

低温プロセスによる高品質酸化亜鉛透明導電膜の成膜装置の開発 (第1報)

萩原 茂・阿部 治・木島 一広・今津 千竹
松本 俊*¹・秋津 哲也*¹・鍋谷 鴨*¹・望月 英昭*²
平木 哲*²・藤川雄一郎*²・増田 泰*²・下玉 利玲*²
安部 瑞樹*²・保坂 聡樹*²・三井 久夫*³・塚原 文仁*³

Development of novel low temperature deposition system for high-quality transparent conductive ZnO films (1st report)

Shigeru HAGIHARA, Osamu ABE, Kazuhiro KIJIMA, Chitake IMAZU
Takashi MATSUMOTO*¹, Tetsuya AKITSU*¹, Youichi NABETANI*¹
Hideaki MOCHIZUKI*², Tetsu HIRAKI*², Yuuichirou FUJIKAWA*²
Yasushi MASUDA*², Akira SHIMOTAMARI*², Mizuki ABE*²
Toshiki HOSAKA*², Hisao MITSUI*³ and Fumihito TSUKAHARA*³

要 約

近年、薄型テレビやノートパソコンの普及が進んでおり、液晶ディスプレイの需要が急増している。液晶ディスプレイの主要な部品である透明導電膜は、稀少金属（インジウム）が使用されており、資源枯渇が懸念されている。本研究では、インジウムを用いない透明導電膜の成膜として、酸化亜鉛に注目した。酸化亜鉛による良質な透明導電膜の成膜プロセスを開発すると共に、低温下での成膜を可能とする装置を開発する。

1. 緒 言

薄型テレビやノートパソコン、携帯電話などが普及し、液晶ディスプレイの需要は益々増加している。液晶ディスプレイに使用される主要な部品に透明導電膜がある。現在、透明導電膜には、酸化インジウムスズ膜が広く用いられている。しかしながら、インジウムは高価のみならず資源枯渇の問題もかかえており、代替材料への転換が急務である。

透明導電膜が形成できる材料として酸化亜鉛が注目されている。酸化亜鉛は、高い光触媒作用があり、紫外線に対応可能な半導体への可能性を持っており発展性が期待できる材料である。本研究では、稀少金属を用いない次世代透明導電膜として、酸化亜鉛膜の高品質成膜技術を確立すると共に、低温下での高速成膜を可能とする装置を開発する。

酸化亜鉛透明導電膜の主な製法は、スパッタリング法、有機金属化学気相（MOCVD）法、スプレー熱分解法である。有機金属化学気相法は、大量のガスが発生することから環境への負荷が大きい。スプレー熱分解法で高品質膜を形成させるためには、基板に対して550℃程度の加熱が必

要であり、低温下でのプロセスではできない。これらの欠点を補う方法として、レーザーデポジション法やイオンプレーティング法が研究されている。レーザーデポジション法は、高出力レーザーを使用することから成膜コストが高くなりやすく、発生する有毒ガスの処理が必要である。イオンプレーティング法では、プラズマ発生源の消耗が大きな課題である。

本研究で開発する装置は、酸素プラズマで効率よく発生させた原子状酸素ラジカルと亜鉛蒸気を反応させて、基板上に酸化亜鉛透明導電膜を成膜する原理を用いる。本原理により、従来製法のデメリットを払拭し、省エネかつ低コストで酸化亜鉛透明薄膜の大量生産を可能とする成膜装置を開発する。

平成16年度では、(1) 高活性酸素ラジカル源の開発、(2) 低温成膜プロセスの要素研究、(3) 成膜装置の設計・開発を行った。

2. 研究開発の内容と成果

2-1 高活性酸素ラジカル源の開発

酸素ラジカルの量を増やすためにプラズマ励起電力を大きくすると、効率が低下するだけでなく高エネルギー電子やイオンによるプラズマ損傷が成膜の劣化を引き起こす結

*1 独立大学法人 山梨大学

*2 株式会社 中家製作所

*3 有限会社 塚原製作所

果となる。本研究では、容量結合型高周波グロー放電技術を活用し、酸素プラズマ閉じこめ容器の中で高効率な酸素ラジカルを発生させ、高密度な中性酸素ラジカルのみを成膜空間に噴出させる。

