開催報告

機能薄膜部会ナノ構造機能創成専門部会
第9回研究会開催報告

西川 博 昭*

近畿大学生物理工学部
〒649-6493 和歌山県紀の川市西三谷 930

(2018 年 8 月 15 日受理)

Report on the 9th Seminar of Nano-Structural
Function Group in Functional Thin Films
Division of the Japan Society
of Vacuum and Surface Science

Hiroaki NISHIKAWA*

Faculty of Biology-Oriented Science and Technology,
Kindai University, 930 Nishi-Mitani, Kinokawa,
Wakayama 649-6493

(Received August 15, 2018)

機能薄膜部会ナノ構造機能創成専門部会の第9回研究会が、2018年6月29日に東京工業大学大岡山キャンパスにて開催された。今回の研究会は「無機結晶のフレキシブルコーティングによる機能創成」と題し、軽量かつ丈夫でフレキシブルな基板上に、優れた機能性を示す多彩な無機結晶材料をコーティングすることにより、新規なフレキシブルデバイスを創成する研究に関して議論した。機能性の無機結晶は多くが脆性材料であり、フレキシブル基板上にコーティングするには薄膜化をはじめとする形態上の工夫が必要不可欠であるほか、主要なフレキシブル基板がポリマーフィルムであり、通常は高温プロセスが求められる無機結晶成長を、耐熱性が不十分な基板に対して実現する必要がある。そこで本研究会では、これらの課題を解決することで新規デバイス実現を目指した最新の研究成果紹介を目的として、次に挙げる5題の講演を用意し、無機結晶材料のフレキシブルコーティングに関する最先端の成果を議論した。

- ・藤岡 洋 教授 (東京大学)
「フレキシブルマイクロLEDの可能性」
- ・弓野 健太郎 教授 (芝浦工業大学)
「金属触媒を用いたGe薄膜の低温結晶化」

- ・柳田 剛 教授 (九州大学)
「単結晶ナノワイヤの“しなやかさ”を利用した無機結晶のフレキシブルコーティング機能創成」
- ・山本 哲也 教授 (高知工科大学)
「フレキシブルフィルム・ポリマーシート上酸化亜鉛透明導電膜の低温成膜と特性制御」
- ・土屋 哲男 博士 (産業技術総合研究所)
「光MODを用いたフレキシブル機能性セラミックス膜の開発と応用」

以下に、これら5題の講演の概要を紹介する。本専門部会委員長の中川茂樹教授 (東京工業大学) による開会の挨拶に続いて藤岡教授 (東大) より、ディスプレイデバイスにおけるLED材料として有機材料よりも信頼性および特性の面で非常に有利なGaNの低温結晶化に関する研究紹介があった。GaNの低温結晶化は、基板材料としてGaNのエピタキシャル成長を実現するのに有利ではあるが高価な単結晶ではなく、安価なガラスや金属箔、ポリマーフィルムなどを使用することが目的である。藤岡教授がGaNの低温結晶化を実現するキーテクノロジーとして開発した手法がパルススパッタ堆積(PSD)法である。III-V族半導体の結晶成長において、薄膜原料のパルス供給が基板表面における原子のマイグレーションを促進し、GaN低温成長の成功につながっている。低温成長の実現に伴い、ポリマーフィルムをはじめとするフレキシブル基板上への高品質GaN結晶の作製とそのLED応用はもちろん、低温成長がInの高濃度ドーピングによる赤色LEDの作製を容易にした。すなわちPSD法の開発によってフレキシブルなフルカラーLEDディスプレイの実現も視野に入れることができるようになったといえる。

弓野教授 (芝浦工大) による半導体薄膜の結晶化に関する金属触媒の効果に関する研究も、薄膜結晶成長プロセスの低温化に関する紹介である。基板上に形成したAuなど結晶化のための触媒として働く金属薄膜上に室温でSiなどのアモルファス薄膜を堆積したのち、比較的低温で長時間アニールすることにより、金属薄膜と基板の界面に目的とする結晶化半導体薄膜が形成される手法が知られており、Metal-Induced Crystallization (MIC) 法と呼ばれている。例えばAuを触媒としてGe薄膜を形成する場合、250℃で数10時間アニールすればよい。プロセスがシンプルで、コストや大面積化の点において優れた方法である。この方法ではp型Geが得られるが、弓野教授は触媒としてAgSb合金薄膜を用いることでSbドーピングn型Ge薄膜の作製に成功し、pn接合を実

