

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：82718

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K14783

研究課題名（和文）固体炭素源を用いた転写フリーなグラフェン成長法の開発とその発光素子の光通信応用

研究課題名（英文）Development of growth method of transfer-free graphene by using solid state carbon source and its application to light emitting device

研究代表者

中川 鉄馬（NAKAGAWA, Kenta）

地方独立行政法人神奈川県立産業技術総合研究所・戦略的研究シーズ育成プロジェクト・研究員(任期有)

研究者番号：20822480

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：現在、実用化されている代表的な赤外光源として、LEDや半導体レーザーに主に用いられている化合物半導体は、シリコン基板上に直接形成することが難しく、微小な光源をシリコン基板上に集積化することが困難であった。本研究では、基板上に直接成長できる転写フリーなグラフェン作製法を確立し、確立した手法により作製したグラフェンを発光素子化し、その電気特性・発光特性を評価することによって、発光素子の高輝度化・高速化に向けたグラフェン材料及びデバイス構造の学理を追求し、高集積化のためのデバイス構造や最適な作製プロセスを提案した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

赤外光源は、幅広い用途への応用が期待されており、赤外光源の開発研究が世界中で精力的に行われている。また、情報通信量の急速な増大を背景に実現が強く要望されている次世代通信の基板技術として、光インターコネクトやシリコンフォトニクスが大きな期待を集めている。このようなデバイスの作製には、高輝度発光で基板上に高集積化が可能な微小な赤外光源が必要不可欠である。本研究では、基板上に直接成長できる転写フリーなグラフェン作製法を確立し、確立した手法により作製したグラフェンを発光素子化し、その電気特性・発光特性を評価した。

研究成果の概要（英文）：Compound semiconductors, which are mainly used as typical infrared light sources currently in practical use, are difficult to form and integrate directly on silicon substrates. In this study, I developed a transfer-free graphene growth method that can be grown on substrates directly from solid state carbon source, and evaluated the electrical and optical properties. In addition, I proposed suitable device structures and optimized the fabrication processes for high brightness, modulation speed and integration.

研究分野：電気電子材料工学

キーワード：ナノカーボン グラフェン 光デバイス 発光素子 急速熱アニール

1. 研究開始当初の背景

近年、より安心・安全な生活への関心や超高齢化社会を背景とする健康意識の高まりから、生活環境や自身の健康状態を高感度にモニターできる技術の開発が強く望まれている。その一端として、赤外光源は、防犯のための暗視センサー、交通事故防止や渋滞解消のための自動運転技術、安全確保や漏洩箇所の探知のためのガス検知、医療診断のためのバイオセンサーなどといった幅広い用途への応用が期待されており、赤外光源の開発研究が世界中で精力的に行われている。また、情報通信量の急速な増大を背景に実現が強く要望されている次世代通信の基板技術として、光インターコネクタやシリコンフォトニクス(光を使用して信号を送受信するシステム)が大きな期待を集めている。このようなデバイスの作製には、高輝度発光で基板上に高集積化が可能な微小な赤外光源が必要不可欠である。

現在、実用化されている代表的な赤外光源として、タングステン光源、LED、半導体レーザーが挙げられる。それぞれの光源には一長一短あり、LEDや半導体レーザーに主に用いられている化合物半導体は、シリコン基板上に直接形成することが難しく、微小な光源をシリコン基板上に集積化することが困難であった。

そのような中で、我々の研究グループは、ナノカーボン材料であるグラフェンを用いた黒体放射発光素子の開発に成功した。グラフェンによる黒体放射は、近赤外・赤外領域で Planck 則に従うブロードな発光スペクトルを示す。また、ナノ材料特有の小さな熱容量と基板への熱の大きな散逸により、従来の白熱電球と比べ 10^7 倍以上も高速な 100 ps 以下の緩和時間で変調することができる。このようなグラフェンを用いた超高速発光素子は、半導体微細加工技術によりシリコン基板上に集積化できることから、従来の LED や半導体レーザーに代わる赤外光源としての応用に期待が集まっている。

