

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630127

研究課題名(和文) 酸窒化物量子井戸中のエキシトン流を利用した高速・低消費電力トランジスタの創成

研究課題名(英文) Fabrication of high-speed and low-power exciton transistors using oxynitride quantum wells

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科(研究院・准教授)

研究者番号：60579100

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：LSI内の光伝送に対応した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なエキシトントランジスタは、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、エキシトントランジスタの室温動作を目指し、独自に考案した「piezo電界誘起構造」と新規半導体材料「ZION」を用いて、エキシトン流の高効率生成およびその制御を試みた。その結果、高品質ZION薄膜からなるpiezo電界誘起量子井戸構造の形成に成功し、エキシトン流が光によってモススイッチング可能であることを見出した。本成果は、光-エキシトン-電子集積回路の実現につながるものと期待される。

研究成果の概要(英文)：Excitonic transistors have attracted attention because of the 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. In this study, aiming to obtain room-temperature operating excitonic devices, we have developed a new type of transistor, "piezoelectric-field enhanced exciton transistors", where a novel semiconductor "ZION" is utilized. As a results, we have succeeded in fabrication of high-quality ZION quantum wells in which large piezoelectric fields are generated. We also found that in out piezoelectric-field enhanced transistors, exciton flow can be switched by photo irradiation. We believe that these results will open up a new pathway to realize optical-excitonic-electronic integrated circuits.

研究分野：無機材料科学, プラズマ理工学

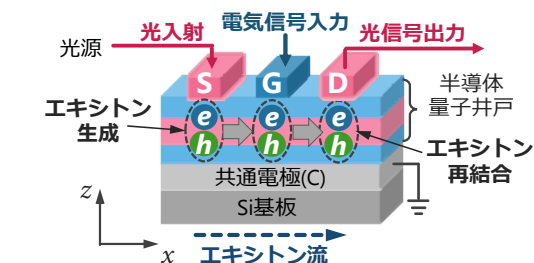
キーワード：エキシトン トランジスタ 量子井戸 酸窒化物半導体 ZION 集積回路 スパッタリング 薄膜

1. 研究開始当初の背景

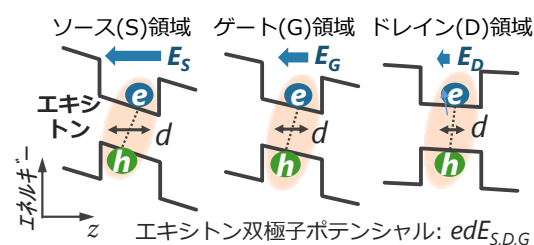
LSI 伝送の光化が進んでいる。電気配線では高速化とともに伝送損失が増大することに加え、LSI の高集積化に伴い、配線抵抗・配線間容量による信号遅延や電力消費が無視出来なくなっているためである。LSI において、演算・記憶は電子回路により行われるため、光伝送のためには電気信号(E)を光信号(O)に変換する必要がある。しかし、従来のE/O変換器は、電子デバイスに比べるとサイズがはるかに大きく、LSI内における光伝送化のボトルネックとなっている。

エキシトントランジスタは、半導体量子井戸内のエキシトンを利用した、新しい原理のE/O変換デバイスである(図1)。素子サイズが極めて小さく( $< \mu\text{m}$ )、高速動作が可能のため、LSI内光配線化のブレークスルーをもたらすと期待される。これまで、エキシトントランジスタの材料には、GaAs系半導体を用いられてきたが、その小さなエキシトン束縛エネルギーと、高い再結合確率のため、近年までデバイス動作は確認されていなかった。動作実証を初めて報告したのはカリフォルニア大サンディエゴ校 Butov 教授の研究グループで(A. A. High et al., Opt. Lett. 32 (2007) 2466)。彼らは後述の2重量子井戸構造を用いることで再結合の問題を解決した。(図2(a), Grosso et al., Nature Photonics, 3 (2009) 577)。これによりエキシトン流の生成が可能となり、世界初と

