

「プロセスインテグレーションによる機能発現ナノシステムの創製」
平成 20 年度採択研究代表者

H23 年度 実績報告

藤岡 洋

東京大学 生産技術研究所 教授

自己組織化グラファイトシート上エレクトロニクスの開発

§1. 研究実施体制

(1)「東大」グループ

① 研究代表者: 藤岡 洋 (東京大学生産技術研究所、教授)

② 研究項目

- ・自己組織化グラファイトシート上半導体成長技術と素子作製技術の開発

(2)「鳥取大」グループ

① 主たる共同研究者: 石井 晃 (鳥取大学大学院工学研究科、教授)

② 研究項目

- ・2次元物質上の3次元半導体の結合と成長の理論的解明

§ 2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)に対応する)

本研究では自己組織化グラファイトシート(ボトムアップ)基板を用いた新しい半導体(トップダウン)エレクトロニクスを展開するが、このプロジェクトを終了するまでにフレキシブル自己組織化グラファイトシート上にInGaNを用いた青色LEDや太陽電池といった半導体デバイスを作製し、その動作を実証することを目的としている。この目的を達成するために、東大グループ、鳥取大グループが実験と理論の両面から研究を推進している。

東大グループでは、パルススパッタ堆積(PSD)法と呼ばれる低コストな結晶成長手法の開発と、デバイス作製技術の開発、グラファイトシート上半導体結晶の評価技術に関する研究を行っている。本年度、東大グループではグラファイト上窒化物半導体薄膜のさらなる高品質化を実現するために、PSD法におけるその場評価技術の確立や、窒化物薄膜の極性制御技術、超格子構造作製技術といった結晶成長プロセスの開発を行った。また、開発した技術を統合してPSD法による高電子移動度トランジスタの試作、およびグラファイトシート上へのフルカラー発光素子の試作を行った。

PSD法は安価で大面積化可能な薄膜成長手法であるが、素子作製のためには半導体薄膜のさらなる高品質化が必要である。そこで、PSD結晶成長プロセス制御のためにレーザー光を用いたその場観察技術を構築した。これにより温度や原料供給比を精密に制御することが可能となり、高品質Ga₂N₃薄膜を再現性良く成長することが可能となった。また、グラファイト上へのGa極性Ga₂N₃薄膜成長のプロセス開発に取り組んだ。窒化物半導体ではc軸方向に反転対称性がないため、(0001)面(N極性)と(000 $\bar{1}$)面(Ga極性)の二タイプのc面が存在し、一般にGa極性Ga₂N₃が結晶性や純度の観点で素子応用に適している。Ga₂N₃/グラファイト界面に挿入する層構造を検討したところ、AlN/AIO_x/AlN構造を用いることで再現性良くGa極性Ga₂N₃薄膜を形成できることを見出した。これらの成果により、グラファイト上に成長した高品質Ga極性Ga₂N₃薄膜をベースとして素子作製を展開することが可能となった。さらに、この極性制御技術は下地基板材料に依らないのでGa極性Ga₂N₃成長実現のためのユニバーサルな技術として期待できる。

これまでに開発したグラファイト上窒化物半導体結晶成長技術を統合し、図1(a)に示すような発光素子構造をグラファイト上に試作したところ、青色から赤色領域の電流注入発光が観測され、グラファイトシート上でのフルカラーLEDの動作に世界で初めて成功した。図1(b)は高In組成InGaN⁴⁾を活性層に用いたグラファイト上赤色LEDの発光写真

