

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 27 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25820120

研究課題名(和文)窒化物半導体太陽電池のための超高品質基板の開発

研究課題名(英文)Fabrication of high-quality substrates for nitride-semiconductor-based solar cells

研究代表者

小林 篤(Kobayashi, Atsushi)

東京大学・生産技術研究所・特任助教

研究者番号：20470114

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、窒化物半導体太陽電池の高効率化を目的として、新規格子整合基板の開発を行った。具体的には、異種材料である酸化物基板上に、結晶性の高い窒化物半導体薄膜をエピタキシャル成長させ、それを剥離した。このプロセスにより、所望の格子定数とバンドギャップを有する窒化物半導体テンプレートを作製することに成功した。

研究成果の概要(英文)：We have fabricated novel substrates for high-performance nitride semiconductor solar cells. The substrates were fabricated via peeling off the high-quality nitride films epitaxially grown on lattice-matched oxide substrates. This process has enabled the fabrication of nitride semiconductor templates with arbitrary lattice constants and band-gaps.

研究分野：窒化物半導体結晶成長

キーワード：窒化物半導体 薄膜成長

1. 研究開始当初の背景

近年、優れた物性を有し、低環境負荷である窒化物半導体の太陽電池応用が盛んに行われているが、適切な格子整合基板が存在しないために、窒化物半導体ベースの太陽電池の変換効率は 10% を超えないレベルに留まっている。

InGaAlN 混晶は窒化物半導体がとりうる全ての格子定数・バンドギャップを実現できるため、窒化物半導体太陽電池用には究極の基板であるが(図 1)、現時点ではその作製手法は確立されていない。窒化物半導体が潜在的に持つ太陽電池材料としての魅力を開花させるためには、精密エピタキシー技術に立脚した InGaAlN 基板の開発が必要である。

研究代表者はこれまでに、窒化物半導体に格子整合する酸化亜鉛 (ZnO) や安定化ジルコニア (YSZ) などの窒化物結晶を基板として採用し、界面の原子配列制御技術に基づいて薄膜の高品質化に成功してきた。【参考文献：A. Kobayashi *et al.*, APL(2011), PSS(R)(2010), APL(2007)】この薄膜作製技術を発展させることで、InGaAlN を全組成で高品質化でき、さらに格子整合酸化物基板から、薄膜を単離することができれば、それを太陽電池用の自立基板として利用できる可能性がある。本研究では、これまでに開発してきたエピタキシャル成長技術に、新たに薄膜剥離技術を適用することで、超高品質 InGaAlN 基板を開発する。

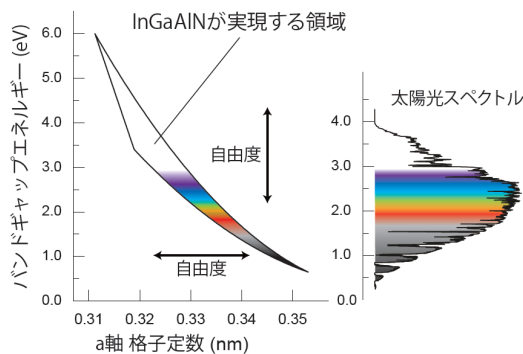


図 1 太陽電池基板 InGaAlN の物性自由度

2. 研究の目的

窒化物半導体太陽電池を実用化するために、新規基板の開発が求められている。本研究では、研究代表者がこれまでに開発してきた精密エピタキシー技術を発展させ、窒化物半導体太陽電池のための、超高品質基板の開発を行う。具体的には、窒化物/酸化物界面制御技術と酸化物剥離技術をもちいて、格子定数とバンドギャップの自由度が高い InGaAlN 単結晶の高品質化とその自立基板の作製を行う。

3. 研究の方法

(1) パルススパッタ堆積法による超高品質 InGaAlN 結晶のエピタキシャル成長

本研究では太陽電池用窒化物半導体の材料パラメータの自由度を向上させるために、InGaAlN 単結晶の高品質化を行う。ZnO や YSZ を出発材料(保持基板)として採用する。ZnO は InGaAlN と同じ結晶構造を有し、格子定数の近い唯一の化合物である。YSZ は特に In 組成の高い窒化物半導体に格子整合性が高い結晶である。研究代表者は、研究会支持点において、ZnO 基板上へ特定の組成を有する窒化物半導体のエピタキシャル成長には成功している【Kobayashi *et al.*, JAP 99, 123513 (2006), Kajima, Kobayashi *et al.*, APEX 3, 021001 (2010)】。しかしながら、全組成エピタキシャル成長を達成するためには、これまでに開発してきた技術をより高度化させた精密な組成制御が求められる。そこで、本研究では、窒化物半導体の精密組成制御が可能なパルススパッタ法を成長手法として採用し、ZnO 基板や YSZ、基板上へ全組成 InGaAlN エピタキシャル成長を実現できるプロセスの開発を行う。

