

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年5月31日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22360277

研究課題名（和文）透明酸化亜鉛薄膜の高周波物性評価とその高周波デバイスへの応用

研究課題名（英文）Evaluation of high frequency properties of transparent zinc oxide thin films and their application

研究代表者

羽田 肇（HANEDA HAJIME）

独立行政法人物質・材料研究機構・企画部門・部門長

研究者番号：70354420

研究成果の概要（和文）：代表的な情報通信機器端末である携帯電話の小型・多機能化によって、アンテナ等の高周波モジュールの小型化の要請、およびそれらの素子間の干渉の抑止という2つの技術課題が顕在化してきた。そこで、本研究では、これら課題を解決するための手段として、透明アンテナに代表される高周波素子を提案した。すなわち、素子を透明にすることで、通信端末のディスプレイを高周波回路の実装スペースとして利用する可能性を検討した。そのため、本研究では、これまで十分に研究されていない透明導電膜の高周波特性を明らかにし、透明導電膜の物性に適した高周波素子の構造を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：In order to promote modern communications equipment and communication networks, issues for miniaturization and inhibition of interference in high-frequency module, such as antenna, grew increasingly apparent. To overcome them, we are developing transparent device for the high-frequency applications. Adapting this concept, space for display can be used for mounting the transparent high-frequency devices. In this study, properties at high-frequency of transparent thin films, such as ZnO of which studies had not been enough, are evaluated, and optimize structure of the transparent device at high-frequency is proposed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	8,300,000	2,490,000	10,790,000
2011年度	3,100,000	930,000	4,030,000
2012年度	3,300,000	990,000	4,290,000
年度			
年度			
総計	14,700,000	4,410,000	19,110,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学，無機材料・物性

キーワード：透明導電性酸化物，高周波物性

1. 研究開始当初の背景

携帯端末やディスプレイ等の多機能化・小型化の進歩に伴い、電子部品やモジュールの小型化が著しく発達しているものの、実装スペースが限界にきている為に、全く新しい考え方を基礎としたデバイス創成が求められている。例えば、携帯端末には、W-CDMAを

はじめ、OneSeg, BlueTooth, WLAN, FM-radio など多くのモジュールが組み込まれている。今後、さらにUWB (Ultra Wide Band) や WiMAX(Worldwide Interoperability for Microwave Access)などの様々な周波数モジュールの搭載が、期待されている。このためには、さらに、高周波デ

デバイスを小型化し、実装面積をコンパクトにすることが必要となるが、アンテナのような原理的に小型化が困難なデバイスも存在し、多機能化を妨げる一要因となっている。一方で、ディスプレイは、大面積化する傾向にあり、携帯端末内で占める空間の割合は大きくなっている。そこで、ディスプレイに実装できるデバイスができれば、デバイスの省スペース、多機能化を一挙に解決できる。すなわち、透明高周波デバイスの創成技術は、今後、高周波領域でのキーテクノロジーとなることが期待される。

2. 研究の目的

ディスプレイに高周波デバイスを実装するためには、デバイスが透明であることが不可欠である。ディスプレイを実装スペースとして利用したタッチパネル等も実現しており、透明トランジスタの提案もなされている。しかしながら高周波用デバイスとしては、ほとんど提案すらなされていないのが現状である。これは、透明導電薄膜の高周波特性が十分調査されていないことに起因している。以上の現状を踏まえ、本提案では、透明体として ZnO 薄膜を取り上げ、その高周波特性を評価すると共に、高周波デバイスとしての可能性について調査することを目的とした。