本研究では、高活性酸素ラジカル源の開発を行うが、平成16年度では、活性酸素を生成するプラズマセル形状の最適化およびプラズマセルの試作と評価を行った。

プラズマセル形状の最適化では、コンピュータ解析によりプラズマ発生領域のシミュレーションを行い、形状と大きさの最適化を実施した。さらに、電極付近の電場シミュレーションを行い、高周波電極位置の最適化を実施した。コンピュータ解析を活用した最適化設計により、短期間での設計が可能となった。

プラズマセルを試作し、既存の小型チャンバー内で酸素プラズマを発生させる実験を行い、性能を評価した結果、実用に供する機能性があることを確認した。

2-2 低温成膜プロセスの要素研究

本研究で開発する装置は、酸素プラズマで効率よく発生させた原子状酸素ラジカルとるつぼによる加熱によって発生した亜鉛蒸気を反応させて、基板上に酸化亜鉛透明導電膜を成膜する原理を用いる。本手法では、活性な酸素ラジカルの高い反応性を利用して酸化亜鉛を合成するので、酸素と亜鉛を反応させるのに必要なエネルギーを基板から熱エネルギーとして与える必要がないと考えられる。従って、基板加熱が不要であり、常温での成膜プロセスとなる可能性がある。

本手法による成膜プロセスの性能を確認するために、既存の小型チャンバーを用いて実験を行った。基板としてサファイア、ガラスを用いた。基板の温度をいろいろに変えながら、成膜した。ガラス基板に成膜した例を図1に示す。成膜温度は、知的財産管理に触れるので、ここでは、T1からT8およびT_aからT_eで示した。成膜したガラス基板の光透過率を計測した結果を図2に示す。可視光波長の範囲で、良好な光透過率を示した。

ガラス基板およびサファイア基板に成膜した透明導電膜の電気抵抗を測定した結果を図3に示す。元素濃度の制御が不完全であるために成膜温度により抵抗値のばらつきはあるが、成膜プロセスを最適な元素濃度に保持する制御を行うことにより、電気抵抗を更に下げることが可能と考えられる。平成17年度では、元素濃度を精密に制御可能な試作装置を用いて検証を行う計画である。

