

令和 2 年 6 月 26 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K13990

研究課題名（和文）ゲート変調を利用したアモルファス酸化物半導体の薄膜成長：新規欠陥制御法の確立

研究課題名（英文）Development of novel fabrication process of amorphous oxide semiconductor using field effect

研究代表者

井手 啓介 (Keisuke, Ide)

東京工業大学・科学技術創成研究院・助教

研究者番号：70752799

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：次世代の高速・透明ディスプレイに向けて、良好な電気特性や小さい光応答を示すアモルファス酸化物半導体(AOS)材料の開発が求められている。しかし、高性能を期待できる材料は欠陥制御が困難、というトレードオフの関係が知られており、新たな欠陥制御技術の開発が望まれていた。そこで本研究では電界効果や水素を使った独自の欠陥制御技術を確立し、高性能なトランジスタを実証することを目的とした。4eVを超える超ワイドバンドギャップをもつa-GaOであっても水素を添加することで欠陥制御ができ、トランジスタの動作電圧を改善できることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、新規作製プロセスの開発にとどまらず、さらに発展してAOS中の欠陥の起源解明、環境フレンドリーな水素を使った手法への展開、さらには実デバイスの実証を行ったものである。特に今回着目したアモルファス酸化ガリウムは、室温で作製できる唯一の超ワイドバンドギャップ半導体であり、その一番の課題であるキャリアドーピングの課題を解決しうるものである。今後のフレキシブルパワーエレクトロニクス発展へ寄与できる結果であると考えられる。

研究成果の概要（英文）：Amorphous oxide semiconductor (AOS) represented by amorphous In-Ga-Zn-O has been widely applied for various practical displays. To develop further future display, high-mobility and large-band gap AOS is necessary. However, it is known that the controlling defect formation of high-performance AOS is difficult.

In this study, we developed a novel process of AOS using hydrogen doping. Amorphous gallium oxide (a-GaO) has ultra wide-bandgap larger than 4 eV and is suitable for transparent devices. However, it is difficult to enhance the carrier density of a-GaO; the ever-reported carrier density was only  $10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . We succeeded to enhance the carrier density of a-GaO up to  $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  and improve the operation voltage of a-GaO transistors by using our process.

研究分野：半導体

キーワード：アモルファス酸化物半導体

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

アモルファス酸化物半導体(AOS)を用いた薄膜トランジスタ(TFT)は2004年に動作実証され、その後2012年にシャープ株式会社によって実用化まで至った。いまでは、大型有機ELディスプレイや超高精細液晶などの様々な最先端ディスプレイのバックプレーンに用いられている。近年では次世代ディスプレイに向けて、より移動度の高い材料や、より光応答の小さいデバイスが求められ、いまでも盛んに材料開発・研究がなされている。

AOSは決まった結晶構造を持たないことから、構成元素・組成比の自由度が高く、 $\text{In}_2\text{O}_3$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ - $\text{ZnO}$ の代表的な三元系の他に、SnやSi、Alなどを含む様々な組成の系が調べられてきた。一般的にIn比率が高いと高移動度のTFT動作が期待できる一方、酸素欠損が生じやすくキャリア過多となりやすく動作電圧の制御が困難と考えられている。またGa比率が高いと大きいバンドギャップを持つため透明TFTへの応用が期待される一方、酸素欠損を生じにくく絶縁体に近い材料となってしまう。このように「高性能を期待できるが、酸素欠損制御が困難」というトレードオフの関係となっていた。そこで酸素欠損/キャリア濃度を制御する方法が望まれていた。

