研究論文

Zn 添加による ZnO 薄膜の透明導電特性の向上

坂本大和*. 井上泰志*. 小林政信*

Improvement of Transparent-conductive Properties of ZnO Films by Zn Addition by

Yamato SAKAMOTO*[†], Yasushi INOUE* and Masanobu KOBAYASHI*
(Received Mar. 16, 2024; Accepted May 17, 2024)

Abstract

Since non-stoichiometric zinc oxide (ZnO) can increase carrier electrons and lower electrical resistivity, Zn addition to ZnO is expected to improve the transparent-conductive film properties. Using a sputtering system with Zn chips on a ZnO target, Zn-added ZnO films were prepared. The deposited films were heat-treated, then optical transmittance, electrical resistivity, and crystallinity were characterized. Zn addition with more than 10 Zn chips resulted in fabrication of ZnO films with electrical conductivity. A decrease in transmittance was observed at the Zn chip number of 13, which is supposed to be due to metallic Zn segregation. The ZnO film deposited at the Zn chip number of 11 showed the optimum transparent-conductive properties (transmittance >80 %, electrical resistivity $2.3 \times 10^{-4} \Omega m$) after heat treatment at 450°C for 1h.

Keywords: Non-stoichiometric, ZnO, Sputtering, Transmittance, Electrical resistivity

1. 緒言

私たちの生活必需品となっているスマートフォン,パソコン,液晶テレビなどのディスプレイには酸化物半導体が透明電極として利用されている.現在,透明電極材料は酸化インジウムスズ (ITO) が主流である ¹⁾⁻³⁾. ITO は可視光領域における透明性と電気的伝導性を非常に高いレベルで両立可能である.しかし,その原料であるインジウムは希少資源であり,より安価で安定した供給が見込める代替材料の研究が進められている ⁴⁾⁻¹⁰⁾. 代替材料の 1 つとして酸化亜鉛 (ZnO) が注目されている ⁷⁾⁻¹⁰⁾. 亜鉛 (Zn) は埋蔵量が多く安価で安定した供給が可能であり,その酸化物である ZnO は,可視光領域における透過率が高い.しかし,電

気抵抗率が高いことが課題となっている. 金属酸化物にお ける電気伝導は,原子空孔や不純物元素の添加によって発 生する電子またはホールが担っていることが知られており 11)-12), ZnO に酸素欠損を発生させ, 非化学量論組成にする ことによって, 電子キャリアが増加し, 電気抵抗率を低く できる. 透明電極材料としての ZnO 薄膜は、一般にスパッ タリングプロセスによって成膜され, その酸素欠損量は, スパッタリングガス中の酸素ガス添加量や、成膜後のアニ ールプロセスにおける雰囲気制御によって制御可能である ことが報告されている ¹³⁾⁻¹⁵⁾. 一例として, Xiong らは反応 性スパッタリング法により堆積された ZnO 薄膜の電気抵抗 率が、成膜中の酸素ガス添加量によって、 $10^{-2}\sim10^{0}$ Ω m の 範囲で変化することを示した 13). しかし, 酸素ガス添加量 による組成制御は装置依存性が強く, 成膜装置が変わると 結果の再現性が取れない. これは, 真空排気後の残留水量, 酸素ガス導入口位置による成膜室内の酸素分布、成膜室内 壁への堆積物による酸素ゲッタリング性の違いなどにより, 成膜装置によって基板表面への実効的な酸素流束が変化す るためである 16. またアニールプロセスは,酸素欠損だけ

令和6年3月16日受付

^{*} 千葉工業大学大学院工学研究科先端材料工学専攻:千葉県 習志野市津田沼2丁目17-1

TEL 047-478-4308

s19a3046yd@s.chibakoudai.jp

Department of Advanced Materials Science and Engineering, Graduate School of Engineering, Chiba Institute of Technology: 2-17-1 Tsudanuma, Narashino, Chiba 275-0016, Japan

^{†:}連絡先/Corresponding author