

平成 2 1 年度戦略的基盤技術高度化支援事業

「エレクトロスプレーデポジション（ESD）装置の  
数値制御による高精度化技術の研究開発」

研究開発等成果報告書

平成 2 2 年 3 月

委託者 関東経済産業局  
委託先 財団法人埼玉県中小企業振興公社

## 第1章 研究開発の概要

### 1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標

#### 【研究背景】

特定ものづくり基盤技術高度化指針のうち、

#### (三) 電子部品・デバイスの実装に係る技術に関する事項

##### 1 電子部品・デバイスの実装に係る技術において達成すべき高度化目標

#### (1) 情報通信機器に関する事項

・川下製造業者の抱える課題及び要請(ニーズ)

ア. 小型・高密度集積化

イ. 多機能化・高機能・大容量高速情報処理化

にかかる研究開発の背景は以下の通りである。

半導体部品、受動部品、ディスプレイ部品、などの製造分野(パッケージングを含む)においては、機能性薄膜の形成によりデバイスを小型化、高密度化し、さらに多機能化する要求が高まっている。従来こうした部品に必要とされる機能性薄膜(圧電性薄膜、半導体薄膜、有機発光体薄膜、カラーフィルター薄膜など)は、真空蒸着、スパッタリング、CVD(Chemical Vapor Deposition)などの手法が用いられてきた。しかしながらこうしたプロセスは真空を必要とし、かつ高温やプラズマをプロセス中で使用するため、適応可能な材料は無機系材料等の耐熱性のある材料に限られていた。近年では、高機能化等のため有機系薄膜材料や高分子系薄膜材料が使用されるケースが増大しているが前記のような手法は適応できず、スピコーティングやインクジェット法などによりこうした材料の成膜が行われてきた。しかしながら、スピコーティング法は材料の利用効率が低く、インクジェット法は1ドットずつ液滴を噴出する方式のため製造速度には限界があった。

申請者らが研究開発を進めてきたエレクトロスプレーデポジション法(ESD法)は、こうした薄膜形成を常温大気圧で実施できる画期的な技術であり、こうした電子部品・デバイスの実装等の高機能化・高密度化・多機能化に大きく貢献できる可能性を持った技術である。ESD法は、サンプル溶液を細いキャピラリーに収め、基板との間に数千ボルト以上の高電圧を印加することで静電気力により $1\mu\text{m}$ 程度の極めて小さな液滴を形成し、これを乾燥したナノパーティクルとして静電気力により再捕集して薄膜化する技術であり、(独)理化学研究所と(株)フューエンスの共同研究により多くの基礎的特許(特願2006-053497, 特願2006-278986)を申請している。ESD法は、前記のような薄膜製造工程において、低コスト化を含めた多くの問題を解決できる可能性を持っているが、薄膜形成の精度、速度、安定性は必ずしも充分とは言えなかった。

#### 【研究目的および目標】

ア. 小型・高密度集積化

イ. 多機能化・高機能・大容量高速情報処理化

電子デバイスの小型化、高密度化のためには、デバイス製造における基礎技術である薄膜形成技術の影響は非常に大きく、特に近年有機材料、有機高分子材料などの新しい材料が使用され始めている状況では新たな薄膜形成技術により製造プロセスを高度化することが必要とされている。このために、従来の真空蒸着やスピコーティング、インクジェット法を超える方法としてエレクトロスプレーデポジション法の装置開発を推進し、電子デバイスの小型・高密度化、多機能化等に対応可能な製造技術を確立することを目標とする。

従来技術にない多くの利点をもつ新規薄膜製造技術であるエレクトロスプレーデポジション法(ESD法)であるが、量産設備としての開発に当たっては、薄膜の均一性を確保しながら高速な成膜速度を実現する必要がある。ESD装置の数値制御による高精度化・高速化・安定化等の開発課題について、以下の目標を設定する。

### [1] 形成される薄膜の膜厚の均一化

膜厚の均一性は電子部品等の性能のばらつきの減少や歩留まりの向上に重要なパラメータである。このため、スプレー量の定量制御技術を数値制御によるスプレーノズルのスキャンや精密送液装置の開発により実施し、また、製造ラインへの組み込みを想定した膜厚測定システムを分光反射率計を基礎として開発し、以下の目標を実現する。

- ・膜厚 80nmにおいて、膜厚分布精度を±10%に抑える。

### [2] スプレー速度の向上

スプレー速度は、生産速度を決定する重要なパラメータである。ESD法においては、細いキャピラリーからサンプルをスプレーするため、生産速度が比較的遅いと考えられる。こうした問題の解決のためスプレー電圧の高圧化やスプレー速度の数値制御、ノズルの形状改良などに取り組む。最終目標値としては、20cm角のエリアを15分以内に成膜可能としたいが、本提案事業では作成時間を目標値に含めないこととする。

### [3] 装置の安定化

装置の安定化は生産ラインにおける量産設備としては重要な項目である。スプレー速度の安定化のみならず、装置としての信頼性ならびに他の装置へのEMI障害などを起こさないことが重要である。最終目標としては12時間の連続運転可能という目標を達成する予定であるが、本提案内では連続運転時間の目標は設けないこととする。

