

論文審査の結果の要旨

氏名 鈴木 温

高移動度酸化物半導体は、LED や太陽電池といった各種光デバイス用の透明電極、光触媒・光電極などに利用されている有用な材料である。しかし、デバイス効率向上のために材料に要求される特性は応用により異なり、透明電極材料においては高屈折率が、光電極においては可視光応答性が求められる。このため、それぞれの要件を満たす新規高移動度半導体の開発が求められている。本論文では、新規高移動度材料として酸窒化物半導体であるアナターゼ型 TaON に注目している。しかし、アナターゼ型 TaON は準安定相のため、不純物を含まない単結晶の合成は困難であり、材料真性の物理特性が不明であるという問題がある。本論文では、この問題を解決するため、パルスレーザー堆積法によりアナターゼ型 TaON のエピタキシャル薄膜を合成し、電気輸送特性を始めとする物性を報告している。これに加えて、各応用に適した物理特性、合成要件を満たすべく、アナターゼ型 TaON の光学特性、電気輸送特性の制御およびアナターゼ型 TaON の安定化にも取り組んでいる。

本研究は以下の7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、まず高移動度酸化物半導体の応用に関する現状と問題点を概観している。同問題点を解決する新規材料として酸窒化物半導体であるアナターゼ型 TaON を取り上げ、酸窒化物材料の観点から、合成法と物性についての特徴や現状について言及している。さらに、アナターゼ型 TaON が酸化物半導体を用いた既存デバイスの問題点を解決する可能性を提示し、アナターゼ型 TaON の合成、評価、機能化を本研究の目的として掲げている。

第2章は実験手法とその原理の説明である。まず、本論文で採用した窒素プラズマ支援パルスレーザー堆積(NPA-PLD)法について詳説し、準安定相や酸窒化物などの窒素を含む薄膜試料の合成法として有用であることを示している。続いて、薄膜構造の解析手法であるX線回折、透過型電子顕微鏡、原子間力顕微鏡、薄膜組成の分析手法である走査型電子顕微鏡/エネルギー分散型X線分光法、核反応分析法、二次イオン質量分析法、電子状態の分析手法であるX線光電子分光について、各測定手法の原理とそこから得られる情報について記述している。さらに、物理特性の評価法として、紫外可視近赤外分光およびエリプソメトリーによる光学測定、van der Pauw 法を用いた電気輸送特性測定を取り上げ、その原理と得られる物性について解説している。

第3章ではNPA-PLD法を用いたアナターゼ型 TaON の合成とその物理特性について述べられている。アナターゼ型 TaON の合成では、成長温度と酸素・窒素の供給バランスが重要である点を指摘し、合成条件を最適化した結果、不純物のないエピタキシャル薄膜が得られることを示している。また、得られた薄膜の電気輸送特性と光学特性を評価し、アナターゼ型 TiO₂ に匹敵する高い移動度($\mu_H \sim 17 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$)や可視光応答性($E_g \sim 2.37 \text{ eV}$)、高い屈折率(可視光領域で $n > \sim 3.0$)を有することを確認している。これらの結果より、アナター

ゼ型 TaON が光電極や透明電極材料として有望であると結論している。

第4章ではTiO₂との固溶体であるアナターゼ型(TiO₂)_x(TaON)_{1-x}の合成とその光学特性について述べられている。NPA-PLD 法を用いて合成中の酸素分圧を最適化することにより、(TiO₂)_x(TaON)_{1-x}の全率固溶(0 ≤ x ≤ 1)に成功している。合成した固溶体薄膜の光学特性を評価し、固溶体の組成比 x によってバンドギャップと屈折率を TaON と TiO₂ の値の間で自在に制御できることを実証している。

第5章はアナターゼ型 TaON への Li 挿入および W 置換によるキャリアドーピングの結果について述べている。アナターゼ型 TaON 薄膜を n-ブチルリチウム溶液に浸漬することにより大量の Li を挿入できることを確認している。また、これにより 10²⁰ cm⁻³ 程度のキャリアドーピングに成功し、 $\rho \sim 6.7 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$ と透明電極への応用に十分な低抵抗率が得られることを報告している。一方、直接高温で合成した W 置換 TaON 薄膜ではキャリアドーピングに失敗している。以上の結果から、アナターゼ型 TaON へのキャリアドーピングするには、薄膜中の荷電補償を防ぐため、Li 挿入の場合のように合成プロセスとキャリアドーピングプロセスを分離する必要があると指摘している。

第6章ではアナターゼ型 TaON の実用化を視野に入れ、TiO₂ シード層の導入によるアナターゼ型 TaON の合成条件拡大について述べている。同シード層の効果として、アナターゼ型 TaON のより低温での合成、および安価なガラス基板上への製膜を確認している。同じ結晶構造をもつシード層によりアナターゼ型 TaON が安定化されたと議論している。

第7章は結論と総括である。

以上のように、本論文は、アナターゼ型 TaON エピタキシャル薄膜の合成とその真性の物理特性、キャリアドーピングと合成条件の拡大による機能化について述べており、アナターゼ型 TaON の電子材料としての有用性を示すものである。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。