

FPD用ガリウム添加酸化亜鉛透明導電膜の 低温成膜装置の開発 (第1報)

萩原 茂・木島 一広・阿部 治・八代 浩二・松本 俊*¹
秋津 哲也*¹・鍋谷 暢*¹・村中 司*¹・望月 英昭*²・平木 哲*²
藤川雄一郎*²・深沢 明広*²・下玉利 玲*²・古川 英明*²・清水 勝*²
岡田 智視*²・塚原 文仁*³・三井 久夫*³

Development of novel low temperature deposition system for transparent conductive Ga-doped zinc oxide films to apply for flat panel displays (1st report)

Shigeru HAGIHARA, Kazuhiro KIJIMA, Osamu ABE, Koji YATSUSHIRO, Takashi MATSUMOTO*¹,
Tetsuya AKITSU*¹, Yoichi NABETANI*¹, Tsutomu MURANAKA*¹, Hideaki MOCHIZUKI*², Tetsu HIRAKI*²,
Yuichiro FUJIKAWA*², Akihiro FUKASAWA*², Akira SHIMOTAMARI*², Hideaki FURUKAWA*²,
Masaru SHIMIZU*², Tomoji OKADA*², Fumihito TSUKAHARA*³, and Hisao MITSUI*³

要 約

フラットパネルディスプレイに使用される透明導電膜には、酸化インジウムスズ膜が広く用いられているが、インジウムは高価のみならず資源枯渇の問題をかかえている。本研究開発では、ガリウム添加酸化亜鉛膜を採用し、フラットパネルディスプレイに適用可能な低温成膜装置を開発する。平成18年度では、50V型基板への成膜を目標として短辺長(約62cm)サイズ幅の試験用基板において均一な成膜を行うための基礎実験用成膜装置を設計・試作した。特に今回は、成膜基板ホルダーと原料供給装置の最適化設計を行った。

Abstract

Indium tin oxide (ITO) films are widely used as transparent conductive films for liquid crystal display panels and so on. However, it becomes necessary to replace indium with other materials because we have a problem that indium is expensive and will be short in the near future. In our development, we adopted Ga-doped zinc oxide (GZO) films instead of ITO films and will develop novel low temperature deposition system for transparent conductive GZO films to apply for flat panel displays (FPD). In this year period, we aimed to deposit GZO on 50V-inches board and developed deposition system for basic experiments to deposit GZO uniformly on board whose width is equal to shorter length of 50V-inches board (about 62cm). Especially we optimized design of board holder and materials supply device.

1. 緒 言

液晶テレビ、プラズマテレビおよびパソコン用ディスプレイなどに使用されているフラットパネルディスプレイ (FPD) に不可欠な要素部品として透明導電膜がある。液晶ディスプレイは、電圧の印加により液晶分子の配向状態を変化させ、それに伴う光学特性の変化を利用して画像などを表示するデバイスであるが、液晶分子に電圧

を印加するための電極として、透明導電膜が用いられている¹⁾。現在、透明導電膜には酸化インジウムスズ (ITO) 膜が広く用いられているが、インジウムは高価のみならず資源枯渇の問題をかかえており、他材料への転換が急務である。現在のITO成膜技術はスパッタリング法が主流であるが²⁾、成膜工程が複雑であるため、生産性、生産コストが問題となっている。

ITO膜に代わる透明導電膜として、資源が豊富であり、安価かつ優れた性能を持つガリウム添加酸化亜鉛 (GZO) 膜の実用化を目指す研究が進められている。GZO膜の成膜法は、主なものとしてスパッタリング法、

*1 国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

有機金属化学気相 (MOCVD) 法およびスプレー熱分解法などが知られているが³⁾、電気抵抗率の不均一性、大量の廃ガスによる環境負荷、高い成膜温度が必要などの問題がある。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反応性プラズマ蒸着法などが研究されているが、これらの方法も高い技術コスト、有毒ガスの使用、大きな運転電力などの問題をかかえており、実用化には至っていない。

これらの問題を解決するために平成16、17年度に地域新生コンソーシアム研究開発事業「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」の中で100mm×100mmサイズの基板に100℃以下の低温下で、市販のITO膜とほぼ同等の性能を持つGZO膜を成膜する技術を開発^{4) 5)}した。得られたGZO膜の性能は、可視光透過率80%以上、電気抵抗率 $2 \times 10^{-4} \Omega \text{cm}$ である。本研究は、これら成果を基にしてFPD用50V型サイズ基板(以下、50V型基板と略記する。)に適用させ、省資源・省エネルギーでありながら高品質なGZO膜を得る低温成膜装置を開発する。