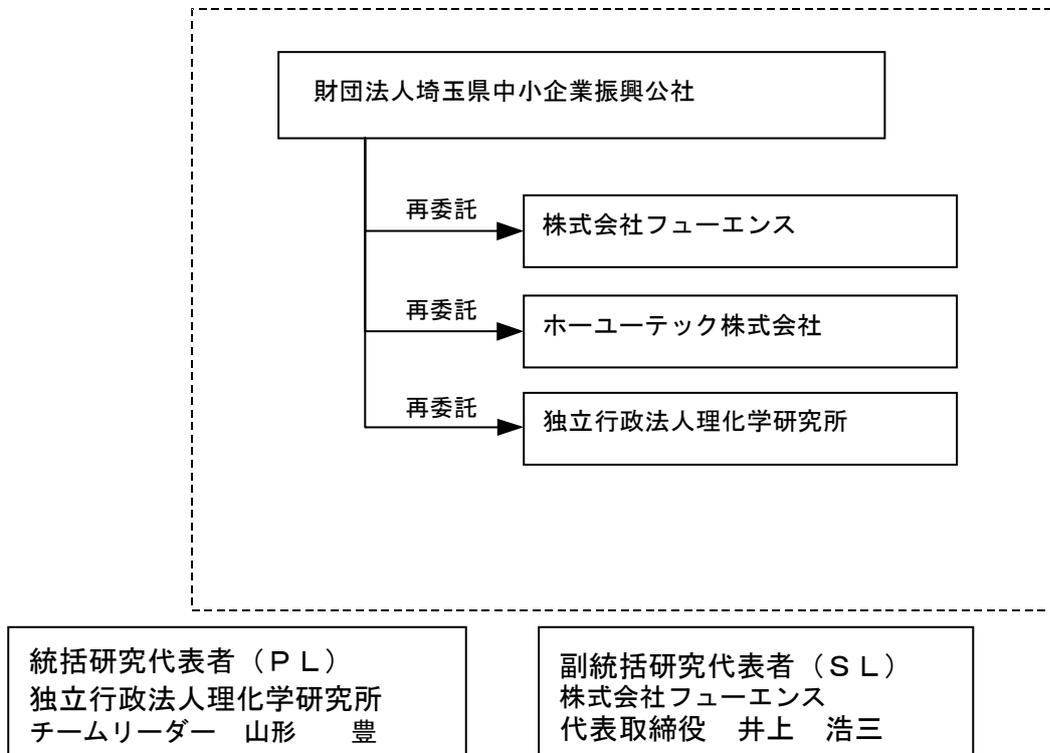
本年度の研究開発においては、上記のうち膜厚の均一化のみを目標として設定した。

1-2 研究体制

必須記載事項

(1) 研究組織および管理体制

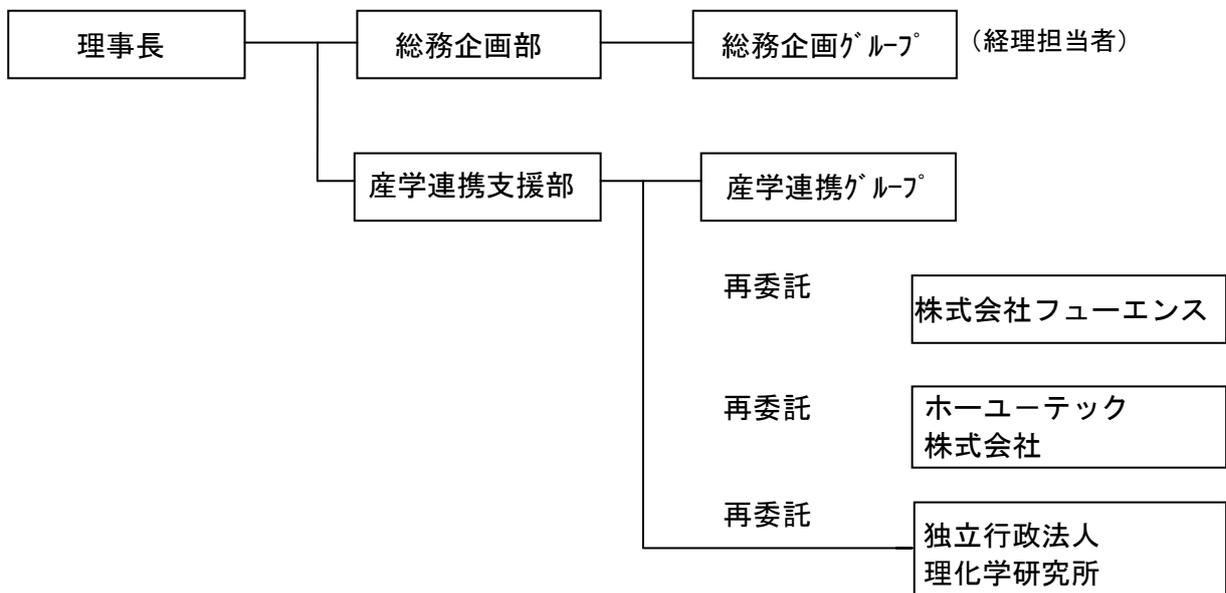
1) 研究組織(全体)



2) 管理体制

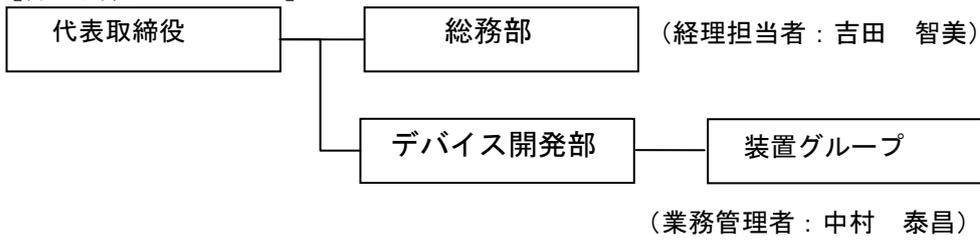
① 事業管理者

[埼玉県中小企業振興公社]

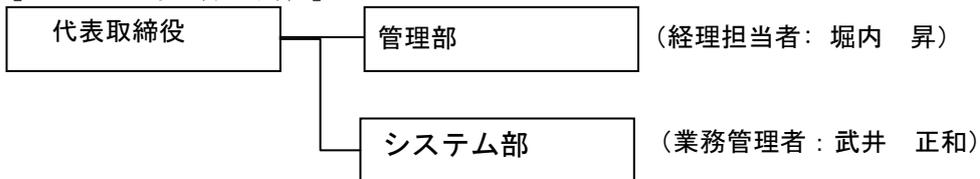


②再委託先

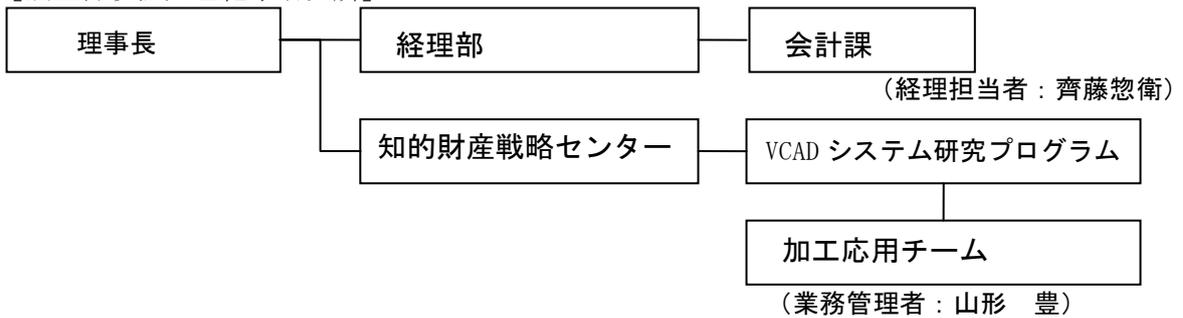
[株式会社フューエンス]



[ホーユーテック株式会社]



[独立行政法人理化学研究所]



(2) 管理員及び研究員

【事業管理者】財団法人埼玉県中小企業振興公社

①管理員

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
高木 利光	産学連携支援部産学連携グループリーダー	⑨
浪江 治	総務企画部総務企画グループリーダー	⑨

【再委託先】

(研究員)

株式会社フューエンス

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
井上 浩三	代表取締役	⑤
新田 和也	デバイス開発部装置グループ	②⑤⑦
中村 泰昌	デバイス開発部装置グループ	②⑤⑦⑧

ホーユーテック株式会社

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
武井 正和	システム部 課長	①③④⑥
鈴木 政弘	システム部 課長代理	①③④⑥
鈴木 秀章	システム部	①③④⑥
大澤 弘三	システム部	①③④⑥
増田 英司	システム部	①③④⑥
堀内 昇	管理部 課長	①③④⑥

独立行政法人理化学研究所

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
山形 豊	知的財産戦略センター VCAD システム研究プログラム 加工応用チームリーダー	②④⑦（全体総括）

【協力者】

アドバイザー

筒井 恭治	株式会社リコー 研究開発本部・先端技術研究センター 第一研究室長	アドバイザー
-------	-------------------------------------	--------

## 1-3 成果概要

成果について、研究開発項目ごとに説明を行う。

電子部品・デバイスの小型・高密度集積化や多機能化・高機能化のためには、従来の手法で製造されるプリント基板の製造技術のみならず電子部品本体やガラス基板、プラスチック基板などの多種多様なデバイスを高機能化する必要が生じている。こうしたデバイスの形成に当たって最も重要なプロセスは薄膜形成プロセスである。

申請者らが研究開発を進めてきたエレクトロスプレー・デポジション法(ESD法)は、こうした薄膜形成を常温大気圧で実施できる画期的な技術であり、こうした電子部品・デバイスの実装等の高機能化・高密度化・多機能化に大きく貢献できる可能性を持った技術である。ESD法は、サンプル溶液を細いキャピラリーに収め、基板との間に数千ボルト以上の高電圧を印加することで静電気力により1 $\mu$ m程度の極めて小さな液滴を形成し、これを乾燥したナノパーティクルとして静電気力により再捕集して薄膜化する技術である。ESD法は当初は、たんぱく質等の生体高分子を固定化する目的で研究が開始されたが、有機・無機材料、水溶性・有機溶媒性など様々な物質を薄膜化・パターン化できることが判明し、電子デバイス等を含む広範囲に利用可能な技術であることが判明してきた。例をあげると、LSIパッケージの配線パターン形成のための導電性材料(金属ナノペーストなど)、透明導電性ポリマー、有機EL薄膜、圧電性材料なども薄膜化可能であることが判明している。ESD法は、前記のような薄膜製造工程において、低コスト化を含めた多くの問題を解決できる可能性を持っているが、薄膜形成の精度、速度、安定性は必ずしも充分とは言えなかった。こうした課題を解決するために[1]薄膜の均一性の精度の向上[2]生産速度の向上[3]装置の安定化の3点について研究開発を実施した。研究開発は、株式会社フューエンスが主に、ESD装置の開発、スプレー条件等の検証実験、ESD装置の検証を担当し、ホーユーテック株式会社が主にESD装置プロトタイプ的设计製作を担当した。また、理化学研究所がスプレーの制御法や薄膜の評価手法などに関して研究開発を実施した。本研究開発により以下のような成果を得ることができた。

### [1]薄膜の均一性の精度の向上

#### [1]-1スプレー量の定量制御(①)

シリンジの送液量を精密に制御することにより、定量的な制御が可能なシステムの構築に成功した。

また、送液量をマスフローメータ等を用いて検証した。

#### [1]-2薄膜の膜厚評価技術の確立(②)

ESD法により形成された薄膜の均一性を評価するために、分光反射率計を用いた評価システムの構築を行った。また、走査型電子顕微鏡等を用いて薄膜の特性の評価を行った。

### [2]生産速度の向上

#### [2]-1高電圧駆動回路の開発(③)

ESD法の生産速度を向上させるため、従来にない高電圧でスプレーを行うための装置の開発を実施した。50kVを印加してスプレーの可能な装置の開発に成功した。

#### [2]-2スプレー速度の制御(④)

スプレー速度を上げるためには、スプレー電圧の選択だけでなく、基板側の電圧設定、装置内部の材質等も考慮し、高電圧にて高速なスプレーが可能な装置の開発を行った。

#### [2]-3ノズル形状の改良(⑤)

スプレーの高速化のために複数ノズルから同時にスプレー可能なノズルの開発に成功した。

### [3]装置の安定化

#### [3]-1高電圧ノイズの抑制(⑥)

スプレー速度の向上のために50kVを印加可能なESD装置を開発し、それに伴い筐体内部や高電圧回路からのノイズの抑制のためのシールド手法、筐体内部の導電体/絶縁体の配置を工夫しノイズの抑制に成功した。