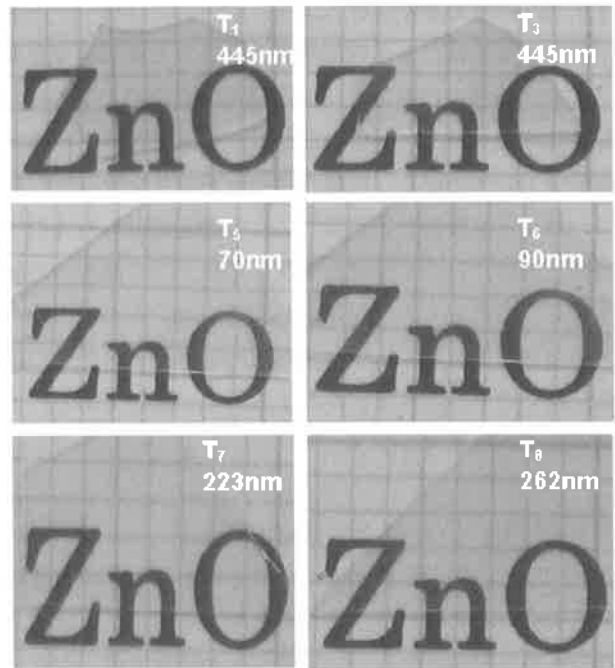


図1 透明導電膜を成膜したガラス基板

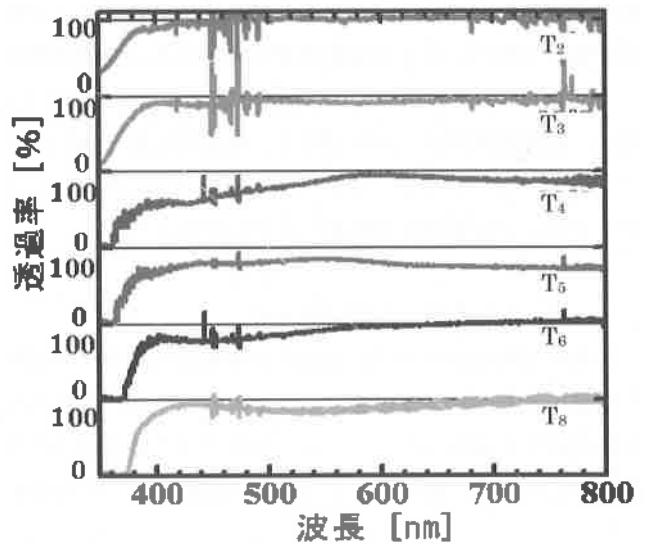


図2 成膜したガラス基板の光透過率

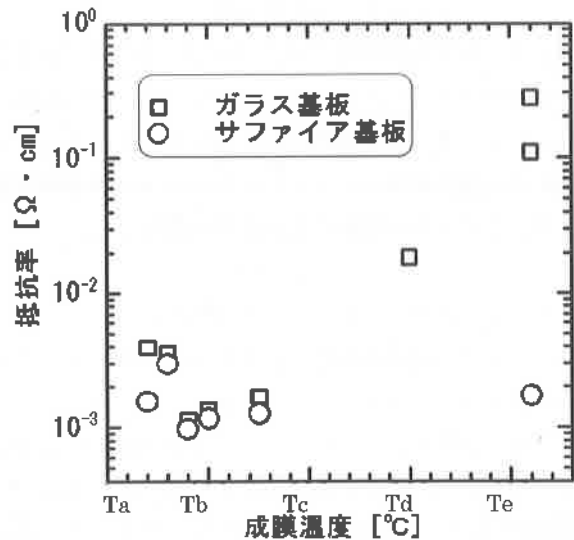


図3 透明導電膜の電気抵抗

2-3 成膜装置の設計と試作

平成16年度では、高活性酸素ラジカルと亜鉛蒸気を反応させて、基板上に酸化亜鉛透明導電膜を成膜する装置の設計と試作を行った。装置の設計は、コンピュータ解析と光造形を大いに活用し、短期間で最適設計を行った。

コンピュータ解析と光造形により最適設計を行った主な開発項目は、(1) るつぼの形状最適化、(2) 基板への輻射熱対策、(3) シャッターの耐熱設計、(4) るつぼセルベースの冷却対策、(5) るつぼ測温用熱電対シース長さの最適化、(6) チャンバーモデルによる構造の検討である。その内容について述べる。

2-3-1 るつぼの形状最適化

るつぼは、内部の金属元素が加熱されることにより金属蒸気を効率よく発生させ、高品質な酸化亜鉛膜を成膜するための重要な部品である。コンピュータ解析では、少ないエネルギーで十分な加熱が可能となるよう、るつぼに輻射板を設けるなどの対策を施すと共に、るつぼの大きさや厚さを変えながら、上下の温度差が十分に小さくなる形状をシミュレーションにより求め、最適となる形状を決定した。また、最適形状のモデルを試作し、昇温度実験を行い、シミュレーションとはほぼ一致した温度分布が得られ、シミュレーションの信頼性を再確認することができた。

2-3-2 基板への輻射熱対策

基板の温度不均一さは、高品質な導電膜の形成に悪影響を及ぼすことが判っている。るつぼの輻射熱が、基板へ与える熱影響を解析した。るつぼと基板との距離や基板の放熱対策を検討し、輻射熱による基板の温度不均一性を解消した。

