

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601
研究種目：基盤研究(A)
研究期間：2012～2014
課題番号：24245040
研究課題名(和文)雲母を基板とするフレキシブルエレクトロニクスの創成

研究課題名(英文)Flexible electronics on mica substrates

研究代表者
藤岡 洋 (Fujioka, Hiroshi)
東京大学・生産技術研究所・教授

研究者番号：50282570
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、安価で大面積な雲母(マイカ)基板上への高品質GaN系半導体結晶成長技術の開発と、フレキシブル発光素子の作製を行った。マイカ基板上へのGaNエピタキシャル成長において、界面AlNバッファ層導入の有無によってGaN薄膜の極性制御が可能になることを見出した。また、量子井戸構造作製技術や伝導性制御技術を開発し、マイカ上で発光素子を動作させる事に成功した。さらに、湾曲した状態でのLED動作も確認した。本研究で開発したマイカ上へのIII族窒化物デバイス作製技術を用いれば、フレキシブルな透明窒化物エレクトロニクスの実現が期待できる。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the feasibility of fabricating flexible GaN-based light emitting diodes (LEDs) on mica substrates. The polarity control of the GaN films on mica substrates has been demonstrated with and without the AlN buffer layers. It has been found that it is possible to grow n- and p-type GaN films and to form a multiple quantum wells on mica substrates. We fabricated GaN-based LEDs and confirmed their successful operation. These results indicate that the present technique is quite promising as a future fabrication method for large-area and flexible GaN light-emitting displays.

研究分野：半導体素子工学

キーワード：雲母 窒化物半導体 フレキシブルエレクトロニクス

1. 研究開始当初の背景

近年、ユビキタス社会実現の為にキーテクノロジーとして、軽量・透明・柔軟といった性質を備えた半導体電子デバイスの開発が進められている。ところが、従来の半導体デバイスは硬い単結晶ウェハ上に作製されているため、フレキシブルデバイスの作製には極めて煩雑なプロセスが必要である。この問題を解決するためには、高品質な単結晶半導体薄膜をフレキシブルな基板上に作製する技術の開発が必要である。

雲母(マイカ)板は、透明かつフレキシブルで 20 インチを超える大面積の単結晶を安価かつ大量に入手することができる。従って、雲母板は人類が入手することのできる最大の単結晶基板であると考えられる。また、マイカは透明な 2 次元単結晶材料であり、へき開によって数十 μm まで薄くすることでフレキシブルな基板として利用することが可能である(図 1)。更にマイカ基板は発光ダイオードや高周波デバイス用材料として用いられている窒化物半導体との格子不整合が小さいことから、マイカ上への高品質な窒化物半導体薄膜成長が期待できる。



図 1 フレキシブルマイカシートの写真

2. 研究の目的

本提案では、マイカ上への高品質な GaN 薄膜成長技術の開発とフレキシブル LED の作製を行った。

安価で柔軟なマイカ上に高効率の GaN 系 LED の作製ができれば、大面積でフレキシブルな直接発光ディスプレイの実現が期待できる。さらに、マイカ上の半導体素子をガラス、セラミックなどの材料に貼り付けることにより、全ての構造材料に計算能力、通信能力、表示能力、発電能力、センシング能力等の知的機能を付与することも可能である。

3. 研究の方法

GaN などの窒化物半導体薄膜はパルススパッタ堆積(PSD)装置を用いてマイカ(001)基板上に成長した。マイカ基板は大気中で表面層を剥離した後、PSD 装置に導入し、窒化物薄膜成長の直前に 700 °C で 1 時間アニールした。窒化物薄膜の評価には反射高速電子線回折 (RHEED)、原子間力顕微鏡 (AFM)、X 線回折(XRD)、電子線後方散乱回折(EBSD)、

