

酸化亜鉛(ZnO)薄膜トランジスタの開発とディスプレイ応用

平尾 孝* 古田 守 平松孝浩 松田時宜 古田 寛 李 朝陽

高知工科大学 総合研究所

〒782-8502 高知県香美市土佐山田町宮の口 185

E-mail: *hirao.takashi@kochi-tech.ac.jp

要約: 酸化亜鉛(ZnO)を活性層に用いたボトムゲート型薄膜トランジスタ(TFT)を開発した。活性層となる酸化亜鉛はマグネトロンスパッタ法にて形成し、結晶性はスパッタ成膜時の Ar/O₂ ガス流量比で制御した。ZnO-TFT の電界効果移動度は 5.2 cm²/V・sec、on/off 電流比 2.7×10⁷ の優れた特性が得られた。今回 ZnO-TFT をスイッチング素子として用い、動画表示が可能な優れた表示品位を持つ 61,600 画素液晶ディスプレイの駆動に世界ではじめて成功した。

1. はじめに

近年、フラットパネルディスプレイ(FPD)、特に液晶ディスプレイ(LCD)は、PC モニタに代表される情報表示ディスプレイのみならず、映像表示用大型ディスプレイ分野においても大きな進展を見せている。映像・情報表示用 LCD は、各画素を薄膜トランジスタ(TFT)にて駆動するアクティブマトリックス方式が主流である。現在実用化されている LCD は、大型パネルではアモルファスシリコン(a-Si:H)TFT、小型パネルでは低温ポリシリコン TFT により駆動されている。

アモルファスシリコンの成膜にはプラズマ CVD(P-CVD)法が用いられ、大面積基板への展開が容易であるという特徴を有している。しかしながら、a-Si:H TFT の電子移動度は一般的に 1 cm²/V・sec 以下であり、ガラス基板上への周辺駆動回路の形成や電流駆動素子である有機 EL ディスプレイ(OLED)の駆動には課題を有している。

一方で、低温 poly-Si (LTPS)TFT は量産レベルで電子移動度 100 cm²/V・sec を超える性能が実現されており、周辺駆動回路を内蔵したディスプレイや、タッチパネル等の機能素子をディスプレイに内蔵化した、システムオンガラス(SOG)の開発が活発である。LTPS-TFT では多結晶シリコン膜の形成にエキシマレーザー結晶化(ELA)が用いられることが多い。しかしながら、エキシマレーザーによる結晶化は特性ばらつきや大面積基板への展開に課題がある。

これらシリコン系材料に代わる高移動度半導体材料として、酸化物半導体を用いた TFT の研究開発が活発化している。¹⁻⁶⁾ なかでも酸化亜鉛(ZnO)は、ワイドバン

ドギャップ半導体(~3.37 eV)であり、透明・高移動度、大面積成膜が容易、室温付近の成膜温度においても多結晶状態の薄膜が形成可能、といった特長を有し、ZnO-TFT は LCD のみならず、有機 EL や電子ペーパー用途として期待されている。

今回我々は、高性能 ZnO-TFT 実現のため、活性層となる ZnO の結晶性・耐熱性・電気特性制御技術に加え、ZnO 微細加工技術等の開発を行い、ZnO-TFT アクティブ駆動液晶ディスプレイの実証に成功した。

2. ZnO 薄膜形成技術

ZnO 薄膜の成膜には、rf マグネトロンスパッタ法を用いた。マグネトロンスパッタ法は、LCD 製造プロセスにおいて電極形成等に用いられている大型基板に適応可能な成膜手法である。マグネトロンスパッタ法でガラス基板上に成膜された ZnO 薄膜は、一般的に多結晶構造

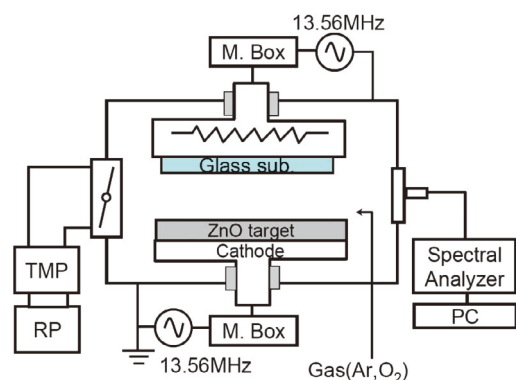


図1 マグネトロンスパッタ装置概略図

を有し、基板に垂直に c 軸が配向した柱状構造を有する。

図1はZnO薄膜の成膜に用いたマグネトロンスパッタ装置の概略図である。成膜条件の詳細を表1に示す。プロセスガスにはArとO₂の混合ガスを用いた。石英窓を介してプラズマ分光装置が接続されており、成膜時のプラズマモニターが可能である。

