

次世代低環境負荷白色光源の開発

実施予定期間：平成 21 年度～平成 23 年度

代表機関：九州大学大学院システム情報科学研究所電気システム工学部門

代表者：岡田 龍雄

国内参画機関：山口大学大学院理工学研究科物質工学系学域

代表者：山田 陽一

国内参画機関：宮崎大学産学連携センター

代表者：境 健太郎

国内参画機関：長崎大学工学部電気電子工学科

代表者：松田 良信

国内参画機関：(独)物質・材料研究機構ワイドバンドギャップ半導体グループ

代表者：小松 正二郎

国外参画機関：インド工科大学マドラス校物理学科

代表者：MAMIDANNA Rao Sri Ramachandra

(3) ZnO ナノワイヤ紫外発光素子に適した ZnO ベース白色蛍光体の調整。

(4) 以上を統合して次世代低環境負荷白色光源を実証する。

本研究課題は、平成 19 年 8 月 22 日付けの安部首相（当時）とインドのシン首相との「環境保護及びエネルギー安全保障における協力の強化」に関する日印共同声明に謳われている「省エネ・エネルギー効率、クリーン・エネルギーに関し具体的協力を推進」にもまさに合致しており、我が国が取り組んでいくべき必要性が高い研究活動である。

2. ネットワーク構築の実現可能性

研究代表者等は、相手国研究代表者の Rao 教授とは、既に次のような交流実績を有している。すなわち、平成 19 年には Rao 教授が日本学術振興会による短期外国人研究者の招聘により、九州大学に 2 ヶ月間滞在して共同研究を実施している。また、平成 20 年度から平成 21 年度の予定で日本学術振興会の二国間共同研究により共同研究を実施中である。この一環として、平成 20 年 11 月には Rao 教授と同教授が指導する博士課程学生 2 名が当研究代表者の研究室に滞在して試料を作製している。一方、同 12 月には本研究代表者の岡田が Rao 教授の研究室に滞在して作製試料の評価結果と今後の共同研究の方針について議論した。さらに、相手国の共同研究者であるインド工科大学マドラス校の Vasa 准助教の指導する博士課程の学生が九州大学独自の支援制度「フレンドシップ留学生」制度により平成 20 年 6 月から平成 21 年度 6 月の予定で研究代表者の研究室に滞在して研究を実施中した。本申請に関しては、平成 20 年 12 月に本研究代表者の岡田がインド工科大学マドラス校を訪問した際に詳細な打合せを行い、課題分担の役割等について合意するとともに、課題採択後は相互協力、特許等の知財の取り扱い、協定の期間等について記した包括的な協定を九州大学とインド工科大学マドラス校の間で締結する必要があるが、既に締結済みの大学間交流協定に基づく共同研究協定を締結した。

一方、国内の研究参画機関の各研究代表者のグループについても、宮崎大学や山口大学とは、すでに ZnO のナノ構造体の低温光特性の評価や時間分解分光による評価について共同研究を進めており、一部では共著論文等も報告済みである。また、長崎大学とは本研究に必要な酸化亜鉛透明導電膜について共同研究を進めるとともに、物質・材料研究機構とも、既に日本学術振興会二国間交流事業（インド）の国内参加機関としても共同研究を実施している。

さらに、平成 24 年 1 月には、日本およびインドの本研究参加者を中心に、インド工科大学マドラス校でシンポジウムを開催予定である。

本研究によりこれまでの共同研究が一層促進されるとともに、九州大学を中心とした九州・山口地区とインドとのこの分野での強固な研究者ネットワークが構築されることが期待される。

3. 本制度により取組を支援する必要性

本研究は、相互が持つ先端的な科学知識を融合して新しい発光素子の開発を行うものであり、民間ベースの技術協力や ODA による技術供与では対応できない取組み

I. 概要

九州大学で開発した酸化亜鉛 (ZnO) ナノ構造体創製および紫外発光素子作製技術と、インド工科大学マドラス校（以下 IIT-M と略す）で開発された ZnO 白色蛍光体技術を融合して、ZnO で構成される次世代低環境負荷白色光源を開発する。

