

Структура и свойства тонких пленок оксида индий-олово, полученных методом реактивного магнетронного распыления*Ю. С. Жидик, А. А. Чистоедова, Е. В. Жидик, А. Е. Петрюк*

Исследованы электрофизические характеристики наноразмерных пленок оксида индий-олово (ITO), полученных методом реактивного магнетронного распыления мишени In/Sn в кислородосодержащей среде. Приведены результаты исследования изменения электропроводности пленок ITO в широком интервале температур и частот. Определены значения концентрации основных носителей заряда, их подвижности и положение уровня Ферми. Исследованы оптические свойства пленок в широком диапазоне длин волн.

Ключевые слова: прозрачный электропроводящий контакт, пленки ITO, электрофизические свойства пленок ITO.

Ссылка: Жидик Ю. С., Чистоедова А. А., Жидик Е. В., Петрюк А. Е. // Прикладная физика. 2020. № 2. С. 59.

Reference: Yu. S. Zhidik, A. A. Chistoedova, E. V. Zhidik, and A. E. Petryuk, Applied Physics, No. 2, 59 (2020).

Введение

В настоящее время большое внимание уделяется совершенствованию полупроводниковых источников света. Для увеличения их квантовой эффективности и более равномерного растекания тока по поверхности контакта предпочтение отдается оксиду индий-олово (ITO), который обладает высокой электропроводностью и прозрачен в видимом диапазоне длин волн. Однако его электрофизические и оптические свойства до конца не изучены, в связи с чем это вопрос остается актуальным.

Целью данной работы является исследование влияния режимов получения пленок ITO методом реактивного магнетронного распыления мишени In/Sn в кислородосодержащей среде на изменение их электрофизических свойств. Для достижения поставленной цели решались задачи, связанные с исследованием поверхности пленок ITO до и после отжига; исследованием температурных и частотных зависимостей проводимости; проведением анализа изменения оптических свойств образцов ITO, а также с определением основных параметров электропроводности ITO.

Жидик Юрий Сергеевич^{1,2}, ст. преподаватель кафедры, н.с. лаб.

Чистоедова Анна Андреевна¹, магистрант.

Жидик Екатерина Вячеславовна¹, инженер-исследователь.

Петрюк Алёна Евгеньевна¹, студент.

¹ ТУСУР.

Россия, 634050, г. Томск, ул. Ленина, 40.

² Институт оптики атмосферы им. В. Е. Зуева СО РАН.

Россия, 634055, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1.

E-mail: zhidikyur@mail.ru

Статья поступила в редакцию 6 марта 2020 г.

© Жидик Ю. С., Чистоедова А. А., Жидик Е. В., Петрюк А. Е., 2020

Объекты исследований

Объектами исследований являлись пленки оксида индий-олово толщиной 130 нм, осажденные на ситалловые и кремниевые подложки методом реактивного магнетронного распыления компактной мишени, состоящей из сплава индия (90 %) и олова (10 %), в смеси газов аргона и кислорода. Образец № 1 напылялся при 12 % содержании кислорода в составе атмосферы и не отжигался. Образец № 2 напылялся также при 12 %

содержании кислорода в составе атмосферы и в дальнейшем отжигался при температуре 600 °С в атмосфере воздуха в течение 20 минут. Образец № 3 напылялся при 16 % содержании кислорода в составе атмосферы и не отжигался. Образец № 4 напылялся также при 16 % содержании кислорода в составе атмосферы и в дальнейшем отжигался при температуре 600 °С в атмосфере азота в течение 20 минут. Далее для проведения электрических измерений на все образцы были осаждены алюминиевые контакты толщиной 300 нм методом термического испарения.

Результаты и обсуждение

Для определения фазового состава был проведен рентгенофазовый анализ образцов ИТО № 1 и № 2 (рис. 1). С отжигом при температуре 600 °С (образец № 2) происходит частичное образование кристаллической структуры в объеме. Судя по дифракционным отражениям, ориентация плоскостей отражения (222) преобладает в образце № 2, что соответствует образованию кристаллической структуры пленок в плоскости [111]. Размер областей когерентного рассеяния, определенных по методу Шерера-Дебая составляет 111 нм [1, 2].

