

論文審査の結果の要旨

氏名 立川 卓

遷移金属酸化物半導体は、透明導電性や光触媒をはじめとして特徴的機能を発現する。これらの機能を利用した新規半導体電子デバイスの開発も盛んに行われている。半導体電子デバイスにおいては、異なる材料間の界面で生じるバンドオフセットをバルクの物性と独立に制御する技術の確立が重要である。バンドオフセットは材料の電子親和力の差に支配されるが、界面に電気双極子モーメントを有する層を挿入することで制御することが可能である。ここで鍵となるのは、電気双極子モーメントを増強すること、及び、それを界面に安定に形成することである。遷移金属酸化物は、一般に強いイオン結合性を有し、材料によっては特定の面方向に正負の電荷層が交互積層する構造を持つ。この特徴を利用すれば、化合物半導体や有機半導体では実現できない大きな電気双極子モーメントを安定に形成させることが可能ではないかと期待される。

本論文では、以上の発想に基づき、金属と酸化物半導体からなるショットキー界面において、電気双極子層/半導体界面の構造がバンドオフセットに与える影響を調べた結果が述べられている。酸化物半導体に関するこの種の研究は、金属、半導体ともにペロブスカイト型酸化物で構成されるエピタキシャル成長で得られたショットキー界面に限定されていた。また、バンドオフセットの制御は、減少する方向に限られていた。このバンドオフセットの制御手法をより汎用的な手法として発展させるため、本研究では、デバイスで頻繁に使われる多結晶単体金属/酸化物界面を対象に選択した。そして、良質な電気双極子層の形成を行うとともにバンドオフセットの定量的評価法を確立し、バンドオフセットの増加及び減少の両者を実現することに成功した。この結果は、酸化物界面を利用した電子デバイスにおいて、界面の電子状態を制御する新たな手法を与えるものと位置づけられる。

本論文は7章からなる。第1章には、研究の背景と目的が述べられている。第2章では、古典電磁気学を用いてショットキー接合におけるバンドベンディングと内蔵電位を導出し、金属/半導体界面に挿入された電気双極子層によりこれが変調されることを示した。さらに、界面に乱れが存在する界面において、電気双極子層の効果を打ち消し得る3つの要因が述べられている。第3章では、本論文で用いられた薄膜、界面構造の作製法と評価手法、及び、ショット

トキ一障壁高さの評価手法が説明されている。

第4章では、電気双極子層 LaAlO_3 を半導体 TiO_2 薄膜上に堆積した際に TiO_2 薄膜外へ酸素イオンが拡散するのを抑制するための LaAlO_3 層の成長条件が述べられている。さらに、 LaAlO_3 薄膜を TiO_2 薄膜上にエピタキシャル成長させるために、 TiO_2 (001)表面再構成を制御する手法を開発した内容が述べられている。

第5章では、 $\text{Pt/LaAlO}_3/\text{Nb}:\text{TiO}_2$ ヘテロ接合を作製し、 LaAlO_3 層の膜厚に応じたショットキー障壁高さの変化を調べた結果が述べられている。得られたショットキー障壁高さの変化が、理論的に見積もられた結果と合致することを示した。また、電気双極子モーメントが異なる酸化物双極子層を用いたショットキー障壁高さがモーメントの大きさに比例することを示し、本手法の一般性を裏付けた。さらに、極薄のトンネル障壁がショットキー界面に存在する場合の内部光電効果スペクトルの理論的定式化を行い、得られたスペクトルが実験結果とよく合致することを示した。また、トンネル障壁の厚さが増大するにつれ、内部光電効果によるショットキー障壁高さの導出が困難になることを指摘した。

第6章では、 $\text{Pt/Nb}:\text{SrTiO}_3$ (100)界面において、双極子層として AgTaO_3 を導入し、これまで困難であったバンドオフセットの増加に成功したことが述べられている。さらに、複数の評価手法を組み合わせ、 Pt/AgTaO_3 のバンドオフセットを同定した。これらの結果に基づき、 $\text{Pt/Nb}:\text{SrTiO}_3$ (100)接合に光を照射した際の開放端電圧を、双極子層の挿入により増加させることに成功したことが記されている。

第7章では、本研究の総括が述べられている。

なお、第4章から第6章は Harold Y. Hwang 氏 (Stanford 大学)、疋田育之氏 (SLAC 国立加速器研究所)、Christopher Bell 氏 (Bristol 大学)、簗原誠人氏 (高エネルギー加速器研究所)との共同研究であるが、いずれも論文提出者が主体となって研究を遂行したもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。以上から、本論文は、酸化物電気双極子を遷移金属酸化物界面において有用に活用するための指針を示し、酸化物デバイスの発展に貢献するものである。以上を総合し、博士 (科学) の学位を授与できると認める。

以上 1980 字