

W:SnO₂ 薄膜における高移動度の起源Origin of high mobility in W-doped SnO₂ thin films

東大院理¹, 名工大², UTTAC³, 福本通孝¹, 廣瀬靖¹, 中尾祥一郎¹, 木村耕治², 林好一², 杉澤悠紀³, 関場大一郎³, 長谷川哲也¹

Univ. of Tokyo¹, Nagoya Inst. of Technol², UTTAC³, M. Fukumoto¹, Y. Hirose¹, K. Kimura², K. Hayashi², Y. Sugisawa³, D. Sekiba³, and T. Hasegawa¹

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、太陽電池用の透明電極として広く実用化されている。特に、高いキャリア移動度を示す SnO₂は近赤外光に対して透明なことから次世代太陽電池への応用が期待される。最近、SnO₂において高い移動度(μ_{H})と広範囲のキャリア濃度(n_{e})制御を同時に実現するには、伝導帯下端への影響が小さな *d* ブロック元素 (Ta 等) のドーピングが有効なことが第一原理計算によって提案された[1]。実際に我々のグループでは、Ta:SnO₂ エピタキシャル薄膜において、理論上限となる高 μ_{H} を達成している[2]。一方、Ta とおなじく *d* ブロック元素である W をドーピングした SnO₂(W:SnO₂)は、多結晶薄膜において Ta:SnO₂ 多結晶薄膜に匹敵する高 μ_{H} を示す[3]が、W の価数や粒界の影響が不明なため、高 μ_{H} の起源は未解明である。そこで本研究では、W:SnO₂の高品質なエピタキシャル薄膜を用いて電子輸送特性を詳細に解析した。

【実験】 PLD 法を用いて W:SnO₂ 薄膜を TiO₂ (001)基板上に作製した。X 線回折により(001)配向したエピタキシャル薄膜の成長を確認した。薄膜中の W はラザフォード後方散乱とエネルギー分散型 X 線分光法で定量し、蛍光 X 線ホログラフィー (XFH)により Sn サイトを置換していることを確認した。電子輸送特性は 4 端子抵抗と Hall 効果測定により評価した。

【結果と考察】 図 1 に、室温における n_{e} の W 濃度依存性を示す。1e⁻/W⁵⁺を仮定した n_{e} (破線)は、 $n_{\text{e}} \leq 2.0 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ の範囲で実験値とよく一致した。また、W:SnO₂ 薄膜の μ_{H} は、 $n_{\text{e}} \geq 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ において W⁵⁺を仮定した理論的な上限値 μ_{cal} (フォノン散乱の項 μ_{at} およびイオン化不純物散乱の項 μ_{is} のみを考慮した移動度。 $\mu_{\text{cal}} = (\mu_{\text{at}}^{-1} + \mu_{\text{is}}^{-1})^{-1}$ [2])に匹敵する高い値となり(図 2)、W が強い散乱源となる W⁶⁺ではなく、W⁵⁺として膜中に存在していることが示された。以上の結果から、W:SnO₂ は *d* ブロック元素である W が Sn サイトに理想的に置換し、1 電子ドナーである W⁵⁺として働くことで高 μ_{H} を示すと考えた。当日は W:SnO₂ の電子状態に関する第一原理計算の結果と併せて議論を行う予定である。

[1] B. A. D. Williamson *et al.*, Chem. Mater. **32**, 1964 (2020). [2] M. Fukumoto *et al.*, Sci. Rep. **10**, 6844 (2020). [3] S. Nakao *et al.*, Phys. Status Solidi C **8**, 543 (2011).

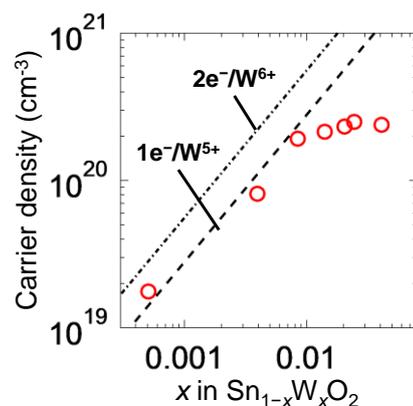


Fig. 1 Room temperature n_{e} as a function of x for the W:SnO₂ films.

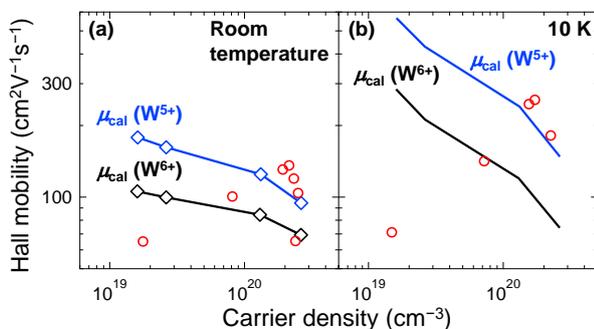


Fig. 2. μ_{H} as a function of n_{e} for the W:SnO₂ films (red circles) at (a) room temperature and (b) 10 K. Solid lines (μ_{cal}) represent calculated μ_{H} . (See main text for details.)