

氏 名	楠田 豊
学位(専攻分野)	博 士 ( 工 学 )
学 位 記 番 号	博 1 1 8 7 号
学位授与の日付	令和 7 年 3 月 21 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研 究 科 ・ 専 攻	工芸科学研究科 電子システム工学専攻
学 位 論 文 題 目	プラズマ成膜における電源周波数の効果と材料物性への影響
審 査 委 員	(主査)教授 西中 浩之 教授 山下 兼一 教授 高橋 和生

## 論文内容の要旨

本論文ではプラズマ CVD により低温で成膜した  $\text{SiO}_2$  膜での、周波数を変化させることによる膜物性の違いについて調査、考察した研究である。近年益々発展を遂げるエレクトロニクスデバイスの多様化によって、多種多様な材料基板が登場する中で、各デバイスに対して有効な絶縁膜として、低温での低周波プラズマ CVD による  $\text{SiO}_2$  成膜を提案した。従来のプラズマ CVD による  $\text{SiO}_2$  膜では、良質な膜を得るにはある程度の高温が必要だが、耐熱温度の低い材料に対しては適用できない。しかし、プラズマの生成に必要な周波数を最適化することで、耐熱温度の低い材料に対しても緻密な膜質の成膜を提供することを目指した。

本論文は 6 つの章から構成されている。第 1 章では本研究に関する研究背景や研究目的について述べている。第 2 章では本研究で用いた薄膜形成装置の構成についての説明と、成膜した薄膜に対する評価を実施するための評価装置について示している。第 3 章は、TEOS を用いた  $100^\circ\text{C}$  のプラズマ CVD による  $\text{SiO}_2$  成膜に対する周波数の影響を調査・考察した内容である。第 4 章は、 $100^\circ\text{C}$  で成膜した  $\text{SiH}_4\text{-SiO}_2$  と TEOS- $\text{SiO}_2$  との膜質比較および考察に関する内容である。第 5 章は、樹脂基板への適用を目指したプラズマ CVD による  $60^\circ\text{C}$  以下での  $\text{SiO}_2$  成膜に関する内容である。第 6 章では、これらの検討をまとめて本論文の総括とし、今後の展望および課題について述べている。

第 3 章では、TEOS- $\text{SiO}_2$  を  $100^\circ\text{C}$  で成膜する際に、13.56 MHz または 400 kHz の各周波数で成膜した場合の各膜質を評価した。400 kHz で成膜した  $\text{SiO}_2$  は、13.56 MHz と比較して成膜速度が低下傾向、屈折率が高い、膜応力が圧縮方向、膜密度が大きい、膜中の水素含有が少ない、ダングリングボンドが多い、表面粗さが若干スムーズといった結果が得られた。これらの結果は電源周波数が  $\text{SiO}_2$  薄膜の特性に大きな影響を与えることを示している。また各評価に関する変化からプラズマ中の反応についてモデルを提起し、それぞれの現象がどのような理由で起こっているのかについて考察を行った。このような包括的な理解は、望ましい膜特性を達成するための成膜プロセスの最適化に役立つ。

第 4 章では、 $100^\circ\text{C}$ 、400kHz で成膜した  $\text{SiH}_4\text{-SiO}_2$  膜においても、TEOS- $\text{SiO}_2$  と同様に緻密化が可能かを検証し、 $\text{SiH}_4\text{-SiO}_2$  膜では、屈折率、膜密度、膜の結合状態、ダングリングボンドなど多くの評価で、TEOS- $\text{SiO}_2$  と比較して劣る結果が多数得られた。特にダングリングボンドの評価で

