

ワイドギャップ酸化物系半導体薄膜の成長条件の探索

牟田, 実広

<https://hdl.handle.net/2324/6787575>

出版情報：九州大学, 2022, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：やむを得ない事由により本文ファイル非公開（3）

氏 名 : 牟田 実広

論 文 名 : ワイドギャップ酸化物系半導体薄膜の成長条件の探索

区 分 : 甲

論 文 内 容 の 要 旨

地球温暖化による影響が明確に表れ始め環境意識が高まる中、再生可能エネルギーへの注目が集まっている。現在様々な太陽電池が開発されているが、光のエネルギー密度と波長の関係から単層太陽電池では最も適したバンドギャップエネルギー(E_g)の大きさは 1.4eV であり、理論上 30%が上限であることがわかっている。また、異なる E_g 幅を持つ材料を多接合することで理論上の限界効率は 50%以上になると予測されている。現在、開発の主流は単層太陽電池から多接合太陽電池へと段階が進んでいる。 1.4eV 程度の材料には GaAs, CuInSe₂, MAPbI₃ など有機無機に関わらず様々な優れた材料がすでに存在する。また、主流である Si 系太陽電池の耐用年数が約 20 年であり、次世代太陽電池にも長期安定性が求められる。そこで、多接合向け材料として 1eV 以下または 2eV 以上のバンドギャップを有し、安定性に優れた金属酸化物材料に目を向けた。

本研究では約 2eV の E_g をもつ BaBiO₃(BBO)に注目した。BBO は金属酸化物としては珍しく元素ドーピングによって p -型キャリアを持つことがわかっている。そのため、 n -型キャリア導入が可能となれば、同一材料による pn -接合を作製できる新たな材料となりうる。そこで、BBO の高配向膜の成長条件と結晶性が光導電性に与える影響について調べ、Ba サイトの La 置換を行うことで n -型のドーピングを試みた。また、他の研究報告から BBO は成膜温度が 500°C 程度であるということが報告されているため、適切な窓材料候補として CuInO₂(CIO)に注目した。CIO は軌道半径の小さい d 軌道を用いるため、結晶性が特性に大きな影響を与える。現在、アニールによって配向性を高めた薄膜は報告されているが、単結晶成長した膜の報告例はない。そこでギブズ自由エネルギー(ΔG)に注目して熱力学的な知見から薄膜の単結晶成長条件についての考察と実験結果を報告する。

本論文は 5 章で構成されており、各章の内容は以下の通りである。

第 1 章では、環境問題意識からくる再生可能エネルギーへの注目について言及し、再生可能エネルギーの中でも太陽電池開発について述べる。また、太陽電池の開発の流れについて述べ、研究目的を述べる

第 2 章では、実験に使用した装置の説明を行う。

第 3 章では、採用した成膜方法と成膜条件について説明し、BBO 薄膜の作製条件と膜の評価及び La ドーピングの影響について述べる。X 線回折と透過電子顕微鏡観察を用いて構造解析を行い、膜の結晶性及び結晶構造を明らかにする。また、BBO の Ba サイトを一部 La に置換することにより BBO への電子ドーピングを試みる。そして、La ドーピングによる結晶成長や光学的・電気的特性への影響について述べる。

第 4 章では、採用した成膜方法と成膜条件について説明し、CIO 単結晶薄膜の作製条件について述べる。熱力学的観点から化学組成の安定条件について議論を行い、作製した膜の化学組成と比較することで単結晶薄膜の成長条件について明らかにする。また、X 線回折と透過電子顕微鏡観察を

用いて構造解析を行い、膜の結晶性及び結晶構造を明らかにする。
第 5 章では、本論文の成果と意義、今後の展望について述べる。

