分子プレカーサー水溶液を用いたミスト CVD 法による ZnO 薄膜製作

Fabrication of ZnO thin film by mist CVD method using molecular precursor solution

°後藤 良介，澁木 勇人，田沼 圭亮，畠山 匠，永井 裕己，山口 智広，
佐藤 光史，本田 徹 （工学院大・大学院）

°R. Goto, H. Shibuki, K. Tanuma, T. Hatakeyama, H. Nagai, T. Yamaguchi,
M. Sato and T. Honda* (Kogakuin Univ.)

*E-mail: ct11761@ns.kogakuin.ac.jp (T. Honda)

1. はじめに

ZnO 系透明電極は，GaN 系縦型発光ダイオード(LED)の光取り出し効率向上の観点から重要である．また，その製作方法の低コスト化も必要な技術である．透明電極の製作方法として，低コストを利点とした化学的溶液法の一種である分子プレカーサー法が魅力的である[1]．分子プレカーサー水溶液は，塗布性の良さから Spin-coat 法による薄膜製作に用いられているが，水溶液の塗布では膜厚不均一の問題が一般的に生じやすい．そこで Spin-coat 法の代わりとなる薄膜製作方法として，ミスト Chemical Vapor Deposition (ミスト CVD)法に着目した．ミスト CVD 法は気相堆積法の一種であり，薄膜製作時に生じる歪み等を抑制できる特徴がある[2]．本研究では分子プレカーサー水溶液を用いてミスト CVD 法による ZnO 薄膜製作を検討した．

2. 実験方法

酢酸亜鉛二水和物をアンモニア水で溶解させて ZnO プレカーサー溶液(濃度:0.05 mol/L)を合成した．この溶液を 100 mL 用意し，ミスト CVD 法により(0001)Sapphire 基板上に ZnO 薄膜を製作した．超音波振動子(周波数 2.4 MHz)で分子プレカーサー水溶液をミスト状にし，N_2 ガスで基板まで一定の流量で供給した．基板温度 500℃の状態で 30 分間薄膜製作を行った．製作した薄膜は走査型電子顕微鏡(SEM)，エネルギー分散型 X 線分析(EDX)，ホール効果測定，透過率測定を行った．

3. 実験結果

ミスト CVD 法により製作した ZnO 薄膜(サンプル A)と，アルコール系溶液を Spin-coat して製作した ZnO 薄膜(サンプル B)の透過率測定結果を Fig. 1 に示す．製作した薄膜はどちらも可視光領域で高い透過率を持っており，紫外光領域でも僅かに透過率が確認された．ミスト CVD 法で製作した薄膜は，吸収端波長付近を含む可視光領域では約 90 %の透過率であった．サンプル A とサンプル B の膜厚およびホール効果測定結果を Table I に示す．サンプル A はサンプル B と比べキャリア密度が 10 倍であり，抵抗率は 10 分の 1 ほど低い値を示した．

4. 考察

サンプル A は可視光領域で平均した透過率の値を示しているが，サンプル B は吸収端付近で透過率が低下している[3]．これは表面の荒れに伴った散乱に起因していると考えられる．そのためミスト CVD 法で製作した ZnO 薄膜は表面平坦性が高いと推察できる．また，サンプル B に比べ，サンプル A は移動度が高く抵抗率が 10^{-1} Ω·cm となった．透明電極へ応用するためには添加などの手法で，より抵抗率を低減することが求められる．

5. まとめ

分子プレカーサー水溶液を用いてミスト CVD 法により ZnO 薄膜を製作した．製作した薄膜は Spin-coat 法による ZnO 薄膜と比較して透過性や電気特性が向上し，平坦性が高いことが示唆された．これらの結果から製作した ZnO 薄膜は，低コストかつ高品質な透明電極への応用が期待できる．

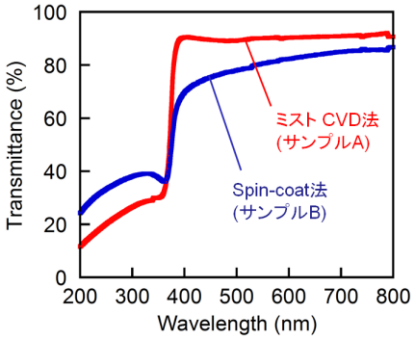

Fig. 1. ミスト CVD 法で製作した ZnO 薄膜(サンプル A)および Spin-coat 法で製作した ZnO 薄膜(サンプル B)の透過率結果．

Table I. 膜厚およびホール効果測定結果．

	膜厚 [nm]	抵抗率 [Ω-cm]	移動度 [cm²/V-s]	キャリア密度 [/cm³]	多数キャリア
ミスト CVD法	100	0.31	0.87	2.58×10^{19}	電子
Spin-coat法	80	3.48	0.58	3.08×10^{18}	電子

参考文献

[1] M. Sato, H. Hara, H. Kuritani, T. Nishide, and Y. Sawada, J. Mater. Chem. **6**, 1767 (1996).
[2] 川原村 敏幸，京都大学大学院工学研究科博士論文 (2008).
[3] J. Yoo, et al., Thin Solid Films, **480**, 213 (2005).

© 2015年 応用物理学会