

## 縮退した多結晶 ZnO 系透明導電膜の電気伝導機構 に対する不規則粒界の影響

Influence of disordered grain boundaries on electric conduction mechanism  
in degenerated transparent and conductive polycrystalline ZnO films

金沢工大 OEDS R&D センター °徳永 浩己, 宮田 俊弘, 南 内嗣

OEDS R&D Center, K I T °H. Tokunaga, T. Miyata and T. Minami

E-mail : tmiyata@neptune.kanazawa-it.ac.jp

【はじめに】多結晶 ZnO 系透明導電膜の電気的特性は、成膜技術や成膜条件及び添加不純物の種類や含有量に著しく影響される。例えば、膜厚が 500nm 以上で膜中の Al 含有量が 3at.% 一定の条件下で、マグネトロンスパッタ成膜 (MSD) 法で作製した Al 添加 ZnO (AZO) 膜の電気的特性は、他の成膜条件及び成膜後の使用条件に依存して変化するが、移動度 ( $\mu$ ) とキャリア密度 ( $n$ ) に注目すると、下図の如く常に右肩上がりの  $\mu$ - $n$  関係を呈する。我々は、 $n$  が  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  台の AZO 膜のこのような関係が粒界散乱に起因すると考え、その詳細な散乱機構を検討している。

【実験と理論】上述のような条件下で MSD 法を用いて作製された縮退した AZO 薄膜では、Hall 移動度 ( $\mu^{\text{Hall}}$ ; ○) と光学移動度 ( $\mu^{\text{opt}}$ ; ●) との関係及び膜の結晶学的特性の評価結果から、図 1 及び図 2 の  $\mu^{\text{Hall}}$  (データポイント) の変化は粒界散乱が主因と考えられ、粒界からのキャリア (電子) 反射を考慮した Mayadas and Shatzkes (MS) 理論 (図中の実線は MS 理論の計算値) により、良いフィッティングが得られた。すなわち、図 1 の基板上での位置依存性では、粒界ポテンシャルの強さ ( $S$ ) 及び平均粒径 ( $d$ )、図 2 の耐湿試験 (経時変化) では  $S$  を変化させた。

しかしながら、ボルツマンの輸送方程式に基づき周期的な粒界からの電子反射を取り扱う MS 理論における問題点が指摘 (例えば、電子の粒界での反射率( $R$ )) されている。また最近、Munoz のグループが金属薄膜において MS 理論とは異なる量子論に基づく取り扱いを報告している。<sup>1)</sup> ここでは、MS 理論で近似的に導入している  $R$  に関する問題点を検討するとともに、Munoz らの理論に基づき電気伝導機構に対する不規則粒界の影響を考慮した詳細な散乱機構と AZO 膜の  $\mu$ - $n$  関係との関係について検討する。

【検討考察】MS 理論では、周期的な粒界の存在する中での電子状態を Bloch 関数ではなく平面波で記述している。Krönig-Penney 周期ポテンシャル中の電子状態は、許容もしくは禁制状態で、許容帯では占有する状態が電流を決め、電子が  $N$  個の粒界を通過する透過確率  $T_N$  に比例すべきである。また、禁制帯では局在するので電流が流れない。 $d > (\ell_{IN}$  は結晶粒内での平均自由行程) では、抵抗率の増大は粒界での部分反射によるのではなく (MS 理論では  $R$  が過大評価されている)、許容帯である Fermi 球での状態数の減少に起因する。 $d < \ell_{IN}$  では、抵抗率の増大 ( $\mu$  と  $n$  両方の減少) が主に粒界が等間隔ではなくランダム分配されるために生じる。すなわち、不規則粒界からの電子散乱によって誘起される弱い Anderson 局在に起因する (局在長さによって特徴づけられる)。

【まとめ】MSD 法で作製された縮退した多結晶 AZO 透明導電膜において得られる右肩上がりの  $\mu$ - $n$  関係における抵抗率増加は、粒界ポテンシャルの強さや平均粒径の変化と関連して誘起される不規則粒界が原因と考えられる。

1) C. Munoz et al., Appl. Phys. Reviews **4** (2017) 011102. & Appl. Surf. Sci. **329** (2015) 184.

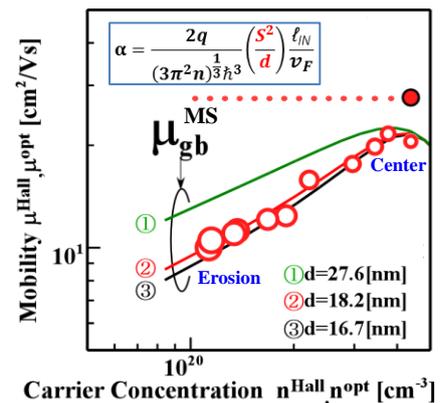


図 1 基板位置依存性

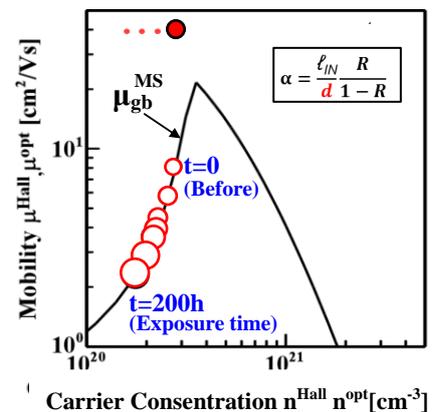


図 2 耐湿試験