

パルスレーザー堆積法で作製した SnO 薄膜における正孔移動度の向上 Improvement of the hole mobility of SnO epitaxial films grown by pulsed laser deposition

簗原 誠人¹, 菊地 直人¹, 吉田 良行¹, 組頭 広志^{2,3}, 相浦 義弘¹

¹産業技術総合研究所 電子光基礎技術研究部門、〒305-8568 つくば市梅園 1-1-1

²東北大学 多元物質研究所、〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

³高エネルギー加速器研究機構 物質構造化学研究所、〒305-0801 つくば市大穂 1-1
Makoto MINOHARA^{1,*}, Naoto KIKUCHI¹, Yoshiyuki YOSHIDA¹, Hiroshi KUMIGASHIRA^{2,3},
and Yoshihiro AIURA¹

¹Research Institute for Advanced Electronics and Photonics, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba, Ibaraki 305-8568, Japan

²Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, Sendai, Miyagi 980-8578, Japan

³Photon Factory, Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan

1 はじめに

革新的な酸化物デバイス開発に向けて、現在実用化されている n 型酸化物半導体に匹敵する特性を有する p 型酸化物半導体の開発が強く求められている。多くの候補物質が理論計算から提案される中、近年、酸化スズ (II) (SnO) 多結晶バルク体において、高い正孔移動度が報告された[1]。しかしながら、デバイス応用に不可欠な薄膜形状においては、その値は著しく低い [2]。この原因として、正孔キャリアの生成源である Sn 欠陥が散乱体として寄与し、移動度を低下させていると考えられる。そこで本研究では、Sn 欠陥生成の抑制とそれによる移動度向上を目的とし、既報[2]に比べて低い製膜温度における SnO 薄膜作製を行なった。

2 実験

SnO 薄膜 (膜厚 100 nm) はパルスレーザー堆積法を用いて、LaAlO₃ (001)および YSZ (001)基板上に作製した。製膜温度は、既報[2]より 200 °C 以上低い 350 °C に設定した。X 線構造解析により SnO 薄膜の単相成長を確認した。また、KEK-PF BL-2A に設置した in-situ LaserMBE-光電子分光複合装置を用いた軟 X 線光電子分光測定 (PES) および X 線吸収分光測定 (XAS) により、Sn の価数および電子状態について調べた。半導体特性 (伝導型、キャリア濃度、移動度) は、4 端子法により評価した。擬ホールバール形状の作成は、アルミニウムワイヤーボンディングにより行った。

3 結果および考察

Figure 1a に SnO および SnO₂ 薄膜の Sn 3d 内殻光電子スペクトルを示す。SnO 薄膜では、Sn²⁺に由来するメインピーク (B.E. ~486.2 eV) および Sn⁴⁺に由来するサブピーク (B.E. ~487.0 eV) から構成されるこ

とが見て取れる。詳細な内殻光電子スペクトル強度の角度依存性より、Sn⁴⁺は表面約 1 nm 程度の領域に存在することがわかった。すなわち、観測された Sn⁴⁺成分は、表面で自然酸化した SnO₂に由来しているものと考えられる。Figure 1b に、SnO および SnO₂ 薄膜の価電子帯スペクトルを示す。SnO₂ 薄膜の価電子帯上端は 3~4 eV 辺りに位置しており、n 型半導体特有の電子状態を示している。一方、SnO 薄膜では、フェルミレベル近傍に価電子帯上端が位置していることがわかる。内殻光電子分光測定から観測された表面 SnO₂層は、フェルミレベル近傍にほとんど状態密度が現れないことから、SnO 薄膜において PES 測定で観測されたフェルミレベル近傍の状態密度は表面由来ではなく、SnO 本来の電子状態を反映した p 型半導体特有の電子状態を示すものと考えられる。このことは、熱起電圧およびホール係数の符号から判断した伝導型とも対応している。光電子分光の結果は先行研究[3]とよく一致しており、今回行った低

