愛知教育大学研究報告，59（芸術・保健体育・家政・技術科学・創作編），pp. 55～61，March，2010

高周波スパッタリングによるZnO薄膜作製におけるAlドーピング

清水秀己*　徳重雄紀**

*技術教育講座
**名古屋市立光城小学校

Al Doping on Formation of Zinc Oxide Films by RF Sputtering

Hideki SHIMIZU* and Yuki TOKUSHIGE**

* *Department of Technology Education, Aichi University of Education, Kariya 448-8542, Japan*
** *Kojyo Elementary School, Nagoya, 462-0053, Japan*

1．はじめに

近年，ZnOは光電子デバイス材料として，また薄膜トランジスタや透明導電性薄膜の応用にも期待され，多くの研究者により各種の方法でZnO薄膜の作製に関する研究が行われてきた。

我々の研究室では比較的簡単，安全，かつ低温で大面積薄膜作製の可能な高周波スパッタリング装置を用いて，良質なZnO薄膜を作製するための基礎的データの取得を目指している。

これまでのZnO薄膜の作製に関する研究では，ASP（スパッタリングターゲット：ZnO，スパッタリングガス：Ar）とAOSP（スパッタリングターゲット：Zn，スパッタリングガス$Ar\text{-}O_2$）の2種類の方法について調べてきた[1)]。その中で，安価であり，ターゲットの高純度化が可能でさらにドーピングが容易である可能性があるなどからAOSPの実験を中心に行ってきた。そして，これまでのASOPに関する研究では，スパッタリング法の重要な作製パラメータであるスパッタリングガス（$Ar\text{-}O_2$）の割合を変化させ，またスパッタリングガス圧力を装置の可能な範囲で変化させてZnO薄膜の作製を行ってきた。結果として，結晶性に関しては，スパッタリングガス（$Ar\text{-}O_2$）の割合と，スパッタリングガス圧力に対して結晶性が大きく依存し変化することがわかった。光学的特性に関しては，どの条件に対しても，可視領域では80%以上の透過を示し，光学的エネルギーバンドギャップも3.25 eV前後であり，バルクZnO（3.37eV）とほぼ近い値を示した。電気的特性に関しては全体的に高抵抗で，スパッタリングガス圧力が低くない条件では，酸素濃度に大きく依存するということがわかった[2)]。

ASP並びにAOSPにより作製されたZnO薄膜は共にC軸配向をもった良好な結晶性を示し，ノンドーピングの状態では，比較的高抵抗率を示した。今回，抵抗率の低下を図るため，Alのドーピングを試み，その得られ電気的特性を結晶性，光学的特性等から検討した結果を報告する。

2．実験方法

通常のスパッタリングの場合（ASP）は，ZnO焼結体（純度99.999%，直径100mmϕ，厚さ3mm）ディスクをスパッタリングターゲットとして用い，純アルゴン（Ar）でスパッタリングした。一方，反応性スパッタリングの場合（AOSP）は，Zn（純度99.999%，直径100mmϕ，厚さ3mm）ディスクをスパッタリングターゲットとして用い，アルゴン－酸素混合ガス（$Ar\text{-}O_2$）でスパッタリング及び反応を行った。

今回，高周波投入電力を100W，堆積時間30分一定とした。AOSPにおいては，スパッタリングガス（$Ar\text{-}O_2$）の酸素濃度割合は，これまでの実験結果から酸素濃度20%の条件で堆積した薄膜試料の結晶性が良好であったため，その条件を採用して酸素濃度20%で実験をおこなった。また，スパッタリングガス圧力は，比較的結晶性が良好でかつ堆積速度が高い10mTorrを採用した。基板温度は200℃，300℃とした。ASPに関しては，最も結晶性が良好であったスパッタリングガス圧力4mTorrを採用した。

それぞれのターゲットにAlシート（純度99.99%，10mm×10mm×0.5mm）を導電性両面接着テープ（電子顕微鏡用シルバー粘着シート）で所定の枚数を設置することでAlのドーピングを行った。尚，Alのドーピング割合は，下地ターゲット（AOSP：ZnO，ASP：Zn）との面積比で表した。このAlの面積割合を，以後この

Table 1　Experimental Condition

	AOSP	ASP
Target	Zn	ZnO
Sputtering Gas	Ar-O_2 (20%)	Ar
Sputtering Pressure(mTor)	10	4
Substrate Temperature(℃)	200, 300	100, 200, 300
Deposition Time	30 min	
Area rate of Al (%)	0	0.0
	1	1.7
		3.5
	5	5.2
		6.9
	9	8.7
		13.9
		15.6
	23	22.6
	30	30.0

