

論文審査の結果の要旨

氏名 福本 通孝

透明導電酸化物は、太陽電池、液晶ディスプレイなどの透明電極として広く実用化されている。通常、高い電気伝導度はキャリア移動度とキャリア濃度を向上させることで達成できる。しかし、キャリア濃度の増加はプラズマ吸収を引き起こし、透明性を低下させる。したがって、透明性と導電性を両立させるためには移動度の向上が要求される。本論文では、高移動度スズ系透明導電酸化物薄膜の作製を行い、その結晶構造と電気・光学特性を調べ、報告している。

本論文は以下の 8 章より構成されている。

第 1 章は序論であり、本論文の背景および目的が述べられている。この章では、まず透明導電酸化物の物性について概略を記述している。続いて、高移動度を達成するための指針を 3 つに分けて述べている。この指針をもとに、スズ系酸化物薄膜の物性について先行研究を概観し、高移動度を達成するための方策を記述している。本研究では高移動度スズ系透明導電酸化物の開発を目的として掲げており、大きく 2 つの内容から成る。1 つ目に、n 型 SnO_2 薄膜の高移動度化とその応用に向けたプロセス開発を報告している。2 つ目に、高移動度 p 型透明導電酸化物として期待される $\text{Sn}_5\text{O}_2(\text{PO}_4)_2$ の高品質薄膜合成とその物性評価を試みている。

第 2 章は実験手法とその原理の説明である。まず、薄膜試料の作製手法であるパルスレーザー堆積法とスパッタ法について詳説している。続いて、薄膜結晶の構造解析手法である X 線回折、透過型電子顕微鏡、蛍光 X 線ホログラフィー、薄膜の組成分析手法であるエネルギー分散型 X 線分析、ラザフォード後方散乱分析について、各測定手法の原理について記述している。さらに、光学・電気特性測定手法として、紫外可視近赤外分光、四端子法を用いた抵抗測定、ホール効果測定の原理について説明している。

第 3 章は、Ta ドープ SnO_2 エピタキシャル薄膜について、薄膜の配向とキャリア濃度がキャリア移動度に及ぼす影響を調べている。薄膜のキャリア濃度は Ta 濃度に対応しており、Ta のドーピング効率が高いことを示している。特に、高キャリア濃度領域における Ta ドープ SnO_2 薄膜の移動度は、フォノンとイオン化不純物のみがキャリア散乱に寄与していると仮定した場合の移動度とよく一致することを確認している。また、得られた Ta ドープ SnO_2 薄膜の移動度が、過去に報告された SnO_2 薄膜の中で最も高い値である $130 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ に達することを明らかにしている。

第 4 章では W ドープ SnO_2 エピタキシャル薄膜の作製とその輸送特性について議論している。W ドープ SnO_2 薄膜のキャリア濃度は W 量の増加に伴って単調に増加し、 W^{5+} を仮定した場合の値と良く一致すること、並びに高キャリア濃度側の移動度がフォノンと W^{5+} イオン化不純物のみがキャリア散乱に寄与すると仮定した場合の値と良く一致することを明らかにしている。また、走査透過電子顕微鏡から、W 原子が薄膜中に均一に分布していること、蛍光 X 線ホログラフィーを用いた W 原子周辺環境の観察により、均一に分布し

た W 原子が Sn サイトを置換していることを実証している。以上の結果より、W は SnO₂ 薄膜中で移動度を損なわずにキャリア濃度を制御できる優れたドーパントであると結論している。

第 5 章では、TiO₂(001)基板とガラス基板上に作製した P ドープ SnO₂ 薄膜の輸送特性について述べている。P ドープ SnO₂ 薄膜中の P 量は基板温度が高くなるにつれて減少し、ドーピング効率は基板温度 350°C で最大となることを観測している。また、P 量の増加とともにキャリア濃度は系統的に増加し、 $1.6 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ に達することを明らかにしている。得られた薄膜は可視光に対して透明であり、実用的な透明導電酸化物としての P ドープ SnO₂ 薄膜の可能性を指摘している。

第 6 章では、ボトムアップ法を用いて基板を処理し、テクスチャ表面を有する SnO₂ 透明導電膜を作製する新しい方法を提案している。走査電子顕微鏡により、SnO₂ ナノ粒子テンプレート上に作製した SnO₂ 薄膜の表面にテクスチャ構造が作製されたことを実証している。紫外可視近赤外分光法により、得られた薄膜における高い透明性とヘイズ値の向上を確認し、さらに、テンプレートが結晶粒成長を促進することで SnO₂ 薄膜の導電性が向上することを明らかにしている。これらの結果に基づき、本手法が金属ターゲットを用いた反応性スパッタにおいて生産性の高い手法となりうると結論している。

第 7 章では高移動度 p 型透明導電酸化物として有望な Sn₅O₂(PO₄)₂ の高品質薄膜の作製について述べている。ガラス基板上に Y₂O₃(111)層を堆積し、基板温度を最適化することで Sn₅O₂(PO₄)₂(001)薄膜の作製に成功している。組成分析により、得られた膜の組成が量論組成に近いことを確認している。紫外可視近赤外分光法により、得られた膜のバンドギャップが 3.87 eV と大きく、可視・近赤外領域で高い透明性を示すことを明らかにしている。最後に、異価不純物による正孔ドーピングの可能性を指摘している。

第 8 章は結論と総括である。

以上のように、本論文では高移動度スズ系酸化物薄膜の作製とその輸送特性に関して詳細に報告しており、無機固体化学における物質探索に大きく貢献する。これらの研究は理学の展開に大きく寄与する成果であり、博士（理学）に値する。なお本論文は複数の研究者との共同研究であるが、論文提出者が主体となって行ったものであり、論文提出者の寄与は十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。