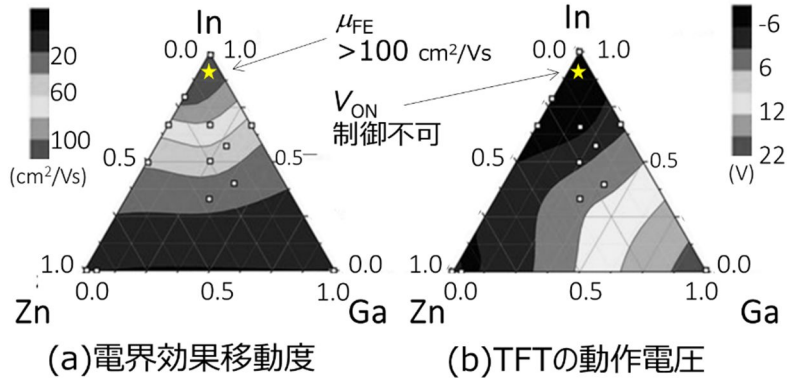


図1: In-Ga-Znを成分とした3元系組成マップ。(a)各組成における電界効果移動度。(b)各組成における動作電圧。

### 2. 研究の目的

本研究では上述のような、In-richな高移動度AOSやGa-richな超ワイドギャップAOSのキャリア濃度制御を目指し、新規欠陥制御方法の確立を目的とした。

### 3. 研究の方法

#### (1) 電界効果を用いた新規欠陥制御技術の開発

はじめに、様々なスパッタリング条件でAOS薄膜を作製し欠陥起源を調査した。硬X線光電子分光測定において後処理と差分法を組み合わせることによって、酸素欠損や過剰酸素の欠陥への影響を調査した。

次に、薄膜の形成プロセス中に、電界効果によるフェルミエネルギー( $E_F$ )変調をすることで、欠陥濃度を制御するといった新規欠陥制御技術の実現を目指した。電界効果型トランジスタの動作原理は、電界によってキャリアを誘起することで $E_F$ を変調してスイッチング・増幅動作をえるものである(図2(a))。一方で欠陥の形成エネルギーは $E_F$ の関数として示されることが一般的である(図2(b))。そこで、薄膜の形成プロセス中に電界効果を与えることで、いまままで出来なかった欠陥生成の抑制や導入を試みた。

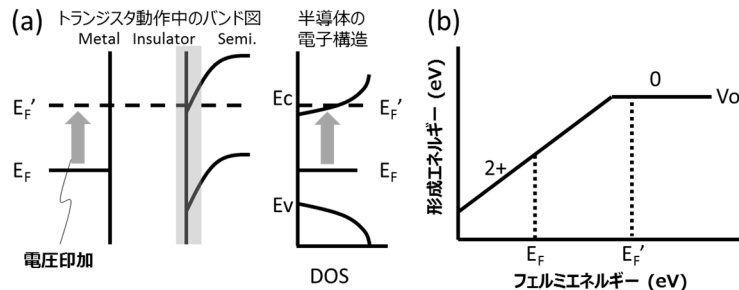


図2: (a)電界効果トランジスタの動作原理。(b)第一原理計算による欠陥の生成エネルギーのイメージ図。

#### (2) 超ワイドギャップAOSへの水素を用いたキャリア濃度制御

研究の過程で超ワイドギャップAOSであるアモルファス酸化ガリウム(a-GaO)中での水素の振る舞いを調べていたところ、キャリアドーピング効果が得られることを見出した。PLD法を

用いて a-GaO の室温成膜を行った後、水素プラズマ処理を用いて水素注入しホール効果測定によりキャリア濃度の変化を確認した。TFT の作製には熱酸化 SiO<sub>2</sub>/n<sup>+</sup>-Si 基板をゲート絶縁膜/ゲート電極として用い、ボトムゲートトップコンタクト型を採用した。フォトリソグラフィとリフトオフにより形成し、チャンネル幅およびチャンネル長は 300 μm と 50 μm とした。ソース/ドレイン電極は Ti を用いて室温で電子ビーム蒸着法により形成し、半導体パラメータアナライザを用いて室温にて特性を評価した。

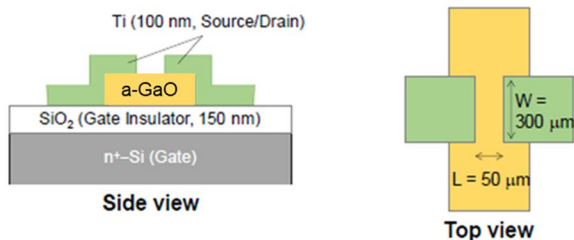


図 3: 本研究で試作した電界効果トランジスタの模式図。

#### 4. 研究成果

電界効果などの外部刺激によってフェルミレベルを制御することにより、欠陥形成制御を試みた。しかしバイアス印加や照射した際のデバイス劣化や過渡的応答の影響が大きく、欠陥制御に有効な手法であるという証拠を得るに至らなかった。しかし、水素添加をすることで当初の目的であった超ワイドギャップへのキャリアドーピングが達成されたので以下に具体的な研究成果を述べる。

