

2019年4月1日

若手研究者海外挑戦プログラム報告書

独立行政法人 日本学術振興会 理事長 殿

受付番号 201880051
氏名 福本通孝
(氏名は必ず自署すること)

若手研究者海外挑戦プログラムによる派遣を終了しましたので、下記のとおり報告いたします。
なお、下記記載の内容については相違ありません。

記

1. 派遣先: 都市名 ライプツィヒ (国名 ドイツ)
2. 研究課題名(和文): 等方性 s 軌道をキャリア移動路とする高移動度 p 型透明導電酸化物薄膜の作製
3. 派遣期間: 平成 30 年 4 月 1 日 ~ 2019 年 3 月 13 日 (347 日間)
4. 受入機関名・部局名: ライプツィヒ大学 フェリックス・ブロッホ研究所
5. 派遣先で従事した研究内容と研究状況 (1/2 ページ程度を目安に記入すること)

透明導電性酸化物(TCO)は、太陽電池、液晶ディスプレイなどの透明電極として重要な実用材料である。これまで、酸化亜鉛や酸化インジウムといった電子をキャリアとする n 型 TCO は精力的に研究され、良好な電気特性を示す薄膜が得られている。対して正孔をキャリアとする p 型 TCO は研究例が少なく、電気特性の面で n 型 TCO に大きく劣るのが現状である。そこで、p 型透明導電物質の薄膜作製・評価からデバイス作製に至るまで広い分野で顕著な成果を挙げている Marius Grundmann 教授の研究室を派遣先として選び、p 型 TCO 薄膜の作製と物性評価に取り組んだ。対象とする物質は、近年理論計算により良好な p 型透明導電性が予想された Sn₅P₂₀₁₀とした。

まずパルスレーザー堆積法を用いて Sn₅P₂₀₁₀ 薄膜の作製を試みた。薄膜の原料となるターゲットとしては、蒸着基板上での P の再蒸発を考慮し、P リッチである Sn₂P₂₀₇ 焼結体を用いた。蒸着基板の検討について、過去の粉末合成の報告によると Sn₅P₂₀₁₀ は対称性の低い三斜晶構造を持つため、適当な単結晶基板が存在しない。そこで、Sn₅P₂₀₁₀ との格子整合が比較的よい Y₂O₃ 層をガラス基板と Sn₅P₂₀₁₀ 薄膜の間に挿入し、Sn₅P₂₀₁₀ 薄膜の蒸着を行った。X 線回折により、得られた薄膜が不純物を含まない 001 配向 Sn₅P₂₀₁₀ 薄膜であることが分かった。

次に作製した薄膜の詳細な評価を行った。X 線光電子分光法により薄膜の組成を分析したところ、薄膜の組成がほぼ量論的であることが分かった。紫外可視分光測定を行った所、薄膜は可視光領域においておよそ 80% という高い透明性を示した。薄膜の構造について、X 線回折では薄膜の平均的な構造の決定しかできないため、現在透過電子顕微鏡による薄膜断面のナノスケール観察を試みている。得られた Sn₅P₂₀₁₀ 薄膜は高抵抗ないし半絶縁性を示した。

6. 研究成果発表等の見通し及び今後の研究計画の方向性 (1/2 ページ程度を目安に記入すること)

今回の派遣により得られた研究成果については、2019 年度中を目途として海外論文誌へ投稿する予定である。

本研究で得られた Sn₅P₂₀I₁₀ 薄膜は高い抵抗率を示し、電気特性の測定が困難であった。抵抗率はキャリア濃度とキャリア移動度の積の逆数に比例するため、高抵抗の原因として推測されるのは低キャリア濃度と低移動度である。キャリア濃度のコントロールには不純物ドーピングが有効である。移動度については、今回得られた多結晶薄膜中に多く存在する粒界が移動度の大きな低下要因になっていると考えられる。以上を踏まえ、今後は薄膜の高品質化による粒界低減、不純物を用いた正孔ドープ、p 型伝導の確認に取り組む。Sn₅P₂₀I₁₀ 層の結晶性は Y₂O₃ バッファ層の結晶性に大きく影響されるため、Y₂O₃ バッファ層の製膜条件の最適化や、Y₂O₃ と格子整合のよい YSZ 基板上の製膜を考えている。正孔注入は Sn²⁺、P⁵⁺、O²⁻ のそれぞれのサイトへ不純物をドープすることで行う。この中で、Sn⁺に似た電子構造を持つ元素は少ないため、Sn²⁺サイトへのドープは難しいと予想される。従って P⁵⁺サイトと O²⁻サイトへのドープが有望である。Sn₅P₂₀I₁₀ 薄膜の高移動度化、高キャリア濃度化による低抵抗化を達成したのち、ホール効果・ゼーベック効果の測定を行い、p 型伝導を確認する予定である。

光学特性について、本派遣では紫外可視分光による透過率・反射率測定と分光エリプソメトリー測定を行った。紫外可視分光法により、得られた薄膜が高い透明性を持つことは確認できたが、分光エリプソメトリーについては測定結果のフィッティングが失敗したため、具体的なバンドギャップの値や吸収係数が依然不明のままである。フィッティングが失敗した原因として、Sn₅P₂₀I₁₀ が三斜晶という比較的特殊な結晶構造をもつこと、薄膜の面内方位がランダムでありモデルの選定が難しいことの 2 つが挙げられる。今後は基板と薄膜の面方位関係が明らかなエピタキシャル薄膜の作製と、適切なフィッティングモデルの探索を派遣先と共同で行う予定である。

7. 本プログラムに採用されたことで得られたこと (1/2 ページ程度を目安に記入すること)

本プログラムでおよそ 1 年間海外の研究室に籍をおいて研究する機会を頂き、研究面・生活面とともに多くの学びがあった。研究面では、日本との研究体制の違い、そして欧州各国どうしの垣根の低さを感じた。私の研究対象である透明導電酸化物薄膜では、主に薄膜作製、光学特性評価、電気特性評価、デバイス評価といった実験ステップが存在する。派遣先の研究室では 1 人が全てのステップを行うのではなく、各ステップを違う研究グループが担当する分業体制が敷かれていた。大掛かりな測定装置にはそれぞれ技官がついており、効率的に研究する環境が整えられていた。私は薄膜作製の担当だったが、測定等で体を動かす必要がないぶん、その余力を薄膜作製や実験の計画に回すことができた。一方で、自分で測定装置を動かしてみないと分からないこと・見えない事も多くあるため、色々な経験ができない点はこの分業体制の欠点であると感じた。欧州各国の垣根の低さについて、派遣先では毎週水曜日に欧州内の様々な大学から教授を招聘してセミナーが行われていた。このセミナーが共同研究の芽となることも少なからずあったため、地理的な近さに起因して他国の研究者とのネットワークを広げる機会が多いことは大きなアドバンテージであると強く感じた。本派遣でドイツの研究室とのコネクションを築いたことで、欧州の様々な研究室とつながる大きなきっかけをつかめたのではないかと思っている。

普段の生活では、特に言語面において海外で生活することの難しさを感じた。ドイツではある程度英語が通じるのだが、地元のスーパーマーケットやレストランではドイツ語しか喋れない店員も多かった。そんな中でも片言のドイツ語を駆使して何とかやりくりした経験は、もともと自分の中にあった他言語に対する苦手意識を幾分か薄れさせてくれたように思う。また、1 年間生活する中で、全く違う分野の研究者と交流する機会にも恵まれた。話を聞くだけでも普段の研究とはまた違った知的好奇心が刺激され、非常に良い経験となった。