(a) エキシトントランジスタのデバイス構造



(b) 量子井戸構造



(c) エキシトン双極子ポテンシャル

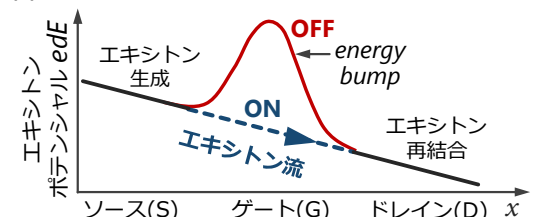


図1. エキシトントランジスタの動作原理。

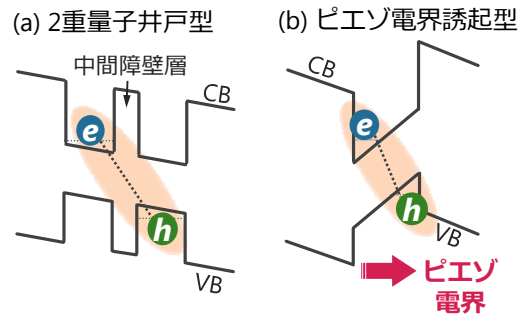


図2. (a) 従来エキシトントランジスタにおける量子井戸構造. (b) 本提案エキシトントランジスタにおける量子井戸構造。

なるスイッチング動作が実証された。しかし上記構造では電子・正孔間の距離が長く、クーロン力、即ちエキシトン束縛エネルギーが小さいという致命的な欠点があり、動作温度は150Kに限定される。

そこで本研究では、新しいエキシトントランジスタのデバイス構造として、「ピエゾ電界誘起構造」(図2(b))を提案する。ピエゾ電界により電子・正孔の波動関数が分離されるため、単一量子井戸内でもエキシトンが再結合することなく存在できる。これにより高温動作が可能となると期待される。

2. 研究の目的

本研究では、エキシトントランジスタの室温動作を目指し、独自に考案した「ピエゾ電界誘起構造」と新規半導体材料「ZION」を用いた、エキシトン流の高効率生成およびその制御を目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、「ピエゾ電界誘起量子井戸」を、新材料「ZION」により実現する。ZIONは、ZnOとInNの擬2元系混晶((ZnO)<sub>x</sub>(InN)<sub>1-x</sub>)であり(雑誌論文1,2,4,7)、以下の点でエキシトントランジスタ材料として適していると考えられる。

- 1) 高いエキシトン束縛エネルギー: 高い束縛エネルギー(60meV)を有するZnOをベースとしているため、室温でも高いエキシトン存在確率が期待できる。
- 2) 長いエキシトン再結合寿命: ZIONは、 $\epsilon_{33} \sim 1 \text{ C/m}^2$ の大きな圧電定数を有し、量子井戸を形成すると数MV/cmの大きなピエゾ電界が発生することが予想される。この電界によりエキシトンの再結合が抑制されるため、従来のIII-V族材料に比べ再結合寿命が大幅に伸びると期待される。これにより、室温での高効率エキシトン流生成が可能となる。
- 3) 可視域および近赤外をカバーするバンドギャップ: ZnOとInNはそれぞれ3.4eV、および0.7eVのバンドギャップを有するため、ZION中の混晶比を制御することで、広い範

囲でのバンドギャップチューニングが可能になると期待される。これにより、遠距離通信の近赤外光から近距離通信の可視域光まで、全ての波長帯域に対応したデバイスの作製が可能となる。

本研究では、まず、スパッタリング法を用いて異なる混晶比を有する ZION を形成する。高品質化の手段としては、研究代表者オリジナル技術である「不純物添加結晶化 (Impurity Mediated Crystallization: IMC) 法」(雑誌論文 3, 5, 8, 10, 11) を用い、ZION の単結晶成長を行う。最後に、上記単結晶 ZION 膜を用いて piezo 電界誘起型量子井戸を形成し、光照射によるエキシトン生成を行うとともに、そのスイッチングを行う。