1. 研究の目的

本研究の目的は、ZnO ナノワイヤと ZnO 蛍光体の ZnO で構成される次世代照明用の白色発光素子を開発することである。すなわち、研究代表者等が独自に開発した高品位酸化亜鉛 (ZnO) 半導体ナノワイヤの作製技術および紫外発光素子への応用技術と、インド工科大学 Rao 教授が持つ ZnO をベースとした蛍光体の技術を融合して、環境に優しく資源的にも豊富な ZnO を利用する新しい照明用光源の基礎を確立する。

照明光源に発光効率の高い白色発光ダイオード (LED) を導入することは、CO₂ 削減の上でも大きな省エネルギー効果が期待できる。我が国では、すでに GaN をベースとする白色 LED が実用化段階にあり、一部の照明シーンでは積極的な導入が進められている。酸化亜鉛は環境に優しく資源的にも豊富であることから、酸化亜鉛をベースとした白色 LED は、次世代の光源として期待されている。

本研究代表者は、これまで ZnO ナノ構造体の創製と発光素子への応用研究を実施してきた。その結果、触媒を用いることなく高品位の ZnO ナノワイヤを合成する手法を確立し、ZnO ナノワイヤを用いたヘテロ p-n 接合による紫外発光素子の作製にも成功している。一方、IIT-M の Rao 教授のグループは、最近 ZnO をベースとした白色蛍光体の創製に成功している。本研究では、この Rao 教授の ZnO ベースの白色蛍光体技術と、研究代表者の持つ ZnO ナノワイヤ作製技術とそれを用いた紫外発光素子作製技術を結合し、新しい白色 LED の開発、特に全 ZnO ベースの白色 LED の開発を目指す。具体的には、次の項目について研究を行う。

- (1) P 型 ZnO ナノワイヤ作製法の開発。
- (2) ZnO 蛍光体評価のための ZnO ナノワイヤを用いた紫外 LED の作製。

である。また、本研究は次世代の革新的な新光源の開発を目指したもので、産業界の主導で行うような研究開発の段階にはない。本研究では、インド工科大学の Rao 教授との共同研究が主要な部分を占めるとともに、研究遂行に不可欠である。国際共同研究のための制度として学術振興会二国間交流事業などもあるが、研究実施のため経費が必ずしも十分といえない。研究を進展させ、強固な人的ネットワークを構築する上で、本制度による支援が必要である。

4. 継続性の担保（特に課題期間終了後の取組）

課題期間終了後も各種外部資金を導入して ZnO ベース発光素子の実用化に向けて共同研究を推進する。ポストクの受入、博士課程学生の相互短期留学などを推進し、若手研究者の交流を活性化して、長期的な研究ネットワークの構築を図る。

本学では、全学横断的に国際戦略を実施する体制として総長を機構長とする国際交流推進機構（以下、機構）を設置おり、各学部、学府、附属研究所等と連携を図り、本学の戦略的国際交流プロジェクトの企画・立案等行っている。さらに、本学では「留学生30万人計画」に対応可能な体制を構築すると共に、日本人学生及び教職員の国際性を涵養し、国際性豊かなキャンパスを実現させるべく、「教育の国際化推進室」及び「外国人留学生・研究者等サポートセンター」の新設を予定している。本事業運営について

も、工学部等事務部を中心に、国際交流推進機構及び学術研究推進部等が連携・協力を図り、課題期間終了後も活動を側面から支援する。

5. 我が国を中心としたアジア・アフリカ諸国等との政府レベルでの協力関係の強化・構築への発展性

平成19年8月22日付けの安部首相（当時）とインドのシン首相との「環境保護及びエネルギー安全保障における協力の強化に関する」日印共同声明に謳われている「省エネ・エネルギー効率、クリーン・エネルギーに関し具体的協力を推進」にまさに合致した研究課題であり、日-印両国の相互発展に資する我国としても注力すべき研究課題であると考えられる。

