

公益財団法人矢崎科学技術振興記念財団
奨励研究助成 成果報告書

公益財団法人矢崎科学技術振興記念財団
理事長 殿

研究助成期間終了にあたり、下記の通り成果を報告します。

2025 年 4 月 30 日

氏名 相馬 拓人

所属 東京科学大学

職位 助教

1. 申請研究の題目

“複合アニオンアモルファス半導体”の実現

2. 研究の目的

酸化物、窒化物などと呼ばれるように、この世の物質の性質の大枠はアニオンが決定する。その理由は、物質の特性は金属カチオンとアニオンの化学結合性で決まり、それはカチオン種を変えても大きくは変わらないからである。そのため、材料では一般に求める応用に合わせたアニオンがまず選択される。

アモルファス半導体は重要な電子材料の一つであるが、これまでのアモルファス半導体材料の開発の歴史を俯瞰すると、アニオンとの結合性により異なった特性が現れそれぞれに適する応用がなされてきた歴史的経緯がある。しかしながら、それぞれの物質固有のデメリットも持ち合わせており、それが用途を制限している実情もある。そこで本研究は、複数のアニオンを共存させることで化学結合性の縛りを超えた新しい“複合アニオンアモルファス半導体”を創製することを目的に研究を行った。

3. 研究の内容

次世代ワイドギャップ半導体として期待されている Ga の酸化物[*J. Appl. Phys.* **124**, 220901 (2018).]に着目して研究を行った。Ga 酸化物のアモルファス半導体化 (a-Ga-O) は既に実現されている[*NPG Asia Mater.* **9**, e359 (2017), *Appl. Phys. Rev.* **11**, 011418 (2024).]。そこで、この物質に対し硫黄を混合させた Ga-O-S アモルファス半導体 (a-Ga-O-S) を合成し、その半導体特性を調査した。

4. 研究の成果と結論、今後の課題

酸素と硫黄を混合させた薄膜を合成する技術は単発的な数例しか存在しない[*Adv. Electron. Mater.* **6**, 1900602 (2020).]。そこで、本研究ではまず Ga-O-S 薄膜を作製する合成技術開発を行った。パルスレーザ堆積 (PLD) 法を採用し、原料として GaS 焼結体を用い、製膜中に RF プラズマソースによりラジカル化した酸素を供給することで酸素と硫黄を混合させた薄膜を実現した [Fig.1 (a)]。本手法で合成を行うと、系統的に色が変化した薄膜が得られる [Fig.1 (b)]。この色の変化は酸素と硫黄の組成が連続的に変化していることに起因している。蛍光 X 線分析により評価した Ga 元素に対する S 元素の比 ($[S] / [Ga]$) は、供給する酸素の圧力増加に対して系統的に減少しており、a-Ga-S から a-Ga-O まで制御して合成できることが明らかになった [Fig.1 (c)]。本合成では酸素を O_2 ガスではなくラジカル O^* として供給することが必要不可欠であることもわかった。不適切な合成プロセスでは組成制御が困難であるだけでなく、 O_2 ガスなどが内部に含まれた低密度な薄膜が成長し、各種特性が著しく低下することがわかった。一方で、最適化されたプロセ

スで作製した a-Ga-O-S 薄膜は組成変化に対して理想的な密度・バンドギャップ変化が起こっていることが確認された[Fig.1 (d)]. 特に, $[S] / [Ga] = 0 \sim 0.7$ の領域ではほぼ透明であり, 広い組成範囲で透明半導体として利用できることを意味している。またその薄膜を使用し電界効果トランジスタを試作すると, 明確な n 型トランジスタ特性が得られた。その n 型伝導性は S 組成の上昇に従い抑制されることも明らかになった。

