

## 真空蒸着法で成膜した Al 膜による AZO 膜の耐熱性向上

1200065 佐田 瑞穂 (機能性薄膜工学研究室)

(指導教員 牧野 久雄 教授)

## 1. 研究背景・目的

現在、酸化インジウムスズ(ITO)が透明導電膜材料として広く用いられている。しかし、金属インジウム(In)の資源問題や毒性、製造コストから、高い導電性と透明性を持った酸化亜鉛(ZnO)透明導電膜が、ITOの代替材料として使用されている。Al 添加 ZnO(AZO)膜は太陽電池の透明電極として使用されているが、高温下での熱処理で抵抗率が急激に上昇するため、高温プロセスを含んだ太陽電池において優れた性能を得るために耐熱性を向上させることが必要となる。AZO 膜(0.5wt%)に Al 膜をスパッタリング法を用いて薄く成膜すると耐熱性に効果がある事がわかっている[1]。スパッタリング法ではプラズマによる効果も考えられる。また、AZO 膜の耐熱性は Al の濃度に依存する[2]。そこで本研究では、Al 膜の効果とプラズマの効果に分けること、高濃度 AZO 膜への効果の有無を明らかにすることを目的として真空蒸着法で成膜した Al 膜による AZO 膜の耐熱性を検討した。

## 2. 実験方法

ガラス基板上に RF マグネトロンスパッタリング法で膜厚約 250 nm の AZO 膜を基板温度 250°C で成膜した。ターゲットは ZnO:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (3 wt%) 焼結体を用いた。AZO 膜上に真空蒸着法で膜厚約 10 nm の Al 膜を成膜し、窒素中において 300、400、500°C で 1 時間熱処理し、室温まで自然冷却させた。Al 膜成膜前後にプラズマ処理を行い、プラズマによる効果を検討した。評価方法として、ホール効果測定と分光光度計による分光透過率・反射率測定を行った。

## 3. 実験結果と考察

## 3.1 電気特性

ホール効果測定で得られた抵抗率を図 1 に示す。熱処理前は室温 25°C とした。熱処理温度 500°C において、AZO 膜は熱処理後抵抗率が 67 倍に増加したのに対し、Al を成膜したサンプル(Al/AZO)は抵抗率の増加が 3 倍に抑えられた。さらにプラズマ処理後 Al を成膜したサンプル(plasma/AZO→Al)が最も耐熱性が高く、400°C の熱処理で最も低い抵抗率を示した。しかし、Al 成膜後プラズマ処理したサンプル(Al/AZO→plasma)は Al を成膜しただけのサンプルとほぼ同じ値となり、プラズマ処理のみ行ったサンプル(plasma/AZO)は AZO 膜とほぼ同じ値となった。これらのことから Al による耐熱性の効果が確認できた。また、プラズマ処理そのものによる効果はなく、補助的な役割であることが分かった。

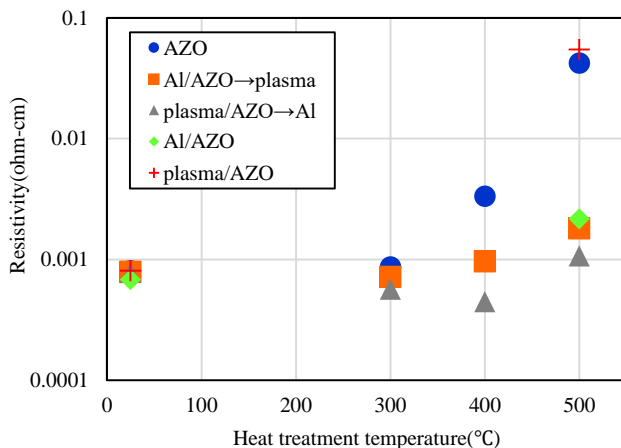


図 1 抵抗率の熱処理温度依存性

## 3.2 光学特性

AZO 膜にプラズマ処理後 Al 膜を成膜したサンプルを 300、400、500°C の窒素中で熱処理した透過率と熱処理していない AZO 膜の透過率を図 2 に示す。熱処理前は Al 膜の影響で AZO 膜に薄く色が付き可視光領域の透過率が、AZO 膜より下がった。300°C の熱処理で少し可視光領域の透過率が上がり、400、500°C の高温下での熱処理で、透過率は AZO 膜と同じ値まで上昇し、見た目も透明になった。Al は酸化したと考えられ、金属 Al の影響で電気特性が向上したわけではないことが確認できた。長波長領域では熱処理温度 500°C の透過率が最も高く、400°C が最も低くなった。

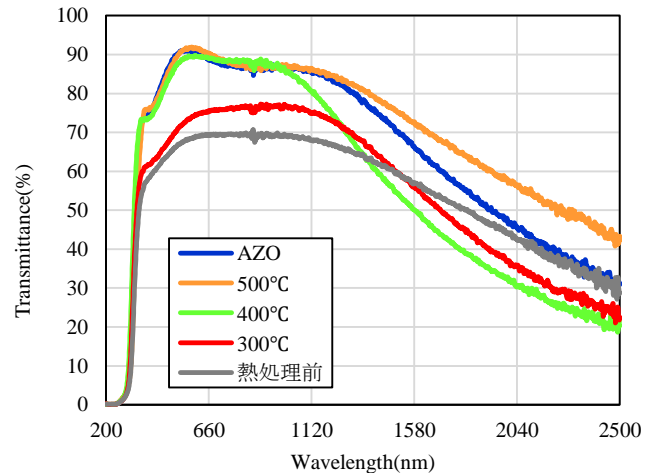


図 2 透過率の熱処理温度依存性

## 3.3 電気特性と光学特性の関係

Drude モデルより、キャリア密度が上がると長波長領域の反射率が上がり透過率が下がるという関係になる。プラズマ処理後 Al を成膜したサンプルを 400°C で熱処理すると、AZO 膜と比較してキャリア密度と移動度が上がり抵抗率が下がった。長波長領域の透過率は、熱処理温度 400°C で最も低く、300°C、熱処理前、AZO 膜、500°C の順で高くなる。この傾向は、ホール効果測定で得られたキャリア密度の結果と一致しており、熱処理による AZO 膜の電気特性向上を示している。

## 4. まとめ

本研究では、AZO 膜上に真空蒸着法を用いて Al を成膜することで AZO の耐熱性を検討した。Al 成膜前後にプラズマ処理を行い窒素中で熱処理を行った結果、プラズマ処理自体に効果はないが、プラズマ処理後 Al を成膜することで最も高い耐熱性が得られた。可視光領域の透過率は熱処理後高くなり透明になるため、金属 Al の影響ではなく AZO 膜の電気特性が向上したことが確認できた。このことから、真空蒸着法で Al を成膜しても耐熱性に効果があることが分かり、また、高濃度 AZO 膜に対しても効果があることが確認できた。

## 参考文献

- [1] Hoa T. Dao, "Improving electrical conductivity and its thermal stability of Al-doped ZnO polycrystalline films using ultrathin Al film as a passivation layer," Sol. Energy Mater. Sol. Cells, vol.203, 110159, Dec. 2019.  
 [2] 難波幸佑, "ZnO 透明導電膜の耐熱性に対する薄膜配向性の影響とドーパント依存性," 高知工科大学システム工学群, 平成 29 年度.