対向ターゲット式スパッタ法による ZnO: Al 透明導電薄膜の作成*

野田 和宏**・岡村 芳郎**・安田 豊田郎**
原田 久将**・小西 亮介**・笹倉 博**

(受付1990年11月29日, 掲載決定1991年2月2日)

ZnO:Al Thin Films Prepared by Using Facing Target Type Sputtering

Kazuhiro NODA, Yosirou OKAMURA, Toyotarou YASUDA,
Hisamochi HARADA, Ryousuke KONISI and Hiroshi SASAKURA

(Faculty of Electronic Engineering and Electrical Engineering, Tottori University,
4-101, Minami, Koyama, Tottori-shi, Tottori, 680)

(Received November 29, 1990, Accepted February 2, 1991)

1. はじめに

透明導電薄膜は、光学的分野と電氣的分野の接点となるため、オプトエレクトロニクス素子には必要不可欠である。現在主に使用されている透明導電薄膜は、ITO (Indium Tin Oxide) である。現在でも比較的低い抵抗率の膜が得られているが、透明導電薄膜は使用用途が広いこと、より安価で安定な材料が必要とされている。そこで、我々はより安価で安定な透明導電薄膜である ZnO 薄膜に注目した。我々は作成方法に対向ターゲット式スパッタ法を用いた。我々の用いた対向ターゲット式スパッタ法は、ターゲットに金属 Zn 板、スパッタガスに酸素ガスを使用している。また Al をドーピングするための Al 細線を利用している¹⁻²⁾。そのため Al 細線の本数を変えるだけで Al 濃度を変化させることができる特徴を持つ。

2. 実 験

Fig. 1 に今回使用した装置の概略図を示す。対向ターゲット式スパッタ法により、ZnO:Al 薄膜をガラス基板上に作成した²⁾。作製した薄膜は無色透明で、これだけ

では導電性が不十分のため、真空中400°Cで約30分間、熱処理を行った。また熱処理を行った試料でも、可視光領域で85%以上の透過率を示しており、光学的にも良い透明導電薄膜と言える。抵抗率の測定には Van der Pauw 法を使用した。

3. 結果と検討

3.1 基板温度に対する、抵抗率の依存性

Fig. 2 にそれぞれの基板温度に対して大気中室温で測定を行った時の抵抗率、Hall 移動度、キャリア密度を示す。この時の Al 濃度は1.3%と一定である。この Al 濃度は仕込濃度であり、ターゲットの表面積比である。図中の小さな黒い点は、再現性を調べるために他の試料についても同様の実験を行い結果を示した。その結果、実線のような傾向があることが分かった。なお基板加熱を行わない時の基板温度は約60°Cである事がわかった。基板温度に対する抵抗率は、基板温度が上昇するにしたがって減少していき、基板温度200°Cで最小抵抗率を示している。また200°C以上の基板温度では抵抗率の増加がみられる。この実線の傾向からすると、キャリア密度の影響も考えられるが、これはおもに Hall 移動度の影響により抵抗率が変化すると考えられる。

Fig. 3 に60°C, 200°C, 300°Cでの Al 濃度に対する抵

* 平成2年10月25日第31回真空に関する連合講演会で講演 (25p-7)

** 鳥取大学工学部電気電子工学科 (〒680 鳥取市湖山町南 4-101)

抗率を示す。各々の基板温度で5%以上のAl濃度では抵抗率の増加が見られた。これは一般に適度のAl濃度以上になるとAlが、ドナーとして働くよりも、むしろキャリアを散乱させる働きの方が大きくなり、そのためHall移動度が減少し抵抗率が増加すると考えられる。基板温度200°CでのAl濃度に対する抵抗率の変化はAl濃度5%まで安定な低抵抗率が得られているが、基板温度60°Cおよび300°C試料ではAl濃度の増加に対して抵抗率の増加が見られた。

