

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 20 日現在

機関番号：11401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25420314

研究課題名(和文) 無機半導体を用いた新規高性能フレキシブル・フラットパネル・ディスプレイの開発

研究課題名(英文) Development of flexible flat panel displays using inorganic semiconductors

研究代表者

佐藤 祐一 (Sato, Yuichi)

秋田大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：70215862

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、無機半導体を用いた新規高性能フラットパネルディスプレイの実現に向け、その周辺技術を開発することに重点を置いて研究を進めた。最も重要な点は、 $\text{GaN}$  族窒化物半導体薄膜のエピタキシャル成長が可能な単結晶基板ではなく、結晶に対する配向規制力が一様ではない、あるいは存在しない非単結晶基板の上に当該薄膜の高品質結晶を形成することである。当該薄膜の形成は高周波プラズマによる窒素ガス励起方式の活性窒素源を有する分子線エピタキシー装置により行った。得られた各薄膜についてX線回折測定による結晶性の解析やフォトルミネセンス特性の評価などを主に行った。

研究成果の概要(英文)：In this research, some underlying technologies of a novel and high performance flat panel display device using inorganic semiconductor materials were mainly investigated for realization of the device. The group-III nitride semiconductor thin films were grown by plasma enhanced molecular beam epitaxy method, and crystallinities and photoluminescence properties of the obtained thin films were investigated.

研究分野：電子材料工学

キーワード：半導体 薄膜

#### 1. 研究開始当初の背景

これまで種々の方式のフラットパネルディスプレイが開発され、実用化されており、特に性能を求めなければ十分なものが市場に供給されている。これに対し、より高い性能を求める場合、あるいは特殊用途に用いられるような場合には、これまでの方式の更なる改良が必要である。本研究では、より信頼性が高く、かつ、より高い性能を実現できる可能性のある、無機半導体材料を発光源とする新規フラットパネルディスプレイデバイスを得るためのいくつかの要素技術について検討を行う。

#### 2. 研究の目的

当該ディスプレイデバイスの実現のためには、発光源を構成する無機半導体、すなわち Ⅲ族窒化物半導体の薄膜を所望の基板材料の上へ高品質に形成する技術を開発することが必要である。なお、その基板材料は薄膜のエピタキシャル成長が直接的に実現できる単結晶基板ではなく、非単結晶基板であり、その上に形成される薄膜の結晶状態や発光特性などがどの程度のものであり、また、それをどこまで改善できるかを明らかにする。

#### 3. 研究の方法

(1)非晶質の基板材料として石英ガラスを取り上げ、高周波プラズマによる窒素ガス励起方式の活性窒素源を有する分子線エピタキシー (MBE) 装置により、窒化ガリウム (GaN) あるいは窒化インジウム (InN) との混晶である InGaN 薄膜などの Ⅲ族窒化物半導体薄膜の作製を行った。

(2)発光源作製のために必要な周辺要素について検討を行った。すなわち、Ⅲ族窒化物半導体薄膜が良質な状態で形成できる、キャリア注入を効果的に行うことができる、発光源からの発光が外部へ効率よく放出できるなどの条件を満たす透明電極薄膜について検討を行った。

(3)石英ガラス基板以外のいくつかの非晶質基板の上に Ⅲ族窒化物半導体薄膜を形成し、それらの結晶性、光学的特性、電気的特性などについて検討を行った。

(4)発光源構成のための各要素の検討の中で、より発光特性の良好な薄膜を得るために、MBE 装置によるいくつかの成膜パラメータと発光特性の関係を調べた。

#### 4. 研究成果

(1)得られた各薄膜について、X線回折 (XRD) 法による結晶性評価や、フォトルミネセンス (PL) 測定による発光特性評価などを行った。

GaN および InGaN 薄膜いずれについても c 軸が優先的に配向した結晶が石英ガラス基板上に成長しており、InGaN に関して懸念される相分離も生じていないことを確認できた。また、GaN 薄膜の PL 特性に関してはバンド端発光に相当する 365 nm 付近の発光を確認できた。これらのことから単結晶基板を用いない場合においてもある程度良好な結晶性と発光特性を有する薄膜を得ることが可能であることが明らかとなった。