報告では Al% として表す。Table 1 に実験条件をまとめて示す。

実験手順および実験方法は以下の通りである。

・Si(100)基板(18mm×18mmm)，ガラス基板（21mm×36mm)，と石英基板（21mm×36mm）を超音波洗浄器によりアセトンで10分間洗浄を行った後，直ちにチェンバー内の基板ステージに設置する。

・Si 基板はガラス基板の上部に設置し，シャッターにて基板を覆う。その後，拡散ポンプで 5×10^{-6} Torr まで真空にし，また同時に基板温度を所定の温度にまで昇温しておく。

・次に，ガスを100sccm 程度導入し，メインバルブで所定のスパッタリング圧力に調整する。

・その後，高周波電力を投入し，マッチングボックスにより所定の電力に調整し，シャッターを開きスパッタリングを開始し，所定の試料を作製した。

試料の分析には，電子線反射回折法（RED)，偏光解析法（エリプソメトリ法)，X 線回折法（XRD）を使用した。試料の結晶構造の評価は，RED，XRD により行い，膜厚及び光学定数の導出は偏光解析法（エリプソメトリ法）によって行った。また，サンプルを設置するときに使った石英ガラスをキセノンランプで照射し，洗浄直後の石英ガラスと堆積直後の石英ガラスとの光透過特性から試料の光透過特性と光吸収特性を調べた。抵抗率は Van der Pauw 法によってホール効果測定装置 HL5500PCM（Bio-Rad Laboratories）により測定した。

尚，今回用いたスッパッタリング装置，　試料の分析装置並びに分析方法は，前回の報告に詳細に示されている[2]。

Table 2　Resistivity of the films deposited at the substrate temperature of 200℃ and 300℃ as a function of the area rate of Al by AOSP.

Ts / Al (%)	Resistivity (Ωcm)	
	200℃	300℃
0	↑	↑
1	↑	35.6
5	22.4	27.7
9	23.0	21.8
23	↑	↑
30	↑	↑
37	↑	↑
51	↑	↑

3．実験結果および検討

3－1　AOSP

3－1－1　抵抗率

AOSP によりガラス基板に堆積した ZnO 薄膜の抵抗率を Table 2 に示す。Al% の 0% はノンドープを意味している。また，Al% の表示は小数点以下を四捨五入している。ノンドープに関しては，以前の報告で述べたように，今回用いた測定装置では測定不可能な抵抗率（1000Ωcm 以上）であった。Al% が 1% ～ 9% の範囲で，基板温度200℃ ならびに300℃ に対して，抵抗率の低下が認められる（20～30Ωcm)。しかし，現在，Al をドーピングした ZnO 薄膜（AZO）の良好な導電性を示す値10^{-4}Ωcm と比較すると[3]，5桁程度も高い値である。 Al% を 9% 以上に増加させると，高抵抗率に上昇し，測定不可能な値（(1000Ωcm 以上）となった。

3－1－2　膜厚と Al_2O_3含有率

Si 基板上に堆積した ZnO 薄膜をエリプソメータにより測定し，その結果を ZnO 薄膜と表面層(表面粗さ：ZnO とボイドの混合層）の 2 層構造を仮定し，シミュレーションを行った。ZnO の屈折率 n は2.0と2.1で消衰係数 k は 0 でほぼ理論曲線上と測定結果はフィティングした。Al% を増加させると，屈折率 n が1.5程度まで低下した。 Al% を100%，即ちターゲットを Al ターゲットにして，Ar-0_2（20%）の条件でスパッタリングし堆積した薄膜の屈折率 n は1.45であった。結晶 Al_2O_3(サファイア）の屈折率 n が1.76～1.77であることを考えると[4]，Al% を増加し堆積した薄膜試料の屈折率 n が低下する要因は，アモルファス Al_2O_3が膜中に形成されることによると考えられる。そこで，ZnO 薄膜中にアモルファス Al_2O_3が含有すると仮定して，EMA（Effective Medium Approximation）法を用いて[5]，Al% に対する ZnO 薄膜中のアモルファス Al_2O_3の含有率を

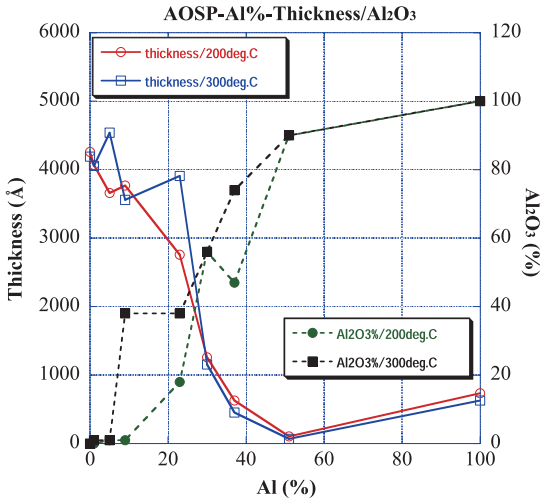

Fig. 1 Film thickness and Al_2O_3 content evaluated by ellipsometry as a function of the area rate of Al, for the films deposited at the substrate temperature of 200 ℃ and 300 ℃ by AOSP.

