

ワイドギャップ半導体 IGZO と ZnO 中の格子間水素の電子状態

小嶋健児, 平石雅俊, 岡部博孝, 幸田章宏, 門野良典 : KEK 物構研及び J-PARC MLF

Andreas Suter, Thomas Prokscha, Zahar Salman : PSI LMU

大橋直樹 : 物材機構

井手啓介, 松石 聡, 神谷利夫, 雲見日出也, 細野秀雄 : 東工大元素戦略

In-Ga-Zn-O (IGZO) と ZnO はエネルギーギャップの大きな酸化物半導体である。前者は、アモルファス膜でも半導体として機能し、既に様々な家電製品のディスプレイ駆動用透明半導体として使われている。製品として使うにあたって、薄膜トランジスタ (TFT) のスイッチ特性や光照射下での安定性が重要であるが、水素がその特性に関して重要な役割を果たすことが明らかになっている。最近の赤外透過スペクトルの振動モード解析では、酸素欠損に水素原子が2つヒドリドイオン (H^-) となって入り、深い準位を形成していることが示されている[1]。また IGZO は、水素プラズマ処理によって n-type ドープされることが知られており、電極形成に利用されている。

我々は、IGZO および ZnO において水素が取るべき位置や荷電状態を、加速器から得られる正ミュー粒子 (μ^+) を用いたミュオンスピン緩和 (μSR) 法で調べた。IGZO バルク多結晶と ZnO 単結晶は J-PARC 施設、IGZO アモルファス薄膜試料はスイスの PSI-LEM 施設を用いた。その結果、IGZO (絶縁体組成) 中でミュー粒子は全て反磁性状態 (閉殻の H^+ または H^-) を取ることが明らかになった。前者は電気陰性度の大きな酸化物イオンと O-H 状の結合を生成していると思われ、後者は周辺原子と結合を作らずに孤立した状態にあると思われる。多結晶でもアモルファス膜でもこの結果は変わらない。IGZO 中の核磁気モーメントを持つ核種は In と Ga で、これらが作る双極子磁場と観測された核磁場の大きさの比較から、ミュー粒子の位置は IGZO の ZnO ブロック層中で、第一原理計算が示唆する Zn-O ボンド中心位置と矛盾しないことが示された。

IGZO と同じ局所構造を持つ ZnO においては、単結晶試料が入手でき、印加磁場の結晶軸に対する方位から、超微細構造定数の対称性を測定することが J-PARC MLF でできるようになった。これにより、ミュー粒子の形成する浅い水素状態の位置を実験的に決定した。この対称性は、ZnO ボンド中心サイトとアンチボンドサイトと一致し、同じ局所構造を持つ IGZO の水素位置と、おそらく同じことが示唆された。

IGZO 中のミュー粒子が反磁性状態を取ることは、この物質で水素が電子ドナーとして振舞うことの直接的証拠といえる[2]。これまで元素戦略の枠組みで、C12A7 エレクトライド[3]など、機能性酸化物の水素状態を測定して来たが、これらを通じて酸化物中の水素の役割に関する一般的な理解を目指している。

参考文献

[1] J. Bang, S. Matsuishi and H. Hosono, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 232105 (2017).

[2] K.M. Kojima *et al. preprint* (2017).

[3] M. Hiraishi, K. M. Kojima, M. Miyazaki, I. Yamauchi, H. Okabe, A. Koda, R. Kadono, S. Matsuishi, and H. Hosono. *Phys. Rev. B.*, **93**, 121201(R), (2016).