

層状結晶半導体 SrTiN_2 の高純度試料合成と光電子輸送特性Synthesis and electro-optical property of high-purity layered SrTiN_2 東工大フロンティア¹, JST さきがけ², 東工大元素セ³ ○渡邊 脩人¹, 白石 明浩¹, ホ シンイ¹,片瀬 貴義^{1,2}, 井手 啓介¹, 松崎 功佑³, 平松 秀典^{1,3}, 細野 秀雄^{1,3}, 神谷 利夫^{1,3}MSL, Tokyo Tech.¹, PRESTO, JST², MCES, Tokyo Tech.³ ○Naoto Watanabe¹, Akihiro Shiraishi¹, Xinyi He¹,Takayoshi Katase^{1,2}, Keisuke Ide¹, Kosuke Matsuzaki³, Hidenori Hiramatsu^{1,3}, Hideo Hosono^{1,3}, Toshio Kamiya^{1,3}

E-mail: n.watanabe@mc.es.titech.ac.jp

【はじめに】 SrTiN_2 は、 SrN 絶縁体層と TiN 伝導層が c 軸方向に交互に積層した層状構造を持ち、バンド計算からバンドギャップが 1.6 eV の直接遷移型半導体で、伝導帯下端は 2 次元の $\text{Ti } 3d_{xy}$ 軌道で形成されると報告されている[1,2]。これは $\text{SrTiO}_3/\text{LaAlO}_3$ ヘテロ界面に閉じ込めた Ti 酸化物層と類似した 2 次元電子ガス (2DEG) 構造をバルク内で内包すると見ることができ、2 次元性に由来する特異な半導体物性が期待できる。しかしながら、これまで SrO 相と TiN 金属相の不純物を多く含んだ試料の合成例しかなく、バンドギャップも 3.2 eV と理論計算値と大きく異なっている。また、電気特性は抵抗率のみ報告されているが縮退伝導を示しており、 SrTiN_2 本来の半導体物性は明らかにされていない[1,3]。本研究では、出発原料及び窒素源を用いた合成プロセスを検討することで、高純度 SrTiN_2 の合成に成功し、光電子輸送特性の評価を行ったので報告する。

【実験方法】 SrTiN_2 バルク多結晶は固相反応法により合成した。市販の SrN_x 試薬は酸化物の異相を含むため、高純度 Sr 金属を窒素/水素中で熱処理して SrN_x と SrNH を合成し、出発原料として用いた。次いで、 $\text{O}_2 < 1 \text{ ppm}$ 以下・露点 -110°C 以下の循環式グローブボックス内で、 $\text{Sr}:\text{Ti}$ 比が 1:1 になるように TiN と混合し、プレスした混合粉体を、窒素源としてアジ化ナトリウムと一緒にステンレス管内に封入して熱処理を行った。熱処理後にグローブボックス内で開封し、 Ar 封入したカプセルを用いて、大気暴露せずに X 線回折測定を行った。バルク試料の光電子輸送特性も大気非暴露環境下で測定した。

【結果】最適化した温度 1200°C で 12 時間熱処理した SrTiN_2 バルク焼結体の XRD パターンを図(a)に示す。回折ピークの殆どが SrTiN_2 相で帰属でき、 SrTiN_2 相が 97 mol% (SrO が 3 mol%) のバルク試料を合成することができた。拡散反射率測定から得られたバンドギャップは 1.7 eV であり、第一原理計算により見積もった直接ギャップ 1.6 eV と整合する結果であった。当日は、高純度 SrTiN_2 の光電子輸送特性についても報告する。

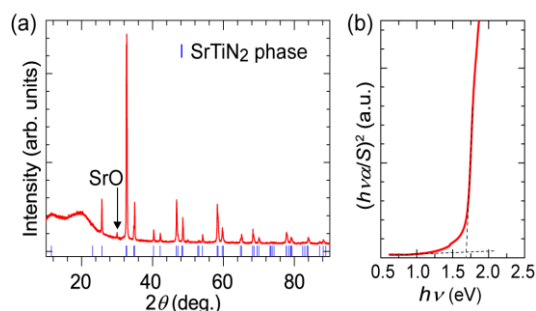


Figure: (a) XRD pattern and (b) Diffuse reflectance of SrTiN_2 bulk at room temperature.

【参考文献】 [1] D.H. Gregory et al., Inorg. Chem. 35, 7608 (1996). [2] I. Ohkubo et al., Chem. Mater. 26, 2532 (2014). [3] H. Luo et al., J. Am. Chem. Soc. 130, 15224 (2008).