表1 ZnO薄膜の成膜条件

ターゲット	ZnO 焼結体 (純度 5N、4 インチ φ)
基板	OA-10 ガラス
ガス流量 (sccm)	Ar: 10、O ₂ : 5 ~ 30
成膜圧力 (Pa)	0.5 ~ 7.0
投入電力(W)	180
基板温度 (°C)	150
膜厚 (nm)	65

2.1 ZnO薄膜の結晶性制御

ZnO-TFTの電子移動度は、活性層であるZnO薄膜の結晶性に大きく影響される。ZnO薄膜の結晶性制御は重要な要素技術である。⁷⁾

図2は、XRDにて評価したZnO(002)ピークのAr/O₂ガス流量比依存性である。基板温度は150°C、成膜時圧力は1.0 Paである。(002)回折ピーク位置がAr/O₂流量比の減少、すなわち酸素流量の増加に伴い低角度側にシフトしていることが分かる。図3はXRDスペクトルから計算した(002)方向における結晶子サイズの酸素流量依存性である。図3に示すように、ZnO薄膜の結晶子サイズは酸素流量の増大と共に減少する。

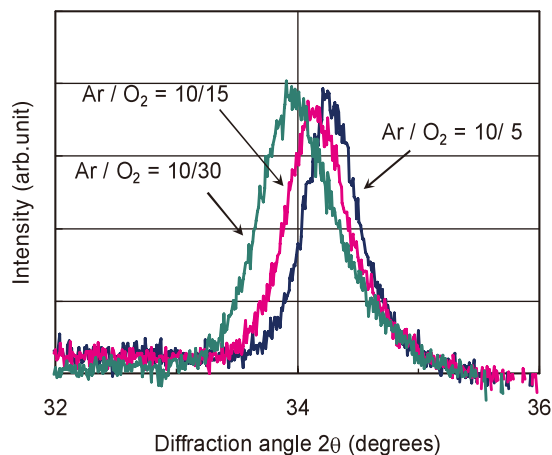


図2 ZnO薄膜XRDスペクトルの酸素流量依存

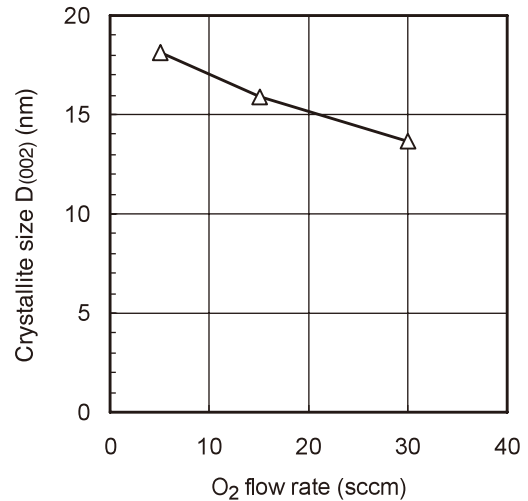


図3 結晶子サイズの酸素流量依存性

成膜中のプラズマ分光測定により、気相中の酸素の活性種(イオン、ラジカルなど)がZnO薄膜に於ける結晶子サイズの減少に影響している事が明らかとなった。気相中に存在する酸素の活性種をコントロールすることで、得られるZnO薄膜の結晶を制御できる。^{8, 9)}

2.2 ZnO薄膜の熱的安定性制御技術

TFTの活性層に用いるアンドープZnO薄膜のバンドギャップは室温の熱エネルギー(26meV)に比較して充分大きく、真性半導体においては室温における熱励起によるキャリアの生成は期待できず絶縁体であることが予想される。しかしながら、酸素空孔(V_O)あるいは格子間亜鉛(Zn_i)といった真性欠陥によるキャリア生成がZnO薄膜の電気特性に大きく影響する。これら真性欠陥は成膜時の酸素分圧に大きく依存する。¹⁰⁾

