

論文審査の結果の要旨

氏名 ホアン ゴ克蘭フン

透明導電体は、高い電気導電性と高い可視光透過率を併せ持つ物質であり、液晶パネルなど広範囲で実用に供されている。透明導電体の主流はITO (Snドープ In_2O_3) であるが、近年、Inの枯渇が問題視されており、ITO代替物質への要求が高まっている。アナターゼ型のNbドープ TiO_2 (TNO) は有望なITO代替材料の一つであり、実用的な合成プロセスの確立が急務とされている。本論文では、ガラス上に低抵抗TNO薄膜を作製する方法として、アモルファス前駆体を結晶化させる手法に着目し、アモルファスTNOの結晶化過程の解析、膜内組織構造と合成条件との関係、抵抗率を制限する要因について調べ報告している。

本研究は以下の6章より構成されている。

第一章は序論であり、本論文の背景および目的が述べられている。この章では、まず透明導電膜の電導機構、歴史と応用に関する研究を概観し、次世代透明導電膜の開発動向についても述べている。さらに、TNOに関する既往の研究をまとめ、現在の課題について議論している。TNOは、従来型の透明導電膜には見られない特徴を有しており、有望な代替材料であるが、導電性の面では実用レベルに達していないと指摘している。また、大面積化に対応できるスパッタ法は有望な合成手法であるが、結晶粒径の改善が課題であると述べている。

第2章は実験手法とその原理の説明である。TNO多結晶薄膜の合成には、RFスパッタ法により作製したアモルファス薄膜を還元雰囲気下でアニール処理し、結晶化させる手法を用いているが、本章では、スパッタ法の機構と特徴を解説するとともに、評価手法であるホール効果、偏光顕微鏡 (POM)、走査型電子顕微鏡 (SEM)、X線解析 (XRD)、X線反射率法 (XRR) などの原理と、そこから得られる情報について詳説している。

第3章はアモルファスTNOの結晶化過程について述べている。上記の薄膜作製方法では、アニール中の結晶化過程は非常に重要であるが、メカニズムの詳細な検討はなされていない。本章では、高温XRDを用いて結晶化速度を求め、これをJohn-Mehl-Avrami (JMA) 式を用いて解析して、アモルファスTNOの結晶化機構について調べている。JMA式から見積もった反応次数 n は2.0から2.7の間にあることから、結晶化過程は二次元の結晶核飽和過程であると結論している。またこの結果より、結晶化後の粒径は、アモルファス中の結晶核の密

度に依存すると指摘している。

第4章はアモルファス TNO の微細構造について述べている。アモルファスの微細構造は Thornton モデルで説明できることを指摘し、成膜圧力 P の増加に従ってアモルファス薄は多孔質になると述べている。一方、 P の減少につれ結晶化後の粒径は大きくなることから、斜影効果により形成された空隙などの欠陥が結晶核となり、その密度が結晶粒径を規定していると推論している。さらに、同様の傾向はドーピングしていない TiO_2 にも見られ、Thornton モデルは Nb 濃度に依存しないと述べている。

第5章は抵抗率の改善法について述べている。低抵抗を実現するには、結晶粒の拡大が必要であるが、低圧下で作製した粒径の大きい薄膜でも抵抗率の低下はみられないと報告している。低圧下で作製した薄膜からは Ar 不純物が検出されたことから、高エネルギー粒子によるプラズマダメージに加え、Ar 不純物による電子散乱が抵抗を上昇させる原因となっていると推論している。そこで、高エネルギー粒子の割合が小さい高圧下で斜影効果を抑制するため、斜め方向飛来粒子をフィルターで遮蔽する方法を提案している。また、実際にフィルターを用いて成膜を行い、高圧下で作製した薄膜でも劇的に結晶粒径が増大することを見出している。抵抗率も $5 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$ を実現し、この値は実用化レベルに達していると評価している。

第6章は結論と総括である。

以上のように、本論文は、アモルファス TNO が結晶化する過程の速度論的解析ならびにアモルファス内部の構造観察を基に、低抵抗 TNO 多結晶薄膜を作製する方法を提案するものである。これらの研究は理学の展開に大きく寄与する成果であり、博士（理学）に値する。なお本論文は複数の研究者との共同研究であるが、論文提出者が主体となって行ったものであり、論文提出者の寄与は十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。