#### 4. 研究成果

##### 1) スパッタリング法による新材料 ZION の作製

ZnO と InN は非混和性が高く、その擬 2 元系混晶からなる ZION は熱平衡下では合成が難しい材料であるが、ラジカル制御スパッタリング法によりその作製に成功した(雑誌論文 6)。本材料は、ウルツ鉱型の結晶構造に起因した大きな圧電定数と、高い光吸収係数 ( $10^5 \text{ cm}^{-1}$ )、可視光全域で変調可能なバンドギャップ(図 2(b))を持つことから、本提案のエキシトンランジスタ材料として有望といえる。キャリア移動度も  $100 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  と高く、組成制御によりさらなる狭ギャップ化が可能である。

2) IMC 法を用いた ZION の高品質結晶成長  
研究代表者オリジナル技術「IMC 法」により、世界初となる単結晶 ZION 膜の作製に成功した。本手法は、不純物の吸着脱離反応を制御することで初期核形成を制御する手法である。IMC 法ではまず、基板の上に極小粒径の結晶粒を高密度に形成する。これにより基板との格子不整合により発生する歪みを緩和し、完全な結晶配向性と超平坦表面を兼ね揃えた多結晶膜を形成する。次にこの多結晶膜をバッファ層とし、膜を 2 次元成長させることで単結晶膜を得る。本手法は、特に ZION のような格子整合基板の無い新材料の結晶成長において強力なツールとなる。図 3 に、サファイア基板上に形成した ZION 膜の表面原子間顕微鏡(AFM)像を示す。成膜にはスパッタリング法を用いている。高格子不整合(~18%)基板にも関わらず高品質な単結晶膜が形成された。残留キャリア密度は研究開始当初  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  であったが、上記結晶成長法の適用により、 $10^{15} \text{ cm}^{-3}$  まで低減し、高品質な ZION 膜を得ることに成功した。

##### 3) piezo 電界誘起型量子井戸の形成

本提案のデバイス構造において、piezo 電界

は ZION 内に生じる結晶歪みにより発生させる。具体的には、ZION 量子井戸を形成し、井戸層を障壁層に対してコヒーレント(格子緩和せず)に成長させることで発生させる。このとき、結晶欠陥は歪み緩和を引き起こすため、高品質な結晶成長が要求される。本研究では、項目 2)の IMC 法を量子井戸形成に応用することで、piezo 誘起量子井戸構造の作製に成功した。サファイア基板上 ZION 量子井戸の (105) 面逆格子マップを測定したところ、井戸層の a 軸方向の格子定数が障壁層と完全に一致し、コヒーレント成長していることが確認され、このとき約  $3 \text{ MV/cm}$  の piezo 電界が発生することが分かった。

##### 4) 光によるエキシトンスイッチング

項目 3)で作製した piezo 電界誘起型量子井戸では、ゲート領域への信号光入射によってエキシトン流をスイッチングできることが分かった。図 3 に、ZION 量子井戸(井戸層バンドギャップ  $E_g: 3 \text{ eV}$ )を用いたエキシントンランジスタにおいて、ドレイン(D)ー共通電極(C)間に流れた光電流を示す。このとき、ZION 量子井戸には光源からの連続光に加え、信号光 ( $2.3 \text{ eV}$ ) を重畳照射している。信号光重畳による電流増加は、エキシトンの解離によるものである。piezo 電界が無い場合、信号光重畳の有無でエキシトン流の変化は無かったのに対し、piezo 電界が有る場合、信号光により多くのエキシトンが解離消滅し、エキシトン流がオフとなることが分かった。これは、piezo 電界によりエキシトンの再結合が抑制され、再結合が起きる前に、信号光によるエキシトンの解離が生じたためと考えられる。このように、本提案の piezo 電界誘起量子井戸では、エキシトンの再結合が抑制されるだけでなく、光によるエキシトン流のスイッチングが可能であることが分かった。本成果は、光-エキシトン-電子集積回路の実現につながるものと期待される。

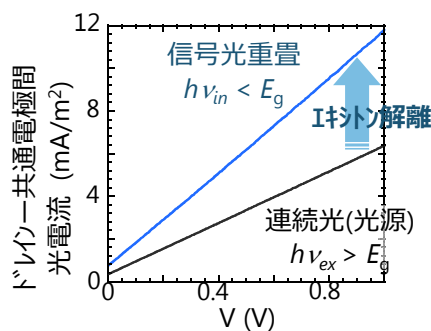


図 3. ZION 量子井戸への信号光照射によるエキシトン流スイッチング。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 11 件)

