

## 論文内容の要旨

博士論文題目

Oxide Semiconductor Thin Film Transistors with High-K Dielectric Material Fabricated by Solution Process

(溶液プロセスによる高誘電率材料を用いた酸化物系薄膜トランジスタの作製)

氏名 呂 莉

(論文内容の要旨)

Vacuum processes of sputtering and plasma-enhanced chemical vapor deposition are generally used for the deposition of oxide semiconductors. Vacuum-deposition methods require expensive equipment and result in high manufacturing costs. An alternative method, solution process, was promising because of its simple and low cost. However, high annealing temperatures, which are not suitable for the application on glass and flexible substrates, are needed to obtain high electrical properties by the use of solution process. On the other hand, high operating voltages are typically required to achieve high mobility and high on/off current ratios for oxide semiconductor thin film transistors (TFTs) even fabricated by vacuum processes, which increase the power consumption of electronic circuits.

In order to obtain high mobility InZnO (IZO) TFTs by the solution process with a low fabrication temperature, an UV/O<sub>3</sub>-assisted annealing was used for the first time. Under the UV/O<sub>3</sub>-assisted annealing, the TFT using IZO thin film fabricated at 290 °C showed almost the same mobility of 2.2 cm<sup>2</sup>/(V·s) to that of the TFT using IZO thin film annealed at 700 °C without UV/O<sub>3</sub> assistance. Since large amounts of carbon (C) impurities which originated from the organic solution remained in the thin film, the mobility was not high enough. Therefore, an aqueous solution using water as solvent and inorganic acid salts as solutes were adopted. The aqueous solution-derived IZO TFT showed significantly decreased C impurity. Meanwhile, very good surface morphology and good bonding of oxygen with metal were obtained. An extremely high mobility of 19.5 cm<sup>2</sup>/(V·s) was obtained at a low fabrication temperature of 300 °C. Reports showing a higher mobility than the value obtained in this work are rare.

Solution process-derived high-k material of SrTa<sub>2</sub>O<sub>6</sub> (STA) was used as the gate dielectric of TFTs to decrease operating-voltage of TFTs. The STA thin film which was annealed at 700 °C showed the lowest loss tangent, lowest leakage current density, best capacitance-voltage stability and a high dielectric constant ( $\epsilon$ ) of 41. This  $\epsilon$  was higher than those of many other high-k materials. However, the annealing temperature of 700 °C was too high for the fabrication on glass substrate. Therefore, the UV/O<sub>3</sub> treatment was proposed for decreasing the leakage current of the STA thin film annealed at 500 °C. A decrease of 10<sup>6</sup> A/cm<sup>2</sup> (at 500 kV/cm) was obtained by the use of the UV/O<sub>3</sub> treatment. By the use of optimized STA thin films, extremely high mobility of 237.4 cm<sup>2</sup>/(V·s) was obtained when the channel layer was sputtered-InGaZnO thin film. On the other hand, a high on/off current ratio of 10<sup>6</sup> was obtained at a low gate voltage of 5 V when the channel layer was solution process-derived IZO thin film. In particular, an extremely low subthreshold swing (*S*) of 0.08 V/decade was obtained, which was very close to the limit value of *S*, 0.06 V/decade. The high  $\epsilon$  and smooth surface of STA thin film contributed to this low value.

氏名	呂 莉
----	-----

(論文審査結果の要旨)

本論文提出者は、次世代ディスプレイの実現に向けた酸化物薄膜トランジスタの低温形成および高性能化についての研究を行った。これまで、スパッタ法や PECVD 法などの真空プロセスを用いた酸化物半導体の作製方法が研究されてきたが、真空を利用するため装置や製造コストが高いといった問題点があった。そのため近年、単純かつ低コストである溶液プロセスが注目されている。しかし、溶液プロセスを用いて高品質な薄膜を作製するには高い焼成温度が必要とされてきた。また液体プロセスによる酸化物半導体薄膜トランジスタ (TFT) は駆動するために高電圧が必要であった。そこで、申請者は溶液プロセスを低温化し、高移動度の InZnO (IZO) TFT を実現することを目的とした研究に取り組んだ。高温の熱処理を用いる代わりに UV/O<sub>3</sub> 処理を初めて導入した。UV/O<sub>3</sub> 処理により、290 度という低温プロセスにおいても、通常プロセスの 700 度で焼成した TFT とほぼ同程度の移動度  $2.2 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$  を確認した。しかし、290 度という低温で作製した IZO 膜の中にはカーボンを中心とする大量の有機残留物が存在することがわかった。この不純物が、高性能化を妨げていると考えた。そこで、有機残留物を低減するために水溶液系前駆体を導入し、溶媒には水、溶質は無機酸塩を用いた。この溶液で作製した IZO 半導体膜は簡単なプロセスであり、300 度という低温でも膜中の有機残留物が非常に少ないことがわかった。また、表面形状は平坦であり、金属と酸素の結合も良好であった。この半導体膜で作製した TFT は非常に高い移動度  $19.5 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$  を示した。この移動度は、これまでに報告された 300 度で作製した IZO-TFT の中では、最も高い値であった。さらに、この TFT を低駆動電圧化するために、高誘電体材料である SrTa<sub>2</sub>O<sub>6</sub> (STA) を提案し、ゲート絶縁膜に応用した。すべて溶液プロセスとするために STA も溶液プロセスにより作製した。700 度で作製した STA 膜は極めて低い誘電損失、リーク電流特性と容量の電圧安定性を示した。また、この時の誘電率は 41 であり、既存の高誘電体材料よりも高い値であった。この誘電特性を保ちながらプロセス温度を下げるために、UV/O<sub>3</sub> 処理を行った。500 度で作製した STA 膜に UV/O<sub>3</sub> 処理することで、リーク電流を大幅に低減することができた。リーク電流の値は印加電圧  $500\text{kV/cm}$  において 6 桁ほど低下した。最適条件で作製した STA 膜をゲート絶縁層とした TFT では、非常に高い移動度  $237.4 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$  を確認した。

以上のように本論文は、酸化物半導体を用いた TFT の低温形成や高性能化に向けて、溶液法を用いた新しい手法を考案し、それが有効であることを実証しており、学術的に意義深い。よって審査員一同は本論文が博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認めた。