[3]-2 スプレー電圧制御法の検討(⑦)

スプレー速度は、温度や湿度などの様々な環境条件により変動するため、これを安定的に高速化するために、レーザー散乱光を利用したスプレー速度の制御システムを開発した。

[3]-3EMC 試験(⑧)

EMC 試験を行い、高電圧による外部へのノイズ放射や内部の制御回路への影響を評価し安定化のための対策を実施した。

本研究により、前記のような成果を得ることができたが、これを基に、より大型の有機 EL ディスプレイや液晶ディスプレイ製造設備への展開、開発により得られた高安定・高精度・低ノイズな装置を用いた海外への販売展開も進めてゆく。

1-4 当該研究開発の連絡窓口

株式会社フューエンス 代表取締役 井上浩三

技術部 新田和也

連絡先: 〒351-0104 埼玉県和光市南 2-3-13 和光理研インキュベーションプラザ 207 室

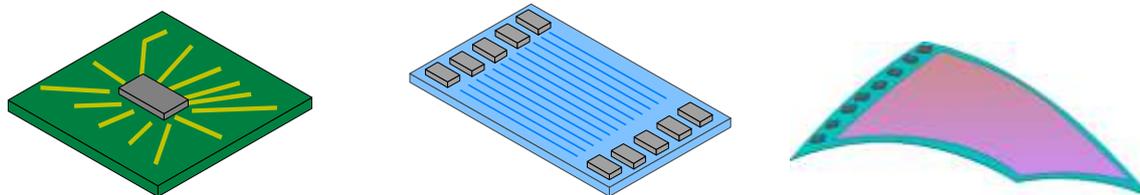
Tel:048-462-1138 Fax:048-462-1169

E-mail: inoue@furence.co.jp

## 第2章 本論

### 【研究開発の具体的内容】

電子部品・デバイスの小型・高密度集積化や多機能化・高機能化のためには、従来の手法で製造されるプリント基板の製造技術のみならず電子部品本体やガラス基板、プラスチック基板などの多種多様なデバイスを高機能化する必要が生じている。こうしたデバイスの形成に当たって最も重要なプロセスは薄膜形成プロセスである。



プリント基板（パッケージ） ガラス基板（液晶ディスプレイなど） プラスチック基板  
（有機ELなど）

ESD法がターゲットとするデバイスの例

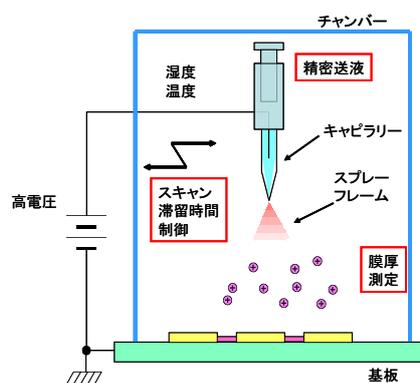
申請者らが研究開発を進めてきたエレクトロスプレー・デポジション法（ESD法）は、こうした薄膜形成を常温大気圧で実施できる画期的な技術であり、こうした電子部品・デバイスの実装等の高機能化・高密度化・多機能化に大きく貢献できる可能性を持った技術である。ESD法は、サンプル溶液を細いキャピラリーに収め、基板との間に数千ボルト以上の高電圧を印加することで静電気力により $1\ \mu\text{m}$ 程度の極めて小さな液滴を形成し、これを乾燥したナノパーティクルとして静電気力により再捕集して薄膜化する技術である。ESD法は当初は、たんぱく質等の生体高分子を固定化する目的で研究が開始されたが、有機・無機材料、水溶性・有機溶媒性など様々な物質を薄膜化・パターン化できることが判明し、電子デバイス等を含む広範囲に利用可能な技術であることが判明してきた。例をあげると、LSIパッケージの配線パターン形成のための導電性材料（金属ナノペーストなど）、透明導電性ポリマー、有機EL薄膜、圧電性材料なども薄膜化可能であることが判明している。（独）理化学研究所と（株）フューエンスの共同研究により複数の基礎的特許（特願2006-053497、特願2006-278986）を申請している。ESD法は、前記のような薄膜製造工程において、低コスト化を含めた多くの問題を解決できる可能性を持っているが、薄膜形成の精度、速度、安定性は必ずしも充分とは言えなかった。

こうした課題を解決するために以下の項目について研究開発を実施した。

### 【研究成果】

#### 【1】 形成される薄膜の膜厚の均一化

形成される薄膜の膜厚は、様々な要因によって変動する。スプレーされるサンプルの速度、スプレーノズルの位置、さらにはESD法は静電気力を用いて薄膜の形成を行うため、チャンバー内壁の帯電なども影響を与える。このためには、第一にスプレーされるサンプルの絶対量を一定とすることが必要である。さらに、スキャン方法を制御することで滞留時間制御等の方法により端部付近で発生する不均一などを解消する必要がある。さらに、生成された薄膜の均一性を定量的に評価する必要がある。薄膜の厚さを測定する方法はいくつかあるが、製造工程で使用可能であることを考慮して比較的小型の設備で実現可能な方法により膜厚を測定し、形成された膜厚の均一性の評価を行う。具体的には以下の3項目に分けて開発を実施する。



**[1]-1 スプレー量の定量制御**

図1に開発したESD装置の全体図を、図2に同写真を示す。本装置は、各研究開発項目の目標を達成するべく必要な仕様を検討して開発された装置である。以下に各項目に沿って、詳細について説明を行う。

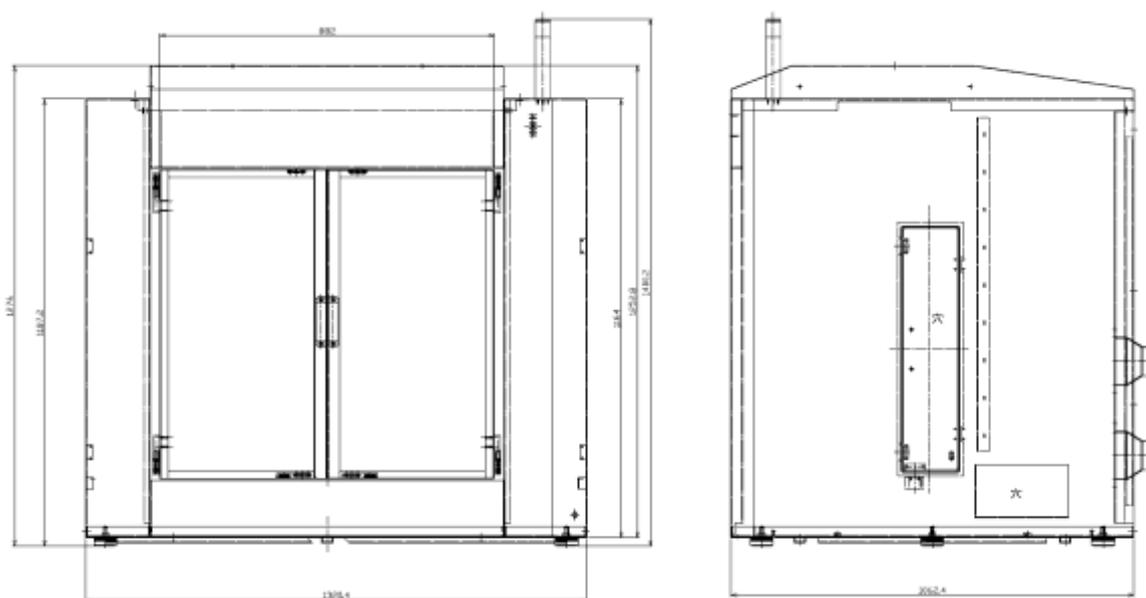
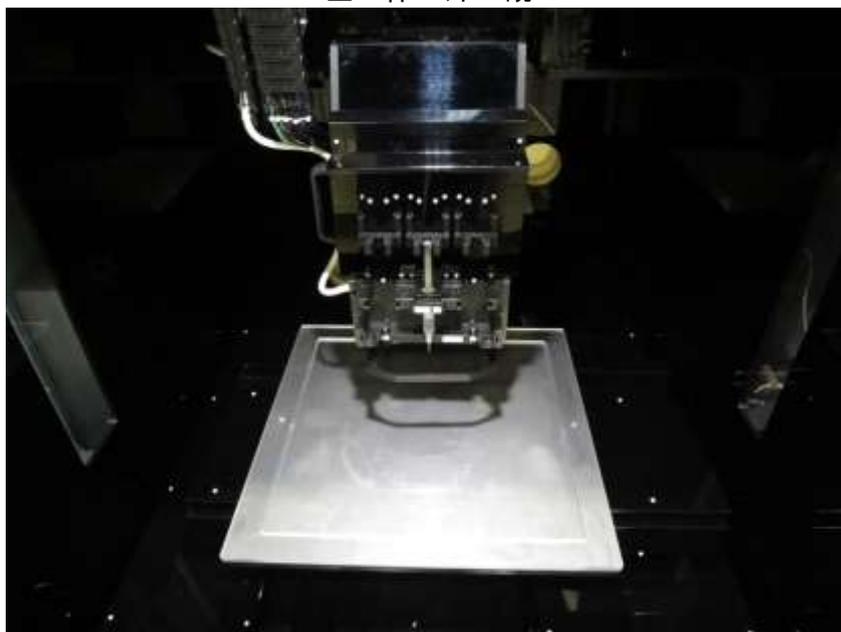


