

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月 24日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23760285

研究課題名（和文） 酸窒化物超格子のpiezo電界を利用した室温動作エキシトニクスデバイスの創成

研究課題名（英文） Fabrication of piezoelectric-field enhanced excitonic devices operating at room-temperature with the use of oxynitride superlattices

研究代表者

板垣奈穂（ITAGAKI NAHO）

九州大学・システム情報科学研究所・准教授

研究者番号：60579100

研究成果の概要（和文）：

LSIの光伝送に対応した高速・省電力型信号処理システムの構築が急務となっている。光-電気信号変換が不要であるエキシトニックトランジスタは、原理的に超高速化・超低消費電力化が可能であるが、その動作温度は150K以下に限定されている。本研究では、独自に考案した「piezo電界誘起構造」と申請者が見出した「酸窒化物半導体」を用い、エキシトニックトランジスタの室温動作を試みた。本成果は次世代光ネットワーク実現に向けたプラットフォーム技術に進化すると期待される。

研究成果の概要（英文）：

Excitonic transistor has attracted much attention because of its potential advantages such as high operation and interconnection speed, small dimensions, and low per consumption. The major challenges for excitonic devices are to increase the operating temperature. Here we have developed a novel semiconductor based on oxynitride and a novel device structure that uses piezoelectric field with the aim to obtain room-temperature operating excitonic devices.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学

キーワード：薄膜・量子構造、エキシトニクス、酸窒化物半導体

1. 研究開始当初の背景

インターネット情報量の増加率は年率40%を超え、信号処理システムの消費電力は爆発的な増大を続けている。急増する情報量に対応するため、将来 psec オーダーの処理速度が必要になるが、光信号を電気信号に変換する際に生じる nsec オーダーの遅延がボトルネックとなっている。また電子デバイスを用いた現行システムではジュール熱が発生するため、低消費電力化には限界がある。本研究では半導体中のエキシトンを利用することにより、超高速・超低消費電力かつ高

集積を可能にする革新的デバイスを創成する。

エキシトニックトランジスタは光信号を電気信号に変換することなく処理するため超高速化が可能となる一方、エキシトン移動に必要な電力は従来電子デバイスの1/100程度となり、超消費電力動作が実現する。また電子デバイスと同様のプロセスで形成でき高集積化が可能である。

2007年 High 等により世界初のエキシトニックトランジスタが発表され、その後200psecの高速スイッチングが実証された(A.

A. High et al., Opt. Lett., 32 (2007) 2466) .
 しかし、電子-ホール再結合を抑制しエキシトン流を生成するためには、図 2 (左図) に示すような 2 重量子井戸構造が必要であり、動作温度は 150K 以下に限定されている。また井戸層を形成する材料のバンドギャップが大きく、通信用波長帯光($\sim 1.5 \mu\text{m}$)を直接利用することが出来ない。

2. 研究の目的

本研究では上記 2 つの課題を一挙に解決し、エキシトニクスデバイス実用化のブレークスルーを実現する半導体材料を創成する。

3. 研究の方法

酸窒化物は半導体として未開拓の材料系であったが、研究代表者らは Zn と In を含む酸窒化物が半導体特性を有することを見出した。図 1 に代表的な特長を示す。上記材料はバンドギャップを赤外域まで制御出来るため、通信波長帯域光による動作が可能となる。また piezo 定数が高い ($e33 \sim 1\text{C/m}^2$) という特長を有しており、c 軸方向にコヒーレントに量子井戸を形成した場合、結晶格子の歪みによって井戸層には数百万 V/cm もの強い piezo 電界が発生する。本研究ではこの piezo 電界を用いることにより、単一量子井戸内にエキシトン流を生成させ、室温動作を実現する (図 2)。InGaN 系発光素子における piezo 電界は、エキシトン再結合確率、すなわち発光効率を著しく低下させるため問題視されているが、本研究は piezo 電界を積極的に利用し、革新的エキシトニクスデバイスを創成するものである。