3. 研究の方法

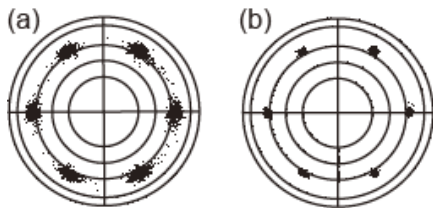


図1 In₂O₃ 添加 ZnO 薄膜の X 線極点回折図
(a) バッファ層なし (b) バッファ層あり

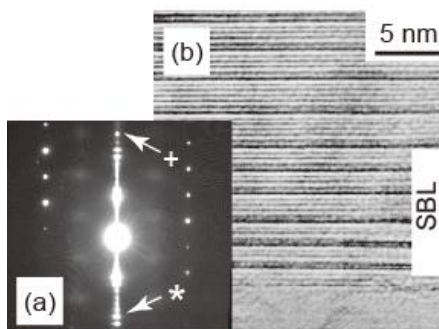


図2 アニールした In₂O₃ 添加 ZnO 薄膜断面 TEM 像 (a) Diffraction パターン (b) 高解能

まず、RF スパッタ法により主に石英ガラスを基板とした高導電性 ZnO 薄膜の作製を行

うと同時に、GHz 帯の高周波領域での電磁界シミュレーションを実施し、導波特性に及ぼす要因を究明した。点欠陥分布を明らかにすることで、GHz 帯の高周波特性との関係を明らかにし、この成果に基づいて製膜条件の最適化を行った。さらに GHz 帯におけるアンテナデバイスのシミュレーションを行い、アンテナデバイスの構造最適化を行う。シミュレーション結果に基づいた透明 ZnO 薄膜アンテナを作製、アンテナ特性を評価し、ZnO の高周波に関わる本来物性、欠陥・微構造に関わる物性、デバイス構造に由来する物性の三者関係を明らかにし、導電性 ZnO 薄膜の GHz 帯域の高周波デバイスとしての可能性を明らかにした。

4. 研究成果

まず、透明高周波素子に必要な高い伝導性をもった酸化物透明導電膜のスパッタリング法による合成についての検討した。特に、レアメタル問題が危惧されるインジウムを主成分とするインジウム・スズ酸化物(ITO)と同等の導電率を得られると期待される III 族元素添加酸化亜鉛(ZnO)の導電性、特に、製膜条件や添加物濃度、さらに薄膜の微細構造と導電性の関係について議論した。

薄膜の微細構造制御については、基板上にバッファ層を形成することで ZnO の核生成段階での組織制御を検討した。その結果、図1に示すように、バッファ層を活用することで、インジウムを高濃度に添加した際にも、結晶方位の揃った ZnO 薄膜の成長が可能となった。また、高濃度にインジウムを添加した ZnO を熱処理することで図2に示す様な天延超格子構造が発現し、キャリアの局在化が起こることを示し、高濃度ドーピングした薄膜の熱安定性にも検討した。

さらに、直流電気抵抗によって評価した透明導電膜の高周波特性について検討した。電磁界シミュレータを用いて得られた S パラメータの計算値とベクトルネットワークアナライザを用いて測定した S パラメータの実測値を比較し評価した。特に、微細な粒子の集合体となっている薄膜の微細構造が高周波特性に与える影響に注目して、コプレーナ導波路の特性について検討した。透明導電膜の膜厚方向に抵抗率分布を持つモデルや薄膜の表面粗さを考慮したモデルと、均一で平滑な単純モデルとの比較を行ったところ、不均一や粗さによって高周波特性はほとんど変化しないことが示された。そこで、透明導電膜からなるコプレーナ導波路線路を実際に作製してその S パラメータを測定したところ、その実測値は、均質で平滑な単純な導電体を仮定したモデルとよく一致した。このことから、透明導電膜の微細構造は高周波特性に大きな影響を与えず、薄膜の直流導電率を

パラメータとして用いた単純なモデルで表現できることが分かった。一方、透明導電膜のシート抵抗が金属に比べて桁違いに高いことから伝送ロスが顕著であり、透明導電膜のみでは、実用的な特性は得られないことも明らかになった。

上記の知見を基に、金属に比べて導電率室の低い透明導電体を実用的な高周波伝送特性を持った素子として応用するための、素子構造の検討を行った。特に、透明性を保ったまま、実効的なシート抵抗値を低減するための素子構造として、図3に示すような、目視では確認することが困難な金属細線(幅 $10\mu\text{m}$)と透明導電体からなるハイブリッド構造を考案し、その有効性について検討した。

図4は実際に作製した素子を示す。ガラス基板上に、金属細線と透明導電体から成る高周波素子を形成したものである。検討の結果、特に、透明導電体の端部に金属細線を配置することにより、よりエッジ効果が得られることで信号線の実効的な抵抗値は低減し、信号の通過特性(S_{21})は大きく改善した。この構造では透明導電膜の線幅で特性インピーダンスを制御できるため、低反射特性(S_{11})も実現することができた。また、図5に示すとおり、シミュレータによる計算結果と実測値はよく一致し、シミュレーションによるハイブリッド構造素子の設計が可能であることが確認された。

