固相結晶化シード層上への ZnO:AI 透明導電膜のスパッタリング成膜: 固相結晶化温度の影響

Sputtering deposition of ZnO:Al Transparent Conducting Films on Solid-Phase Crystallized Seed Layers: Effects of Crystallization Temperature

九大シ情¹, 九大 CPNE², 自然科学研究機構³, ○沈 志遠¹, 薮田 久人², 山下 尚人¹, 鎌滝 晋 礼¹, 奥村 賢直¹, 古閑 一憲^{1,3}, 白谷 正治¹, 板垣 奈穂¹

Kyushu Univ.¹, NINS.², ^oZ. Shen¹, H. Yabuta¹, N. Yamashita¹, T. Okumura¹, K. Kamataki¹, K.

Koga^{1,2}, M. Shiratani¹, N. Itagaki¹

E-mail: z.shen@plasma.ed.kyushu-u.ac.jp

我々は最近, 非晶質(a-) ZnON 膜の固相結晶化 (SPC) により作製した ZnO シード層を用いることで, 20 nm という極薄膜において 5×10⁴ Ω·cm の低い抵抗率を示す ZnO:Al 膜の作製に成功した [1,2]。この ZnO:Al 膜の電気抵抗率はシード層の固相結晶化温度 (T_{spc}) に大きく依存することが分かっており, そ の値は T_{spc} の上昇に伴い低下し, 400°C で最小値を取った後, 再び増加する傾向を示した. 本研究では, シード層の固相結晶化温度が ZnO:Al 膜特性に与える影響を明らかにすることを目的とし, 固相結晶化 中の窒素の熱脱離挙動や, T_{spc} とシード層のモフォロジーとの関係について調べたので報告する.

シード層の作製は、石英ガラス基板上に室温にて a-ZnON 膜をスパッタ成膜し、その後 T_{spc} =300-600°C にて大気アニールすることで行った.成膜雰囲気は Ar/N₂とし、ターゲットには ZnO を用 いた. ZnO:Al 膜は膜厚 10 nm のシード層上に、マグネトロンスパッ _~7

タ法により形成した.

まず, a-ZnON 膜からの窒素の脱離挙動を昇温脱離法 (TDS) によ り調べた. 図1に昇温速度 10°Cmin⁻¹における TDS スペクトルを示 す。窒素は 200°C から脱離しはじめ, 400°C でほぼ膜から消失する ことが分かった. それに伴い $T_{spc} \leq 300^{\circ}$ C で可視域にあった膜の光 吸収端は $T_{spc} \geq 400^{\circ}$ C では紫外域にシフトした (図1 挿入図). x 線 回折測定により求めた膜の結晶化度は窒素の脱離挙動と良い一致を 示し, 脱離が完了する $T_{spc} = 400^{\circ}$ C で ZnO (002) 面からの回折ピー クを観測した後, その強度は T_{spc} 上昇に伴い増加した. 以上の結果 は a-ZnON 膜からの窒素の脱離が固相結晶化のトリガーになってい ることを示す. 一方, 原子間力顕微鏡 (AFM)像から, 膜の表面粗さ は特に窒素の脱離が完了する 400°C 以上で急激に増加することが



Fig.1 TDS spectra of a-ZnON film. The insets show the photographs of ZnO seed layers for $T_{\rm spc} = 300^{\circ}$ C (a) and $T_{\rm spc} = 400^{\circ}$ C (b).

分かった (図 2). つまり,結晶化度と表 面粗さはトレードオフの関係にあるが, 結晶化が開始する $T_{spc} = 400^{\circ}$ C では比較的 高い平坦性を維持しており,これがシー ド層 $@T_{spc} = 400^{\circ}$ C 上で最も抵抗率の低い ZnO:Al 膜をもたらしたものと考えられる.

本研究の一部は JSPS 科研費 JP21H01372, JP21K18731, JP22H05000 の助成を受けた.

[1] N. Itagaki *et. al.*, *Appl. Phys. Express* 4, 011101 (2011).
[2] I. Suhariadi *et. al.*, *ACS Appl. Nano Mater.* 3, 2480 (2020).



Fig. 2. AFM images of a-ZnON film (a) and ZnO seed layers for $T_{\rm spc} = 300^{\circ}$ C (b), $T_{\rm spc} = 400^{\circ}$ C (c), $T_{\rm spc} = 600^{\circ}$ C (d).