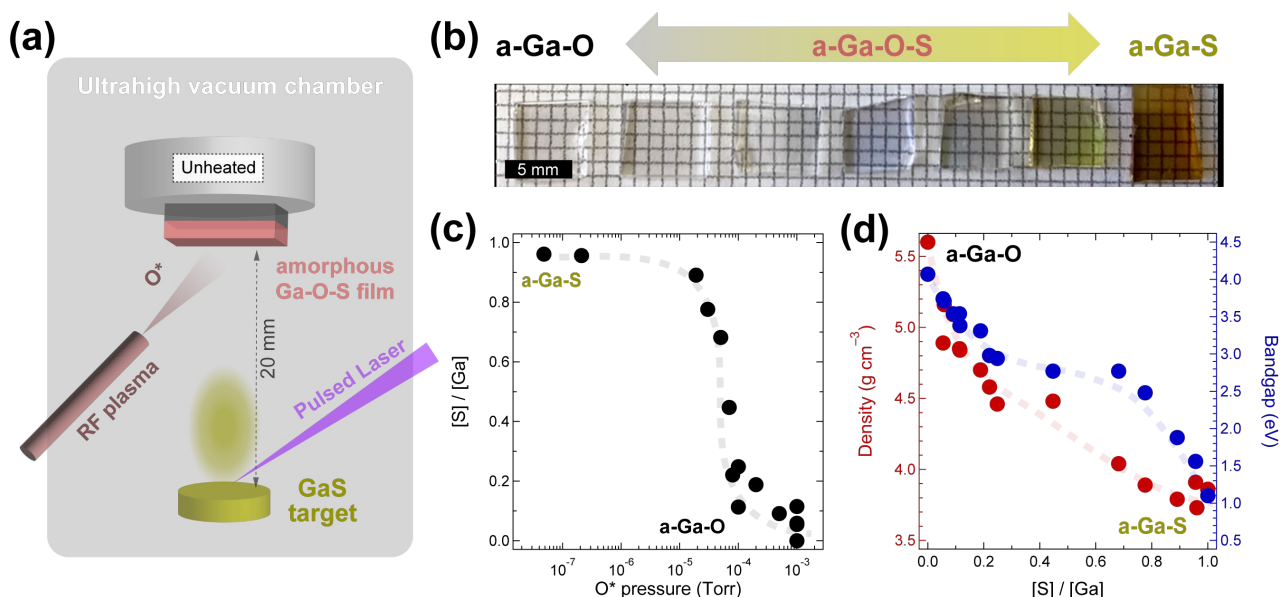


Fig. 1 (a) a-Ga-O-S 薄膜の作製方法。(b) a-Ga-O-S 薄膜の写真。(c) Ga に対する S の組成 ($[S] / [Ga]$) の O^+ 圧力依存性。(d) a-Ga-O-S 薄膜の密度とバンドギャップ。

5. 成果の価値

5-1. 学術的価値

複数種のアニオンを含む複合アニオン物質は近年に開拓が進んだ物質群であり[Nat. Commun. 9, 772 (2018).], 複合アニオン物質のアモルファスは殆ど合成されていなくそれらの特性はまだ殆ど明らかになっていない。しかし, 合成プロセス中で急冷を経る気相薄膜合成は本質的にアモルファス合成に利点があり, 有効活用できる可能性がある。本研究では複合アニオンアモルファス一般に適応できる合成法が確立した。本手法で様々な複合アニオンアモルファスの合成が実現すれば, 半導体に限らず新しい物質群としての機能性や学理を開拓できる可能性がある。

5-2. 社会的価値

アモルファス半導体はディスプレイを中心とする産業を支える重要な物質であり, 巨大なマーケットを形成している[Trans. Electr. Electron. Mater. 21, 235 (2020).]. その一方で, n 型物質の近年の高性能化と比べて p 型物質は未だ物質探索途中にある[Nature 629, 798 (2024).]. 実際アモルファス Ga 酸化物で n 型伝導を抑制し p 型伝導を実現する試みは近年活発に行われている[IEEE Trans. Device Mater. Reliab. (2025).]. 本研究のようにアニオンを混ぜるというアプローチで役割を分担することで, 透明・高移動度・pn 制御が共存できるアモルファス半導体を実現できる可能性がある。

6. 研究成果

In preparation.

以上