2-3-3 シャッターの耐熱設計

シャッターの回転可動部には、ゴムパッキングによるシール対策が施されている。しかしながら、るつぼの輻射熱により、シャッター幕が加熱され、熱伝導による熱でゴムが破損する可能性がある。そこで、シャッターの熱解析を行い、熱によるゴムの破損がない構造を開発した。

2-3-4 るつぼセルベースの冷却対策

高温になるるつぼの放射熱を少ないスペースと少量の水により冷却するるつぼセルベースを開発した。セルベースを流れる水の状態をシミュレーションにより解析すると共に、水冷却による内壁面の温度特性を確認した。水流の解析例を図4に示す。光造形モデルを作り、実験による検証も並行して行った。(図5)

2-3-5 るつぼ測温用熱電対シース長さの最適化

るつぼの加熱温度を正確に計測するため、るつぼ側面に2個の熱電対を設ける。熱電対のシースは、ゴムパッキングを用いてシールされるため、最適なシース長さをコンピュータ解析により求めた。

2-3-6 チャンバーモデルによる構造の検討

本研究で試作した成膜装置は、成膜プロセスを開発するために、質量分析装置、膜厚計、分光器などが装備され、非常に込み入った構造である。そこで、光造形により縮小モデルを作成し、それぞれの計器類が干渉しないかどうかやスペースを有効に活用する様に見ながら検討を行った。光造形モデルを図6に示す。

