

化学溶液析出法による CuO 薄膜の成長と配向制御の可能性

Growth and orientation controllability of CuO films by chemical bath deposition

愛媛大院理工¹ 愛媛大工² 岡田英之¹ 寺迫智昭¹ 宮田晃²

Grad. School Sci.&Eng., Ehime Univ.¹, Fac. Eng., Ehime Univ.²

Hideyuki Okada¹, Tomoaki Terasako¹, Akira Miyata²

E-mail: e845004b@mails.cc.ehime-u.ac.jp

1. はじめに 酸化第二銅 (CuO) は室温で 1.35eV の禁制帯幅を有し、通常 p 型伝導性を示す。この禁制帯幅は Shockley-Queisser の理論限界から予測される最大効率を示す禁制帯幅 1.4eV に非常に近いことから、高効率太陽電池への応用が期待される。本研究室では、これまでに低温成長プロセスである化学溶液析出法 (Chemical Bath Deposition; CBD) による CuO 薄膜の堆積と酸化亜鉛 (ZnO) とのヘテロ接合形成について報告してきた [1]。CBD 法で作製した ZnO/CuO ヘテロ接合は、ダイオード特性を示すものの、AM-1.5 疑似太陽光照射下で太陽電池としての動作は確認されてない。本研究では、CuO 薄膜の高品質化を目的として CBD 溶液の pH パラメータとして成長実験を行い、溶液の pH が成長した薄膜の配向性に及ぼす影響について検討することにした。

2. 実験方法 スパッタリング法で 100 nm 厚の Au 薄膜を堆積した SiO₂/Si (100) のウェハに基板を用いた。Au 薄膜は CuO 薄膜成長の種結晶としての役割だけでなく、ZnO とのヘテロ接合を形成した際の裏面電極の役割を果たす。Cu 源となる硝酸銅 (II) 三水和物 [Cu(NO₃)₂ · 3H₂O] を 0.05M の濃度を溶かし、アンモニアを滴下することで pH を調整した水溶液を CBD 成長に用いた。pH は主に 9.6~11.0 の範囲で変化させた。CBD 溶液の入ったビーカーは 90°C に加熱されたウォーターバス内に置かれ、ここに基板が浸けられ、成長中はマグネットスターラで攪拌される。成長時間は主に 1 時間とした。成長した薄膜は主に X 線回折測定 (XRD) 測定及び走査型電子顕微鏡による形態観察によって評価した。

3. 結果と考察 Fig. 1(a) には、pH が 9.6 及び 11.0 に調整された CBD 溶液から成長した試料の表面 SEM 像を示す。いずれの試料においても針状の結晶粒が堆積しており、針状の結晶粒は糸状に組織化していることが確認できる。pH 値の上昇に伴う結晶粒の長軸方向の平均値の増加が観察されているこれと同様な傾向は Gençylmaz らによっても報告されている [2]。Fig. 1(b) には、両試料の X 線回折 (XRD) パターンを示す。Au (111) 及び Si (400) に対する XRD ピーク以外は、すべて CuO によって、指数付け可能であり、単層の CuO 薄膜の成長が確認出来た。pH 値の 9.6 から 11 に増加するとき、CuO (110) ピークに対する CuO (002) ピークの強度が増加している。これは、CBD 溶液の pH 値が薄膜の配向を制御する一要因であることを示唆する結果である。

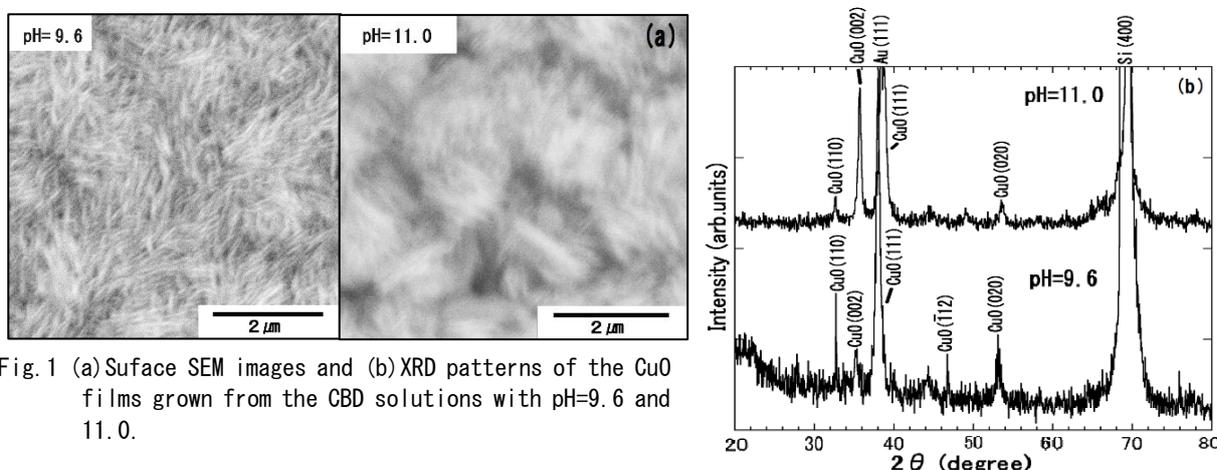


Fig. 1 (a) Surface SEM images and (b) XRD patterns of the CuO films grown from the CBD solutions with pH=9.6 and 11.0.

4. 謝辞 本研究は八洲環境技術振興財団および科学研究費補助金 (17K04989) の助成のもと行われた。

参考文献 [1] T. Terasako *et al.*, Sol. Energ. Mat. Sol. Cells **132** (2015) 74.

[2] O. Gençylmaz *et al.*, J. Alloys. Compd. **695** (2017) 1212.