



Title	酸化物半導体デバイスのためのZnO薄膜成長とそのp型伝導制御に関する研究
Author(s)	矢田, 茂郎
Citation	大阪大学, 2004, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/45053">https://hdl.handle.net/11094/45053</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名 矢 田 茂 郎

博士の専攻分野の名称 博 士 (工 学)

学 位 記 番 号 第 1 8 7 9 5 号

学 位 授 与 年 月 日 平 成 1 6 年 3 月 2 5 日

学 位 授 与 の 要 件 学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当

基礎工学研究科物理系専攻

学 位 論 文 名 酸化物半導体デバイスのための ZnO 薄膜成長とその p 型伝導制御に関する研究

論 文 審 査 委 員 (主査)

教 授 小 林 猛

(副査)

教 授 奥 山 雅 則 教 授 岡 本 博 明

## 論 文 内 容 の 要 旨

酸化物半導体技術をベースとする新しいエレクトロニクスの萌芽が期待されている。その中でも酸化亜鉛 (ZnO) は励起子結合エネルギーが大きいなど数々の優れた性質から、紫外発光素子や透明 TFT など次世代電子デバイス用材料としての期待が大きい。しかし一方で、p 型伝導制御が極めて困難であるという問題を抱えており、これが実用デバイス化への大きな障壁となっている。そこで本研究では、これを解決する高品質 ZnO 薄膜成長技術と価電子制御技術についての知見を得ることを目的とした。

ZnO 薄膜成長にはパルスレーザーデポジション (PLD) 法を用いた。PLD 法はイオン衝撃が少ない、成長種粒子の活性制御が可能などの利点を有し、高品質 ZnO を得るには不可欠なツールである。ZnO の p 型制御という難題に対し、研究を科学的に進めるために、半経験的分子軌道法である MOPAC を導入し、これにより得られたドーピング指針を実験に反映させた。この結果、以下に示す数々の重要な知見を得た。

まず PLD 成膜時のプルーム発光解析、オーロラ (磁場印加) PLD 法の適用等を通して、ZnO の高品質化に向けて、成長種粒子への適度な初期運動エネルギー付与及びその活性化が重要となることがわかった。

次に MOPAC バンド計算によって、N 及び Li が p 型化ドーパントの候補として導出できた。しかし、実験で得られた N ドープ ZnO 薄膜は n 型を示し、Li ドープ ZnO 薄膜は絶縁膜となった。N ドープ ZnO 薄膜では MOPAC で考慮されない自己補償作用が生じたと考えられる。また Li ドープ ZnO 薄膜では深いアクセプタ準位が形成されることが濃度補正後の MOPAC 計算より示唆された。

上記の諸準備のもとに、酸素欠損を考慮し現実により近い系とした MOPAC バンド計算を提案した。この結果、Li、N 同時ドーピング法を見出し、本手法を実験に導入することで、ZnO の p 型化に成功した。これは国内外でも初めての成果であることを強調したい。この結果、Li、N 同時ドーピングによって浅いアクセプタ準位が形成されるとする MOPAC 計算が実証された。従って本手法では自己補償作用が生じない可能性が高い。

最後に、ZnO 半導体のデバイス応用に向けての基礎的な検討を行った。

## 論文審査の結果の要旨

酸化物半導体を基盤とする新しいエレクトロニクスの台頭が切望されている。多数の酸化物半導体材料候補の中で、酸化亜鉛 (ZnO) はワイドギャップ、励起子結合エネルギーが大きい、など興味深い優れた性質があり、紫外発光素子や透明 TFT など次世代電子デバイス用材料として熱い視線が寄せられている。しかし、一方で p 型伝導制御が極めて困難であるという問題を抱えており、これが実用化への大きな障壁となっている。審査論文では、これを解決するための科学的、技術的議論が展開され、課題解決への途が示された。

まず、すべてに先立って ZnO 薄膜結晶の高品質化が進められ、p 型化への準備が整えられた。薄膜成長にはパルスレーザーデポジション (PLD) 法を用いた。PLD 法はイオン衝撃が少ない、成長種粒子の活性制御が可能などの利点を有し、高品質 ZnO を得るに不可欠なツールである。アプレート粒子のカイネティクスを調査する中で、熱統計パラメータが使用するターゲット材料に大きく依存するという新事実を発見した。この事実に基づき、単結晶 ZnO ターゲットの選択が高品質 ZnO 薄膜結晶の作成につながることを初めて明らかにした。加えてオーロラ (磁場印加) PLD 法では、成長種粒子の活性化の増大が得られることを示し、それが薄膜高品質化へのキーファクターとなっていることも明らかにした。

ZnO の p 型制御という難題に対し、研究を科学的に進めることは必要不可欠である。このために、半経験的分子軌道法である MOPAC を導入し、これにより得られたドーピング指針を実験に反映させた。この結果、数々の重要な知見を得ている。MOPAC バンド計算によって、N 及び Li をそれぞれ p 型化ドーパントの候補として導出した。しかし、実験では N ドープ ZnO 薄膜は n 型を示し、Li ドープ ZnO 薄膜は絶縁膜となった。一つには MOPAC で考慮されない自己補償作用が生じたと考えられる。また Li ドープ薄膜では深いアクセプタ準位が形成されることが濃度補正後の MOPAC 計算より示唆された。これら諸事実を背景に精度を高め、さらに酸素欠損を考慮した現実に一層近い系を対象にした MOPAC バンド計算を実施した。この結果、Li+N 同時ドーピング法が効果的な不純物準位を形成できることを見出した。この提案は直ちに実験的検証に移され、濃度はまだ十分とは言えないが、期待通り ZnO の p 型化を確認するに至った。キャリアタイプ判定はホール効果測定のみならず、ショットキー接合測定も導入され、確実な結果とした。この結果は、Li+N 同時ドーピングによって浅いアクセプタ準位が形成されるとする MOPAC 計算結果を支持すると共に、この系では自己補償作用が大幅に抑制されている可能性を示唆している。最後に、ZnO 半導体のデバイス応用に向けて基礎的な検討がなされた。

以上の内容は酸化物半導体材料の開拓に関する有意義な研究成果であり、今後の同材料実用化に大きな貢献をするものと考えられ、博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。