さらに、チャンバーを冷却する水路配管の検討や熱伝導を調べ、設計検討を行った。チャンバーの温度分布例を図7に示す。

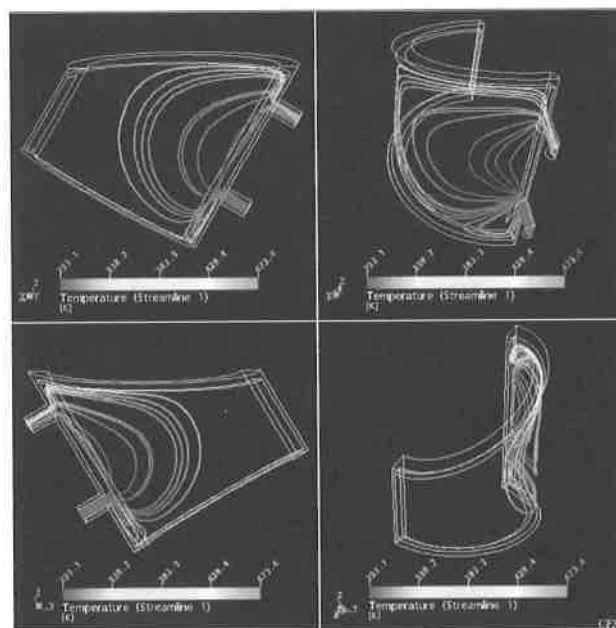


図4 流体シミュレーション例

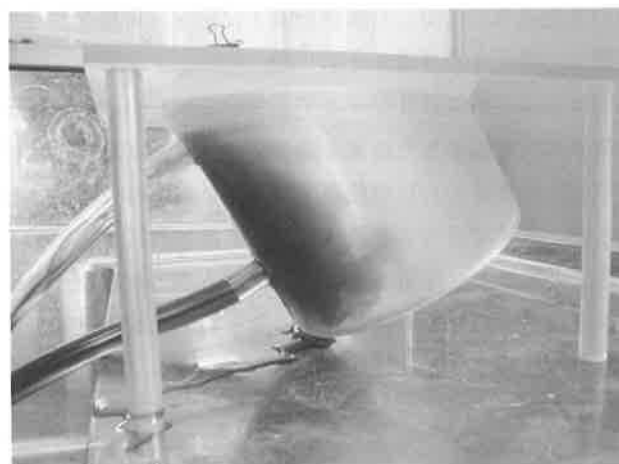


図5 光造形モデルを用いた流水実験

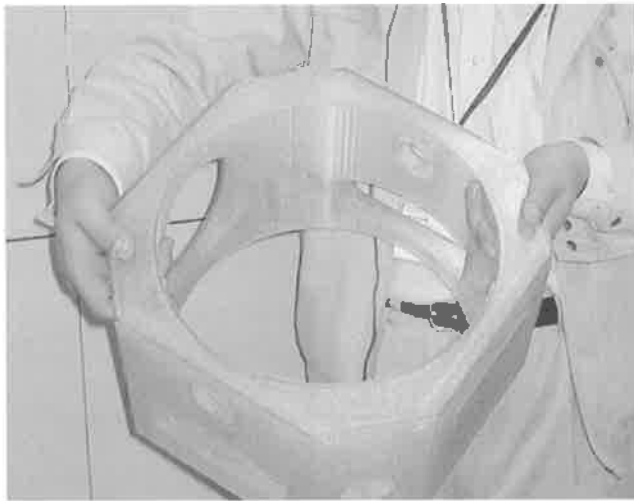


図6 チャンバーの光造形モデル

試作装置が完成した。今後は、低温かつ高速な成膜プロセスを開発すると共に生成膜の分析と評価を行い、生産用プロトタイプの開発を行う計画である。

4. 結 言

本研究開発は、関東経済産業局平成16年度地域新生コンソーシアム研究開発事業で実施した。この事業は、平成17年度も引き続き実施し、2年間で研究開発を実施する予定である。

参考文献

- 1) 尾鍋史彦他：電子ペーパー実用化最前線、NTSp29 (2005)
- 2) 金原繁他：薄膜作製ハンドブック、共立出版 p223 (1994)
- 3) 権田俊一：薄膜製作応用ハンドブック、NTS p952 (1995)

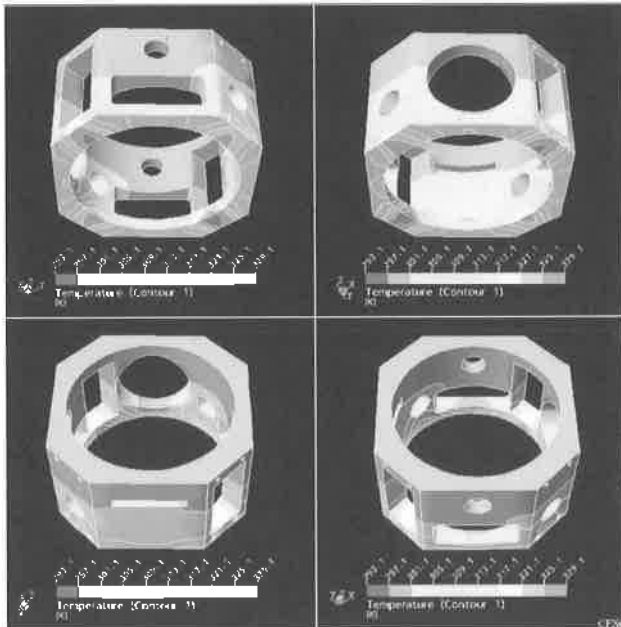


図7 シミュレーションによるチャンバーの温度分布

3. 考 察

高活性酸素ラジカルを発生するプラズマセルをコンピュータ解析を活用して開発した。短期間での開発が行え、良好な性能が得られた。プラズマセルは、試作装置に組み込み、平成17年度では、酸化亜鉛透明導電膜の成膜に使用する。

新方式の成膜プロセスを開発し、ガラスやサファイアの基板に成膜を行った。光透過率は、ほぼ良好な特性を示した。従来装置による実験では、電気伝導率は十分な性能が得られず、精密な元素濃度の制御が必要であることが判った。本研究で新たに開発した装置は、精密な元素濃度の制御が可能であり、課題が解消されると考えられる。

流体シミュレーション、熱伝導解析、電場解析および光造形を十分に活用して、短期間に成膜装置の設計を行い、