

In フリー透明導電膜の伝導度向上と安定性向上に向けた新技術開拓

塚崎 敦

【概要】

新規透明導電性酸化物として注目を集めるペロブスカイト型スズ酸化物 BaSnO_3 を対象に、透明導電膜応用に向けた導電性向上のための基盤技術の構築に取り組んだ。 $\text{SrTiO}_3(001)$ 基板上に成長した $\text{La}:\text{BaSnO}_3$ 透明導電膜において、格子不整合を緩和するバッファー層と高温アニール処理を導入することで、転位に由来する電子移動度低下の問題を大きく改善できることを見出した。同様の手法で作製した絶縁性 BaSnO_3 薄膜をチャンネルとする電界効果トランジスタを作製し、室温で良好なトランジスタ動作を観測した。さらに、ワイドバンドギャップ $(\text{Sr},\text{Ba})\text{SnO}_3$ を用いたチャンネル界面のバンドギャップ制御がデバイス特性の向上に有効であることを明らかにした。これらの成果により、 BaSnO_3 の透明導電膜および透明トランジスタの開発が加速すると同時に、Sn 系酸化物をベースにした新規界面電子系の物性研究が進展するものと期待される。

【前書き】

フラットパネルディスプレイや太陽電池、発光ダイオード(Light Emitting Diode: LED)などの光学デバイスの急速な普及に伴い、電極部材として用いられる透明導電膜の消費が急増している。透明導電膜は、可視光透過性と高い電気伝導性 ($\sigma > 10^3 \text{ S/cm}$) を両立する必要があるため、ワイドギャップ酸化物に電子キャリアを供給する不純物をドーピングすることで作製されている。Sn ドープ In_2O_3 (通称 ITO) は、現在最も多く用いられている物質であるが、インジウム原料の価格高騰と輸入依存の資源供給などの問題から、代替物質の開発が求められている。高い電気伝導度の実現には、高い電子移動度が不可欠であり、電子有効質量の小さい伝導帯を有する物質がその候補となる。これまでも長い研究の歴史があり、酸化亜鉛 (ZnO) や酸化スズ (SnO_2) などの二元系酸化物を中心に広く物質探索が進められている[参考文献 1]。

ドーピングにより酸化物に伝導性を付与する技術は、二元系酸化物だけでなく、銅酸化物高温超伝導体の母物質であるペロブスカイト型酸化物 ABO_3 などの複数の陽イオンを含む酸化物にも適用できる。一般にペロブスカイトでは、 B サイト元素の軌道が電気伝導を担うため、 A サイトにドーピングを施すことで、電子輸送に対する不純物ポテンシャルの影響を抑制することができる。また、 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ など B サイト陽イオンの価数が異なる物質を積層したヘテロ接合を形成することで、電荷不整合界面でのドーピング効果を用いて伝導性を発現させることもできる[2]。さらに、ペロブスカイトには強磁性、強誘電性、高温超伝導など多彩な物性を示す物質が豊富に存在するため、新規素子機能を探索する上で拡張性が高いなどのメリットがある。

このような背景の下、2012 年にペロブスカイト Sn 酸化物である La ドープ BaSnO_3 ($\text{La}:\text{BaSnO}_3$) の単結晶において、酸化物としては極めて高い室温電子移動度 $320 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ が報告されたことで、 BaSnO_3 が透明導電膜の候補物質として一躍注目を集めることとなった[3,4]。図 1 に BaSnO_3 の結晶構造を示す。 BaSnO_3 は約 3.5 eV のバンドギャップをもつワイドギャップ酸化物である。第一原理計算から、伝導帯は Sn 5s 軌道から主に構

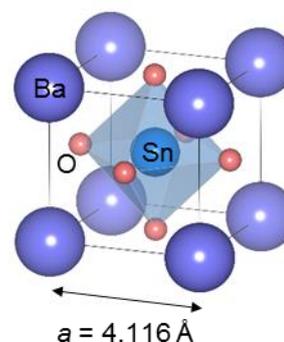


図 1 BaSnO_3 の結晶構造

成されることが示されており、酸化物としては比較的小さい電子有効質量 $0.20m_0$ (m_0 : 電子の質量) を有する[5]。しかしながら、透明導電膜および電子素子への応用に不可欠な薄膜においては、基板との格子不整合による高密度のミスフィット転位の発生により、移動度がバルク値より著しく低下することが問題となっている[3,6]。本課題と同時期に進められた他のグループの研究では、汎用的基板である SrTiO_3 ($a = 3.905 \text{ \AA}$; 格子不整合 5.4%) に替えて、 PrScO_3 (2.2%) や SmScO_3 (3.1%), BaSnO_3 (~0%) の利用が提案されているが[7-9]、応用の観点からは SrTiO_3 上への成長が望ましい。本課題では、 BaSnO_3 系透明導電膜の応用を目指して、転位を低減した高品質薄膜の成長技術の構築と高移動度化に取り組んだ。さらに、それら薄膜を舞台とした 2 次元電子系の創出に向けて、電界効果トランジスタの開発とチャネルのバンドギャップ制御による特性向上を試みた。