(2) InGaAlN 混晶の光物性評価

InGaAlN を窒化物半導体太陽電池の基板として利用する場合には、その格子定数やバンドギャップを正確に決定し、さらには格子歪みに由来する光学特性の変化を考慮した素子デザインが必要である。しかしながら、ZnO 基板にエピタキシャル成長した InGaAlN 混晶の歪みや光学特性については不明な点が多い。本研究で作製した超高品質 InGaAlN の評価を多角的に行うことで、これまで不明であった、基礎物性について明らかにする。

(3) 窒化物半導体自立基板の作製

格子整合する酸化物基板にエピタキシャル成長させた窒化物半導体薄膜を、基板から機械的もしくは化学エッチングによって剥離する。

4. 研究成果

(1) 高品質窒化物単結晶薄膜のエピタキシャル成長を実現するために、ZnO 基板上にコヒーレント成長が可能な組成と膜厚の調査を行った。ZnO 基板上では窒化物半導体が特定の混晶組成で完全に格子整合する場合があります、その組成近傍付近でのエピタキシャル成長を行ったところ、その臨界膜厚は 100nm を超えることが判明した。この臨界膜厚は、古典的なフォースバランスモデル(図 2)から予測される値を凌駕してした。本研究では、パルス励起堆積法による低温成長を行っているため、結晶成長時の転位の運動が抑制された結果、ミスフィット転位が導入されるこ

と無く、厚いコヒーレント薄膜を得ることができたと考えられる。

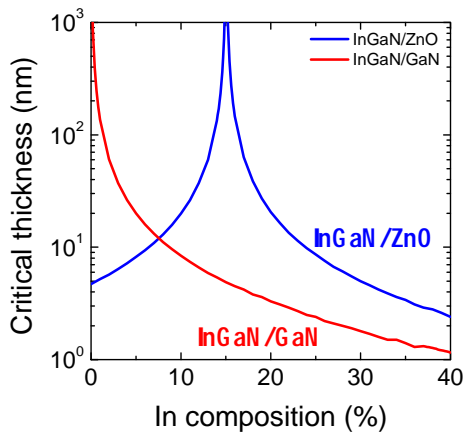


図2 コヒーレント成長した *m* 面 InGaN の臨界膜厚理論値

(2) コヒーレント成長した窒化物半導体薄膜の光学特性の系統的な解析を行ったところ、ZnO 基板上では特有の偏光特性(ルミネッセンス光の電場ベクトルが結晶の *c* 軸に平行)を発現することが明らかになった。この特性は理論的解析結果からの予測(図3)と一致していることも確認できた。

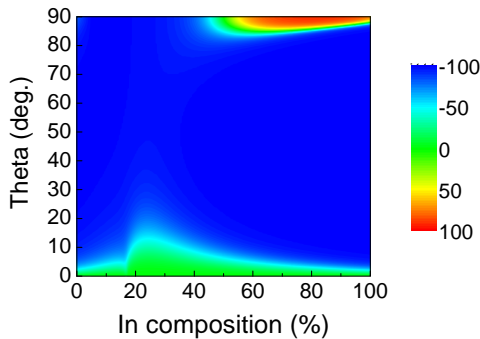


図3 *m* 面 InGaN/ZnO の偏光特性

(3) YSZ 基板上に InN 薄膜をエピタキシャル成長させ、グラフェンの単離などで利用されるテープ剥離法によって、InN 自立テンプレートを得ることに成功した。剥離後の InN 裏面は薄膜表面と同等の表面平坦性を有しており(図4) その上に別のエピタキシャル膜を結晶成長させるに十分な品質を保っていることがわかった。

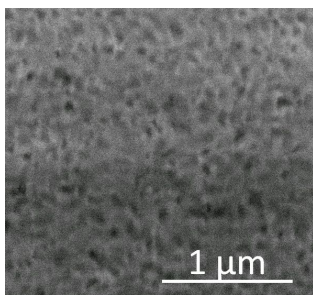


図4 剥離した InN 薄膜の裏面 SEM 像

以上のように、本研究では、格子整合酸化物結晶を出発材料とした、窒化物半導体薄膜の高品質化と剥離技術を確立し、物性制御性の高い基板作製の可能性を示すことができた。基板に格子定数や光学特性に選択性を持たせることで、窒化物半導体太陽電池の活性層のデザインに自由度が増し、高効率化に寄与することが期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計8件)