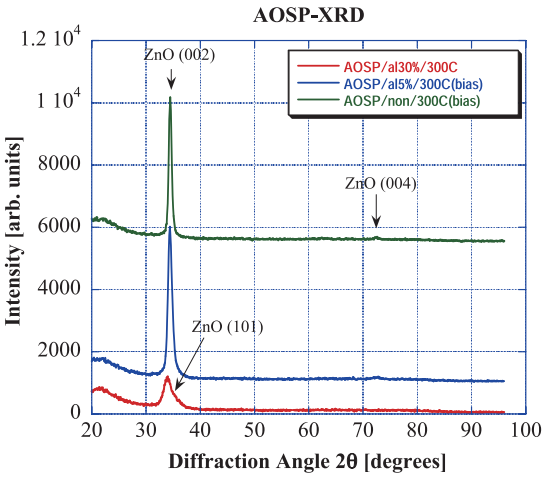

Fig. 2 X-ray diffraction（XRD）spectra of the films deposited at the substrate temperature of 300 ℃ by AOSP. The area rates of Al are o%, 5 %, and 9 %.

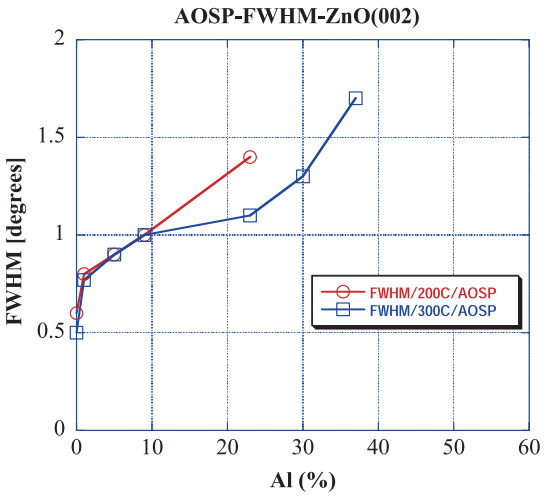

Fig. 3 Changes of the Full Width at Half Maximum（FWHM）at the peak originated from ZnO（002）crystal face as a function of the area rate of Al by AOSP.

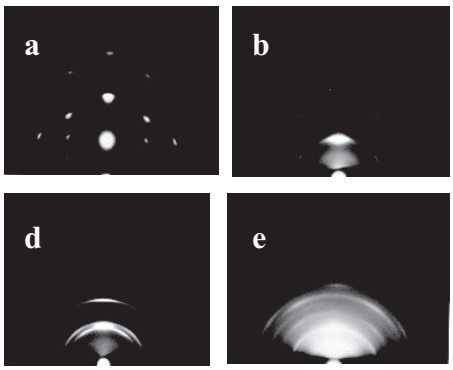

Fig. 4 Reflection electron diffraction（RED）of the films deposited by AOSP. a: non-doping, b：1 % area rate of Al at the substrate temperature of 300 ℃. d: non-doping, e：1 % area rate of Al at the substrate temperature of 200℃.

見積もった。その結果を Al% の変化に対する膜厚と Al_2O_3含有率の変化として Fig. 1 に示す。Al% が10% 程度までは膜厚の減少は緩やかであるが，その後，急激に低下する。一方，Al_2O_3の含有率は，Al% が10% 程度までは，1% 程度と低く，その後，Al% の増加とともに急激に増加する。

3－1－3　XRD と RED

Al をドーピングすることによる ZnO 薄膜の構造への影響を調べるため，X 線回折（XRD）と反射電子線回折（RED）により薄膜試料を分析した。基板温度 300℃ で Al% を変化して堆積した薄膜試料の XRD 結果の一例を Fig. 2 に示す。ノンドープ薄膜試料は，ZnO（002）面からの回折ピークが強く観測され，ZnO（004）も僅かに観測される。その他の ZnO 結晶に関わる回折ピークは観測されず強い配向性を示唆している。その他の顕著な回折ピークは観測されない。Al% の 5% で堆積した薄膜試料の ZnO（002）ピーク強度は殆ど変わらず，30% で堆積した薄膜試料のピーク強度は低下し，かつ ZnO（101）面からの回折ピークが ZnO（002）に重なり肩（ショルダー）となっている。Al をドーピングし堆積した薄膜は，Al ならびに Al_2O_3からの回折ピークの存在の可能性が予想されたが，ZnO 結晶からの回折ピークしか観測されない。これは，Al および Al_2O_3が結晶としては膜中に存在しないことを示している。しかしながら，結晶状態ではなくアモルファス状態での存在の可能性を否定するものではない。膜厚の項で示したように Al% の増加による膜厚の減少より，回折ピーク強度の変化からの結晶構造評価は困難なため，ZnO（002）面からの回折ピークの半値幅を用いて結晶性の評価を行った。Al% の変化による ZnO（002）面からの回折ピークの半値幅（FWHM）の変化を Fig. 3 に示す。Al% の増加とともに FWHM が増加していることが明らかである。特にノンドープから Al% が 1% で急激に増加している。その後，20% 程度までは，緩やかな増加で，その後はまた急激に増

