

研究種目： 基盤研究(A)

研究期間： 2007 ~ 2010

課題番号： 19205026

研究課題名(和文) 六方晶窒化ホウ素結晶の高輝度深紫外線発光制御

研究課題名(英文) Control of deep ultraviolet light emission properties of hexagonal boron nitride crystals

研究代表者

谷口 尚 (TANIGUCHI TAKASHI)

独立行政法人物質・材料研究機構・ナノスケール物質萌芽ラボ・グループリーダー

研究者番号：80354413

研究代表者の専門分野： 高圧下の物質、材料合成

科研費の分科・細目： 材料化学・機能材料、デバイス

キーワード： 遠紫外線発光、六方晶窒化ホウ素、自由励起子発光、高圧結晶合成

1. 研究計画の概要

本研究の目的は六方晶窒化ホウ素(hBN)の深紫外線(DUV)発光材料としてのポテンシャルを、世界に先駆けて開花させることである。

hBN はこれまで断熱材、絶縁材料として工業的に活用されているが、高輝度 DUV 発光を呈するワイドバンドギャップ半導体として応用は未踏であった。2004 年にその発光特性が見出されて以来、その特性の理解と制御手法の確立が重要な課題であった。

本研究課題では、当初の反応性フラックスを用いた高圧合成法から、より汎用的な合成プロセスである常圧下の液相成長法による合成技術の開拓を行った。

hBN 半導体化へのドーピング制御は挑戦度が高いが、本研究課題により本格的に取り組むべきテーマであると捉えている。ドーピング研究は、反応性溶媒を用いた高圧合成法を中心とし、理論的予測との連携の下で基礎的な取り組みを行った。

hBN の発光特性の理解を進める上では光物性の詳細な測定と理論的予測との整合を勘案した取り組みが重要である。高圧合成により得られた高純度 hBN 単結晶を中心に、その光物性についての詳細な検討を行った。

また、将来に向けた hBN の発光デバイス応用研究を加速するための基礎的な取り組みとして、DUV 発光素子を試作し、その特性を評価した。

2. 研究の進捗状況

【高純度 hBN 結晶合成】

Ba 系の反応性溶媒により高純度 hBN 単結晶が得られるが、溶媒の分解を抑制するために高圧環境が必要であった。試行錯誤の末、よ

り汎用的な合成プロセスとして、Ni,Co 等に Mo,Cr 等を添加した金属系溶媒が窒素一気圧の下で高純度 hBN 合成に有用であることを見出した。

【hBN のバンド端発光機構の解明】

hBN の遠紫外発光特性に関して、最新の第一原理計算によると、発光に最も寄与すべき最低エネルギー励起子バンドの光学遷移が禁制であり、実験と整合しないことが指摘されてきた。この不整合は基礎的・応用的見地から解決すべき懸案であった。本研究では高圧法で成長した高純度 hBN 単結晶の発光・吸収・反射スペクトルをヘリウム温度近傍の低温領域で調べ、理論予測の示すフレンケル型励起子が格子系との強い相互作用(ヤン・テラー効果)により光学活性となること、および、自己束縛励起子状態を形成することを見出した。

【hBN を応用した新遠紫外発光素子の開発】

hBN 単結晶粒子を発光層に用い、加速電子線源で励起することにより、ほぼ実用に近い光出力(0.2mW)の安定遠紫外光源の試作に成功した。また、この遠紫外発光デバイスを利用した小型乾電池駆動式遠紫外面発光光源の試作にも成功した。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

(理由)

【高純度 hBN 結晶合成】

高圧合成から常圧合成法への展開がなされ、汎用的な手法による高純度結晶の合成手法が確立された。

【hBN のバンド端発光機構の解明】

これまで議論の多かった励起子発光メカニズムの理解により、発光波長の制御および高効率化を図るためには、結晶積層方向の秩序の制御など、この物質特有の条件の最適化を必要とすることがわかった。

【hBNを応用した新遠紫外発光素子の開発】
現在の遠紫外線発光素子の内でもっとも短波長での最大外部量子効率(0.3%)を得ることができた。また本素子は素子寿命および安定性の面から遠紫外領域で最も実用に近い発光素子である。

4. 今後の研究の推進方策

【hBNのバンド端発光機構を応用した新しいデバイス原理の研究】

hBNの励起子発光メカニズムを担う励起子波動関数は、通常の半導体のそれとは異なり原子サイトに局在化している。そこで有機半導体などと組み合わせた新しい高効率な発光素子構造を検討する。

【hBNを応用した新遠紫外発光素子の開発】
従来型遠紫外放電光源(たとえば水銀ランプ)の本格的置換えが可能な出力および安定性をもつ遠紫外発光素子を目指す。当面は現在よりも約10倍高い外部量子効率(3%程度)を目指した取り組みを行う。そのために、高効率発光を示すより良質な単結晶粒子を均一に育成する技術および粒子径の微細化技術などを開発し、プロトタイプ遠紫外発光素子の最適化を図る。

5. 代表的な研究成果

(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30件)

- ① K.Watanabe, T.Taniguchi, "Jahn-Teller effect on exciton states in hexagonal boron nitride single crystal". Phys. Rev. B 79, 193104-1-4 (2009)., 査読有り
- ② K.Watanabe, T.Taniguchi, T.Niiyama, K.Miya, M.Taniguchi,"Far-ultraviolet plane-emission handheld device based on hexagonal boron nitride". Nat. Photonics 3, 591-594 (2009), 査読有り
- ③ Kubota, K.Watanabe, O.Tsuda, T.Taniguchi, "Deep Ultraviolet Light-Emitting Hexagonal Boron Nitride Synthesized at Atmospheric Pressure" Science, 317, 932-934 (2007), 査読有り

〔学会発表〕(計36件)

- ① F. Oba, A. Togo, I. Tanaka, K. Watanabe, and T. Taniguchi "Doping of hexagonal boron nitride via intercalation: A first-principles study" 2009 MRS fall

meeting, 2009/11/30, Boston, USA

- ② 渡辺賢司, 谷口尚, "低温における六方晶窒化ホウ素の励起子発光スペクトル" 第22回ダイヤモンドシンポジウム 2008年10月21日, 早稲田大学、東京
- ③ T.Taniguchi, et.al "Synthesis and characterization of doped boron nitride crystals" New Diamond and Nano Carbons 2007 (NDNC2007). 2007年5月28日, 千里ライフサイエンスセンター、大阪.

〔図書〕(計4件)

- ① T.Taniguchi, K.Watanabe in "Wide Bandgap Semiconductors" pp.348-351 (chap.6.1.4) 2007. Springer.

〔産業財産権〕

○出願状況(計4件)

名称: 六方晶窒化ホウ素単結晶およびそれを用いた紫外線発光素子
発明者: 渡辺賢司, 谷口尚
権利者: (独)物質・材料研究機構
種類: 特願
番号: 2009-064552
出願年月日: 2009/03/17
国内外の別: 国内