

様式 I

博士學位論文調査報告書

論文題目

Durability and Recoverability of Al-doped ZnO Transparent Electrodes Exposed to a Harsh Environment (過酷な環境における Al ドープ ZnO 透明電極の耐久性と復元性)

申請者 Fahmi Machda

最終学歴 平成 29 年 9 月

京都大学大学院エネルギー科学研究科エネルギー社会・環境科学専攻
修士課程 (修了)

学識確認 平成 年 月 日 (論文博士のみ)

調査委員 京都大学大学院エネルギー科学研究科
(主査) 教授 石原 慶一

調査委員 京都大学大学院エネルギー科学研究科
教授 佐川 尚

調査委員 京都大学大学院 エネルギー科学研究科
准 教授 奥村 英之

(続紙 1)

京都大学	博士 (エネルギー科学)	氏名	Fahmi Machda
論文題目	Durability and Recoverability of Al-doped ZnO Transparent Electrodes Exposed to a Harsh Environment (過酷な環境における Al ドープ ZnO 透明電極の耐久性と復元性)		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>本論文は、Al ドープ ZnO 透明電極の耐久性と復元性を論じた結果をまとめたもので、8 章からなっている。</p> <p>第 1 章は序論で、これまで知られている Al ドープ ZnO 透明電極の特性、実用化についての課題について述べた後、本論文の目的及び論文の構成について書かれている。</p> <p>第 2 章は、これまでの関連研究についてまとめられており、とくにスパッター薄膜に関して、本論文のテーマである熱処理、結晶方位、ポリマー上の合成などの研究にはまだ残された課題があることをまとめている。</p> <p>第 3 章は、実験方法について述べられている。薄膜の合成方法および光学特性、電気特性、組織構造の評価方法および過酷環境下での加速試験方法について述べられている。</p> <p>第 4 章は、薄膜の熱処理温度と劣化特性との関連について述べており、高温水素雰囲気下 (550°C) での熱処理を施すと劣化が抑制されることを報告している。そして、劣化した薄膜を再度水素雰囲気下で熱処理することにより特性が回復することを報告している。</p> <p>第 5 章は、結晶方位による影響について調査している。まず、スパッター中の雰囲気ガスにおいてアルゴンと酸素の比率を 3:60, 15:60, 30:60, 60:60 と変化させることにより薄膜の優先成長方位が 110 から 002 に変化することを見出している。そして、方位の異なる薄膜の特性について調査したところ、002 薄膜の方が 110 薄膜に比べて伝導性がよいことを発見している。また、耐久性についても 002 薄膜の方が優れていることを報告している。</p> <p>第 6 章は、プラスチック (ポリカーボネイト・ポリイミド貼り合わせ) フィルム上に形成した薄膜の特性について調査している。まず、第 5 章の研究を更に進めアルゴンと酸素の比率を 90:3 までアルゴン比率を高め、さらに高周波電源を 100W から 85W に下げることにより、低温で 002 方位の薄膜をプラスチックフィルム上に形成させることができ、かつ熱処理を施すことなく実用に耐え得る透明電極薄膜が形成できることを報告している。さらに、同じ条件でガラス基板にも合成し、両者の耐久性について比較研究を行った。ガラス基板上のものはほとんど劣化がみられなかったが、プラスチックフィルムの方は電気抵抗に大きな上昇がみられた。過酷環境試験後のサンプルを SEM 観察したところ、薄膜が物理的に損傷しており、これが主な劣化の原因であると特定している。</p>			

第7章は、AZO 薄膜の応用について考察し、タッチスクリーン、LED、太陽電池およびフレキシブル電極へ応用するには、薄膜の厚さ、自己修復能力、熱処理条件などさらなる調査が必要であることを述べている。

第8章は、結論であり、本論文の内容を要約した後、実用化に向けての展望についてまとめている。

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

透明電極は太陽光発電パネル、液晶などのディスプレイやプロジェクターなど多くの分野で用いられている。その主な材料はインジウムスズ酸化物であるが、インジウムは資源量が乏しく、その代替材料として Al ドープ酸化亜鉛(AZO)が注目されているが、耐久性に問題があるなどの課題がある。本論文はこの AZO 耐久性向上に関し、成膜条件の影響を精査したもので、その主な成果は下記のとおりである。

1、 成膜方法として、亜鉛-アルミニウム複合ターゲットをアルゴン-酸素混合気体によるスパッターにより酸素と反応させた場合、薄膜の特性はスパッター中の酸素濃度に大きく依存し、特に酸素濃度比が低い領域では 002 配向した膜が得られ、後熱処理なしで実用に耐えうる透明性、電気伝導性を有する薄膜が形成できることを見出した。

2、 酸素濃度が高い試料では 002 方位と 110 方位が混合し、そのままでは十分な電気伝導性が得られないが、水素雰囲気下 550°C で焼鈍することにより実用レベルの透明性及び電気伝導性を有する薄膜が得られた。

3、 高温高湿度下で加速試験を行い、耐久性を調査したところ、002 配向の試料は高い耐久性を示した。一方、他の試料においては劣化がみられたが、再び水素雰囲気で焼鈍することにより透明性及び電気伝導性が回復できることを見出した。

4、 得られた薄膜についてホール係数測定によりキャリア濃度と移動度の両方が伝導性に影響を及ぼしていること、XPS 測定により耐久性には表面のアルミナ等の酸化相が重要な役割を担っていることが確認された。

5、 以上の知見を用い、低酸素濃度比の条件の下、成膜中の温度上昇を抑えるため低消費電力でプラスチックフィルム上への成膜を試みたところ、フレキシブルな透明電極薄膜の形成が確認できた。

以上得られた結果はいずれも本材料のディスプレイや太陽電池などのエネルギー関連デバイスへの応用に寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(エネルギー科学)の学位論文として価値あるものと認める。また、令和2年8月27日実施した論文内容調査とそれに関連した試問の結果合格と認めた。

論文内容の要旨、審査の結果の要旨及び学位論文の全文は、本学学術情報リポジトリに掲載し、公表とする。ただし、特許申請、雑誌掲載等の関係により、要旨を学位授与後即日公表することに支障がある場合は、以下に公表可能とする日付を記入すること。

要旨公開可能日： 年 月 日以降