成膜時に形成される真性欠陥に加え、TFTプロセス

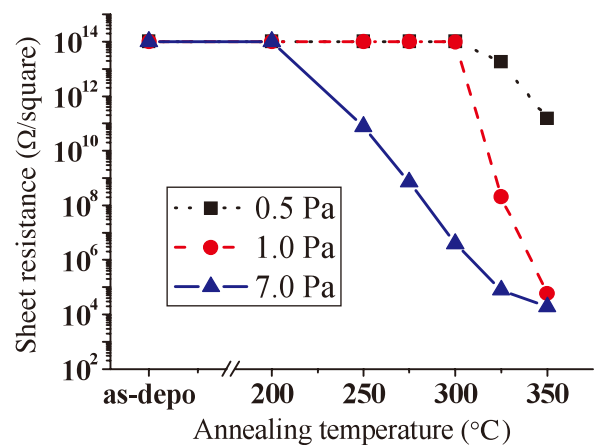


図4 熱処理によるZnO薄膜シート抵抗の変化

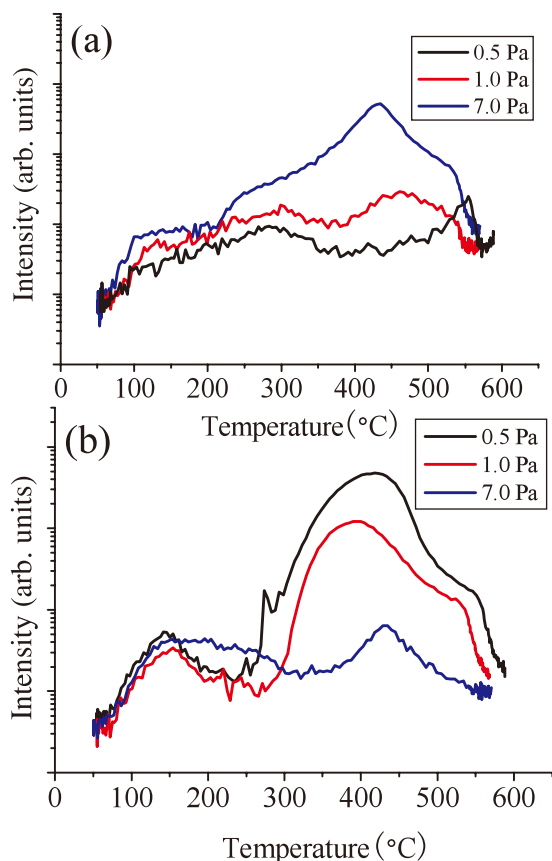


図5 ZnO 薄膜からの(a)亜鉛、(b)酸素の脱離

では ZnO 活性層形成後に各種薄膜を積層する際に、ZnO 薄膜は熱履歴を受ける。ZnO 薄膜の加熱プロセスに対する安定性は、ZnO 薄膜の TFT 応用に際して重要な要素技術である。

スパッタリング法により基板温度 150 °C、Ar/O₂ ガス流量比(=10/30 sccm)にて、成膜圧力を 0.5~7.0 Pa まで変化させ成膜したアンドープ ZnO 薄膜シート抵抗の熱処理温度依存性を図 4 に示す。熱処理は真空中にて実施している。ZnO シート抵抗は、成膜後の熱処理により 8 桁以上減少し、抵抗変化が生じる温度は成膜圧力により変化する。

また、図 5 に昇温脱離ガス分析(TDS)による ZnO 薄膜からの酸素、亜鉛の脱離を示す。ZnO 薄膜の抵抗変化の生じる温度と、酸素もしくは亜鉛といった ZnO 構成元素の脱離が生じる温度がほぼ一致する事から、熱処理により生じた酸素空孔(V_O)あるいは格子間亜鉛(Zn_i)といった真性欠陥によるキャリア生成が抵抗変化の要因であると考えられる。¹¹⁾