(2)透明電極用材料として GaN ヘゲルマニウム (Ge) を高濃度にドーピングしたものを検討した。その抵抗率は高濃度ドーピングにより十分に低減することができ、かつ広い波長範囲で透過率が高い状態を保つことが可能であることを確認できた。さらにこの材料においては結晶性も高く、その上に形成する窒化物半導体薄膜の結晶性に対しても良い影響を与えることが期待できる。この他に、酸化インジウム ( $\text{In}_2\text{O}_3$ ) 系材料についても同様に検討を行い、スパッタリング法で結晶性および透過率が高い状態で抵抗率を低減するための作製条件を最適化した。

(3)石英ガラス基板以外の非晶質基板の上においても、高度に c 軸配向した窒化物半導体薄膜が得られ、InGaN 混晶においては相分離が生じていない状態で形成できることを確認できた。また、不純物ドーピングにより発光強度が増大すること、および抵抗率を制御できることを確認した。さらに、p 型不純物をドーピングした場合には、熱処理を行わなくとも単結晶基板を用いた場合と同様に p 型導電性が得られることを電気化学的容量電圧測定法により確認することができた。

(4)InGaN 薄膜を形成する場合には、InN の分解温度が GaN のそれと比べてはるかに低いことから、薄膜形成時の In 供給量と Ga 供給量を同程度の量とした場合には、形成される薄膜中の組成は GaN 寄りものとなる。このことから、薄膜の形成時の基板温度を極めて高くした場合には、薄膜中の In 量は極めて微量となることを確認した。このような条件において、活性窒素を供給するための高周波プラズマセルを通常の 1 系統から 2 系統に増やした場合、窒素は Ⅲ族元素に対して過剰供給の状態となる。これにより、薄膜形成時の基板温度が高い場合に薄膜中に取り込まれにくい In が比較的取り込まれやすい状態となり、上述の極めて高い基板温度で成膜を行った場合において、薄膜中の In の量がわずかではあるが増加していることを確認した。また、このような成膜パラメータで成膜を行った場合、プラズマセルの稼働数を 2 系統として成膜した場合に、薄膜からの発光の波長が長波長側にシフトすること、およびその発光強度が高くなることを確認された。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 10 件)

Yuichi Sato, Atomu Fujiwara, Shota Ishizaki, Shun Nakane, and Yoshifumi Murakami, Morphologies and Photoluminescence Properties of GaN-Based Thin Films Grown on Non-Single-Crystalline Substrates, Phys. Status. Solidi. C, 査読有, Vol. 14, No. 1-2, 2017, pp. 1600151-1-6.

Yuichi Sato, GaN Thin-Film-Depositions on Glass and Amorphous-SiO<sub>2</sub>-Layer-Deposited Si Single-Crystalline Substrates, Materials Science Forum, 査読有, vol. 879, 2016, pp. 1703-1708.

Yuichi Sato, Minoru Hatakeyama, Yuhei Muraki, Kazuki Sonoda, and Yoshifumi Murakami, Zr-Content Dependence of Electrical Properties in Heat-Treated In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Zr Thin Films Grown on a Sapphire Substrate by Sputtering, International Journal of Advanced Applied Physics Research, 査読有, vol. 3, 2016, pp. 1-4.

Yuichi Sato, Shota Ishizaki, Yoshifumi Murakami, Mohamad Idham, Nur Ain, Tatsuya Matsunaga, Some Properties of Group-Nitride Thin Films Directly Grown on Non-Single-Crystalline Substrates by Using a Molecular Beam Epitaxy Apparatus, Journal of Modern Physics, 査読有, vol. 6, 2015, pp. 1289-1297.

村木佑平, 佐藤祐一, 族窒化物太陽電池における下部透明電極用 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系薄膜のスパッタリング法による作製及び諸特性, 電子情報通信学会論文誌 C, 査読有, vol. J98-C, No. 11, 2015, pp. 1-7.

Yuichi Sato, Tadahiko Aoshima and Yuhei Muraki, Effects of Two-Step Heat-Treatment on Properties of In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Zr Thin Film Epitaxially Grown on c-Face Sapphire Substrate, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, vol. 54, 2015, pp. 08KC09-1-5.

Yuichi Sato, Tatsuya Matsunaga, Hiroki Takemoto, Yoshifumi Murakami, Yuhei Muraki, and Syota Ishizaki, Growth of High-Indium-Content InGaN:Mg Thin Films by MBE Method with Dual RF Nitrogen Plasma Cells, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, vol. 53, 2014, pp. 11RC04-1-5.

Yuichi Sato and Tatsuya Matsunaga, Properties of GaN-related Epitaxial Thin

Films Grown on Sapphire Substrates as Transparent Conducting Electrodes, Materials Science Forum, 査読有, vol. 783-786, 2014, pp. 1652-1657.