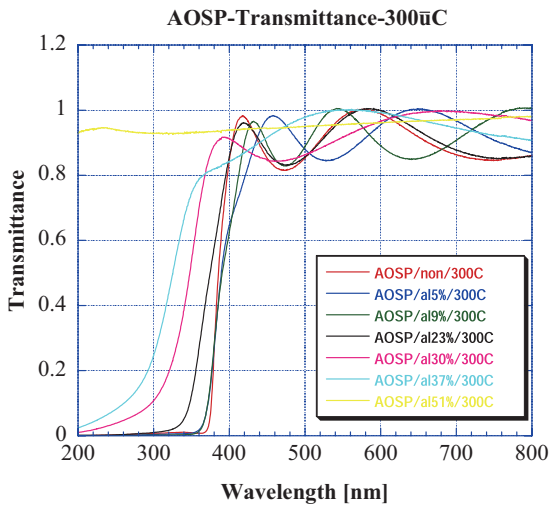

Fig. 5 Transmittance spectra of the films deposited at different area rate of Al under the substrate temperature of 300℃ by AOSP.

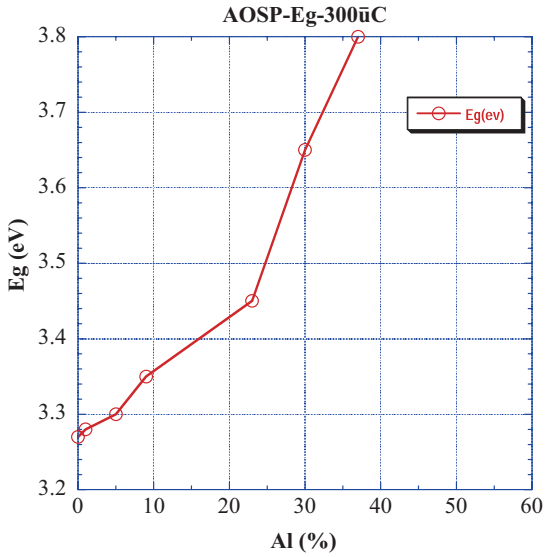

Fig. 6 Changes of optical band gap of the films deposited at the substrate temperature of 300℃ by AOSP, as a function of the area rate of Al.

加し，結晶性が乱れていることを示す。また，基板温度200℃と300℃で，ノンドープとAl%が1%の条件で堆積したZnO薄膜の反射電子回折（RED）像をFig. 4に示す。基板温度300℃で堆積したノンドープZnO薄膜はスポットパターンを示し，単結晶に近い結晶を示しているが，Al%が1%で堆積したZnO薄膜は，多結晶であるリングパターンを示す。これらのことより，AOSPにおいては，Alのドーピングにより ZnO薄膜の結晶性が乱れることが示唆される。基板温度200℃ に関しても，REDパターンの変化からAlのドーピングにより結晶性が乱れることが同様に示唆される。

3－1－4　透過率特性とバンドギャップEg

Alのドーピングによる透過率への影響を調べた。Fig. 5に基板温度300℃ で石英基板上に堆積した薄膜試料のAl%に対する透過率スペクトルを示す。ノンドープ薄膜試料からAl%が51%までの薄膜試料に対して，波長400nmから800nmにおいて，80%以上の透過率を示している。ただし，Al%が51%の薄膜試料に関しては，膜厚が数十ナノメーターと薄く，さらにアモルファスAl_2O_3の含有率が90%であるため，殆ど透過すると考えられる。ノンドープ薄膜試料に関しては，波長380nmぐらいから立ち上がり，Al%が5%，9%の薄膜試料で立ち上がりが若干短波長側にシフトし，Al%が23%の薄膜試料で350nm程度までシフトする。さらにAl%が増加すると，立ち上がりが短波長側に大きくシフトし，立ち上がりの傾きもなだらかである。ノンドープ薄膜試料の立ち上がり波長が380nmであることを考えると，Al%の増加による立ち上がり波長の短波長側への大きなシフトは，アモルファスAl_2O_3の混入によるものと考えられる。この透過率特性を用いて，ZnO薄膜のバンドギャップを計算し，Al%に対するバンドギャップEg（eV）の変化を求めた図をFig. 6に示す。先に示したAl%の増加に対してAl_2O_3の含有率が増加したのと同様にバンドギャップEg（eV）が増加しており，Al_2O_3の影響によりZnOの見かけのバンドギャップEg（eV）が増加すると考えられる。

