Sn 添加 In_2O_3 非晶質薄膜における結晶化その場観察In-situ observation of crystallization of amorphous Sn-doped In_2O_3 films

高知工科大総研¹, (株)リガク², 住友重機械工業(株)³ ◯古林寛¹, 小林信太郎², 前原誠³, 北見尚久^{1,3},
酒見俊之³, 稲葉克彦², 山本哲也¹

Research Inst., Kochi Univ. Tech.¹, Rigaku Corp.², Sumitomo Heavy Industries, Ltd.²,

◯Y. FURUBAYASHI¹, S. KOBAYASHI², M. MAEHARA³, H. KITAMI^{1,3},

T. SAKEMI³, K. INABA², and T. YAMAMOTO¹

E-mail: furubayashi.yutaka@kochi-tech.ac.jp

はじめに: 非晶質 In_2O_3 (a -IO)から熱的に多結晶化 (p -IO) させた IO 薄膜は高ホール移動度を呈するため、太陽電池電極への応用が進んでいる [1]。一方、 a -IO の結晶化機構の研究は多く存在するものの、同一組成において成膜条件に焦点を当てた報告は皆無である。そこで、本研究では、同一蒸着源を用いて様々な成長条件により成膜した非晶質 Sn 添加 In_2O_3 (a -ITO) 膜における結晶化の動的振舞を明らかにすべく、X線二次元検出器((株)リガク製)を用いたその場観察 [2] を実施した。

実験方法: ITO 膜 (SnO_2 : 5 wt%) を Corning ガラス基板上に反応性プラズマ蒸着 (RPD) 法 (住友重機械工業(株)製)により非加熱条件下で成膜した。本研究では高分解能 X線回折装置 ((株)リガク製 SmartLab) に付属している二次元検出器を用い、大気中一定速度 5 K/min で昇温しながらの回折ピークの時間依存性を記録した。X線源には Cu-K α (波長 0.15405 nm) を用いた。

結果: 図1は酸素ガス流量 (OFR) 20 sccm で成膜した a -ITO (膜厚 48 nm) における逆格子マップの温度 (T) 変化を示す。 $T_i = 125^\circ\text{C}$ で結晶化が始まり、 $T_f = 175^\circ\text{C}$ で結晶化が終了と判断した。300 $^\circ\text{C}$ までの温度上昇では配向性向上などの変化は観察されなかった。図2に上記と同 OFR 条件で膜厚を変化させた a -ITO における (222) 積分強度温度依存性を示す。薄膜化は T_i および T_f を上昇させると共にピーク強度の減少をもたらした。結晶化の振舞は、同じ膜厚では OFR が支配因子であることが判った。非晶質膜の結晶化機構は成膜条件が決める構造特性 (膜体積、表面/界面の密着性及び成膜後での微小領域結晶化の有無等) に依存し、キャリア輸送など電気特性との相関解明が必要である[3]。

参考文献

- [1] T. Koida, Y. Ueno, and H. Shibata, *Phys. Stat. Solidi. A* **215**, 1700506 (2018).
[2] L. Zeng, M. M. Moghadam, D. B. Buchholz, R. Li, D. T. Keane, V. P. Dravid, R. P. H. Chang, P. W. Voorhees, T. J. Marks, and M. J. Bedzyk, *Phys. Rev. Mater.* **2**, 053401 (2018).
[3] Y. Furubayashi, M. Maehara, and T. Yamamoto, *Nanoscale Res. Lett.* **14**:120 (2019).

図1: a -ITO 膜(OFR=20 sccm, 膜厚 48 nm)における逆格子マップの温度依存性

図2: a -ITO 膜(OFR=20 sccm)における(222) 積分強度の温度依存性