本研究で開発する成膜装置の原理図を図1に示す。亜鉛とガリウムの加熱蒸発装置および酸素原子ラジカル源となる酸素プラズマ発生装置が独立して成膜容器内に設置される構造となっている。酸素プラズマ発生装置では、外部から流量を精密に制御した酸素ガスに容量結合型電極を介して高周波電力を供給し、高周波グロー放電⁶⁾を行い酸素原子ラジカルを発生させる。酸素原子ラジカルは細孔を通して成膜空間に均一に噴出し、基板に達する。亜鉛原料とガリウム原料はそれぞれ最適な蒸気圧で蒸発する温度に精密に加熱制御され、成膜空間に均一な亜鉛蒸気とガリウム蒸気を噴出する。その結果、基板表面で酸素原子ラジカル、亜鉛原子、ガリウム原子が反応しGZO膜が堆積する。各原料元素を独立して供給する⁷⁾ので、高精度な成膜が可能となる。

本装置の実用化に向けた課題は、FPD用の大型基板に対して均一に高品質GZO膜を成膜する技術の開発である。

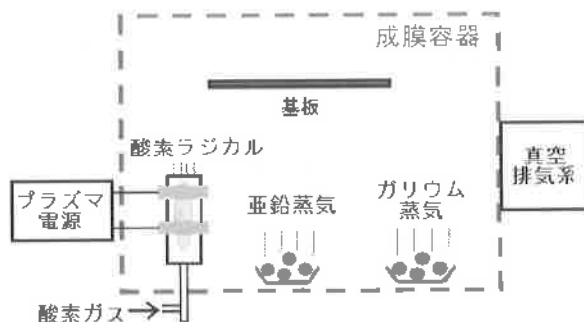


図1 GZO低温成膜装置の原理図

そこで、二つの開発ステップを設けてスケジュールを立てている。第一ステップでは50V型基板の短辺長(約62cm)サイズ幅の試験用基板において均一な成膜を可能とする成膜装置を開発する。第二ステップは、長辺長(約110cm)サイズ幅の試験用基板において均一な成膜を可能とする成膜装置を開発する。現在第一ステップを実施しており、平成20年度での50V型基板用成膜装置の開発を目指している。

本研究は、平成18年度戦略的基盤技術高度化支援事業により、産学官の共同研究として実施した。当センターでは、成膜装置の主要部品である成膜基板ホルダーと原料供給装置について、均一な成膜を可能にするための最適化設計をコンピュータシミュレーション(以下シミュレーションと略記する。)により行った。そこで、本稿では、主にシミュレーションによる最適化設計について述べる。

2. 実験方法

2-1 成膜基板ホルダーの最適化設計

基板表面に生ずる温度差は、結晶の成長状態に変化を与えることから抵抗値や透明度などに不均一な分布を生じさせる。実験基板において、均一な成膜を可能にするためには、基板表面の温度差を十分に小さくする必要がある。しかし、原料供給源からの放射熱や基板ホルダーの支持部分の熱伝導などで温度差が生じ、そのままでは、基板表面に均一な温度分布を得ることはできない。そこで、基板ホルダーに電熱線を設け、均一な温度分布となるように温度制御を行うと共に、基板と基板ホルダーを密着させることにより基板表面の温度を均一に保つ方法を考案した。

基板ホルダーの温度制御により、十分に均一な温度分布が得られるかどうか、シミュレーションにより確認することとした。シミュレーションには、ANSYS10.0(サイバネットシステム)を使用し、3次元熱解析を行った。解析に使用した諸条件を表1に示す。

表1 解析に使用した材料の物性値

	基板 (材料A)	基板ホルダー (材料B)	基板支持台 (材料C)
密度 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	2520	7920	2680
熱伝導率 ($\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)	1.03~1.17	15.9~28.1	138
比熱 ($\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)	800~1070	511~641	963