* E-mail : nishik32@waka.kindai.ac.jp

現できるようになった。さらに、MIC 法の発展として Ge と Au を 170℃ に加熱した基板上へ同時スパッタすることで、結晶化した Ge 薄膜が形成可能であることを見出した。通常の MIC 法に対して本手法はアニールが不要なうえ、プロセスをさらに低温化できた。これによりポリイミドなどの耐熱性ポリマーフィルム上へ、結晶化した Ge 薄膜を直接形成することにも成功している。

柳田教授（九大）からは単結晶ナノワイヤに関する研究が紹介された。一般に無機結晶の破壊強度が著しく低いのは結晶に内在する欠陥などに起因しており（Griffith の理論）、ナノスケールで極めて優れた結晶性を持つ単結晶ナノワイヤを実現することにより、破壊強度が向上すること＝フレキシブルコーティングに有効であることが解説された。さらに金属ナノ粒子を結晶成長の触媒とした酸化物材料の単結晶ナノワイヤ作製プロセス（Vapor-Liquid-Solid ; VLS 法）が紹介され、テーマがなく、しかもできる限り長い単結晶ナノワイヤを作製するためのパラメタ探索について報告された。多様な酸化物結晶のナノワイヤ作製およびそれらの物性評価、さらにはフレキシブル化を含むデバイス応用の結果が紹介され、酸化物材料を用いることでフレキシブルデバイスに魅力的なトピックを導入することが期待できる成果といえる。VLS 法は MIC 法と結晶成長に関する基礎学理を共有しており、実際にそれぞれの講演においては活発に意見交換を繰り返し、講演者にもメリットがあったと思われる。

山本教授（高知工科大）は、透明導電薄膜としての ZnO をポリマーフィルム上に低温成長させるプロセス開発と、得られた ZnO 薄膜の曲げ試験の結果を含んだ物性評価に関する研究を紹介した。ポリマーフィルム上に結晶化 ZnO 薄膜を作製するために山本教授が開発した手法は、基板（ポリマーフィルム）をヒータなどで加熱することなく、直流アークプラズマのプラズマ放射熱を利用した反応性プラズマ蒸着（RPD）法である。RPD 法で膜厚 100 nm の試料を作製するにあたり、成膜を 1～3 回に分けて行った場合、成膜回数を減らす（1 回あたりの堆積膜厚を増やす）につれてプラズマ放射熱による基板温度（ T_p ）が上昇することと併せて、成膜中の T_p の変化に伴うキャリア密度や格子定数など ZnO 薄膜の特性変化を詳しく述べられた。その上で、電気抵抗を指標として曲げ試験の結果を評価し、 T_p が低いほど曲げ特性に優れていることを明らかにした。RPD 法で作製した試料は可視光領域における透過率にも優れており、良質なフレキシブル ZnO 薄膜を得るための有効な低温

プロセスといえる。

本研究会最後の講演として、土屋博士（産総研）より金属有機化合物にエキシマレーザを照射することによる光化学反応を利用した、光 MOD 法による機能性酸化物の低温結晶化に関する最新の成果が報告された。光 MOD 法は多くの金属有機化合物が紫外域に高い吸収を示すことに着目した手法であり、これまでの 4 題と違って真空プロセスを必要としないという大きな利点がある。既に土屋博士は光 MOD 法を用いて酸化物超伝導体薄膜、強誘電体薄膜、透明導電性薄膜などのほか、Mn 酸化物や V 酸化物の薄膜による高感度ボロメータ、V 複合酸化物の蛍光体薄膜、Ru 酸化物を用いた抵抗体薄膜など、極めて多岐にわたる出口の明確なフレキシブルコーティングに成功していることを述べ、光 MOD 法の有効性が詳しく紹介された。この方法は光照射に伴う化学反応を利用しているため、マスクを用いてパターンニングすることも比較的容易であり、実際にマイクロパターンニングを行った結果も紹介された。また、下地の結晶を選ぶことによってエピタキシャル成長が実現できることも報告され、光 MOD 法が多彩な機能性酸化物材料の幅広い応用に有効であることが詳しく述べられた。

本研究会には常時 30 名程度が参加しており（Fig. 1）、活発な議論が展開された。企業からの参加者も 10 名を超えており、機能性材料の応用として注目を集めていることが伺える。本研究会を通して、多くの参加者に機能性無機結晶材料の応用としての本研究分野について理解を深めていただくと同時に、結晶成長プロセスの基礎学理に立脚したフレキシブルコーティングの新展開を着想する機会となれば幸いである。

Fig. 1. The seminar room during the session.