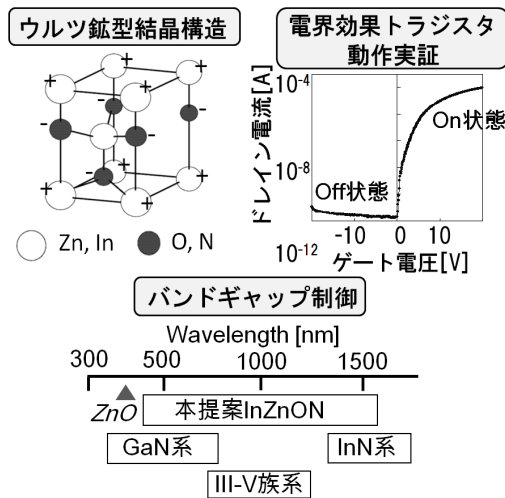


図 1. 本提案 ZnInON 半導体

4. 研究成果

(1) ZnInON 量子井戸におけるエキシトン寿命シミュレーション

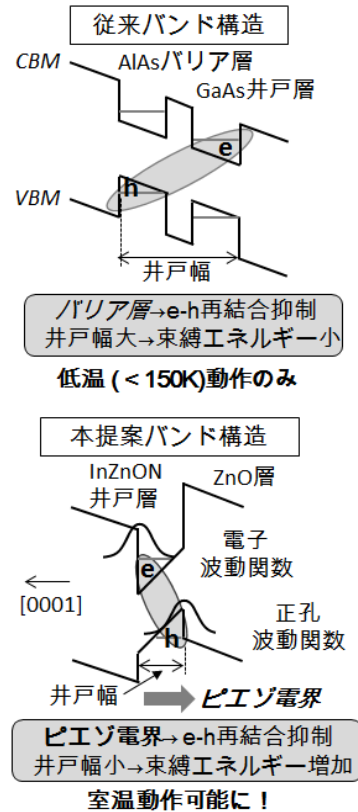


図 2. 従来材料と本提案材料のバンド構造比較

本研究では、上述の piezo 電界がエキシトン寿命に与える影響を調べるため、ZnInON 量子井戸内での電子-ホール波動関数を計算し、それらの重なり積分をもとに、エキシトンの再結合確率を見積もった。図 3 にデバイスシミュレーションにより計算した ZnInON 量子井戸内のエキシトン再結合レートを示す。高い結晶欠陥密度に関わらず低い再結合レートを示しており、その寿命は $1 \mu\text{sec}$ を超える。この値は従来の III-V 族材料に比べ 4 桁長く、高効率エキシトン流生成が可能で

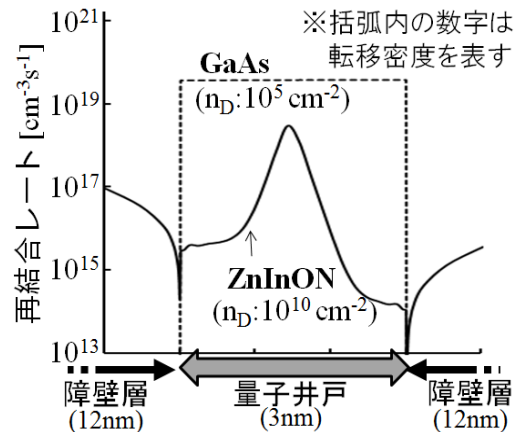
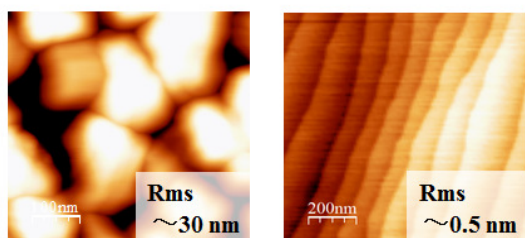