3－1－5　AOSPのまとめ

AOSPにおいてZnターゲットにAlシートを設置し，そのAl%を変化しZnO薄膜のAlのドーピングを試みた。その結果，高抵抗率であったノンドープZnO薄膜が，20～30Ωcm程度まで抵抗率が低下した。しかし，スパッタリングガスである$Ar\text{-}O_2$の酸素により，ZnOが生成されながらAlがドーピングされると同時にアモルファスAl_2O_3も生成され，Alの面積割合9%以上になるとアモルファスAl_2O_3の影響で高抵抗率になる。これらのことは，Al%に対する試料の屈折率nの減少，透過率の立ち上がり波長の短波長へのシフトならびにバンドギャップEgの増加等により示唆された。また，XRDならびにREDの結果から，Alの導入によりZnO薄膜の結晶性が乱れることが示された。期待したほどのAlドーピングによる抵抗率の低下をみることができなかったのは，この結晶性の乱れから生じる電子移動度の低下が要因として推測できる。

3－2　ASP

3－2－1　抵抗率

ASPによりガラス基板に堆積したZnO薄膜のAl%の変化に対する抵抗率の変化をFig. 7に示す。比較のために，AOSPの抵抗率も図中に示した。Al%が0%であるノンドープ試料に関しては，基板温度200℃，300℃ で堆積した薄膜試料の抵抗率は，ともに測定不能（1000Ωcm以上）であった。Al%を1.7%にした場合，基板温度200℃ で堆積した薄膜試料の抵抗率は10Ωcm，基板温度300℃で堆積した薄膜試料の抵抗率は10^{-2}Ωcmオーダの値を示した。基板温度200℃でAl%が23%で堆積した薄膜試料の抵抗率は最小値である5

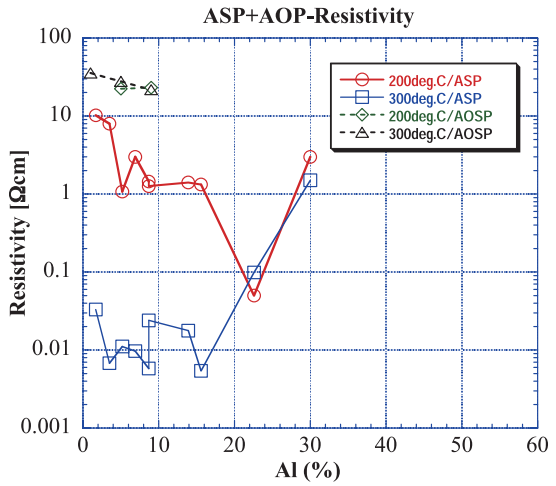

Fig. 7　Changes of resistivity of the films deposited at the substrate temperature of 200℃ and 300℃ by ASP, as a function of the area rate of Al.

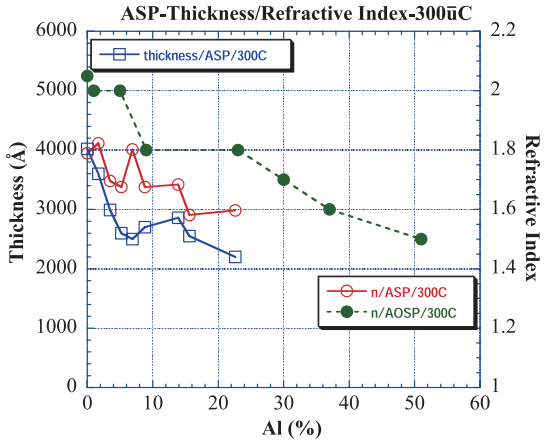

Fig. 8　Changes of thickness and refractive index of the films deposited at the substrate temperature of 300℃ by ASP, as a function of the area rate of Al. As reference, refractive index of the film deposited by AOSP is inserted in figure.

