

[研究ノート] RF マグネトロンスパッタ法による
AZO 透明導電膜の結晶性に及ぼす基板温度の影響
—材料分析室利用研究成果, その XXVI(4)—

後藤みき¹・小松茂禎²・御園生誠³

¹ 電気電子情報工学科

² 電気電子情報工学科卒業(現・株式会社メイテックフィールドーズ)

³ 電気電子情報工学科卒業(現・新晃アトモス株式会社)

Effect of substrate temperature on the crystalline of transparent conducting AZO thin films by RF magnetron sputtering
-Research works accomplished by using materials analysis facilities: XXVI (4)-

Miki GOTO¹, Shigeyoshi KOMATSU² and Makoto MISONOO³

Abstract

We have studied the effect of the substrate temperature on the crystalline structure, optical and electrical properties of AZO films. The AZO thin films have been fabricated by RF magnetron sputtering technique with various substrate temperatures of growth parameters. The target was AZO (Al₂O₃, 2wt% in ZnO). The resistivity, transmittance and crystal orientation of these films were investigated as a function of various substrate temperatures. As a result, a minimum resistivity of $2 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$ and an average transmittance of about 80% in the visible range were obtained for the films deposited at sputtering gas Ar : pressure of 2 Pa, flow rate of 5 sccm, and substrate temperature of 400 °C. The crystalline structure of the films was confirmed by X-ray diffraction (XRD) analysis. The obtained films had a hexagonal wurtzite structure with a strong (002) preferred orientation.

Keywords : AZO thin films, transparent conducting films, substrate temperature, RF magnetron sputtering, XRD

1. まえがき

透明導電膜は、導電性と可視光領域に対し透明性を持つ薄膜材料で、液晶ディスプレイ、有機 EL ディスプレイ、フラットパネルディスプレイ、薄膜系太陽電池などの表側の電極に用いられている。これらのディスプレイ画面の大型化や太陽電池の高性能化とともに需要が増えているため、透明導電膜の性能向上など重要性も高まっている。現在の透明導電膜の主流は優れた導電性と透過性を有する ITO (Sn doped In₂O₃) である。しかし、ITO の原料であるインジウムは希少金属であるため高価である。そのためインジウムを使用しない透明導電膜の開発が

望まれている。そこで我々は資源的に豊富で安価な ZnO 系¹⁻⁴⁾の透明導電膜に注目した。

本研究では、ITO の代替材料として ZnO に Al をドーピングした AZO をターゲットとして用い、基板温度を変化させ、RF マグネトロンスパッタ法で、透明導電膜を作製した。その膜の抵抗率、光透過率、結晶性と成膜時の基板温度との関係を調べたので報告する。

2. 実験装置および測定方法

Fig.1 はガラス基板に AZO を成膜する RF マグネトロンスパッタ装置の概略図である。陰極は $\phi 50 \times 5\text{mm}$ の

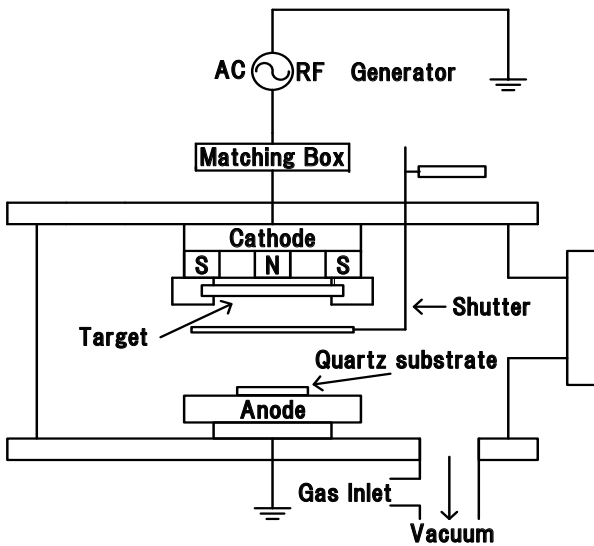


Fig.1 成膜装置概略図

AZO ($\text{ZnO}:\text{Al}_2\text{O}_3$ 2wt%) ターゲットを用いて、陽極には $30 \times 35 \times 2\text{mm}$ のガラス基板を設置した。成膜条件として電極間距離を 25mm, 成膜ガスを Ar100%, 流量 5sccm, ガス圧力を 2Pa, RF 電力を 30W, 成膜時間は 120 分一定にし、基板温度を 25~450°C まで変化させた。AZO 薄膜の抵抗率は低抵抗率計, 膜厚は触針式膜厚段差計, 光透過率は紫外可視近赤外分光光度計を用いて測定した。結晶性の評価には X 線回折装置 (Cu $K\alpha$ 線) を用いて測定した。

3. 結果および考察

Fig.2 に抵抗率と成膜時の基板温度との関係を示す。基板温度の上昇とともに抵抗率は減少し、400°C のとき最小値 ($\sim 2 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$) を示し、その後増加した。AZO の膜厚は成膜時の基板温度 (25~450°C) には影響されず、ほぼ $1.4\mu\text{m}$ であった。

