

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 22 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760248

研究課題名(和文)回転マグネツトスパッタ技術を用いた高性能酸化物半導体薄膜トランジスタの開発

研究課題名(英文)Development of high-performance oxide-semiconductor thin-film transistors using rotation magnet sputtering technology

研究代表者

後藤 哲也(Goto, Tetsuya)

東北大学・未来科学技術共同研究センター・准教授

研究者番号：00359556

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：酸化物半導体アモルファスIn-Ga-Zn-O薄膜トランジスタ(TFT)を、研究代表者が考案した回転マグネツトスパッタ技術を用いて作成した。本技術では複数の動くプラズマループにより、基板上に時間平均で均一な成膜及びプラズマ照射を実現できるため、従来技術と比べてキャリアのライフタイム(TFTのキャリア移動度に関連)の均一性が向上することを示した。また、通常のアルゴンスパッタからキセノンスパッタに替えることで、キャリア移動度を30%程度向上できることを示した。さらに、キセノン回収システムを導入し従来技術に比べ、高均一・高移動度TFTを、高価なキセノンを使用しても低コストで作成するシステムを提案した。

研究成果の概要(英文)：Oxide-semiconductor amorphous In-Ga-Zn-O (a-IGZO) thin-film transistors (TFTs) were fabricated using the rotation magnet sputtering technology which can realize uniform deposition and plasma irradiation at the substrate due to time averaging effect of moving multiple plasma loops excited on the target surface. Thanks to these merits, uniformity of film properties, the properties of carrier lifetime which is related to the carrier mobility measured by microwave photo conductive decay method, can be improved. Also, it is revealed that carrier mobility can be increased by introducing the xenon sputtering instead of the conventional argon sputtering. We also proposed the xenon sputtering by rotation magnet sputtering incorporating a xenon recycle-and-supply system, where a-IGZO TFTs with high mobility with uniform distribution can be fabricated with low-cost even by using high-cost xenon.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：薄膜トランジスタ IGZO マグネトロンスパッタ キセノン

1. 研究開始当初の背景

ディスプレイデバイスに現在用いられているアモルファスシリコン薄膜トランジスタ(TFT)やポリシリコンTFTに変わる新たな材料として酸化物半導体TFTが注目されている。特に、日本の研究者グループにより発明されたアモルファスInGaZnO(a-IGZO)は、アモルファスであるにもかかわらずキャリア移動度が $10\text{cm}^2/\text{Vs}$ 以上とアモルファスシリコンTFTよりも一桁大きく、かつ電流のOn/Off比で 10^6 以上のTFTが容易に得られ、またアモルファスであることからグレイン境界に起因する電気的特性ばらつきが無い等、優れたポテンシャルを有している。この優れた特性を持つa-IGZO TFTを実用化する際は、大面積ガラス基板等に比較的容易に薄膜形成が可能なマグネトロンスパッタリングを用いることが必須である。しかし、高性能な酸化物半導体TFTを大型基板に均一に形成可能とするためには解決すべき課題がある。マグネトロンスパッタリングでは、化合物薄膜、特に酸化物薄膜形成を行う場合、本質的に基板上に均一な膜質を得るのが困難である。マグネトロンスパッタリングは、形成する薄膜材料からなるターゲット上にプラズマを励起してイオン衝撃によりターゲット原子を飛び出させ、対向する基板に膜を形成させる技術である。プラズマを効率良く励起するために、ターゲット裏面に永久磁石を設置し、発生した磁場によりプラズマループを形成している。酸化物薄膜を形成する場合、通常酸化物ターゲットを用いてプラズマ励起にアルゴンもしくはアルゴン/酸素混合ガスを用いるが、基板上でプラズマループに対向する領域と、それ以外の領域で膜質が変わってしまうことが知られている。この原因は完全には明らかになっていないが、基板表面に照射されるアルゴンイオンや高エネルギー酸素負イオンの照射量が、プラズマループに対向している領域とそうでない領域で異なることに依ると考えられている。すなわち、プラズマループが固定されている限り、この問題を解決するのは難しいのである。また、別の課題として、プラズマを励起するガス種に関する検討が、a-IGZOのスパッタ成膜に関しては報告されていない。すなわち、スパッタ成膜時にプラズマ励起に用いる希ガスとしてアルゴンに替わり原子半径が大きく質量の思いクリプトンやキセノンを用いることで、膜中に誘起されるダメージを低減させ、様々な薄膜の特性が向上することが知られているが、a-IGZO薄膜に関しては未だ報告が無い。