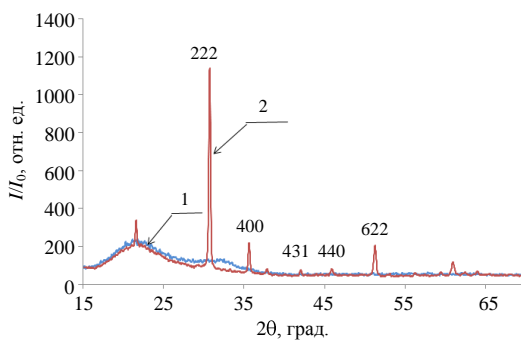


Рис. 1. Рентгенограмма образцов № 1 (1) и № 2 (2).

Для образцов пленок ИТО № 4, напыленных в рабочей атмосфере с 16 % содержанием кислорода и подверженных последующему высокотемпературному отжигу, также характерно образование кристаллической фазы по сравнению с таким же образцом без отжига (образец № 3). Плоскость роста кристаллов аналогична образцу № 2 – [111]. Размер областей когерентного рассеяния составляет 84 нм. Таким образом, размер областей когерентного рассеяния для образца № 2, ото-

жженного на воздухе, больше на 24 %, чем для образца № 4, отожженного в азоте. Учитывая, что область когерентного рассеяния прямо пропорциональна размеру кристаллитов, то можно сделать вывод что образец № 2 обладает более совершенной структурой по сравнению с образцом № 4 [2–4].

На рисунке 2 представлена температурная зависимость сопротивления для образца № 1 в диапазоне температур от комнатной до 100 °С в процессе нагревания и охлаждения.

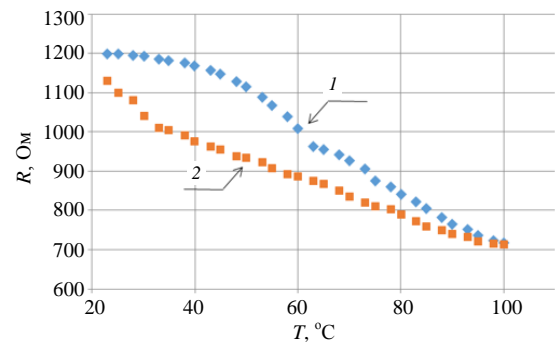


Рис. 2. Зависимость сопротивления образца № 1 от температуры при нагреве (1) и охлаждении (2).

Как видно из рисунка 2, с ростом температуры сопротивление образцов без отжига монотонно уменьшается. С охлаждением образца сопротивление начинает увеличиваться, приближаясь к первоначальному значению, однако не достигает его. По всей видимости это обусловлено активацией легирующей примеси в пленках ИТО при высокотемпературном отжиге. Аналогичная зависимость наблюдается и для образца № 3.

График температурной зависимости сопротивления для пленок ИТО, подверженных высокотемпературному отжигу (образец № 2) представлен на рисунке 3.

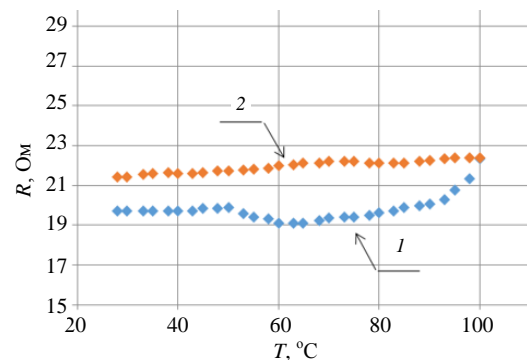


Рис. 3. Зависимость сопротивления образца № 2 от температуры при нагреве (1) и охлаждении (2).

Для образцов после отжига наблюдается

обратная зависимость. Также сопротивление не возвращается к своему начальному значению, а устанавливается на несколько значений выше [5].

При помещении образцов без отжига в жидкий азот их сопротивление с ростом температуры от минус 180 °С до комнатной уменьшается, как было при повышенных температурах. При пониженных температурах от минус 180 °С до минус 135 °С наблюдается истощение примеси олова с энергией активации 0,008 эВ для образца № 1 и 0,0013 эВ для образца № 3. В интервале температур от минус 135 °С до комнатной температуры механизм проводимости прыжковый по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми с энергией 0,015 эВ (образец № 1) и 0,004 эВ (образец № 3).

