



## p 型三元系 Sn<sup>2+</sup>酸化物における正孔生成と酸素欠陥生成による電荷補償

### Hole generation and charge compensation by structural defects in p-type ternary Sn<sup>2+</sup> oxides

東理大<sup>1</sup>, 産総研電子光<sup>2</sup>, 産総研ナノ材料<sup>3</sup>

○(DC)三溝 朱音<sup>1,2</sup>, 菊地 直人<sup>2</sup>, 簗原 誠人<sup>2</sup>, 阪東 恭子<sup>3</sup>, 相浦 義弘<sup>2</sup>, 西尾 圭史<sup>1</sup>

Tokyo Univ. of Sci.<sup>1</sup>, Electronics and Photonics RI, AIST<sup>2</sup>, Nanomaterials RI, AIST<sup>3</sup>

°A. Samizo<sup>1,2</sup>, N. Kikuchi<sup>2</sup>, M. Minohara<sup>2</sup>, K.K. Bando<sup>3</sup>, Y. Aiura<sup>2</sup> and K. Nishio<sup>1</sup>

E-mail: naoto-kikuchi@aist.go.jp

透明太陽電池や oxide CMOS など、創エネ・省エネに繋がる革新的なデバイスの実現に向けて実用に資する性能を持つ p 型酸化物半導体の開発が求められている。高い正孔移動度を有する材料として SnO<sub>2</sub>が広く知られているが、SnO は伝導パス中の欠陥である Sn 欠損により正孔生成を行うため、高キャリア密度領域においては不純物散乱の影響により移動度が低下する<sup>[2]</sup>。そのため、単純酸化物である SnO では正孔移動度と正孔濃度を同時に高めることが難しい。そこで我々は、多元系 Sn<sup>2+</sup>酸化物へ材料探索を拡張し、より高い正孔密度の実現が可能な新たな候補材料の探索を行っている。最近、Sn<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub> と SnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> において p 型伝導性を発現させることに初めて成功した<sup>[3,4]</sup>。さらに、その正孔の起源はどちらも Sn<sup>2+</sup>の一部が酸化されて生じた Sn<sup>4+</sup>が共通の部分構造 NbO<sub>6</sub>八面体の中心である Nb サイトに置換することで生成する Sn<sup>4+</sup>置換欠陥であることが明らかとなった。しかし、Sn<sup>4+</sup>置換欠陥の正孔生成効率はそれぞれ異なり、Sn<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub> で二桁以上低い値であった。そこで本研究では、Sn<sup>4+</sup>置換欠陥に加えて電荷補償の要因となる酸素欠陥生成に新たに着目し、p 型伝導性発現における正孔生成機構を比較・検討した結果を報告する。

固相反応法で合成した試料に対し、N<sub>2</sub>をフローした管状炉を用いてポストアニールを行い、この時のアニール温度と N<sub>2</sub>流量を制御することで p 型および n 型伝導性を有する試料を得た。X 線回折パターンの Rietveld 解析と広域 X 線吸収端構造解析法(EXAFS)から、酸素欠陥の生成量について相対的な評価を行った。その結果、Sn<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub> と SnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> のどちらにおいても Sn と結合する酸素サイトから優先的に酸素欠陥が生じているものと考えられた。特に Sn<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 中の部分構造である Sn<sub>4</sub>O 四面体で酸素欠陥量が多く、p 型試料でも多量の酸素欠陥を含むことが明らかとなり、このことが正孔生成効率低下の要因であると考えられた。

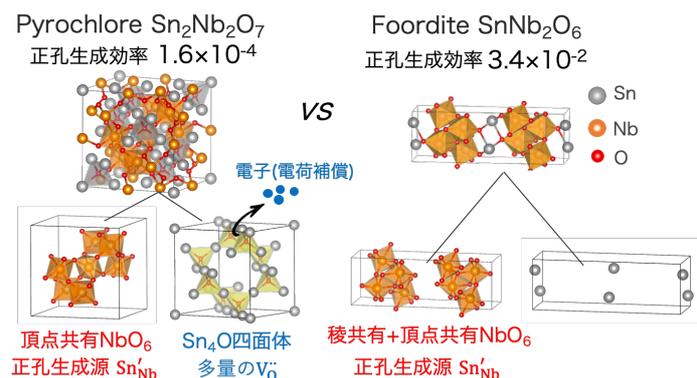


図 Sn<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub> と SnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> のキャリア生成の比較

(謝辞)本研究は JSPS 科研費 JP18K05285, JP18J11854 の助成を受けたものです。

[1] Y. Ogo *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 032113 (2008).[2] M. Minohara *et al.*, *J. Phys. Chem. C* (2019, DOI:10.1021/acs.jpcc.9b11616) *in press*. [3] N. Kikuchi *et al.*, *Phys. Rev. Mater.* **1**, 021601(R) (2017).

[4] A. Samizo *et al.*, *Chem. Mater.* **4**, 27(2019)