

InGaO₃(ZnO)_n 大型単結晶のアニール処理による電気伝導度の変化

Annealing effect of the conducting behavior of the bulk single crystals of InGaO₃(ZnO)_n

東理大先進工, °加瀬 直樹, 井上 禎人, 漆間 由都, 田中 啓太, 河村 優介, 宮川 宣明

Tokyo Univ. of Sci., °Naoki Kase, Tadahito Inoue, Yuto Uruma, Keita Tanaka, Yusuke Kawamura,

Nobuaki Miyakawa

E-mail: n-kase@rs.tus.ac.jp

InGaO₃(ZnO)_n (以下 IGZO-1n と表記)で表される透明酸化物半導体は、高い透明度・電子移動度・極低なリーク電流などの特性から様々な電子デバイスへの応用化が期待されており、液晶ディスプレイなどに利用される薄膜トランジスタ(TFT)に採用されている。しかし、これらの基礎物性については、Zn の蒸気圧が高いことなどから大型単結晶育成が困難であるため、バルク物性が測定ができずに未解明の部分が残されていた。このような背景のもと、我々の研究グループでは 9 気圧下における Optical Floating Zone (OFZ)法によって InGaO₃(ZnO)_n (n = 1, 2, 3)の大型単結晶の育成に成功した[1-3]。我々はこの単結晶を用いてバルク試料の電気伝導特性を明らかにしてきた。特に電気伝導度の異方性は In, Ga, Zn ブロック層が与える電気伝導への寄与を推測できるため、IGZO の物性解明に大きな役割を果たすと考えている。As-grown 試料では c 軸方向の In-In 間の距離によらない電気伝導異方性の値が見られたが、より低キャリア側ではその距離に従う振る舞いが予想できた。本研究では、アニール処理を施した大型単結晶を用いてより低いキャリア帯における InGaO₃(ZnO)_n (n = 1, 2, 3)の伝導異方性を明らかにすることを目的として研究を行った。

As-grown 試料では IGZO-12 は電気伝導異方性 $\sigma_{ab}/\sigma_c \sim 10$ 程度と最も小さな値を示すが、酸素アニール処理した試料($n \sim 10^{-18} \text{ cm}^{-3}$)では IGZO-11 よりも高い伝導異方性が観測された。IGZO-13 の伝導異方性は as-grown 試料では 150 ほどであるが、アニール処理した試料($n \sim 10^{-18} \text{ cm}^{-3}$)では 500 程度となり、この値は絶縁層を有する La_{2-x}Sr_xCuO₄ などと比較すると小さいが、n が増えるにつれて上昇する振る舞いが見られた。そのため 10^{-19} cm^{-3} よりも小さなキャリア密度帯では、In-In 間の距離に依存した伝導異方性が観測された。As-grown 試料の異方性の違いは、n の違いによって酸素欠損サイトの違いが生じている可能性などが挙げられる。

また酸素アニールに対する電気伝導率の応答は IGZO-11 とそれ以外では明確に異なった。IGZO-11 では 1000 °C-24 時間でのアニール処理による室温での値は 600 S/cm から 80 S/cm 程度の減少を示した。それに対し、IGZO-13 では 200 S/cm から 0.2 S/cm と大きく変化し、その温度依存性にも明確な熱活性型の温度依存性が見られた。また IGZO-13 では複雑なギャップ構造に反映されると考えられる 2 段の依存性が観測され、それぞれ 10 meV 程度の励起が見られた。当日は酸素欠損の補償を目的とした酸素アニールだけでなく、還元処理を期待した高真空アニールの結果についても報告する。

[1] Y. Tanaka *et al*, Cryst Eng Comm, **21** 2985-2993 (2019). [2] N. Kase *et al.*, Cryst Eng Comm, **24** 4481-4495 (2022). [3] N. Kase *et al.*, Submitted in AIP publishing.