【本論】

1) 高品質 BaSnO_3 および $\text{La}:\text{BaSnO}_3$ 薄膜の形成と基礎伝導特性評価[発表論文⑧-1]

$\text{La}:\text{BaSnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$ における移動度 (μ) の電子密度 (n) 依存性が ($\mu \propto n^{1/2}$) の関係を持つ研究報告[3]から、 $\text{La}:\text{BaSnO}_3$ 薄膜の移動度低下の要因として、ミスフィット転位による電子散乱が示唆されている。したがって、転位密度の低減により、移動度および電気伝導度が向上できるものと期待される。同時に、薄膜表面平坦性が改善されることで、表面散乱の抑制にもつながる。そこで我々は、格子定数が両物質の間に位置する $(\text{Sr},\text{Ba})\text{SnO}_3$ をバッファ層として用いることを検討した。 $\text{BaSnO}_3\text{-SrSnO}_3$ は全率固溶系半導体であり、 Sr 組成の増加により格子定数を $a = 4.116 \text{ \AA}$ (BaSnO_3) から $a/\sqrt{2} = 4.033 \text{ \AA}$ (斜方晶 SrSnO_3) の範囲で連続的に変化させることができる。バッファ層の効果は、強誘電 Ti 酸化物のヘテロエピタキシャル成長などで実証されており[10]、バッファ層の挿入により基板から上部薄膜に到達する転位の密度が減少すると同時に、基板からの格子歪みの影響が低減することが知られている。図 2 に $\text{SrTiO}_3(001)$ 上に直接成長した BaSnO_3 薄膜 (a) および膜厚 10 nm の $\text{Sr}_{0.5}\text{Ba}_{0.5}\text{SnO}_3$ (4.078 \AA) をバッファ層として挿入した BaSnO_3 薄膜 (b) の表面原子間力顕微鏡像を比較する。薄膜成長は、焼結体ターゲットを原料に用いたパルスレーザー堆積法 (KrF エキシマレーザー、基板温度 900 °C、酸素分圧 100 mTorr) により行った。半導体レーザー加熱機構を新たに導入することで、900 °C ま

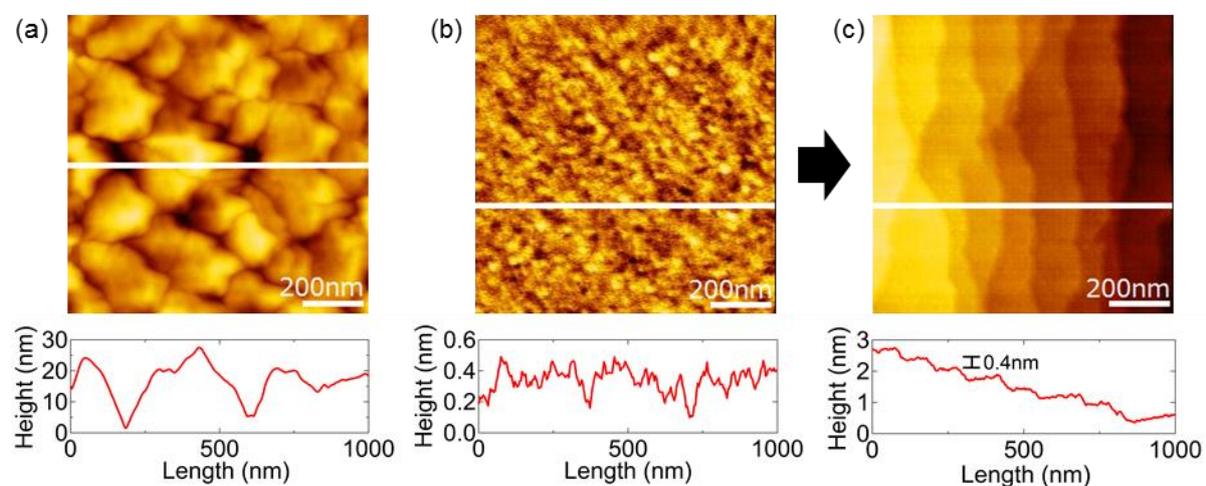


図 2 BaSnO_3 薄膜の表面原子間力顕微鏡像 (上段) と断面プロファイル (下段)
 (a) $\text{BaSnO}_3/\text{SrTiO}_3$, (b) $\text{BaSnO}_3/\text{Sr}_{0.5}\text{Ba}_{0.5}\text{SnO}_3/\text{SrTiO}_3$, (c) (b)をアニールしたもの

