

研究課題別 中間評価結果

1. **研究課題名:** 透明酸化物のナノ構造を活用した機能開拓と応用展開
2. **総括責任者:** 細野 秀雄(東京工業大学 フロンティア研究センター 教授)

3. 研究概要

本研究は ERATO での研究で見出された透明酸化物や酸化物関連化合物の新規機能の応用展開を図ること、および関連する新たな化合物を探索することを目的とする。酸化物が持つ多様な結晶構造およびアモルファス構造中に内包されるサブナノ空間を巧みに活用することで、透明酸化物に様々な機能を付与し、有用な材料の提案やそれを用いた電子デバイス等の試作を行ってきた。具体的には、透明アモルファス酸化物半導体材料の開発とそれを活性層とする薄膜トランジスタの試作、チタン酸ストロンチウムを用いた巨大熱電変換効果の実現、シリカガラスと深紫外光との相互作用の解明とその成果に基づいた深紫外線光ファイバーの実用化等が挙げられる。また、関連する化合物の機能探索の過程で、初の鉄系層状化合物超伝導を発見する等の成果も得ている。

以下、本研究を構成する 2 つのグループについて、大きな進展のあった成果を中心にまとめる。

3-1. 応用展開グループ

本グループでは、透明酸化物半導体材料のデバイスへの応用に焦点を当てた研究を実施している。

1) 透明アモルファス酸化物半導体(TAOS)を用いた薄膜トランジスタの提案と応用

透明酸化物半導体については、透明薄膜トランジスタ(TTFT; Transparent Thin Film Transistor)の活性層への利用を念頭に応用展開を図ってきた。本研究では、研究代表者が 1996 年にコンセプトと設計指針を発表したイオン性アモルファスの薄膜に注目した研究を進めている。アモルファス化しても電子移動度が対応する結晶の場合と大差がないという特性に着眼し、薄膜トランジスタ(TFT; Thin Film Transistor)用途に必要な特性を持つ材料として In-Ga-Zn-O (IGZO)系を選択した。この材料は室温で形成出来、かつ電子移動度が $\sim 10\text{cm}^2/\text{Vs}$ という通常用いられているアモルファスシリコンの 10 倍以上の値を持つ。

この結果を 2004 年末に Nature 誌に発表したところ、国際学会で本材料専門のセッションが開催され、国内外の企業により有機 EL ディスプレイや電子ペーパーの試作がされる等、学会および産業界で大きな反響を呼んだ。また、広域 X 線吸収微細構造(EXAFS; Extended X-Ray Absorption Fine Structure)解析と第一原理 MD 計算を組み合わせることで、TAOS の電子輸送特性を支配する因子の特定に成功した。この結果は、特定の目的の材料を選択する際の重要な設計指針を与えた。

2) 2次元電子ガスによる巨大熱電変換効果の発見

名古屋大学 河本邦人グループとの共同研究により、Nb ドープされたチタン酸ストロンチウム薄膜を絶縁体のチタン酸ストロンチウムに挟み込むことにより電子密度を局所的に高めたもの(2次元電子ガス)を作成し、熱起電力をバルク材料の5倍に高めることに成功した。この結果は、重金属や稀少元素を含まない熱電変換材料開発への指針を与えるものである。

3-2. 機能探索グループ

本グループでは、将来の応用を見据えつつ、材料の機能探索を行う。

1) 鉄系層状化合物 LaFeOP の超伝導の発見

これまでに発見した透明酸化物半導体 LnCuOCh (Ln =ランタノイドイオン、 $\text{Ch}=\text{S}, \text{Se}$)系を拡張した LnTEOPn (Ln =ランタノイドイオン、 $\text{TE}=3d$ 遷移金属、 $\text{Pn}=\text{P, As, Sb}$)系の機能探索を行った。その結果、 $\text{TE}=\text{Fe}$ 、 $\text{Pn}=\text{P}$ の時に、超伝導転移が起こることを発見した。これは、鉄を含む初の超伝導体である。また、 TE を系統的に変化させることで、電子物性が大きく変化することを見出しており、現在一連の研究が進行中である。

2) シリカガラス中の光学活性イオンへの共ドーピング効果の解明

パルス ESR-電子スピンエコー裾変調分光法を用いることで、シリカガラス中の光学活性イオンへの共ドーピング効果の解明に成功した。その結果、 Al^{3+} と P^{5+} では溶解メカニズムが異なることも明らかになった。

