

新規透明酸化物電極に関する研究

[1] 組織

代表者：篠崎 和夫
(東京工業大学大学院理工学研究科)

対応者：脇谷 尚樹
(静岡大学電子工学研究所)

分担者：
邱 徳威 (台北工科大学)
Mario Martinelli (ミラノ工科大学)
Pierpaolo Boffi (ミラノ工科大学)
増田 淳 (産業技術総合研究所)
鈴木 久男 (静岡大学電子工学研究所)
坂元 尚紀 (静岡大学電子工学研究所)

[2] 研究経過

透明酸化物電極 (TCO(Transparent Conductive Oxide)) はディスプレイや太陽電池等の分野で幅広く使われている。特にITOはその高い透明性と電気伝導度のために多用されている。ITO以外の透明酸化物電極材料としてはAlやGaを添加したZnO等も存在するが、これらは電気伝導度が低いという問題点がある。透明酸化物電極における光の透過率は形態に依存する部分が多い。これは、光は界面で散乱されるためであり、多数の粒界 (界面) を有する多結晶では透過率が低い。上述のITOはほとんどの場合アモルファスで用いられる。これはアモルファスには粒界 (界面) が存在しないためである。粒界 (界面) が存在しないもう一つの形態が単結晶またはエピタキシャル成長薄膜である。ITOはc型希土類構造の派生型であるピクソサイト構造であるが、この構造の場合、機能的酸化物の代表的な結晶構造であるペロブスカイト構造との構造の整合性に難がある。また、導電性のペロブスカイト構造の酸化物は多いが、そのほとんど全てが透明ではない。これに対して、Pブロック元素からなるスピネル構造の酸化物にはMgIn₂O₄に代表される透明な酸化物が多い。これに対して、MgをZnに置換したZnIn₂O₄はスピネル構造の酸化物が報告されていない。これに対して、本研究の対応者はこれまで、研究代表者や分担者とともにスピネル構造を有するエピタキシ

ヤル成長したMgIn₂O₄薄膜の作製に成功してきた。また、台北工科大学の邱准教授はデラフォサイト構造を有する新しい酸化物透明電極材料の研究を行っており、産総研の増田チーム長は太陽電池パネルの信頼性という観点から研究を行ってきた。また、ミラノ工科大学のProf. Mario MartinelliとProf. Pierpaolo Boffiは光通信分野の専門家であり透明酸化物電極材料を用いた新しい光デバイスの創成を目指している。

本研究ではこれらの新しい酸化物透明電極の研究に関して広い視野から情報交換を行うとともに、次世代の透明電極の材料やその応用分野にわたる幅広い検討を行うことを目的としている。

【講演会・研究打ち合わせ】

- ・開催日時
平成27年9月15日(火) 10:00-12:00
邱徳威先生講演会
演題：Nobel Function of Cu-based Delafossite Materials
開催場所 静岡大学浜松キャンパス
創造科学技術大学院棟2階会議室
講演会に引き続き透明電極材料に関する研究打ち合わせ

【研究会】

- ・開催日時
平成27年10月17日(土) 13:30-17:00
開催場所 静岡大学浜松キャンパス
工学部3号館1階109室
(プロセス研究会として開催)
参加者数：16名 (大学：13名、民間会社2名)
(外国人2名)
講演件数：4件
研究会終了後、浜名湖湖畔のホテルにて意見交換会を実施した。この意見交換会では酸化物透明電極の今後の発展の方向性や携帯端末等への応用などについての活発な議論も行われた。

[3] 成果

(3-1) 研究成果

本年度は、以下に示す研究成果を得た。

最適化されたバッファ層 (MgIn_2O_4) を導入することで ZnIn_2O_4 のスピネル構造の安定性は著しく向上することが明らかになった。このように最適化された ZnIn_2O_4 薄膜の電気伝導度は約 2000 S/cm であった。この薄膜のキャリアは電子であるため、本研究では原子価制御によるキャリアのドーピングを目指し、Zn サイトへの Ga 置換を試みた。その結果、Ga 置換量が $0 \sim 1.1\%$ の範囲では電気伝導が単調に増加し、 1.1% を超えると急速に電気伝導度が低下した。Ga 量の 1.1% の時に測定された電気伝導度の最高値は約 5400 S/cm であった。既往の ITO の電気伝導度は $3000 \sim 10000 \text{ S/cm}$ 、 MgIn_2O_4 の電気伝導度は $50 \sim 300 \text{ S/cm}$ であることと比較すると、Ga を 1.1% ドープした ZnIn_2O_4 薄膜の電気伝導度は MgIn_2O_4 の約 $20 \sim 100$ 倍で、ITO にほぼ匹敵することがわかる。また、結晶構造はスピネル構造であり、Si 基板上にエピタキシャル成長していた。

Ga を 1.1% ドープした ZnIn_2O_4 薄膜の透光率の波長依存性はノンドープの ZnIn_2O_4 薄膜のそれと全くといって良いほど変わらなかった。すなわち、Ga のドーピングは光学特性にはほとんど影響を与えず、可視光領域で平均 80% 以上を有していることが明らかになった。Ga ドープ量が 1.3% を超えた試料では電気伝導度が低下したが、Ga ドープ量が 3.9% を超えると微量の In_2O_3 共存することが認められた。このことから、Ga ドープ量が増加すると、 In_2O_3 が生成してキャリアの散乱因子として働き、それゆえ電気伝導度が低下することが示唆された。

(3-2) 波及効果と発展性など

透明酸化物電極の需要は太陽電池や液晶パネルなどの応用分野でこれからますます高くなっていくと予想される。このため、新しい透明電極の研究は今後大きく発展して行くものであると期待される。さらに、本研究で取り扱っている IZO はその結晶構造の特徴から、その上に $(\text{Pb},\text{La})(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ (PLZT) に代表される透光性のペロブスカイト構造の強誘電体や酸化物磁性体薄膜をエピタキシャル成長させることができるため、フォトニックデバイスの新規の応用分野への展開も期待される。このため、光デバイスの新しい 1 ページを拓くものと期待される。

[4] 成果資料

- (1) "Impact of acidic catalyst to coat superparamagnetic magnesium ferrite nanoparticles with silica shell via sol-gel approach", H. Das, T. Arai, N. Debnath, N. Sakamoto, K. Shinozaki, H. Suzuki, N. Wakiya, *Advanced Powder Technology*, 27 (2016) 541.
- (2) "Synthesis and electrical properties of $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ epitaxial thin films on Si wafers using chemical solution deposition", T. Arai, T. Ohno, T. Matsuda, N. Sakamoto, N. Wakiya, H. Suzuki, *Thin Solid Films*, 603 (2016) 97-102.
- (3) "Investigations of superparamagnetism in magnesium ferrite nanosphere synthesized by ultrasonic spray pyrolysis technique for hyperthermia application", H. Das, N. Sakamoto, H. Aono, K. Shinozaki, H. Suzuki, N. Wakiya, *J. Magn. Magn. Mater.*, 392 (2015) 91-100.

出張報告

氏名：
所属：
期間：
用務先：
用務内容：
主たる対応者：