2. 研究の目的

上述の状況に鑑み、申請者が考案した回転マグネトロンスパッタ技術(動くプラズマループにより時間平均で均一な成膜及びプラズマ照射を実現)をa-IGZO薄膜形成へ適用し、薄膜形成時に基板上へ照射されるプラズマ

照射量分布とa-IGZO薄膜特性との相関を明らかにする。また、スパッタリング時の希ガスを変化させて成膜したa-IGZO薄膜の特性を評価し、高性能TFTを均一に大型ガラス基板で実現するためのTFT製作技術を確立する。

3. 研究の方法

回転マグネトロンスパッタ装置において、プラズマループを固定した場合と動かした場合について、その薄膜特性分布を評価する。薄膜特性の評価は、TFTの電界効果移動度と良い相関が得られるマイクロ波を用いた光伝導度測定によるキャリア寿命測定(Microwave Photo Conductivity Decay Method: μ -PCD法)により行った。回転マグネトロンスパッタ装置においては大型基板成膜へ展開が可能な、矩形ターゲットを二つ並べたデュアルターゲットタイプ(図1)を用いた(一部、1つの矩形ターゲットのみのシングルターゲットタイプも用いている)。デュアルターゲットタイプでは、周波数40kHzのACスパッタ法を採用した。TFT特性に関しては、図2に示すようなボトムゲート構造TFTを製作し、キャリアの電界効果移動度やしきい値電圧の安定性を評価した。a-IGZO薄膜成膜時のガスはアルゴンだけでなくクリプトンやキセノンを用いた。TFT作成過程においてa-IGZO膜は、 380°C のウェットアニールを行っている。なお、クリプトンやキセノンはアルゴンに比べて非常に高価である。我々の研究グループではクリプトン/キセノン回収機を開発しており、この回収機をスパッタ装置に導入してその性能も評価した。

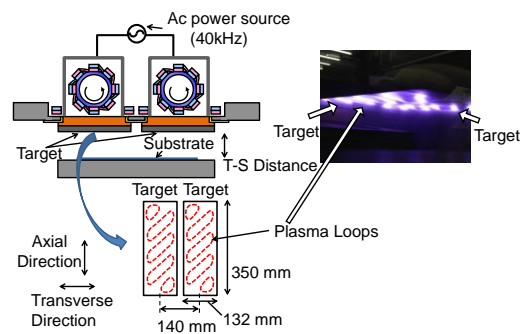


図1 デュアルターゲット型回転マグネトロンスパッタ装置。

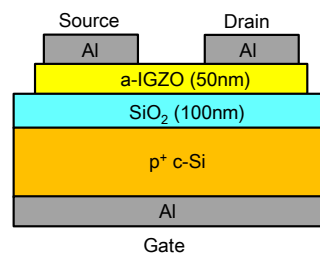


図2 ボトムゲート構造TFT。

4. 研究成果

まず希ガス種を変えた場合の a-IGZO TFT の電気特性について得られた結果を示す。図 3 は、アルゴン、クリプトン、キセノンを用いて成膜した a-IGZO TFT の飽和領域の電界効果移動度の成膜圧力 8mTorr の時の成膜時酸素分圧 (O_2 Additive Ratio) 依存性(図 3(a))、及び酸素分圧 2%の時の成膜圧力依存性(図 3(b))である。TFT のチャンネル長(L)、チャンネル幅(W)はそれぞれ $50\mu\text{m}$ 、 $250\mu\text{m}$ である。酸素分圧が 1~2%程度のところでそれぞれのガス種において高い移動度を示し、さらにアルゴン、クリプトン、キセノンの順番で移動度が向上していることが明らかとなり、この傾向は図 3(b)に示すように圧力を変えても大きく変化はしなかった。アルゴンからキセノンに替えることで移動度は 30%近く向上している。図 4 はアルゴンとキセノンで成膜した a-IGZO 薄膜のホール移動度のキャリア濃度(電子密度)依存性である。キャリア濃度は、成膜時の酸素分圧やポストアニール温度を変化させることで制御した。ホール移動度についても同じ電子密度の場合においてキセノンの場合の方がアルゴンの場合に比べ、30%程度移動度が向上していることが分かり、TFT の実験結果と矛盾しない結果となった。

