

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 16 日現在

機関番号：57403

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25820149

研究課題名(和文)酸化ガリウムを利用したフレキシブル薄膜トランジスタの形成

研究課題名(英文)Fabrication of thin film flexible transistor using gallium oxide

研究代表者

高倉 健一郎(Takakura, Kenichiro)

熊本高等専門学校・情報通信エレクトロニクス工学科・准教授

研究者番号：70353349

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)：酸化ガリウムを利用したデバイス製作を目標として、元素組成及び結晶構造の観点から、成膜条件を詳細に検討した。X線回折法を利用して膜の結晶構造を評価したところ、基板の種類とは関係なく、酸化ガリウム膜厚が厚くなると膜の配向性が向上することが分かった。また、酸化ガリウム膜の光学特性を既存の透明導電膜材料のものと比較することで、透過可能な波長域がはるかに広いことが確認できた。さらに長時間の熱処理を試みたところ、40時間の熱処理を施したGa₂O₃:SnO₂膜の導電率は、約1.75 μS/cmであり、10分間の熱処理を施したGa₂O₃:SnO₂膜の導電率と比較すると、5桁もの導電率向上を達成した。

研究成果の概要(英文)：b-Ga₂O₃ growth condition is studied using analysis of element compositions and crystalline qualities to the purpose of device fabrication of gallium oxide. From the X-ray diffraction analysis, crystalline orientation of the gallium oxide film which is thicker than a thin film is good. Optical transparent wavelength range of the gallium oxide compared with the other transparent conductive oxide materials (TiO₂, ZnO). It could be able to confirm that the transparent wavelength range of gallium oxide was much wider than other materials. In addition to that, long time thermal treatment up to 40 hours at 900°C is effective to increase electrical conductance.

研究分野：電子工学

キーワード：酸化物半導体 フレキシブルデバイス

1. 研究開始当初の背景

現在、環境問題は地球規模での懸案であり、産業界から一般家庭まで、様々な対策が検討されている。資源枯渇の危機は例外なく、半導体産業にも押し寄せている。豊富な資源を積極的に使用し、環境負荷を低減させる試みは素子開発の分野では避けて通れない課題であるが、半導体材料を構成する元素・原料には毒性の強いものや資源寿命が極めて短いものなど、人体または地球環境にとって負担となるものが多い。今後、資源の枯渇が深刻な問題となることは容易に想像できる。酸化ガリウム材料は、豊富に存在する元素で構成されるワイドバンドギャップ半導体として、注目を集めている。また、半導体的性質に加え、誘電性、圧電性、磁性、さらには超伝導など、元素の組み合わせを選ぶことで様々な物性を示すため、半導体デバイスと融合した新機能デバイス開発も期待されている。しかし、組み合わせが多いこともあり、材料として高いポテンシャルを有するにもかかわらず未だ性能を見出されていない材料も多い。

酸素とガリウムの組み合わせである、酸化ガリウムは、エネルギーギャップが約 4.9 eV と大きく、SiC、GaN などと比較しても高い絶縁破壊電界及びデバイス形成時の低いオン抵抗実現などが期待できる。また、透明導電膜や紫外ガスセンサとしての利用が検討されるなど、古くから存在が知られている材料である。最近では大きなエネルギーギャップであることに注目して、高耐圧半導体デバイスとして、単結晶酸化ガリウム基板上にホモエピタキシャル成長した膜を用いたショットキーダイオードや MESFET の実現により有用性が示されている。

スパッタ法は、金属から絶縁性物質まで、様々な固体原料を組成ずれの少ない状態で製膜することができる方法であり、また、大面積化が容易で、現在の半導体デバイス製造プロセスにもマッチングする。これまでに、Ga₂O₃ ターゲットを利用し、RF マグネトロンスパッタ法により無添加酸化ガリウム膜の形成を実現し、結晶構造や光学特性の詳細を検討しており、酸化ガリウム膜の形成について多くの知見を得ている。そこで、アモルファス酸化ガリウム薄膜をスパッタ法により作製を試みた。現有のスパッタ装置は、三種類のターゲットを独立して同時に蒸着することが可能であり、酸化ガリウムと他の元素を同時に蒸着することができる。このことは、酸化ガリウム中への不純物添加を可能にするものと考えられ、不純物添加量の制御が可能となる。さらには、ドナーおよびアクセプタとなる不純物と酸化ガリウムターゲットが同時にスパッタ装置に設置することが可能であり、真空中で一貫したプロセスにより、酸化ガリウムの pn ホモ接合実現も期待される。このためには、先ず、無添加酸化ガリウム膜中に不純物を添加し、膜の伝導型制