Yuichi Sato, Toshifumi Suzuki, Hiroyuki Mogami, Fumito Otake, Hiroto Hatori and Suguru Igarashi, Solid Phase Growth of Some Metal and Metal Oxide Thin Films on Sapphire and Quartz Glass Substrates, Materials Science Forum, 査読有, vol. 753, 2013, pp. 505-509.

Yuichi Sato and Kosuke Funaki, Variation of Growth Rate in InN Molecular-Beam-Epitaxy Growth Using Multiple Radio-Frequency Plasma Cells, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, vol. 52, 2013, pp. 08JD08-1-3.

〔学会発表〕(計 22 件)

藤原 亜斗武, 下村 和輝, 石崎 翔太, 佐藤 祐一, 非単結晶基板上 GaN 系ナノ柱状結晶形成における In 同時供給の影響, 電子情報通信学会総合大会, 2017 年 3 月 22 日, 名城大学(名古屋市).

藤原 亜斗武, 中根 駿, 石崎 翔太, 村上 佳詞, 佐藤 祐一, 非単結晶基板上に形成した GaN 系半導体薄膜の表面モフォロジー, 電子情報通信学会エレクトロニクスソサイエティ大会, 2016 年 9 月 20 日, 北海道大学(札幌市).

Atomu Fujiwara, Shota Ishizaki, Shun Nakane, Yoshifumi Murakami, and Yuichi Sato, Variations in Photoluminescence Properties of GaN-based Thin Films Directly Grown on an Amorphous Quartz Glass Substrate, ISCS2016 The 43<sup>rd</sup> International Symposium on Compound Semiconductors, 2016 年 6 月 26 日, Toyama (Japan).

Yuichi Sato, Reactive Plasma Depositions of Gallium Nitride Thin Films on Amorphous Substrates and Their Properties, THERMEC'2016 International Conference on Processing and Manufacturing of Advanced Materials, 2016 年 5 月 29 日, Graz (Austria).

Yuichi Sato, Minoru Hatakeyama, Yuhei Muraki, Kazuki Sonoda, and Yoshifumi Murakami, Annealing of In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Zr Thin Films Grown on a Sapphire Substrate by Sputtering Method and Variations in the Electrical Properties as a Function of the Zr-Contents, 25<sup>th</sup> International Photovoltaic Science and Engineering

Conference, 2015 年 11 月 15 日, Busan (Korea).

Shota Ishizaki, Yoshifumi Murakami, Atomu Fujiwara, Shun Nakane, and Yuichi Sato, Enhancement of the Band-Edge Emission in Photoluminescence Spectra of GaN-Based Thin Films Grown on a Quartz Glass Substrate, 6<sup>th</sup> International Symposium on Growth of  $\text{-Nitrides}$ , 2015 年 11 月 8 日, Hamamatsu (Japan).

Yoshifumi Murakami, Shota Ishizaki, and Yuichi Sato, Control of Optical-Absorption-Edge of InN Thin Films without Their Crystal-Structure-Changes by a Low-Temperature Heat-Treatment, 6<sup>th</sup> International Symposium on Growth of  $\text{-Nitrides}$ , 2015 年 11 月 8 日, Hamamatsu (Japan).

石崎 翔太, 藤原 亜斗武, 中根 駿, 村上 佳詞, 松永 竜弥, 佐藤 祐二, 石英ガラス基板上 GaN 薄膜の PL スペクトルにおけるバンド端発光強度の変化に関する検討, 電子情報通信学会エレクトロニクスソサイエティ大会, 2015 年 9 月 8 日, 東北大学(仙台市).

村上 佳詞, 石崎 翔太, 佐藤 祐二, InN 薄膜の光学吸収端の不純物ドーピングまたは酸化処理による変化に関する検討, 電子情報通信学会エレクトロニクスソサイエティ大会, 2015 年 9 月 8 日, 東北大学(仙台市).

Yuhei Muraki, Syota Ishizaki, Yoshifumi Murakami, and Yuichi Sato, Investigation on Sputter-Growths of  $\text{In}_2\text{O}_3$  based Under-Electrodes on a Sapphire Substrate for Group-Nitride Solar Cells, ISPlasma2015 7<sup>th</sup> International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials, 2015 年 3 月 26 日, Nagoya (Japan).