3. ZnO 薄膜の微細加工技術

TFT 作製に於いて、フォトリソグラフィーを用いた ZnO 薄膜の微細加工は不可欠な要素技術の一つである。一般的に薄膜の微細加工には、薬液を用いるウェットエ

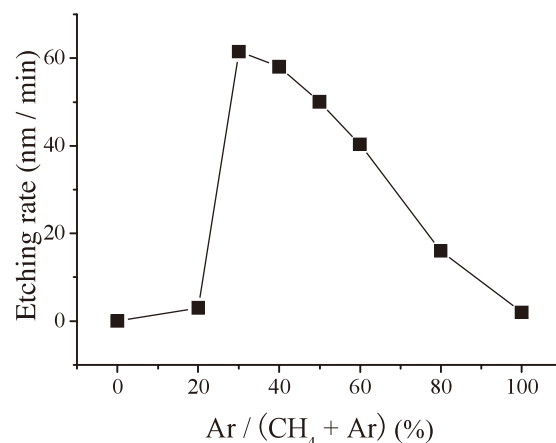


図6 ZnO 薄膜エッチングレート of Ar ガス濃度依存性

ッチング技術と、プラズマを用いるドライエッチング技術があり、薄膜の加工形状、他の薄膜とのエッチング選択性、エッチング速度などを考慮し、エッチング方法を選択する。

ZnO 薄膜は酸、アルカリ溶液双方でエッチング可能な材料であるが、加工精度の観点でウェットエッチング法には課題がある。今回、ドライエッチングによる ZnO 薄膜の微細加工を検討した。

ZnO 薄膜のドライエッチングに用いるガス系は、CH₄ をベースとした混合ガスや、塩素系ガスを用いる例が報告されている。¹²⁻¹⁵⁾ なかでも CH₄ を用いたエッチングは、他の薄膜とのエッチング選択性も良く、TFT 作製プロセスに於いては、有効なエッチングガスである。CH₄ はプラズマにより CH₃⁺へと分解され、ZnO 中の Zn と反応し、Zn(CH₃)₂となる事でエッチングが進行する。

図 6 にエッチングガスに CH₄ と Ar の混合ガスを用い、誘導結合プラズマ(inductively coupled plasma : ICP)法にてエッチングを行った場合の、ZnO 薄膜のエッチングレートとエッチングガス中の Ar 濃度との関係を示す。Ar 濃度が 20%以下の領域では ZnO のエッチングはほとんど進行せず、カーボンの堆積が見られる。堆積した炭素化合物が ZnO と CH₃⁺との反応を妨げるためエッチングが進行しないと考えられる。これに対し、Ar 濃度が 20%を超えると急激に ZnO 薄膜のエッチングが進行する。Ar 濃度の増大とともに Ar によるスパッタリング効果により、堆積した炭素化合物が除去されるため、エッチングが進行するものと考えられる。¹⁵⁾

4. ZnO-TFT プロセスと特性

TFT は、ゲート電極が活性層の上層に位置する Top ゲート構造と、ゲート電極が活性層の基板側に位置する Bottom ゲート構造とに大別される。a-Si:H TFT では

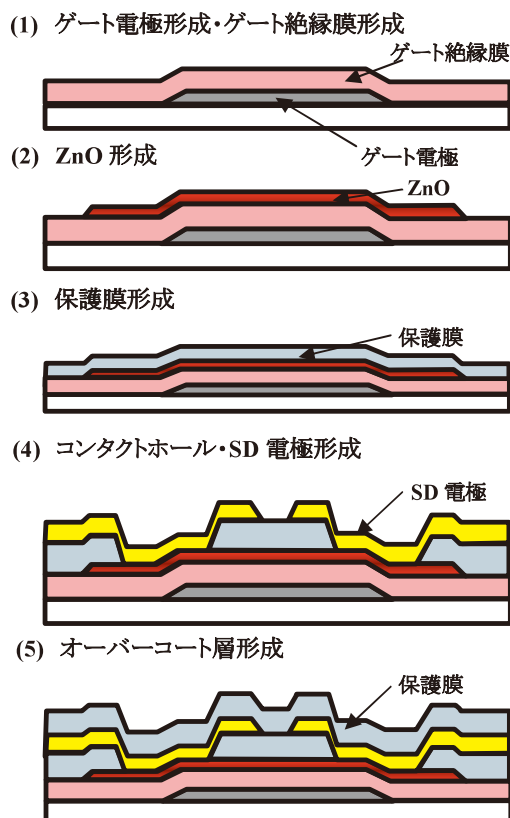


図 7 ボトムゲート ZnO-TFT プロセスフロー

Bottom ゲート構造が、LTPS- TFT では Top ゲート構造が主に用いられている。

今回開発した ZnO-TFT は、現在事業化されている a-Si:H TFT とのプロセス整合性を有するボトムゲート構造を採用した。

図 7 に開発したボトムゲート型 ZnO-TFT 作製プロセスフローを示す。

TFT 作製の基本プロセスは薄膜形成～フォトリソグラフィによるレジストパターン形成～薄膜のエッチングを基本サイクルとし、これらを複数回繰り返すことにより TFT を作製する。最高プロセス温度は 350 °C である。

