

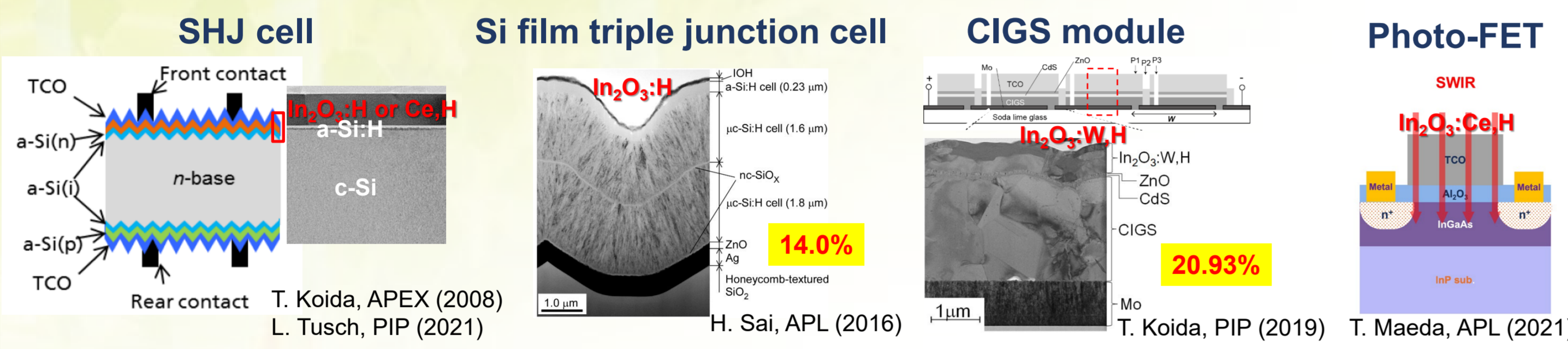
広帯域透明電極In₂O₃:TM,Hの高移動度起源

鯉田 崇

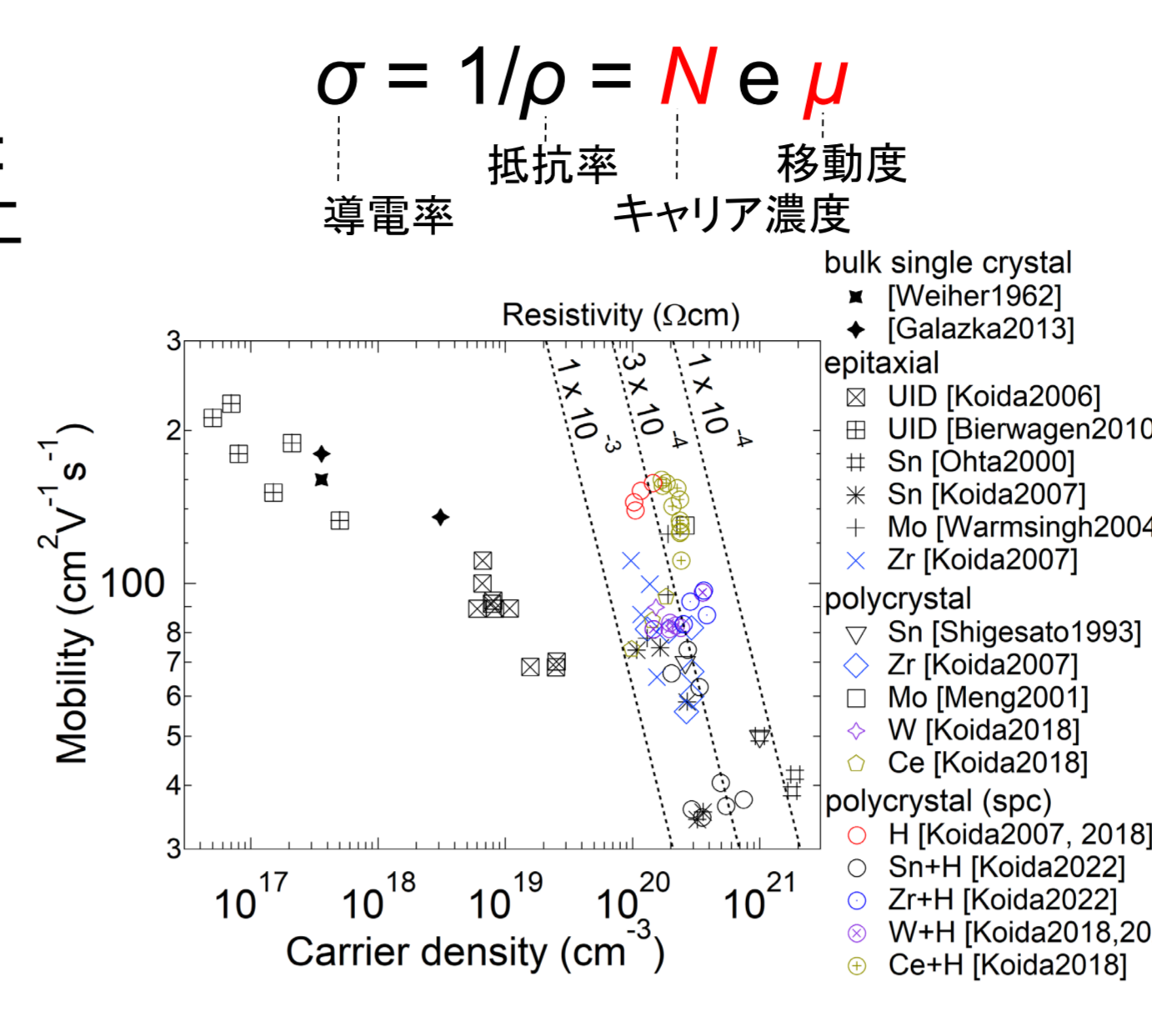
産業技術総合研究所 省エネルギー研究部門

はじめに

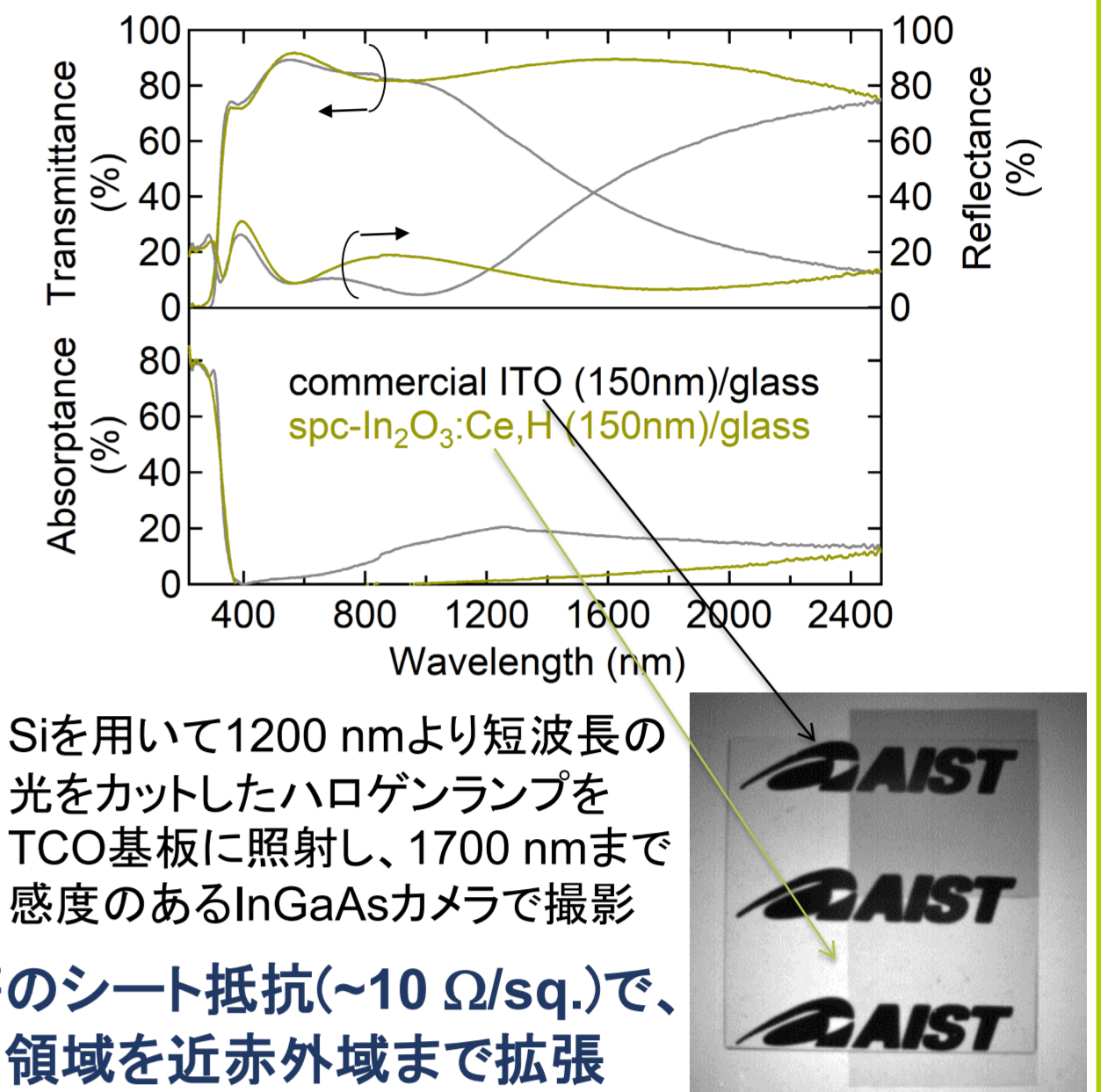
透明導電膜はIn₂O₃やSnO₂などワイドバンドギャップ半導体を高濃度電子ドーピングした薄膜である。可視域の透明性に優れることからディスプレイや太陽電池の窓電極として広く用いられている。これまで、単結晶・多結晶・非晶質構造の様々なIn₂O₃薄膜の研究に従事し、高温成長エピタキシャル薄膜よりも高い移動度を示すIn₂O₃:H及びIn₂O₃:TM,H(TM:遷移金属、H:水素)多結晶薄膜を200℃以下の低温プロセスでガラスや樹脂フィルム基板上に作製できることを報告してきた。高移動度であるため、低キャリア濃度で高導電率を実現でき、透明領域を従来の可視域から近赤外域にまで拡張出来る。SiやCIGSをはじめとした各種太陽電池の高効率化は既に実証済みで、近赤外センサや多接合型太陽電池の高効率化も期待できる。