2-2 原料供給装置の最適化設計

原料供給装置は酸素プラズマ発生源、亜鉛原子発生源およびガリウム原子発生源により構成される。いずれの

発生源も基板全体にわたって均一に原料原子が供給される構造でなければならない。そこで、シミュレーションを用いて各発生源の形状や温度分布を評価しながら、均一な分布で原料原子を放出可能となる最適化設計をする必要がある。本研究では、加熱温度が高く温度制御が難しい亜鉛坩堝の最適化設計に取り組んだ。亜鉛坩堝の設計にはNX3.0（電通国際情報サービス）を使用して3次元ソリッドモデルによるデータを作成した。シミュレーションは、このソリッドデータを用いてANSYS10.0による3次元熱解析を行った。坩堝は、表1中の材料Bを使用した。高温に加熱された状態での材料Bの輻射率を得ることができなかったので、一般的な値と仮定して0.4、0.6および0.9の場合についてシミュレーションを行った。

3. 結果と考察

3-1 成膜基板ホルダーの最適化設計

実験基板表面が均一な温度分布となる基板ホルダーの設計を行った。原料放射源からの輻射熱、基板ホルダーの支持部分の熱伝導を考慮した初期段階における基板表面温度のシミュレーション結果を図2に示す。基板の中央部分は、原料放射源の輻射熱により温度が大きく上昇した。また、支持部分が取り付けられている四隅は、低い温度となった。そこで、温度が低くなる部分では、ヒータによる加熱を行うと共に、支持部分の改良を施す設計変更を行い、シミュレーションによる評価・検討を繰り返すことで、均一な温度分布を得ることができた。得られたシミュレーション結果を図3に示す。シミュレーションを取り入れた設計開発により、基板表面の温度差を0.5%以下に小さく抑えることができた。

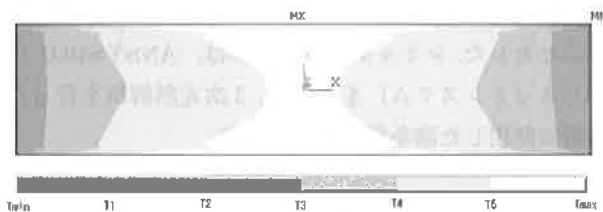


図2 基板加熱保持台のシミュレーション例(最適化設計前)

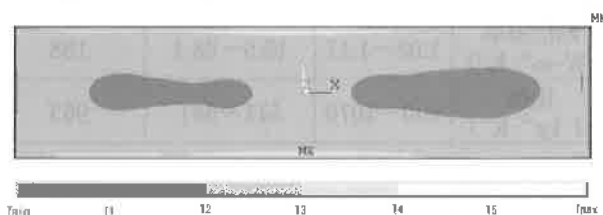
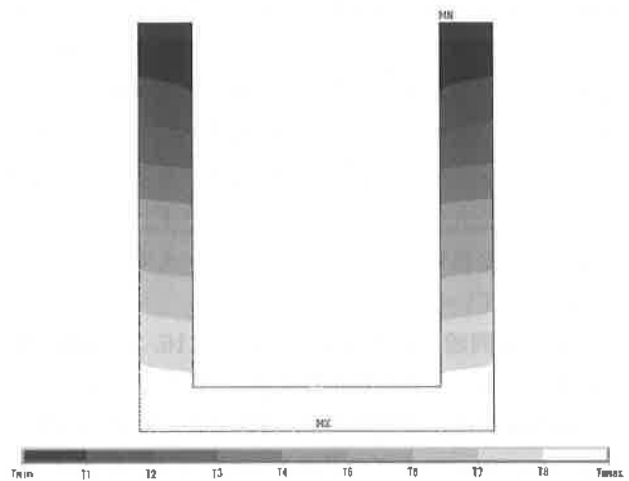
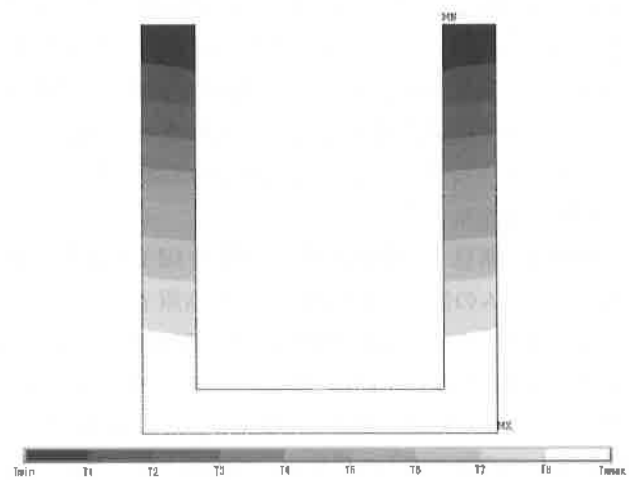


