

## 研究成果（小テーマにつき 2 ページ以内でまとめてください）

<p>サブテーマ名：3 次世代透明導電膜技術の開発 小テーマ名：3-1 次世代透明導電膜技術の開発</p>
<p>サブテマリーダー（所属、役職、氏名） 高知工科大学 総合研究所 教授 山本 哲也</p> <p>研究従事者（所属、役職、氏名） 高知工科大学 総合研究所 准教授 牧野 久雄 高知工科大学 総合研究所 助手 三宅 亜紀 高知工科大学 総合研究所 助手 山田 高寛 ニッポン高度紙工業（株） 川澤 直也 高知工科大学大学院 工学研究科 大学院生 有光 徹紘（研究補助員） 高知工科大学大学院 工学研究科 大学院生 森實 敏之（研究補助員）</p>
<p>研究の概要、新規性及び目標</p> <p>研究の概要 酸化亜鉛（ZnO）を基材とした液晶表示装置（LCD）などを用途とする透明導電膜の研究を行なう。具体的には、基礎的研究項目として、低抵抗率（<math>10^{-5}</math> cm 台への実現）を目標とする。実用化研究項目では以下の 4 つを研究項目とする。（1）膜厚 100 - 150 nm 前後で、シート抵抗 5 - 30 /Sq.以下、膜厚 50-100 nm で、シート抵抗 100 - 150 /Sq.以下、（2）可視光領域での平均透過率 80 % 以上、波長 550 nm で、透過率最高となるような膜厚制御、（3）250 、3 時間の条件下で、抵抗率変動 15 % 以内、（4）製膜装置の製膜高速化と表面平均粗さ 1.2 nm 以下。</p> <p>研究の独自性・新規性 スパッタ製膜法においては、製膜速度が遅い、抵抗率の低下が困難、表面が粗い、といった問題がこれまであり、解決できない状態である（現在、なお、そのような状態である）。 本テーマでは、LCD への応用を睨み、カラーフィルタ側の共通電極応用を目指すべく、従来のスパッタ製膜法より、製膜速度が 3 倍から 5 倍速いイオンプレーティング法の開発を行ない、達成した。製膜の原理が、スパッタではなく、昇華を用いたことが独自であり、新規性がある。また薄膜が高透過率（小さい屈折率）でありながら、緻密性を伴う結果として導電性が高い、といった新規性を有する。</p> <p>研究の目標（フェーズ毎に数値目標等をあげ、具体的に） フェーズ 1：イオンプレーティング装置の開発、製膜パラメータの基本データ作成 ・前半は、イオンプレーティング法製膜装置の開発を中心に行なう。 ・後半は、基板静止製膜法と基板搬送法とにおける薄膜性能の共通点・相違点の解明を行なう。製膜パラメータとして、プラズマ銃におけるアルゴン（Ar）流量、酸素ガス流量、基板温度、搬送速度、放電電流の 5 つを対象に、薄膜性能に与える影響の度合いの大小を解明する。加えて、その知見をもとに、薄膜の膜厚と薄膜性能との関係、および成長機構の解明を行なう。膜厚 30 nm で、抵抗率 <math>8.9 \times 10^{-4}</math> cm、膜厚 200 nm で、抵抗率 <math>2.7 \times 10^{-4}</math> cm なる結果を得た。</p> <p>フェーズ 2：前半、上記 1 における研究項目（1）および（2）、後半は（3）、（4）。 ・まずは、電気特性・光学特性における目標達成を優先する。その後、実際の生産ラインを睨み、生産ライン中で、一番過酷な環境での耐性向上を目標とする。最終では、装置のメンテナンスの整備事項など、整理を行なうとともに、表面形状の設計を行なう。</p>
<p>研究の進め方及び進捗状況（目標と対比して） フェーズ 1 においては、目標達成した。特に独自性としての製膜速度においては、従来のスパッタ装置のそれと比較すると、3 から 5 倍程度となる。最も薄膜性能に影響を与えるのは、Ar 流量と放電電流の 2 つであることがわかった。 フェーズ 2 においては、応用目標における上記 4 つは、全て、ガラス基板上では達成した。一方、基礎研究項目においては、目標値 <math>9 \times 10^{-5}</math> cm に対して、<math>1.6 \times 10^{-4}</math> cm に留まった。</p>
<p>主な成果</p> <p>【電気特性・光学特性】 ガリウム添加酸化亜鉛透明導電膜において、基板温度 200 、基板搬送条件で、膜厚 30 nm では、抵抗率 <math>4.4 \times 10^{-4}</math> cm、膜厚 200 nm では、抵抗率 <math>2.1 \times 10^{-4}</math> cm なる結果を得た。膜厚の制御により、波長 550 nm で、透過率最高が実現できるようになり、さらに可視光領域における平均透過率 90 % 以上が実現できた。測定評価はホール効果および分光光度計を用いた。</p> <p>【耐性】 250 、3 時間、雰囲気（大気、酸素ガス、窒素ガス、水素ガス）中で、抵抗率変化率最大 5 % なる耐性となった。</p> <p>【製膜装置の製膜高速化と表面平均粗さ】 放電電流制御をすることで、従来のスパッタよりも、3 から 5 倍の速さを実現、かつ低抵抗率化を実現</p>