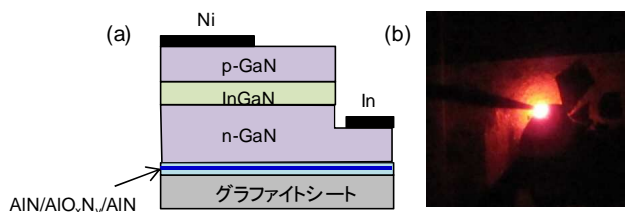
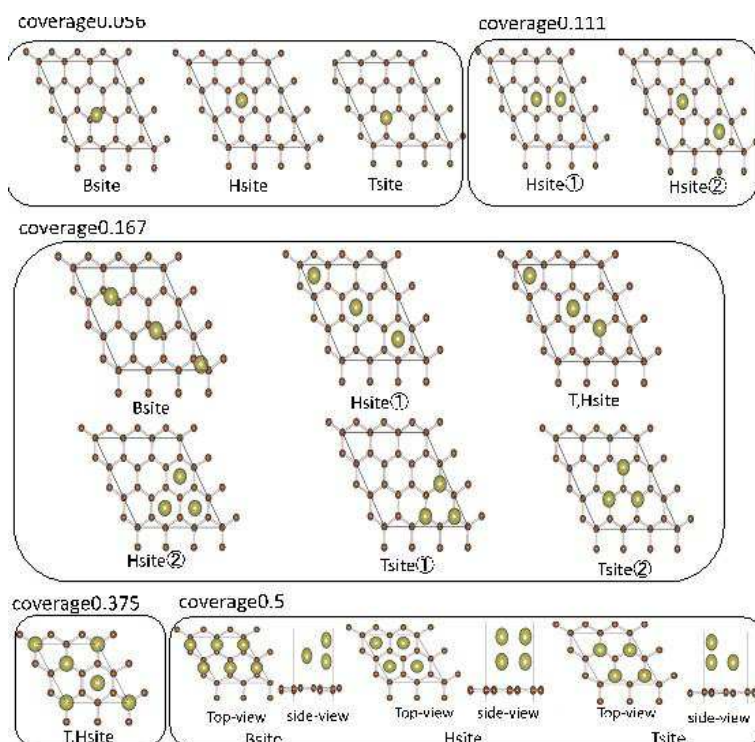
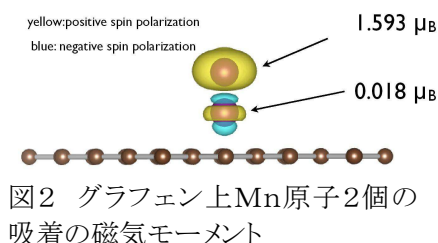
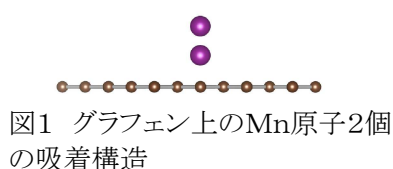


図 1 グラファイトシート上に作製した赤色 LED の(a)構造概略図と(b)発光写真

である。この成果は、PSD法を用いれば青色から赤色領域に対応する素子をグラファイト上に作製でき、従来手法では困難であった長波長領域の高効率LEDや高効率太陽電池の開発が可能であることを示している。また、PSD法における結晶成長プロセス技術の進展に伴って、電子素子に応用可能な品質のGa₂N₃薄膜を成長できるようになったことから、従来の基板上ではあるがAlGa₂N₃/Ga₂N₃ヘテロ構造を用いた高電子移動度トランジスタ(HEMT)の試作を行った。PSD法で

着すると、縦に配列することが計算でわかった。23年度はこの構造を詳細に調べ、以下の図に示すようにその吸着構造の確定と、磁気モーメントの計算を行った。計算でわかるように、2個のMn原子が縦に配列して吸着した場合、あきらかにスピン分極して磁気モーメントを持つことがわかった。この成果は秋に京都で行われた薄膜の国際会議 ICTF-15 で発表、さらに多くの国際会議でグラフェン上原子吸着の1つの例として元素周期律表の吸着エネルギーの表と共に発表で言及した。次に、Hf 原子のグラフェン上の吸着についても調べた。Hf は窒化物成長のバッファ層としてグラファイト上に HfN 薄膜を成長させるなどの応用上の用途からも重要となる原子である。次に示す図が様々な coverage での Hf 原子の吸着構造を計算したもので、これら全てを計算した結果、グラフェン上の Hf 原子は coverage 0.375 の場合が最もエネルギー的に安定であることがわかった。この結果は23年12月に東京で行われた表面科学の国際会議 ISSS-6 において発表された。ここからさらに HfN の薄膜が成長する機構についての理論的説明は、これからの課題となる。