図1 開発したESD装置の全体図



全 体 外 観



チャンバー内部

図2 開発したESD装置の外観

● 高精度吐出機構の開発について

目標とする、定量送液速度範囲を、 $1\mu\text{l}/\text{min}\sim 1000\mu\text{l}/\text{min}$ 、送液の変動を $\pm 2\%$ とし目標に定め開発を進める。研究開発段階において、送りねじ、モーター回転数、吐出時のノズル形状等を考慮し、部材選定作業を行った。図3に送液部の写真を示す。

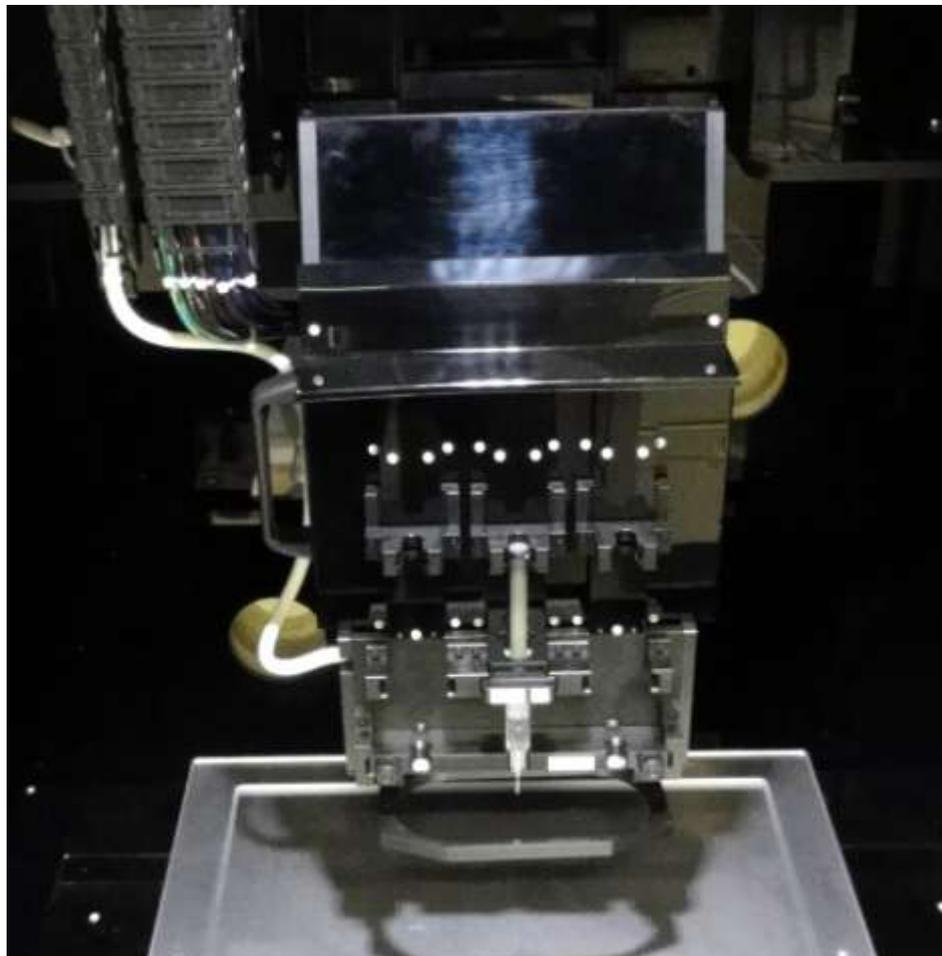


図3 送液部の写真

製作後、計量範囲の異なる複数の精密な流量計を用いて、送液速度、送液の変動値を計測した。計測は、シリンジにチューブを接続し、その先に流量計 (ASL1600-20) あるいは極微量流量計 (SLG1430-150) を接続して行った。測定は、 $1000\mu\text{L}/\text{min}\sim 0.1\mu\text{L}/\text{min}$  の範囲で行った。測定結果の様子を図4-1に、測定結果のデータを図4-2～図4-11に示す。極微量流量については、多少の揺らぎはあるものの、ほぼ目標を達成することができたと言える。

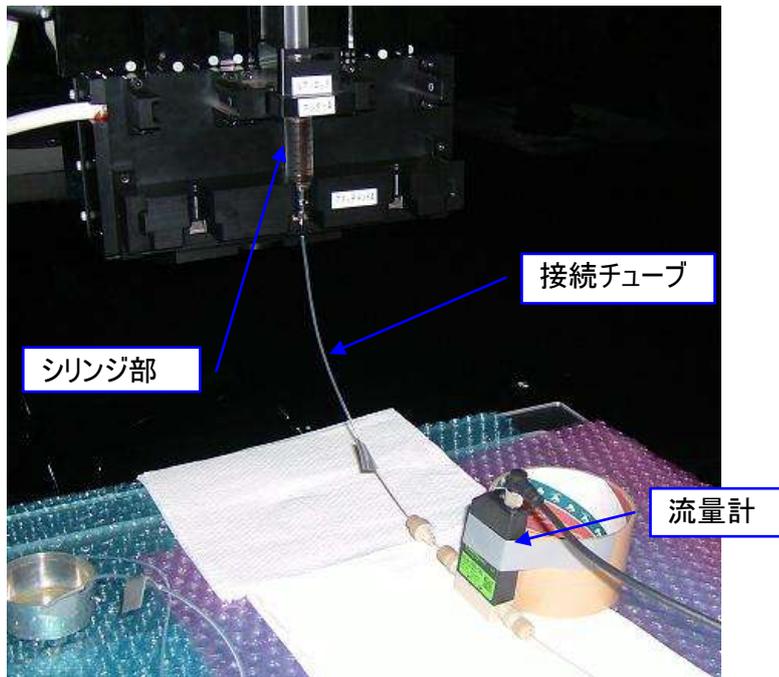


図4-1 送液速度測定実験の様子

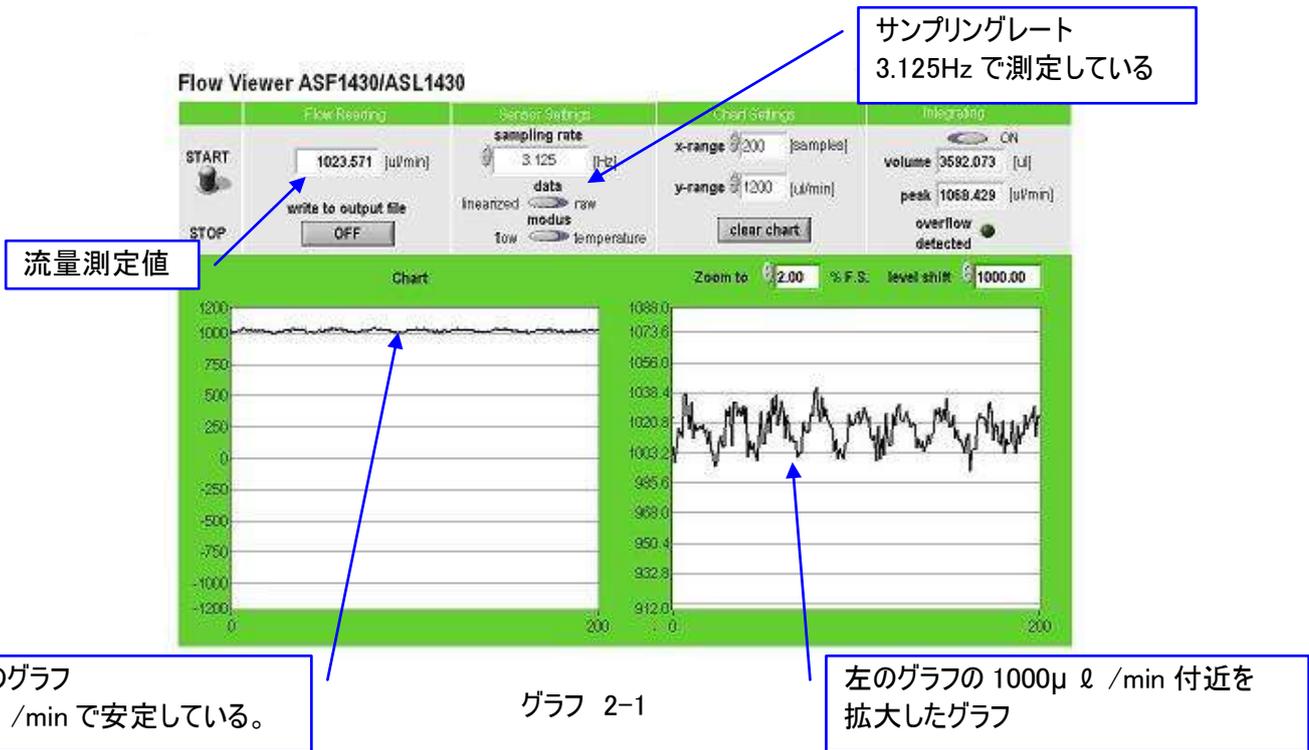


図4-2 送液速度測定結果（吐出速度 1000μ l /min）



图4-3 送液速度测定结果 (吐出速度 500 $\mu$  l /min)



