

Mist CVD法によるアモルファス SiO₂/Si 基板上への In₂O₃ 成長

In₂O₃ on Amorphous SiO₂/Si Substrate Grown by Mist CVD method

石川諒¹⁾

指導教員 山口智広^{1,2)}

研究協力者 山本拓実²⁾, 林佑哉²⁾, 相川慎也²⁾, 尾沼猛儀^{2,3)}, 本田徹^{2,3)}

1) 工学院大学 先進工学部 応用物理学科 結晶成長研究室

2) 工学院大学大学院 工学研究科 電気・電子工学専攻

3) 工学院大学 先進工学部 応用物理学科

キーワード: In₂O₃, Mist CVD法, 塩酸, 結晶構造, 電気移動度

1. 背景

酸化インジウム(In₂O₃)は透明かつ高い導電性を有することからITO(Indium Tin Oxide)のような透明電極として利用されている¹⁾. 単結晶 In₂O₃ は結晶構造に最安定相の体心立方晶ピクスバイト型である c-In₂O₃ と準安定相の菱面体晶コランダム型である α-In₂O₃ がある. これらの c-In₂O₃, α-In₂O₃ はそれぞれ 3.3 eV, 3.7 eV のワイドバンドギャップ材料であり²⁾, 近年では, 高い電気移動度を生かしたパワーデバイスへの応用が期待されている. 一方で, アモルファス In₂O₃ は優れた電気的特性であることから, TFT(Thin Film Transistor)のチャネル層へ応用されている³⁾. In₂O₃ は Mist CVD(Mist Chemical Vapor Deposition)法により成膜が可能であることが報告されている⁴⁾.

Mist CVD法とは化学気相成長(CVD)の1つであり, 霧状にした原料溶液を基板へ輸送し, 熱分解によって成膜する手法である⁵⁾. この手法の特徴は大気圧下での成長が可能であり, 簡易的な装置構成であることや, 大面積での均一な成膜が可能であることが挙げられる. また, 先行研究において, 成長基板をアモルファス基板にすることによりアモルファス薄膜の成膜が可能であることが報告されている⁴⁾.

現在, スパッタリング法により成膜された In₂O₃ 薄膜を用いた TFT の動作が報告されており,

電気移動度は 10 cm²/Vs 程度の薄膜が得られている³⁾. ここで当研究室より, Mist CVD法による単結晶 In₂O₃ 成長において塩酸濃度を増加させることで電気的特性の向上をはじめとした成長膜の特性へ影響を与えることを報告している⁶⁾. このことから, アモルファス基板を用いた In₂O₃ 成長において塩酸濃度の制御をすることにより成長膜の特性, 電気的特性の向上が可能であることが考えられる. 本研究では Mist CVD法によるデバイス化応用可能な機能性 In₂O₃ 薄膜の実現を目的として, アモルファス SiO₂/Si 基板を用いて原料溶液の塩酸濃度を変化させた実験を行った.

2. 実験方法

Mist CVD法により, SiO₂/Si 基板上に In₂O₃ を成長させた. 原料溶液は In₂O₃ パウダーが 0.10 mol/L になるように濃度 36% の塩酸に溶かし込み, 超純水を加えて調製した. その際, 塩酸濃度は 0.82 mol/L, 2.33 mol/L とし, 100 mL を成長に使用した. 成長条件は, 成長温度 350~550°C の間で変化させ, キャリアガス(O₂)流量 5.0 atm・L/min. 希釈ガス(O₂)流量 0.5 atm・L/min. で 60min. とした. 試料の評価は, X線回析(X-ray Diffraction: XRD)θ-2θ測定, 2θ測定による結晶構造解析, 走査型電子顕微鏡(SEM)による表面観察, 断面観察, Van der Pauw 法⁷⁾を用いた室温でのホール効果測定による電気的特性評価を行った.

3. 実験結果及び考察

Figure 1, 2 に塩酸濃度 0.82 mol/L(a), 2.33 mol/L(b)における θ -2 θ 測定, 2 θ 測定結果を示す. Fig.1 より, (a)では 550°C, (b)では 450, 550°Cで多配向の c - In_2O_3 の回折ピークが得られた. また, Fig.2(a)より, 400, 450°Cにおいても多配向な c - In_2O_3 の回折ピークが得られた. このことから, 塩酸濃度の低下に伴い, より低温下での成膜が可能であること, また, より配向性を低下させた成長をすることが示された.

Figure 3 に塩酸濃度 0.82 mol/L, 2.33 mol/L における断面 SEM 測定結果を示す. Fig.3 から塩酸濃度 0.82 mol/L では 400~550°Cで成膜し, 成長温度の増加に伴い膜厚が増加した. また, 塩酸濃度 2.33 mol/L では 450, 550°Cで 3次元成長をした. このことから, 塩酸濃度の低下に伴い薄膜平坦性は向上し, 一方で, 成長レートは減少すると考えられる.