図 3 ZnInON 量子井戸におけるエキシトン再結合レート

あることを示している。

(2) 新規半導体材料 ZnInON の高品質結晶成長

エキシトン流生成のためには ZnInON 膜の高品質化が必須である。本研究では、量産性に優れたスパッタリング法と、独自に考案した結晶核制御技術を用いることにより、低コスト且つ高品質な ZnInON 膜の実現を目指している。具体的には、低コスト基板（サファイア基板）上に ZnInON と同じ結晶構造（ウルツ鉱型）を有する ZnO 膜の単結晶成長を試み、これをバッファ層とすることで ZnInON の高品質結晶成長を行った。サファイア上への単結晶 ZnO 膜の成長は、その大きな格子定数差（不整合率 18%）によりこれまで実現には至っていない。本研究では窒素添加結晶化法（NMC 法）という新たな手法を開発し、サファイア上への ZnO 単結晶の作製を試みた。本手法では、まず ZnO 成膜雰囲気中に不純物である窒素原子を導入し、ZnO の結晶粒の成長を意図的に阻害することで高密度な結晶粒を有するバッファ層（NMC バッファ層）を作製する。結晶粒の高密度化により格子不整合に起因する歪み・界面エネルギーが低減され、転位の発生が抑制されるとともに、結晶軸の揃った結晶粒が形成される。その後、上記結晶粒を核生成サイトとして 2 次元的に結晶成長させることで、ZnO 単結晶膜を作製する。得られた ZnO 膜の原子間力顕微鏡（AFM）像を図 4 に示す。直線性の高いステップが観測され、サファイア基板上且つスパッタリング法によっても高品質な単結晶 ZnO 膜を得ることが出来た。



従来スパッタ法により作製 NMC法により作製

図 4. ZnO 膜の表面 AFM 像

(3) ピエゾ電界発生のためのコヒーレント成長の実現

本エキシトンランジスタ構造において、piezo電界は ZnInON 内に生じる結晶歪みにより発生させる。具体的には ZnO/ZION 超格子膜において、ZnInON 膜を ZnO 膜に対してコヒーレント（格子緩和させず）に成長させることで、piezo電界を発生させる。この時、結晶欠陥により歪みエネルギーが緩和されるため、結晶成長時において、いかに欠陥発

生を抑制するかが重要である。本研究では上述の NMC 法による高品質バッファ層の形成に加え、ZnInON 膜形成時に高密度ラジカル源を用いることによりコヒーレント成長を試みた。その結果、特に難しいとされる N 原子の高密度生成を実現し、酸素原子/窒素原子数比の制御を行うことで ZnO に対する ZnInON 膜のコヒーレント成長を実現した（図 5）。またこれにより原子レベルで平坦な表面を有する ZnInON 膜の作製に世界で初めて成功した（図 6）。

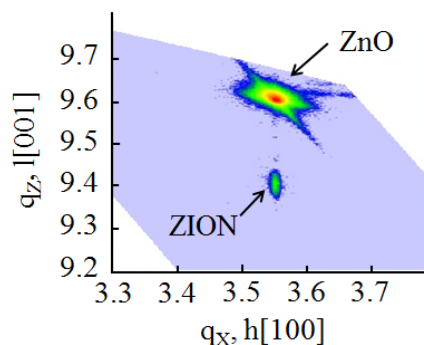


図 5 ZnInON(105)面からの X 線回折逆格子。

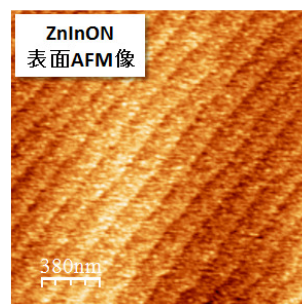


図 6. ZnInON 膜の表面 AFM 像。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 9 件）

(1) K. Matsushima, N. Itagaki (他 8 名, 10 番目), Epitaxial Growth of ZnInON Films for Piezo-Electric-Field Effect MQW Solar Cells, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, in press.

(2) S. Bornholdt, N. Itagaki (他 3 名, 2 番目), H. Kersten, Characterization of the energy flux toward the substrate during magnetron sputter deposition of ZnO thin films, Plasma Sources Sci. Technol., 査読有, Vol. 22, Issue 2, 2013, p. 025019, DOI:10.1088/0963-0252/22/2/025019

(3) I. Suhariadi, N. Itagaki (他 13 名, 14 番目), Effects of Hydrogen Dilution on ZnO Thin Films Fabricated via Nitrogen Mediated Crystallization, Japanese

Journal of Applied Physics., 査読有, Vol. 52, 2013, p. 01AC08,

DOI:10.7567/JJAP.52.01AC08

(4) N. Itagaki, M. Shiratani (他 8 名, 1 番目), Sputter deposition of Epitaxial Zinc-Indium Oxynitride Films for Excitonic Transistors, Proceedings of International Symposium on Dry Process 2012, 査読有, 2012