図 4 に a-GaO の電子輸送特性における水素プラズマ処理時間依存性を示す。非熱処理膜(黒シンボル) へ水素プラズマ処理を行ってもキャリア濃度は  $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  程度からほとんど増加を見せなかった。一方、熱処理膜に水素プラズマ処理を行うことでキャリア濃度  $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  から急激に上昇し、処理時間 40 秒で  $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  程度となり飽和する傾向を示した。膜中の水素濃度を定量するために昇温脱離ガス試験を行ったところ、熱処理膜と非熱処理膜に限らず、どちらも  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  の水素脱離量を示し、水素プラズマによって水素が導入されていることを確認した。水素添加量とキャリアの増加量の違いを説明するためにキャリア濃度の温度依存性を測定した。A-GaO 中の水素が作るドナー準位を見積もったところ 0.13 eV と深く、縮退伝導が現れないことが分かった。

図 5 に非熱処理(黒線)、熱処理(赤線)および水素プラズマ処理(青線)を行った TFT の伝達特性を示す。非熱処理膜は飽和移動度が  $0.03 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、 $V_{th}$  が 32 V だったのに対し、熱処理を行うことで移動度が  $0.5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  へ改善が見られた。また水素プラズマ処理を行うことで  $V_{th}$  は 16V、飽和移動度は  $0.7 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  へ改善が見られた。本成果は超ワイドギャップ AOS へのキャリアドーピング手法を初めて見出したもので論文公開の準備を行っている状況である。