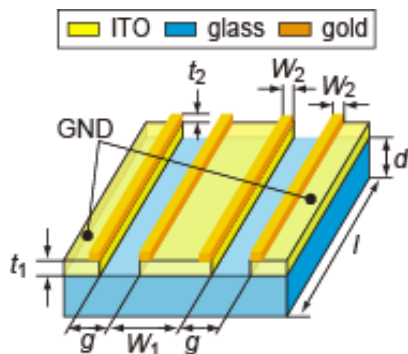


図3 微細金属を配置した透明伝送線路構造

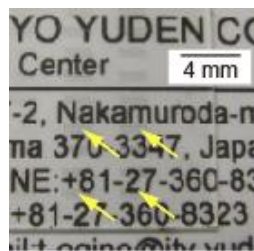


図4 透明伝送線路

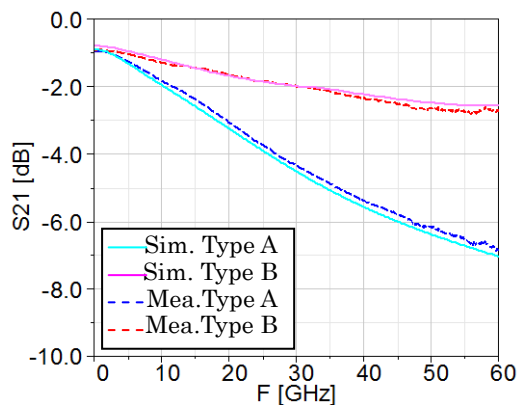


図5 通過特性

果、特に、透明導電体の端部に金属細線を配置することにより、よりエッジ効果が得られることで信号線の実効的な抵抗値は低減し、信号の通過特性(S_{21})は大きく改善した。この構造では透明導電膜の線幅で特性インピーダンスを制御できるため、低反射特性(S_{11})も実現することができた。また、図5に示すとおり、シミュレータによる計算結果と実測値はよく一致し、シミュレーションによるハイブリッド構造素子の設計が可能であることが確認された。

これらの結果を受け、透明導電膜を用いたデバイスとして、モノポールアンテナを検討した。その結果、シート抵抗値が、数 Ω/\square の透明導電膜を用いれば、金属と比較しても遜色ないアンテナ特性が得られること実測により確認した。このことから、モノポールアンテナは、透明導電膜に適したアンテナ構造であることがわかった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計5件)

- ① T. Aubert, N. Nerambourg, N. Saito, H. Haneda, N. Ohashi, M. Mortier, S. Cordier, F. Grasset, "Tunable Visible Emission of Luminescent Hybrid Nanoparticles Incorporating Two Complementary Luminophores: ZnO Nanocrystals and [Mo6Br14]2- Nanosized Cluster Units", PARTICLE & SYSTEMS CHARACTERIZATION, Vol. 30, Issue 1, P.90-95, (2012) 査読あり
- ② T. Aubert, A-Y. Lendeva, F. Grasset, K. Kimoto, N-G. Naumov, Y. Molard, N. Saito, H. Haneda, S. Cordier, "Synthesis and Characterization of A(4)[Re(6)Q(8)L(6)]@SiO(2) Red-Emitting Silica Nanoparticles Based on Re(6) Metal Atom Clusters (A = Cs or K, Q = S or Se, and L = OH or CN).", LANGMUIR Vol. 26 No. 23 p18512-18518 (2010) 査読あり
- ③ Meiyong Liao, Chun Li, S. Hishita, Y. Koide "Batch production of single-crystal diamond bridges and cantilevers for microelectromechanical systems", JOURNAL OF MICROMECHANICS AND MICROENGINEERING, 20(8), 085002 (2010). 査読あり
- ④ 荻野 剛士, 和田 光司, 中島 邦彦, 羽田 肇, 大橋 直樹, "透明導電性酸化物に微細金属配線を配置したコプレーナ一線路に関する検討", 電子情報通信学会論文誌 C, Vol. J93-C, No. 12, p. 672-673 (2010) 査読あり

- ⑤ T.Aubert, F.Grasset, S.Mornet, E.Duguet, O.Cador, A.Cordier, Y.Molard, V.Demange, M.Mortier, H.Haneda, “Functional silica nanoparticles synthesized by water-in-oil microemulsion processes”, JOURNAL OF COLLOID AND INTERFACE SCIENCE Vol.341 No.2 p201-208 (2010) 査読あり

[学会発表] (計 13 件)