图4-4 送液速度测定结果 (吐出速度 300 $\mu$  l /min)

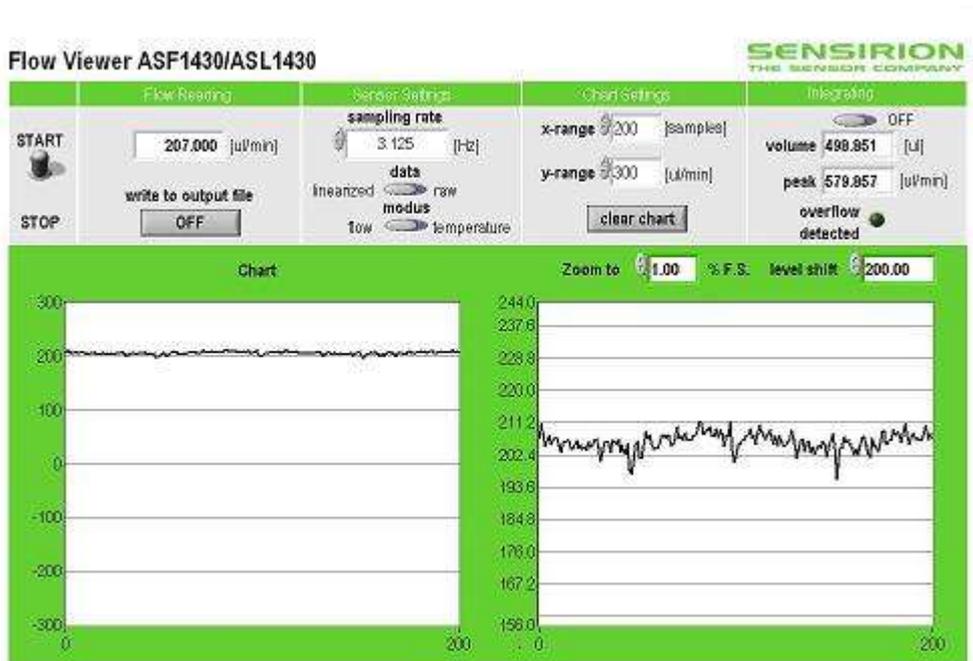


図4-5 送液速度測定結果（吐出速度 200µ l /min）

5) 吐出速度 100µ l /min （ASL1600-20 にて測定）

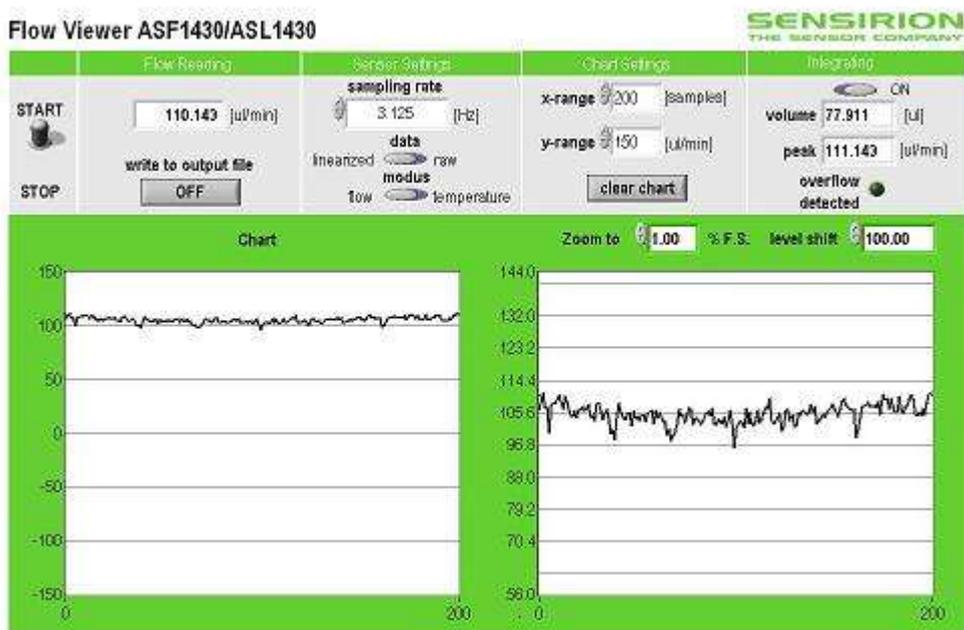


図4-6 送液速度測定結果（吐出速度 100µ l /min）

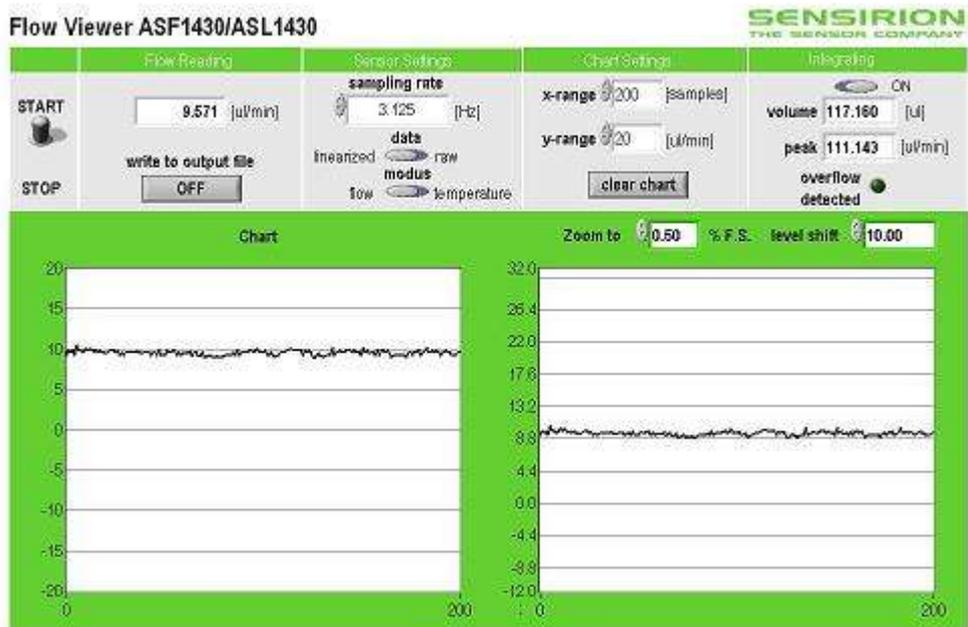


图4-7 送液速度测定结果（吐出速度 10 $\mu$  l /min）

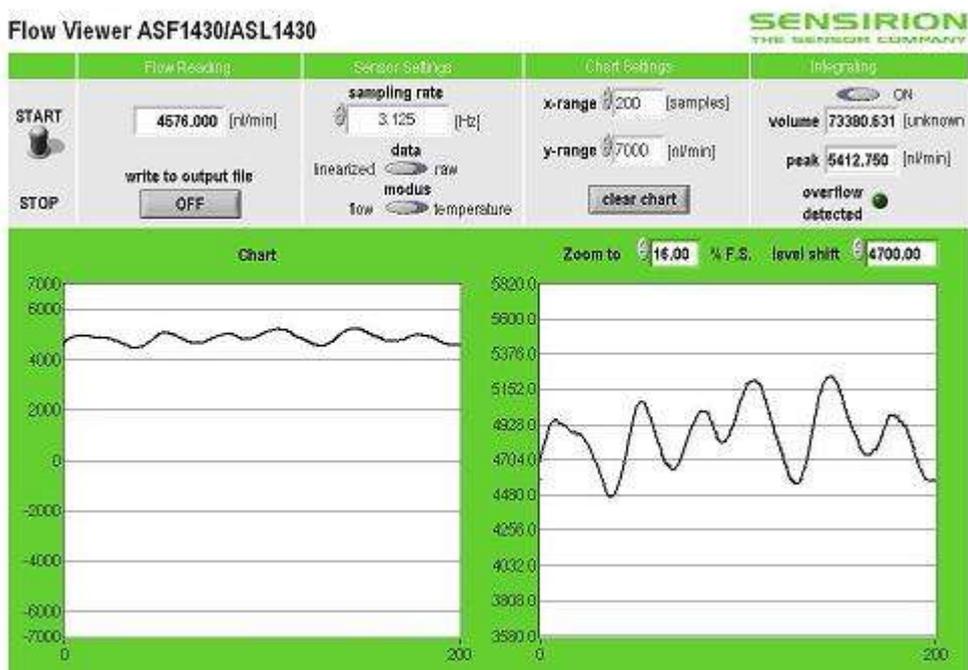


图4-8 送液速度测定结果（吐出速度 5 $\mu$  l /min）

Flow Viewer ASF1430/ASL1430

SENSIRION  
THE SENSOR COMPANY



图4-9 送液速度測定結果（吐出速度 1 $\mu$  l /min）

Flow Viewer ASF1430/ASL1430

SENSIRION  
THE SENSOR COMPANY



图4-10 送液速度測定結果（吐出速度 0.5 $\mu$  l /min）



図4-11 送液速度測定結果（吐出速度 0.1 $\mu$ l /min）

● **多様なスキニング機構の開発について**

200mm $\times$ 200mmの範囲へ均一に薄膜生成することを目標とし、400mm $\times$ 400mmサブストレートを $\pm$ 200mm移動可能なXYステージを開発した。図5にその構成図を示す。

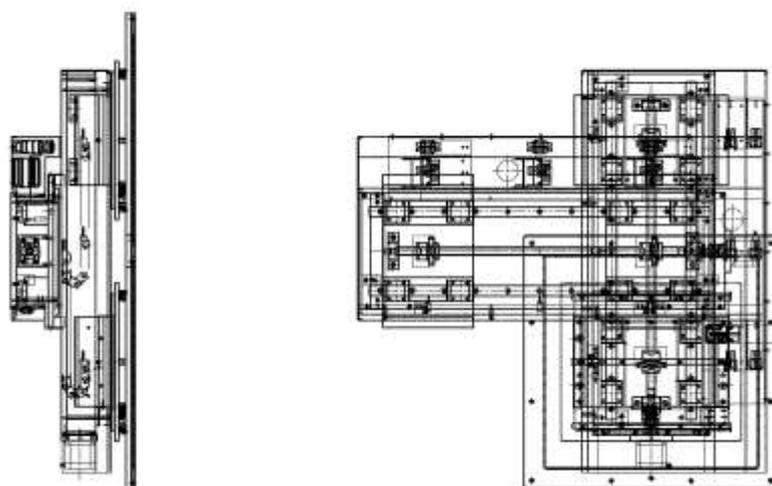


