

機関番号：14401

研究種目：若手研究（S）

研究期間：2008～2012

課題番号：20676003

研究課題名（和文） 大気圧プラズマによるプラスチックフィルム上薄膜デバイスの高能率
作製技術の開発研究課題名（英文） Development of highly efficient fabrication process of thin film
devices on plastic materials using atmospheric-pressure plasma

研究代表者

垣内 弘章 (KAKIUCHI HIROAKI)

大阪大学・工学研究科・准教授

研究者番号：10233660

研究分野：ものづくり技術

科研費の分科・細目：機械工学（分科）、生産工学・加工学（細目）

キーワード：大気圧プラズマ、低温・高速成膜、電子・電気材料、薄膜トランジスタ

1. 研究計画の概要

近年、大気圧プラズマは、減圧プラズマに代わるプラズマ源として注目され、その成膜プロセスへの応用に関する活発な研究が行われている。本研究は、大気圧プラズマを用いた成膜で一般に問題となる基板のダスト汚染を克服することによって Si およびその化合物の低温高速高品質成膜プロセスを確立し、プラスチックフィルム上への TFT 等の高性能薄膜デバイスの実証を目指す。

2. 研究の進捗状況

(1) 電極システムの開発

まず、大気圧プラズマを用いた低温・高速・ダストフリー成膜プロセスを実現する上で最も重要な電極システムの開発を行った。

mc-Si の低温・高速成膜のために開発した多孔質カーボン電極システムは、ガスの局所的吸引機構を備えており、汎用熱流体解析ソフト PHOENICS を活用した吸引口形状最適化の結果、ダストを完全に吸引除去できることが示された。ただし、本電極システムを用いて成膜した *mc*-Si を用いた TFT や薄膜 Si 太陽電池の試作検討の結果、多孔質カーボン電極はデバイス品質 *mc*-Si の低温・高速成膜には向かないと判断された。この結果を受け、新たに平行平板型電極の開発に着手している。SiO₂ および SiN_x の成膜においても、同構造の電極システムの活用が有効である。

(2) *mc*-Si の低温・高速成膜

開発した多孔質カーボン電極を用いた検討の結果、基板温度 220℃では、基板界面から直接結晶化した *mc*-Si 薄膜が安定して得られた。また、成膜温度を 90℃まで低温化しても、十分な電力を供給すれば結晶化度を維持できることが確認できた。膜厚および結晶性

の均一性は良好であり、成膜速度も最大で 15 nm/s を得た。さらに、厚さ 0.125 mm の PEN フィルム上に *mc*-Si 薄膜を 2.5 nm/s の成膜速度で形成することにも成功した。結果的に多孔質カーボン電極ではデバイス品質 *mc*-Si の高速成膜が困難であったが、新たに開発している平行平板型電極による検討の結果、完全パーティクルフリー成膜はもちろん、高品質 *mc*-Si の成膜実現の見通しも得られている。

(3) SiO₂ および SiN_x の低温・高速成膜

既に開発済みの高速回転電極を用いて成膜研究を行った。まず SiO₂ については、基板加熱無しでパーティクルフリー SiO₂ の高速成膜（成膜速度：50～100 nm/s）を達成するとともに、ポリカーボネート基板に熱的ダメージを与えずに SiO₂ をコーティングすることに成功した。SiN_x に関しては、経時劣化の無い緻密な膜を基板加熱無しで、しかも 100 nm/s 以上の非常に速い成膜速度で形成することに成功した。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

(理由)

当初の目標として研究期間内に明らかにしようとしていたことは、①成膜プロセスにおけるダスト発生問題を完全に解消することが可能な電極システムを新規に開発すること、②開発した電極システムを用い、常温～100℃での *mc*-Si、SiO₂、SiN_x の高速高品質成膜を実現すること、そして③実験レベルでプラスチックフィルム上への高性能な TFT を実証すること、の3点である。