- 1) K. Matsushima, N. Itagaki et al. (8 番目, 全 8 名), "Fabrication of ZnInON/ZnO multi-quantum well solar cells", Thin Solid Films, in press (査読有り) DOI: 10.1016/j.tsf.2015.01.012.
- 2) N. Itagaki et al. (1 番目, 全 6 名) "ZnO-based semiconductors with tunable band gap for solar cell applications", Proc. SPIE OPTO, 93640P-6, 2015 (査読有り) DOI: 10.1117/12.2078114.
- 3) T. Ide, N. Itagaki et al. (8 番目, 全 8 名), "Effects of morphology of buffer layers on ZnO/sapphire heteroepitaxial growth by RF magnetron sputtering", MRS Proceedings, 1741, aa09-12, 2015 (査読有り) DOI: 10.1557/opl.2015.87.
- 4) K. Matsushima, N. Itagaki et al. (8 番目, 全 8 名), "Fabrication of p-i-n solar cells utilizing ZnInON by RF magnetron sputtering", MRS Proceedings, 1741, aa09-10, 2015 (査読有り) DOI: 10.1557/opl.2015.248.
- 5) 板垣奈穂, 古閑一憲, 白谷正治, "スパッタリング成膜法による高品質酸化亜鉛薄膜の形成", 応用物理 83, 385, 2014 (査読有り) <https://www.jsap.or.jp/ap/2014/05/ob830385.xml>.
- 6) I. Suhariadi, M. Shiratani, N. Itagaki, "Growth mechanism of ZnO deposited by nitrogen mediated crystallization", Mater. Res. Express 1, 036403, 2014 (査読有り) DOI: 10.1088/2053-1591/1/3/036403.
- 7) N. Itagaki et al. (1 番目, 全 6 名), "Synthesis and characterization of ZnInON semiconductor: a ZnO-based compound with tunable band gap", Mater. Res. Express 1, 036405, 2014 (査読有り) DOI: 10.1088/2053-1591/1/3/036405.
- 8) N. Itagaki et al. (1 番目, 全 7 名), "Off-axis sputter deposition of ZnO films on c-sapphire substrates by utilizing nitrogen-mediated crystallization method", Opt. Engineering, 53, 087109, 2014 (査読有り) DOI: 10.1117/1.OE.53.8.087109.
- 9) J.W. Allen, N. Itagaki et al. (4 番目, 全 7 名), "Infrared Plasmonics via ZnO", J. Nano Res. 8, 109, 2014 (査読有り) DOI: 10.4028/www.scientific.net/JNanoR.8.109.
- 10) N. Itagaki et al. (1 番目, 全 6 名), "Off-axis sputter deposition of ZnO films on c-sapphire substrates with buffer layers prepared via nitrogen-mediated crystallization", Proc. SPIE photonics west 2014, 8987, 89871A, 2014 (査読有り) DOI: 10.1117/12.2041081.
- 11) I. Suhariadi, N. Itagaki et al. (8 番目, 全 8 名), "Study on the Crystal Growth Mechanism of ZnO Films Fabricated Via Nitrogen Mediated

Crystallization", Jpn. Phys. Soc. Conf. Proc., 1, 015064, 2014 (査読有り) DOI: 10.7566/JPSCP.1.015064.

[学会発表] (計 18 件)