Для образца № 2 и № 4 так же, как и при повышенных температурах, наблюдается монотонный рост сопротивления с нагревом. Температурный коэффициент сопротивления (ТКС) равен соответственно $7,1 \times 10^{-4}$ град⁻¹ для образца № 2 и $3,8 \times 10^{-4}$ град⁻¹ для образца № 4. Такое значение ТКС обусловлено рассеянием на фонах, дефектах и ионах примеси.

Таким образом, пленки ИТО до и после отжига имеют различные механизмы проводимости: для пленок ИТО без отжига характерен полупроводниковый тип электропроводности, когда сопротивление уменьшается с ростом температуры; для пленок с отжигом наблюдается металлический тип проводимости с ростом сопротивления. Образцы пленок после отжига обладают меньшим температурным коэффициентом сопротивления.

Исследование частотной зависимости проводимости для всех образцов показало, что она нелинейно увеличивается с ростом частоты переменного тока для всех образцов [1]. Это характерная зависимость для прыжкового механизма электропроводности по локализованным состояниям, расположенным в зоне проводимости [6].

Эффект Холла позволяет проследить, как изменяется концентрация и подвижность носителей заряда с отжигом. При этом, наибольший интерес представляют образцы № 1 (до отжига) и № 2 (после отжига), т. к. технология напыления пленок ИТО в атмосфере с

12 % содержанием кислорода в составе рабочей атмосферы и последующий отжиг в среде воздуха обеспечивают наибольшую кристаллическую структуру и наименьшее удельное сопротивление. Путем проведения Холловских измерений для данных образцов были рассчитаны концентрации и подвижности носителей заряда в образцах (таблица).

Таблица

Электрофизические характеристики образцов пленок ИТО, осажденных при 12 % содержании кислорода в составе рабочей атмосферы

	ρ_v , Ом·см	n , см ⁻³	μ , см ² /(В·с)
Образец № 1	$2,73 \times 10^{-4}$	$1,2 \times 10^{22}$	1,9
Образец № 2	3×10^{-5}	$1,45 \times 10^{22}$	14,4

Полученные значения концентрации и подвижности по порядку совпадают с данными, представленными в источниках [7–9]. В образце после отжига наблюдается увеличение концентрации основных носителей заряда и их подвижности на порядок. Это связано с тем, что при отжиге происходит частичная кристаллизация структуры ИТО и активация примеси олова.

Экспериментальные данные по термо-ЭДС позволяют рассчитать интегральную термо-ЭДС, которая равна $4,5 \times 10^{-5}$ В/град. Исходя из этого была рассчитана разность энергии зоны проводимости и уровня Ферми, которая составила -0,09 эВ. Таким образом, уровень Ферми лежит в зоне проводимости и полупроводник можно считать вырожденным [10].

Наряду с электрическими свойствами важным параметром пленок ИТО является спектральная зависимость их коэффициента пропускания, характеризующая прозрачность пленок (рис. 4). Данные зависимости получены с помощью спектрофотометра Shimadzu UV-3600 plus.

Полученные спектральные зависимости показывают, что максимальное пропускание наблюдается в видимом диапазоне длин волн от 400 до 900 нм. Сохранение высокого значения коэффициента пропускания в диапазоне длин волн от 1200 до 1800 нм у пленок ИТО, напыленных по технологии № 2, после проведения высокотемпературного отжига свидетельствует о возможности их применения в

качестве прозрачного контакта для устройств радиофотоники, использующих излучение с длиной волны 1550 нм. Установлено, что увеличение количества кислорода в среде напыления, а также дополнительный высокотемпературный отжиг приводят к росту коэффи-

циента пропускания. Так, образец № 1 имеет наименьший коэффициент пропускания в связи с изначально минимальным содержанием кислорода при напылении, и, следовательно, с содержанием большого количества недоокисленных атомов металлов.

