

論文内容要旨（和文）

2020年度入学 大学院博士後期課程

電子情報工学専攻

氏 名 齋藤 健太郎



論 文 題 目 酸化イットリウム・窒化アルミニウム薄膜の低温形成法に関する研究

電界効果トランジスタのチャネル層として化合物半導体を利用することで、駆動電流の増加や高速動作などの高性能化が期待される。その例として、 InGaZnO_4 をチャネル層とした薄膜トランジスタが挙げられ、これによって大電流駆動能力を有するディスプレイ用の透明トランジスタが実現できる。化合物材料においては、空気や湿気による腐食や不純物拡散を抑える表面保護膜が必要である。従来、酸化アルミニウムが化合物半導体の保護膜として用いられてきたが、同材料は水に潮解し、高温多湿環境下で浸食される問題があった。これに代わる保護膜として、酸化イットリウム (Y_2O_3) や窒化アルミニウム (AlN) が注目されている。これら薄膜は化合物半導体の熱による変質を避けるため、できる限り低温で膜形成をする必要があった。主たる膜形成法である原子層堆積法 (atomic layer deposition : ALD) においてプロセスの最低温度は酸化イットリウムで 150°C であった。また窒化アルミニウムの最低成膜温度は 100°C と報告されていたものの、ダイレクトプラズマによるもので、プラズマダメージが懸念されていた。本研究では上記薄膜をダイレクトプラズマによらない方法で、低温で形成する研究に取り組んだ。また、成膜における表面反応を明らかにすることは、プロセスの制御性を確保するためにも重要であり、本研究では開発した膜形成法における表面反応を明らかにすることも目的とした。

第1章では、上記の研究背景を述べ、他者の製造技術の文献調査をまとめ、研究の目的を示した。また、研究する領域の新規性を議論した。

第2章では、本研究で用いた表面反応の評価方法、低温原子層堆積法の詳細、膜の評価方法、ガスバリア性能評価方法についてまとめた。

第3章では、 80°C での酸化イットリウムの低温成膜プロセスの開発のための、イットリア原料の吸着と酸化反応のその場室温観察結果を示し、そこから反応モデルを提案した。また、表面観察結果から成膜の素プロセスを設計し、膜形成を試みた。成膜した薄膜の化学組成や表面形状を評価し、フレキシブル基板への成膜も実証することで、本技術のフレキシブルエレクトロニクスへの応用可能性を示した。表面反応において単分子層吸着過程に基づくかどうかを、成長速度、薄膜の膜密度評価、計算化学シミュレーションによる分子構造検討をもとに議論を行った。

第4章では、 160°C でのリモートプラズマによる低温窒化アルミニウムの原子層堆積法の研究結果についてまとめた。ここでは、アルミニウム原料の吸着と窒化反応のその場観察結果を示し、反応モデルを表現した。本方法では窒化ガスとしてプラズマ励起アンモニアを用いたが、ガスに含まれる活性種について、またその形成のメカニズムについて不明であった。これらの情報は反応のモデル化やメカニズムの理解のために重要であり、プラズマ発光スペクトルで活性種を明らかにし、その発生量のガス導入量依存性から素反応モデルを提案した。表面反応評価から原子層堆積法における原料導入条件

を検討し、それに基づき、成膜を試み、薄膜の化学組成や表面形状を評価した。単分子層吸着過程による反応か否かについても、成長速度、薄膜の膜密度、計算化学シミュレーションによる分子構造検討をもとに議論を行った。

第5章では、4章で述べた技術で形成した窒化アルミニウムのガスバリア応用について議論を行った。具体的には、フレキシブル基板上に窒化アルミニウムを成膜し、柔軟なバリア膜としての評価を行った。ガスバリア膜を積層構造としたことで、迷路効果によるガスバリア性能の向上を明らかにすることができた。また、窒化アルミニウムを最表面とすることで、潮解性のある酸化アルミニウムを保護することができた。水蒸気透過試験でバリア性能を評価するとともに、水蒸気透過試験前後の表面形態や化学組成の変化から、最表面の窒化アルミニウム膜自体の耐水性を明らかにした。

第6章では本論文における結論をまとめ、開発した技術の有用性について述べた。

本研究の成果は、3報の査読付き英語論文として内容公開されており、また5件の国際会議発表、5件の国内会議発表で議論がされている。

論文内容要旨 (英文)

2020年度入学 大学院博士後期課程

電子情報工学専攻

氏 名 齋藤 健太郎



論 文 題 目

A study on low-temperature depositions of yttrium oxide and aluminum nitride films

Low-temperature depositions of yttrium oxide (Y_2O_3) and aluminum nitride (AlN) are studied in this paper. These films are used as passivation films for compound semiconductors in the electronic devices. To avoid the deterioration of compound semiconductors during the deposition processes, these films need to be deposited at low temperatures near room temperature. In this study, we aimed to achieve the low-temperature depositions of Y_2O_3 at 80 °C and AlN at 150 °C with the gas processing based on the atomic layer deposition. In this study, the reaction mechanisms at the growing surfaces are studied by the *in situ* observation to control the growth thickness with a nanoscale precision.