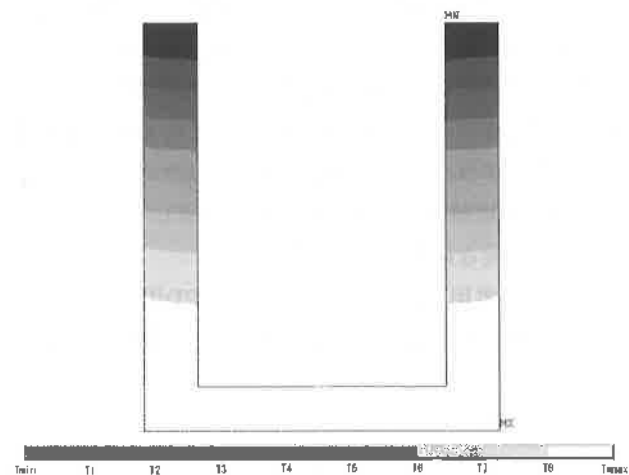
図3 基板加熱保持台のシミュレーション例(最適化設計後)



①輻射率0.4の場合のシミュレーション結果



②輻射率0.6の場合のシミュレーション結果



③輻射率0.9の場合のシミュレーション結果

図4 亜鉛坩堝の温度分布

3-2 原料供給装置の最適化設計

安定した放出量で亜鉛原子を供給するためには、坩堝内壁の温度分布を均一にさせる必要がある。加熱方法を検討すると共にシミュレーションを用いて評価を行いながら改良を繰り返した。最終的に得られた加熱方法でのシミュレーション結果を図4に示す。輻射率が0.4、0.6、

表2 輻射率の違いによる坩堝内壁の温度差

輻射率	0.4	0.6	0.9
温度差 (K)	12.372	16.949	19.906

0.9の順に坩堝内壁の温度勾配が僅かに大きくなる傾向が見られたが、各輻射率とも温度分布の不均一さは見られなかった。輻射率の違いによる坩堝内壁の最高温度と最低温度の差を表2に示す。輻射率が0.9の場合が、最も大きい温度差を示したが、坩堝内壁の温度分布が均一であることから、亜鉛原子の安定放出が可能であると考えられる。

4. 結 言

原料供給装置および基板加熱保持台はシミュレーションを活用して最適化設計することにより、短時間で基礎実験用成膜装置の製作ができた。平成19年度では、本装置による成膜実験を行い、膜の性能分析と評価および成膜条件の最適化を行う計画である。その結果を踏まえて、50V型基板の成膜が可能な実用成膜装置の開発を行う。

本研究により開発する成膜装置は、独自開発した低温プロセス技術を活用しており、基板温度を100℃以下に保持したままでの成膜が可能である。低温プロセスは、本研究の目標とするガラス基板などの耐熱性材料だけでなく、プラスチック等の非耐熱性素材へのGZO膜の高品質成膜も可能である。プラスチック基板への成膜が可能になることで、電子的に書き換え可能な電子ペーパーへの利用が期待できる。

参考文献

- 1) オプトロニクス社編集部：キーワード解説光技術総合辞典，オプトロニクス社，p.37,237-238 (2004)
- 2) 権田俊一：薄膜製作応用ハンドブック，エヌ・ティー・エス，p.1032-1038 (1995)
- 3) 光機能材料マニュアル編集幹事会：光機能材料マニュアル，オプトロニクス社，p.347-348 (1997)
- 4) 萩原茂他：山梨県工業技術センター研究報告，No.19, p.120-123 (2005)
- 5) 萩原茂他：山梨県工業技術センター研究報告，No.20, p.92-95 (2006)
- 6) T.Matsumoto et al. : p-type doping of ZnSe with a novel nitrogen exciter, J.Cryst.Growth, vol.138, p.403-407 (1994)
- 7) T.Matsumoto et al. : Plasma assisted MBE growth and characterization of hexagonal ZnO on GaAs (111) substrates, Proceedings of 1st Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors, p.153-156 (2003)