プラズマ支援ミスト CVD 法による酸化亜鉛薄膜の低温形成と評価

Low Temperature Formation of ZnO Films by Plasma-Assisted Mist-CVD

熊大院自然科学[1], 株式会社ニコン[2], 熊大院先導機構[3], 熊大パルス研[1,4], 熊大院先端科学[5], 熊本有機薄膜[6]
○城戸 智孝[1],御厨 丈輝[1],杉野 玲奈[1],
西康孝[2],中積誠[2],岩堀恒一郎[2],谷田部然治[1,3],浪平隆男[1,4],中村有水[1,5,6]
GSST.Kumamoto Univ[1],Nikon Corporation[2],POIE Kumamoto Univ[3]IPPS.Kumamoto Univ[4],FAST. Kumamoto Univ[5],Phoenics[6]
T.Kido[1],T.Mikuriya[1],R.Sugino[1],Y.Nishi[2],M.Nakazumi[2],K.Iwahori[2],Z.Yatabe[1,3],T.Namihira[1,4],Y.Nakamura[1,5,6]

1.研究背景

透明導電酸化物(TCO)はディスプレイや太陽電池などの様々なデバイスに用いられており、低価格化が求められている。そこで安価な酸化亜鉛(ZnO)が注目されている。

本研究では、さらなる低価格化を目指して大気圧で成膜可能なミスト CVD 法[1]に非熱平衡プラズマを組み合わせることにより低温での Ga ドープ ZnO 薄膜の形成を目的としている。低温成膜の実現により、ポリエチレンテレフタレート(PET)等のプラスチックフィルムに ZnO 膜を形成することができると、フレキシブルデバイスへの応用や TCO の低価格化に繋がると期待される。

2.実験方法

本実験で用いたプラズマ支援ミスト CVD 法の装置概略図を図 1(a)に示す。原料溶液を超音波振動子にてミスト化させ、そのミストをキャリアガスにて石英炉に搬送し、プラズマ発生用電極間を通過して基板に到達させ、ホットプレートの熱エネルギーと低温プラズマのエネルギーを用いて低温での薄膜形成を可能としている。実験条件として、基板には石英ガラスを用いており、基板温度は 200℃である。キャリアガスには Ar を使用し、流量は 3L/min とした。溶液は $Zn(acac)_2$、0.1mol/L と Ga のドープ源として $Ga(acac)_3$、3×10^{-4}mol/L を水とメタノールの混合溶液(水：メタノール=1:4)に溶解し作製した。本実験では Ga 仕込み量を変化させ試料を作製し、その後 UV 照射を行い、抵抗率の評価を行った。

3.実験結果と考察

測定した抵抗率の Ga 濃度依存性を図 2(a)に示す。Ga 仕込量 3%の条件において 2.4 Ω cm の抵抗率が得られた。またグラフから Ga 仕込み量 0~3%の領域では Ga 増加に伴って抵抗率の低下が見られ、それ以上では抵抗率の増加が見られた。抵抗率の低下した領域では Ga 濃度増加によるキャリア密度増加が寄与し、それ以上の領域では膜中の Ga が薄膜の結晶性を悪化させたことが原因となり抵抗率の増加に繋がったと考えられる。

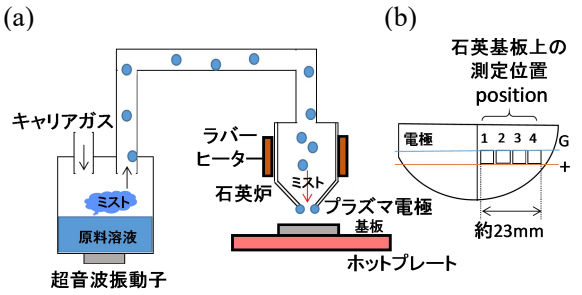

図 1:プラズマ支援ミスト CVD 装置概略図と測定位置

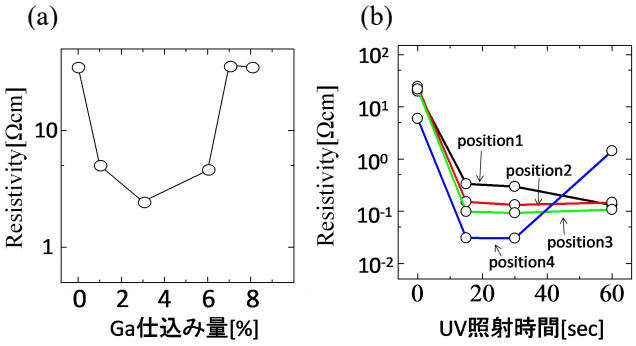

図 2:抵抗率測定結果

次に抵抗率が最小となった Ga 仕込み量 3%の試料の UV 照射後における抵抗率の測定結果を図 2(b)に示す。また基板上の測定位置を図 1(b)に示した。UV 照射した試料のすべての測定位置で抵抗率が低下しており position4 において 3.0×10^{-2} Ω cm の抵抗率が得られた。この抵抗率の減少は薄膜中の炭素を含む不純物が減少、あるいは OH 基が脱離し、薄膜中のキャリア密度が増加したためと考えられる[2]。

4.結論

本実験では Ga 仕込み量を変化させ試料を作製し、その後 UV 照射を行い、抵抗率を評価した。その結果、UV 照射による抵抗率の低下が見られ、大気圧、基板温度 200℃、Ga 仕込み量 3%の試料において 3.0×10^{-2} Ω cm の抵抗率が得られた。

5.参考文献

[1] T. Shirahata,et.al.,Thin Solid Films **597** (2015) 30.
[2] B.Cho,et.al.,Royal Soc.Chem. Adv. **6** (2017) 69027.

© 2018年 応用物理学会