

R1444

光電子分光法による酸化亜鉛と酸化タングステルのバンドオフセットの評価

Characterization of zinc oxide and tantalum oxide thin films by ultraviolet photoelectron spectroscopy

尾形 健一^a, 滝沢 優^bKen-ichi Ogata^a, Masaru Takizawa^b^a大阪工業大学ナノ材研, ^b立命館大学 SR センター^aNMRC, Osaka Institute of Technology, ^bThe SR Center, Ritsumeikan University

機能性材料として期待される酸化亜鉛(ZnO)と絶縁体材料である酸化タングステル(Ta₂O₅)のバンドオフセット評価に向けての基礎的評価を紫外線光電子分光法で検討した。Si 基板の上にスパッタ製膜した ZnO/Si および Ta₂O₅/ZnO/Si は 700°C の熱処理において価電子帯スペクトルが大きく変化し、構造が変化していると思われる。また Ta₂O₅/ZnO/Si に対して 500°C の熱処理を行うと Zn3d からの信号が観測され Ta₂O₅ への Zn の拡散が示唆された。

Toward the estimation of the band offset between a functional material zinc oxide (ZnO) and an insulating material tantalum oxide (Ta₂O₅), ultraviolet photoelectron spectroscopy was utilized. Valence band spectra of ZnO/Si and Ta₂O₅/ZnO/Si were changed after thermal annealing at 700°C, indicating structural modification. In addition, Zn 3d signals were observed in Ta₂O₅/ZnO/Si annealed at 500°C, suggesting Zn diffusion into Ta₂O₅.

Keywords: zinc oxide, tantalum oxide, photoelectron spectroscopy

背景と研究目的: 近年, 酸化物材料が持つ多機能性に注目が集まり, 様々な応用が期待されている。酸化亜鉛(ZnO)はその光学特性・電子物性・圧電特性などから透明エレクトロニクス・バイオセンサなどの応用が期待されている[1]。電界効果トランジスタ(FET)としてとしての応用の場合には, 絶縁体材料との接合が必要になり, バンドオフセットが重要なパラメータとなる。本研究では古くから用いられている絶縁体材料の酸化タングステル(Ta₂O₅)に着目した。

Ta₂O₅/ZnO における価電子帯のバンドオフセット ΔE は内殻スペクトルのピーク位置及び価電子帯端エネルギー位置から以下の式で求めることができる[2]。

$$\Delta E = (E^{\text{Zn3d}} - E^{\text{valence}})_{\text{ZnO}} - (E^{\text{Ta4f}} - E^{\text{valence}})_{\text{Ta}_2\text{O}_5} + (E^{\text{Zn3d}} - E^{\text{Ta4f}})_{\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{ZnO}}$$

従って ΔE の評価のためには価電子帯スペクトル及び内殻スペクトルの測定が必要になるが, 本研究では薄膜作製条件の検討も必要なことから価電子帯スペクトルの測定を行った。

実験: ZnO 薄膜及び Ta₂O₅ 薄膜はスパッタ法で基板温度 300°C にて堆積した[1]。光電子分光測定時のチャージアップを防ぐ観点から導電性 Si を基板として用いた。Ta₂O₅ 薄膜は ZnO

薄膜上に行ない, ZnO/Si 及び Ta₂O₅/ZnO/Si を作製した。成膜後の熱処理は 500°C 及び 700°C にて大気中で行った。

紫外線光電子分光測定は立命館大学 SR センター BL-7 にてシンクロトロン光エネルギー 50eV で行った。

結果、および、考察: Fig. 1, 2 に ZnO/Si 及び Ta₂O₅/ZnO/Si の価電子帯スペクトルの熱処理温度依存性を示す。この時の Ta₂O₅, ZnO 薄膜の膜厚はそれぞれ 6nm, 30nm である。

いずれの場合も 700°C の熱処理においてはスペクトルが大きく変化しており, 構造が変化していると考えられる。実験室で測定した X 線回折パターンは上記の構造変化を支持するものとなっている。また 500°C の熱処理では ZnO/Si の場合スペクトルがシフトしており, 熱処理によりフェルミ準位の位置が変化していると思われる。これは大気中での熱処理により膜中に O が取り込まれ, ドナーである V_O が減少したためであると考えられる。Ta₂O₅/ZnO/Si の場合にはそのような変化は観察されないが 11eV 付近に Zn3d に関するピークが見られ, Zn が Ta₂O₅ 表面に拡散していることが示唆される。

次に熱処理温度を 500°C に固定し, Ta₂O₅ 膜厚を変化させた時の熱処理前後の価電子帯スペクトルを Fig.3, 4 に示す. Fig.3 からは Ta₂O₅ 膜厚が 1.5nm の場合には熱処理なしでも Ta₂O₅ 表面に Zn が拡散していることがわかった. また Ta₂O₅ 膜厚 15nm と比較的厚くしても熱処理により Zn 拡散が起こってしまうことも分かった.