X 線反射率測定(GIXR)、X 線光電子分光測定(XPS)などを用いた。

4. 研究成果

(1) マイカ基板上への GaN 成長

表面層の剥離および真空中アニールを行った後のマイカ基板表面の AFM 像を図 2(a) 示す。ステップ&テラス構造が観測され、RMS 値も 0.2 nm と小さいことが分かった。また、RHEED 観察においてストリークパターンやラウエゾーンが明瞭に観測された。これらの結果から、表面処理を行ったマイカ基板ではその表面が清浄化されており、epi-ready の状態であることが確認された。このようなマイカ基板上に、GaN 薄膜の成長を行った。

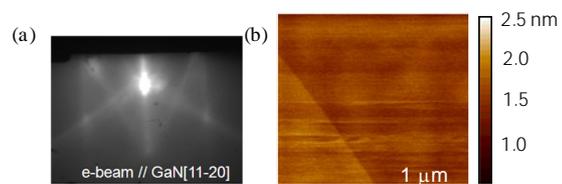


図 2 表面処理後のマイカ表面の (a) RHEED 像と (b) AFM 像

GaN の結晶構造はウルツ鉱型構造である為、[0001]方向に反転対称性がなく N 極性面と Ga 極性面の二種類の{0001}面が存在する。極性の混在による反転境界の形成は素子特性の劣化を引き起こすため、素子応用のためには GaN 薄膜の極性制御プロセスの開発が不可欠である。マイカ基板上に GaN 薄膜を直接成長した場合、図 3(a) に示す様に RHEED 像において N 極性に特有の 3×3 の表面再構成パターンが観察された。図 3(b)、(c)はそれぞれ KOH エッチング前後での表面 SEM 像であるが、エッチング後に表面が荒れていることから、マイカ上に直接成長した GaN 薄膜はアルカリ溶液に対する耐性が低く、N 極性である事が分かった。次に、マイカ基板上への

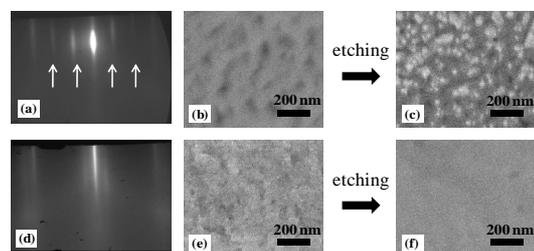


図 3 マイカ上に直接成長した GaN 薄膜の (a)RHEED 像、(b),(c)KOH エッチング前後の表面 SEM 像。AlN パッファー層を用いて成長した GaN 薄膜の (d)RHEED 像、及び (e)、(f)KOH エッチング前後の表面 SEM 像

Ga 極性 GaN 薄膜成長を実現する為に、GaN/マイカのヘテロ界面に AlN バッファ層を挿入した。AlN バッファ層を導入して成長した GaN 薄膜(GaN/AlN/マイカ)の RHEED 像は、図 3(d)に示す様に Ga 極性である事を示唆する 1×1 表面再構成を示した。また、KOH エッチング前後における GaN 薄膜の表面モフォロジーを調べたところ、図 3(e)、(f)に示す様に、ほとんど変化は見られず、アルカリ溶液に対する耐性が高い事が分かった。これらの結果から、AlN バッファ層を導入する事によって、マイカ基板上に Ga 極性 GaN 成長を実現できる事が明らかとなった。また図 4 に示すように、XRD 測定によってマイカと窒化物薄膜の結晶配向関係を調べたところ、 $(0001)_{\text{GaN}} // (001)_{\text{mica}}$, $[1010]_{\text{GaN}} // [100]_{\text{mica}}$ であり、格子不整合を最小にする事が確認できた。

