

ECRスパッタリング法による高性能透明導電膜の作製

評価技術課 本保栄治、材料技術課 高林外広*

1. 緒言

透明導電膜は、光を通し、電気も通す素材として、太陽電池、電子ディスプレイパネルや熱線反射ガラスなど幅広く利用されている。その材料で、スズ添加酸化インジウム（ITO）は、性能がよく、最も一般的に使用されている。しかし、インジウムは枯渇が懸念され、代替として酸化亜鉛は最も有望な材料として期待されている。

一方、我々はマグネトロン型に配置した永久磁石とロッド状のアンテナによりマイクロ波を放射する構成により電子サイクロトロン共鳴（ECR）プラズマを生成し、成膜源（ターゲット）にDCバイアスを印加してスパッタリングを行う装置を開発した。この装置は、プラズマ生成とバイアス印加が独立しているため制御性が広く、基板へのプラズマ照射効果もあることから高機能性薄膜の作製に適していると考えられる。

そこで、このECRスパッタリング装置により酸化亜鉛薄膜を作製し、電気的特性と結晶性について評価したので報告する。

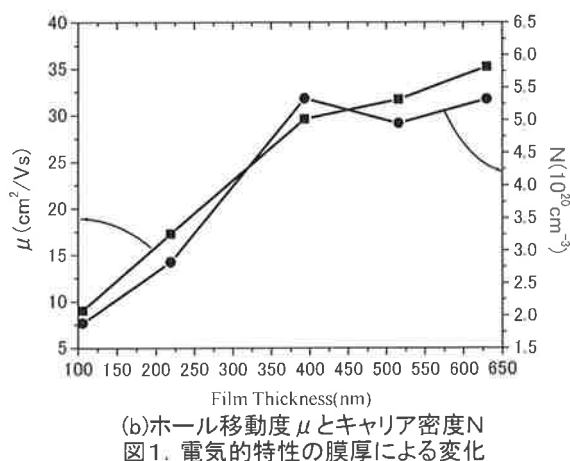
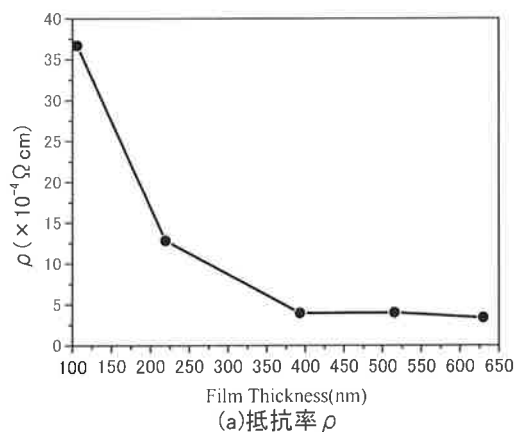
2. 実験方法

ECRプラズマを生成するための永久磁石は、Sm-Co磁石（残留磁束密度1.0T）を使用し、中央部にN極を上面に縦100mm×横30mm×高さ50mmの磁石を四方に横方向35mm間隔をあけS極を上面に長さ100mm×幅15mm×高さ50mmの磁石を配置した。マイクロ波（波長2.45GHz）は同軸管で真空チャンバーへ導入し、16mm角、長さ250mmの銅棒で放射した。ターゲットはAl₂O₃ 5wt%添加ZnO粉末を1300℃で焼成し、φ150mm（スパッタ面はφ125mm）に成形したものを用いた。スパッタリング成膜は、アルゴンガスを導入し、DC電源によりターゲットへ電圧印加して、スライドガラス基板に行った。得られた膜の膜厚は、段差を表面形状測定機により測定した。電気的特性として、10mm角の試料をホール効果測定装置（Bio-Rad社製HL5500）により抵抗率、ホール移動度、キャリア密度を測定した。その電気的

性の原因を解析するために結晶性は、薄膜X線回折装置（マックスサイエンス製M03XH F22）によって $\theta-2\theta$ 法により面に垂直な方向、インプレーン法により面に平行な方向のピーク位置と半価幅を解析することにより、結晶型、結晶子サイズ、歪みを評価した。

表1. 成膜条件

ターゲット	Al ₂ O ₃ 5wt% ドーパZnO焼結体
基板	スライドガラス
ターゲット基板間距離	75mm
Arガス圧	0.07Pa
マイクロ波電力	700W
スパッタ電圧	250V