は、 $\text{SiH}_4\text{-SiO}_2$  の欠陥とみられるピークが観測されており、成膜反応の過程の違いで、イオン衝撃による効果が大きく異なることが推察された。気相支配の成膜が表面拡散を制限し、より多孔質な膜構造をもたらすと考えられる。一方  $\text{TEOS-SiO}_2$  成膜では、400 kHz のイオン衝撃によって強化された表面反応により、炭化水素の副生成物の脱離が促進され、 $\text{Si-O-Si}$  ネットワーク結合の形成が促進されたと考えられる。両者の反応モデルについて提起し、各評価との関係について述べた。また電流-電圧特性や容量-電圧特性の評価を行い、低温で  $\text{TEOS-SiO}_2$  と  $\text{SiH}_4\text{-SiO}_2$  を比較した場合  $\text{TEOS-SiO}_2$  の方が概ね良好であり、これは他の膜質評価の結果とも一致している。

第 5 章では、PET への  $\text{TEOS-SiO}_2$  成膜を目指し、 $30^\circ\text{C}$  で成膜した  $\text{TEOS-SiO}_2$  での周波数による膜質の違いについて述べた。13.56 MHz では下部電極温度の影響が大きい、400 kHz では温度だけでなくパワー密度の大きさによって各膜評価に変化がみられた。下部電極温度が低くても、400 kHz によるイオン衝撃を十分考慮した成膜を実施することで、耐熱温度の低い材料に対して有効な成膜手段になることが分かった。

第 6 章では、これらの結果をまとめて本論文の総括を行った。400 kHz でのプラズマ CVD による  $\text{TEOS-SiO}_2$  成膜により、13.56 MHz と比較して膜の緻密化が可能であり、また  $\text{SiH}_4\text{-SiO}_2$  よりも優れた特性を有した。この結果は、フレキシブル基板上への  $\text{SiO}_2$  成膜技術の開発と、MEMS および関連分野への応用に道を開く重要なものである。

## 論文審査の結果の要旨

本学位論文は、低周波プラズマ CVD を用いることで、 $100^\circ\text{C}$  以下の低温成膜において  $\text{TEOS-SiO}_2$  膜の緻密成膜を実現した技術についてまとめている。

$\text{SiO}_2$  膜は古くから研究されてきた材料であるが、従来の研究は電子デバイスへの応用が主流であったため、イオン衝撃によるデバイスダメージを避ける観点から高周波での成膜が中心であった。一方、近年急拡大するフレキシブルデバイスや光学デバイスでは低温成膜の必要性が高まっているが、 $\text{SiO}_2$  の基礎研究がある程度完了していたため、新たな用途に対応した技術開発には研究の空白期間が存在していた。

このような技術開発の時代的ギャップの中で、本研究では低周波プラズマによるイオン衝撃効果を活用することで、PET 基板のような耐熱温度の低い材料への適用を可能とした。

主要な成果として、低周波での  $\text{TEOS-SiO}_2$  成膜により従来の高周波成膜と比較して膜質の向上を実現し、その現象について反応モデルを提起して詳細な考察を行った。また、 $\text{SiH}_4\text{-SiO}_2$  膜との比較検討により、 $\text{TEOS}$  系でのみイオン衝撃による成膜アシスト効果が有効に働くことを実証した。さらに、極低温条件下でもフレキシブル基板への実用的適用に十分な膜質を達成できることを示した。

これらの成果は、フレキシブルエレクトロニクス、光学デバイス、MEMS 分野において、従来技術では対応困難であった低耐熱基板上での高品質絶縁膜形成技術として大きな産業的価値を有する。

本論文の内容は、申請者が筆頭著者として査読を経て掲載された 2 報の学術論文をもとに構成

されており、十分な学術的価値を有するものと評価される。

- 1) Yutaka Kusuda, Yuki Asai, Takahiro Miyashita and Hiroyuki Nishinaka, “Plasma-enhanced chemical vapor deposition of SiO<sub>2</sub> films at 400 kHz and 100°C using tetraethyl orthosilicate with oxygen and SiH<sub>4</sub> with nitrous oxide”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol.64, 04SP48-1–04SP48-4, 2025
- 2) 楠田 豊, 浅井 祐輝, 西中 浩之, “樹脂基板への適用を目指したプラズマ CVD による 60°C 以下での SiO<sub>2</sub> 成膜”, 日本材料学会・会誌「材料」, Vol.74, No.6, pp.394–398, 2025