

# 大気圧 CVD 法による原料交互供給下での Ga 添加 ZnO 薄膜の成長と キャリア輸送特性の温度依存性

Growth of Ga-doped ZnO Films by Atmospheric-pressure CVD under Alternate-source-supply  
and their Temperature Dependence of Carrier Transport Properties

愛媛大院理工<sup>1</sup>, 愛媛大工<sup>2</sup>

Grad.School of Sci.&Eng., Ehime Univ<sup>1</sup>, Fac.Eng., Ehime Univ<sup>2</sup>

藤本 翔平<sup>1</sup>, 藤田 崇史<sup>2</sup>, 寺迫 智昭<sup>1</sup>, 宮田 晃<sup>2</sup>, 白方 祥<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Shohei Fujimoto<sup>1</sup>, Takashi Fujita<sup>2</sup>, Tomoaki Terasako<sup>1</sup>, Akira Miyata<sup>2</sup>, Sho Shirakata<sup>1</sup>

E-mail:y845019c@mails.cc.ehime-u.ac.jp

**【序論】**透明導電膜は薄膜太陽電池や液晶・プラズマディスプレイ, タッチパネル電極など様々な用途で用いられ, 実用化されているものの多くは酸化インジウム・スズ(ITO)を材料としている. しかし希少金属であるインジウムの枯渇・高騰が問題となり, 代替材料の開発が急務である. その最も有力な候補の一つがガリウム(Ga)添加 ZnO (GZO) であるが, 抵抗率, キャリア濃度, ホール移動度といった電気特性の温度依存性はほとんど報告されていないのが現状である. 我々はこれまでキャリア輸送機構の解明を目的に, イオンプレーティング(IP)法及び大気圧 CVD(AP-CVD)法により作製された無添加及び GZO 薄膜の電気的特性の温度依存性について報告してきた[1,2]. 加えて本研究では, AP-CVD 法による原料を交互に供給する方法で GZO 薄膜の作製を行い, 従来の原料を同時に供給する方法で作製した薄膜や IP 法, 分子線エピタキシー(MBE)法で作製された GZO 薄膜の電気特性結果と比較検討を行い, 成膜方法の違いや薄膜の配向性等がキャリア輸送特性に及ぼす影響を明らかにすることを目的とした.

**【実験方法】**GZO 薄膜は, Zn 原料に Zn 粉末, O 原料に H<sub>2</sub>O, ドーパント原料に三塩化ガリウム(GaCl<sub>3</sub>)を用いた AP-CVD 法により r 面サファイア基板上に堆積した. 原料交互供給法は Zn と GaCl<sub>3</sub> を同時に供給し, その後 N<sub>2</sub> パージガス, H<sub>2</sub>O, N<sub>2</sub> パージガスの順で成長管内に供給, これを 1 サイクルとして作製を行った. 電気特性の温度依存測定は, 測定温度範囲 90~320K, 磁束密度 0.56T の下, Van der Pauw 法による Hall 効果測定により行った.

**【実験結果】**原料交互供給法により作製した GZO 薄膜はいずれも, X 線回折測定から(110)回折ピークが支配的であり, 非極性面に優先に成長していることが明らかになった. 一方で原料交互供給法により作製した無添加薄膜と比べ配向性の低下が見られ, 断面及び表面 SEM 像からも凹凸差が激しく膜厚が不均一となっており, 結晶性の低下が確認できた. 原料交互供給法によって作製した GZO 薄膜のホール効果温度依存測定の結果の一例を Fig.1 に示している. 90K から 320K までの温度上昇に対して, 抵抗率は約  $3.6 \times 10^{-3} \Omega\text{cm}$ , キャリア濃度は約  $7.0 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$  とほぼ一定である. 後者は n 型縮退半導体の挙動である. 移動度も温度変化に対して約  $24 \text{cm}^2/\text{Vs}$  一定であり, 温度に対する移動度の変化率( $\Delta\mu/r\Delta T$ )はほぼ 0 である. これまでに, AP-CVD 法, IP 法及び MBE 法 GZO 薄膜の  $\Delta\mu/r\Delta T$  は, 製膜方法の違いによらず同じ傾向を示し, キャリア濃度の上昇に対して連続的に変化し,  $\Delta\mu/\Delta T > 0$ ,  $\Delta\mu/r\Delta T = 0$  及び  $\Delta\mu/\Delta T < 0$  の三つの領域に分類できることが明らかになっている[3].  $4.0 \times 10^{19} \text{cm}^{-3} < n < 4.0 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$  の領域における主な散乱機構は縮退型イオン化不純物散乱であり, 遮蔽型クーロンポテンシャルの遮蔽長が温度に依存しない Thomas-Fermi 型であることから,  $\Delta\mu/r\Delta T = 0$  となる. ここに示す原料交互供給法で作製した CVD 法 GZO 薄膜の結果もこれと矛盾しない.

今後はさらに原料交互供給法による GZO 薄膜の作製及び評価を行い, 従来の原料同時供給法で作製した薄膜との比較検討を行う予定である.

**【参考文献】**[1]寺迫他: 第 59 回応物関係連合講演会, 17a-E4-1

[2]藤本他: 第 73 回応物学術講演会, 12p-PB8-13.

[3]T.Terasako et al. Thin Solid Films 528 (2013)19.

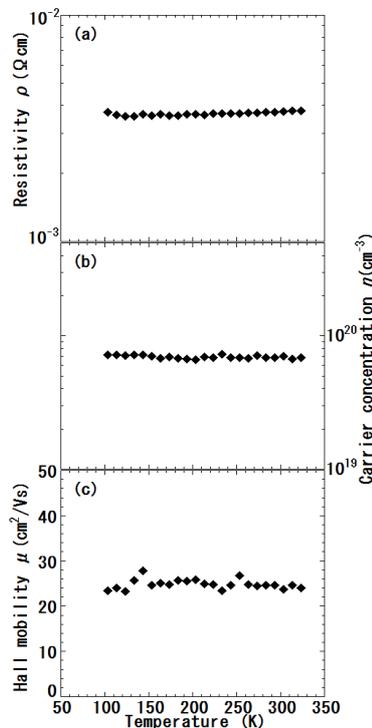


Fig.1 Variations of (a)Resistivity, (b)Carrier concentration and (c)Hall mobility of GZO film as a function of temperature