した。表面平均粗さは膜厚によるが、膜厚 150 nm 以下では、1 nm 以下となる。但し、測定評価は原子間力顕微鏡を用いた。

特許件数：0 件 査読論文数：9 件

口頭発表件数：65 件（国際学会基調講演 1 件、招待講演 4 件ほか依頼講演多数）

### 研究成果に関する評価

#### 1. 国内外における水準との対比

##### 【電気特性・光学特性】

膜厚 80 nm 以下においては、従来のスパッタによる薄膜性能よりも、電気特性・光学特性いずれにおいても、国内外において秀でている。代表的な成果を表 1 にまとめた。

$T_s$  は基板温度、 $\rho$  は抵抗率、 $n$  はキャリア密度、 $\mu$  はホール移動度を表す。

##### 【製膜装置】

汎用製膜法と本反応性プラズマ蒸着法（RPD）の比較を表 2 としてまとめた。

表 1. 各種製膜におけるガリウム添加酸化亜鉛透明導電膜の電気特性

	$T_s$ (°C)	$\rho$ ( $\mu\Omega\text{m}$ )	$n$ ( $\times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ )	$\mu$ ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ )
rfMS	90	5.1	2.5	39
T.Minami et. al., Jpn. J. Appl. Phys., 24, L781(1985)				
MOCVD	400	2.6	40	6
Y. Li et. al., J. Vac. Sci. Technol., A15, 1063 (1997)				
PLD	200	2.1	10	25
A.Suzuki et. al., Jpn. J. Appl. Phys., 35, 5457(1996)				
DC-arc	350	2.3	7.6	36
T.Minami et. al., J. Vac. Soc. Jpn., 47, 734 (2004)				
this work	200	2.2	12	24
T.Yamada et al., Appl. Phys. Lett., 91, 051915(2007)				

表 2. スパッタ、パルスレーザー（PLD）、有機金属 CVD（MOCVD）との比較

	製膜速度	製膜面積	品質
Sputtering			
PLD, MOCVD	×	×	
RPD			

#### 2. 実用化に向けた波及効果

電気特性・光学特性においては、実用化レベルに達成している。特に可視光領域における高い透過率は、酸化亜鉛特有の特徴として、差別化が図れる。製膜速度の速さは工業的には魅力十分である。

### 残された課題と対応方針について

##### 【生産ラインへの導入の可否】

酸化亜鉛透明導電膜を新規にライン化する場合には、問題がない。一方で、既存のラインに導入するには、前後のライン中に用いる薬液への耐性が課題となる。強酸・強アルカリ以外では対応可と判断している。強酸・強アルカリ工程内では、使用は不可である。

##### 【更なる低抵抗化】

数 10 nm 膜厚では、表面状態が抵抗率の大きさに影響を及ぼす。その機構解明による対策の開発を実施し、更なる低抵抗化を検討する。と同時にその機構を利用した応用出口の検討も行なう。

	J S T 負担分 (千円)							地域負担分 (千円)							合計
	H14	H15	H16	H17	H18	H19	小計	H14	H15	H16	H17	H18	H19	小計	
人件費	-	4,961	6,806	6,477	5,322	2,261	25,827	-	1,566	7,772	5,975	4,805	2,129	22,247	48,074
設備費	-	70,574	68,250	49,612	36,309	1,139	225,884	-	151,705	10,655	2,986	0	0	165,346	391,230
その他研究費 (消耗品費、 材料費等)	-	4,179	9,032	10,467	7,018	6,254	36,950	-	973	11,879	13,333	9,192	3,562	38,939	75,889
旅費	-	2,273	3,555	3,649	3,834	2,060	15,371	-	0	0	0	0	0	0	15,371
その他	-	54	1,247	1,355	1,161	793	4,610	-	0	0	0	0	0	0	4,610
小計	-	82,041	88,890	71,560	53,644	12,507	308,642	-	154,244	30,306	22,294	13,997	5,691	226,532	535,174

### 代表的な設備名と仕様 [既存 (事業開始前) の設備含む]

J S T 負担による設備：ドーピングチャンパー成膜装置、X線回折装置、分光エリプソメータ

地域負担による設備：

複数の研究課題に共通した経費については按分する。