での基板温度制御を迅速かつ高い再現性で行えるようにしている。バッファ層の挿入により、グレイン構造の生成が抑制され、表面平坦性が大きく改善していることが分かる。さらに、この試料に対して、大気中 1200 °C でのポストアニール処理を行うことで、ステップ・テラス構造を伴う表面が得られることを見出した (図 2(c))。ステップ高さは約 4 Å と BaSnO₃ の 1 ユニットのセルに相当しており、原子層レベルで平坦な BaSnO₃ 薄膜の作製に成功した。X 線回折による面直および面内の格子定数評価から、BaSnO₃ の膜厚増加に伴い、格子緩和した薄膜が得られることが分かった。また、断面透過型電子顕微鏡観察により、薄膜中のミスフィット転位を観察し (図 3)、Sr_{0.5}Ba_{0.5}SnO₃ バッファ層の挿入および BaSnO₃ 層の膜厚の増加により、薄膜表面近傍での転位密度 (図中の矢印) が減少していることを明らかにした。

このようにして作製した絶縁性 BaSnO₃ 上 (ここでは Sr_{0.5}Ba_{0.5}SnO₃ とまとめてバッファ層と呼ぶ) に成長した La:BaSnO₃ 透明導電膜の光学顕微鏡写真を図 4 に示す。SrTiO₃ 基板を含めて、十分な可視光透過性が保たれている。バッファ層上に形成した La(2at%):BaSnO₃ の電気抵抗率 ρ およびホール効果から決定した移動度 μ の温度依存性を図 5 に示す。新たに伝導特性評価装置を導入することで 50 K までの Hall 効果測定を行い、最適化実験を効率的に進めることで得られた。 $d\rho/dT > 0$ から金属状態であると結論でき、伝導帯バンドが縮退状態にあることが分かる。電子密度 n_{3D} は La ドーピングによるキャリアの活性化率を 100% と仮定した値より若干大きい、これは転位や酸素不定比性に伴う余剰キャリアの生成によるものと考えられる。実際、転位をより低減した、厚いバッファ層の上に成長した試料では、理想的な n_{3D} 値に近づいている。これらの結果から得られた室温での電子移動度は、バッファ層無しの試料に対し 2 倍程度の増加を示し、最高で $78 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ (室温) に達した。さらに、移動度の BaSnO₃ 膜厚依存性をより詳細に評価したところ、BaSnO₃ 膜厚 ~ 200 nm が最適であることが分かった。これ以上の膜厚では、薄膜表面粗さが増加し、移