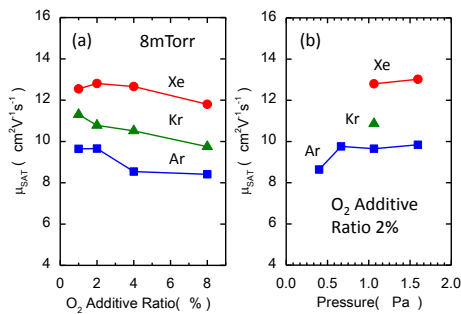


図 3 飽和領域における電界効果移動度の(a)成膜時酸素分圧依存性、及び(b)圧力依存性。

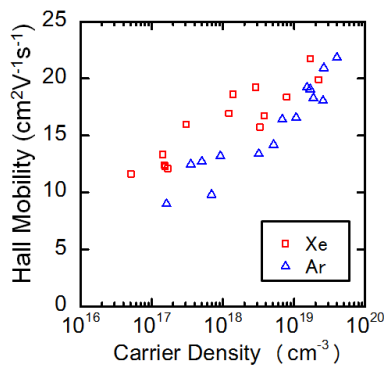


図 4 アルゴンスパッタ及びキセノンスパッタで成膜した a-IGZO 薄膜のホール移動度のキャリア濃度依存性。

次に、我々は作成した TFT のしきい値電圧の安定性を調査した。図 5(a)は、アルゴンスパッタ及びキセノンスパッタで作成した TFT の Positive Bias Temperature Stress (PBTs) 試験の結果、すなわちしきい値電圧の変化のストレス時間依存性を示している。ストレス条件は、 60°C 、ゲート電圧 $V_{GS}=20\text{V}$ 、ソース・ドレイン電圧 $V_S, V_{DS}=0\text{V}$ (Dark 条件下) である。酸素分圧が 2%と 8%の場合についての結果を示している。しきい値電圧の安定性は酸素分圧に大きく依存するが、それぞれの分圧に対してキセノンスパッタの TFT の方が安定性に優れていることが分かった。図 5(b)に酸素分圧 2%、キセノンスパッタの場合のストレス印加前後のトランスファーカーブを示す。

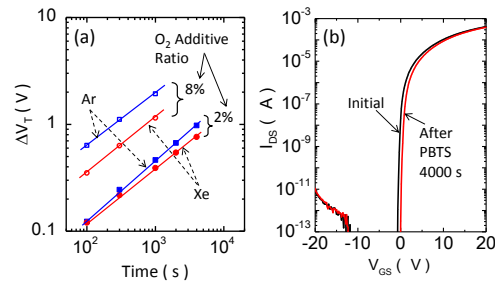


図 5 PBTs 試験結果。(a) しきい値電圧の変化のストレス時間依存性。(b) キセノンスパッタの場合のストレス印加前後のトランスファーカーブ(酸素分圧 2%)。

以上より、キセノンスパッタを導入することで、従来のアルゴンスパッタに比べて移動度が高く安定性に優れた a-IGZO TFT が実現することが分かった。この要因を探るために、キセノンスパッタとアルゴンスパッタで成膜した a-IGZO 薄膜の物理特性について、ラマン散乱分光法を用いてアモルファス構造の検討を、また XRR(X 線反射率法)を用いて膜密度を評価した。その結果、キセノンスパッタで成膜した a-IGZO 膜のアモルファス構造の乱雑さがアルゴンスパッタの場合に比べ抑えられていることが分かり、また膜密度もキセノンスパッタの場合の方が高いことが分かった。スパッタ成膜時、キセノンイオンのイオン照射エネルギーはアルゴンイオンよりも低く、またキセノンイオンの原子半径はアルゴンイオンに比べて大きい。よって、キセノンを用いることで成膜時における膜中への希ガスイオンの進入度合いを低減させ、膜へのダメージが低減され、緻密なアモルファス膜が実現していると示唆される。そのことによりキセノンスパッタで作成した a-IGZO TFT の特性が向上したものと考えられる。