御を実現する必要がある。不純物源として、シリコンを選択した。これら不純物の添加法として、酸化ガリウムターゲットと金属をスパッタ法により同時蒸着する。

一方で、酸化物半導体は多結晶やアモルファスであっても、移動度が結晶と比べても低下せず、高いままと保持する材料があり、デバイス応用分野が広がる可能性がある。たとえば、酸化インジウムガリウム亜鉛は、アモルファス状態での移動度の高さを利用して、薄膜トランジスタを形成している。この薄膜トランジスタはプラスチックフィルムなどへの形成が可能であり、フレキシブル薄膜トランジスタが実現されている。酸化ガリウムの移動度は、結晶で 300 cm²/Vs 程度と予想されており、多結晶やアモルファス状態でこの大きさを堅持していれば、さらに大きな移動度を有するフレキシブル薄膜トランジスタを実現することができる。

現在、有機薄膜を利用したトランジスタなど、様々なデバイスが提案され、実現している。フレキシブルディスプレイ、フレキシブルソーラーセルなど、商業的利用が大きく期待されるデバイスである。しかし、有機デバイスは使用を続けた時の特性劣化、入力に対する信号安定性などの問題が指摘されており、無機デバイスのような高信頼性は実現できていない。アモルファス酸化物電子デバイスが形成できると、デバイスのフレキシブル化を実現でき、有機デバイスの柔軟性と無機デバイスの高信頼性、双方の特長を生かしたデバイス形成が実現できる。

2. 研究の目的

酸化物半導体は、アモルファス状態でも結晶の移動度と同程度である材料があり、その特徴を生かしたフレキシブル薄膜トランジスタが実現されている。酸化ガリウムは、無添加のバンドギャップが 4.9 eV であり、高い絶縁耐圧が期待される酸化物半導体材料である。また、室温の移動度が 300 cm²/Vs と予測されており、高いポテンシャルを有している。フレキシブル薄膜トランジスタは有機材料で実現されているが、その耐久性が低いことや信号制御方法などに難があることなど、無機デバイス形成が実現すれば、価値は大きい。本課題では、酸化ガリウムを利用したフレキシブル薄膜トランジスタを開発することを最終目的として、アモルファス薄膜作製、不純物添加ならびにトランジスタ形成を検討する。

3. 研究の方法

酸化ガリウム膜の形成は、RF マグネトロンスパッタ装置を用いる。本装置は、スパッタ源を三機備えており、同時に 3 種類の原料を基板上に堆積することが可能である。さらに、水冷機能を有する基板ホルダーは、スパッタ

中の基板温度上昇を抑制し、室温でのスパッタを可能としている。本装置を用いて、アモルファス酸化ガリウム薄膜の形成を試みる。ターゲットには Ga_2O_3 を使い、堆積速度、堆積温度をパラメータとして、薄膜の結晶性を X 線回折法および紫外分光光度計を用いて評価する。さらに、スパッタ源にスズなどの不純物を選択して設置することで、酸化ガリウムと不純物の同時堆積により、不純物添加を試みる。合わせて、エネルギーバンド構造を計算することで、ドナーおよびアクセプタとなる不純物を選択する。不純物添加後、プラスチックなど、フレキシブル基板上に酸化ガリウムを用いたトランジスタ構造を形成する。

4. 研究成果

酸化ガリウム膜の作製方法について元素組成及び結晶構造の観点から、成膜条件を詳細に検討した。EDX 装置により膜の組成比を評価したところ、スパッタ中に酸素ガスを導入することによって Ga_2O_3 ターゲットを用いて化学量論組成比を保った酸化ガリウム膜