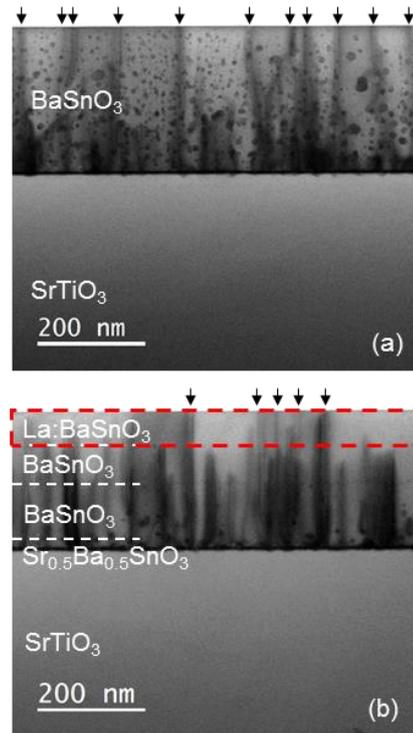


図 3 断面透過型電子顕微鏡像



図 4 La:BaSnO₃ 透明導電膜

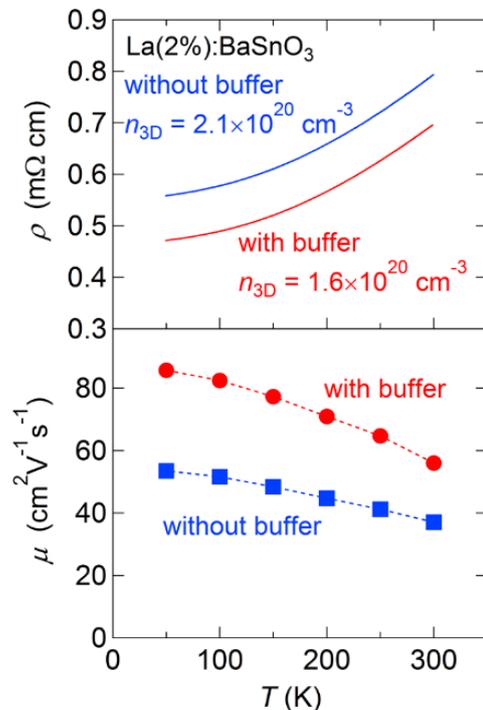


図 5 La:BaSnO₃ 薄膜の電気抵抗率及び移動度の温度依存性

動度および電気伝導度が減少してしまう傾向にあった。

図 6 では、様々な La ドープ量に制御された試料における移動度のキャリア密度依存性を、既報の La:BaSnO₃/SrTiO₃ および La:BaSnO₃ バルク単結晶の結果と比較する[2,3]。La ドープ量は、ノンドープ BaSnO₃ と La:BaSnO₃ ターゲットを異なるパルス比で交互にアブレーションすることで変化させた。n_{3D} > 10²⁰ cm⁻³ の領域ではイオン化不純物散乱の影響が強いため、バッファ層の効果は顕著ではないが、転位による散乱機構が支配的とされる低キャリア密度領域では、移動度の大幅な向上が観測された。これにより、透明導電膜応用のクライテリアの一つである σ > 10³ S/cm (ρ < 10⁻³ Ωcm) をより広いキャリア密度で実現することができた。移動度のキャリア密度依存性および透過型電子顕微鏡観察の結果 (図 3) は、バッファ層を挿入した試料においても転位が完全には消失していないことを示しており、これがバルクで観測された高移動度に到達していない原因と考えられる。今後、バッファ層の組成や膜厚の最適化を通して、さらなる移動度の向上に努めたい。

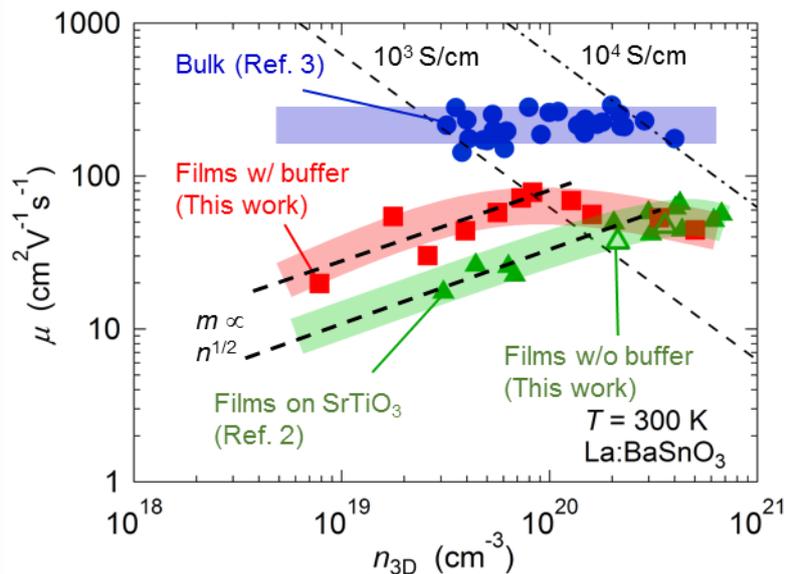


図 6 本研究および先行研究における La:BaSnO₃ 薄膜、単結晶のホール移動度の比較

2) BaSnO₃ 電界効果トランジスタの開発と電荷輸送特性の向上[発表論文⑧-2]

La:BaSnO₃ 透明導電膜では、不純物から電子キャリアを供給するため (化学ドーピング)、イオン化不純物散乱も同時に引き起こされることから、特に高キャリア密度での移動度低下が避けられない。一方で、電界効果トランジスタ構造を用いれば、不純物に頼らない静電的なキャリア注入が可能となる (静電キャリアドーピング)。

電界効果トランジスタは、電子回路を構成する基幹素子の一つで、チャンネルと呼ばれる半導体に、誘電体 (ゲート絶縁体) を搭載した構造から成る。ゲート絶縁体に電界を印加すると、対向するチャンネル表面に電荷が蓄積され、電気伝導が生じる。この仕組みを利用して、様々な演算回路や記憶素子が作製されている。La:BaSnO₃ をチャンネルに用いた電界効果トランジスタについては、本研究課題の提案以降いくつかの報告があり、透明トランジスタの候補として注目を集めている [11-13]。また、電界効果トランジスタは、同一試料内でキャリア密度を電氣的に制御することができるため、物性評価のツールとしても極めて

