

パルスレーザー堆積法による P:SnO₂ 薄膜の作製 Fabrication of P-doped SnO₂ thin films by pulsed laser deposition

東大院理 福本通孝, 中尾祥一郎, 廣瀬靖, 長谷川哲也

Univ. of Tokyo, M. Fukumoto, S. Nakao, Y. Hirose, and T. Hasegawa

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

【背景】 SnO₂ は代表的なワイドギャップ酸化物半導体であり、太陽電池の透明電極として広く実用化されている。基礎・応用の両面で重要となる SnO₂ 薄膜の電子輸送特性は、Ta⁵⁺、Sb⁵⁺、Nb⁵⁺といった5価不純物をドーピングすることで制御することができる。近年理論計算により、価数の安定性とFormation energyの面でP⁵⁺がSnO₂のドーパントとして有望であることが示された[1][2]。実験面では、これまで化学気相成長(CVD)法によるP添加SnO₂(PTO)薄膜の作製が報告されている[3]が、そのドーピング効率は比較的低い(~10%)。そこで本研究では、より非平衡での薄膜成長が可能な物理気相成長法であるパルスレーザー堆積(PLD)法を用いてPTO薄膜を作製し、その電子輸送特性を調べた。

【実験】 PTO薄膜はPLD法によりTiO₂(001)基板と熔融石英基板上に作製した。薄膜の結晶構造はX線回折(XRD)法、化学組成はエネルギー分散型X線分光法、電子輸送特性は室温で4端子抵抗とHall効果測定により評価した。

【結果と考察】 XRD測定により、PTO薄膜はTiO₂基板上では(001)エピタキシャル薄膜、熔融石英基板上ではランダム配向多結晶薄膜であることが確認された。図1に、様々な基板温度(T_s)で作製したPTO薄膜のP濃度とドーピング効率を示す。ターゲットのP濃度は3at%である。T_sの上昇に伴い薄膜のP濃度は減少し、一部のPが昇華した事が示唆された。PTO薄膜のドーピング効率はTiO₂基板上、T_s = 350 °Cで最高となった。最適温度T_s = 350 °Cの下、ターゲットのP濃度を変化させてPTO薄膜を作製した。図2に、得られたPTO薄膜の電子輸送特性と文献値(CVD法によるPTO薄膜[3])のP濃度依存性を示す。先行研究を上回るキャリア濃度が得られ、最高値は1.6 × 10²⁰ cm⁻³であった。ドーピング効率についてはP量の減少に伴って100%に漸近する様子が確認された。この振舞いは理論計算の結果と一致している。Hall移動度に着目すると、TiO₂基板上のエピタキシャル薄膜で比較的高い移動度40 cm²V⁻¹s⁻¹が得られた。この結果は、シード層を用いて薄膜の高品質化を図ることで、ガラス基板上においても実用的な輸送特性が得られる可能性を示唆している。

[1] H. Peng *et al.*, *Chem. Mater.* **26**, 4876 (2014).

[2] M. Behtash *et al.*, *J. Appl. Phys.* **117**, 175101 (2015).

[3] Y-S Hsu *et al.*, *J. Electrochem. Soc.* **9**, 1595 (1980).

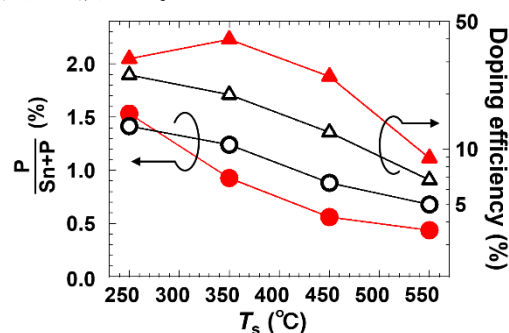


Fig. 1 T_s dependence of P amount (circles) and carrier doping efficiency (triangles) of PTO on TiO₂ (001) (closed symbols) and fused silica (open symbols).

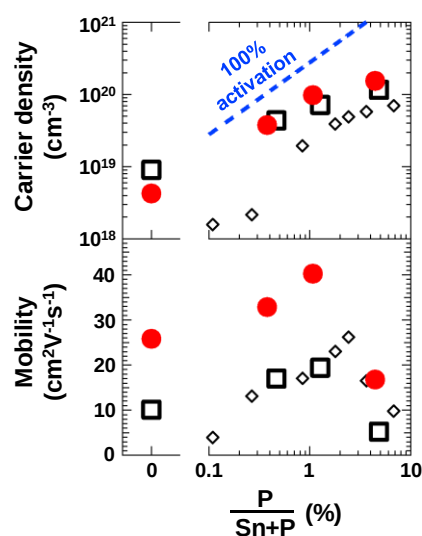


Fig. 2 Transport properties of PTO thin films plotted as a function of the P amount [circles (present study, epitaxial films), squares (present study, polycrystalline films) and diamonds (literature data [3], polycrystalline and amorphous films)]. Dashed line denotes 100% doping efficiency of P.