作製した ZnO-TFT の I_{ds} - V_{gs} 特性を図 8 に示す。ZnO-TFT の電子移動度は a-Si:H TFT の 10 倍の $5 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ 、リーク電流～1 pA の優れた特性が得られた。

5. ZnO-TFT による LCD 駆動

開発した ZnO-TFT をアレイ化し、カシオ計算機株式会社と共同で ZnO-TFT アクティブマトリクス駆動 LCD の実証を行った。

図 9 は ZnO-TFT アレイの顕微鏡拡大写真である。画面サイズ 1.46 インチ、画素数 61,600 画素であり、画素サイズ $96 \times 106 \mu\text{m}$ 、TFT サイズは $W/L = 10/10 \mu\text{m}$ である。

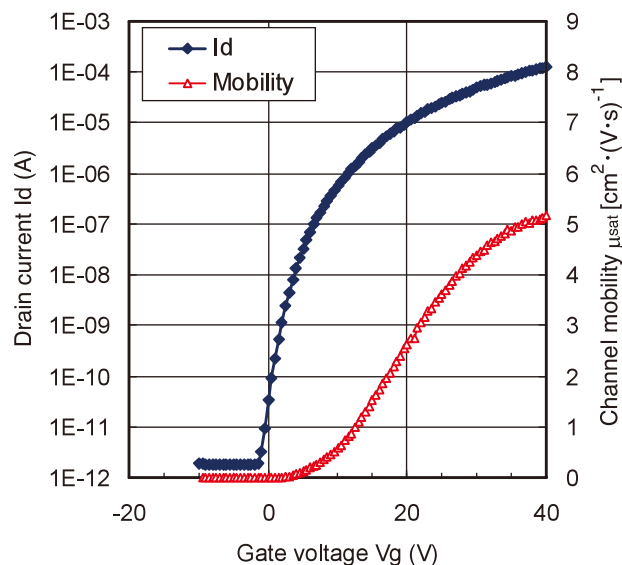


図 8 ZnO-TFT V_{gs} - I_{ds} 特性

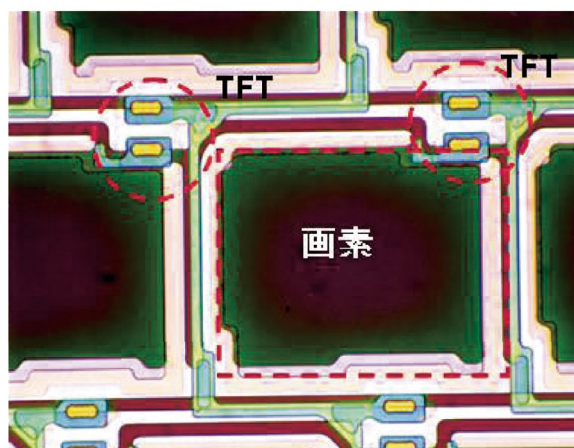


図 9 ZnO-TFT アレイ顕微鏡写真



図 10 ZnO-TFT LCD 画像表示例

図 10 に ZnO-TFT LCD の画像表示例を示す。ディスプレイはガラス基板上に実装した LSI にて、従来の a-Si:H TFT と同一条件にて駆動している。大学の研究室で作製した ZnO-TFT アレイによる LCD であるが、欠陥が少なく、静止画と動画の双方が表示可能である。

6. まとめ

ZnO 薄膜の結晶性、耐熱性制御・微細加工技術の開発を行い、ZnO を活性層に用いたボトムゲート型 TFT を開発した。ZnO-TFT の電界効果移動度は a-Si:H TFT の 10 倍近い $5.2 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ 、on/off 電流比 2.7×10^7 の優れた特性が得られた。今回、ZnO-TFT をスイッチング素子に用いた、1.46 インチ(61,600 画素)ZnO-TFT アクティブ駆動 LCD の実証を行い、静止画像に加えて動画表示に世界ではじめて成功した。

