光励起固相反応によるフレキシブル酸化物薄膜制御と応用

Photo-induced Solid-Phase Reaction of Flexible Oxide Thin Film and its Applications

産総研○土屋 哲男、鵜澤裕子、中島智彦、野本淳一、山口巌、北中佑樹

AIST, °T. Tsuchiya, Y. Uzawsa, T. Nakajima, J. Nomoto, I. Yamaguchi, Y. Kitanaka

e-mail: tetsuo-tsuchiya@aist.go.jp

金属酸化物膜は多種多様な性質を持つため、低炭素社会を構築するためのLED、太陽電池、2次電池などのグリーン部材・デバイスに広く用いられている。これらの新しい部材・デバイスを実用化するためには、高性能化、低コスト化、軽量化、フレキシブル化などの課題があり、金属酸化物薄膜の新しい作製プロセスの開発が必要である。一方、金属酸化物の結晶成長には500℃以上の加熱処理工程を要するので、シリコンや有機基板などの耐熱性のない基板上への作製が困難であった。我々は、この問題を解決するために、エキシマレーザーによる金属有機化合物やナノ粒子の光反応を利用した薄膜成長法（Excimer laser metal organic deposition(ELAMOD) を開発してきている。本講演では、光励起固相反応によるエピタキシャル成長、フレキシブル酸化物薄膜制御と応用について紹介する。

エキシマレーザー光は、高いエネルギー（例えば193nmの波長のArF レーザーの場合、1光子当たり 6.4eV）を数ナノ秒のパルス幅で照射できるので、未照射部分や基板への熱損傷なしに金酸化物の結晶成長が可能である。ELAMOD法により、TiO_2, SnO_2, ZnO, Fe_2O_3, WO_3, ITOおよび$PbTiO_3$（ペロブスカイト相）Y_2O_3:Eu, $SrTiO_3$:Pr,Al,$CaTiO_3$:Pr,$BaSnO_3$などの多結晶薄膜が低温で作製されている。一方、目的とする金属酸化物と格子ミスマッチが小さく、且つ、照射レーザー波長に光吸収を持つ単結晶基材を用いることで、低温かつ高速にエピタキシャル成長が可能である。例えば、ELAMODを用いたTiO_2単結晶基板上のSnO_2膜の薄膜成長では、室温、大気中の紫外レーザーを、200 パルス照射(20Hz,10 秒)照射することで、TiO_2単結晶基板の結晶方位に沿って 30～50nmエピタキシャル成長するが、高温の熱平衡加熱プロセスを用いた固相結晶成長では、900℃、1時間において界面に20nm程度の配向膜が生成するのみで、基板から離れた膜上部はランダムな多結晶が成長した。また、ELAMODを用いると、傾斜組織構造を有する薄膜の成長が可能であり、電気抵抗の温度依存性がヒステリシスのない VO_2 薄膜エピタキシャル膜が作製されている。特に、光反応により加熱なしに結晶成長と同時に酸素不定比制御も同時に制御できるため、異種金属のドーピングなしにVO_2薄膜やLSMO薄膜のM-I転移温度の制御も可能である。このような光励起固相反応の特徴を生かし、低炭素社会の構築のための各種部材・デバイスへの応用展開が可能な薄膜の作製例として、軽量太陽電池や各種ディスプレイに用いられている透明導電膜については、特に、プラスチックス基板上では高温結晶成長できない課題があった。こうした課題に対し、プラスチックス基板上のアモルファス透明導電薄膜の光励起固相反応を制御することで、低抵抗化と同時に高仕事関数を有する透明導電膜を開発し、有機ELの高発光効率と高輝度発光を実現した。

© 2021年 応用物理学会