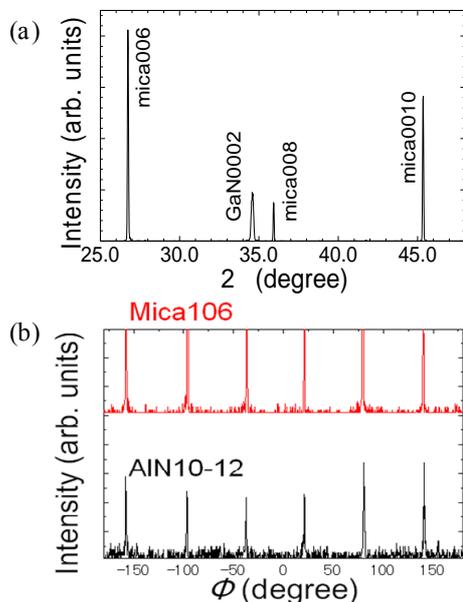


図 4 マイカ上に直接成長した GaN 薄膜の XRD 測定結果：(a) $2\theta/\omega$ スキャン、(b) ϕ スキャン

(2) フレキシブル LED の作製

まず、高輝度 LED の作製に不可欠な InGaN 多重量子井戸構造の作製技術開発に取り組んだ。Ga 極性 GaN/AlN/マイカ基板の上に、5 周期の $[\text{InGaN}/\text{GaN}]$ 量子井戸構造(MQW)を形成し、その構造特性および光学特性を評価した結果を図 5 に示す。RHEED 像において 2×2 の表面再構成を有するシャープなストリークパターンが観測され、MQW 構造が高い平坦性を有している事が分かった。また、高分解能 XRD 測定を行ったところ、図 5(b)に示すように GaN と AlN の 0002 回折と共に、MQW 構造に由来するサテライトピークが 2 次まで明瞭に観測された。これは、MQW 構造内

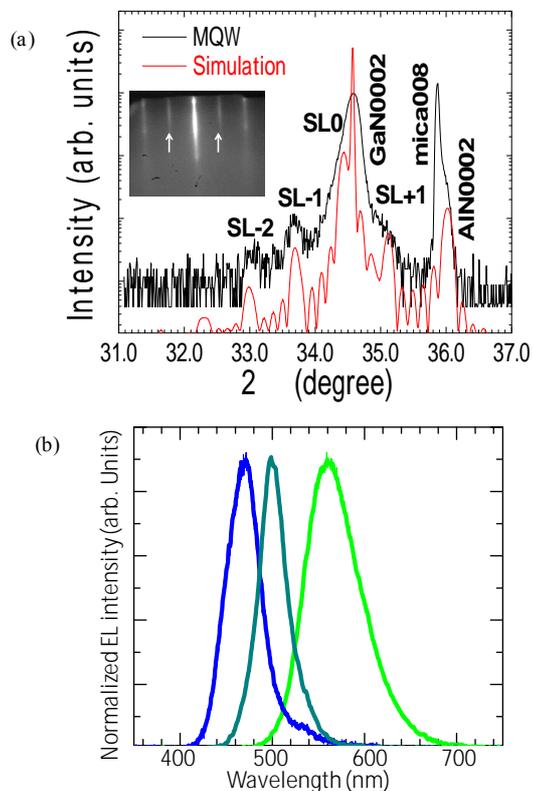


図 5 GaN/マイカ上に作製した(a)量子井戸構造の RHEED 像と XRD 測定カーブ、および(b) LED の EL スペクトル

の InGaN/GaN 界面が急峻であることを示唆する。また、カーブフィッティングの結果から MQW 構造内の組成や膜厚は、 $[\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{N}(3 \text{ nm})/\text{GaN}(10 \text{ nm})]_5$ であり、ほぼ設計どおりの値になっていることが確認できた。この MQW 構造を p 型および n 型 GaN 層で挟み、オーミック電極としてそれぞれ Ni と In を堆積し、LED 構造を作製した。この試料に対し、電流注入によってエレクトロルミネッセンス測定を行ったところ、明瞭な青色が観測された。また、InGaN 井戸層の In 組成を変化させることで、図 5(b)のように青色から緑色領域までの電流注入発光を示す LED の動作に成功した。

