

マイクロ波加熱法を利用した ITO 透明導電膜の作製における雰囲気気の検討

ITO transparent conductive film formed by microwave heating technique under various atmospheres

静岡大院工, °戸田 恭輔, 小西 直磨, 内藤 貴太, 奥谷 昌之

Shizuoka Univ. , °Kyosuke Toda, Naoma Konishi, Kanta Naito, Masayuki Okuya

E-mail: tcmokuy@shizuoka.ac.jp

1. 緒言

本研究ではこれまでに、マイクロ波照射下における金属酸化物の自己発熱を利用した ITO 透明導電膜の作製を報告した¹⁾。本研究では、この手法に雰囲気制御を加え、ITO 透明導電膜の電気特性、および光学特性の最適化を試みた。

2. 実験方法

ガラス基板上に 0.1 M di-*n*-butyltin diacetate (DBTDA)エタノール溶液をスプレー熱分解 (SPD)法で噴霧し、膜厚 50 nm の SnO₂ バッファ層を作製した。次に、市販の ITO 微粒子分散液 (Sigma-Aldrich) をバッファ層上にスピコート法で塗布・乾燥後、電気炉 500 °C で 1 時間焼成して ITO 微粒子層を作製した。さらに、InCl₃·4H₂O と SnCl₂·2H₂O を [Sn]/[Sn+In]=8 (モル比) で混合した ITO 溶液をスピコート法で微粒子層上に塗布・乾燥後、半導体式マイクロ波装置 (FSU-201VP-04; 富士電波工機株式会社) により出力 20 W のシングルモード電界を 2 min 照射し、ガラス基板上に製膜を行った。なお、製膜の際、酸素ガス、窒素ガス、および空気を 4 L/min フローさせて雰囲気制御を行った。作製した透明導電膜の電気特性評価をホール効果測定 (HMS-3000; ECOPIA) で、光学特性を分光器 (V-570; JASCO) でそれぞれ評価した。

3. 結果と考察

各雰囲気下で作製した ITO 透明導電膜の表面 SEM 像を Fig. 1 に示す。酸素フローで作製された膜 (a) の表面は全体的に平坦であり、粒界が不明瞭であった。さらに、空気フローで作製された膜 (b) においても、粒界が不明瞭で明確な粒子が確認されなかった。一方、窒素フローで作製された膜 (c) において、約 100~400 nm 程度のロックアイス状の粒子で構成された凹凸の大きな表面形態が観測された。次に、各雰囲気条件で作製された ITO 膜の光学・電気特性を Table 1 に示す。光学特性に関し、製膜時の雰囲気依存性を観測できなかったが、電気特性に関し、製膜時の雰囲気効果が顕著に観測された。酸素フローで作製された膜の抵抗率は $11.8 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 、空気フローの条件で $6.62 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 、窒素フローの条件で $3.14 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ に達し、雰囲気中の窒素の含有

量が大きくなるにつれ、電気特性が向上した、特にキャリア濃度の雰囲気依存性が大きく、窒素の濃度が高くなるにつれ、キャリア濃度が増加した。一方、XRD の結果から、雰囲気依存性は観測されず、各雰囲気で同様なパターンが得られた。このため、雰囲気中に酸素を一切含まない純窒素フローで比較的に良好な酸化物が形成されたのは、前駆体に含まれる酸素原子に由来するものと考えられるが、詳細は調査中である。

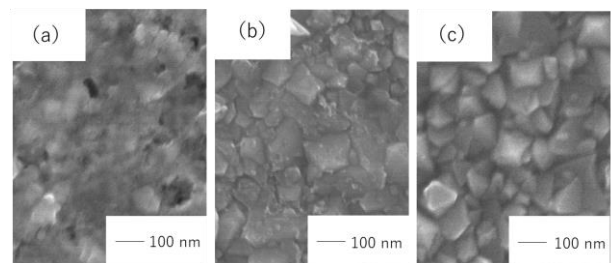


Fig.1 Surface morphology of ITO film prepared under various flowing gases; (a)O₂, (b)N₂, and (c)air.

Table1 Optical and electrical properties of ITO films prepared by a microwave heating technique under various flowing gases.

	O ₂	air	N ₂
Thickness[μm]	0.3	0.4	0.3
Sheet Res.[Ω/sq]	196.5	50.6	25.5
$n[\times 10^{21}/\text{cm}^3]$	1.03	4.06	4.79
$\mu[\text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}]$	2.88	2.32	4.16
$\rho[\times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}]$	21.0	6.62	3.14
Transmittance[%]*	86.4	77.8	81.3

*Average value in the visible light region with a glass substrate.

4. まとめ

本研究では、マイクロ波加熱法による ITO 透明導電膜の作製において、雰囲気制御による光学・電気特性への影響を評価した。光学特性において、雰囲気依存性が観測されなかった。一方、電気特性において、窒素フロー下で作製された ITO 膜で最も低い抵抗率を示した。今後、マイクロ波の出力や焼成時間を検討し、粒成長を促進させることで、更なる電気特性の向上が見込まれる。

- 1) 内藤 他, 2020 年 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, 10a-Z05-7
- 2) M. Okuya et al., J. Am. Ceram. Soc., 101, 5071-5079 (2018).