1. “Solid-phase epitaxy of InO_xN_y alloys via thermal oxidation of InN films on yttria-stabilized zirconia”
A. Kobayashi, T. Itoh, J. Ohta, M. Oshima, and H. Fujioka
Phys. Status Solidi RRL 8, 3627 (2014).
DOI: 10.1002/pssr.201400007 (査読あり)
2. “Field-effect transistors based on cubic indium nitride”
M. Oseki, K. Okubo, A. Kobayashi, J. Ohta, and H. Fujioka
Scientific Reports 4, 3951 (2014).
DOI: 10.1038/srep03951 (査読あり)
3. “Fabrication of full-color InGaN-based light-emitting diodes on amorphous substrates by pulsed sputtering”
J. W. Shon, J. Ohta, K. Ueno, A. Kobayashi, and H. Fujioka
Scientific Reports 4, 5325 (2014).
DOI: 10.1038/srep05325 (査読あり)
4. “Structural properties of GaN films grown on multilayer graphene films by pulsed sputtering”
J. W. Shon, J. Ohta, K. Ueno, A. Kobayashi, and H. Fujioka
Applied Physics Express 7, 085502 (2014).
DOI: 10.7567/APEX.7.085502 (査読あり)
5. “Theoretical study of InN growth on Mn-stabilized zirconia (111) substrates”
Y. Guo, S. Inoue, A. Kobayashi, J. Ohta, and H. Fujioka
Thin Solid Films 551, 110 (2014).
DOI: 10.1016/j.tsf.2013.11.100 (査読あり)
6. “AlGaIn/GaN heterostructure prepared on a Si (110) substrate via pulsed sputtering”
T. Watanabe, J. Ohta, T. Kondo, M. Ohashi, K. Ueno, A. Kobayashi, and H. Fujioka
Applied Physics Letters 104, 182111 (2014).
DOI: 10.1063/1.4876449 (査読あり)
7. “Electrical properties of amorphous- Al_2O_3 /single-crystal ZnO heterointerfaces”
J. Liu, A. Kobayashi, J. Ohta, H. Fujioka, and M. Oshima

- Applied Physics Letters 103, 172101 (2013).
DOI: 10.1063/1.4826538 (査読あり)
8. “Atomic scattering spectroscopy for determination of the polarity of semipolar AlN grown on ZnO”
A. Kobayashi, K. Ueno, J. Ohta, M. Oshima, and H. Fujioka
Appl. Phys. Lett. 103, 192111 (2013).
DOI: 10.1063/1.4829478 (査読あり)

〔学会発表〕(計7件)

1. “Metal-Oxide-Semiconductor Field-Effect Transistors using HfO₂/InN/YSZ Heterostructures”
M. Oseki, K. Okubo, A. Kobayashi, J. Ohta, H. Fujioka
International Workshop on Nitride Semiconductors IWN2014, Wroclaw, Poland WeEP8 (ポスター発表) 2014年8月27日
2. “酸化亜鉛基板上への窒化物半導体低温成長”
小林篤, 太田実雄, 藤岡洋
第6回窒化物半導体結晶成長講演会, 名城大学 I-St-2 (招待講演) 2014年7月26日
3. “InN極薄膜を用いた電界効果トランジスタの作製と評価”
大関正彬, 大久保佳奈, 小林篤, 太田実雄, 藤岡洋
第33回電子材料シンポジウム(EMS33), ラフォーレ修善寺 We-16 (ポスター発表) 2014年7月9日
4. “酸化亜鉛基板上窒化物半導体の格子歪みと偏光特性”
小林篤, 玉木啓晶, 太田実雄, 藤岡洋
第61回応用物理学関係連合講演会, 青山学院大学 19p-E13-10 (口頭発表) 2014年3月19日
5. “Low-temperature epitaxial growth of nonpolar and semipolar group III nitrides on ZnO substrates”
A. Kobayashi, T. Kajima, H. Tamaki, J. Ohta, M. Oshima, H. Fujioka
2013 JSAP-MRS Joint Symposia Symposium J, Kyoto 18pM63 (招待講演) 2013年9月18日
6. “Characteristics of In- and N-polar InN films grown on yttria-stabilized zirconia”
A. Kobayashi, K. Okubo, M. Oseki, J. Ohta, M. Oshima, H. Fujioka
2013 JSAP-MRS Joint Symposia Symposium J 16p-PM1-16 (ポスター発表) 2013年9月16日
7. “YSZ基板上に成長した(InN)_x(In₂O₃)_{1-x}薄膜の特性”
小林篤, 伊藤剛輝, 太田実雄, 尾嶋正治, 藤岡洋
第32回電子材料シンポジウム(EMS32),

ラフォーレ琵琶湖, Th65 (ポスター発表)
2013年7月11日

〔その他〕
ホームページ等
<http://www.iis.u-tokyo.ac.jp/~hfujioka/>
<https://sites.google.com/site/akobayashi920/>

6. 研究組織

(1)研究代表者
小林 篤 (KOBAYASHI, Atsushi)
東京大学・生産技術研究所・特任助教
研究者番号: 20470114