図5 XYステージ部の構成図

さらに、XY ステージ動作として、移動パターンを任意の位置、移動速度で動作できるように、制御機構を開発した。図6に移動パターンの設定画面を示す。

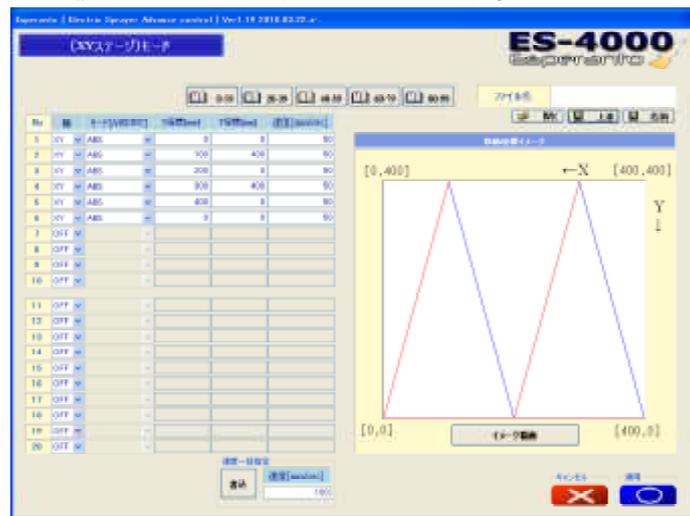
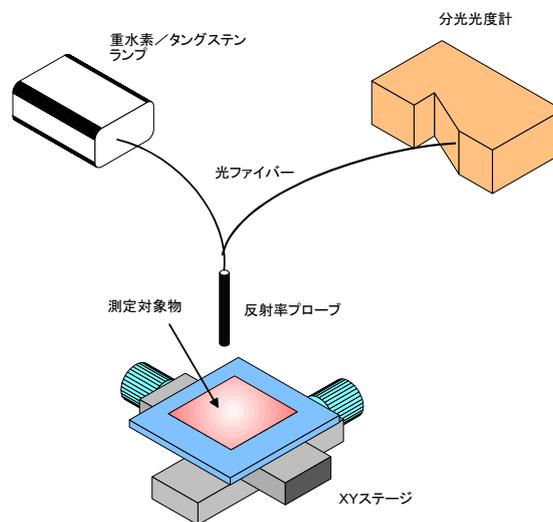


図6 移動パターン設定画面

### [1]-2 薄膜の膜厚評価技術の確立

薄膜の厚さを測定する方法は種々あるが、より簡便かつ生産ラインでの適応を考慮し、分光反射率計を用いた方法を開発する。分光反射率は、薄膜の屈折率、膜厚、薄膜材料の分光吸収率などの影響を受けるため厳密な測定にはエリプソメータのように偏光、光の波長などのパラメータをスキャンして得られたデータから複数の物性値を推定する手法が必要であるが、薄膜材料の種類、基板材料、目的とする薄膜の厚さなどを限定すれば分光反射率のみでも定量が可能であると考えられる。

・XYステージ上に光ファイバー式反射率測定プローブを設置し、基板の上をスキャンする。光ファイバーには広帯域光源を接続し、反射光を分光測定装置にて計測する。得られた分光反射率のうち、特定の材料に対して強く反応する波長域を選択して膜厚測定信号とする。得られた信号は、既存の測定手法（走査型電子顕微鏡、白色光干渉計）などの結果と比較し精度の確保を行う。こうして得られた測定結果を基にして、スプレーの膜厚の均一化を達成する。



分光反射率計の構成図

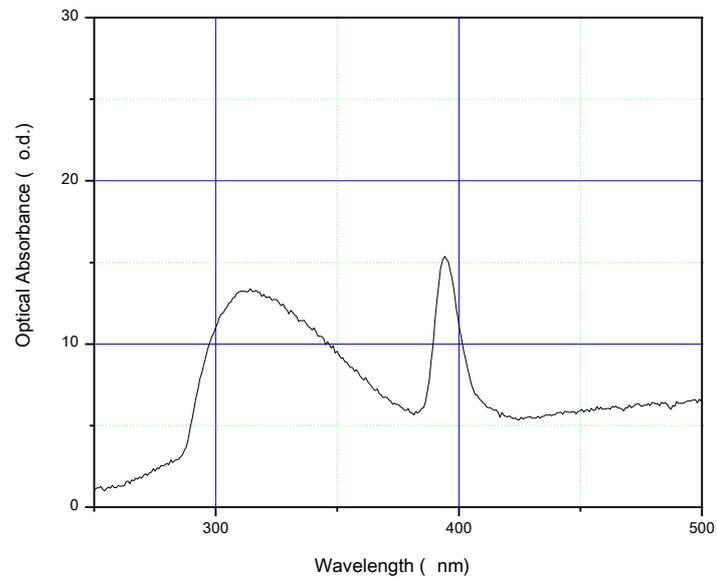
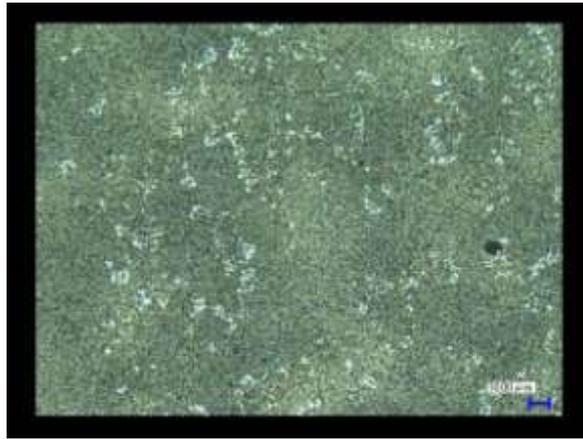
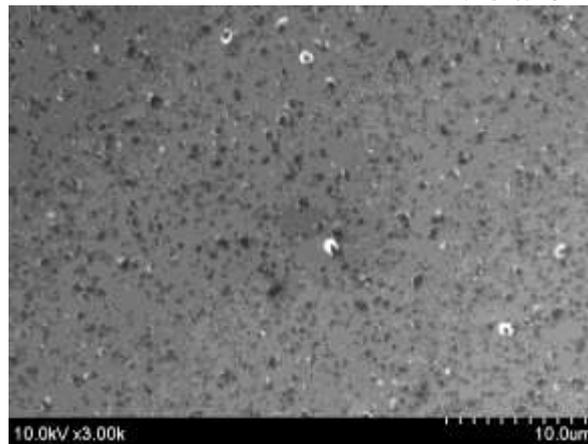


