

# Growth and Optical-Electric Properties of Indium Tin Oxide Thin Films Application on Light Emitting Diodes

黃菁樺、王立民；宋皇輝

E-mail: 9314899@mail.dyu.edu.tw

## ABSTRACT

伴隨著電子元件功能化的需求，電子產品朝向高集積密度、小型化的趨勢，如何製作低電阻率，高透光率，微細加工性良好，低缺陷及大面積化的ITO膜，為目前研究ITO薄膜的趨勢。目前使用ITO透明導電薄膜當電極的產品很多，如何有效地降低電阻率、降低電極的蝕刻難度都是現在刻不容緩的話題。為了LED或其他光電元件操作時的效率及可靠性，使用一可與GaN形成歐姆接觸(ohmic contact)的電極是相當必要的，因為元件行為，如操作電壓，強烈的受到其接觸電阻的影響，特別是對高功率元件 本研究利用直流磁控濺鍍法，分別於康寧玻璃Code 1737F上鍍上ITO透明導電薄膜及在欲鍍ITO透明導電薄膜之玻璃上先鍍上FeO。探討製程參數對ITO薄膜性質之影響，及FeO中介層的厚度與結晶性對ITO結構、電性及可見光穿透率之影響。選擇最佳ITO鍍膜條件，探討ITO/GaN與ITO/FeO/GaN歐姆接觸電阻值的影響。

Keywords : 直流磁控濺鍍 ; ITO ; GaN ; FeO ; LED

## Table of Contents

目錄 封面內頁 簽名頁 授權書.....	iii	中文摘要.....	iv	英文摘要.....	v
誌謝.....	vii	目錄.....	viii	圖目錄.....	x
表目錄.....	xi	第一章 緒論 1.1 前言.....	1	1.2 相關之研究與研究動機.....	6
第二章 理論基礎 2.1 銻錫氧化物薄膜簡介.....	10	2.2 銻錫氧化物之結構簡介.....	10	2.3 銻錫氧化物之電性.....	12
2.4 銻錫氧化物之光學性質.....	15	2.5 濺鍍原理.....	17	2.6 電漿原理.....	18
2.7 反應式磁控濺鍍.....	19	2.7.1 濺射現象.....	19	2.7.2 薄膜沉積原理.....	24
2.8 單極性元件.....	26	2.8.1 金半界面之電流電壓特性.....	27	2.8.2 歐姆界面.....	30
第三章 實驗方法與步驟 3.1 實驗流程.....	31	3.2 實驗材料.....	32	3.2.1 靶材.....	32
3.2.2 基材.....	32	3.2.3 氣體.....	33	3.3 實驗方法.....	33
3.3.1 實驗裝置.....	33	3.4 鍍膜參數及步驟.....	35	3.4.1 鍍膜參數.....	35
3.4.2 鍍膜步驟.....	35	3.5 薄膜性質測試與分析.....	36	3.5.1 膜厚量測.....	36
3.5.2 霍爾效應量測.....	37	3.5.3 X光繞射分析.....	39	3.5.4 光學穿透度.....	39
3.5.5 表面平坦度量測.....	40	3.5.6 電流電壓曲線量測.....	40	第四章 結果與討論 4.1 製程參數對ITO透明導電膜之影響.....	41
4.1.1 製程參數對ITO鍍膜結構之影響.....	41	4.1.2 製程參數對ITO鍍膜電性之影響.....	51	4.1.3 製程參數對ITO鍍膜可見光穿透率之影響.....	57
4.2 FeO中介層對ITO透明導電薄膜之影響.....	59	4.2.1 FeO鍍膜結構鑑定.....	59	4.2.2 ITO/FeO/Glass與ITO/Glass鍍膜結構之比較.....	60
4.2.3 ITO/FeO/Glass與ITO/Glass鍍膜電性之比較.....	63	4.2.4 ITO/FeO/Glass與ITO/Glass鍍膜光 穿透率之比較.....	63	4.2.5 ITO/FeO/GaN及ITO/GaN鍍膜電流電 壓曲線之比較.....	70
第五章 結論.....	72	第六章 參考文獻.....	74	圖目錄 圖1.1 LED之發光原理.....	5
圖1.2 A schematic illustration of typical planar surface emitting LED devices.....	6	圖1.3 氧化鎳之晶體結構.....	7	圖1.4 氧化鋅之晶體結構.....	8
圖2.1 In <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 常壓下之晶體結構.....	11	圖2.2 In <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 常壓下之晶體結構.....	12	圖2.3 ITO導電的機構.....	13
圖2.4 The diagram of energy band gap for Burstein -Moss shift.....	17	圖2.5 離子碰撞固體表面伴隨而來的反應.....	20	圖2.6 濺鍍現象.....	21
圖2.7 磁控現象.....	23	圖2.8 薄膜之孕核與成長模式.....	24	圖2.9 薄膜形成之原理.....	26
圖2.10 在不同偏壓情況下，金屬n型和p-型半導體的能帶圖.....	27	圖2.11 熱離子發射過程的電流傳輸.....	28	圖3.1 實驗流程圖.....	31
圖3.2 薄膜製備設備.....	33	圖3.3 ITO、FeO薄膜製備相關位置圖.....	34	圖3.4 -step量測方式.....	37
圖3.5 Hall Effect量測圖形及量測方式.....	38	圖3.6 PC量測實驗裝置圖.....	39	圖3.7 金半界面電流電壓曲線量測方式.....	40
圖4.1 在18x10 <sup>-3</sup> Torr、溫度為400、氬氣流量為143.1sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同DC功率的 ITO薄膜XRD圖.....	44	圖4.2 DC功率125W、溫度為400、氬氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍壓力的ITO 薄膜XRD圖.....	45	圖4.3 DC功率125W、溫度為400、氬氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍壓力的ITO 薄膜XRD圖.....	46
圖4.4 DC功率125W、溫度為400、氬氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍壓力的ITO 薄膜XRD圖，取peak (440)為基準，觀察 (222) peak強度的變化.....	47	圖4.5 DC功率125W、溫度為400、			

