透明導電膜 W 添加 In₂O₃ 薄膜特性へのポストアニール効果

Effects of Postannealing on the Properties of Transparent Conductive W-Doped In₂O₃ Films/glass substrates

高知工科大総研¹, 住友重機械(株)², (株)リガク³ OPalani Rajasekaran¹, 岡田悠悟², 前原誠², 北見尚久^{1,2}, 小林信太郎³, 稲葉克彦³, 牧野久雄¹, 木下公男², 山本哲也¹ Kochi Univ. Tech., Res. Inst.¹, Sumitomo Heavy Industries, Ltd.², Rigaku Corp.³, OPalani Rajasekaran¹, Yugo Okada², Makoto Maehara², Hisashi Kitami^{1,2}, Shintaro Kobayashi³, Katsuhiko Inaba³, Hisao Makino¹, Kimio Kinoshita², Tetsuya Yamamoto¹ E-mail: palani.rajasekaran@kochi-tech.ac.jp

緒言:これまで無アルカリガラス基板上に基板無加熱条件により得られたアモルファス状態及び固相結晶化後の多結晶酸化インジウム系薄膜特性を報告してきた ^{1,2}。ホール効果測定結果の解析は、前記2つの異なる薄膜構造状態に拘わらず、電気抵抗率は比率= (膜厚 (t)/キャリア平均自由行程)により支配されるサイズ効果を明白とさせた。これは課題「比率の大きさ=1 前後で膜構造状態形成機構が異なる可能性」提案となる。本発表では前記課題解決への進捗を報告する。

実験: 反応性プラズマ蒸着法を用い、無アルカリガラス基板 (Corning EAGLE XG) 上に基板無加熱条件下にて W添加 In_2O_3 (IWO) (WO $_3$: 1 wt. (=0.6 at.%)%) 薄膜を様々な膜厚 (t=5~50 nm) において成膜した。特性向上を目的に成膜後、大気圧条件下、200 °C で 30 分間熱処理を行った。電気特性は室温下で van der Pauw 法による Hall 効果測定 (Nanometrics 社製 HL5500PC) 及び薄膜構造特性 (アモルファス/多結晶、配向特性など) は X 線回折測定 (リガク社製 SmartLab) を用い、Out-of-plane ($2\theta/\theta$)、Grazing Incidence (GI) Out-of-plane と in-plane XRD 法により評価した。

結果と考察: X 線回折パターン解析により t=20, 30, 50 nm の IWO 薄膜は as-deposited において多結晶化 (弱い (111) 配向) していることが判った。キャリア密度 n_e ($n_e=1.5\times\sim1.8\times10^{20}$ cm⁻³) の t 依存性は小さく、 n_e へのアニール効果は小さかった。該 t 依存性やアニール効果はホール移動度 (μ_H) においても t=50 nm 以外では同様な結果であった。t=5, 7, 10 nm の as-deposited IWO 薄膜構造はアモルファス状態であり、薄膜構造へのアニール効果は t 依存性が観察された (図 1)。

図 1 の in-plane (入射角度= 0.4 degree) X 線回折パターンが示す通り、 $t=10~\mathrm{nm}$ の場合、多結晶化しており、 $t=7~\mathrm{nm}$ の場合、多結晶/アモルファス状態の混在であった。 $t=5~\mathrm{nm}$ の IWO 極薄膜ではアニールによる多結晶化効果は XRD では検知されなかった。該 3 つの IWO 薄膜では、 $t \geq 20~\mathrm{nm}$ IWO 薄膜とは異なり、アニールにより n_e の減少が明確に観察された。実際、t=5, 7 nm IWO 薄膜では $n_e=1.6\times\to0.5\times10^{20}~\mathrm{cm}^{-3}$, そして $t=10~\mathrm{nm}$ IWO 薄膜では $n_e=2.1\times\to0.8\times10^{20}~\mathrm{cm}^{-3}$ であった。この n_e 減少機構は、成膜後において膜中残留酸素 (O) がアニール中に、真空条件下とは異なり 2 、大気圧条件下では膜中から離脱せず、膜中拡散に留まり、その結果、ドナー点欠陥の酸素空孔を埋めるその現象の促進と現段階では判断している。アニールにより格子秩序が形成された $t=10~\mathrm{nm}$ IWO 薄膜では $t \geq 20~\mathrm{nm}$ IWO 薄膜で得られる $\mu_{\mathrm{H}}-n_e$ 関係との比較からキャリア輸送はサイズ効果に支配されていることが明白となった。

参考文献

- (1) Y. Furubayashi, M. Maehara, T. Yamamoto, Nanoscale Res. Lett. **14**, 120 (2019).
- (2) Y. Furubayashi, M. Maehara, T. Yamamoto, J. Phys. D: Appl. Phys. **53**, 375 103 (2020).

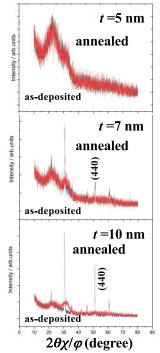


図1. t = 5, 7, 10 nm IWO 薄膜における in plane YPD パターン