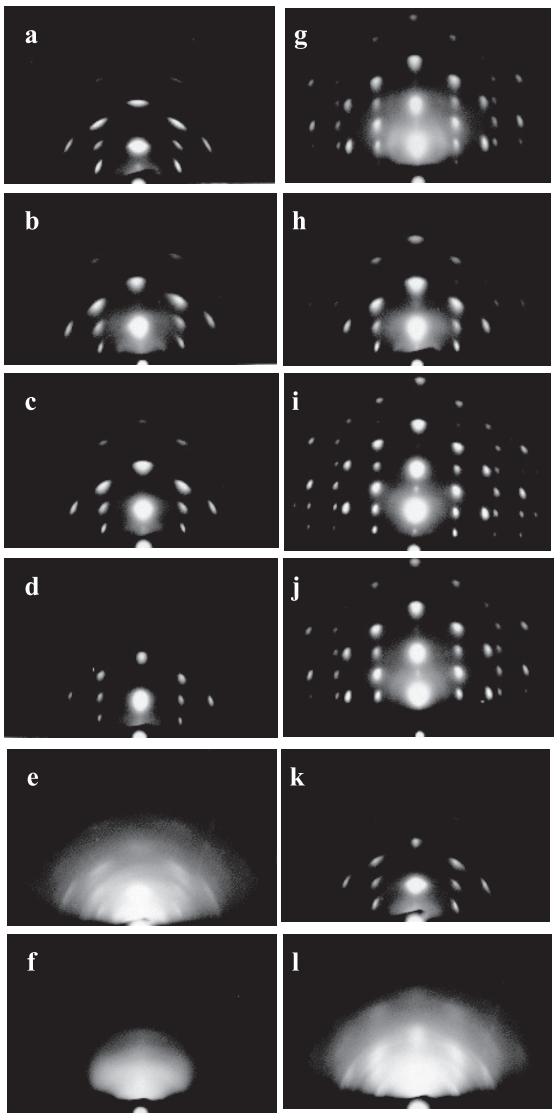

Fig. 9　RED of the films deposited by ASP. The area rate of Al a: non-doping, b: 1.7%, c: 5.2%, d: 15.6%, e:22.6%, f: 30%, at the substrate temperature of 200℃ and g: non-doping, h: 1.7% , i: 6.9%, j: 13.9% k: 15.6%, l: 30% at 300℃.

$\times 10^{-2}$ Ωcm を示し，それ以上の Al% の増加とともに薄膜試料の抵抗率は増加を示す。基板温度300℃ で堆積した薄膜試料の抵抗率は Al% が15% まで徐々に低下し最小値の 5×10^{-3} Ωcm を示し，それ以上の Al% の増加とともに増加を示す。この図から基板温度300℃ のほうが Al のドーピングに適していることを示しているが，Al の面積割合1.7%～15% までの範囲で詳細に調べる必要がある。尚，図中に示してある AOSP の抵抗率の最小値は 2×10Ωcm であり，ASP のほうが 3 桁から 4 桁程度低いことが示された。

3－2－2　膜厚と屈折率

Si 基板上に体積された ZnO 薄膜をエリプソメータにより測定し，Al% の変化に対する偏光解析より求めた膜厚と屈折率の変化を Fig. 8 に示す。比較のため，図中に AOSP により基板温度300℃ で堆積した試料薄膜の屈折率変化も示してある。概して Al% の増加とともに膜厚が減少している。詳細に見てみると，試料薄膜の膜厚は Al% が 5% までの範囲で急激に減少し，Al% が 5% から15% までの範囲で顕著な変化がなく，Al% が15% 以上でまた減少する。ASP により堆積した薄膜試料の屈折率は，AOSP により堆積した薄膜試料の屈折率と比較して概して低い値を示しており，Al% に対して緩やかに減少する傾向を示しているが，Al% が3.5%, 5.2% で堆積した薄膜試料に対しては，エリプソメータの実測値のばらつきが大きく屈折率ならびに膜厚に誤差を含んでいることは念頭に入れておく必要がある。AOSP により堆積した薄膜試料に関して，Al% が10% 程度までは膜厚の減少は緩やかであるが，その後，急激に低下する。AOSP との膜厚の変化に対する比較から，ASP において Al の面積割合 5% までの急激な膜厚の減少の要因はエリプソメータの実測値の

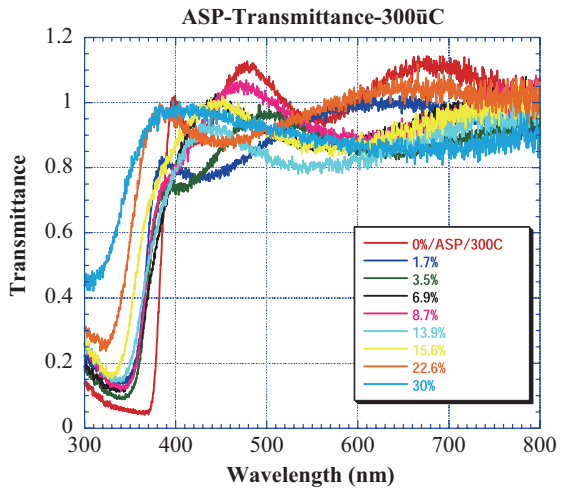

Fig. 10 Transmittance spectra of the films deposited at different area rate of Al under the substrate temperature of 300℃ by ASP.