(5) I. Suhariadi, N. Itagaki (他 8 名, 2 番目), ZnO:Al Thin Films with Buffer Layers Fabricated via Nitrogen Mediated Crystallization: Effects of N₂/Ar Gas Flow Rate Ratio, Transactions of the Materials Research Society of Japan, 査読有, Vol. 37, Issue 2, 2012, pp. 165-168,

[http://jglobal.jst.go.jp/detail.php?JGL](http://jglobal.jst.go.jp/detail.php?JGLOBAL_ID=201202205920945013)

OBAL_ID=201202205920945013
(6) K. Kuwahara, N. Itagaki (他 6 名, 2 番目), High quality epitaxial ZnO films grown on solid-phase crystallized buffer layers, Thin Solid Films, 査読有, Vol. 520, Issue 14, 2012, p. 4674,

DOI:10.1016/j.tsf.2011.10.136

(7) N. Itagaki, K. Kuwahara, K. Nakahara, Novel fabrication method for transparent conducting oxide films utilizing solid-phase crystallized seed layers, AIP Conference Proceedings, 査読有, 2012, pp. 23-26,

DOI:10.1063/1.3653599

(8) N. Itagaki, K. Kuwahara, Novel fabrication method of ZnO films utilizing solid-phase crystallized seed layers, Materials Research Society Symposium Proceedings, 査読有, 2011, pp.15-20,

DOI:10.1557/opl.2011.709

(9) N. Itagaki, K. Kuwahara, K. Matsushima, K. Oshikawa, Novel fabrication method for ZnO films via nitrogen-mediated crystallization, Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering, 査読有, vol. 8263, 2012, p. 826303,

DOI:10.1117/12.911971 [学会発表] (計件)

[学会発表] (計 21 件)

① N. Itagaki, ZnO based semiconductors fabricated by impurity mediated crystallization (Invited), SPIE (international society for optics and photonics) photonics west 2013, 2014 年 2 月 1 日, San Francisco, USA

② N. Itagaki, Band-Gap Engineering of ZnO Based Semiconductors Deposited by Sputtering, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia,

2013 年 9 月 16 日, Doshisha University, Kyoto, Japan

③ N. Itagaki, Novel Approach to Sputtering Growth of Single Crystalline Oxide Semiconductors for Optoelectronic Applications (Invited), The 9th Asian-European International Conference on Plasma Surface Engineering, 2013 年 8 月 25 日, Jeju, Korea

④ N. Itagaki, Novel Application of Ar/N₂ Discharges to Sputtering Growth of High Quality Oxide Semiconductors (Invited), The XXXI edition of the International Conference on Phenomena in Ionized Gases, 2013 年 7 月 14 日, Granada, Spain

⑤ N. Itagaki, Sputter Deposition of Single Crystal ZnO Films on 18% Lattice mismatched c-Al₂O₃ Substrates via Nitrogen Mediated Crystallization, International Symposium on Sputtering and Plasma Processes, 2013 年 7 月 10 日, Kyoto Research Park, Kyoto, Japan

⑥ N. Itagaki, Sputter Deposition of Semiconductor-Grade ZnO Based Materials on Lattice Mismatched Substrates for Optoelectronic Applications, The Collaborative Conference on Materials Research 2013, 2013 年 6 月 24 日, Jeju, Korea

⑦ 板垣奈穂、スパッタ法による C 面サファイア基板上への原子平坦 ZnO 薄膜の作製、2013 年第 60 回応用物理学会春季学術講演会、2013 年 3 月 28 日、神奈川工科大学

⑧ N. Itagaki, Sputter deposition of zinc-indium oxynitride semiconductors with narrow bandgap for excitonic transistors, 5th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials, 2013 年 2 月 1 日, Nagoya University, Japan

⑨ N. Itagaki, Sputter Deposition of Atomically-Flat ZnO Films on Lattice Mismatched Substrates via Nitrogen Mediated Crystallization, The Korea Japan Workshop and AJC Meeting, 2013 年 1 月 26 日, Okazaki Conference Center, Japan