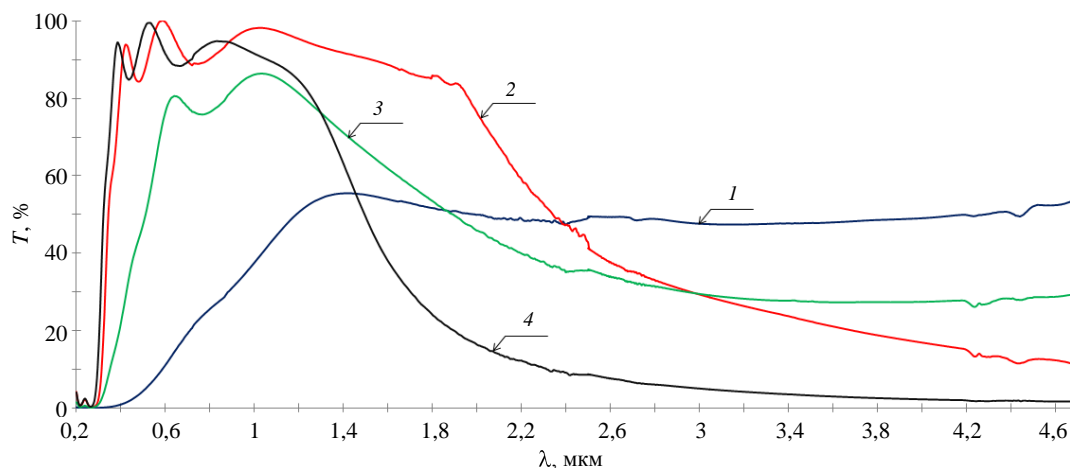


Рис. 4. Спектры пропускания плёнок ИТО: 1 – образец № 1; 2 – образец № 2; 3 – образец № 3; 4 – образец № 4.

С помощью Фурье-спектрометра были получены спектры отражения в ИК-области. Установлено, что чем больше содержание кислорода в атмосфере напыления, тем выше отражение. Также значение коэффициента отражения для всех образцов не превышает 55 %. Наибольшей отражательной способностью обладает образец № 4, так как проводился дополнительный отжиг. Плёнки можно использовать в качестве отражающих или просветляющих контактов, в зависимости от требований, предъявляемых к приборам. Наименьшее значение коэффициента отражения для образцов № 2 и № 4 наблюдается при длине волны 560 нм, т. е. плёнка является антиотражающей. Для длины волны 450 нм максимальное значение отражения, поэтому плёнка отражающая. Во всем диапазоне длин волн равномерным отражением обладает образец № 1, но он обладает аморфной структурой и большим сопротивлением.

Заключение

Плёнки ИТО, полученные методом магнетронного распыления из компактной мишени из сплава индия и олова обладают высокой проводимостью, ее частотной зависимостью, являются вырожденными полупроводниками

n-типа проводимости. В процессе отжига при температуре 600 °С пленки кристаллизуются в направлении [111] и их сопротивление уменьшается и стабилизируется. Установлено, что наряду с термоактивационным механизмом проводимости, наблюдается прыжковый по локализованным состояниям в запрещенной зоне.

Работа выполнена по проекту фундаментальных исследований РАН № 0293-2019- 0006 и, в частности, исследование электрофизических свойств плёнок ИТО выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 18-32-00708. Экспериментальные результаты получены сотрудниками лаборатории ЛИОР с использованием оборудования ЦКП «Импульс» при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ по соглашению 075-15-2019-1644, идентификатор проекта RFMEFI62119X0029.

ЛИТЕРАТУРА

1. Смирнов С. В., Минин О. Н., Чистоедова А. А., Петрюк А. Е. // Нанотехнологии: разработка, применение – XXI век. 2019. Т. 11. № 1. С. 14.