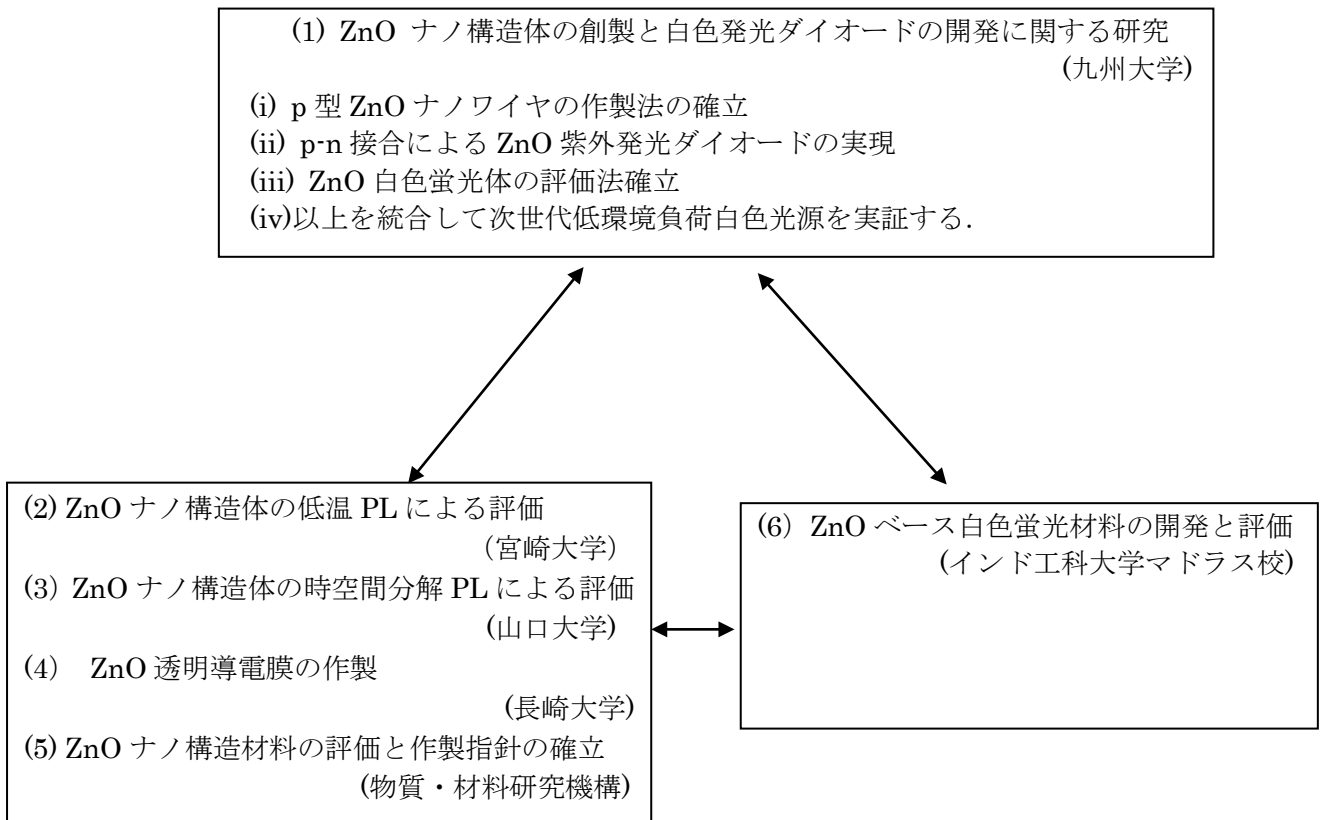
また、照明は人類の快適な生活に不可欠な社会基盤であり、電力消費の20%程度を占めるエネルギー消費要素である。一方、現状は蛍光灯の水銀など環境負荷の大きな材料も使用されている。生活に不可欠な社会基盤として、「省エネ・エネルギー効率、クリーン」と謳われている日印共同声明に対応して、白色LEDの規格策定、企業による導入普及活動へと展開が可能である。