図7 分光測定結果の一例

膜厚の測定結果を既存の手法と比較するために、白色光干渉計、走査型電子顕微鏡、ビデオマイクロスコープ等による測定を行いデータを取得した。図7は、電子顕微鏡、ビデオマイクロスコープにて撮影された各種薄膜のモルフォロジー変化を示したものである。分子量の非常に大きなサンプルではファイバー状の構造が観察される。スプレー条件が最適化されていない場合は、凹凸の大きな薄膜となっている様子が観察される。さらに、膜厚を測定する手法として白色光干渉計による測定を実施した例を図8に示す。薄膜のエッジ付近を上手く測定することが可能であれば十分に評価可能であることがわかる。



ビデオマイクロスコープによる観察結果



電子顕微鏡による観察結果

図8 形成された薄膜の表面の評価

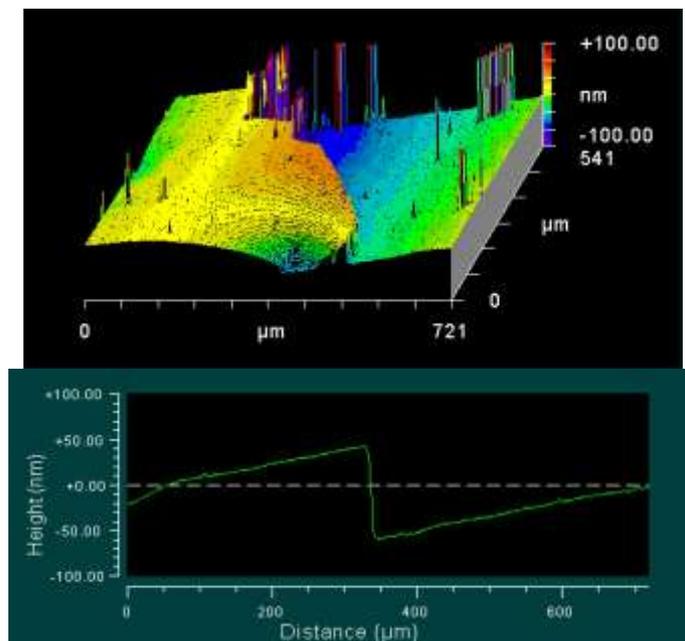
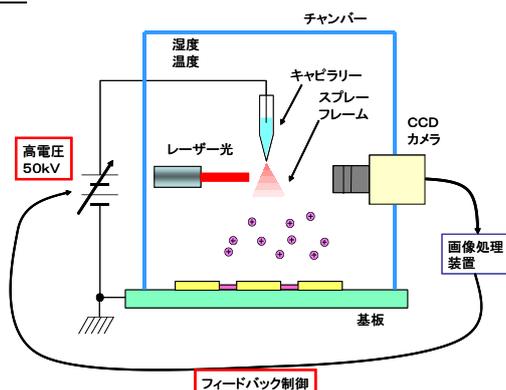


図9 白色光干渉計による膜厚測定

## [2] スプレー速度の向上



### [2]-1 高電圧駆動回路の開発

本計画ではスプレー速度向上のため、50kVまでの電圧を印加可能な高電圧回路を開発した。

最大電圧50kVを目標とし、膜厚変動が目標値を達成できる、出力電圧変動を抑えた高電圧電源を開発する。

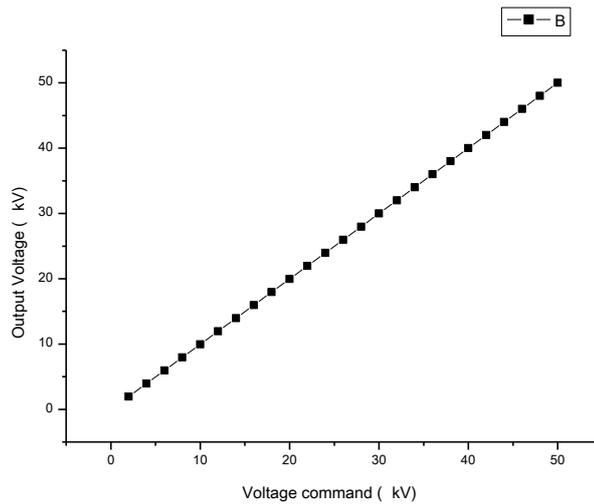
制御回路を用いて最適な安定電圧範囲を検証し、高電圧測定器により安定限界を探り、安定化高電圧を開発した。高電圧測定器により出力電圧の測定を行い、印加電圧が安定して供給され、目標が達成していることを確認した。

50kVまで印加された電圧を安定化させ、異常放電や漏電を防止するために抵抗を内蔵する回路の開発を行った。抵抗は50kVの電圧に耐えられ、かつ長期的に安定に絶縁状態が高いレベルで保たれる必要があるため、特殊絶縁用樹脂を注入し真空モールドにて作成を行った。また、異常電圧電流対処の為に、スプレー用高電圧の電流をモニタリングする回路の開発を行った。このモニタリング電流値を利用して異常電流が発生した場合に高電圧を遮断することで安全性の確保を行うことができた。

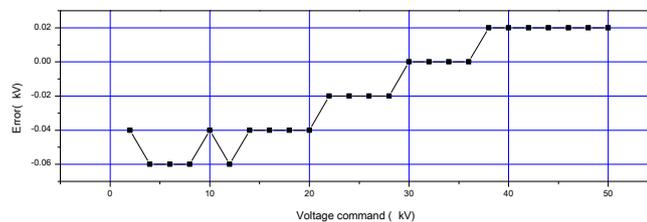
更に、製作された高電圧回路が正しく動作しているか確認するため、高電圧測定試験を実施した。高電圧試験は、高電圧電源回路の電圧モニター出力(0-10V)をPLC装置に接続し、その値が所定の電圧となるように電圧指令値(0-10V)を与え、出力された高電圧を高電圧デジタル電圧計にて測定することにより行った。表\*に測定結果を、図\*にそのグラフを示す。実験結果から安定して高電圧が供給できていることがわかる。

+50kV 高圧電源

高圧電源入力		高圧電源出力					
PLC からの電圧指令		出力電圧		電圧モニタ		電流モニタ	
出力値 (V)	(kV)	高電圧計 読み値	実電圧 (kV)	PLC DM 値	実電圧 (V)	PLC DM 値	実電流 ( $\mu$ A)
0.4	2	0.98	1.96	1199	0.400	293	0.977
0.8	4	1.97	3.94	2393	0.798	581	1.937
1.2	6	2.97	5.94	3591	1.197	891	2.970
1.6	8	3.97	7.94	4781	1.594	1193	3.977
2	10	4.98	9.96	5990	1.967	1493	4.977
2.4	12	5.97	11.94	7187	2.396	1793	5.977
2.8	14	6.98	13.96	8387	2.796	2093	6.977
3.2	16	7.98	15.96	9584	3.195	2391	7.970
3.6	18	8.98	17.96	10788	3.596	2693	8.977
4	20	9.98	19.96	11987	3.996	2993	9.977
4.4	22	10.99	21.98	13184	4.395	3293	10.977
4.8	24	11.99	23.98	14384	4.795	3591	11.970
5.2	26	12.99	25.98	15584	5.195	3891	12.970
5.6	28	13.99	27.98	16784	5.595	4193	13.977
6	30	15.00	30.00	17985	5.995	4493	14.977
6.4	32	16.00	32.00	19184	6.395	4793	15.977
6.8	34	17.00	34.00	20384	6.795	5091	16.970
7.2	36	18.00	36.00	21582	7.194	5393	17.977
7.6	38	19.01	38.02	22784	7.595	5693	18.977
8	40	20.01	40.02	23981	7.994	5993	19.977
8.4	42	21.01	42.02	25182	8.394	6293	20.977
8.8	44	22.01	44.02	26378	8.793	6591	21.970
9.2	46	23.01	46.02	27573	9.191	6891	22.970
9.6	48	24.01	48.02	28775	9.592	7191	23.970
10	50	25.01	50.02	29970	9.990	7490	24.967



電圧指令値と出力電圧の関係



電圧指令値と電圧誤差の関係

図 10 高電圧回路試験結果

### [2]-2 スプレー速度の制御

スプレー速度をあげるためには、スプレー電圧の選択だけでなく基板側の電圧設定・装置内の部材の材質/配置、等も検討する必要がある。

- ・ 高速・高精度のガストリート移動機構の開発

前述した、XY ステージ部の移動速度範囲を 0.1mm/sec~100mm/sec、200mm×200mm の移動範囲内で速度変動±1%を目標に定め開発を進めた。（注 この数値目標は今年度の目標数値には含まれていない。） X, Y 軸各軸のステージを 0.1mm/sec および 100mm/sec にて駆動し、その際の駆動時間をストップウォッチにより計測することで速度の検証実験とした。