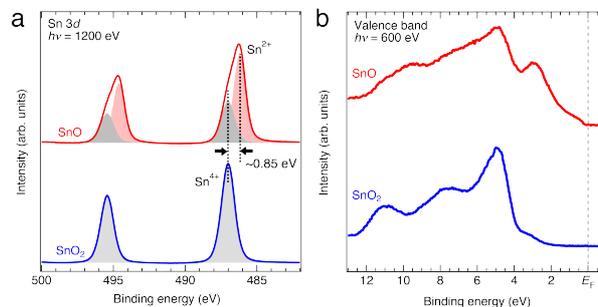


Figure 1 (a) PES spectra of the SnO (red) and SnO₂ (blue) films for Sn-3d core level. The empirical spectrum of the SnO film can be fitted using two curves shaded with gray and red. The spectrum of the SnO₂ film can be fitted using a single component. (b) Valence band spectra of the SnO (red) and SnO₂ (blue) films.

温成長でも高品質 SnO 薄膜が作製可能であることを示している。

Figure 2 に室温における SnO の正孔移動度とキャリア密度の関係図を示す。ここで、内殻スペクトルから観測された表面 SnO₂成分は、「試料全体の 1% 程度である」および「ワイヤーボンディングにより表面層を貫通し、下部の SnO に電極を形成していること」から電気特性結果にほとんど影響がないものとみなすことができる。

本研究で低温にて作製した SnO 薄膜のキャリア密度は既報のエピタキシャル薄膜の値[2]に比べて減少するとともに、正孔移動度は約 4 倍程度向上していることが見て取れる。この結果は、SnO 薄膜の移動度向上において、欠陥量の精密制御が重要であること示唆している【成果 1-3】。

参考文献

- [1] S. A. Miller *et al.*, *J. Mater. Chem. C* **5**, 8854 (2017).
- [2] Y. Ogo *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 032113 (2008).
- [3] Y. Ogo *et al.*, *Phys. Status Solidi* **9**, 2187 (2009).

成果

1. “Improvement of the hole mobility of SnO epitaxial films grown by pulsed laser deposition”, **M. Minohara**, N. Kikuchi, Y. Yoshida, H. Kumigashira and Y. Aiura, *J. Mater. Chem. C* **7**, 6332 (2019).
2. 簗原 誠人、菊地 直人、吉田 吉行、組頭 広志、相浦 義弘、第 80 回 応用物理学会秋季学術講演会、於 北海道大学（札幌）、2019 年 9 月
3. M. Minohara, N. Kikuchi, Y. Yoshida, H. Kumigashira and Y. Aiura, 26th International Workshop on Oxide Electronics, Kyoto Univ. (Uji, Japan), Sep. 2019.

* m-minohara@aist.go.jp

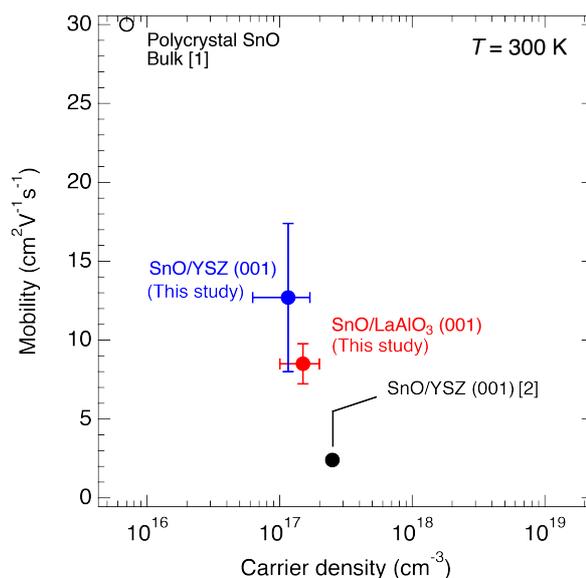


Figure 2 Hole mobility at room temperature as a function of the carrier density for SnO films grown on LaAlO₃ and YSZ (001) substrates, the reported bulk polycrystalline SnO [1] and originally reported SnO films grown on YSZ (001) substrate [2].