

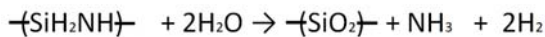
研究成果報告書

研 究 題 目		実 施 年 度	
		令和 2 年度	
代 表 研 究 者	所 属	独立行政法人 国立高等専門学校機構 広島商船高等専門学校 電子制御工学科	
	氏 名	酒池 耕平	印
1. 研究の目的・背景 曲げたり丸めたりすることができるディスプレイや太陽電池、ウェアラブル端末に代表されるフレキシブルエレクトロニクス市場が急激な拡大を続けている[1]。フレキシブルエレクトロニクスは、基材の柔軟性を生かすことで、新しいエレクトロニクス領域を創成できる可能性を秘めている。これまで“硬い”基板上でしか作製できなかった高性能単結晶 Si デバイスを“柔軟”なフレキシブル基板上で実現できるようになれば、小型・軽量化に加え、貼付型のフレキシブルセンサなど、これまで不可能とされてきたエレクトロニクス領域を創成できる可能性がある。特に、人体との親和性が高い柔軟な特徴を生かして、皮膚に貼り付けるだけで高精度に生体データを収集する絆創膏タイプの医療機器や、カテーテルや内視鏡に巻きつけるだけで高精度に体内データを収集できる次世代医療用エレクトロニクスの創生が期待されている。 PET (ポリエチレンテレフタレート) 基板の様な耐熱温度の低いプラスチック基板上で高温プロセスが必要な高性能シリコン(Si) デバイスを実現することは非常に困難とされているが、我々は、Si デバイスの新たな低温形成法として低温転写デバイスプロセス技術を提案し、本技術を応用することでフレキシブル基板上に高性能 Si デバイスの形成が可能であることを実証してきた[2]。この技術を応用することで、例えば、有機や酸化物材料では困難とされている相補型金属酸化物半導体(Complementary Metal Oxide Semiconductor : CMOS)を用いた高速駆動回路がプラスチック基板上で実現できるなど、これまで不可能とされてきた高性能フレキシブル電子回路の実現が期待できる。これらを実現する為に必要となる技術課題の 1 つに、プラスチック基板の耐熱温度以下で層間絶縁膜を形成する技術開発が挙げられる。 本研究では、プラスチック基板上で高品質絶縁膜を低温形成する為に、レーザアニールを応用した急速間接加熱による絶縁膜形成技術の確立を試みた。耐熱温度の低いフレキシブル基板上で、良質な絶縁膜を形成する為に、ポリシラザンを用いる。ここで、ポリシラザンを良質な絶縁膜 (SiO₂) に転化させる為には、フレキシブル基板の耐熱温度以上の加熱処理及び、30min 程度の加熱時間が必要になるが、加熱に関しては、レーザ光照射による急速熱処理技術を応用することで基材への熱ダメージを低減させる方法を試みる。レーザは、プラスチックに吸収されない波長域を持つ安価で高出力が得られる近赤外レーザとした。しかしながら、この波長域ではポリシラザンへの直接光吸収は困難である。そこで、層間絶縁膜を形成する下層には金属層がある為、この金属層に光吸収させ加熱し上層のポリシラザンを金属熱で間接加熱する方法を考案した。また、極短時間熱処理でのシリカ転化を実現する為に、シリカ転化促進剤として過酸化水素 (H₂O₂) を塗布したサンプルを用いて実験を行った。 [1] A. Nathan et.al., Proceedings of the IEEE. 100, 1486 (2012). [2] K. Sakaike et.al., Appl. Phys. Lett. 103, 233510-1 (2013).			