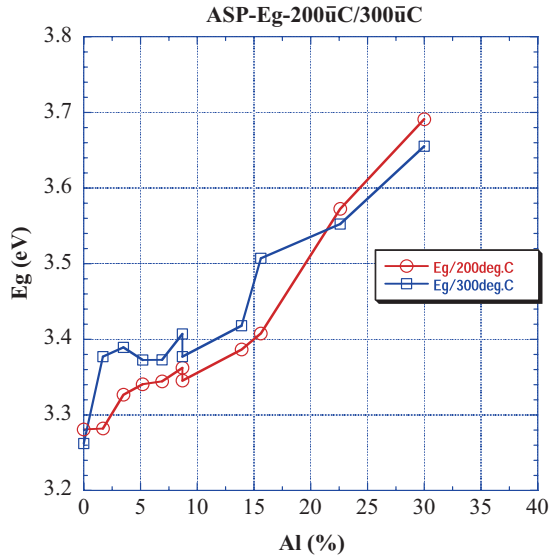

Fig. 11 Changes of optical band gap of the films deposited at the substrate temperature of 300℃ by ASP, as a function of the area rate of Al.

ばらつきにあると推測できる。

3－2－3　反射電子回折（RED）

ASP による基板温度200℃，300℃ で Si 基板上に堆積した ZnO 薄膜の Al% の変化に対する反射電子回折像（RED）の変化を Fig. 9 に示す。ノンドープに関しては，基板温度200℃で堆積した薄膜試料より基板温度300℃で堆積した薄膜試料のほうが，明瞭なスポットパターンを示しており，結晶性が良いことを示唆している。Al% の増加に関して，基板温度300℃ で堆積した薄膜試料は， Al% が13.9% までの薄膜試料は，明瞭なスッポトパターンを示し，ノンドープ ZnO 薄膜程度あるいはそれ以上の良好な結晶性を示す。特に，Al% が6.9%の薄膜試料はノンドープのスッポットパターンより更に明瞭なスポットパターンを示しており，ノンドープ薄膜試料よりむしろ結晶性が改善されているようにも考えられる。 Al% が15% 以上の薄膜試料で配向リングパターンを示し，薄膜試料が多結晶化していることを示す。さらに Al% が30% の薄膜試料でアモルファスを示すハローパターンになる。200℃で堆積した薄膜試料の RED パターンから，同様に Al% が15% までの薄膜試料の結晶性はノンドープ薄膜と同程度かそれ以上に改善されている。Al% が20% 以上の薄膜試料でハローパターンを示し，結晶性が低下している。

3－2－4　透過率特性とバンドギャップ Eg

ASP における Al のドーピングによる透過率への影響を調べた。Fig. 10に基板温度300℃ で石英基板上に堆積した試料の Al% の変化に対する透過率スペクトルの変化を示す。ノンドープから Al% が30% までの薄膜試料に対して，400nm から800nm の波長において，80% 以上の透過率を示している。ノンドープの薄膜試料に関しては，波長380nm ぐらいから立ち上がり，Al% が1.7% から13.9% の薄膜試料に関しては，殆ど一塊まりの状態で短波長側にシフトし，波長360nm 程度から立ち上がっている。それ以上の Al% の薄膜試料に対しては，Al% の増加とともに短波長側に大きくシフトし，かつ薄膜試料の膜厚の減少により短波長領域（380nm 以下）での透過率が上昇する。この透過率特性を用いて，ZnO 薄膜のバンドギャップ Eg を計算し，Al% に対するバンドギャップ Eg の変化を求めた図を Fig. 11に示す。Al% の増加に対して概してバンドギャップ Eg が増加する傾向を示している。しかしながら，基板温度300℃で堆積した薄膜試料について詳細に見てみると，ノンドープの試料の Eg は3.26 eV であったものが，Al% が1.7% になると3.36 eV と急峻に増加する。Al% が1.7% から13.9% 範囲では，Eg は3.36 eV ～3.42 eV の範囲にある。Al の % が13.9% 以上で Eg は急峻に増加する。基板温度200℃で堆積した薄膜試料に関しても，Al% が1.7% の薄膜試料を除いて，Eg の絶対値は若干低いが基板温度300℃ で堆積した薄膜試料と同様な変化を示している。この ASP の Al% の変化に対する Eg の変化は，前述した Al% の変化に対する RED の変化と全く相関がある。即ち，薄膜試料の結晶性がノンドープより改善されている Al% の範囲では，Eg がほぼバルク ZnO の Eg である3.37eV に近い値で推移していることである。また，薄膜試料の結晶性が悪くなり，RED がアモルファス相の混入を示すハローパターンになると Eg が Al% の増加とともに単調に増加する。