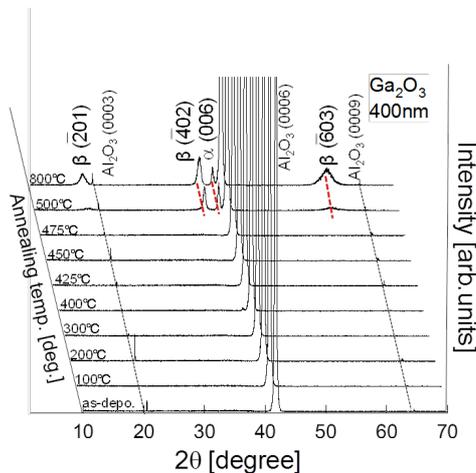


図 1 . 熱処理温度変化させ 10 分間の熱処理を施した酸化ガリウム膜 (400 nm) の θ -2 θ XRD スペクトル

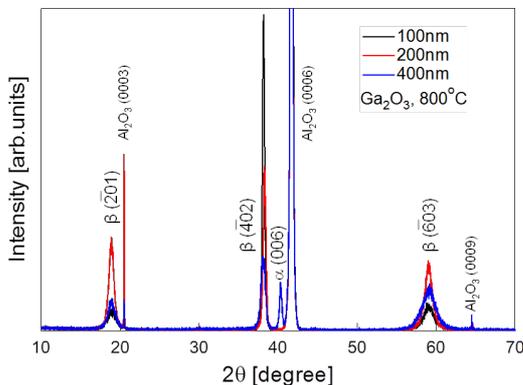


図 2 . 800°C 熱処理を 10 分間施した酸化ガリウム膜 (100 nm, 200 nm, 400 nm) の θ -2 θ XRD スペクトル

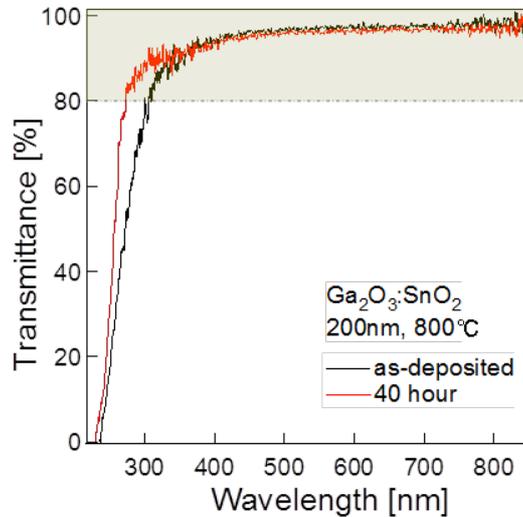


図 3 . 酸化ガリウム膜の光学特性 (紫外-可視域)

が形成できることができた。さらに、X線回折法を利用して膜の結晶構造を評価したところ、基板の種類とは関係なく、酸化ガリウム膜厚が厚くなると膜の配向性が向上することが分かった。このことから、酸化ガリウムの結晶成長方向に選択性があることが明らかになった。XRD 及び SPM の結果より、表面構造変化の最大の原因は厚膜化による薄膜中の核や島の拡大、及び熱処理によって加えられる熱エネルギーによって可能となる薄膜中の原子の移動であると考えられる。

また、製作した薄膜の光学特性評価を行うと同時に表面構造の変化が光学特性に与える影響について評価したが、表面状態の粗さにかかわらず酸化ガリウム膜は透明電極としての利用に十分な光学特性を有することが分かった。さらに、酸化ガリウム膜の光学特性を既存の透明導電膜材料のものと比較することで、透過可能な波長域がはるかに広いという酸化ガリウム膜を透明電極へ応用する上での優位性を確認することができた。

しかし、導電率は非常に小さく、導電巻くとして利用することは困難であった。10 分間の熱処理では Sn と Ga の置換が不完全だったと考え、さらに長時間の熱処理を試みたところ図 5 のように熱処理時間の増加に伴い、導電率が向上し、40 時間以上の熱処理以降は導電率が飽和している。40 時間の熱処理を施した $\text{Ga}_2\text{O}_3:\text{SnO}_2$ 膜の導電率は、約 $1.75 \mu\text{S}/\text{cm}$ であり、これは、透明導電膜の要求条件を満たすにいたらなかったが、10 分間の熱処理を施した $\text{Ga}_2\text{O}_3:\text{SnO}_2$ 膜の導電率と比較すると、5 桁もの導電率向上を達成した。したがって、 $\text{Ga}_2\text{O}_3:\text{SnO}_2$ 膜に対し、高温長時間の熱処理を施すことは、導電率向上に有用であることが判明した。