- 1) 板垣奈穂, 可視領域でバンドギャップチューニング可能な ZnO 系新材料の開発, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 2015.03.12, 東海大学(神奈川県・平塚市), 招待講演.
- 2) N. Itagaki, ZnO-based semiconductors with tunable band gap for 3rd generation solar cells, International Society for Optics and Photonics (SPIE), Photonics West 2015, 2015.02.09, San Francisco (U.S.A.), 招待講演.
- 3) 板垣奈穂, 不純物添加結晶化法による高品質 ZnO 薄膜の形成, 日本学術振興会 166 委員会 第 66 回研究会, 2015.01.30, アイビーホール青学会館 (東京都・渋谷区), 招待講演.
- 4) N. Itagaki, ZnO-based semiconductors with tunable band gap for solar cell application, 2015 Japan-Korea Joint Symposium on Advanced Solar Cells, 2015.01.10, TKP HAKATAEKIMAE Meeting Room (福岡県・福岡市), 招待講演.
- 5) N. Itagaki, Sputtering Growth of ZnO-based semiconductors with Band Gap Tunability over the Entire Visible Spectrum, Pacific Rim Symposium on Surfaces, Coatings and Interfaces (PacSurf 2014), 2014.12.09, Kohala Coast (U.S.A.), 招待講演.
- 6) N. Itagaki, Sputtering Growth of High-Quality ZnO-based Semiconductors for Optoelectronic Applications, American Vacuum Society 61st International Symposium and Exhibition, 2014.11.13, Baltimore (U.S.A.), 招待講演.
- 7) 板垣奈穂, 超高効率太陽電池への挑戦～量子効果を利用した新型太陽電池の実現に向けて～, 第 25 回精密加工プロセス研究会講演会, 2014.10.09, リファレンス駅東ビル (福岡県, 福岡市), 招待講演.
- 8) N. Itagaki, Fabrication of Pseudo-binary ZnO-InN Alloys with Tunable Bandgap by Low-Temperature Magnetron Sputtering, 15th IUMRS-International Conference in Asia, 2014.08.29, 福岡大学 (福岡県, 福岡市), 招待講演.
- 9) N. Itagaki, Sputter-Deposition of Pseudobinary ZnO-InN Alloys with Tunable Bandgap for Photovoltaic Application, International Conference on Microelectronics and Plasma Technology 2014 (ICMAP2014), 2014.07.11, Gunsan (Korea), 招待講演.
- 10) 板垣奈穂, 太陽電池のための新規酸窒化物材料の探索, 第 36 回平成 26 年度太陽光発電プロジェクト講演会, 2014.05.21, 宮崎大学 (宮崎県・宮崎市), 招待講演.

- 11) N. Itagaki, Sputtering growth of ZnO-based semiconductors using ZnON buffer layers for optoelectronic applications, The International Symposium on Plasma-Nano Materials and Processes, 2014.04.03, Seoul (Korea), 招待講演.
- 12) 板垣奈穂, 不純物添加結晶化法を用いた高品質 ZnO 薄膜のスパッタリング成膜」 - 格子不整合基板上への単結晶膜の作製から極薄透明導電膜の作製まで-, スパッタリングおよびプラズマプロセス技術部会 (SP 部会) 第 137 回定例研究会, 2014.03.13, 機械振興会館(東京都・港区), 招待講演.
- 13) N. Itagaki, Sputtering growth of single-crystalline ZnO-based semiconductors on lattice mismatched substrates, International Society for Optics and Photonics (SPIE), Photonics West 2014, 2014.02.03, San Francisco (U.S.A), 招待講演.
- 14) 板垣奈穂, ZnInON 系太陽電池材料の探索, 第 5 回薄膜太陽電池セミナー, 2013.11.15, 名古屋大学 (愛知県・名古屋市), 招待講演.
- 15) N. Itagaki, Novel Approach to Sputtering Growth of Single Crystalline Oxide Semiconductors for Optoelectronic Applications, The 9th Asian-European International Conference on Plasma Surface Engineering (AEPSE2013), 2013.08.28, Jeju (Korea), 招待講演.
- 16) N. Itagaki, Novel Application of Ar/N<sub>2</sub> Discharges to Sputtering Growth of High Quality Oxide Semiconductors, The XXXI edition of the International Conference on Phenomena in Ionized Gases (ICPIG), 2013.07.18, Granada (Spain), 招待講演.
- 17) N. Itagaki, Sputter Deposition of Semiconductor-Grade ZnO Based Materials on Lattice Mismatched Substrates, The Collaborative Conference on Materials Research 2013, 2013.06.27, Jeju (Korea), 招待講演.

[その他]

ホームページ等

- 1) <http://plasma.ed.kyushu-u.ac.jp/~inorganic/index.html>
- 2) <http://hyoka.ofc.kyushu-u.ac.jp/search/details/K003622/>

## 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