

研究成果（小テーマにつき 2 ページ以内でまとめてください）

サブテーマ名：4 紫外 LED 技術の開発 小テーマ名：4-1 紫外 LED 技術の開発
サブテマリーダー（所属、役職、氏名） 高知工科大学 総合研究所 教授 山本 哲也 研究従事者（所属、役職、氏名） 高知工科大学 総合研究所 准教授 牧野 久雄 高知工科大学 総合研究所 助手 三宅 亜紀 高知工科大学 総合研究所 助手 山田 高寛
研究の概要、新規性及び目標 研究の概要 紫外 LED の実現には、酸化亜鉛（ZnO）薄膜が半導体レベルの性能とそれを実現させる製膜法とが必要不可欠である。半導体レベルの性能とは、n 型と p 型とが実現でき、かつそれぞれキャリア密度が制御可能であることを表す。製膜法とは 6 インチほどの基板サイズで製膜が可能であることを指す。 一方、酸化亜鉛はこれまで、p 型の実現がむずかしいことが国内外でわかっている。p 型実現のためのドーパントも確定していない。 そこで、探索テーマとして、下記の理論と実験との両方からのアプローチを採用した。理論では、これまで成功していない ZnO の第 1 原理構造計算法を開発する、実験では上述基板サイズの製膜が可能でかつ、原子レベルで、設計的にドーピングできる製膜法および装置を開発する。 研究の独自性・新規性 従来の ZnO の第 1 原理電子構造計算法では、バンドギャップが、実験で得られる大きさに比べて 1 桁近く小さく、これまでの知見から考えても計算が破たんしている。そこで、原子レベルでの原子オンサイト上での電子間クーロン力を整合する枠内でパラメータとし、収束計算を行なう。これまでの知見では、亜鉛原子は d^0 であり、この枠組みは有効でない判断されていた。 ZnO 製膜は、従来、透明導電膜応用には主にはスパッタ法、イオンプレーティング法が使用され、半導体レベル用には、分子線エピタキシー（MBE）法、パルスレーザー（PLD）法、有機金属化学気相成長（MOCVD）法が適用されていた。しかし、これらはいずれも原子レベルで、設計的にドーピングできる製膜法ではない。 研究の目標（フェーズ毎に数値目標等をあげ、具体的に） フェーズ 理論：密度汎関数法の枠組みで、密度勾配展開法近似（GGA:Generalized Gradient Approximation）を用い、Zn, O 両原子オンサイト上、クーロン力の制御、およびその効果を固有値、および格子定数、バンドギャップから検討する。 フェーズ 理論：上述、枠組が可能であることを確立するためにも、1 結合当たりの凝集エネルギーを計算し、さらに精巧な実験との比較を行なうことで、現在の酸化亜鉛単結晶基板にかかる課題を理論側から提案するレベルへもっていく。 実験：原子レベルで設計的にドーピング出来る製膜法として原子層堆積法（ALD 法）に着目し、ALD 法によるガラス基板上的無添加酸化亜鉛成長において、基板表面処理による異なる基板表面状態、および、基板温度などの製膜パラメータに対する成長特性の変化を理解し、原子層単位成長技術としての可能性を検討する。
研究の進め方及び進捗状況（目標と対比して） 理論：フェーズ は、目標通り終了。フェーズ においては実験との比較、および理論、実験との比較による現在の酸化亜鉛化亜鉛単結晶基板にかかる課題は明らかにした。但し、その課題の解決に対しては今後の課題として残った。 実験：フェーズ において、ALD 法によるガラス基板上的無添加酸化亜鉛の製膜実験に取り組み、酸化亜鉛成長初期過程における基板表面処理効果、亜鉛原料の違いが酸化亜鉛薄膜物性に与える影響、原子層単位成長を実現する製膜条件について明らかにした。しかし、低残留キャリア濃度、高移動度を有する高品質薄膜成長については課題が残った。
主な成果 理論：Zn, O 両原子オンサイト上、クーロン力の制御が ZnO の場合には必要であることがわかった。従来のバンドギャップ異常（実験で得られる大きさの約 1 桁の大きさとして計算される）は、これまでの知見通り、実験値のほぼ 6 割となり、計算の破たんの回避ができた。酸化亜鉛単結晶基板では、Zn 面、O 面の相違、およびその課題が明白となったことで、メーカー側との今後の課題解決の焦点が明確になった。

実験：従来の ALD 法は、CVD 法との区別があまりつかない報告があった。本テーマでは、その判定方法の開発も実施し、その有効性も確認された。
 ALD 法による酸化亜鉛製膜において、原子層単位成長を実現するための基板表面処理上のポイントが明らかとなった。特に基板表面上での極性の有無、およびその制御は、成長の可否を左右する。
 また、薄膜物性の観点では、物性を決める残留不純物は亜鉛原料に強く依存することがわかった。また分解温度の高低に関しても、今後の研究課題となる。
 今後の研究の方向性や指針が明確になった。

特許件数：0 件 査読論文数：0 件 口頭発表件数：5 件（国際学会招待講演 1 件含む）

研究成果に関する評価

1. 国内外における水準との対比

理論：Zn, O 両原子オンサイト上、クーロン力の制御と、密度勾配展開法近似との整合に関しては、今後の課題である。また計算手法上では、k 点の数と固有値変動との問題もある。国内外における水準においては、トップクラスではあるものの、異なるアプローチからの解決法もウイーン工大からも提案され、互いに協議している。

実験：ガラス基板上での成長、界面上の結晶配向などの議論では、牧野らが先端である。今後は、ALD にプラズマ効果なども取り入れた工夫を行っていく。

2. 実用化に向けた波及効果

理論：混沌とするドーパントについては、理論的なアプローチから確実な知見を提供することが可能である。現在はヒ素ドーピングが米国を中心に実施されているが、環境・人体にやさしい有効な添加材を理論的に提案し、実験で実証していく。

実験：6 インチクラスでの基板上、製膜においては目処がつき、工業的には、従来の手法よりは、より生産性に優れるポテンシャルは有すると判断している。
 製膜速度の問題は課題として残る。しかし、装置構造の工夫でその課題を克服できる目処がついた。

残された課題と対応方針について

理論：ドーパント選択の議論は、今後、実験と合わせこみながら続け、実験との整合性を確立する。単結晶基板での上記、課題はメーカーとの共同研究開発によって克服していく予定である。

実験：共同研究開発（メーカー）を予定している。

	J S T 負担分 (千円)							地域負担分 (千円)							合計
	H14	H15	H16	H17	H18	H19	小計	H14	H15	H16	H17	H18	H19	小計	
人件費	0	569	1,361	185	392	603	3,110	0	68	432	59	124	192	875	3,985
設備費	0	987	13,741	0	0	0	14,728	0	4,597	0	0	0	0	4,597	19,325
その他研究費 (消耗品費、 材料費等)	0	1,773	0	1,180	3,049	1,925	7,927	0	44	0	0	0	0	44	7,971
旅費	0	164	641	39	61	60	965	0	0	0	0	0	0	0	965
その他	0	2	238	30	47	117	434	0	0	0	0	0	0	0	434
小 計	0	3,495	15,981	1,434	3,549	2,705	27,164	0	4,709	432	59	124	192	5,516	32,680

代表的な設備名と仕様 [既存 (事業開始前) の設備含む]

J S T 負担による設備：電子構造分析コンピューター、電子構造分析ソフト

地域負担による設備：

複数の研究課題に共通した経費については按分する。