本研究は科学技術振興機構高知県地域結集型共同研究事業「次世代情報デバイス用薄膜ナノ技術の開発(平成15年1月～平成19年12月)」、日本私立学校振興・共済事業団から「私立大学等経常費補助金の特別補助」による支援を受けた。

文献

- 1) J. Nishii, F. M. Hossain, S. Takagi, T. Aita, K. Saikusa, Y. Ohmaki, I. Ohkubo, S. Kishimoto, A. Ohtomo, T. Fukumura, F. Matsukura, Y. Ohno, H. Koinuma, H. Ohno, and M. Kawasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003) pp. L347-L349
- 2) S. Masuda, K. Kitamura, Y. Okumura, S. Miyatake, H. Tabata, and T. Kawai, *J. Appl. Phys.* **93** (2003) pp. 1624-1630
- 3) R. L. Hoffman, B. J. Norris, and J. F. Wager, *Appl. Phys. Lett.* **82** (2003) pp. 733-735
- 4) E. M. C. Fortunato, P. M. C. Barquinha, A. C. M. B. G. Pimentel, A. M. F. Gonçalves, A. J. S. Marques, R. F. P. Martins, and L. M. N. Pereira, *Appl. Phys. Lett.* **85** (2004) pp. 2541-2543
- 6) T. Hirao, M. Furuta, H. Furuta, T. Matsuda, T. Hiramatsu, H. Hokari, M. Yoshida, H. Ishii, and M. Kakegawa, *J. of the SID* **15/1** (2007) pp. 17-22
- 7) T. Matsuda, M. Furuta, T. Hiramatsu, C. Li, H. Furuta, H. Hokari, T. Hirao, *J. Cryst. Growth* **310** (2008) pp. 31-35
- 8) M. Furuta, T. Hiramatsu, T. Matsuda, H. Furuta, T. Hirao, *Jpn. J. Appl. Phys.* **46** (2007) pp. 4038-4041
- 9) M. Furuta, T. Hiramatsu, T. Matsuda, H. Furuta, T. Hirao, *J. Noncryst. Solids* **354** (2008) pp. 1926-1931
- 10) P. F. Carcia, R. S. McLean, M. H. Reilly, *J. of the SID* **13/7** (2005) pp. 547-554
- 11) T. Hiramatsu, M. Furuta, H. Furuta, T. Matsuda, T. Hirao, *Jpn. J. Appl. Phys.* **46** (2007) pp. 3319-3323
- 12) K. Ip, M.E. Overberg, K.W. Baik, R.G. Wilson, S.O. Kucheyev, J.S. Williams, C. Jagadish, F. Ren, Y.W. Heo, D.P. Norton, J.M. Zavada, S.J. Pearton: *Solid-State. Electron.* **47** (2003) pp. 2289-2294
- 13) Wantae Lim, Lars Voss, Rohit Khanna, B.P. Gila, D.P. Norton, S.J. Pearton, F. Ren: *Appl. Surf. Sci.*, **253** (2006) pp. 1269-1273
- 14) S.W. Na, M.H. Shin, Y.M. Chung, J.G. Han, S.H. Jeung, J.H. Boo, N.-E. Lee: *Microelectronic Engineering*, **83** (2006) pp. 328-335
- 15) T. Hiramatsu, M. Furuta, Chaoyang Li, H. Furuta, T. Matsuda and T. Hirao, *Proceedings of the 14th International Display Workshops (IDW'07)* (2007) pp. 577-579

Development of ZnO thin-Film Transistors and Its Application to Flat Panel Displays

**Takashi Hirao^{*}, Mamoru Furuta, Takahiro Hiramatsu, Tokiyoshi Matsuda,
Hiroshi Furuta and Chaoyang Li**

Research Institute, Kochi University of Technology
Tosayamada, Kami-city, Kochi 782-8502 JAPAN
E-mail: ^{*}hirao.takashi @kochi-tech.ac.jp

Abstract: High-performance bottom-gate thin-film transistors (TFTs) with transparent zinc oxide (ZnO) channel have been developed. The ZnO films for active channels were deposited by rf magnetron sputtering, and the crystallinity of the films was controlled by the gas mixture ratio of Ar/O₂. Field effect mobility (μ_{sat}) of 5.2 cm²/V•sec, and on/off current ratio of 2.7×10^7 were obtained. We have first demonstrated LCDs with 61,600 pixels driven by the ZnO-TFTs. The moving picture image was available on fabricated LCDs.