

研究課題名(和文) 非平衡透明酸化物のパラレル合成による光・電子・磁気機能の高効率探索とデバイス実証

研究課題名(英文) Exploration of photonic, electronic, magnetic, and their mutual functionalities in non-equilibrium and transparent oxide thin films accelerated by parallel epitaxy

研究代表者

氏名(ふりがなをローマ字で記入) 川崎雅司(KAWASAKI, Masashi)  
所属研究機関・部局・職 東北大学・金属材料研究所・教授



研究の概要: ZnO や TiO<sub>2</sub> などの酸化物半導体を対象として、多数の薄膜試料を一括に作製するパラレル合成法を用い、物性制御や機能探索を行った。ZnO 紫外発光ダイオード、ZnO 透明トランジスタ、Co ドープ TiO<sub>2</sub> 磁気トンネル接合などの難形デバイス実証に成功し、酸化物で初めての量子ホール効果の観測にも成功した。

研究分野/科研費の分科・細目/キーワード: 理工学/応用物理学・応用物性/酸化物半導体、薄膜、界面、ヘテロ接合、発光ダイオード、トランジスタ、磁気トンネル接合

#### 1. 研究開始当初の背景

- (1) 酸化物高温超伝導体の発見により一気に加速した酸化物薄膜研究は、超伝導に留まらず強誘電性や巨大磁気抵抗効果など酸化物の多彩な電子機能を活用した新デバイス開発と、原子レベルで制御されたヘテロ構造による精緻な物性研究へと進展してきた。
- (2) 透明な酸化物半導体を用いれば、通常の半導体では不可能な機能やデバイスを実現すると期待できる。

#### 2. 研究の目的

透明な酸化物半導体を対象として、新しい光・電子・磁気機能を開発し、難形デバイスの構築で実証する。

#### 3. 研究の方法

- (1) ヘテロ接合や過飽和固溶体など、結晶でありながら「非平衡」な物質の作製技術確立し、組成・構造・作成条件などのパラメータを系統的に変えた多数の試料やデバイスを一枚の基板に集積化できる「パラレル合成」という新しい試みを盛り込む。
- (2) ZnO の結晶成長プロセスを最適化して真性半導体を作製し、さらにアクセプタードープを試みる。
- (3) 多結晶 ZnO トランジスタのデバイスシミュレーションを行って粒界の効果を明らかにするとともに、単結晶トランジスタの性能を向上する界面エンジニアリングを行う。
- (4) TiO<sub>2</sub>:Co の伝導キャリアの輸送・光学応答の磁場依存性を調べ、強磁性的なスピン偏極を明らかにするとともに、磁気トンネル接合を試作する。

#### 4. 研究の主な成果

- (1) ZnO の *p* 型化を達成するために基板温度傾斜法と称するパラレル合成法を駆使して真性半導体の品質を極限まで高めた。
- (2) *p* 型ドーパントである窒素を効率的に取り込んで活性化する手法として、新たに反復温度変調法を考案し、*p* 型化に成功した。
- (3) 明瞭な発光が観測できる pn 接合発光ダイオードを実現した。

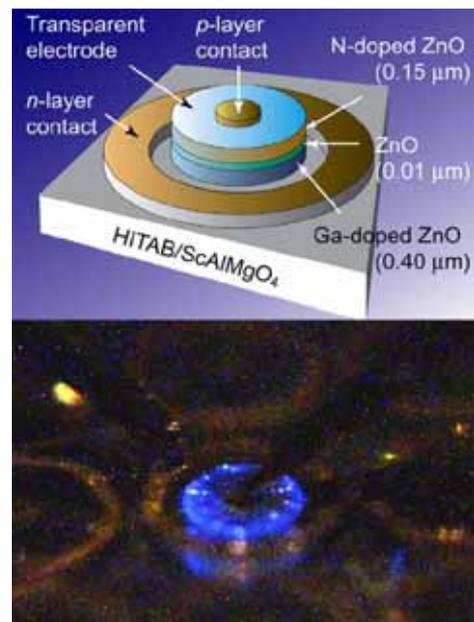


図1 ZnO pn 接合発光ダイオードの構造(上図)と、電流注入発光の様子(下図)。

- (4) ZnO-薄膜トランジスタの高性能化を達成するために、多結晶薄膜における粒界の効果をシミュレーションにより明らかにした。
- (5) 単結晶チャネルトランジスタで、 $200\text{cm}^2/\text{Vs}$  を超える電界効果移動度を実現した。
- (6) 酸化物で初めて量子ホール効果を実現した。