2. Жидик Ю. С., Троян П. Е., Чистоедова А. А., Сахаров Ю. В., Ильиных А. В. // Нанотехнологии: разработка, применение – XXI век. 2018. Т. 10. № 4. С. 3.
3. Жидик Ю. С., Чистоедова А. А., Жидик Е. В., Смирнов С. В. // Взаимодействие излучений с твердым телом: материалы 13-й Междунар. конф. (Минск. 2019). С. 386–389.
4. Boonyopakorn N., Sripogpun N., Thanachayanont C., Dangtip S. // Chin. Phys. Lett. 2010. Vol. 27. No. 10. P. 103.
5. Чистоедова А. А., Смирнов С. В. // Нанотехнологии: разработка, применение – XXI век. 2018. Т. 10. № 2. С. 20.
6. Мотт Н., Дэвис Э. Электронные процессы в некристаллических веществах. – М.: Мир, 1974.
7. Зайцева Е. А., Закирова Р. М., Крылов П. Н., Лебедев К. С., Федотова И. В. // Вестник Удмуртского Университета. Серия: Физика. Химия. 2012. Т. 2. С. 26.
8. Сахаров Ю. В., Троян П. Е., Жидик Ю. С. // Доклады Томского государственного университета систем управления и радиоэлектроники. 2015. Т. 3. № 37. С. 85.
9. Sytchkova A., Zola D., Bailey L.R, Mackenzie B., Proudfoot G., Tian M., Ulyashin A. // Materials Science and Engineering. 2012. Vol. 178. No. 9. P. 586.
10. Gupta L., Mansingh A., Srivastava P. K. // Thin Solid Films. 1989. Vol. 176. No. 1. P. 33.

PACS: 73.63.Bd

Structure and properties of ITO thin films obtained by reactive magnetron sputtering

Yu. S. Zhidik^{1,2}, A. A. Chistoedova¹, E. V. Zhidik¹, and A. E. Petryuk¹

¹ Tomsk State University of Control Systems and Radioelectronics
40 Lenina st., Tomsk, 634050, Russia

² V. E. Zuev Institute of Atmospheric Optics SB RAS
1 Academician Zuev square, Tomsk, 634055, Russia

Received May 12, 2020

The article presents the research of the electrophysical characteristics of nanosized films of indium-tin oxide (ITO) obtained by reactive magnetron sputtering. The results of the research of the changes of ITO films conductivity in a wide range of temperatures and frequencies are presented. The charge-carrier concentration, mobility and Fermi edge position are counted. Optical properties of films in a wide range of wavelengths are investigated.

Keywords: transparent conductive contact, ITO films, electrophysical properties of ITO.

REFERENCES

1. S. V. Smirnov, O. N. Minin, A. A. Chistoedova, and A. E. Petryuk, Nanotekhnologii: razrabotka, primeneniye – XXI vek **11** (1), 14 (2019) [in Russian].
2. Yu. S. Zhidik, P. E. Troyan, A. A. Chistoedova, Yu. V. Sakharov, and A. V. Ilinykh, Nanotekhnologii: razrabotka, primeneniye – XXI vek **10** (4), 3 (2018) [in Russian].
3. Yu. S. Zhidik, A. A. Chistoedova, E. V. Zhidik., and S. V. Smirnov, in *materialy 13-j Mezhdunar. konf Vzaimodejstvie izluchenij s tverdyim telom* (Minsk, 2019), pp. 386–389.
4. N. Boonyopakorn, N. Sripogpun, C. Thanachayanont, and S. Dangtip, Chin. Phys. Lett. **27** (10), 103 (2010).
5. A. A. Chistoedova and S. V. Smirnov, Nanotekhnologii: razrabotka, primeneniye – XXI vek **10** (2), 20 (2018) [in Russian].
6. N. F. Mott and A. E. Davis, *Electronic Processes in Non-Crystalline Materials* (Oxford University Press, New York, 1971; “MIR” Publ., Moscow, 1974).
7. E. A. Zayceva, R. M. Zakirova, P. N. Krylov, K. S. Lebedev, and I. V. Fedotova, Vestnik Udmurtskogo Universiteta **2**, 26 (2012) [in Russian].
8. Yu. V. Sakharov, P. E. Troyan, and Yu. S. Zhidik, Doklady Tomskogo gosudarstvennogo universiteta sistem upravleniya i radioelektroniki **3** (37), 85 (2015) [in Russian].
9. A. Sytchkova, D. Zola, L. R. Bailey, B. Mackenzie, G. Proudfoot, M. Tian, and A. Ulyashin, Materials Science and Engineering **178** (9), 586 (2012).
10. L. Gupta, A. Mansingh, and P. K. Srivastava, Thin Solid Films **176** (1), 33 (1989).