一方、グラフェンは、従来より機械的剥離法及び化学気相成長(CVD)法を用いて作製されることが多い。機械的剥離法は、粘着テープを用いて、高配向熱分解黒鉛からグラフェンを機械的に剥離し、所望の基板に転写するという簡便な手法で結晶性の高いグラフェンが得られる。一方、機械的剥離法により得られるグラフェンは、転写位置や層数の制御が難しく、大きさも最大 $10\ \mu\text{m}$ 程度であり、量産化及び集積化には不適である。また、CVD法は、炭化水素の気体と金属触媒を高温で化学反応させることにより、グラフェンを金属触媒上に成長するという手法で、大面積で均一なグラフェンが得られる。一方、CVD法では、銅単結晶などの導電性基板上にグラフェンを成長させるため、グラフェンを転写することが必要であり、グラフェンにシワや破れが生じ、発光特性や素子寿命が劣化する。グラフェン発光素子の実用化には、基板上に直接成長できる転写フリーなグラフェン作製法の開発が必須であるが、殆ど行われていない。

2. 研究の目的

本研究では、基板上に直接成長できる転写フリーなグラフェン作製法を確立し、確立した手法により作製したグラフェンを発光素子化し、その電気特性・発光特性を評価する。シミュレーションと作製したデバイスで特性を比較しつつ、発光素子の高輝度化・高速化に向けたグラフェン材料及びデバイス構造の学理を追求する。また、高集積化のためのデバイス構造や最適な作製プロセスを提案する。

3. 研究の方法

(i) 基板上に直接成長できる転写フリーなグラフェン作製法の開発：

固体炭素源を用いることを特徴の一つとする、基板上に直接成長できる転写フリーなグラフェン作製法を確立する。一般的な CVD 法では炭化水素の気体であった原料をポリマーなどの固体炭素源に置き換える。固体炭素源を制御することで、得られるグラフェンの膜厚を精密に制御することを目指す。固体炭素源を $1000\text{--}1100^\circ\text{C}$ の条件下で適切な時間反応させることにより、グラフェンが成長する。金属触媒への炭素の溶解と析出を経てグラフェンが成長するため、反応触媒としての金属も検討・最適化する。成長において制御可能なパラメータも変化させ、最適なグラフェン作製法を探索する。

(ii) 発光素子の高輝度化・高速化に向けたグラフェン材料及びデバイス構造の学理追求：

確立した手法により作製したグラフェンに電極を蒸着によって作製し、電源に接続できるようにチップキャリアとワイヤーボンディングを行うことにより、発光素子化する。シミュレーションと作製したデバイスで特性を比較しつつ、高輝度化・高速化に寄与するパラメータを理論的・実験的に明らかにする。

(iii) 高集積化のためのデバイス構造や最適な作製プロセスの提案：

基板上に数 μm 角の発光部を数 μm 間隔で二次元的に高集積化させる方法を提案する。集積

度（単位面積あたりの発光部の数）を上げることが重要であるため、デバイス構造やデバイスの最適な作製プロセスを検討する。

4. 研究成果

本研究仮題に先立ち、基板上に直接成長できる転写フリーなグラフェン作製法の開発に取り組んだ。本手法の概略を図1に示すが、フォトリソグラフィにより、成長させるグラフェンの形状及び集積化のパターンを予め作製することにより、グラフェンをエッチングすることなく、任意の形状のグラフェンを基板上にダイレクトに成長することに成功した。