て有用である。特に、上述の透明導電膜の実験で観測された低温での移動度増加から、高品質界面形成による高移動度化を実現することで、低温・磁場下での量子輸送現象の発現が期待される。また、冒頭に述べた磁性体などとのヘテロ構造化による物性制御への展開も興味深い。そこで我々は、 BaSnO_3 の透明デバイス応用および精密物性評価に向けた取り組みとして、上記実験で確立した原子層平坦絶縁性 BaSnO_3 上への電界効果トランジスタの構築を行った。

酸化物を用いたトランジスタの開発は近年増加の傾向にあるが、欠陥の低減や表面平坦化処理技術に蓄積のあるバルク単結晶に比べ、薄膜をチャンネルに用いた素子では、良好なトランジスタ動作が得られないことが多い。本研究では、原子層平坦な BaSnO_3 の特性を損なうことなく静電キャリアドーピングすることを狙いとし、ゲート絶縁体に焦点を絞った最適化実験を行った。スパッタリング法やパルスレーザー堆積法など高エネルギー粒子の飛来を伴う成膜法でゲート絶縁層を堆積すると、酸化物チャンネル表面の逆スパッタリング現象や酸素欠損の導入により、トランジスタ特性が劣化することが知られている。我々は、これら問題を伴わないソフトなゲート絶縁膜形成手法として、化学気相蒸着によるパリレン膜を採用した。パリレンは比誘電率 $\epsilon_r = 3$ の有機ポリマー絶縁体であり、 SrTiO_3 、 KTaO_3 電界効果トランジスタのゲート絶縁体として、良好な特性を示すことが報告されている[14]。また、ゲートリーク電流（ゲート絶縁体面積に比例）を抑制するために、フォトリソグラフィと Ar イオンミリングを用いたチャンネルの微細加工を行った。図 7 に、ゲート電極蒸着前のチャンネル領域の光学顕微鏡像を示す。ソース、ドレイン電極に加え、四端子電気抵抗率およびホール効果測定用の端子を配置することで、将来的な物性測定に対応できるようにした。

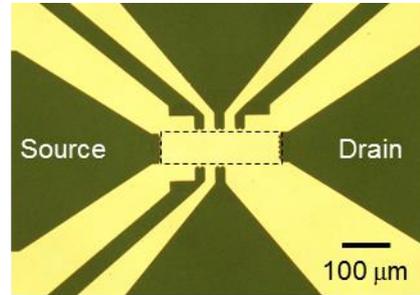


図 7 BaSnO_3 チャンネル（破線部）の光学顕微鏡写真

図 8 に、原子層平坦 BaSnO_3 (膜厚 130 nm)/ $\text{Sr}_{0.5}\text{Ba}_{0.5}\text{SnO}_3$ (13 nm)/ SrTiO_3 (001) をチャンネルとした電界効果トランジスタ（サンプル A）の室温、大気中での伝達特性を示す。ソース、ドレインおよびゲート電極には電子ビーム蒸着により作製した Au/Ti を用いた。正のゲート電圧の印加に伴いチャンネル伝導度が増加する、*n* 型半導体電界効果トランジスタの特性を示しており、La ドーピングによる電子キャリアが伝導を担う透明導電膜の結果と対応している。ゲート電圧を印加していない状態（オフ状態）では、高い絶縁性が保たれており、電流オンオフ比にして 10^3 – 10^4 が得られた。電界効果移動度 μ_{FE} は $8.2 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ と見積もられた。一方、アニール処理による表面平坦化を施していないチャンネルでは、これらの値は小さく（オンオフ比 10^1 – 10^2 ）、本研究で確立した原子層平坦チャンネルが高性能トランジスタの実現に有用であることが分かった。また、高ドレイン電圧領域でのピンチオフ効果も明瞭に観測された。これらの結果は、絶縁性 BaSnO_3 薄膜での初めての電界効果トランジスタ動作を実証するものであり、同物質が透明トランジ

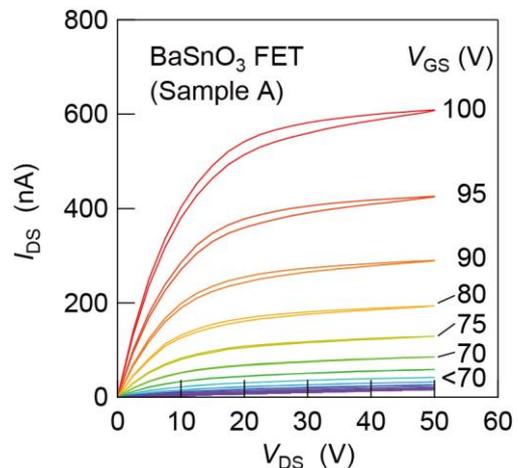


図 8 BaSnO_3 電界効果トランジスタの出力特性（室温、大気中）

スタの候補として高いポテンシャルを有することを示す成果である。

電界によりチャネルに誘起されたキャリアは、粒界などのチャネル中の欠陥による散乱に加え、ゲート絶縁体との界面でのポテンシャルの乱れやゲート絶縁体中の不純物や固定電荷に由来する界面散乱を受ける。これらの影響を低減する手法として、 LaInO_3 エピタキシャルゲート絶縁体を用