6. 生命倫理・安全面への配慮について

生命倫理については該当なし。安全面についても通常の対策で十分である。

7. 研究実施体制

本研究の実施体制を下図に示す。



氏名	所属部局・職名	提案課題における役割
◎岡田 龍雄	九州大学	研究代表者, 研究総括, ナノワイヤの作製, 発光素子の作製
○小松 正二郎	(独) 物質・材料研究機構	ZnO ナノワイヤ成長機構の検討
○境 健太郎	宮崎大学	ZnO ナノワイヤの低温分光によると欠陥評価
○山田 陽一	山口大学	ZnO ナノワイヤの時間・空間分解分光による評価
○中村 大輔	九州大学	ZnO ナノワイヤ・ナノ構造体の作製, 発光素子の作製
○松田 良信	長崎大学	n 型 ZnO の高品位化
○ Mamidanna Rao Sri Ramachandra	インド工科大学マドラス校	白色蛍光体材料の作製
Vasa Nilesh Jayantilal	インド工科大学マドラス校	白色蛍光体材料の評価

8. 各年度の計画と実績

a. 平成 21 年度

・ZnO ナノワイヤを利用した紫外発光素子の作製で重要なパーツとなる p 型 ZnO の作製に関して, 九州大学でナノ微粒子支援レーザー堆積法 (NAPLD) による p 型 ZnO ナノワイヤの合成を試みた。具体的には, p 型ドーパントである燐をドーブした ZnO ターゲットをエキシマーレーザーでアブレーションし, NAPLD 法によりサファイア基板上に ZnO ナノワイヤの合成を行った。作製条件を種々変化して, さまざまな燐ドーブの ZnO ナノワイヤの合成を行った。作製したナノワイヤは, 九州大学において SEM, XRD, TEM による形状観察や結晶性の評価を行うとともに, 室温でのホトルミネッセンス測定により蛍光特性を評価した。また, 長崎大学で作製した n 型 ZnO および p 型 GaN と接合して電気特性を評価した。さらに, ナノワイヤの欠陥等を詳細に評価するため, 宮崎大学においては低温ホトルミネッセンス測定を行うとともに, 山口大学では時間分解ホトルミネッセンス測定を実施した。

その結果, 燐がドーブされた ZnO ナノワイヤの合成を確認した。燐のドーブにより, ZnO の n 型特性の原因である酸素欠陥に伴う可視の発光が減少し, 紫外域のバンド端発光が強くなり, 同時に紫外の蛍光寿命が長くなることを確認した。また, 低温ホトルミネッセンスからはアクセプタに起因する準位の存在が見られたが, 電気特性を以前 n 型であった。

一方, インド工科大学マドラス校では ZnO ベースの蛍光体を調整した。

また, ナノワイヤの合成に加えて, すでに作製技術を確認している n 型 ZnO ナノワイヤを用いて, p 型 GaN 薄膜とのヘテロ p-n 接合を利用した紫外発光素子を作製し, 整流特性と ZnO のバンド間遷移による紫外発光を得ることに成功した。この素子は, 次年度以降インド工科大学で作製した ZnO ベースの蛍光特性の評価の際の励起用光源として利用する。

b. 平成 22 年度

・昨年度に引き続き p 型 ZnO ナノワイヤの作製を目指した研究を継続した。p 型ドーパントとして, 燐に加えてアンチモンなど他の元素の添加も実施した。具体的には, 次の二つの方法を実施した。すなわち, p 型ドーパントとして燐またはアンチモンを添加した ZnO ターゲットを用いて NAPLD 法によりサファイア基板に