3) 深紫外ファイバーの実用化

シリカガラスの真空紫外域への応用が重要と考え、 F_2 エキシマレーザ(波長 157nm)との相互作用の解明を目指して研究を進めた。その結果、この波長領域ではシリカガラス中に含まれる不純物である Si-OH 、 Si-Cl 、 H_2O 、 H_2O_2 が光と反応することを明らかにし、その反応の主要部分を決定した。この知見は深紫外線用光ファイバーの性能改善に活用され、高性能光ファイバーとして製品化される予定である。

4) 干渉フェムト秒レーザー加工技術の実用化

本研究で改良を加えてきたフェムト秒干渉露光装置が製品化された。また、これまでの研究で未解明のままであった加工メカニズムを解明した。これらの知見に基づき、光パルスで書き込まれた回折格子の形状のトリミングが可能となった。

4. 中間評価結果:

4-1. 研究の進捗状況と今後の見込み:

化合物半導体には見られない、酸化物の特徴である多様な結晶構造やアモルファス構造中に

内包されるサブナノ空間・層状構造等の低次元構造を、量子ドットや多重量子井戸等の量子構造や不安定化学種を安定化させる反応容器等として積極的に活用することで、透明酸化物を材料としたユニークな機能の探索やデバイスの試作等、応用を睨んだ展開を行い、当初の構想をほぼ現実化する形で進捗している。特に TAOS については、これを活性層とする有機 EL ディスプレイの試作機が開発される等、次世代ディスプレイ/フレキシブルエレクトロニクスを担う有望な材料として、実用化につながる段階に来ている。

本研究は、研究代表者が主張する「並列モデル」(基礎研究と応用研究を相互に係わせながら同時に進める研究推進モデル)に基づいて運営されているが、これまでの研究の進捗状況から、この手法が大きな成果を上げてきたことは明らかであり、今後も着実な成果が期待される。さらに、研究計画の着実な実現を超えた新発見も期待したい。

4-2. 研究成果の現状と今後の見込み:

室温で形成可能で $10\text{cm}^2/\text{Vs}$ と高い移動度を持つユニークな材料である TAOS について、本研究では、材料コンセプトの確立から、材料開発、デバイス化までを手がけている。研究者コミュニティからの評価だけでなく、産業界からも注目を浴びており、既に複数のディスプレイ関係の企業がこの成果に基づいた応用研究を進めるようになっている。今後、大きな産業に育つことを期待したい。

層状化合物の LaFeOP は、初の鉄系層状化合物超伝導体であり興味深い発見である。これを含む層状オキシ化合物 LnTEOPn について、遷移金属 TE の種類を変えることで、電子物性が系統的に変化することを見出している。本化合物の研究については、特定の物性の発現にこだわらず、その電子物性を統一的に理解することで、新たな材料系の創製基盤となる成果を期待したい。

シリカガラスへ活性イオンをドーピングするためにリンやアルミ等の第3成分を添加することが有効であると経験的に知られていたが、長らく未解明であったその分子メカニズムを明らかにした。この知見は、光学材料の設計に有益な情報を与える。今後、共ドーピング効果の一般則を見出し、材料設計の強力な指針を創り出して欲しい。

酸化物半導体の電子デバイスへの応用に関する最大のテーマは、CMOS (Complementary-Metal Oxide Semiconductor) の実現に向けた P チャネルで動作する酸化物 TFT の実現である。困難な課題であると考えられるが、研究代表者の独創的なアイデアによって、残りの研究期間での実現を期待したい。

深紫外ファイバーおよび、フェムト秒干渉露光装置については、基礎研究の段階がほぼ完了しており、市場導入も間近になっている。

その他、超薄膜の巨大熱電変換効果、透明酸化物のヘテロ接合による青色 LED の室温動作等、多方面に亘る成果を上げている。

4-3. 総合的評価

本研究は、独創的な材料設計コンセプトに基づくオリジナリティの高い材料系を次々と開発している。新規材料系の開発やその評価だけに止まらず、市場導入に向けた研究開発も行い、学会並びに産業界からも注目されている。中でも、酸化物半導体の TFT への応用研究については、その成果が Nature 誌に掲載されてからわずか 2 年の間に世界中でディスプレイ等への応用を目指した研究が立ち上がり、国内外の有力企業が実用化に向けて研究開発を活発に行う状況になっている。また、イオン性アモルファス酸化物半導体の電子伝導機構の解明、シリカガラス中の光学活性イオンへの共ドーピング効果の解明等、学術的にもインパクトの大きな成果を上げており、技術および科学の両面で非常に高く評価出来る。インパクトの大きな材料の発見等、今後の展開を期待する。