キセノンはアルゴンに比べ非常に高価であるため、このままでは産業界には適用し難い。そこで、研究代表者を含む研究グループが既

に開発していたキセノン回収・循環再利用システムを回転マグネツトスパッタ装置に組み込み、a-IGZO TFT 作成に適用した。キセノン回収機では、スパッタ時に混合した酸素、及びスパッタ装置下流のポンプに使用している窒素パージガスからキセノンを分離して高純度化し、再度スパッタ装置へ供給する。結果を図6に示す。図6では、作成したTFTの飽和領域の電界効果移動度を示しており、フレッシュ（未使用）なキセノンで成膜した場合、回収機から導入したキセノンで成膜した場合、通常のアルゴンで成膜した場合に加え、フレッシュなキセノンに意図的に窒素ガスを混合(100ppm 及び 2500ppm)したガスで成膜した場合について示している。回収・再利用したキセノンを用いて作成したTFTも、フレッシュなキセノンの場合と同等の性能を有し、アルゴンの場合に対する優位性を保持していることが分かる。また、意図的に窒素をいれた場合との比較から、少なくとも再利用したキセノンでの窒素濃度も 100ppm 以下に抑えられていることが示唆される。以上より、高価なキセノンを導入したキセノンスパッタの産業応用への可能性を示すことができた。

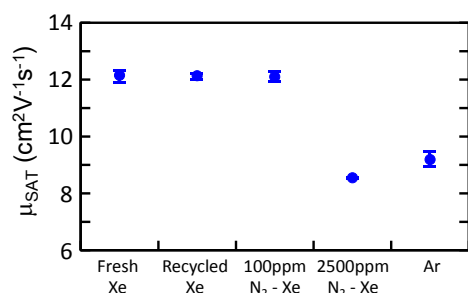


図6 各種成膜条件におけるTFTの飽和領域での電界効果移動度。

次に、 μ -PCD法で測定した、a-IGZO 薄膜のキャリア寿命の面内分布の評価結果について述べる。前述したように本方法で測定したピーク反射率はキャリア移動度と良い相関があり、ピーク反射率が高いほど薄膜の電界効果移動度が高いことが分かっている。図7は、200mm 径ガラス基板上的ピーク反射率分布の測定結果である。シングルターゲットタイプの装置を用いており、矩形の固定磁石を用いた通常のマグネトロンスパッタ(図7(a))、回転マグネツト装置で回転磁石を回転させない場合(プラズマループ固定, 図7(b))、及び回転させた場合(プラズマループが動く, 図7(c))について示している。対応するプラズマループとターゲットや基板との位置関係も図に示している。図7(a)より、通常のマグネトロンスパッタにおいて、プラズマループに対向する領域でピーク反射率が高く、膜質が良いことが分かる。この傾向

は図7(b)の回転マグネツトスパッタ装置で磁石を回転させない場合も同様であることが分かる。これらの結果より、プラズマループが固定している場合、均一な膜質分布を得るのが難しいことが分かる。プラズマが照射される領域がなぜ膜質が良くなるかについては現時点では完全には分かっていないが、アルゴンイオンが基板表面に照射されることにより、成膜原子のマイグレーションが促進され、緻密で欠陥の少ない膜が形成されているものと考えられる。このことは同時に、固定したプラズマループにおいては均一な膜質分布を得ることが難しいことを示唆している。一方、図7(c)に示すように、磁石を回転させてプラズマループを動かすことで、回転磁石の軸方向には均一な分布が得られていることが分かった。

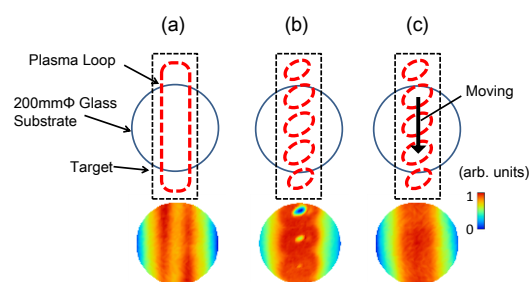


図7 シングルターゲットの場合の μ -PCD測定結果。

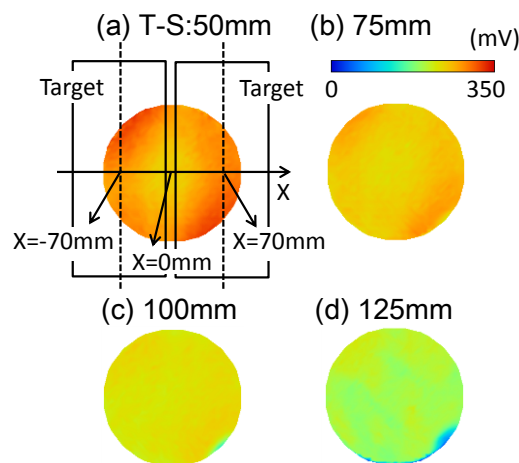


図8 デュアルターゲットの場合の μ -PCD測定結果。ターゲット-基板距離：(a) 50mm、(b) 75mm、(c) 100mm、(d) 125mm。

次に、 μ PCD測定をデュアルターゲットの回転マグネツトスパッタ装置へ適用した結果を図8に示す。ターゲット-基板距離が50mm、75mm、100mm、125mmの場合について示している。ターゲットと基板の位置関係や座標の定義についても図中に示している。ターゲット

-基板距離が 50mm の場合は、若干両ターゲット中心に対向する領域 ($X=\pm 70\text{mm}$) のピーク反射率が高いが、ターゲット-基板距離が 75mm 程度、もしくはそれよりも大きい場合、ターゲット中心領域とターゲット間に対向する領域 ($X=0\text{mm}$) でほぼ同等のピーク反射率を有し、均一な膜質が得られていることが分かる。なお、ターゲット-基板距離が 50mm と 75mm の場合、200mm 径ガラス基板上の分布において左上と右下のピーク反射率の値が高く、非対称性が観測されている。これはターゲットエッジのプラズマの密度が若干高くなっていることに起因していると考えており、これは磁石設計の最適化で今後抑制すべきと考えている。また、ターゲット-基板距離が 100mm、125mm と離れて行くと、ピーク反射率の分布は均一ではあるが値自体が低下してきている。これはターゲット-基板距離が増大することでプラズマの照射の程度が相対的に小さくなっているからと考えられる。また、ターゲット-基板距離が 75mm の場合には、図 8 に示す X 軸方向の膜厚分布についても一番均一性が良い (σ /平均値で 1.5%) ことを明らかとしている。よって、デュアルターゲット型回転マグネットスパッタ装置において、ターゲット-基板距離を 75mm 程度に設定することで、均一な膜質・膜厚の a-IGZO 薄膜を形成できることが分かった。回転マグネットスパッタ技術では、基板の大型化へは回転磁石を長くして、AC スパッタのターゲットペアを複数並べることで原理的に可能である。このように、本研究課題により、回転マグネットスパッタ技術を用いることで、大型基板への均一成膜への指針を与えることができた。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① T. Goto, S. Sugawa and T. Ohmi, "Amorphous InGaZnO Thin-Film Transistors Prepared by Magnetron Sputtering Using Kr and Xe Instead of Ar", J. Soc. Info. Disp., 査読有, (2014), 印刷中
- ② T. Goto, S. Sugawa and T. Ohmi, "Low-cost Xe sputtering of amorphous In-Ga-Zn-O thin-film transistors by rotation magnet sputtering incorporating a Xe recycle-and-supply system", J. Vac. Sci. Technol. A, 査読有, 32 (2014), DOI:02B105.10.1116/1.4835775
- ③ T. Goto, S. Sugawa and T. Ohmi, "Impact of the Use of Xe on Electrical Properties in Magnetron-Sputter Deposited Amorphous InGaZnO Thin-Film Transistors", Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 52 (2013) 050203, DOI: 10.7567/JJAP.52.050203

[学会発表] (計 3 件)

- ① T. Goto, H. Ishii, S. Sugawa, and T. Ohmi, "Impact of the Use of Xe and Its Recycling System for Preparing Amorphous InGaZnO Thin Film Transistors by Dual-Target Rotation Magnet Sputtering", The Twelfth International Symposium on Sputtering and Plasma Processes (ISSP 2013), p22, Kyoto, July 10 2013.
- ② T. Goto, H. Ishii, S. Sugawa, and T. Ohmi, "Electrical Properties of Amorphous InGaZnO Thin-Film Transistors Prepared by Magnetron Sputtering with Using Kr and Xe Instead of Ar", Society for Information Display International Symposium 2013, p.727, Vancouver, Canada, May 23 2013.
- ③ T. Goto, S. Sugawa, T. Ohmi, "Spatial Distribution of Properties of a-IGZO Films Deposited by Rotation Magnet Sputtering Incorporating Dual Target Structure," The 19th International Display Workshops (IDW'12), FMC6-3, pp.973-976, Kyoto, December 6 2012.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 酸化物半導体装置の製造方法

発明者: 後藤哲也

権利者: 東北大学

種類: 特許

番号: 特願 2012-266753

出願年月日: 2012 年 12 月 5 日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

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

後藤 哲也 (GOTO, TETSUYA)

東北大学・未来科学技術共同研究センター・准教授

研究者番号: 00359556