

アナターゼ型 $\text{Ti}_x\text{Ta}_{1-x}\text{O}_{1+y}\text{N}_{1-z}$ 薄膜のエピタキシャル成長Epitaxial growth of anatase $\text{Ti}_x\text{Ta}_{1-x}\text{O}_{1+y}\text{N}_{1-z}$ thin film

東大院理¹, KAST², JST-CREST³, 東大院工⁴, 東大生研⁵, UTIAC⁶, 鈴木温^{1,2,3}, 廣瀬靖^{1,2,3}, 岡大地^{1,2,3}, 中尾祥一郎^{2,3}, 松崎浩之⁴, 福谷克之⁵, 石井聡⁶, 笹公和⁶, 関場大一郎⁶, 福村知昭^{1,2,3}, 長谷川哲也^{1,2,3}, Univ. of Tokyo^{1,4,5}, KAST², JST-CREST³, Tsukuba Univ.⁶, A.Suzuki^{1,2,3}, Y.Hirose^{1,2,3}, D.Oka^{1,2,3}, S.Nakao^{2,3}, H.Matsuzaki⁴, K.Fukutani⁵, S.Ishii⁶, K.Sasa⁶, D.Sekiba⁶, T.Fukumura^{1,2,3} and T.Hasegawa^{1,2,3}

E-mail: a-suzuki@chem.s.u-tokyo.ac.jp

【序】 酸窒化タンタル(TaON)はバデライト構造が熱力学的に最安定な化合物で、可視光応答光触媒として注目されている。最近、我々は準安定相であるアナターゼ型TaONの単相エピタキシャル薄膜の合成に成功し、可視光吸収($E_g \sim 2.34$ eV)、高い屈折率($n > 2.7$)及び高いHall移動度($\mu_H \sim 17$ $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$)といった興味深い性質を報告した[1]。アナターゼ型TaONの高いHall移動度は、透明電極や太陽電池などのエレクトロニクスデバイスへの応用を期待させるが、その際にはバンドギャップや屈折率などの光学特性の制御が重要となる。そこで、アナターゼ型TaONと類似の結晶構造と電子配置を持つ酸化物半導体であるアナターゼ型 TiO_2 ($E_g = 3.2$ eV, $n \sim 2.5$ -2.9, $\mu_H \sim 20$ $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$)との固溶体 $\text{Ti}_x\text{Ta}_{1-x}\text{O}_{1+y}\text{N}_{1-z}$ (TTON)の合成を試みた。アナターゼ型TTONは $x=0.52$ -0.87の領域でアンモノリシス法による粉末合成の報告[2]があるが、光学特性については知られていない。今回は、 $x=0.5$ においてエピタキシャル薄膜の合成に成功したので報告する。

【合成手法】 薄膜成長には窒素プラズマ支援パルスレーザー堆積法を用いた。ターゲットとして TiO_2 と Ta_2O_5 をモル比 1:1 で混合した焼結体、基板として $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}(\text{SrAl}_{0.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_3)_{0.7}$ (LSAT)の(100)面を用いた。成長温度($T_S = 600$ -750°C)と堆積速度($r = 22$ -47 nm/h)を製膜パラメータとした。結晶構造はX線回折法により評価した。

【実験結果】 $T_S \geq 700^\circ\text{C}$ で、(001)配向したアナターゼ型TTONの単相のエピタキシャル薄膜を得ることに成功した(Fig.1)。一方で、 $T_S = 600^\circ\text{C}$ ではほとんど結晶化しなかった。また、 $T_S = 750^\circ\text{C}$ において $r = 22$ -47 nm/hの全ての条件で単相薄膜がエピタキシャル成長することを確認した。

$T_S = 750^\circ\text{C}$, $r = 22$ nm/hで作製したアナターゼ型TTONの格子定数をTable 1に示す。面内方向の格子定数 a は、LSAT基板にロックされているためアナターゼ型TaON[1]とほぼ同じ値を示した。一方、面直方向の格子定数 c はアナターゼ型TaON薄膜と TiO_2 の中間の値となった。これは、 Ta^{5+} (0.064 nm)と Ti^{4+} (0.061 nm)、および N^{3-} (0.146 nm)と O^{2-} (0.138 nm)のイオン半径の違いを反映しており、作製したTTON薄膜が TiO_2 とTaONの固溶体であることを支持する。当日は電気特性や光学特性についても議論する。

[1]鈴木他、2012年秋季応用物理学会 13p-C13-2

[2]J.Grins, J. Eur. Ceram. Soc. **17** (1997) 1819.

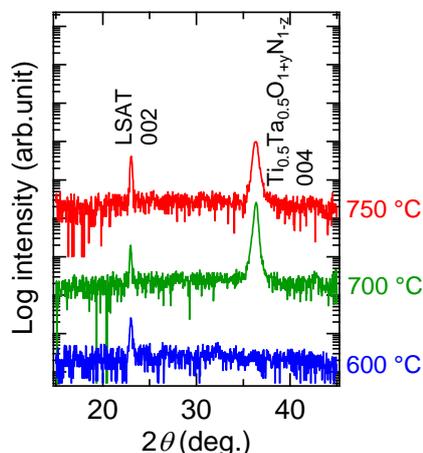


Fig.1. θ -2 θ XRD patterns of the $\text{Ti}_{0.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{1+y}\text{N}_{1-z}$ films grown on LSAT substrate at various T_S

	a (nm)	c (nm)
TaON	0.388	1.031
TTON ($x=0.5$)	0.387	0.990
TiO_2	0.3785	0.9514

Table 1. Lattice parameters of anatase TaON, $\text{Ti}_{0.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{1+y}\text{N}_{1-z}$ (epitaxial thin film), and TiO_2 (bulk).