- ① 安達 裕, 大橋 直樹, 坂口 勲, 羽田 肇, “極性がヘビードーパ ZnO および (Mg, Zn) O 薄膜の結晶成長, 光学特性および電気特性に及ぼす影響”, 日本セラミックス協会第 25 回秋季シンポジウム (名古屋市) 2012. 9. 20
- ② 大垣 武, 安達 裕, 坂口 勲, 菱田 俊一, 大橋 直樹, 羽田 肇, ” MBE 法によるサファイア r 面基板上への窒化スカンジウム薄膜の作製”, 日本セラミックス協会第 25 回秋季シンポジウム (名古屋市) 2012. 9. 20
- ③ 菱田 俊一, 羽田 肇, “エピタキシャル二酸化スズ薄膜のセンサー特性”, 日本セラミックス協会第 25 回秋季シンポジウム (名古屋市) 2012. 9. 20
- ④ 齋藤 紀子, 松本 研司, 羽田 肇, “水とエチレングリコールを溶媒にした球状酸化亜鉛の合成”, 日本セラミックス協会第 25 回秋季シンポジウム (名古屋市) 2012. 9. 19
- ⑤ 大橋直樹, 島村清史, 谷口孝志, 渡邊賢司, 坂口勲, 大垣武, 菱田俊一, 北村健二, 羽田肇, ” ワイドギャップ材料の探索とその特性評価”, 学術振興第 166 委員会研究会 (東京都) 2012. 4. 27
- ⑥ 荻野 剛士, 菱田 俊一, 坂口 勲, 安達 裕, 中島 邦彦, 大橋 直樹, 羽田 肇, “透明導電性酸化物を用いた透明高周波デバイスの検討” 日本セラミックス協会第 2 4 回秋季シンポジウム (札幌市) 2011. 9. 9
- ⑦ H.Haneda, “Compositional Characterization of Nano-materials and Thin Films with Secondary Ion Massspectrometry “, The second International Syimposium on Advanced Nano-Materials (Nagoya) 2011.8.1
- ⑧ H.Haneda, I.Sakaguchi, K.Matsumoto, T.Ogino, S.Hishita, Y.Adachi, T.Ohgaki, N.Ohashi, “Self -Diffusion properties in ZnO thin films deposited by PLD Method ”, The 27th International Korea-Japan Seminar on ceramics 2010.11.24

- ⑨ H.Haneda, I.Sakaguchi, K.Matsumoto, T.Ogino, S.Hishita, Y.Adachi, T.Ohgaki, N.Ohashi, “Diffusion Phenomena in ZnO Thin Films Deposited by PLD Method ”, 3rd International Congress on ceramics(ICC3) (Osaka Japan) 2010.11.18
- ⑩ H.Haneda, T.Ohgaki, T.Ogino, K.Watanabe, I.Sakaguchi, N.Ohashi, “Nitrogen diffusion in AlN thin films deposited by a MBE method”, STAC-4 (Tokohama Japan) 2010.6.23
- ⑪ H.Haneda, N.Ohashi, I.Sakaguchi, Y.Adachi, T.Ohgaki, K.Matsumoto, “ Diffusion behavior in thin film with wurtzite crystal structure” , Electroceramics XII (Trondheim Norway) 2010.6.15
- ⑫ H.Haneda, I.Skaguchi, N.Ohashi, S.Hishita, “ Defect structure of zinc oxide and related properties” , CIMTEC2010, 12th International Ceramics Congress (Terme, Montecatini Italy) 2010.6.10
- ⑬ H.Haneda, K.Watanabe, K.Matsumoto, N. Saito (Shinjo) , T.Ohgaki, Y.Moriura, I.Sakaguchi, Y.Adachi, N.Ohashi, “Precipitations of ZnO particles from solutions and their chemical sensing properties.” , 2010 MRS Spring Meeting (San Fransico USA) 2010.4.9

6. 研究組織

(1) 研究代表者

羽田 肇 (HANEDA HAJIME)

独立行政法人物質・材料研究機構・

企画部門・部門長

研究者番号：70354420

(2) 研究分担者

大橋 直樹 (OHASHI NAOKI)

独立行政法人物質・材料研究機構・

環境・エネルギー材料部門長

研究者番号：60251617

坂口 勲 (SAKAGUCHI ISAO)

独立行政法人物質・材料研究機構・

セラミックス化学 G・主幹研究員

研究者番号：20343866

安達 裕 (ADACHI YUTAKA)

独立行政法人物質・材料研究機構・

光・電子機能 G・主任研究員

研究者番号：30354418

大垣 武 (OGAKI TAKESHI)

独立行政法人物質・材料研究機構・

光・電子機能 G・主任研究員

研究者番号：80408731

菱田 俊一 (HISHITA SHUNICHI)

独立行政法人物質・材料研究機構・

セラミックス化学G・グループリーダー

研究者番号：40354419

斎藤 紀子 (SAITO NORIKO)

独立行政法人物質・材料研究機構・

セラミックス化学G・主任研究員

研究者番号：20354417