Fig.3 に AZO 膜の透過特性と成膜時の基板温度との関係を示す。基板温度の上昇とともに透過特性は良くなり、400°C で成膜した AZO 薄膜では波長 450nm~650 nm の領域で透過率は約 80% であった。

Fig.4 に成膜時の基板温度の違いによる AZO 結晶の X 線回折パターンを示す。基板温度を 400°C にして成膜した AZO が 34 度付近で最もピーク強度が高く、結晶の配向性が良いことが分かる。この回折強度から ZnO の六方ウルツ鉱結晶の (002) 面であることを確認できた。基板温度 400°C と 300°C で成膜した AZO にピークシフトは見られなかった。今回はピーク強度の半値幅を厳密に測定するに及ばなかったため、結晶サイズの計算は行っていない。

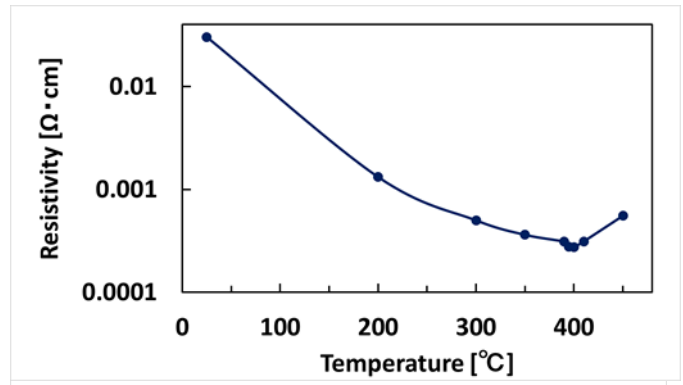


Fig.2 成膜温度と抵抗率

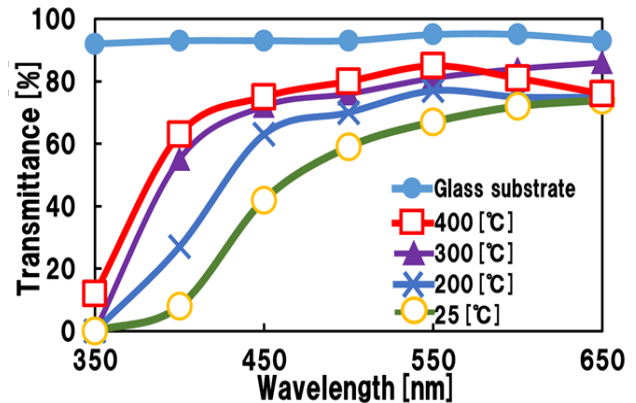


Fig.3 成膜温度の違いによる透過特性

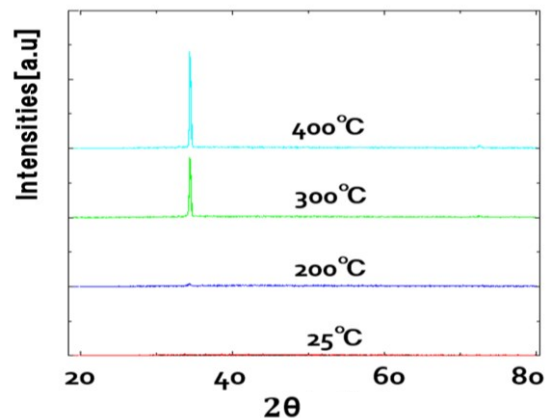


Fig.4 成膜温度の違いによる X 線パターン

4. まとめ

RF マグネトロンスパッタ法を用いてガラス基板上に基板温度を変化させて成膜した AZO 薄膜の抵抗率, 光透過特性, 結晶性を調べ, 以下の結果を得た.

- 1) AZO 薄膜の抵抗率, 透過特性, 結晶性には成膜時の基板温度が影響し, 400°Cが最適値であることが分かった.
- 2) 基板温度 400°Cで加熱成膜した膜厚 1.4 μm の AZO 膜で, 低抵抗率($2 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$), 高透過率(80%)が得られた.
- 3) ZnO の六方ウルツ鉱結晶構造 (002) 配向の AZO 膜であることを確認した.

終わりに透過率測定, X線回折測定において, ご支援いただいた応用化学科の斉藤貴教授と竹本稔准教授, および終始適切なアドバイスをいただいた荒井俊彦名誉教授に感謝いたします.

参考文献

- [1] 南 内嗣: ZnO 系透明導電膜, 応用物理, Vol. 61, No. 12, pp. 1255-1258, (1992).
- [2] 仁木栄, 松原浩司, 反保衆志, 中原健: 酸化亜鉛系透明導電膜, J. Vac. Soe. Jpn, Vol. 50, No. 2, pp. 114-117, (2007).
- [3] 梅原猛, 野毛悟: RF マグネトロンスパッタ法による AZO 透明導電膜の作製, 信学技報 Vol.08, pp.55-60, (2011).
- [4] Said Benramache, Boubaker Benhaoua and Foued Chabane: Effect of substrate temperature on the stability of transparent conducting cobalt doped ZnO thin films, J.Semicon., Vol.33, No.9, 093001-1, (2012).