⑩ N. Itagaki, Epitaxial Growth of ZnO Based Semiconductors via Impurity-Additive Mediated, 2012 MRS Fall Meeting, 2012 年 11 月 26 日, Hynes Convention Center, USA

⑪ N. Itagaki, Sputter deposition of Epitaxial Zinc-Indium Oxynitride Films for Excitonic Transistors, The 34th International Symposium on Dry Process, 2012 年 11 月 16 日, the University of Tokyo,

Japan

⑫ N. Itagaki, Zinc-Indium Oxynitride Thin Films for Multiple-Quantum Well Solar Cells, 11th Asia-Pacific Conference on Plasma Science and Technology, 2012年10月3日, Kyoto University, Japan

⑬ N. Itagaki, Zinc-Indium Oxynitride Semiconductors for Piezo-Electric-Field Effect MQW Solar Cells, IUMRS - ICEM 2012, 2012年9月27日, Pacifico Yokohama, Japan

⑭ N. Itagaki, Crystallinity control of sputtered ZnO films by utilizing buffer layers fabricated via nitrogen mediated crystallization: Effects of nitrogen flow rate, 13th International Conference on Plasma Surface Engineering, 2012年9月12日, Garmisch-Partenkirchen, Germany

⑮ 板垣奈穂, 高効率量子井戸型太陽電池のための新規酸窒化物半導体薄膜の作製、第9回「次世代の太陽光発電システム」シンポジウム, 2012年5月31日、京都テルサ

⑯ N. Itagaki, Piezo-electric-field effect MQW solar cells based on novel oxynitride semiconductors, JST-PRESTO International Joint Symposium on Photo-Science Leading to a Sustainable Society: Environment, Energy, Functional Materials, 2012年3月27日, 慶應義塾大学

⑰ 板垣奈穂, 窒素添加結晶化バッファー層による ZnO:Al 薄膜の結晶性制御: 窒素供給量の影響、第59回応用物理学関係連合講演会、2012年3月17日、早稲田大学

⑱ N. Itagaki, Novel fabrication method for ZnO films via nitrogen-mediated crystallization, SPIE(international society for optics and photonics) photonics west 2012, 2012年1月22日, San Francisco, USA

⑲ N. Itagaki, Zinc oxide-based transparent conducting films with buffer layers fabricated via nitrogen-mediated crystallization, 21st International Photovoltaic Science and Engineering Conference, 2011年12月1日, Pacifico Yokohama, Japan

⑳ 板垣奈穂, Ar/N₂ マグネトロンスパッタによる低抵抗 ZnO:Al 膜の作製、Plasma Conference 2011、2011年11月24日、石川県立音楽堂

㉑ 板垣奈穂, 窒素添加結晶化法による超超一・低抵抗酸化亜鉛薄膜の作製、第27回九州・山口プラズマ研究会、2011年11月7日、柳川、福岡

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 3件)

名称: 多重量子井戸型太陽電池および多重量子井戸型太陽電池の製造方法

発明者: 板垣奈穂, 白谷正治, 内田儀一郎

権利者: 同上

種類: 特許

番号: PCT/JP2013/055973

出願年月日: 2013年03月05日

国内外の別: 国外

名称: 多重量子井戸型太陽電池及び多重量子井戸型太陽電池の製造方法

発明者: 板垣奈穂, 白谷正治, 内田儀一郎

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 特願 2012-49805

出願年月日: 2012年03月06日

国内外の別: 国内

名称: ZnO 膜の製造方法、透明導電膜の製造方法、ZnO 膜、及び透明導電膜

発明者: 板垣奈穂、白谷正治、古閑一憲、内田儀一郎、鎌滝晋礼

権利者: 同上

種類: 特許

番号: PCT/JP2011/069348

出願年月日: 2011年08月26日

国内外の別: 国外

〔その他〕

ホームページ等

<http://hyoka.ofc.kyushu-u.ac.jp/search/details/K003622/>

http://plasma.ed.kyushu-u.ac.jp/~itagaki_lab/index.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

板垣 奈穂 (ITAGAKI NAHO)

九州大学・システム情報科学研究院・准教授

研究者番号: 60579100

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: