

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 12 日現在

機関番号：14603

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360137

研究課題名(和文)次世代高性能ディスプレイの実現に向けた低温多結晶シリコン薄膜トランジスタ

研究課題名(英文)Low temperature polycrystalline thin film transistors for next generation high performance display

研究代表者

浦岡 行治(Uraoka, Yukiharu)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・教授

研究者番号：20314536

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,200,000円、(間接経費) 4,560,000円

研究成果の概要(和文)：高性能な薄膜トランジスタの開発及び無機EL蛍光体の低温形成を提案した。薄膜トランジスタの形成においては、水中レーザーによるシリコン薄膜の結晶化、チャネル表面欠陥の不活性化、不純物の活性化を中心に研究を展開、蛍光体の形成に関しては、マイクロ波照射に伴う輝度向上ならびに微粒化による蛍光体層の薄膜化を中心に研究を行った。特に、性能・信頼性の評価には、プローブ顕微鏡を用いた局所的電気評価、発光解析手法を用いたホットキャリア劣化解析を実施することで、プラスチック基板上に単結晶LSI並みの駆動回路を実現した。最終年度には、それぞれのテーマの合体により、パネルデバイスの試作と動作実証を行った。

研究成果の概要(英文)：In this study, we proposed the fabrication of high performance thin film transistors (TFT) and inorganic electro luminescence panel. For the fabrication of TFTs, crystallization of Si thin film in water, inactivation of channel surface and activation of impurity were mainly performed. For the fabrication of inorganic EL, enhancement of light intensity by irradiation of micro wave and thinning of phosphor layer by atomization were mainly performed. In particular, local analysis of electronic property using probe microscope and hot carrier analysis using emission microscope were performed to improve the performance and reliability. Successfully we could demonstrate the panel operation on plastic substrate.

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 レーザ結晶化 無機EL ディスプレイ シリコン薄膜 プローブ顕微鏡 ホットキャリア マイクロ波

1. 研究開始当初の背景

薄膜トランジスタ(TFT)はディスプレイを駆動するデバイス素子である。80年代後半に TFT 駆動液晶ディスプレイが発表されて以降、薄型ディスプレイの技術・市場は著しい発展を遂げてきた。近年ではその開発動向に二つの方向性が顕著であり、一つは薄型・軽量化であり、従来基板として使われてきたガラスをプラスチックに置き換える研究が広く行われている。もう一つは、画像表示だけでなく入力・操作の機能を取り込み、よりユーザーフレンドリーな機器へ進化させる動きである。

多結晶シリコン(poly-Si)薄膜は、数種類ある TFT 材料の中でも格段に優れた電気特性を有する。従って、映像表示だけでなくディスプレイ周辺部に実装されている IC チップの代替が可能である。一方、poly-Si TFT の作製にはプラスチックの軟化点である 200°Cをはるかに超える高温が必要であるという課題がある。加えて、poly-Si は複数の結晶 Si の集合体である為粒界が存在し、電気特性を低下させ、また特性評価を難しくする要因となっている。

2. 研究の目的

本研究では、poly-Si TFT を 200°C以下の低温で作製する技術として、水中で試料に対してレーザー照射を行う、WLA を提案する。WLA では水による冷却効果および Si 膜中の温度分布の均一化効果を利用する。これらによって、基板温度上昇を抑制しつつ高品質の poly-Si 膜の形成が期待できる。また、WLA では試料表面が水蒸気に暴露される為、水素による電氣的欠陥の終端効果が期待できる。

3. 研究の方法

本研究はフレキシブルディスプレイなど次世代情報端末を実現することを目的として、高性能薄膜トランジスタと高輝度無機 EL の低温形成方法を提案した。我々がこれまで培ってきた作製技術に水中レーザー照射法やマイクロ波焼成法など新たな手法を組み入れ、さらに発光解析手法など独自の評価手法を応用し、高性能でかつ高信頼性のデバイスを実現した。豊富な経験に基づいた駆動回

路の試作と蛍光体材料形成の両面からのアプローチによって、また、恵まれた試作環境を活用することによって、デバイスそのものの動作を実証し、より実現可能なデバイス形成技術を行った。

4. 研究成果

本研究では、poly-Si TFT を 200°C以下の低温で作製する技術として、水中で試料に対してレーザー照射を行う、WLA を提案する。WLA では水による冷却効果および Si 膜中の温度分布の均一化効果を利用する。これらによって、基板温度上昇を抑制しつつ高品質の poly-Si 膜の形成が期待できる。また、WLA では試料表面が水蒸気に暴露される為、水素による電氣的欠陥の終端効果が期待できる。図 1 は WLA および一般的な結晶化工程で用いられる LA にて形成した poly-Si 薄膜の結晶粒径の照射エネルギー密度依存性である。WLA では LA と比較して、大粒径かつ均一な結晶粒、すなわち高品質な poly-Si 膜が形成されている事がわかる。さらにプラスチック上での結晶化を実証し、超低温アニールが可能である事を示した。

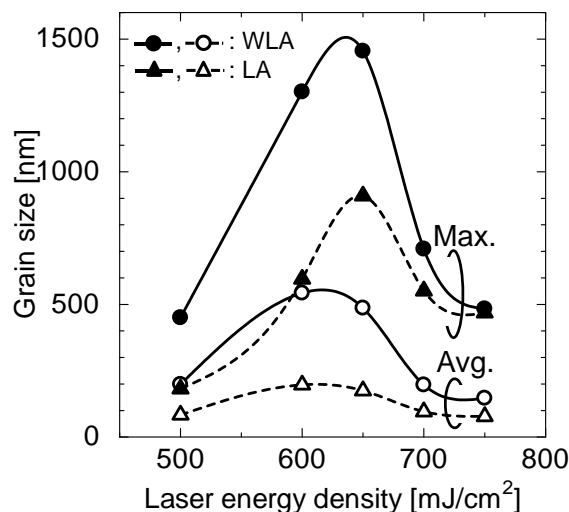


図 1 WLA/LA により形成した poly-Si 膜の最大粒径および平均粒径。

次に、WLA による poly-Si TFT の欠陥不活性化を試みた。図 2 はトップゲート型 poly-Si TFT の伝達特性である。WLA を行うと、移動度が 52 から 72 cm²/Vsec まで

増加し、On/Off 比、S 値ともに改善が見られた。SIMS 測定より、WLA 前後で poly-Si 膜中の水素濃度の増加が認められており²⁾、レーザー照射によって発生した水蒸気中から供給された水素によって poly-Si 膜中の電氣的欠陥が終端されたと考えられる。比較の為に通常の欠陥不活性化工程で用いられる FGA を行った後の TFT 特性も図 2 に示す。基板温度はプラスチック基板が耐えうる 200°C とした。FGA の場合、移動度は 52 から 64 cm²/Vsec まで増加しているものの、WLA を施した TFT よりも移動度が低い。WLA では基板温度を上げることなく TFT 特性の改善が可能なが示された。

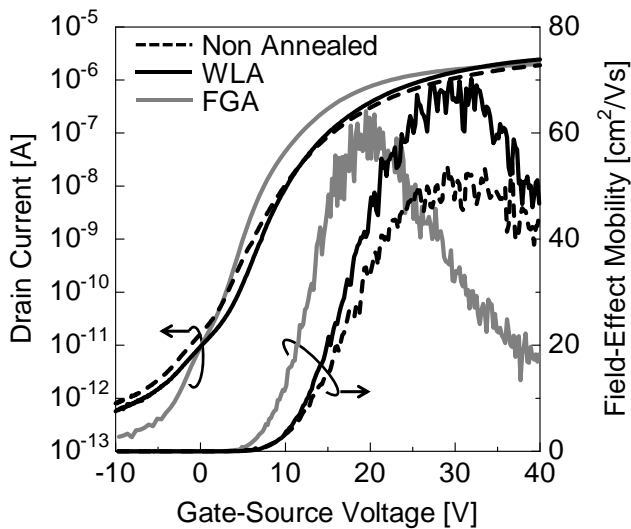


図 2 WLA/FGA 前後の poly-Si TFT の伝達特性。 $V_{ds} = 0.1 \text{ V}$, $W/L = 5 \mu\text{m} / 10 \mu\text{m}$.

poly-Si TFT の電気特性評価には TFT 特性評価やホール効果測定等が用いられているが、これらの手法では poly-Si 薄膜にとって重要なナノスケールの局所領域の電気特性を評価することは非常に困難である。本研究では、電流検出型原子間力顕微鏡 (C-AFM) を用いた、poly-Si 薄膜の局所電気伝導特性評価を提案する。図 3 に、C-AFM4 回繰返し測定により取得した、poly-Si 膜表面の同一領域での表面凹凸像および電流像を示す。表面凹凸像上の白点線は粒界を示す。図 3 より、粒内ではスキャン回数増加と共に導電率が著しく低下したのに対し、粒界ではスキャン回数増加による導電率低下はほぼ見られず、同程度の電流が流れ続けた。また、KFM 測定によ

り、C-AFM4 回繰返し測定前後で、粒内で 45 mV、粒界で 17 mV の電位上昇を確認した。以上の結果より、粒内には孤立欠陥準位が多数存在し、これらの欠陥準位からカンチレバー側へ電子放出が生じていると考えられる。その結果、欠陥準位が正に帯電してクーロン散乱が増加し、粒内の導電率低下が生じたと結論する。一方、粒界には高密度欠陥準位があり、この高密度欠陥準位を介した電子の移動の為、欠陥準位の帯電は生じにくく、導電率低下がほぼ生じなかったと考えられる。

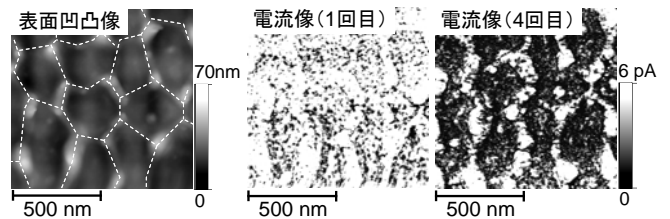


図 3 poly-Si 膜の表面凹凸像および電流像。

分散型無機エレクトロルミネッセンス (EL) デバイスは、フレキシブルな基板に低コストかつ簡易に作製でき、またスクリーン印刷法などのプリント技術で大面積成膜できることからより一層の発展が期待できるデバイスである。また、電流注入型の有機 EL 素子とは違い容量性の素子であるため交流電源で駆動しているものが多く、素子内の蛍光体粒子の電界励起を利用して発光を得ている。均一な発光が可能で構造が非常に簡単な完全固体デバイスという特長から、振動や衝撃に強く、環境信頼性 (動作温度範囲) に優れており、フレキシブルディスプレイへの応用が期待されている。しかし、その発光輝度はまだ不十分である。発光輝度向上を図るため、一般的には 10 時間以上の長時間のアニールによる Cu のドーピングを行い発光準位の形成を行った。

本実験グループではこれまでに機械的圧力を与えることで 1 時間以下の短時間アニールによる高輝度化を実現した。だが、急激な機械的圧力を加えたことで蛍光体表面に欠陥が生成され、非発光再結合中心の増加が懸念された。更なる発光輝度向上に向けて、表面欠陥の減少が重要であると考えられる。

本研究では、ZnS 蛍光体に対して超短パルスレーザーを照射することによってストレスを加え、分散型無機 EL 素子の発光輝度の向上を目的とした。超短パルスレーザーを用いることで、ZnS 蛍光体に加わる熱的・機械的ストレスを照射条件によって細かく操作することができ、作製過程における表面欠陥の生成を抑えることができると考えた。ZnS 蛍光体の結晶性や発光特性を評価しレーザー照射による効果の検討を行った。

Hexagonal 構造の ZnS 粉末(平均粒径 16 μm)を 150 ml のエタノール中に 300 mg 投入し攪拌させつつスクリー管の上部からレーザー(周波数: 1 kHz, 波長: 800 nm)を照射した。その後、ZnS 粉末だけを取り出し赤外線急速加熱焼成(800°C, 15 min)によって Cu をドーブした。蛍光体の X 線回折(XRD)とフォトルミネッセンス(PL)を測定した。さらに、レーザー照射した蛍光体を用いてスクリーン印刷法によって分散型無機 EL 素子を作製した。無機 EL 素子に交流電圧を印加させ発光輝度の測定を行った。レーザー照射条件はレーザー強度と照射時間を変化させ、蛍光体と無機 EL 素子の評価を行った。

本研究では、ピコ秒レーザー(2 ps)とフェムト秒レーザー(250 fs)によるレーザーアブレーションのメカニズムの違いによる発光特性の変化を調べた。ピコ秒レーザーのレーザーアブレーションは熱的課程となりフェムト秒レーザーのレーザーアブレーションは非熱的課程での機械的なアブレーションであるといえる。どちらのレーザーアブレーションが EL 輝度向上に最適であるかを検討した。フェムト秒レーザーを照射したサンプルは、ピコ秒レーザーを照射したサンプルに比べ EL 素子の発光輝度が高かった。図 4 に、それぞれの PL 発光スペクトル(励起波長 330 nm)の変化を示す。この測定結果よりフェムト秒レーザーは Cu ドープによる PL ピーク強度の大きな回復が観測され、より発光輝度向上に適していると考えた。

フェムト秒レーザーを用いて照射条件(レーザー強度・照射時間)を変化させ発光特性の変化を調べた。レーザー強度を一定にし、照射時間を変化させて PL・EL の強

度について評価を行った。PL 強度は照射時間が延びるにつれて減少し、EL 発光輝度は増加した。PL 強度の減少から、フェムト秒レーザーの照射によって機械的アブレーションが起き、表面欠陥が生成されると予測される。一方、照射時間の増加によって ZnS 蛍光体内の Cubic 構造の割合が増え多結晶状態となったことが観測された。結晶粒界に Cu₂S 結晶が多く析出し EL 発光輝度が向上したと思われる。レーザー強度を変化させた場合についても同様の結果が得られた。また、レーザー強度が 0.15 mJ を超えたところで EL 発光輝度が大きく減少した。これは、非常に高いレーザー強度で照射したために粒子を破壊してしまい本来粒界にできる Cu₂S 結晶が析出されなかったためだと考えられる。

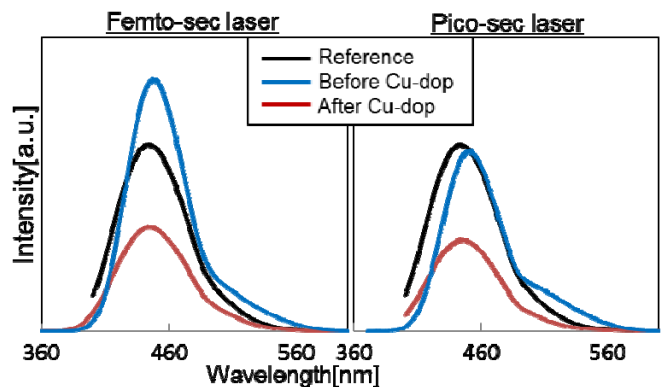


図 4 超短パルスレーザーを照射した ZnS 蛍光体の PL 発光スペクトル

EL 発光輝度向上には、より表面欠陥を生成させずに多結晶状態を作り出し結晶粒界に Cu₂S 結晶を析出させることが最適である。より表面欠陥の生成を抑えるには、PL 発光スペクトルの低下が少ないレーザー強度の低いレーザーで長時間の照射を行うことが適していると思われる。そこで、短時間照射時と長時間照射時における発光特性の変化を調べ、表面欠陥の生成を抑える照射条件を検討した。図 5 に、短時間・長時間照射における発光輝度のレーザー強度依存性を示す。短時間照射時と長時間照射時で、逆の傾向を示した。長時間照射の場合、レーザー強度を限りなく小さくしても表面欠陥が生成されてしまい発光輝度が大きく低下してしまう。これにより、より

表面欠陥の生成を抑えるには短時間の照射でレーザー強度を上げることが重要であると考えられる。

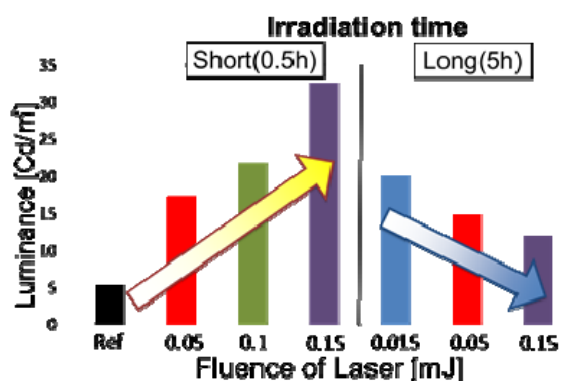


図5 短時間・長時間照射における発光輝度の強度依存性

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 12 件)

1. Yosuke Tojo, Atsushi Miura, Yasuaki Ishikawa, Ichiro Yamashita, and Yukiharu Uraoka, “Polycrystalline Silicon Thin-Film Transistor Utilizing Self-Assembled Monolayer for Crystallization”, *Thin Solid Films*, 540 (2013) 266-270. (査読有り)
2. Yana Mulyana, Masahiro Horita, Yasuaki Ishikawa, Yukiharu Uraoka, and Shinji Koh, “Thermal Reversibility in Electrical Characteristics of Ultraviolet/Ozone-Treated Graphene”, *Appl. Phys. Lett.*, 103, 6 (2013) 3107-3111. (査読有り)
3. Yasuaki Ishikawa, Shinji Araki, Min Zhang, and Yukiharu Uraoka, “Size Control in ZnO Nano-Pillar Fabrication Using a Gel-Nanoimprint Process”, *Applied Mechanics and Materials*, 372 (2013) 149-152. (査読有り)
4. Mutsunori Uenuma, Takahiko Ban, Naofumi Okamoto, Bin Zheng, Yasuhiro Kakihara, Masahiro Horita, Yasuaki Ishikawa, Ichiro Yamashita, and Yukiharu Uraoka, “Memristive Nanoparticles Formed Using a Biotemplate”, *Royal Society of Chemical Advances*, 3 (2013) 18044-18048. (査読有り)
5. Koji Yoshitsugu, Masahiro Horita, Yasuaki Ishikawa, and Yukiharu Uraoka, “Characterizations of Al₂O₃

Gate Dielectric Deposited on n-GaN by Plasma-Assisted Atomic Layer Deposition”, *Physica Status Solidi C*, 10, 11 (2013) 1426-1429. (査読有り)

6. Satoshi Urakawa, Shigekazu Tomai, Yoshihiro Ueoka, Haruka Yamazaki, Masashi Kasami, Koki Yano, Dapeng Wang, Mamoru Furuta, Masahiro Horita, Yasuaki Ishikawa, and Yukiharu Uraoka, “Thermal Distribution in Amorphous InSnZnO Thin-Film Transistor”, *Physica Status Solidi C*, 10, 11 (2013) 1561-1564. (査読有り)
7. Yoshihiro Ueoka, Yasuaki Ishikawa, Naoyuki Maejima, Fumihiko Matsui, Hirosuke Matsui, Haruka Yamazaki, Satoshi Urakawa, Masahiro Horita, Yasuaki Ishikawa, Hiroshi Daimon, and Yukiharu Uraoka, “Analysis of Electronic Structure of Amorphous InGaZnO/SiO₂ Interface by Angle-Resolved X-Ray Photoelectron Spectroscopy”, *Journal of Applied Physics*, 114, 16 (2013) 163713. (査読有り)
8. Juan Paolo Bermundo, Yasuaki Ishikawa, Haruka Yamazaki, Toshiaki Nonaka, and Yukiharu Uraoka, “Highly Reliable Polysilsesquioxane Passivation Layer for a-InGaZnO Thin-Film Transistors”, *ECS Journal of Solid State Science and Technology*, 3, 2 (2013) Q16. (査読有り)
9. Haruka Yamazaki, Yasuaki Ishikawa, Mami Fujii, Yoshihiro Ueoka, Masaki Fujiwara, Eiji Takahashi, Yasunori Ando, Naoyuki Maejima, Hirosuke Matsui, Fumihiko Matsui, Hiroshi Daimon, and Yukiharu Uraoka, “The Influence of Fluorinated Silicon Nitride Gate Insulator on Positive Bias Stability Toward Highly Reliable Amorphous InGaZnO Thin-Film Transistors”, *ECS Journal of Solid State Science and Technology*, 3, 2 (2013) Q20. (査読有り)
10. Yoshihiro Ueoka, Yasuaki Ishikawa, Juan Paolo Bermundo, Haruka Yamazaki, Satoshi Urakawa, Yukiharu Osada, Masahiro Horita, and Yukiharu Uraoka, “Effect of Contact Material on Amorphous InGaZnO Thin-Film Transistor Characteristics”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 53, 3S1 (2013) 03CC04. (査読有り)

11. Sano, K., Miura, A., Yoshii, S., Okuda, M., Fukuta, M., Uraoka, Y., Fuyuki, T., Yamashita, I., & Shiba, K. Nonvolatile flash memory based on biologically-integrated hierarchical nanostructures. *Langmuir in press* (2013). (査読有り)
12. M. Uenuma, B. Zheng, K. Bundo, M. Horita, Y.Ishikawa, H.Watanabe, I. Yamashita and Y. Uraoka, "Crystallization of amorphous Ge thin film using Cu nanoparticle synthesized and delived by ferritin", *Journal of Crystal Growth* 382 (2013) 31-35. (査読有り)

[学会発表] (計 5 件)

1. Yukiharu Uraoka, "Reliability of Oxide Thin Film Transistors", IDMC 2013, August 30, 2013, Taiwan.
2. Y. Uraoka, Y.Ishikawa and Y.Uraoka, "Unique Property of a-InGaZnO/Ag Interface on Thin Film Transistor", 20th International Workshop on Active-Matrix Flatpanel Displays and Devices, July 3, 2013, Kyoto.
3. K. Kado, I. Ymashita and Y.Uraoka, "Evaluation of TaOx Nanopaticles for Resistive Memory", 2013 International Meeting for Future of Electron Devices, Kansai, June 5, 2013, Osaka.
4. S.Urakawa, Y.Ishikawa and Y.Uraoka, "Thermal distribution in Amorphous InSnZnO Thin Film Transistors", The 40th International Symposium on Compound Semiconductors", May 21, 2013, Kobe.
5. Yasuaki Ishikawa, Shinji Araki, Min Zhang and Yukiharu Uraoka, "Size Control in ZnO Nano-Pillar Fabrication using Gel-Nanoimprint Process, 2nd Int'l. Conf. on Adv. Mat. Design and Mech. May 18, 2013, Osaka

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 2 件)

名称：基板上へのナノ粒子の配置方法
 発明者：浦岡行治、上沼睦典
 権利者：同上
 種類：特許
 番号：特願 2013-241968
 出願年月日：2013. 11. 22
 国内外の別：国内

名称：保護膜を具備する薄膜トランジスタ基板及びその製造方法
 発明者：石河泰明、浦岡行治
 権利者：同上
 種類：特許
 番号：特願 2014-017619
 出願年月日：2013. 01. 31
 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
<http://mswebs.naist.jp/LABs/uraoka/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

浦岡行治 (Yukiharu Uraoka)
 奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・教授
 研究者番号：20314536

(2) 研究分担者

木村 睦 (Mutsumi Kimura)
 龍谷大学・理工学部・教授
 研究者番号：60368092

(3) 連携研究者

石河泰明 (Yasuaki Ishiakawa)
 奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・准教授
 研究者番号：70581130

西田貴司 (Takashi Nishida)
 奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・助教
 研究者番号：80314540

堀田昌宏 (Masahiro Horita)
 奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・助教
 研究者番号：50549988