In chapter 1 of this paper, the background technologies of the passivation films for the compound semiconductor are written, followed by describing the aim of this research.

In chapter 2, we describe the detailed conditions of the experimental methods used in this study.

In chapter 3, we explain the low-temperature deposition of Y_2O_3 using tris(butylcyclopentadienyl) yttrium and plasma-excited humidified argon. From the surface observations by IR absorption spectroscopy, we propose the reaction model. We confirm that the deposited film was in the fully oxidized state.

In chapter 4, we explain the low-temperature atomic layer deposition of AlN using trimethyl aluminum and plasma-excited ammonia. By using the plasma optical spectroscopy, we explain the optimized condition, in which the NH radicals for the nitridation gas are effectively produced. From the dependence of the NH radical density on the gas flow rate, the reaction scheme is discussed. The AlN atomic layer deposition designed based on the *in situ* observation revealed the AlN growth with the nano scale precision. The applicability of the AlN film as the gas barrier film is discussed in chapter 5. The conclusions of this study are written in chapter 6.

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

令和 5 年 1 月 31 日

理 工 学 研 究 科 長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 廣瀬 文彦

副査 久保田 繁

副査 有馬 ボシールアハンマド

副査 木俣 光正



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

論 文 申 請 者	電子情報工学専攻 氏名 齋藤 健太郎		
論 文 題 目	酸化イットリウム・窒化アルミニウム薄膜の低温形成法に関する研究		
学位論文審査結果	合格	論 文 審 査 年 月 日	令和 5 年 1 月 17 日～
			令和 5 年 1 月 31 日
論 文 公 聴 会	令和 5 年 1 月 31 日	場 所	工学部 10 号館 4 階大会議室 (ZOOM 併用)
最 終 試 験 結 果	合格	最 終 試 験 年 月 日	令和 5 年 1 月 31 日

学位論文の審査結果の要旨 (1,000 字程度)

本研究は、酸化イットリウムと窒化アルミニウムの低温形成に関する。酸化イットリウムはInGaZnO系薄膜トランジスタの表面被覆に用いられ、回路のフレキシブル化のため室温に近い低温成膜が求められていた。一方、窒化アルミニウムはAlGaN半導体の保護に用いられ、上記と同じ理由で低温化が必要とされている。本研究では、酸化イットリウム成膜にトリス(ブチルシクロペンタジエニル)イットリウムとプラズマ励起加湿アルゴンを用い、80℃での堆積を実現している。また、窒化アルミニウムではトリメチルアルミニウムとプラズマ励起アンモニアを用い、160℃での成膜を実現し、その応用としてガスバリアの実証に至っている。さらに、表面反応のその場観察を通し、反応モデルの提案に至っている。具体的な内容は次の通りである。

第一章において、化合物半導体での保護膜の役割、低温形成の重要性を論じ、対象となる酸化イットリウムと窒化アルミニウムの原子層堆積技術の研究動向を説明している。それに基づき酸化イットリウムで80℃での成膜、さらに窒化アルミニウムでは表面損傷をさける非ダイレクトプラズマによる160℃成膜の方法の確立を目的としたことが説明されている。第二章では、原子層堆積装置、表面反応のその場観察装置、評価技術について説明されている。第三、第四章ではそれぞれ酸化イットリウムと窒化アルミニウムの表面反応観察によるプロセスデザインと、成膜試験結果、反応モデルについて説明されている。第五章では、窒化アルミニウム膜のガスバリアフィルムとしての実証をまとめている。ここでは、同薄膜を耐水膜として機能させる新規のガスバリア構造を示している。第六章では、本研究の結果を総括し、今後の課題や展望についてまとめている。

本研究の新規性は、これまで低温化が難しかった酸化イットリウムで従来を下回る温度での成膜を達成し、窒化アルミニウムについても非ダイレクトプラズマで最低温成膜を達成したところにある。その場観察に基づくプロセス設計とモデル化は表面科学において薄膜堆積メカニズムを考察する上で貴重な情報である。論文の内容は適切であり、自ら研究を計画・遂行するための専門的知識を基に、研究背景・目的が正しく述べられていた。学位論文の構成は適切で、体裁も整っており、記述が論理的で、設定した研究テーマに沿った明確な結論が述べられていた。本論の実験結果は、査読付き英語論文誌に3報掲載され、国際会議5件でも討論されており、当該専攻の審査基準を十分に満たしている。以上の理由から、学位論文審査は合格とする。本論文では、研究倫理又は利益相反等に係る学内規則に基づく手続きの必要はない。

最終試験の結果の要旨

公聴会での発表後に、論文内容を中心に、当該技術分野である表面科学、半導体プロセス工学に関する質問を行い、その応答と討論をもって試験とした。質問に対して的確に答えており、当該分野の基礎技術を十分に理解できている判断された。また背景となる技術動向についても包括的な理解がされていると判断された。以上の結果をもって、最終試験を合格とした。