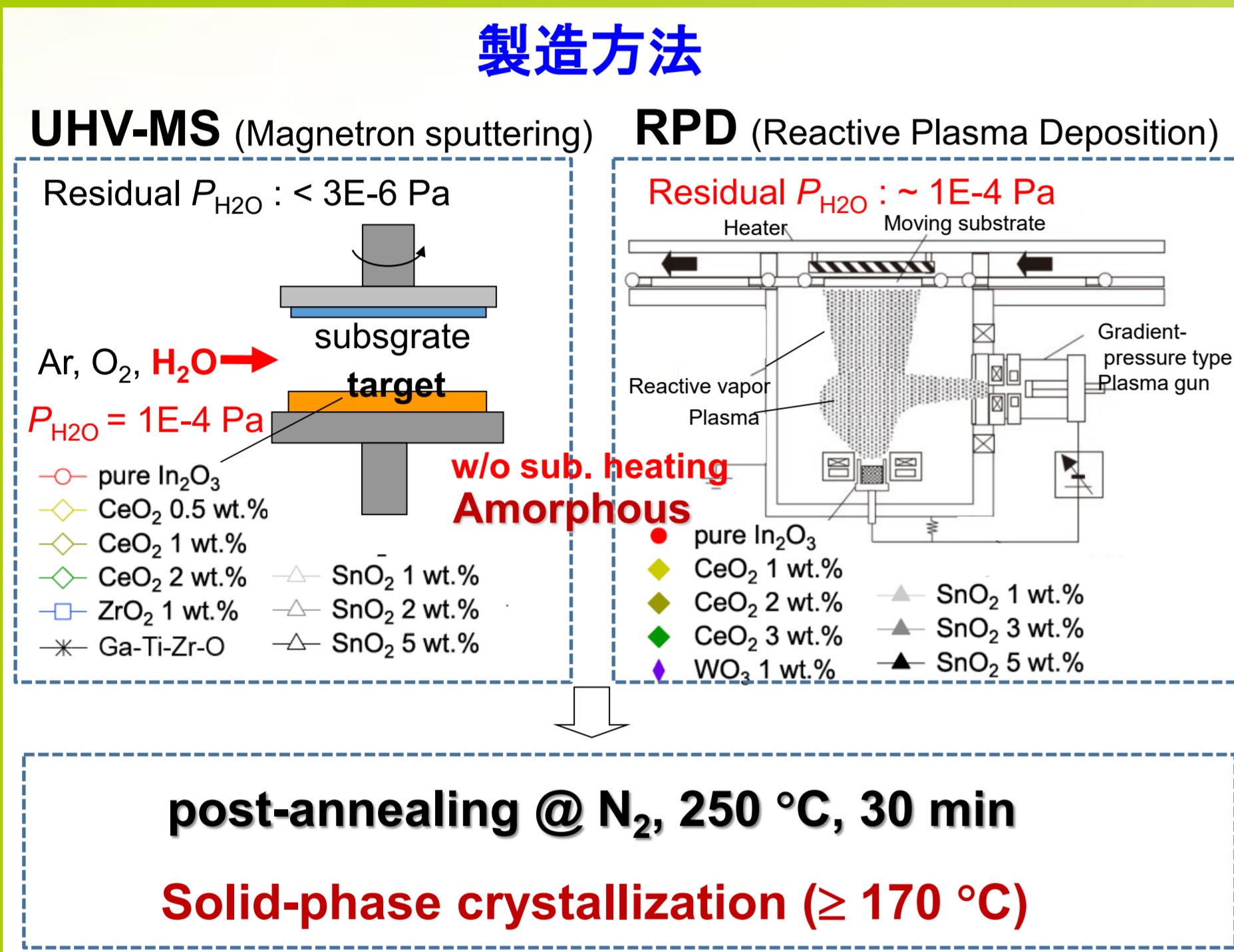
高移動度In₂O₃薄膜の開発



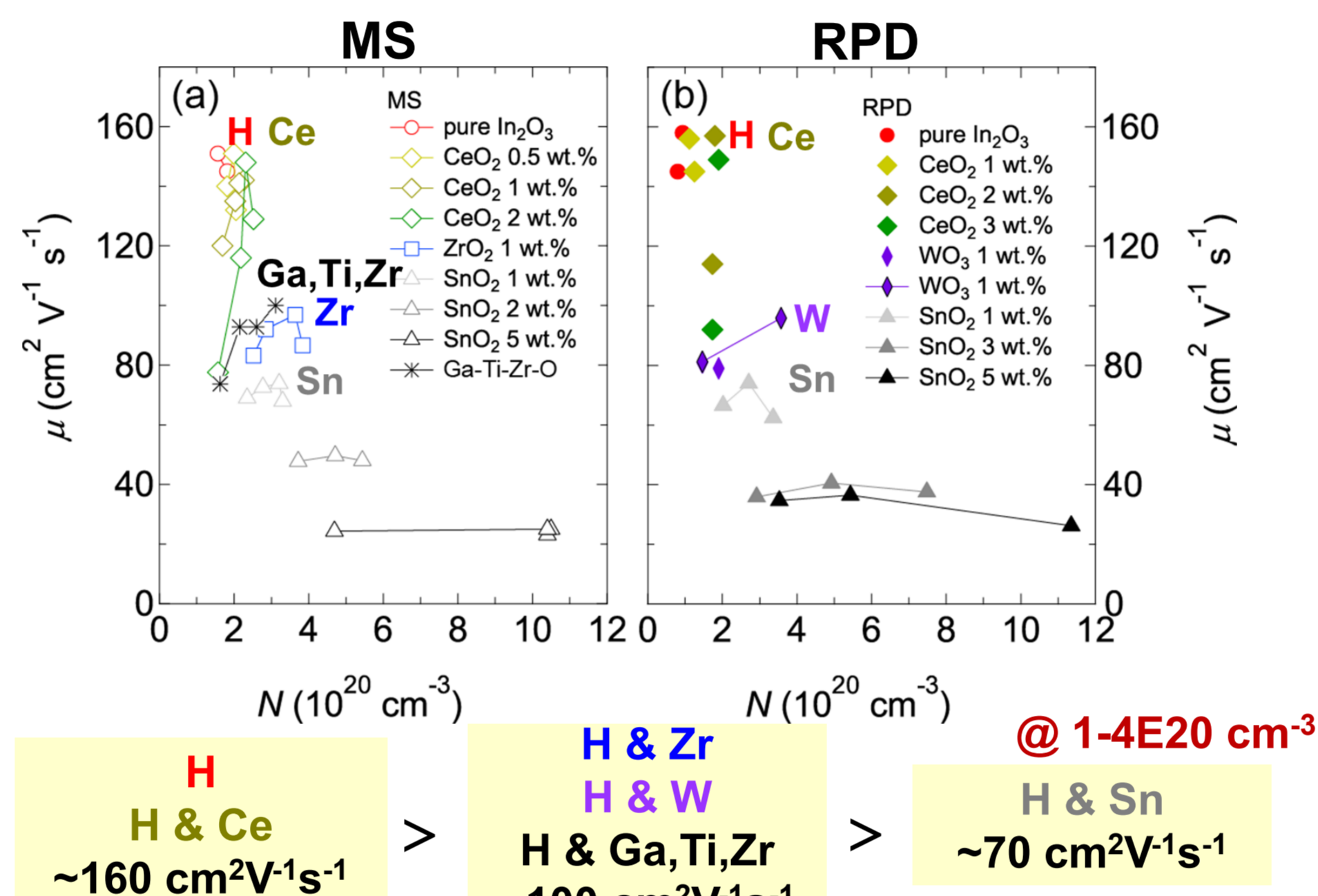
市販ITO基板との比較



これまで製造してきた高移動度In₂O₃:TM,H薄膜

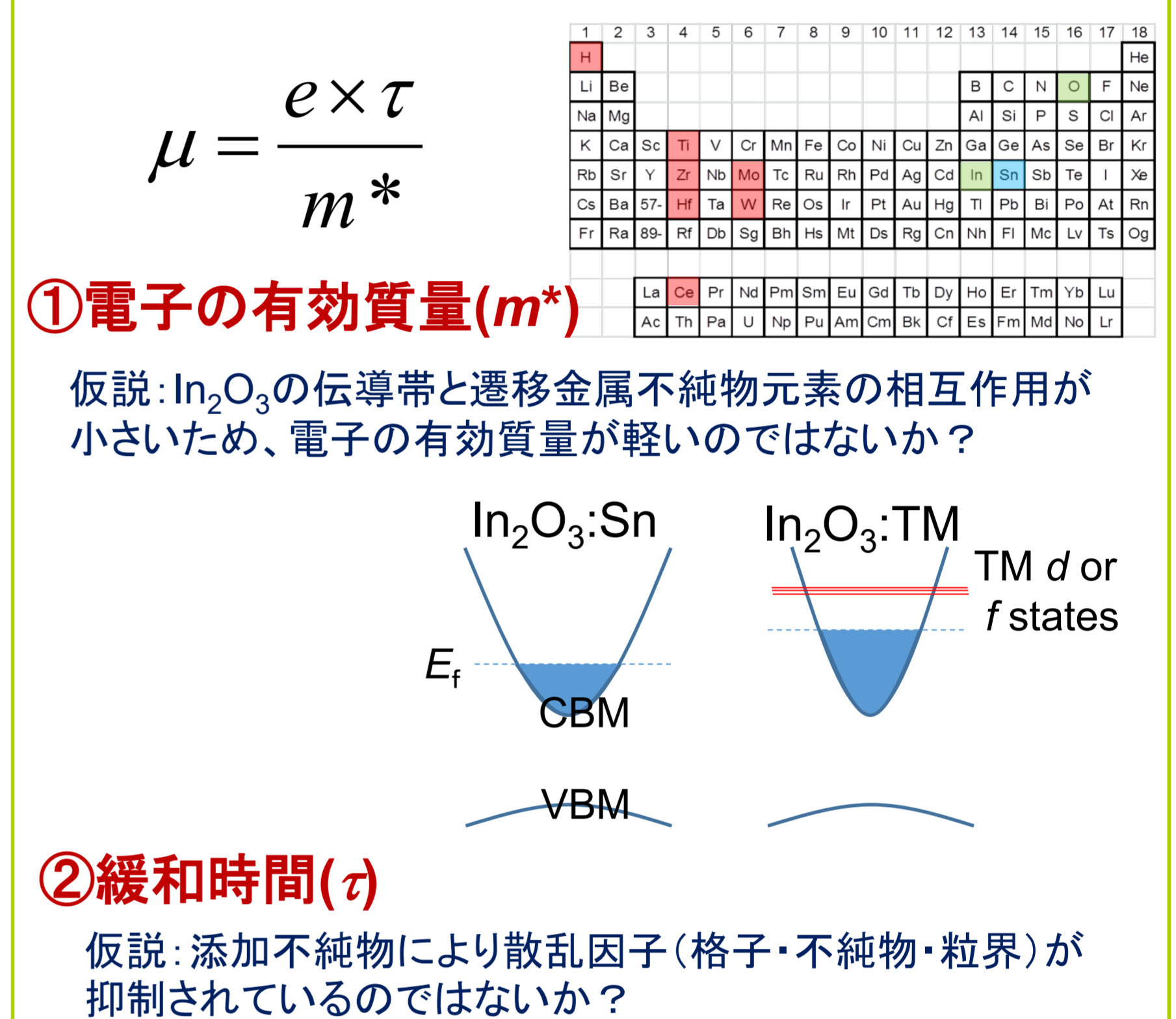


電気特性

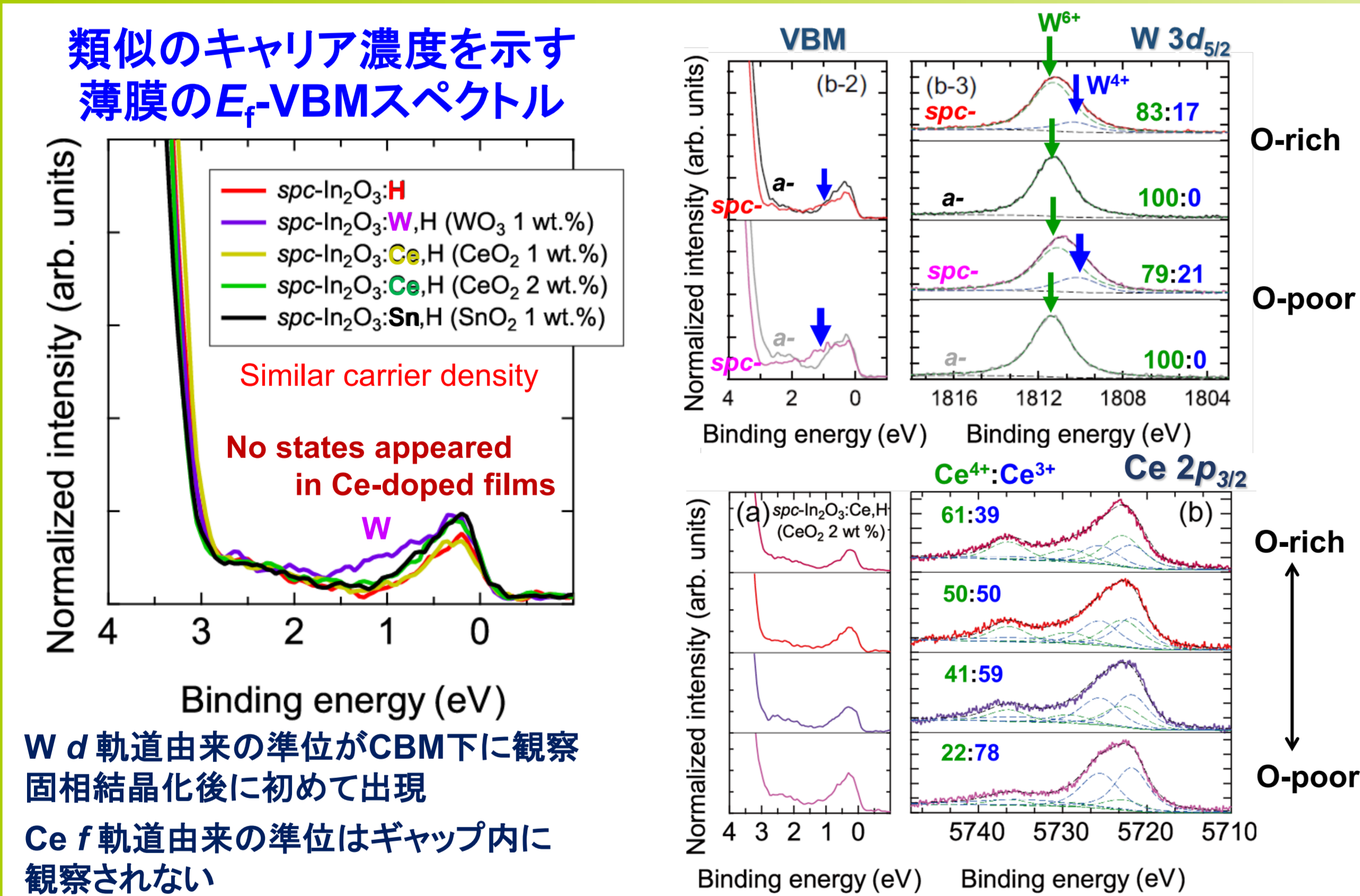