氫氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍壓力的ITO 薄膜AFM圖.....	48
圖4.6 DC功率125W、溫度為400 、氫氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍壓力對ITO 薄膜平坦度的曲線圖.....	49
圖4.7 DC功率125W、壓力為18mTorr、氫氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍溫度的ITO 薄膜XRD 圖.....	50
圖4.8 在18x10 <sup>-3</sup> Torr、溫度為400 、氫氣流量為 143.1sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同DC功率的ITO薄膜對電阻率的曲線圖.....	52
圖4.9 DC功率125W、溫度為400 、氫氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍壓力對ITO 薄膜電阻率的曲線圖.....	53
圖4.10 DC功率125W、溫度為400 、氫氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍壓力對ITO 薄膜載子濃度的曲線圖.....	54
圖4.11 DC功率125W、溫度為400 、氫氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍壓力對ITO 薄膜遷移率的曲線圖.....	55
圖4.12 DC功率125W、壓力為18mTorr、氫氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍溫度對ITO 薄膜電阻率的曲線圖.....	56
圖4.13 DC功率125W、溫度為400 、氫氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍壓力對ITO 薄膜光穿透率的曲線圖.....	57
圖4.14 DC功率125W、壓力為18mTorr、氫氣流量為143.1 sccm、濺鍍時間為10分鐘，不同濺鍍溫度對ITO 薄膜光穿透率的曲線圖.....	58
圖4.15 FeO薄膜的XRD圖.....	59
圖4.16 濺鍍不同時間的中介層FeO薄膜的XRD圖.....	61
圖4.17 濺鍍不同時間的中介層FeO薄膜的ITO (222)/ (440) peak強度的曲線圖.....	62
圖4.18 濺鍍不同時間的中介層FeO薄膜的平坦度曲線圖.....	64
圖4.19 濺鍍不同時間的中介層FeO薄膜的AFM圖.....	65
圖4.20 濺鍍不同時間的中介層FeO薄膜的遷移率曲線圖.....	66
圖4.21 濺鍍不同時間的中介層FeO薄膜的載子濃度曲線圖.....	67
圖4.22 濺鍍不同時間的中介層FeO薄膜的電阻率曲線圖.....	68
圖4.23 濺鍍不同時間的中介層FeO薄膜的光穿透率曲線圖.....	69
圖4.24 ITO/FeO/GaN與ITO/ GaN的電流電壓曲線.....	71
圖4.25 ITO/FeO/GaN與ITO/ GaN順向電流密度對外加電 壓曲線圖.....	71
表目錄 表1.1 ITO的物理特性.....	2
表1.2 ITO的用途與性質需求.....	4
表1.3 發光二極體具有的優點.....	5
表3.1 康寧玻璃1737F之特性.....	32
表3.2 ITO和FeO薄膜鍍膜參數.....	35
表4.1 FeO各方向所對應的二倍角及晶格長度.....	60