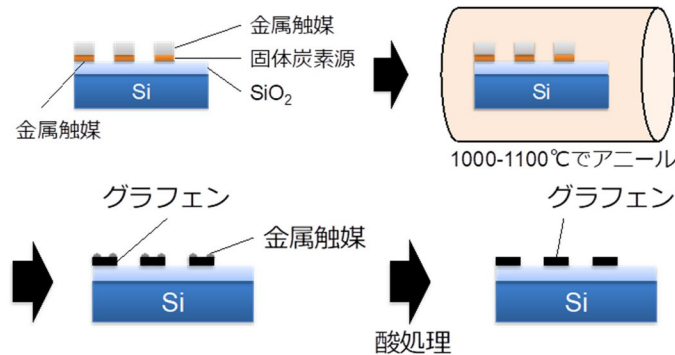


図1 基板上に直接成長できる転写フリーなグラフェン作製法。

Royal Society of Chemistry の許可を得て転載。

図2(a)に示すように、作製できるグラフェンの形状・大きさは、正方形・長方形・螺旋形など、自由自在である。また、CVDに用いられる一般的な電気炉の代わりに、急速昇温と高温処理が制御プログラムにより可能な高速熱アニール炉によりグラフェン成長を行った。その結果、図2(b)に示すように、グラフェンに特徴的なRamanピークであるDバンド、Gバンド、2Dバンドが観測されたが、図2(c)に示すように、その強度がほとんど同じことから、作製したパターンが均一なグラフェンであることが確認できた。

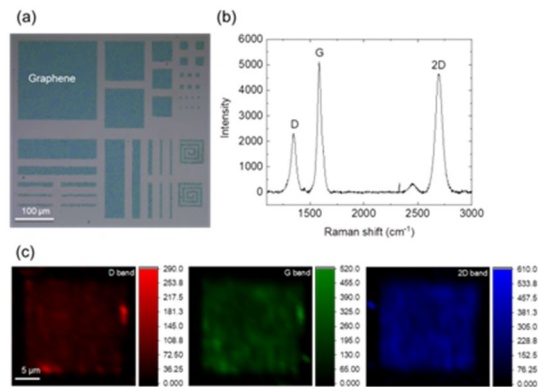


図2 作製したグラフェンの光学顕微鏡像 (a)、Raman スペクトル (b) とマッピング (c)。

Royal Society of Chemistry の許可を得て転載。

さらに、本手法により作製されたグラフェンに電極を蒸着によって作製し、電源に接続できるようにチップキャリアーとワイヤーボンディングを行うことにより、発光素子化にも成功した。作製したデバイスの光学顕微鏡像を図3(a)に示すが、この発光素子の2つの電極間に電圧を印加すると、図3(b)及び(c)に示すように、電極間のグラフェン部のみが黒体放射により発光する。

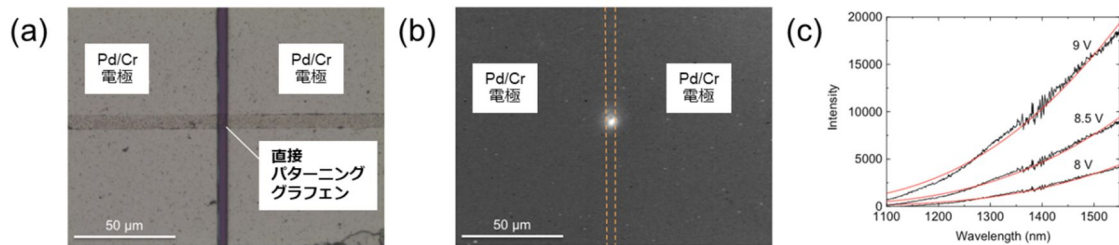


図3 発光素子の光学顕微鏡像 (a)、赤外カメラ像 (b)、発光スペクトル (c)。

Royal Society of Chemistry の許可を得て転載。

以上の結果は、熱酸化したシリコン基板上にグラフェンを成長し、発光素子化したが、図4に示すように、石英基板上にもグラフェンを成長し、発光素子化できることが明らかとなった。この結果により、基板の種類を選択することにより、基板との相互作用を制御させるなどの展開が可能となることが明らかとなった。