いることで、 $90 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ を超える電界効果移動度が得られることが報告されている [15]。プロジェクト開始時点では、我々も同種の $\text{LaAlO}_3/\text{BaSnO}_3$ の作製を検討し、電荷不整合界面の形成に向けた実験を進めていた。その後、前述の $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3$ バッファ層での結果を発展させる形で、 $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3$ のワイドバンドギャップを利用したチャネル界面のバンドギャップ制御に新たに取り組んだ。図 9 にその概念図を示す。 BaSnO_3 は A サイトの Sr 置換に伴い、 SnO_6 八面体ネットワークの歪みが増加し、バンドギャップが 3.50 eV (BaSnO_3) から 4.27 eV (SrSnO_3) へと増加することが知られている [13]。このバンドギャップの差が伝導バンドオフセットに対応するものと考え、薄い $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3$ 層をパリレン/ BaSnO_3 間に挿入した構造では、ゲート電圧を印加したときのキャリア蓄積は、 $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3/\text{BaSnO}_3$ エピタキシャル界面で優先的に発生するものと期待される。このコンセプトは III-V 化合物半導体 HEMT (高電子移動度トランジスタ) の原理である変調ドーピングに着想を得たものである。本研究の目的を検証するためには、パリレン/ BaSnO_3 に比べて、 $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3/\text{BaSnO}_3$ が急峻な界面を有することが不可欠となる。したがって、バッファ層技術開発の実験において得られた知見から、熱処理と堆積を駆使した試料において、伝導特性評価を行った。

図 10 に原子層平坦 BaSnO_3 上に膜厚 7 nm の $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3$ バリア層を堆積した素子 (サンプル B) の伝達特性を示す。 $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3$ バリア層の導入により、電界効果移動度が約 2 倍に向上していることが分かる。この素子では、 $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3/\text{BaSnO}_3$ 界面の伝導を評価するために、Ar イオンミリングにより $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3$ バリア層を貫通する形でソース、ドレイン電極を取り付けている。一方、 $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3$ バリア上に直接電極を取り付けた場合には、ドレイン電流および電界効果移動度の増加は認められなかった。これらの結果は、仮

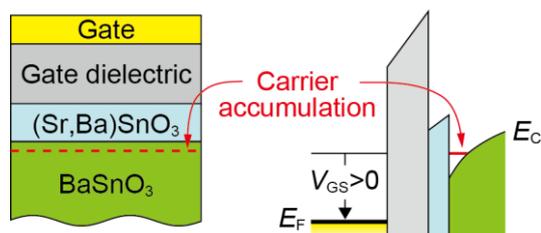


図 9 $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3/\text{BaSnO}_3$ ヘテロ構造チャネルにおける電荷蓄積の模式図

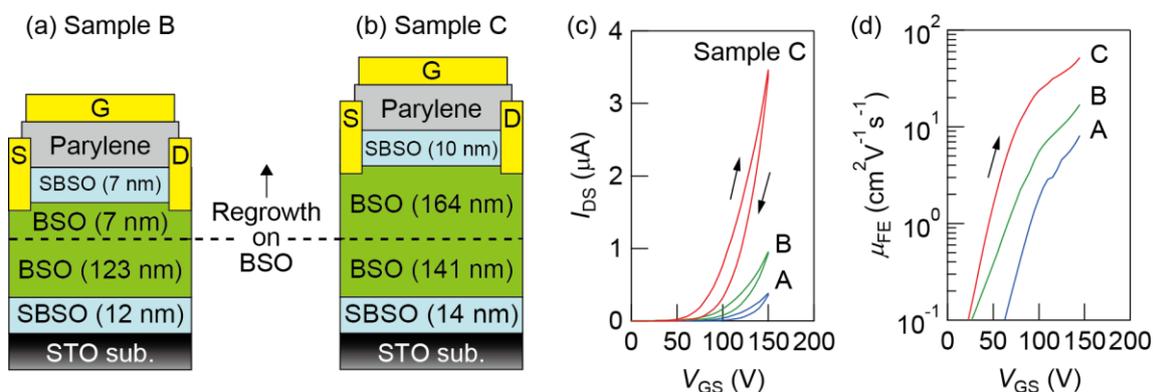


図 10 $(\text{Sr,Ba})\text{SnO}_3/\text{BaSnO}_3$ ヘテロ構造チャネルをもつ電界効果トランジスタ (S: Source, D: Drain, G: Gate) 括弧内数字は膜厚を表す (a), (b) 素子構造、(c) 伝達特性、(d) 電界効果移動度