Yuichi Sato, Syota Ishizaki, Yoshifumi Murakami, Mohamad Idham, Nur Ain, Yuhei Muraki, and Tatsuya Matsunaga, Properties of GaN and InGaN Thin Films Grown on Non-Single-Crystalline Substrates by MBE Using Single or Dual Nitrogen Plasma Cells, ISPlasma2015 7<sup>th</sup> International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials, 2015 年 3 月 26 日, Nagoya (Japan).

石崎 翔太, 村上 佳詞, 松永 竜弥, モハマド イドハム, 佐藤 祐二, 非単結晶基板

上に成長した 族窒化物半導体薄膜の結晶性および光学的特性, 電子情報通信学会総合大会, 2015 年 3 月 10 日, 立命館大学(草津市).

村上 佳詞, 石崎 翔太, ヌル アイン, 村木 佑平, 佐藤 祐二, 不純物をドーピングした非晶質基板上 族窒化物半導体薄膜の電気的特性の評価, 電子情報通信学会総合大会, 2015 年 3 月 10 日, 立命館大学(草津市).

村木 佑平, 石崎 翔太, 村上 佳詞, 畠山 穰, 佐藤 祐二, 族窒化物薄膜太陽電池における透明下地層用  $\text{In}_2\text{O}_3$  系薄膜の低抵抗率化, 電子情報通信学会総合大会, 2015 年 3 月 10 日, 立命館大学(草津市).

Tadahiko Aoshima, Yuhei Muraki, and Yuichi Sato, Two-Step Heat-Treatment Effects on Properties of  $\text{In}_2\text{O}_3$  Based Transparent Conducting Thin Films Epitaxially Grown on Sapphire Substrate, The 6<sup>th</sup> World Conference on Photovoltaic Energy Conversion, 2014 年 11 月 23 日, Kyoto (Japan).

石崎 翔太, 村上 佳詞, 松永 竜弥, モハマド イドハム, 佐藤 祐二, 非晶質基板上に作製した GaN および InGaN 薄膜の結晶性および光学的特性, 電気関係学会東北支部連合大会, 2014 年 8 月 21 日, 山形大学(米沢市).

村上 佳詞, 石崎 翔太, 松永 竜弥, ヌル アイン, 佐藤 祐二, 非晶質基板上に作製した GaN および InGaN 薄膜の電気的特性の評価, 電気関係学会東北支部連合大会, 2014 年 8 月 21 日, 山形大学(米沢市).

村木 佑平, 青島 忠彦, 畠山 穰, 佐藤 祐二, サファイアおよび石英上 Zr ドープ  $\text{In}_2\text{O}_3$  薄膜のスパッタ成膜時の酸素分圧に対する諸特性の変化, 電気関係学会東北支部連合大会, 2014 年 8 月 21 日, 山形大学(米沢市).

石崎 翔太, 松永 竜弥, 村上 佳詞, 村木 佑平, 青島 忠彦, 佐藤 祐二, 非単結晶基板上への 族窒化物半導体薄膜の結晶成長および諸特性, 電子情報通信学会総合大会, 2014 年 3 月 18 日, 新潟大学(新潟市).

Tatsuya Matsunaga, Hiroki Takemoto, Syota Ishizaki, Yoshifumi Murakami, Yuhei Muraki, Tadahiko Aoshima, and Yuichi Sato, On the Growth of In-rich InGaN Thin Films by Molecular Beam Epitaxy Using Multiple RF Plasma Cells and Their P-Type

Conduction, ISPlasma2014 6th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials, 2014年3月2日, Nagoya (Japan).

⑪ Yuichi Sato and Tatsuya Matsunaga, Properties of GaN and AlGaIn Thin Films Epitaxially Grown on Sapphire Substrate as Transparent Conducting Underlayers, THERMEC '2013 International Conference on Processing and Manufacturing of Advanced Materials, 2013年12月2日, Las Vegas (USA).

⑫ Yuichi Sato, Hiroto Hatori and Suguru Igarashi, Solid Phase Heteroepitaxial Growth of Metal Thin Films on Sapphire Substrates, RexGG2013 5<sup>th</sup> International Conference on Recrystallization and Grain Growth, 2013年5月5日, Sydney (Australia).

〔産業財産権〕

出願状況(計 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

佐藤 祐一 (SATO, Yuichi)  
秋田大学・大学院理工学研究科・准教授  
研究者番号：70215862

### (2) 研究分担者

齋藤 嘉一 (SAITO Kaichi)  
秋田大学・大学院理工学研究科・教授  
研究者番号：10302259