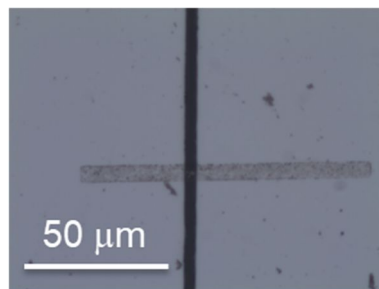


図4 石英基板上に作製したグラフェン発光素子の光学顕微鏡像。

また、基板上に蒸着する固体炭素源や金属触媒の厚さを制御し、同条件で高速熱アニール炉によりグラフェン成長を行った。発光素子化したデバイスの光学顕微鏡像、レーザー顕微鏡像、電流・電圧 (I - V_{ds}) 特性、発光特性 (赤外カメラ像) を評価した。図5 (a) に I - V_{ds} 特性、(b) に赤外カメラ像を示すが、作製したデバイス間で各特性を比較することにより、高輝度化に寄与するパラメータを明らかにすることができた。

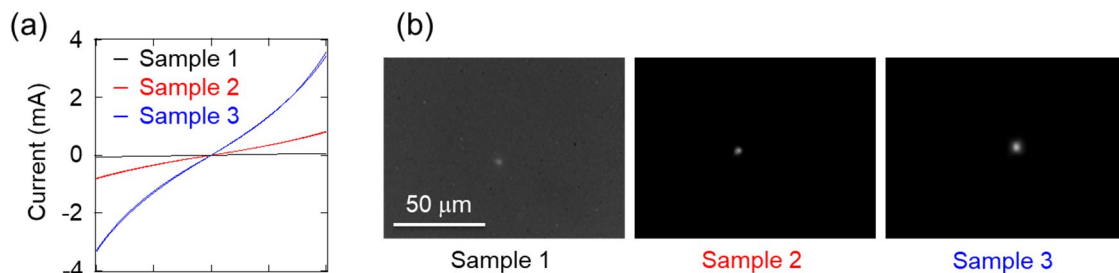


図5 石英基板上グラフェン発光素子の I - V_{ds} 特性 (a)、赤外カメラ像 (b)。

さらに、高集積化のためのデバイス構造や最適な作製プロセスの提案を目指した。単純かつ理想的な概算ではあるが、数 μm 角グラフェン発光素子のデータ伝送容量を 1 Mbps とすると、1 mm 角で $1 \text{ Mbps} \times (10^3)^2 \text{ ch} = 1 \text{ Tbps}$ のデータ伝送容量となる。そこで、本研究課題では、基板上に発光部の面積が数 μm 角の非常に小さな発光素子を作製した。上述のように、集積度 (単位面積あたりの発光部の数) を上げることが重要であるが、本研究課題で当初目標としていた非常に小さな発光素子 (\sim 数 μm 角) の作製に成功した。今後は、電極の配線などのデバイス構造やデバイスの最適な作製方法を検討することにより、さらなる高集積化を目指す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 中川鉄馬, 高橋英統, 志村 惟, 牧 英之
2. 発表標題 多結晶グラフェンを固体炭素源からシリコン基板上に直接パターンニング成長させる方法の開発とその発光素子化
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kenta Nakagawa, Hidenori Takahashi, Yui Shimura and Hideyuki Maki
2. 発表標題 A light emitter based on polycrystalline graphene patterned directly on silicon substrates from a solid-state carbon source
3. 学会等名 2020 International Conference on Solid State Devices and Materials (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kenta Nakagawa, Hidenori Takahashi, Yui Shimura and Hideyuki Maki
2. 発表標題 A light emitter based on polycrystalline graphene patterned directly on silicon substrates from a solid-state carbon source
3. 学会等名 International Conference on the Science and Application of Nanotubes and Low-Dimensional Materials (NT21) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kenta Nakagawa, Hidenori Takahashi, Yui Shimura and Hideyuki Maki
2. 発表標題 A light emitter based on polycrystalline graphene patterned directly on silicon substrates from a solid-state carbon source
3. 学会等名 The 12th Recent Progress in Graphene and Two-dimensional Materials Research Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中川鉄馬, 高橋英統, 志村 惟, 牧 英之
2. 発表標題 シリコン基板上の多結晶グラフェン直接パターンニング成長と発光素子化
3. 学会等名 第48回炭素材料学会年会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	牧 英之 (MAKI Hideyuki) (10339715)	慶應義塾大学・理工学部(矢上)・教授 (32612)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関