昨年度までの研究実施によって多孔質カーボン電極および平行平板型電極を開発し、それらを用いた成膜検討を行った。その結果、

ダストフリー成膜が実証され、①の目標はほぼ100%達成したと考える。

次に目標②については、達成度70%と自己評価する。まず *mc*-Si に関しては、基板温度90°Cにおいて結晶化度70%程度の *mc*-Si 薄膜を2.5nm/sの成膜速度で成膜できること、および厚さ0.125mmのPENフィルム基板に熱的ダメージを与えることなく *mc*-Si を成膜できることを示した。SiN_xに関しては、緻密性や構造安定性に優れたSiN_x薄膜を、常温にも関わらず100nm/s以上の成膜速度で形成できることを示した。また、SiO₂に関しても、常温にも関わらず50~100nm/sという高速でSiO₂薄膜を形成でき、さらに、代表的なプラスチック材料であるポリカーボネート基板表面に成膜を試みた結果、基板に熱的ダメージを与えることなく機械的強度の良好なSiO₂コーティングを実証した。ただし、開発した多孔質カーボン電極システムがデバイス品質 *mc*-Si 成膜に適していないことが判明し、平行平板型電極システムの新規開発が必要となった。これは当初計画から考えれば想定外であるが、大気圧プラズマによる成膜プロセスの実用化の鍵を握る電極開発の過程で明らかになったことであり、特段の問題とは考えていない。開発中の平行平板型電極システムは、*mc*-Si だけでなく、SiO₂やSiN_xの成膜にも活用できるメリットがあるし、電極のガス供給特性上、成膜パラメータと成長膜の構造・特性の相関が考察しやすく、結果として本研究の目標達成にプラスに働くと考える。

最後に③のデバイス実証については、Si成膜に用いた多孔質カーボン電極の問題により、現時点ではSi基板上においてさえ十分な成果が得られていない。今後、多孔質カーボン電極の問題点を解消した平行平板型電極システムを用い、改めて目標達成を目指す。

以上より、本研究は、当初計画したスケジュール通りとまではいえないものの、大気圧プラズマを用いた高性能成膜プロセスを実現する上で致命的なダスト問題を克服するとともに、プラスチック基板に熱的ダメージを与えることなく *mc*-Si およびSiO₂を成膜することに成功し、概ね順調に目標達成に向かって進んでいるものと考えている。

4. 今後の研究の推進方策

開発中の平行平板型電極システムを用い、100°C以下でも高性能デバイス作製が可能な高品質 *mc*-Si の高速成膜条件を明らかにする。

一方、SiO₂およびSiN_xについても *mc*-Si 成膜と同様の電極システムを用い、プラスチック基板上へのSiO₂やSiN_xの低温・高速・高品質成膜を実現する。

以上の結果を総合し、最終的にPENフィルム等のプラスチック基材上へのTFTや薄膜Si太陽電池の実証を目指す。

5. 代表的な研究成果

〔雑誌論文〕(計8件)

① H. Kakiuchi, H. Ohmi, K. Nakamura, Y. Yamaguchi, and K. Yasutake, Room-Temperature Silicon Nitrides Prepared with Very High Rates (>50 nm/s) in Atmospheric-Pressure Very High-Frequency Plasma, *Plasma Chem. Plasma Process.* **30**, pp. 579-590 (2010). 【査読有】

② H. Kakiuchi, H. Ohmi, Y. Yamaguchi, K. Nakamura, and K. Yasutake, Low refractive index silicon oxide coatings at room temperature using atmospheric-pressure very high-frequency plasma, *Thin Solid Films* **519**, pp. 258-262 (2010). 【査読有】

③ H. Kakiuchi, H. Ohmi, K. Ouchi, K. Tabuchi, and K. Yasutake, Microcrystalline Si films grown at low temperatures (90-220°C) with high rates in atmospheric-pressure VHF plasma, *J. Appl. Phys.* **106**, pp. 013521 1-6 (2009). 【査読有】

〔学会発表〕(計26件)

① H. Kakiuchi, H. Ohmi, and K. Yasutake, Atmospheric-Pressure Plasma Technology for the High-Rate and Low-Temperature Deposition of Si Thin Films (招待講演), 32nd International Symposium on Dry Process (2010年11月11日, 東京工業大学)

② H. Kakiuchi, H. Ohmi, and K. Yasutake, Room-Temperature Deposition of Silicon Nitride Films with Very High Rates Using Atmospheric-Pressure Plasma Chemical Vapor Deposition, 63rd Gaseous Electronics Conference & 7th International Conference on Reactive Plasmas (2010年10月5日, Paris, France)

〔図書〕(計6件)

① 垣内弘章, 大参宏昌, 安武 潔, フィルムコーティングのための大気圧・超高周波プラズマ技術, (株)加工技術研究会, 新コーティングのすべて, pp. 294-298 (2009年発行, 総ページ数639ページ)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計2件)

①

名称: 成膜装置

発明者: 柴田哲司, 平井孝彦, 垣内弘章, 安武 潔

権利者: パナソニック電工(株)

種類: 特許権

番号: 特願2010-070769

出願年月日: 平成22年3月25日

国内外の別: 国内