w%)のターゲットを使用し GZO 膜を堆積させ、Hall 効果による電気特性評価を行った。また、下地 ZnO の膜厚は 200nm とし、GZO の膜厚は 50nm とした。

3. 実験結果・考察

3.1. 下地 ZnO 膜の検討

極性制御された高抵抗な ZnO 膜の成膜を検討した。X 線光電子分光法により ZnO 膜の価電子帯スペクトルを図 1 に示す。

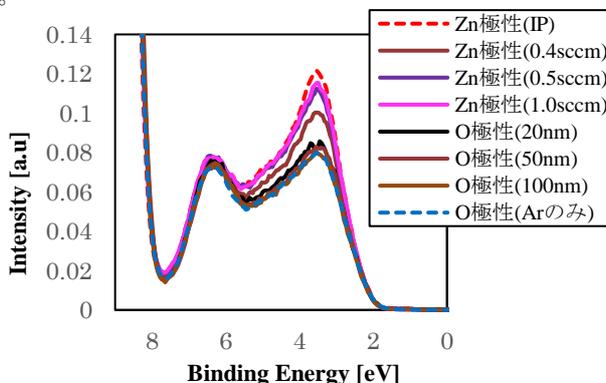


図1 ZnO膜の価電子帯スペクトル

Zn 極性は酸素流量を増やすことで Zn 極性に制御することができ、O 極性は Ar のみを流入して成膜したバッファ層の膜厚を厚くすることで O 極性に制御することが出来た。

シート抵抗の評価において、Zn 極性は酸素流量を 0.4sccm から 0.5sccm にした時、シート抵抗が 4 桁上がったが、0.5sccm から 1.0sccm と 2 倍の流量にしても $R_s=10^{11}[\Omega/\square]$ 台であり大

きな変化がなかった。O 極性ではバッファの膜厚によらず酸素流量を増やすことによりシート抵抗が高くなったが、酸素流量 1.0sccm の時、 $R_s=10^8[\Omega/\square]$ 台にとどまった。しかし、2 段階成膜した時の方が従来の Ar のみで成膜した時よりもシート抵抗が 4 桁高くなった。また、Zn 極性は O 極性よりも高抵抗化しやすいことが分かった。

これらのことから、Zn 極性は酸素流量によって極性とシート抵抗を制御でき、O 極性の極性はバッファの膜厚によって、シート抵抗は酸素流量によって制御できることが分かった。

3.2 ZnO 上 GZO 膜の検討

3.1 の結果から、Zn 極性は酸素流量を 1.0sccm にし、O 極性は Ar のみバッファ層の膜厚を 100nm 成膜後、酸素流量 1.0sccm 流入させて堆積させた膜をそれぞれ極性制御された高抵抗 ZnO 膜としてこの上に GZO を堆積させた。基板中心からの距離 1、2、3、4、5cm を横軸とした時、Hall 効果による抵抗率を図 2 に示す。

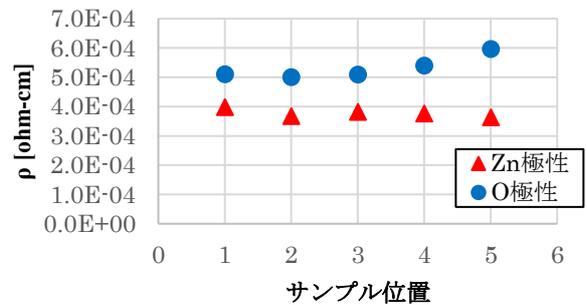


図2 GZO膜の抵抗率

抵抗率は Zn 極性の方が O 極性に比べて低い。また、O 極性は基板中心から離れるほど抵抗率が高くなった。基板中心付近の試料の移動度は、Zn 極性は 25.1[cm²/V-s]、O 極性は 20.1[cm²/V-s]となった。Zn 極性の移動度が O 極性に比べて高いことが分かった。キャリア密度は、Zn 極性は $6.3 \times 10^{20}[\text{cm}^{-3}]$ 、O 極性は $6.1 \times 10^{20}[\text{cm}^{-3}]$ となった。わずかに Zn 極性のキャリア密度が大きいことが分かった。以上から、Zn 極性上 GZO は O 極性上 GZO より電気特性が良く、従来の傾向と一致した。下地の極性の違いによって GZO 膜の電気特性に影響を与えていると考えられる。また、X 線光電子分光法による GZO 膜の価電子帯スペクトルは下地 ZnO の極性に依存がなく Zn 極性を示した。O 極性上では極性が反転していることを示唆しており、その影響が移動度の違いを引き起こした可能性が考えられる。

4. まとめ

RF マグネトロンスパッタ法で酸素流量と 2 段階成膜の条件を検討し、Zn 極性と O 極性の 2 つの極性が制御された高抵抗 ZnO 膜の成膜が実現した。高抵抗 ZnO 上 GZO 膜は Zn 極性上でより低抵抗になり、従来の傾向と一致した。本研究より、下地 ZnO の極性が GZO 膜の電気特性に強く影響を与えていることが明確になった。

参考文献

- [1] Lukman Nulhakim, Phys. Status Solidi RRL 10, No.7, pp535-539 (2016)
 [2] 清水寛之, 高知工科大学シス工, 卒業研究報告 H29 年
 [3] 片岡隼風, 高知工科大学シス工, 卒業研究報告 H31 年