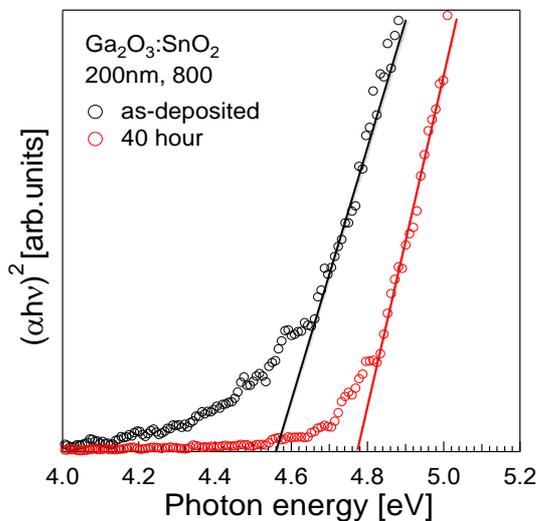


図4 エネルギーギャップの熱処理温度依存性

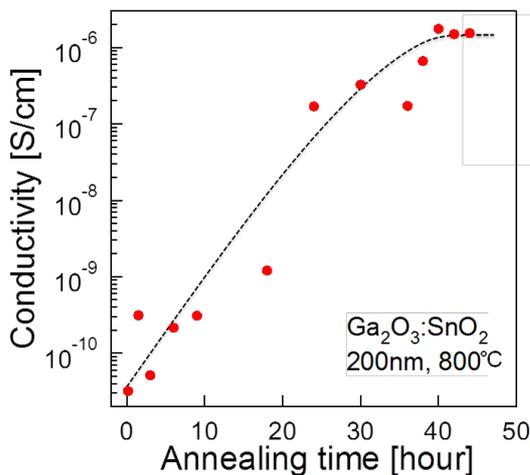


図5 酸化ガリウム膜の導電率の熱処理温度依存性

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3件)

K. Takakura, S. Funasaki, I. Tsunoda, H. Ohyama, D. Takeuchi, T. Nakashima, M. Shibuya, K. Murakami, E. Simoen, C. Claeys, "Investigation of the Si doping effect in β -Ga₂O₃ films by co-sputtering of gallium oxide and Si," Physica B vol. 407, pp.2900-2902 (2013).

K. Ishibashi, R. Aida, M. Takahara, J. Kudo, I. Tsunoda, K. Takakura, T. Nakashima, M. Shibuya, K. Murakami, "Investigation of the crystalline

quality of a gallium oxide thick film grown by RF magnetron sputtering," Phys. Status Solidi C 10, No. 11, 1588-1591 (2013).

R. Aida, K. Minami, K. Ishibashi, J. Kudou, M. Takahara, I. Tsunoda, K. Takakura, T. Nakashima, M. Shibuya, K. Murakami, "Effect of post-deposition annealing on structural and optical properties of RF magnetron sputtered β -Ga₂O₃ films," AIP Conf. Proc.1583 pp. 364-367, (2014).

[学会発表](計8件)

K. Ishibashi, R. Aida, M. Takahara, J. Kudou, K. Minami, I. Tsunoda, K. Takakura, T. Nakashima, M. Shibuya, K. Murakami, "Investigation of the crystalline quality of a gallium oxide thick film grown by RF magnetron sputtering," The 40th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2013), May 19-23, 2013, Kobe.

R. Aida, K. Minami, K. Ishibashi, J. Kudou, M. Takahara, I. Tsunoda, K. Takakura, "Investigation of relationships between physical optoelectrical property properties and void grains in RF magnetron sputtered β -Ga₂O₃ thin films," 27th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS 27), July21-26, 2013, Italy.

石橋和也, 合田稜平, 高原基, 工藤淳, 角田功, 高倉健一郎, 中島敏之, 村上克也, "膜厚の変化が Ga₂O₃ 薄膜の結晶性に及ぼす影響" 第5回半導体材料・デバイスフォーラム予稿集, P-21, 2013, Kumamoto.

合田稜平, 石橋和也, 工藤淳, 高原基, 角田功, 高倉健一郎, 中島敏之, 村上克也, "成膜後熱処理が β -Ga₂O₃ 薄膜の構造及び光学的特性に及ぼす影響" 第5回半導体材料・デバイスフォーラム予稿集, P-22, 2013, Kumamoto.

H. Ishimoto, K. Ishibashi, R. Aida, I. Tsunoda, K. Takakura, K. Murakami, "Evaluation of crystal structure and optical properties of β -Ga₂O₃ as-deposited and after annealed," 33th Electronic Materials Symposium (EMS-33), pp.41-44, Izu.

M. Izawa, H. Ishimoto, T. Goto, R. Aida, K. Ishibashi, I. Tsunoda, K. Takakura, K. Murakami, "Investigation of relationships between film thickness and optical absorption coefficient of β -Ga₂O₃

film” 33th Electronic Materials Symposium (EMS-33), pp.45-46, Izu.

H. Ishimoto, H. Ogata, I. Tsunoda, K. Takakura, “Crystalline quality evaluation of β -Ga₂O₃/Al₂O₃ grown by thermal annealing,” 7th Semiconductor Materials and Devices Forum, 2015, Kumamoto.

H. Ishimoto, H. Ogata, S. Koba, I. Tsunoda, K. Takakura, “Investigation of crystal orientation of β -Ga₂O₃ thin film grown on sapphire substrate by room temperature deposition and subsequent annealing,” International Workshop on Gallium Oxide and Related Materials 2015, Kyoto.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高倉 健一郎 (TAKAKURA Kenichiro)
熊本高等専門学校・情報通信工
学科・准教授
研究者番号：70353349