Fig. 4に基板温度60°C, 200°CでのAl濃度に対するX線回析のピーク強度および半値幅を示す。基板温度200°Cの試料では各々の濃度で基板温度60°Cの試料に比べピークが高く、また半値幅も狭く結晶粒径も大きい。特にAl濃度の高い領域(1.3%以上)での改善が著しい。そのための基板温度200°Cでは低抵抗率が得られていると考えられた。基板温度300°Cの試料についても同様の

事が基板温度200°Cに対しては言える。

3.2 酸素ガス圧に対する、抵抗率の依存性

Fig. 5にガス圧に対する抵抗率, Hall移動度, キャリア密度を示す。抵抗率は酸素ガス圧に対して、依存性を示しており約0.4~1.2 Paで低い抵抗率を示した。最小抵抗率 $4.1 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ が0.4 Paで得られた。これはHall移動度の増加のためと考えられる。またキャリア密度も若干の増加を示している。X線回折の結果より半値幅が1.2 Paでは、0.1, 10.0 Paに比べて狭くなっており、結晶粒径が大きくなっていることが分かった。そのため1.2 PaでHall移動度が増加し抵抗率が減少すると考えられる。

Table 1に各々のガス濃度に対する光吸収端を示す。1.2, 10.0 Paでは光吸収端が短波長側にシフトしている。この事はキャリア密度の増加による影響も考えられるが、

Fig. 2 Dependences of the resistivity, Hall mobility and carrier concentration of the ZnO:Al films upon the substrate temperatures.

Fig. 3 Dependence of the resistivity of the ZnO:Al films upon the Al concentration.

Fig. 4 X-ray diffraction of peak height and peak width of the ZnO:Al films (Al concentration 0%, 1.3%, 2.5% and 10.0%) at the substrate temperatures of 60°C and 200°C.

Table 1 の試料については Al 濃度を 1.3% と一定にしており、また 1.2 Pa, Al 濃度 0% の試料については、キャリア密度の急激な減少がみられ酸素欠損が減少していると考えられることにより、適度の酸素量では、酸素が ZnO:Al 薄膜の酸素欠損のドナー準位を埋め、光吸収端に対応するエネルギー幅が広くなると考えられる。またこの事は酸素欠陥が減少するため、Hall 移動度にも影響すると思われた。しかし、1.2 Pa での Hall 移動度の増加は結晶粒径の大きさの方が大きく影響していると思われる。

4. ま と め

適度の基板温度では低い抵抗率の ZnO:Al 薄膜が得られた。その原因としては、

- * 結晶性の改善。(特に Al 濃度の高い場所)
 - * キャリアとして働く Al の割合が高くなる。
- が挙げられる。

適度の酸素圧では結晶粒径が大きくなり、また酸素欠損が酸素により適度に埋まり Hall 移動度が増加する。

Fig. 5 Dependences of the resistivity, Hall mobility and carrier concentration of the ZnO:Al films upon the O₂ gas pressure.

Table 1 Change of absorption band edge upon O₂ pressure

ZnO:Al 薄膜

酸素ガス圧 [Pa]	0.1	1.2	10.0
光吸収端 (50%) [nm]	370	352	355
[eV]	(3.35)	(3.52)	(3.49)

Sub. Temp. 200°C Al 濃度 1.3%

- * 酸素ガス圧 0.4 Pa, Al 濃度 1.3% 基板温度 200°C で最低抵抗率 $4.1 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ が得られた。
- * 膜厚 1000 nm で、約 $8.2 \Omega / \square$ が得られた。

〔文 献〕

- 1) T. Minami, H. Nanto and S. Takata: "Highly conductive and transparent aluminum doped zinc oxide thin films prepared by RF magnetron sputtering", Jpn. J. Appl. Phys., **23**, p. L280 (1984).
- 2) 河本, 野田, 小西, 笹倉: "ZnO:Al 薄膜の電気特性", 信学論 (C-II), **J72-C-II**, 10, pp. 901-905 (1989).