(b)ホール移動度 μ とキャリア密度 N
図1. 電気的特性の膜厚による変化

*現 商工労働部商工企画課

3. 結果及び考察

表1は、ECRスパッタリング法によりAlドーパ酸化亜鉛薄膜を作製した成膜条件である。この条件での成膜速度は、50 nm/min である。

図1は、膜の抵抗率、ホール移動度、キャリア密度の膜厚による変化である。膜の抵抗率は、膜厚の増加と共に著しく低下しており、膜厚400 nm 以上では $4 \times 10^{-4} \Omega \text{ cm}$ 以下となっている。ホール移動度とキャリア密度は膜厚の増加と共に増加しているが、キャリア密度は $5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ を超えた所で増加は鈍化している。膜の結晶型は、c軸配向のZnOである。図2(a)は、膜のZnO(0002)面間隔と半値幅からシェラーの方法で求めた結晶子サイズ、及び(b)はZnO(1000)面間隔と結晶子サイズの膜厚による変化である。面に垂直な軸方向では、膜厚の増加と共に結晶子サイズが増加し、面間隔は大きい方から文献値へ近づいている。面に平行な軸方向では、膜厚の増加と共に結晶子サイズが増加し、面間隔は小さい方から文献値に近づいている。電気的特性の結果から、膜厚の増加により結晶子サイズの増加が粒界散乱を低減し移動度を増加させ、格子歪みの緩和がイオン化不純物散乱の低減とキャリア濃度を増加させ、抵抗率が低下するものと考えられる。図3は、膜の抵抗率と膜厚の分布である。中央部で膜厚は最も大きく、分布は円弧状である。また、抵抗率は中央部で最も低い。この原因は、膜厚の分布のみではなく、膜質の違いによると考えられる。

4. まとめ

マグネトロン型ECRスパッタリング装置を開発し、Alドーパ酸化亜鉛薄膜の作製を行ったところ、基板非加熱で抵抗率 $4 \times 10^{-4} \Omega \text{ cm}$ 以下と高性能な透明導電膜が得られた。

今後、実用化のために成膜状態と膜質の関連などについてさらに研究が望まれる。

キーワード：ECR、スパッタリング、酸化亜鉛、透明導電膜、抵抗率

Study of high-performance transparent conductive films by ECR sputtering method

Eiji HONBO, Sotohiro TAKABAYASHI

Aluminum-doped zinc oxide (AZO) films were deposited by our developed ECR sputtering system of planar magnetron type on unheated glass substrates using an AZO ceramic target. The electrical and structural properties of the films were measured. With the increase of film thickness, the resistivity has become lower (under $4.0 \times 10^{-4} \Omega \text{ cm}$).

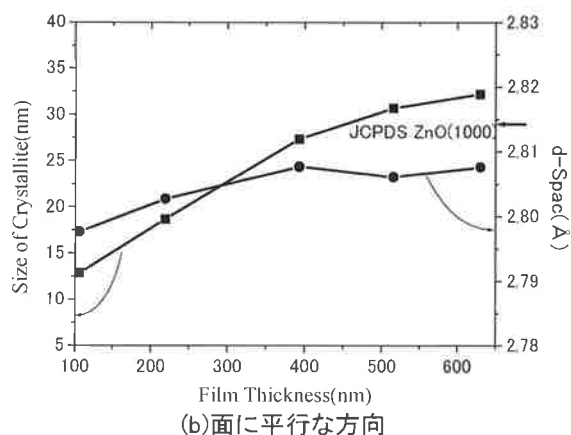
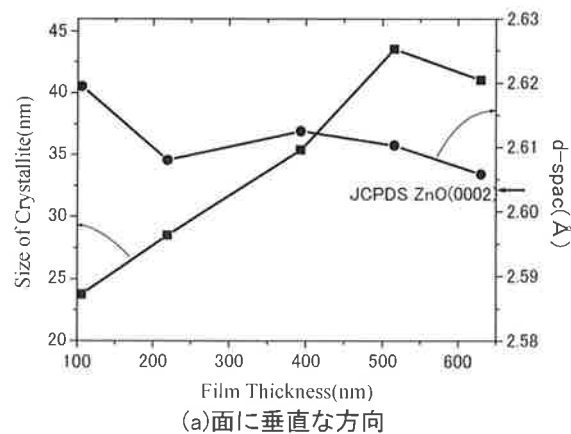


図2. 結晶子サイズと面間隔の膜厚による変化

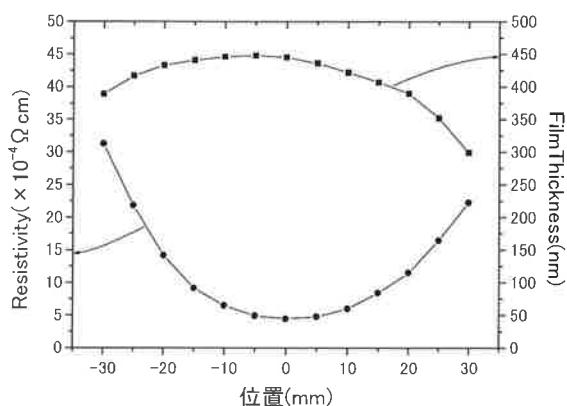


図3. 抵抗率と膜厚の分布