ZnO ナノワイヤの合成を行った。また, アンチモンを予め基板上に堆積して, これを触媒とドーパントの両方の役割を持たすものである。作製したナノワイヤは, 九州大学において SEM, XRD, TEM による形状観察や結晶性の評価を行うとともに, 室温でのホトルミネッセンス測定とラマン測定により評価した。また, 長崎大学で作製した n 型 ZnO および p 型 GaN と接合して電気特性を評価した。さらに, ナノワイヤの欠陥等を詳細に評価するため, 宮崎大学では低温ホトルミネッセンス測定を行うとともに, 山口大学では時間・空間分解ホトルミネッセンス測定, カソードルミネッセンス測定を実施した。この結果, アンチモンの場合も, n 型欠陥が補償されていることは確認されたが, 電氣的に p 型特性を得るには至っていない。

インド工科大学マドラス校では引き続き ZnO ベースの蛍光体を調整するとともに, 2 種類以上の元素を同時に添加する共ドーブ ZnO ターゲットを用いて, 安定な p 型 ZnO 薄膜の作製を試みた。その結果, ZnO-V02 の蛍光体を開発し, リチウムとニッケルを同時添加した ZnO 薄膜において p 型特性を得ることに成功した。

一方, ZnO ベースの蛍光特性の評価の際の励起用光源として作製した ZnO ナノワイヤベースの紫外発光光源を用いて, 前年までにインド工科大学マドラス校で開発された ZnO-SiO₂ および ZnO-ウレア添加の蛍光体を励起し, 蛍光スペクトルを評価した。その結果, ZnO ナノワイヤで作製した紫外 LED で ZnO ベースの蛍光体を励起して可視発光を得ることに成功した。

c. 平成 23 年度

・前年度に引き続き p 型 ZnO の作製を継続する。p 型 ZnO の作製方法としてこれまで実施している燐, アンチモンのドーピング条件の探索に加え, アルミニウムとアンチモンなど 2 元素を同時に添加する方法を検討する。さらに, ZnO ナノ結晶へのイオン注入やレーザードーピングを利用した p 型化への新たな取り組みも行う。これらの成果を踏まえて, p 型および n 型 ZnO を用いたホモ p-n 接合の実現を試みる。その際, n 型 ZnO 薄膜と p 型 ZnO ナノワイヤ, n 型 ZnO ナノワイヤと p 型 ZnO 薄膜, n 型 ZnO ナノワイヤと p 型 ZnO ナノワイヤ, n 型あるいは p 型 ZnO ナノワイヤをコアとして ZnO 薄膜でワイヤ周囲をコーティングしたコアシェル型などさまざまな構造のホモ p-n 接合を試みる。長崎大学では, 発光素子作製に必要な ZnO 透明導電膜の製膜を作製する。

宮崎大学においては低温ホトルミネッセンス測定を行うとともに、山口大学では時間・空間分解ホトルミネッセンス測定、カソードルミネッセンス測定を実施する。
 インド工科大学マドラス校では引き続き ZnO ベース

の蛍光体を調整し、九州大学に提供する。最終的には、昨年度までに成功した ZnO ナノワイヤによる LED とインド工科大学で開発された ZnO ベースの蛍光体を組み合わせて光源を最適化して白色光源を得る。

9. 年次計画

研究項目	1年度目	2年度目	3年度目
(1) ZnO ナノ構造体の創製と白色発光ダイオードの開発に関する研究 (九州大学)	ナノワイヤの作製, 試料は宮大, 山口大へ提供	ZnO 白色蛍光体の評価用紫外光源開発	白色光源の開発 取りまとめ
(2) ZnO ナノ構造体の低温 PL による評価 (宮崎大学)	ZnO ナノ構造体の低温 PL の測定と評価		
(3) ZnO ナノ構造体の時空間分解 PL による評価 (山口大学)	ZnO ナノ構造体の時空間分解 PL による評価		
(4) ZnO 透明導電膜の作製 (長崎大学)	ZnO 透明導電膜の作製		
(5) ZnO ナノ構造材料の評価と作製指針の確立 (物質・材料研究機構)	ZnO ナノ構造材料の評価と作製指針の確立		
(6) ZnO ベース白色蛍光材料の開発と評価 (インド工科大学マドラス校)	ZnO ベース白色蛍光材料の開発と評価		