10^{2}

多結晶 AZO 透明導電膜のキャリア輸送に対する結晶粒界の影響(皿) Influence of grain boundary on carrier transport in polycrystalline transparent conducting Al-doped ZnO thin films (皿)

金沢工大 OEDS R&D センター ^O宇於崎涼介,渡辺恭輔,池永訓昭,宮田俊弘,南 内嗣 OEDS R&D Center, K I T[°]R. Uozaki, K. Watanabe, N. Ikenaga, T. Miyata and T. Minami E-mail : tmiyata@neptune.kanazawa-it.ac.jp

【はじめに】薄膜太陽電池用透明電極等に利用可能な多結晶 ZnO:Al(AZO)透明導電膜の電気伝導機 構は未だ十分に解明されていない.今回は,Al含有量を固定して成膜方法及び成膜条件を変化さ せて作製した AZO 薄膜の透過型電子顕微鏡(TEM)による微細構造分析及び X 線回析(XRD)を用 いて評価した結晶粒界とキャリア散乱機構との関係について検討したので報告する.

【実験方法】AZO 薄膜は、AI 含有量を一定とした市販の AZO 焼結体ターゲット(直径 150mm の円 形もしくは 127×275mm の矩形)を使用する 2 台の直流もしくは高周波(13.56MHz)重畳直流マグネトロンスパッタ成膜装置を用いてガラス基板(OA-10) 上にスパッタガス(純 Ar)圧力を 0.2-12Pa 及 び成膜温度(Ts)を室温(RT)、200 もしくは 350℃と変化させ膜厚約 1000nm に作製された.また、

同じ焼結体を使用してパルスレーザー蒸着(PLD)法を用いて Ts を RT, 100 及び 200℃, 膜厚を 45, 70, 95 及び 1000nm と変化 させて AZO 薄膜が作製された.また, 膜の微細構造及び結晶学 的特性は TEM 観察及び XRD 法によりそれぞれ評価した.

【結果と考察】作製された AZO 薄膜は,全て c 軸優先配向(配 向の程度は成膜条件に依存)を示した. 図 1(a)及び(b)に van der Pauw 法により測定した移動度(µHall; 白抜きプロット)とc軸方 向の結晶子サイズ(L_c)及び a 軸方向の結晶子サイズ(L_a)との関係 をそれぞれ示している.Lc及びLaはX線回折(XRD)法を用いて Out of plane での(0002)及び In-plane での(100)XRD ピークからそ れぞれ算出した.同図には、パルスレーザー蒸着(PLD)法で作製 した AZO 膜の結果も示している(Ts が RT を ▽, 200℃を 〇, 350℃ を△, PLD を□でそれぞれ示す). また同図には, PLD 法を用い て成膜温度と膜厚を変化させて故意に μнаш の低い(結晶性の悪 い)AZO 膜を作製した試料を◇で示している. さらに, エリプソ メトリー法を用いて算出した光学移動度(µopt)の結果も同図に示 でそれぞれ示す). 全ての膜の µ_{Hall} は L_cの増加に伴って増大し, μ_{Hall}は L_cとの間で明確な相関関係が認められるが、L_aとは関係 が認められない. 図1より, µ_{Hall} と µ_{opt} との差が生じている膜で は熱放射による粒界散乱の影響が示唆される.一方,図2に MSD 法および PLD 法により形成した AZO 薄膜の TEM 像を示す.同 図より, PLD 法を用いて故意に温度と膜厚を変化させた AZO 膜 (◇)の微細構造は結晶性の悪い(成膜ガス圧:12Pa)AZO 膜の微細 構造と良く似ている.また,PLD法で作製したキャリア密度(n) が同程度の AZO 膜と比較すると、結晶性が低下し、µ_{Hall}の低下



図1 移動度とc軸方向(L_c)及びa 軸方向の結晶子サイズ(L_a) との関係

と対応している.以上の結果より,n が約10²¹cm⁻³台でも結晶性が悪い場合 は粒界散乱の影響が示唆される.

【まとめ】AZO 透明導電膜における電気伝導機構は,nが約10²¹cm⁻³台付近と高い場合でも結晶性が悪い場合は粒界散乱を考慮が示唆されることが分かった.すなわち,電気伝送機構は膜の結晶性が大きく関係している.



図 2 AZO 薄膜の TEM 像