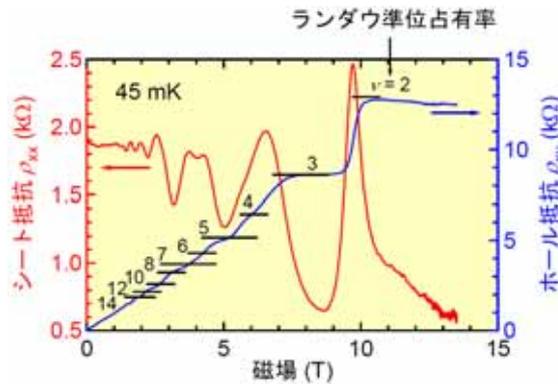


図2 ZnO/(MgZn)O 界面に形成した二次元電子ガスのシュブニコフドハース振動と量子ホール効果

- (7)  $\text{TiO}_2:\text{Co}$  の磁気光学効果や異常ホール効果の強磁性的な磁場依存性を観測して電子のスピンの偏極を実証した。
- (8)  $\text{TiO}_2:\text{Co}$  を用いた磁気トンネル接合の動作に成功した。ワイドギャップ強磁性半導体では初めての成功例である。
- (9) 計算科学と連携して  $\text{TiO}_2:\text{Co}$  などの物性の解析と物質探索への電子構造解析を行った。

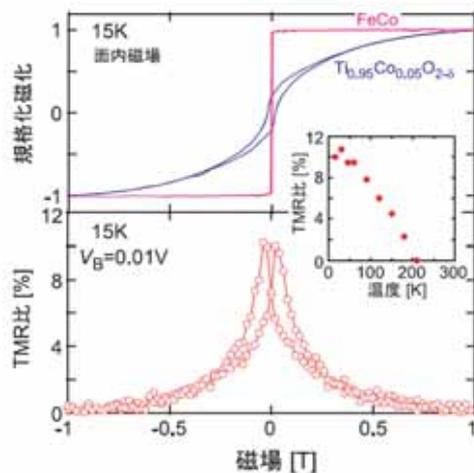


図3  $\text{TiO}_2:\text{Co}$  強磁性半導体と FeCo 合金を電極とする磁気トンネル接合の磁化カーブと磁気抵抗。挿入図は磁気抵抗の温度依存性。

## 5. 得られた成果の世界・日本における位置づけとインパクト

- (1) Cu など遷移金属の  $d$  軌道が関与しない酸化物半導体を初めて  $p$  型にドーブできたことは固体化学の観点から学術的に意義深い。
- (2) 巨視的な量子効果である量子ホール効果を酸化物で初めて実現したことは、酸化物半導体の欠陥制御に関する工学と結晶成長学における大きなブレークスルーと言える。
- (3) 産業応用に関する波及性は極めて高い。酸化亜鉛紫外発光ダイオードが実現すると、演色性・色再現性の良い白色 LED が実現でき、2010年に1兆円とも言われる大きな市場が確約されている。
- (4) ワイドギャップ強磁性半導体について、電子のスピンの偏極物性を系統的に明らかにしたことは今後の研究発展の基礎となる。

## 6. 主な発表論文

(研究代表者は太字、研究分担者には下線)

- (1) “Quantum Hall effect in polar oxide heterostructures,” A. Tsukazaki, A. Ohtomo, T. Kita, Y. Ohno, H. Ohno and **M. Kawasaki** *Science* **315**, 1388-1391 (2007)
- (2) “Repeated temperature modulation epitaxy for  $p$ -type doping and light-emitting diode based on ZnO,” A. Tsukazaki, A. Ohtomo, T. Onuma, M. Ohtani, T. Makino, M. Sumiya, K. Ohtani, S. F. Chichibu, S. Fuke, Y. Segawa, H. Ohno, H. Koinuma and **M. Kawasaki** *Nature Mater.* **4**, 42-46 (2005).
- (3) “Hall and field-effect mobilities of electrons accumulated at a lattice-matched ZnO/ScAlMgO<sub>4</sub> heterointerface,” T. I. Suzuki, A. Ohtomo, A. Tsukazaki, F. Sato, J. Nishii, H. Ohno and **M. Kawasaki** *Adv. Mater.* **16**, 1887-1890 (2004).
- (4) “Anomalous Hall effect governed by electron doping in a room-temperature transparent ferromagnetic semiconductor,” H. Toyosaki, T. Fukumura, Y. Yamada, K. Nakajima, T. Chikyow, T. Hasegawa, H. Koinuma and **M. Kawasaki** *Nature Mater.* **3**, 221-224 (2004).
- (5) “Electronic structure and optical properties of the Co-doped anatase  $\text{TiO}_2$  studied from first principles,” H. Weng, X. Yang, J. Dong, H. Mizuseki, **M. Kawasaki** and Y. Kawazoe *Phys. Rev. B*, **69**, 125219-1-6 (2004).

ホームページ等

<http://www.kawasaki.imr.tohoku.ac.jp/>