

# 大学院教育支援機構（DoGS）海外渡航助成金 報告書

## Outcome report

計画名 Plan	r-Ge <sub>x</sub> Sn <sub>1-x</sub> O <sub>2</sub> における電気特性・電子構造の解明
氏名 Name	高根 倫史
研究科・専攻・学年 Graduate school/Division/Year level	工学研究科・材料化学専攻・博士後期課程 2 回生
渡航国 Country	フランス
渡航日程 Travel schedule	2023 年 7 月 9 日 ~ 2023 年 7 月 24 日

- ページ数に制限はありません。No limits on the number of pages
- 写真や図なども組み込んでいただいて結構です。You can include pictures or illustrations.
- 各項目について具体的に記述してください。Please fill in each item specifically.
- 日本語または英語で記載ください。Please use Japanese or English.

### 渡航計画の概要 Outline of the travel plan

次世代パワー半導体材料の 1 つとして注目を集めるルチル型 Ge<sub>x</sub>Sn<sub>1-x</sub>O<sub>2</sub> (r-Ge<sub>x</sub>Sn<sub>1-x</sub>O<sub>2</sub>) における電気伝導機構を明らかにすることを目的として、パリ=サクレ大学 UVQC を訪問し、Dumont 教授、Chikoidze 研究員、Chi 博士課程学生とともに実験、議論を行った。

この r-Ge<sub>x</sub>Sn<sub>1-x</sub>O<sub>2</sub> は、r-GeO<sub>2</sub>, r-SnO<sub>2</sub> による混晶（固溶体）であり、4.0 eV 以上バンドギャップを有する超ワイドバンドギャップ半導体である。Sn 含有量の高い領域では良好な n 型伝導性を示す。Ge 含有量の高い領域では、pn 両型ドーピングの可能性が理論計算により示唆されている。しかしながら、上記の Sn 含有量の高い領域における n 型伝導機構や、Ge 含有量の高い領域における電気特性に関する知見は、現状得られていない。そこで今回、従来の装置では測定が困難な高抵抗な試料や低移動度の試料を測定することが可能であるオリジナルの高インピーダンス測定装置を用いて r-Ge<sub>x</sub>Sn<sub>1-x</sub>O<sub>2</sub> 試料について比抵抗、Hall 効果の温度依存性を測定し、r-Ge<sub>x</sub>Sn<sub>1-x</sub>O<sub>2</sub> の電気特性を考察した。

### 成果 Outcome

今回の測定から、r-Ge<sub>x</sub>Sn<sub>1-x</sub>O<sub>2</sub> における Ge 含有量の増加に対する電気特性の変化が明らかになり、そこから電気伝導のメカニズムが示唆された。

Ge 含有量の増加により、アンドープ状態で室温におけるキャリア密度が増加し、移動度が減少することが分かった。比抵抗値の温度依存性から Ge 含有量の増加により、半導体的な電気伝導（温度減少による比抵抗値の増加）から縮退した金属的な電気伝導（温度減少による比抵抗値の減少）への変化が明らかになった。この結果は、Ge 含有量の増加によって、意図せずに混入するドナーの密度が増加し、それによってドナー準位がバンド的な構造になっていくこと、すなわち Mott 金属・絶縁体遷移のような現象が生じていることを示唆するものである。

全ての r-Ge<sub>x</sub>Sn<sub>1-x</sub>O<sub>2</sub> 試料について、温度依存 Hall 効果測定により求めたキャリア密度および移動度の温度依存性から、低温（およそ 200K 以下）および高温（およそ 400K 以上）において移動度が急激に減少すること、低温付近でキャリア密度が見かけの上で上昇することが明らかになった。この結果は、低温付近でホッピング伝導(不純物バンド伝導)の寄与が大きくなること、高温付近で光学フォノンに加えて、いわゆる「Alloy disorder」に起因する合金散乱の寄与が大きくなることを示唆するものである。

一方で、より高温な温度領域 (>500K) において、電極として用いる Ti と r-Ge<sub>x</sub>Sn<sub>1-x</sub>O<sub>2</sub> 薄膜の界面において深刻なダメージが生じることが明らかになった。このような現象は酸化ガリ

ウムなどの他の酸化物半導体においもみられる現象であり、同様なメカニズムにより生じた現象であると考えられる。

## **今後の展望** Prospects for the future

この結果をもとに、今後は以下のような展望を考えている。またその後さらに研究を行い、電気特性をはじめとする  $r\text{-Ge}_x\text{Sn}_{1-x}\text{O}_2$  の基礎物性の解明が期待される。

これまで研究から  $r\text{-Ge}_x\text{Sn}_{1-x}\text{O}_2$  試料を酸素アニールすることによって、キャリア密度が減少することが明らかになっている（このとき構造特性に大きな変化は見られない）。したがって、理論計算による先行研究と併せ、現在以下のような可能性を考えている。

- ① 水素および水素と欠陥の複合体が電気伝導におけるキャリア源になること。（※ $r\text{-Ge}_x\text{Sn}_{1-x}\text{O}_2$  試料作製に用いるミスド CVD 法では、水素が薄膜内に高密度に混入することが知られている。また、ZnO など他の酸化物半導体において、意図せずに混入した水素がキャリア源になることが示唆されている。）
- ② Ge 含有量の増加にともなう結晶性の低下、「Alloy disorder」の増加により、水素と欠陥の複合体の増加が増加し、キャリア密度が増加すること。

今後は、これらを同定するために、SIMS などさらなる詳細な分析が必要であると考えている。その際、その他の欠陥や不純物がキャリア源になっている可能性も考慮し、丁寧な分析が不可欠である。