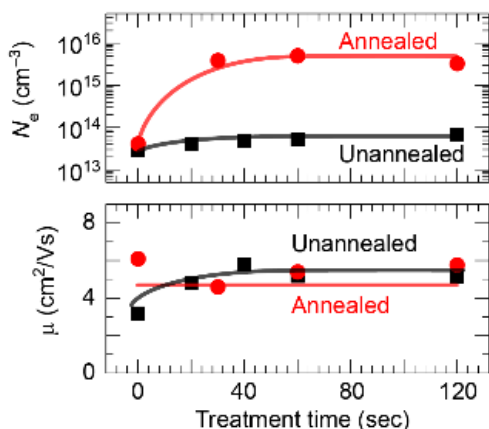


図 4: a-GaO の電子輸送特性における水素プラズマ処理時間依存性。上にキャリア濃度、下に Hall 移動度を示す。

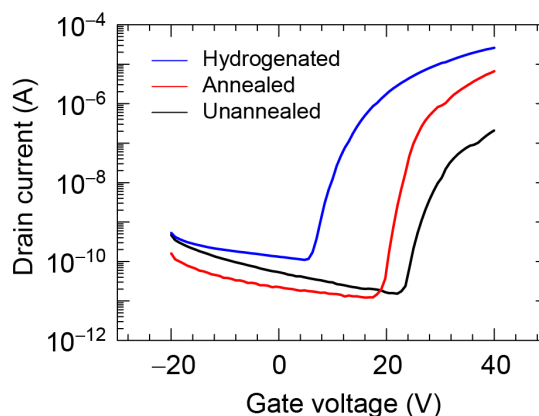


図 5: 本研究で試作した電界効果トランジスタの伝達特性。ドレイン電圧は 50V を用いた。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 He Xinyi, Xiao Zewen, Katase Takayoshi, Ide Keisuke, Hosono Hideo, Kamiya Toshio	4. 巻 123
2. 論文標題 Intrinsic and Extrinsic Defects in Layered Nitride Semiconductor SrTiN <sub>2</sub>	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 19307 ~ 19314
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b03643	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Wu Chia-En, Ide Keisuke, Katase Takayoshi, Hiramatsu Hidenori, Hosono Hideo, Lin Chih-Lung, Kamiya Toshio	4. 巻 66
2. 論文標題 New Amorphous In-Ga-Zn-O Thin-Film Transistor-Based Optical Pixel Sensor for Optical Input Signal With Short Wavelength	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Electron Devices	6. 最初と最後の頁 3841 ~ 3846
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TED.2019.2925091	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Ide Keisuke, Nomura Kenji, Hosono Hideo, Kamiya Toshio	4. 巻 216
2. 論文標題 Electronic Defects in Amorphous Oxide Semiconductors: A Review	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 physica status solidi (a)	6. 最初と最後の頁 1800372 ~ 1800372
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssa.201800372	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Keisuke Ide, Kenji Nomura, Hideo Hosono, and Toshio Kamiya	4. 巻 216
2. 論文標題 Electronic Defects in Amorphous Oxide Semiconductors : A Review	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Status Solidi A	6. 最初と最後の頁 1800372
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssa.201800372	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Keisuke Ide, Yuki Futakado, Naoto Watanabe, Junghwan Kim, Takayoshi Katase, Hidenori Hiramatsu, Hideo Hosono, Toshio Kamiya	4. 巻 216
2. 論文標題 Transition metal-doped amorphous oxide semiconductor thin film phosphor, chromium-doped amorphous gallium oxide	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Status Solidi A	6. 最初と最後の頁 1800198
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssa.201800198	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Keisuke Ide, Kyohei Ishikawa, Haochun Tang, Takayoshi Katase, Hidenori Hiramatsu, Hideya Kumomi, Hideo Hosono, and Toshio Kamiya	4. 巻 216
2. 論文標題 Effects of Base Pressure on Growth and Optoelectronic Properties of Amorphous In-Ga-Zn-O: Ultralow Optimum Oxygen Supply and Bandgap Widening	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 phys. stat. sol. (a)	6. 最初と最後の頁 1700832
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssa.201700832	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Naoto Watanabe, Keisuke Ide, Junghwan Kim, Takayoshi Katase, Hidenori hiramatsu, Hideo Hosono, and Toshio kamiya	4. 巻 216
2. 論文標題 Multiple color inorganic thin-film phosor, RE-doped amorphous gallium oxide (RE = rare earth: Pr, Sm, Tb, and Dy), deposited at room temperature	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Status Solidi A	6. 最初と最後の頁 1700833
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssa.201700833	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計20件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 12件)