以上のことをもとに最適な製膜温度熱処理条件を検討し, Ta₂O₅/ZnO バンドオフセット評価を目指していきたい.

文献

- [1] M. Yano, K. Koike, K. Mukai, T. Onaka, Y. Hirofujii, K. Ogata, S. Omatu, T. Maemoto and S. Sasa, *phys. stat. solidi (a)*211 (2014) 2098.
 [2] Q. Chen, M. Yang, Y. P. Feng, J. W. Chai, Z. Zhang, J. S. Pan and S. J. Wang, *Appl. Phys. Lett.* 95 (2009) 162104.

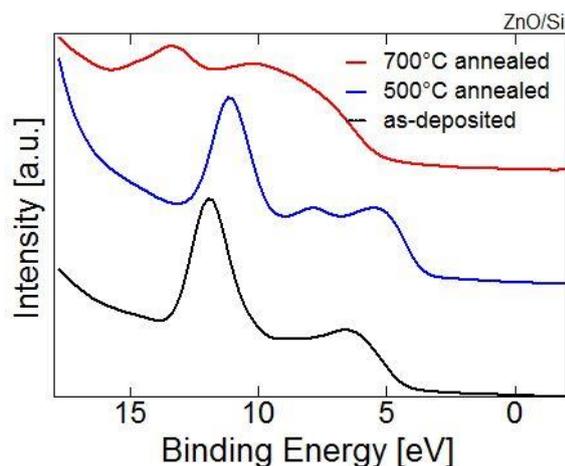


Fig. 1. Annealing temperature dependence of valance band spectra of ZnO/Si

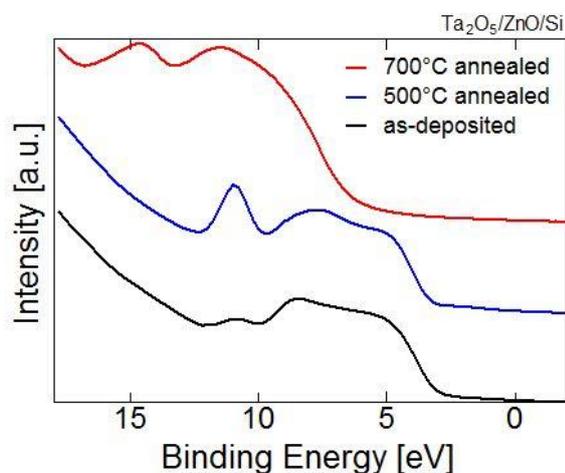


Fig. 2. Annealing temperature dependence of valance band spectra of Ta₂O₅/ZnO/Si

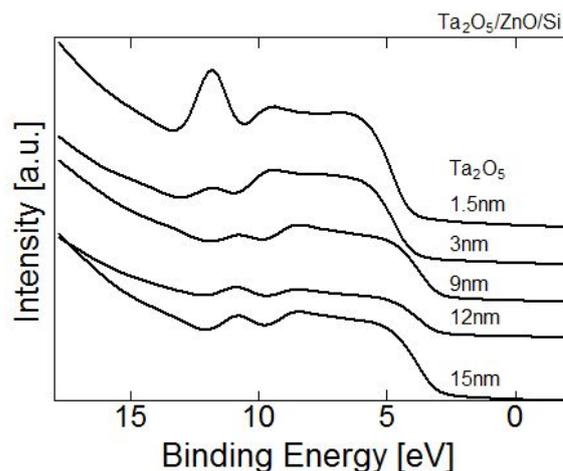


Fig. 3. Thickness dependence of valance band spectra of as-deposited Ta₂O₅/ZnO/Si

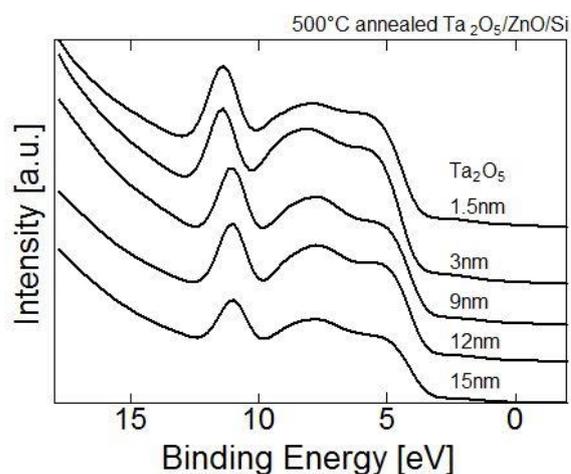


Fig. 4. Thickness dependence of valance band spectra of annealed Ta₂O₅/ZnO/Si