## REFERENCES

- 參考文獻 [1]、Nily Kuck, Klony Lieberman, Aaron Lewis, and Aron Vecht, "Visible electroluminescent subwavelength point source of light", Appl. Phys. Lett. 61 (2), 13 July (1992) 139-141 [2]、M. Hagerott, H. Jeon, A. V. Nurmikko, W. Xie, D. C. Grillo, M. Kobayashi, and R. L. Gunshor, "Indium tin oxide as transparent electrode material for ZnSe-based blue quantum well light emitters", Appl. Phys. Lett. 60 (23), 8 June (1992) 2825-2827 [3]、C. T. Hsu, J. W. Li, C. H. Liu, Y. K. Su, T. S. Wu, and M. Yokoyama, "High luminous efficiency thin-film electroluminescent devices with low resistivity insulating materials", J. Appl. Phys. 71 (3), 1 February (1992) 1509-1512 [4]、Furong Zhu, C.H.A. Huan, Keran Zhang, and A.T.S. Wee, "Investigation of annealing effects on indium tin oxide thin films by electron energy loss spectroscopy", Thin Solid Films 359 (2000) 244-250 [5]、Keran Zhang, Furong Zhu, C.H.A. Huan, and A.T.S. Wee, "Effect of hydrogen partial pressure on optoelectronic properties of indium tin oxide thin films deposited by radio frequency magnetron sputtering method", J. Appl. Phys. 86 (2), 15 July (1999) 974-980 [6]、L. J. Meng, and M.P.D. Santos, "Properties of indium tin oxide (ITO) films prepared by r. f. reactive magnetron sputtering at different pressures", Thin Solid Films 303 (1997) 151-155 [7]、X. W. Sun, L. D. Wang, and H. S. Kwok, "Improved ITO thin films with a thin ZnO buffer layer by sputtering", Thin Solid Films 360 (2000) 75-81 [8]、T. Ishida, H. Kobayashi, and Y. Nakato, "Structures and properties of electron-beam-evaporated indium tin oxide and work-function measurements", J. Appl. Phys. 73 (9), 1 May (1993) 4344-4350 [9]、Radhouane Bel Hadj Tahar, Takayuki Ban, Yutaka Ohya, and Yasutaka Takahashi, "Electronic transport in tin-doped indium oxide thin films prepared by sol-gel technique", J. Appl. Phys. 83 (4), 15 February (1998) 2139-2141 [10]、J. H. Lan, and Jerzy Kanicki, "ITO surface ball formation induced by atomic hydrogen in PECVD and HW-CVD tools", Thin Solid Films 304 (1997) 123-129 [11]、Yuzo Shigesato, Satoru Takaki, and Takeshi Haranoh, "Electrical and structural properties of low resistivity tin-doped indium oxide films", J. Appl. Phys. 71 (7), 1 April (1992) 3356-3364 [12]、Masatoshi Higuchi, Shinichiro Uekusa, Ryotaro Nakano, and Kazuhiko Yokogawa, "Micrograin structure influence on electrical characteristics of sputtered indium tin oxide films", J. Appl. Phys. 74 (11), 1 December (1993) 6710-6713 [13]、A.K. Kulkarni, Kirk H. Schulz, T.S. Lim, and M. Khan, "Dependence of the sheet resistance of indium-tin-oxide thin films on grain size and grain orientation determined from X-ray diffraction techniques", Thin Solid Films 345 (1999) 273-277 [14]、L. J. Meng, and M.P.D. Santos, "Properties of indium tin oxide films prepared by r. f. reactive magnetron sputtering at different substrate temperature", Thin Solid Films 322 (1998) 56-62 [15]、Kikuo Tominaga, Tetsuya Ueda, Takahiro Ao, Masahiro Kataoka, and Ichiro Mori, "ITO films prepared by facing target sputtering system", Thin Solid Films 281-282 (1996) 194-197 [16]、S.K. So, W.K. Choi, L.M. Leung, and C.F. Kwong, "Surface preparation and characterization of indium tin oxide substrates for organic electroluminescent devices", Appl. Phys. A 68, 447-450 (1999) [17]、楊明輝, 『金屬氧化物透明導電材料的基本原理』, 工業材料, 179期, P.134 [18]、C.V.R. Vasant Kumar, and Abhai Mansingh, "Effect of target-substrate distance on the growth and properties of rf-sputtered indium tin oxide films", J. Appl. Phys. 65 (3), 1 February (1989) 1270-1280 [19]、P. Thilakan, and J. Kumar, "Studies on the preferred orientation changes and its influenced properties on ITO thin films", Vacuum, 48 (5), (1997) 463-466 [20]、許樹恩、吳泰伯, 『X光繞射原理與材料結構分析』, 中國材料科學學會 P.425、P.99 [21]、S.O. Kasap, 『Optoelectronics and Photonics : Principles and Practices』, P.139 [22]、Ja-Soon Jang, seong-Ju Park, and Tae-Yeon Seong "Formation of low resistance Pt ohmic contacts to

p-type GaN using two-step surface treatment ” , J. Vac. Sci. Technol. B 17(6), Nov/Dec (1999) 2667-2670 [23]、張俊彥、施敏 , 『半導體元件物理與製作技術』 , 高立圖書有限公司 P.191 [24]、H. Sato, T. Minami, S. Takata, and T. Yamada, “ Transparent conducting p-type NiO thin films prepared by magnetron sputtering ” , Thin Solid Films, 236 (1993) 27