目的

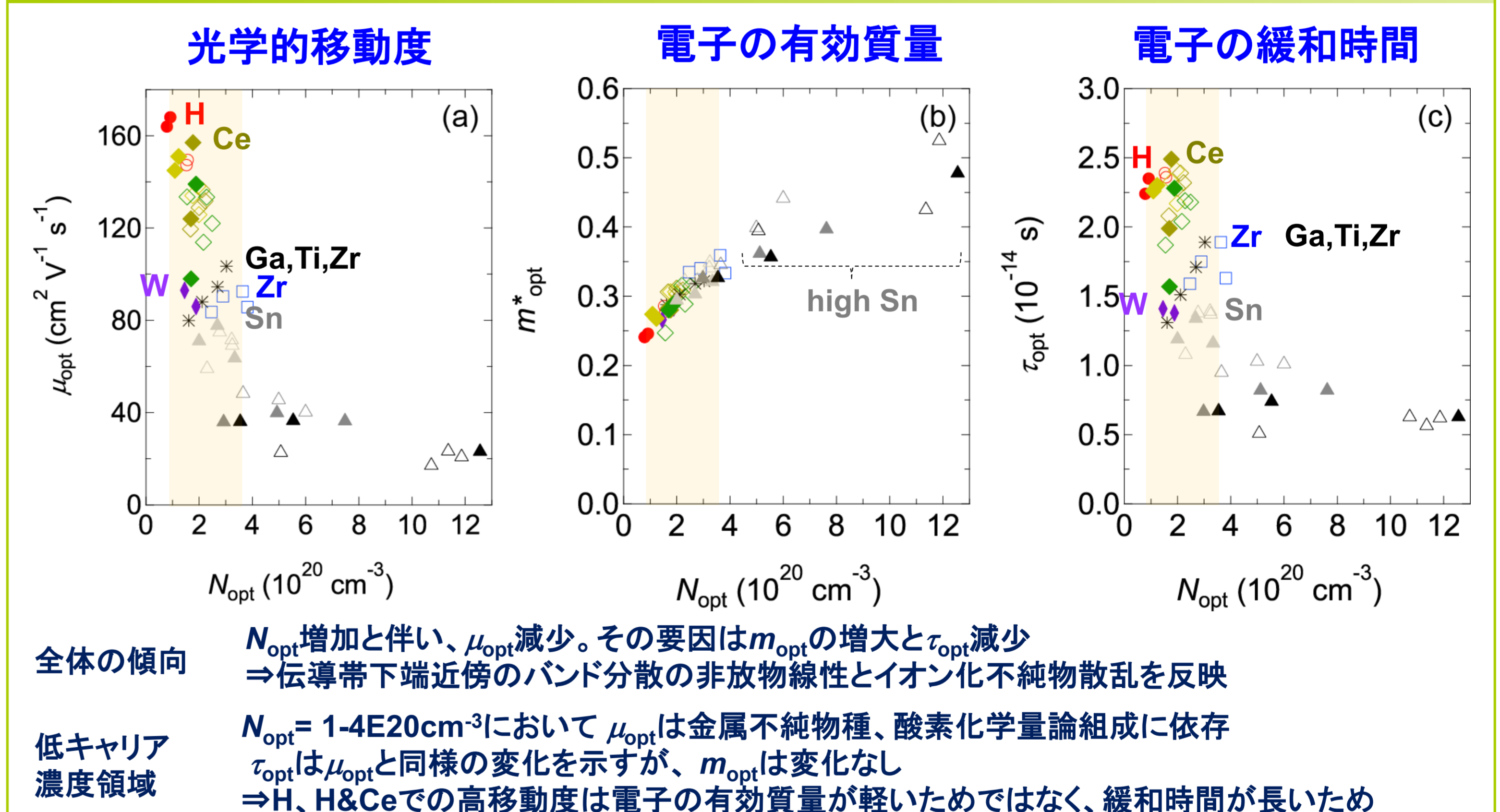
高移動度要因の解明



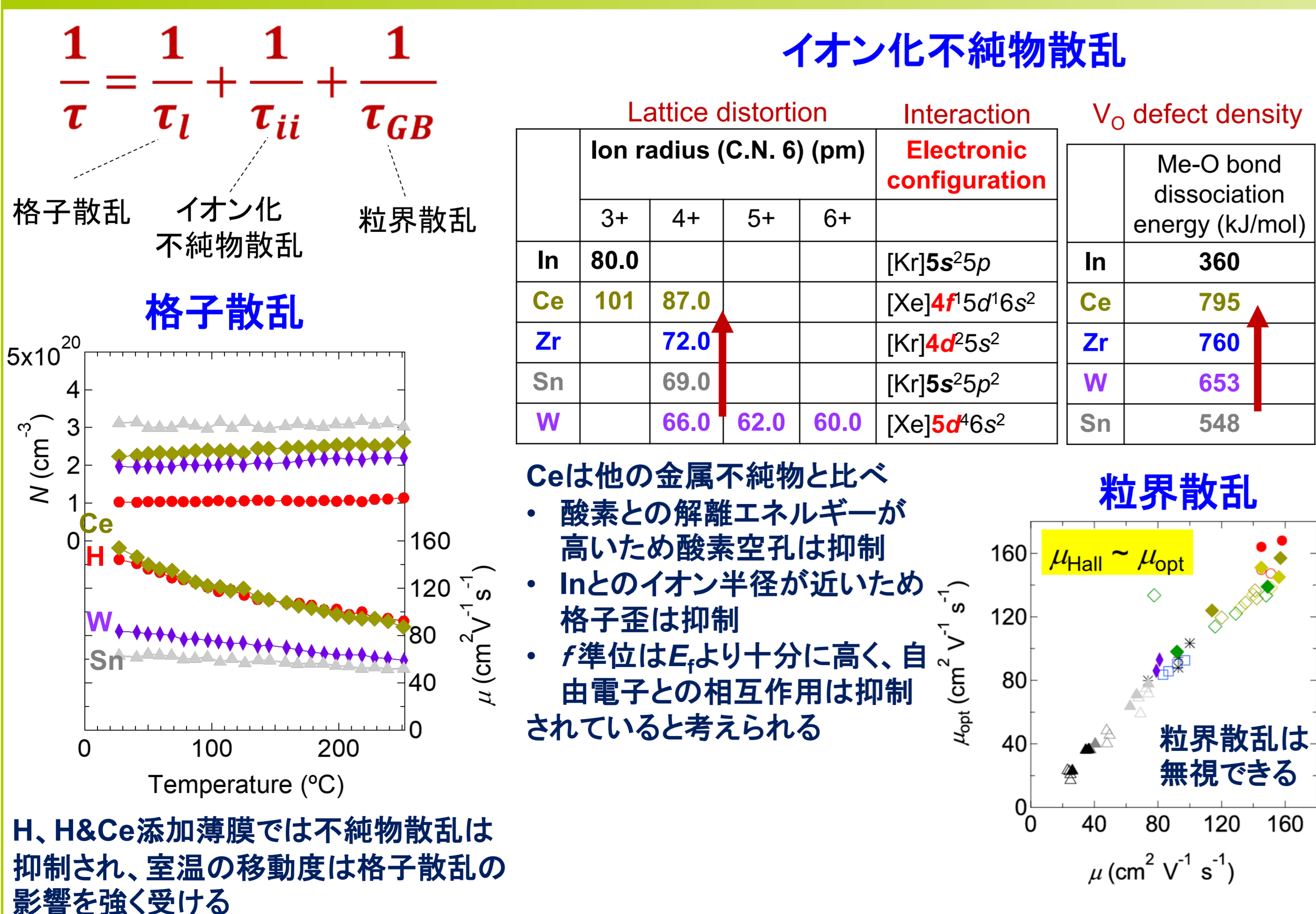
電子状態 (HAXPES)



電子の有効質量と緩和時間 (SE@UV-IR)



緩和時間(キャリア散乱)



まとめ

- 適切な水蒸気分圧で非晶質相を形成し、固相結晶化させたIn₂O₃:H及びIn₂O₃:TM,H(TM: Ce, Zr, W, Ga&Ti&Zr)はIn₂O₃:Sn,HやITOよりも本質的に高い移動度を示す。なお、H及びTMは固相結晶化時のアニール温度で決定される準安定過飽和固溶状態にある。薄膜性能は堆積方法に依らず、HとMe量、酸素化学量論組成で決定される。
 - 高移動度要因を明らかにするため、光電子分光を用いた電子状態評価、Hall測定と分光エリプソメトリー測定を用いた電子移動度、有効質量、緩和時間の評価を行った。
 - W添加薄膜ではW d 軌道由来した準位が伝導帯下端の下に観察された。一方、Ce添加薄膜ではCe f 軌道由来の準位はギャップ内に観察されなかった。なお、W、Ce及びZr添加In₂O₃ではW d 軌道由来した準位は伝導帯下端の下に、Ce f、Zr d 軌道由来した準位は伝導帯内に形成されることが第一原理計算より示唆されている。
 - 電子の有効質量は添加不純物元素に依らないが、緩和時間は強く依存することから、高移動度要因は長い緩和時間(散乱過程の抑制)に起因することが判った。
 - 光学的移動度と電氣的移動度の関係より、固相結晶化薄膜では不純物元素に依らず粒界散乱は無視できるほど小さい。
 - 移動度の温度依存性より、In₂O₃:H及びIn₂O₃:Ce,H薄膜では顕著に不純物散乱が抑制され、室温の移動度は格子散乱の影響を強く受けている。
 - Ceは他の金属不純物と比べ、酸素との解離エネルギーが高いため酸素空孔は抑制、Inとのイオン半径が近いことにより格子歪は抑制、f準位はE_fより高く自由電子との相互作用は抑制されている。
- 参考文献:
T. Koida and J. Nomoto, Phys. Rev. Mater. 6, 055401 (2022), "Effective mass of high-mobility In₂O₃-based transparent conductive oxides fabricated by solid-phase crystallization"