§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

1. A.Kobayashi, K. Ueno, J. Ohta, H. Fujioka, "Coherent growth of r-plane GaN films on ZnO substrates at room temperature", *Phys. Status Solidi A* **208**, 4, (2011) 834–837. DOI 10.1002/pssa.201026397
2. J. W. Liu, A. Kobayashi, S. Toyoda, H. Kamada, A. Kikuchi, J. Ohta, H. Fujioka, H. Kumigashira, and M. Oshima, "Band offsets of polar and nonpolar GaN/ZnO heterostructures determined by synchrotron radiation photoemission spectroscopy", *Phys. Status Solidi B* 248, No. 4, 956–959 (2011), DOI: 10.1002/pssb.201046459
3. F. Y. Shih, A. Kobayashi, S. Inoue, J. Ohta, and H. Fujioka, "Growth of group III nitride nanostructures on nano-imprinted sapphire substrates", *Thin Solid Films* **519** (2011) 6534–6537. DOI: 10.1016/j.tsf.2011.04.120
4. H. Tamaki, A. Kobayashi, J. Ohta, M. Oshima, and H. Fujioka, "Dependence on composition of the optical polarization properties of m-plane $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ commensurately grown on ZnO" *Appl. Phys. Lett.* 99 (2011) 061912. DOI:10.1063/1.3624462
5. K. Ohkubo, A. Kobayashi, J. Ohta, H. Fujioka, and M. Oshima, "Polarity dependence of structural and electronic properties of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{InN}$ interfaces", *Appl. Phys. Exp.* 4, 091002 (2011). DOI: 10.1143/APEX.4.091002
6. A. Kobayashi, T. Ohnishi, M. Lippmaa, Y. Oda, A. Ishii, J. Ohta, M. Oshima, and H. Fujioka, "Polarity replication across m-plane GaN/ZnO interfaces" *Appl. Phys. Lett.* **99**, 181910 (2011). DOI: 10.1063/1.3659008
7. K. Ueno, A. Kobayashi, J. Ohta, M. Oshima, and H. Fujioka, "Demonstration of enhanced optical polarization for improved deep ultraviolet light extraction in coherently grown semipolar $\text{Al}_{0.83}\text{Ga}_{0.17}\text{N}/\text{AlN}$ on ZnO substrates" *Appl. Phys. Lett.* **99**, 121906 (2011). DOI: 10.1063/1.3641876
8. T. Kajima, A. Kobayashi, J. Ohta, H. Fujioka, and M. Oshima, "X-ray reciprocal space mapping study on semipolar InAlN films coherently grown on ZnO substrates", *Phys. Status Solidi RRL* 5, 400-402 (2011). DOI: 10.1002/pssr.201105380
9. Kengo Nakada and Akira Ishii
Book title: Graphene / Book 1 (ISBN 978-953-308-60-2)
Chapter title: DFT calculation for adatom adsorption on graphene (18ページ)
10. K.Nakada and A.Ishii, "Migration of adatom adsorption on graphene using DFT calculation" *Solid State Commun.* **151**, 13-16 (2011), DOI: 10.1016/j.ssc.2010.10.036
11. Kengo Nakada and Akira Ishii, ICPS-30 (2010) proceedings, "First-principles investigation of charge density analysis of various adatom adsorptions on graphene" *AIP Conf. Proc.* **1399**, 793-794 (2011). DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.3666615>
12. A.Ishii, T.Tatani, S.Hirai and K.Nakada, ICPS-30 (2010) proceedings, "Growth of GaN on Graphite Substrate as Growth on Graphene using the Density Functional Theory", *AIP Conf. Proc.* **1399**, 125-126 (2011), DOI:

<http://dx.doi.org/10.1063/1.3666288>