3－1－5　ASP のまとめ

ASP において ZnO ターゲットに Al シートを設置し，その Al%を変化し ZnO 薄膜の Al のドーピングを試みた。基板温度200℃，300℃で堆積したノンドープの薄膜試料の抵抗率はともに1000Ωcm 以上であったものが，Al% が1.7% から13.9% の範囲で堆積した薄膜試料の抵抗率は，基板温度200℃で10^{-2}Ωcm，300℃で10^{-3}Ω

cm オーダを示し，それ以上の Al% で堆積した薄膜試料の抵抗率は増加した。この Al のドーピングによる抵抗率の低下は，Al% の変化に対する RED と Eg の変化から，Al の導入により，堆積薄膜試料の結晶性が改善され，ZnO の電子移動度が増加したと考えられる。また，抵抗率の低下にもかかわらず，透過率は80% 以上を示した。しかし，過剰な Al の導入は，Al_2O_3の生成を引き起こし抵抗率が増加する。

4 ま と め

今まで，高周波スパッタリング法を用いて電子材料としての良質な ZnO 薄膜を作製するための基礎データを得るため研究を行ってきた。その結果，得られた ZnO 薄膜の結晶性ならびに光学的特性は電子材料として有用な特性を示したが，電気的特性である抵抗率が高く，電子デバイスのための実用段階ではないことが示された。

そこで，今回，AOSP 法ならびに ASP 法において，Al のドーピングを実施し，ZnO 薄膜の抵抗率の低下を試みた結果のまとめを以下に示す。

AOSP 法に関して，

・高抵抗率であったノンドープ ZnO 薄膜が，Al% の 9% までの範囲で20～30Ω cm 程度まで抵抗率が低下した。

・Al% が 9% 以上になると，スパッタリングガスである Ar-O_2の酸素により，同時にアモルファス Al_2O_3も生成され，高抵抗率になる。

・これらのことは，Al% に対する試料の屈折率 n の減少，透過率の立ち上がり波長の短波長へのシフトならびにバンドギャップ Eg の増加等により示唆された。

・XRD ならびに RED の結果から，Al の導入により ZnO 薄膜の結晶性が乱れることが示された。期待したほどの Al ドーピングによる抵抗率の低下をみることができなかったのは，この結晶性の乱れから生じる電子移動度の低下が要因として推測できる。

ASP 法に関して

・基板温度200℃，300℃で堆積したノンドープの薄膜試料の抵抗率はともに1000Ω cm 以上であったものが，Al% が1.7% から13.9% の範囲で堆積した薄膜試料の抵抗率は，基板温度200℃で10^{-2}Ωcm，300℃で10^{-3}Ωcm オーダを示した。

・Al% が13.9% の以上で堆積した薄膜試料の抵抗率は Al% の増加とともに増加した。

・この Al のドーピングによる抵抗率の低下は，Al% の変化に対する RED と Eg の変化から，Al の導入により，堆積薄膜試料の結晶性が改善され，ZnO の電子移動度が増加したと考えられる。

・過剰な Al の導入は，Al_2O_3の生成を引き起こし抵抗率が増加する。

最後に，AOSP 法と ASP 法による Al のドーピングの比較から，AOSP はターゲットに配置した Al シートがスパッタリングされ，プラズマ中でかなりの Al がプラズマ中の酸素と反応し Al_2O_3として生成され，ZnO 膜中に混入して，ZnO 薄膜の結晶性を乱し，電子移動度の低下を引き起こしていると考えられる。よって，期待したほどの抵抗率の低下が見られなかった。また，過剰な Al% は，膜中に多量な Al_2O_3を含み，やはり高抵抗率になると考えられる。

一方，ASP は，Al のドーピングにより結晶性が乱されず，むしろ改善される傾向にあり，移動度の改善が抵抗率の低下に大きく寄与したと考えられる。しかしながら，Al のドーピングにより結晶性が改善される理由は不明であり，今後の課題としたい。

謝　　辞

Ｘ線回折は大同工業大学のＸ線回折装置（理学電機社製 ATX-G）を使用させていただきましたことに感謝します。さらにＸ線回折データに関して多くのご指導を頂きました同大学教授・坂　貢　氏に深く感謝します。また，ホール測定装置を利用させて頂きました中部大学電気工学科教授・井戸敏之氏に感謝します。

参 考 文 献

1）清水秀己，岩田　航 : 愛知教育大学研究報告 , 芸術・保健体育・家政・技術科学・創作編 . 2004, 53, pp. 25-33
2）清水秀己，岩田　航 : 愛知教育大学研究報告 , 芸術・保健体育・家政・技術科学・創作編 . 2008, 57, pp. 43-49
3）H. Kim et al.: Thin Solid Films 420-421 （2002） pp. 107-111
4）黒田吉益，諏訪兼位 ：偏光顕微鏡と鉱物【第 2 版】共立出版（1983）
5）M. Erman, et al.: J. Appl. Phys. 56 （1984） p.266

（2009年 9 月17日受理）