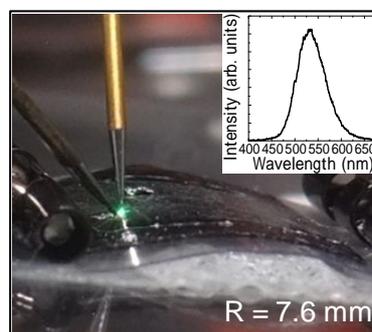


図 6 マイカ基板を用いたフレキシブル LED の EL 発光写真と発光スペクトル

続いて、へき開によって薄片化した雲母基板を用い、フレキシブルな LED の作製を試みた。その結果、図 6 に示すように湾曲した状態 (曲率半径 $R = 7.6 \text{ mm}$) でも明瞭な EL 発光を示すことが明らかになった。これらの結果から、マイカ基板はフレキシブルな窒化物半導体デバイス用基板として極めて有望である事が明らかになった。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 7 件)

1. E. Nakamura, K. Ueno, J. Ohta, H. Fujioka, and M. Oshima, "Dramatic reduction in process temperature of InGaN-based light-emitting diodes by pulsed sputtering growth technique", Appl. Phys. Lett. 104, 051121 (2014). 査読あり
DOI: 10.1063/1.4864283
2. A. Kobayashi, K. Ohkubo, J. Ohta, M. Oshima, and H. Fujioka, "Polarity control and growth mode of InN on yttria-stabilized zirconia (111) surfaces", Phys. Stat. Solidi A **209**, 2251 (2012). 査読あり
DOI:10.1002/pssa.201228287
3. Y. Guo, S. Inoue, A. Kobayashi, J. Ohta, and H. Fujioka, "Theoretical Investigation of the Polarity Determination for c-plane InN Grown on Yttria-Stabilized Zirconia (111) Substrates with Yttrium Surface Segregation", Appl. Phys. Express 6, 021002-1-3 (2013). 査読あり
DOI: 10.7567/APEX.6.021002
4. Y. Guo, S. Inoue, A. Kobayashi, J. Ohta, and H. Fujioka, "Theoretical study of the initial stage of InN growth on cubic zirconia (111) substrates", Phys. Status Solidi RRL 7, 207-210 (2013). 査読あり
DOI: 10.1002/pssr.201206465
5. T. Kajima, A. Kobayashi, K. Ueno, J. Ohta, H. Fujioka, and M. Oshima, "Structural Properties of m-Plane InAlN Films Grown on ZnO Substrates with Room-Temperature GaN Buffer Layers", Appl. Phys. Express 6, 021003-1-3 (2013). 査読あり
DOI: 10.7567/APEX.6.021003
6. J. Liu, A. Kobayashi, K. Ueno, J. Ohta, H. Fujioka, and M. Oshima, "Band configuration of SiO_2 /m-plane ZnO heterointerface correlated with electrical properties of Al/ SiO_2 /ZnO structures", Jpn. J. Appl. Phys. 52, 011101 (2012). 査読あり
DOI: 10.7567/JJAP.52.011101
7. K. Okubo, A. Kobayashi, J. Ohta, M. Oshima, and H. Fujioka, "Electron mobility of ultrathin InN on yttria-stabilized zirconia with two-dimensionally grown initial layers", Appl. Phys. Lett. 102, 022103-1-3 (2013). 査読あり

DOI: 10.1063/1.4776210

〔学会発表〕(計 43 件)

1. H. Fujioka, "Pulsed Sputtering Technique for Fabrication of Future Nitride Devices", E-MRS 2014 Spring Meeting, Lille, France, May 26, 2014.
2. H. Fujioka, "Nitride Materials and Devices Prepared by Pulsed Sputtering", International Conference on Metamaterials and Nanophysics, Melia Varadero, Cuba, April 22, 2014
3. H. Fujioka, "Characteristics of GaN Films Prepared by PVD and Their Device Applications", ICMAT2013, Singapore, June 30, 2013.
4. H. Fujioka, "Feasibility of large area nitride devices prepared by pulsed sputtering", International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, Sapporo, Japan, Oct. 15, 2012.
5. H. Fujioka, "Future prospect of large area nitride devices prepared by pulsed sputtering deposition", 4th Int. Symposium on Growth of III-Nitrides, St. Petersburg, Russia, July 16-20, 2012.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 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 0 件)

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

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究代表者

藤岡 洋 (Fujioka, Hiroshi)
東京大学・生産技術研究所・教授
研究者番号 : 5 0 2 8 2 5 7 0