定した(Sr,Ba)SnO₃/BaSnO₃ 界面でのキャリア蓄積を支持している。さらに、上記⑤-1での透明導電膜の実験で得た、厚いバッファ層試料での表面近傍転位密度の低減結果を受けて、BaSnO₃ 膜厚を増加させた素子（サンプル C）を作製したところ、最高で電界効果移動度 $52 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ が得られた。この値は室温における電界効果移動度としては十分な値であり、透明スイッチング素子としての展開可能性を期待させる成果と言える。したがって、(Sr,Ba)SnO₃/BaSnO₃ 界面における高移動度化技術が有用であることと、界面近傍における転位密度の低減が実験的に実証された。これらの結果を通して、(Sr,Ba)SnO₃/BaSnO₃ ヘテロ構造を用いたトランジスタ特性向上の新たな手法を提示すると同時に、電界誘起物性や界面電子輸送の研究に向けた基本素子構造を確立することに成功したと結論できる。

【結び】

BaSnO₃ の透明導電膜および透明エレクトロニクスへの応用に向けて、高品質薄膜形成技術の確立と電界効果トランジスタの開発に取り組んだ。元素置換に対して自由度の高いペロブスカイト構造を活用して、(Sr,Ba)SnO₃ バッファ層による原子層平坦 BaSnO₃ の作製および La:BaSnO₃ 透明導電膜の高移動度化、(Sr,Ba)SnO₃ バリア層を用いた BaSnO₃ 電界効果トランジスタの電界効果移動度向上に成功した。これらの成果は、代表者が過去の研究で培った、酸化物ヘテロエピタキシー技術とヘテロ構造デバイスの知見に基づくものであり、独自の視点と言える。これらの技術をさらに発展させることにより、室温における透明導電膜としての特性改善とともに、ヘテロ界面における電荷輸送として低温移動度の向上に繋げていきたい。特に、本研究で取り組めなかった多結晶基板上的 Sn 酸化物薄膜の特性評価も応用上は重要である。本研究の示した熱処理と電気伝導特性の改善に関する知見は、それらの多結晶薄膜にも適用できると考えられる。それらの手法が、ペロブスカイト Sn 酸化物の研究を基礎・応用の両面で推進する成果となり、太陽電池などの透明導電膜として光学デバイスへと展開されるための一助となっていくことを期待している。当初の研究計画では、これらの実験テーマと並行して、エレクトレット搭載型素子の開発にも取り組む予定であったが、現在予備実験のフェーズに留まっている。電界効果トランジスタの実験において、電気伝導の発現に必要なシートキャリア密度は既に評価できているため、エレクトレットの塗布・処理条件を確立し、素子作製、特性評価へと進めていきたい。

本課題を遂行するにあたり、新素材共同研究開発センターのプロセス装置を使用した。なお、本実験は、西原和貴、塩貝純一、藤原宏平各氏によって進められた。断面 TEM 測定では、佐藤和久准教授の協力を得た。この場を借りて、その他関係各位に感謝申し上げます。最後に、「低炭素社会実現のための基板材料創製研究事業」の支援を受けて、本研究を進められたことに感謝申し上げます。