Figure 4 に塩酸濃度 0.82 mol/L, 2.33 mol/L におけるホール効果測定の結果を示す. Fig.4 より, いずれの塩酸濃度においても 450°C, 550°Cで温度の上昇に伴い電気的特性が向上した. このとき, 塩酸濃度が 2.33 mol/L に比べ 0.82 mol/L のときに高い電気的特性を観測した. この結果は, In_2O_3 が 3次元成長したことで正確に測定できなかったためと考える. このことから, 薄膜平坦性の向上が電気的特性に影響を与えることが示唆された.

4. 結論

本研究では Mist CVD 法によるデバイス化応用可能な機能性 In_2O_3 薄膜の実現を目的として, SiO_2/Si 基板上に原料溶液中の塩酸濃度を 0.82 mol/L, 2.33 mol/L に変化させて成長を行った. 各種測定結果から, 塩酸濃度を低下することで成長レートの減少, 薄膜平坦性の向上, また, それに伴う電気的特性の向上が可能であることが示された.

参考文献

- 1) T. Koida, Y. Ueno, and H. Shibata, Phys. Stat. Solidi A **215**, 1700506 (2018).
- 2) K. Kaneko. *et al.*, Journal of Society of Materials Science, Japan. Vol. **59**, No 9. (2010).
- 3) S. Aikawa. *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, 090506 (2019).
- 4) T. Kawaharamura *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **53**, 05FF08 (2014).
- 5) K. Kaneko *et al.*, Appl. Phys. Express **8**, 095503 (2015).
- 6) T. Yamaguchi *et al.*, Appl. Phys. Express **13**, 075504 (2020).
- 7) R. Chwang *et al.*, Solid State Electron. **17**, 1217 (1974).

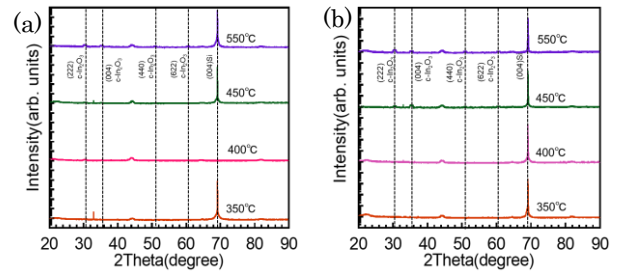


Fig.1 塩酸濃度 0.82 mol/L(a)と 2.33 mol/L(b)の XRD θ -2 θ 測定結果.

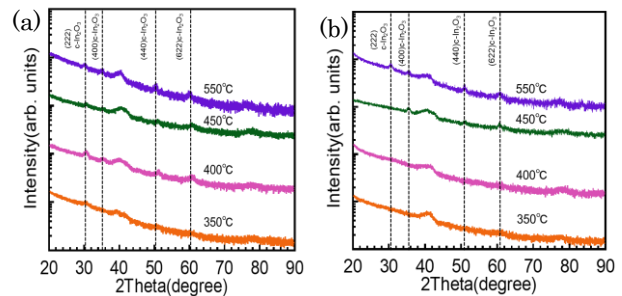


Fig.2 塩酸濃度 0.82 mol/L(a)と 2.33 mol/L(b)の XRD 2 θ 測定結果.

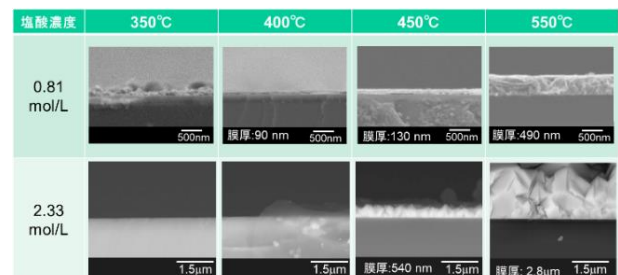


Fig.3 塩酸濃度 0.82 mol/L と 2.33 mol/L の断面 SEM 測定結果.

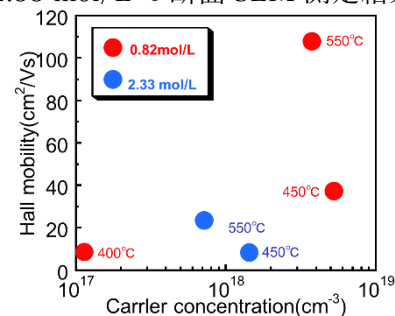


Fig.4 塩酸濃度 0.82 mol/L と 2.33 mol/L のホール効果測定結果.