

2次元検出器による固相結晶化過程のX線回折その場観察

In-situ XRD observation of solid-phase crystallization process using 2D detector

(株)リガク¹, 高知工科大総研² ○稲葉克彦¹, 小林信太郎¹, 石川和彦¹,
古林寛², 山本哲也²Rigaku Corp.¹, Kochi Univ. Tech, Res. Inst.², ○Katsuhiko Inaba¹, Shintaro Kobayashi¹, Kazuhiko
Ishikawa¹, Yutaka Furubayashi², Tetsuya Yamamoto²

E-mail: inaba@rigaku.co.jp

【緒言】フレキシブルデバイス等に応用される機能性薄膜では、非晶質の状態で作成されたアニール処理などを経て結晶化させて利用されるものも多い。その結晶化条件の検討においては、アニール処理後の結晶性評価や物性評価の結果から条件出しをしていることが多いと思われる。また、結晶性評価にはX線回折法(XRD)が良く用いられるが、十分な信号強度を得るため厚い膜を成膜して評価していることも多い。しかし、膜厚が薄い場合でも同じ温度で結晶化するのか、アニール処理過程で結晶性や配向性が変化していないのか、といった疑問が残る。そこで我々は、膜厚が薄い試料において連続的な加熱処理を行いながらX線回折のその場観察を行い、固相結晶化の様子を観測することとした。

【実験】まず、Sn添加(5 wt.%) In₂O₃ (ITO) 薄膜(膜厚: 50 nm)を反応性プラズマ蒸着法によりガラス基板上に無加熱条件で作成した。X線回折のその場観察には、2次元検出器(HyPix-3000)および回転対陰極型X線源(Cu)を搭載したSmartLabシステム⁽¹⁾を用い、入射光学素子としてCBO-fを採用しポイント状のX線ビームを作った。加熱ステージにはAntonPaar社製加熱試料台(DHS-1100)を使用した。加熱過程における変化を連続的に追いかけるため、室温から300℃まで5℃/分のペースで昇温加熱を行い、入射角度は15°に固定したまま、数秒毎に2次元検出器による露光測定を行った。2θの領域としては、ITOの一番強い反射指数である、222反射(2θ ≃ 30°)付近に設定した。得られた2次元回折像から、2θ/ωプロファイルおよび方位ばらつきを表すχスキャンプロファイルを抽出し解析を行った。

【結果と考察】図1に加熱温度180℃から300℃までの温度数点における2次元回折像を示す。⁽²⁾各図の鉛直方向がほぼ2θ/ω測定のプロファイルに対応し、各図のほぼ水平方向の円弧状の分布が方位ばらつき(χスキャンプロファイル)に対応する。As-depoの状態(図1-(a))から温度180℃の時点(図1-(b))ではまだ回折信号がはっきりと確認されないが、190℃(図1-(c))からは明瞭に222反射が観測され結晶化が始まったことがわかる。

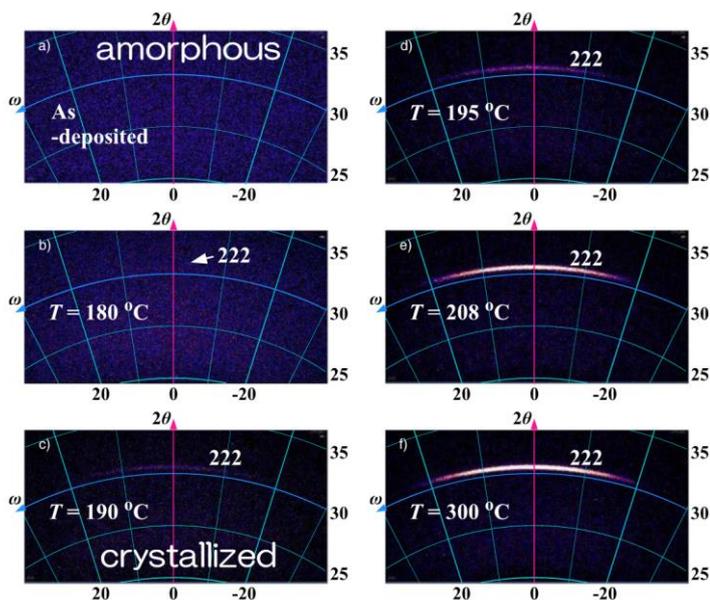


FIG. 1 Two-dimensional XRD images around 222 reflections of ITO films: a) as-deposited. b) 180°C. c) 190°C. d) 195°C. e) 208°C. f) 300°C.

参考文献: (1) 例えば, 小林信太郎, 他, *リガクジャーナル*, 47(1) (2016) 1-11; (2) Y. Furubayashi, et al., *Appl. Phys. Express*, **13** (2020) 065502.