2. 研究成果及び考察（申請時の計画に対する達成度合を織込む）

間接加熱による層間絶縁膜の低温形成実験を行う為に、走査型レーザアニール装置を自作し、本装置を用いて実験を行った。PET (ポリエチレンテレフタレート) 基板の上に金属ナノインクを用いた金属薄膜を形成後、上層にポリシラザンを塗布することでサンプルを作成し、このサンプルにレーザ光照射することで下層金属層に光吸収させ発生した金属熱で上層のポリシラザンをシリカ転化させる方法を試みた。

ポリシラザンは Si、N、H から構成され、下記に示す化学式の通り加熱により大気中の H_2O と反応し、 SiO_2 に変化する。これにより、完全な無機膜 (SiO_2) を形成することができる。また、 H_2O の代わりに過酸化水素 (H_2O_2) に浸すことで、比較的短時間で SiO_2 膜へシリカ転化できることが報告されている。そこで、間接加熱によるシリカ転化の促進剤として H_2O_2 を塗布したサンプルを作成し実験を行った。



金属 (Ag) ナノインクはスピンコータを用いて PET 基板の上に約 $3.5\ \mu\text{m}$ 堆積させ、ポリシラザンを同様の方法で上層に約 $40\ \text{nm}$ 堆積した。このサンプルを用いて、図 1 に示すように、波長 $808\ \text{nm}$ 、出力 $1.2\ \text{W}$ ($22\ \text{A}$) のレーザ光をレンズで約 $4 \times 1\ \text{mm}^2$ に集光し試料表面に照射した。レーザ出力値は、初期実験により Ag 薄膜の凝集が起こらない条件を最適化し設定した。試料はレーザ光の長軸側と垂直になるように走査速度 $240\ \text{mm/s}$ で走査させ、膜質の変化をフーリエ変換赤外分光光度計 (FT-IR) を用いた FT-IR ATR 法で観察した。

図 2 に間接加熱処理前後の FT-IR ATR スペクトルを示す。(a) H_2O_2 を塗布していないサンプル、(b) H_2O_2 を塗布したサンプルの ATR スペクトルである。 H_2O_2 を塗布していないサンプルは、スペクトルに若干の変化があるものの、間接加熱前と同等のスペクトルが得られた。これは、間接加熱によりシリカ転化できていないことを示している。一方、 H_2O_2 を塗布したサンプルは、間接加熱処理により、N-H

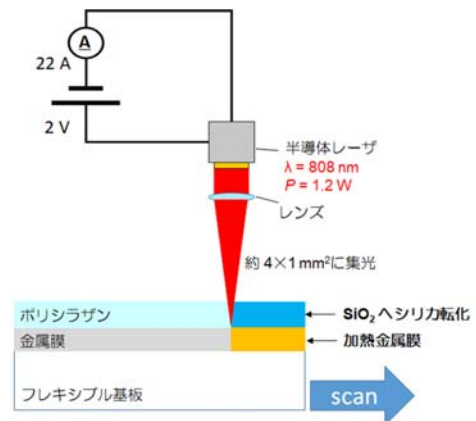


図 1. 間接加熱法概念図

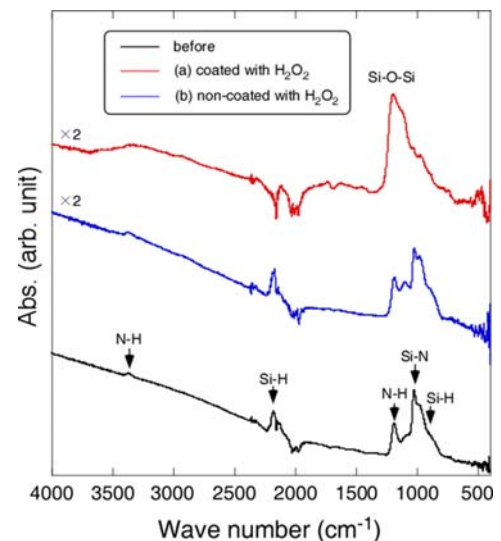


図 2. 間接加熱処理前後の FT-IR ATR スペクトル

(1190、3380 cm^{-1} 付近) 結合、Si-H (880、2180 cm^{-1} 付近) 及び、Si-N 結合 (950 cm^{-1} 付近) 起因のピークが減少し Si-O-Si 結合 (1000-1300 cm^{-1}) に起因する鋭いピークが表れていることが確認できる[1-3]。この結果から、 H_2O_2 を塗布することで間接加熱法によりポリシラザンを極短時間でシリカ転化できることが分かった。