1. 発表者名 井手啓介、金正煥、片瀬貴義、細野秀雄、神谷利夫
2. 発表標題 アモルファス酸化物半導体を用いた新規デバイスの開拓
3. 学会等名 薄膜材料デバイス研究会 第16回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Toshio Kamiya, Xinyi He, Zewen Xiao, Keisuke Ide, Takayoshi Katase, and Hideo Hosono
2. 発表標題 Structures and Electronic States of Hydrogen in Inorganic Semiconductors with Different Anions
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Toshio Kamiya, Keisuke Ide, Hideya Kumomi, and Hideo Hosono
2. 発表標題 Defects in Amorphous Oxide Semiconductors
3. 学会等名 The 77th Fujihara Seminar (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Keisuke Ide, Yuki Nishimagi, Naoto Watanabe, Junghwan Kim, Takayoshi Katase, Hidenori Hiramatsu, Hideo Hosono, Toshio Kamiya
2. 発表標題 Electronic structures and optoelectronic properties of rare-earth-doped amorphous oxide semiconductors
3. 学会等名 The 11th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Keisuke Ide, Yuki Nishimagi, Naoto Watanabe, Takayoshi Katase, Hidenori Hiramatsu, Hideo Hosono and Toshio Kamiya
2. 発表標題 Optoelectrical properties and thin-film transistor operation of rare-earth-doped amorphous oxide semiconductors
3. 学会等名 11th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Keisuke Ide, Yurika Kasai, Takayoshi Katase, Hidenori Hiramatsu, Hideo Hosono, Toshio Kamiya
2. 発表標題 Hydrogen doping in ultra-widegap amorphous oxide semiconductor, amorphous Ga-O
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Naoto Watanabe, Keisuke Ide, Takayoshi Katase, Junghwan Kim, Shigenori Ueda, Koji Horiba, Hiroshi Kumigashira, Hidenori Hiramatsu, Hideo Hosono, Toshio Kamiya
2. 発表標題 Light emitting diodes on glass using amorphous oxide semiconductor thin-film phosphors, rare-earth doped a-Ga-O
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Naoto Watanabe, Keisuke Ide, Takayoshi Katase, Junghwan Kim, Shigenori Ueda, Koji Horiba, Hiroshi Kumigashira, Hidenori Hiramatsu, Hideo Hosono, Toshio Kamiya
2. 発表標題 Low-temperature fabrication of multi-color thin-film phosphor and light emitting diodes using amorphous oxide semiconductor, rare-earth doped a-Ga-O
3. 学会等名 11th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yurika Kasai, Keisuke Ide, Takayoshi Katase, Hidenori Hiramatsu, Hideo Hosono, Toshio Kamiya
2. 発表標題 Hydrogen doping and carrier transport properties of amorphous Ga-O
3. 学会等名 The 11th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Ide
2. 発表標題 Direct-current driven electroluminescent device with amorphous oxide semiconductor thin-film phosphor
3. 学会等名 First Annual Symposium of the Tokyo Tech-UCL-McGill core-to-core collaboration Defect Functionalized Sustainable Energy Materials: From Design to Devices Application (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 笠井 悠莉華、井手啓介、片瀬貴義、平松秀典、細野秀雄、神谷利夫
2. 発表標題 アモルファス酸化ガリウムを用いたショットキーバリアダイオード特性と光応答
3. 学会等名 薄膜材料デバイス研究会 第16回研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 笠井悠莉華, 井手啓介, 片瀬貴義, 平松秀典, 細野秀雄, 神谷利夫
2. 発表標題 アモルファス酸化ガリウムへの水素ドーピング効果とキャリア輸送特性
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 渡邊脩人, 井手啓介, 片瀬貴義, 笹瀬雅人, 戸田喜丈, 金正煥, 上田茂典, 堀場弘司, 組頭広志, 平松秀典, 細野秀雄, 神谷利夫
2. 発表標題 アモルファス酸化物半導体 $\alpha$ -GaOxをホストとする蛍光体を用いた直流駆動型発光素子の低温作製
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 西間木祐紀、井手啓介、渡邊脩人、金正煥、片瀬貴義、平松秀典、細野秀雄、神谷利夫
2. 発表標題 アモルファス酸化物半導体薄膜トランジスタの希土類添加効果
3. 学会等名 第57回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Ide, K. Takenaka, Y. Setsuhara, A. Hiraiwa, H. Kawarada, T. Katase, H. Hiramatsu, H. Hosono, T. Kamiya
2. 発表標題 Effects of base pressure on optoelectronic properties of amorphous In-Ga-Zn-O
3. 学会等名 The 3rd International Symposium on Creation of Life Innovation Materials for Interdisciplinary and International Researcher Development (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Ide
2. 発表標題 Defect analysis in amorphous oxide semiconductor, In-Ga-Zn-O
3. 学会等名 The 3rd Workshop for Defect Functionalized Sustainable Energy Materials: From Design to Devices Application Workshop on 'Semiconductor Materials' (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Keisuke Ide, Masato Ota, Takayoshi Katase, Hidenori Hiramatsu, Shigenori Ueda, Hideo Hosono, and Toshio Kamiya
2. 発表標題 Depth Analysis of Near Valence Band Maximum Defect States in Amorphous Oxide Semiconductors: In-Ga-Zn-O
3. 学会等名 Americas international Meeting on Electrochemistry and Solid state science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 笠井悠莉華、井手啓介、片瀬貴義、平松秀典、細野秀雄、神谷利夫
2. 発表標題 超ワイドバンドギャップアモルファス酸化物半導体a-Ga-0を用いたショットキーダイオードの作製
3. 学会等名 第15回薄膜材料デバイス研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西間木祐紀、井手啓介、渡邊脩人、金正煥、片瀬貴義、平松秀典、細野秀雄、神谷利夫
2. 発表標題 希土類添加アモルファス酸化物半導体の電気物性とトランジスタ特性
3. 学会等名 第15回薄膜材料デバイス研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 井手啓介、二角勇毅、渡邊脩人、金正煥、片瀬貴義、平松秀典、細野秀雄、神谷利夫
2. 発表標題 Cr添加 アモルファス酸化ガリウム 薄膜 のフォトルミネッセンス特性
3. 学会等名 第15回薄膜材料デバイス研究会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 井手 啓介/片瀬 貴義/野村 研二/雲見 日出也/細野 秀雄/神谷 利夫	4. 発行年 2020年
2. 出版社 エヌ・ティー・エス	5. 総ページ数 4
3. 書名 2020版 薄膜作製応用ハンドブック 第2章第7節2項 アモルファス酸化物半導体:a In Ga Zn O	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----