【参考文献】

1. T. Minami, New *n*-Type Transparent Conducting Oxides. *MRS Bull.* **25**, 38 (2000).
2. A. Ohtomo and H. Y. Hwang, A high-mobility electron gas at the LaAlO₃/SrTiO₃ heterointerface. *Nature* **430**, 657 (2004).
3. H. J. Kim, U. Kim, H. M. Kim, T. H. Kim, H. S. Mun, B.-G. Jeon, K. T. Hong, W.-J. Lee, C. Ju, K. H. Kim, and K. Char, High Mobility in a Stable Transparent Perovskite Oxide, *Appl. Phys. Express* **5**, 061102 (2012).
4. H. J. Kim, U. Kim, T. H. Kim, J. Kim, H. M. Kim, B.-G. Jeon, W.-J. Lee, H. S. Mun, K. T. Hong, J. Yu, K. Char, and K. H. Kim, Physical properties of transparent perovskite oxides (Ba,La)SnO₃ with high electrical mobility at room temperature. *Phys. Rev. B* **86**, 165205 (2012).
5. H.-R. Liu, J.-H. Yang, H. J. Xiang, X. G. Gong, and S.-H. Wei, Origin of the superior conductivity of perovskite Ba(Sr)SnO₃. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 112109 (2013).
6. H. Mun, U. Kim, H. M. Kim, C. Park, T. H. Kim, H. J. Kim, K. H. Kim, and K. Char, Large effects of dislocations on high mobility of epitaxial perovskite Ba_{0.96}La_{0.04}SnO₃ film. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 252105 (2013).
7. S. Raghavan, T. Schumann, H. Kim, J. Y. Zhang, T. A. Cain, and S. Stemmer, High-mobility BaSnO₃ grown by oxide molecular beam epitaxy. *APL Mater.* **4**, 016106 (2016).
8. P. V. Wadekar, J. Alaria, M. O'Sullivan, N. L. O. Flack, T. D. Manning, L. J. Phillips, K. Durose, O. Lozano, S. Lucas, J. B. Claridge, and M. J. Rosseinsky, Improved electrical mobility in highly epitaxial La·BaSnO₃ films on SmScO₃(110) substrates. *Appl. Phys. Lett.* **105**, 052104 (2014).
9. W.-J. Lee, H. J. Kim, E. Sohn, T. H. Kim, J.-Y. Park, W. Park, H. Jeong, T. Lee, J. H. Kim, K.-Y. Choi, and K. H. Kim, Enhanced electron mobility in epitaxial (Ba,La)SnO₃ films on BaSnO₃ substrates. *Appl. Phys. Lett.* **108**, 082105 (2016).
10. K. Terai, M. Lippmaa, P. Ahmet, T. Chikyow, T. Fujii, H. Koinuma, and M. Kawasaki, In-plane lattice constant tuning of an oxide substrate with Ba_{1-x}Sr_xTiO₃ and BaTiO₃ buffer layers. *Appl. Phys. Lett.* **80**, 4437 (2002).
11. Y. M. Kim, C. Park, U. Kim, C. Ju, and K. Char, High-mobility BaSnO₃ thin-film transistor with HfO₂ gate insulator, *Appl. Phys. Express* **9**, 011201 (2016).
12. U. Kim, C. Park, T. Ha, Y. M. Kim, N. Kim, C. Ju, J. Park, J. Yu, J. H. Kim, and K. Char, All-perovskite transparent high mobility field effect using epitaxial BaSnO₃ and LaInO₃. *APL Mater.* **3**, 036101 (2015).
13. C. Park, U. Kim, C. J. Ju, J. S. Park, Y. M. Kim, and K. Char, High mobility field effect transistor based on BaSnO₃ with Al₂O₃ gate oxide, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 203503 (2014).
14. H. Nakamura, H. Takagi, I. H. Inoue, Y. Takahashi, T. Hasegawa, and Y. Tokura, Low temperature metallic state induced by electrostatic carrier doping of SrTiO₃. *Appl. Phys. Lett.* **89**, 133504 (2006).
15. Q. Liu, B. Li, J. Liu, H. Li, Z. Liu, K. Dai, G. Zhu, P. Zhang, F. Chen, and J. Dai, Structure and band gap tuning of transparent (Ba_{1-x}Sr_x)SnO₃ thin films epitaxially grown on MgO substrates. *EPL* **98** 47010 (2012).

【発表論文】

1. J. Shiogai, K. Nishihara, K. Sato, and A. Tsukazaki
Improvement of electron mobility in La:BaSnO₃ thin films by insertion of an atomically flat insulating (Sr,Ba)SnO₃ buffer layer.
AIP Advances **6**, 065305 (2016).
2. K. Fujiwara, K. Nishihara, J. Shiogai, and A. Tsukazaki
High field-effect mobility at the (Sr,Ba)SnO₃/BaSnO₃ interface.
AIP Advances **6**, 085014 (2016).

Improvement of electron mobility and long-term stability in an In-free transparent conducting film

Atsushi Tsukazaki

One of perovskite tin oxides, BaSnO_3 , has recently been attracting attention as a new transparent conducting material possessing high electron mobility. However, $\text{La}:\text{BaSnO}_3$ films grown on $\text{SrTiO}_3(001)$ substrates have been reported to show much lower electron mobility than the bulk value because of the high density of misfit dislocations. In this work, we found that the introduction of $(\text{Sr},\text{Ba})\text{SnO}_3$ buffer in combination with high-temperature post-annealing allows for reducing dislocation density, leading to a large enhancement in electron mobility. We also fabricated a field-effect transistor on an insulating BaSnO_3 channel with an atomically smooth surface, and demonstrated that field-effect mobility can be enhanced effectively by modulating the band profile at the gate dielectric/channel interface using the wide bandgap $(\text{Sr},\text{Ba})\text{SnO}_3$. These results would provide an important step towards BaSnO_3 -based transparent conducting films and functional devices.