図 3 に間接加熱処理したサンプル及び、ガラス基板上に塗布したポリシラザンを 450 $^{\circ}\text{C}$ (a) 30 min 及び、(b) 15min 熱処理したサンプルの FT-IR ATR スペクトルの比較を示す。この結果から、間接加熱処理膜は 450 $^{\circ}\text{C}$ 熱処理膜に比べ、ピーク位置及び、半値幅に若干の差がみられるものの、非常に近いスペクトルを示していることが分かる。

この結果は、提案した間接加熱法により、耐熱温度の低いプラスチック基板上でも良質な SiO_2 膜を極短時間で形成できることを示唆している。今後、電気特性評価を実施し、層間絶縁膜として利用できるか最終検討を行う予定である。

なお、当初予定していた電気特性評価までを全体の 100%とした場合、R2 年度で実施できた技術開発は約 80%を達成したと考えている。

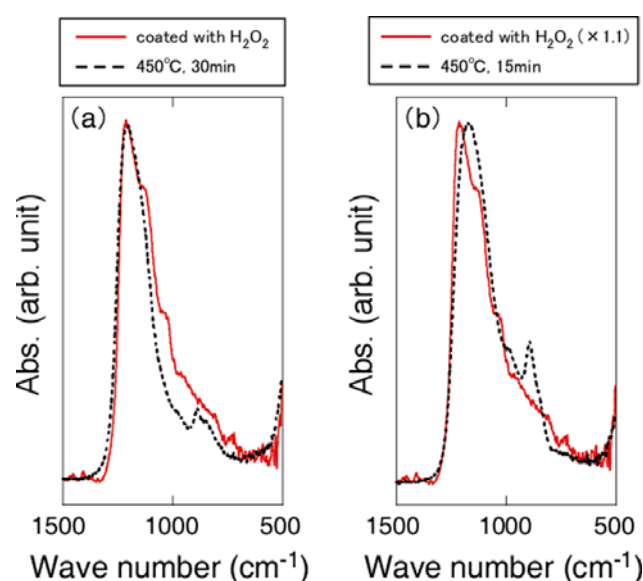


図 3. ガラス基板上 450 $^{\circ}\text{C}$ 熱処理膜と PET 基板上間接加熱処理膜の FT-IR ATR スペクトル比較

[1] M. Terai et.al., Double Patterning Using Multilayer Hard Mask Process with Perhydropolysilazane, Jpn. J. Appl. Phys. **50** 046503 (2011) .

[2] T. Kubo et.al., Preparation of HotWater-Resistant Silica Thin Films from Polysilazane Solution at Room Temperature, J SOL GEL SCI TECHNOL. **31**, 257–261, (2004).

[3] S. Miyazaki et.al., Structure and electronic states of ultrathin SiO_2 on thermally grown Si(100) and Si(111) surfaces, Applied Surface Science **113/114**, 585-589 (1997).

3. 経費の使用状況（申請時の計画に対する実績を記述）

以下の通り使用致しました。

物品名	執行額
設備備品	¥316,515
消耗品	¥133,485
合計	¥450,000

4. 将来展望（今後の発展性、実用化の見込み等について記述）

本研究では、Si デバイスと異種材料デバイスとの融合技術や回路集積技術を確立するために必要となる、良質な層間絶縁膜をプラスチック基板が耐えられる程度の低温で形成する技術開発を行った。その結果、間接加熱法を用いることで、耐熱温度の低いプラスチック (PET) 基板上でも良質な絶縁膜が形成できる指針を得ることに成功した。この結果は、これまで困難とされてきたフレキシブル基板上での高集積 CMOS 回路形成や高分解能センサといった異種機能デバイスを安価かつ容易にシステム集積化できるようになる可能性をも示唆しており、今後、電気特性評価を実施し、間接加熱法の有用性を実証することで実用化に近づける予定である。

5. 成果の発表（学会での発表、学術誌への投稿等を記載。予定を含む）

現在、これらの結果及び電気特性評価をまとめており、論文にて発表する予定である。