計測結果から、最低速度、最高速度共に正常に得られていることが判明した。

### X軸

	計算値	実測値	判定
0.1mm/secで100mm移動	16m 40s 00	16m 40s 81	○
100mm/secで400mm移動	4s 00	4s 17	○
110mm/secで400mm移動	3s 64	3s 70	○

### Y軸

	計算値	実測値	判定
0.1mm/secで100mm移動	16m 40s 00	16m 40s 89	○
100mm/secで400mm移動	4s 00	4s 05	○
110mm/secで400mm移動	3s 64	3s 80	○

## ・スプレー速度の画像処理による制御

エレクトロスプレーは肉眼で確認することは困難であり、かつ電圧を高くし過ぎると、条件によってはスプレーではなくジェット上の大きな液滴が形成されサンプルの品質を著しく損なっていた。このため、従来は安定と思われる電圧で固定し、スプレーを実施していた。このことは、許容可能な最大スピードよりもかなり低い速度でスプレーが行われていたことを示唆しており、定量的なスプレー速度制御により速度向上の余地があると言える。そこで、スプレーの状態をレーザー光を照射した際に発生する散乱光の強度をCCDカメラと画像処理技術により定量的にモニタリングし、この数値を基にスプレー電圧を制御することで許容可能な最大のスプレー速度を達成する。

具体的には以下のような処理を行う。まず、ESD装置によりスプレーされているキャピラリーの先端付近にレーザーを照射し、その散乱光をCCDカメラで撮影する。(図11)撮影された画像の中で、スプレーフレーム部分のみを抽出できるようにROIを設定し、その内部の散乱光成分のみを抽出して積分する。積分された値を目標値と比較し、高ければスプレー電圧を減じ、低ければスプレー電圧を増大させるという処理を実施する。散乱光成分のみを抽出する方法としては、レーザー光がONの時の画像とOFFの時の画像を撮影し差分を取ることが有効と考えられる。図12にそのアルゴリズムを示す。こうしてえられた積分値は、スプレー速度を表現していると考えられるため、スプレー電圧や環境要因によってスプレー速度がどのように変動するかを定量的に知る手掛かりとなる。図13は、スプレー電圧と液面レベル、そしてスプレーフレーム積分値がどのように変化するかを示したものである。スプレー電圧を上昇させると、スプレーが開始するが、チャンバー内部の帯電等の理由により徐々にスプレー速度は低下してゆく。そのごわずかづづスプレー電圧を上昇させるとスプレーフレーム積分値は急激に増大する。このことは、液面レベルの変化からも読み取ることが可能である。この実験結果から、スプレー電圧とスプレー速度は必ずしも比例関係には無く、むしろ指数関数的な非線形な関係にあり、スプレー速度を正確に制御するには、スプレー電圧を極めて精密に制御する必要があることが分かる。スプレー速度とスプレーフレーム積分値の関係を調べるため、スプレー電圧を変化させながら行った実験の結果を図14に示す。スプレー電圧は3000V近傍のみを拡大して表示してあり、電圧の変化量はわずか200V程度であるが、スプレー速度は10倍以上変化しており、前記の非線形性が確認できる。さらに、スプレー速度(液面レベルの変化)とスプレーフレーム積分値をプロットしてみると、極めて高い相関性が観測される(図15)、スプレーフレーム積分値がスプレー速度に比例する有効な制御パラメータであることが確認できる。

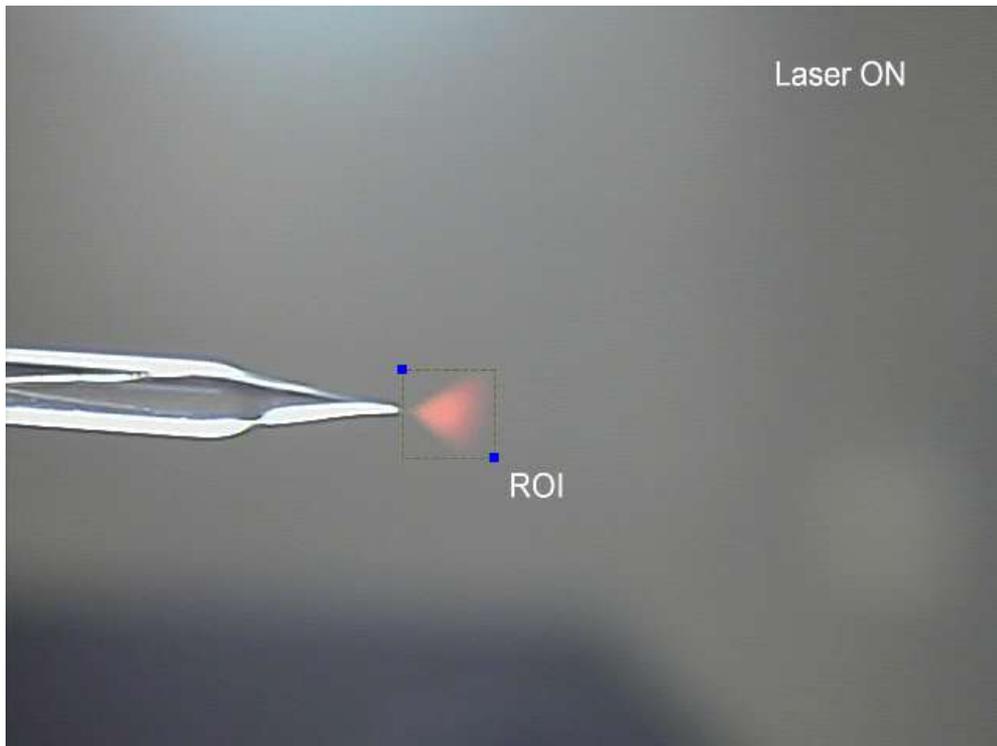
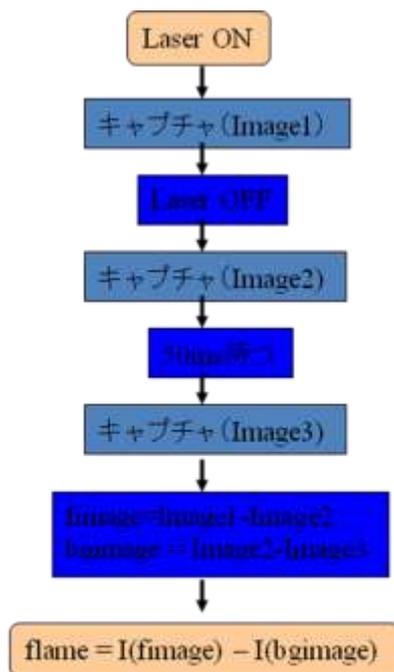


図 1.1 スプレーフレームのレーザー散乱光のイメージ



I()はROI内のピクセル値の総和

図 1.2 スプレーフレームの輝度積分値抽出アルゴリズムの例

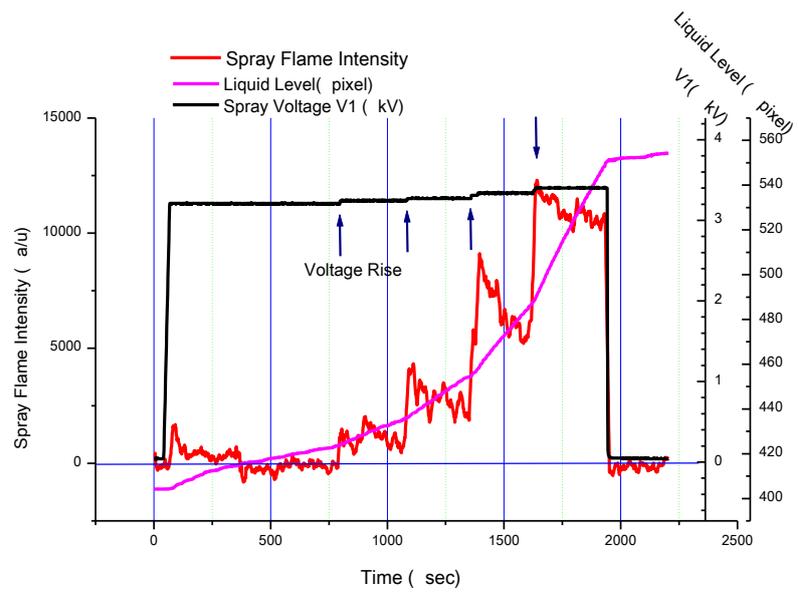


図 1 3 スプレーフレーム輝度積分値とスプレー電圧の関係

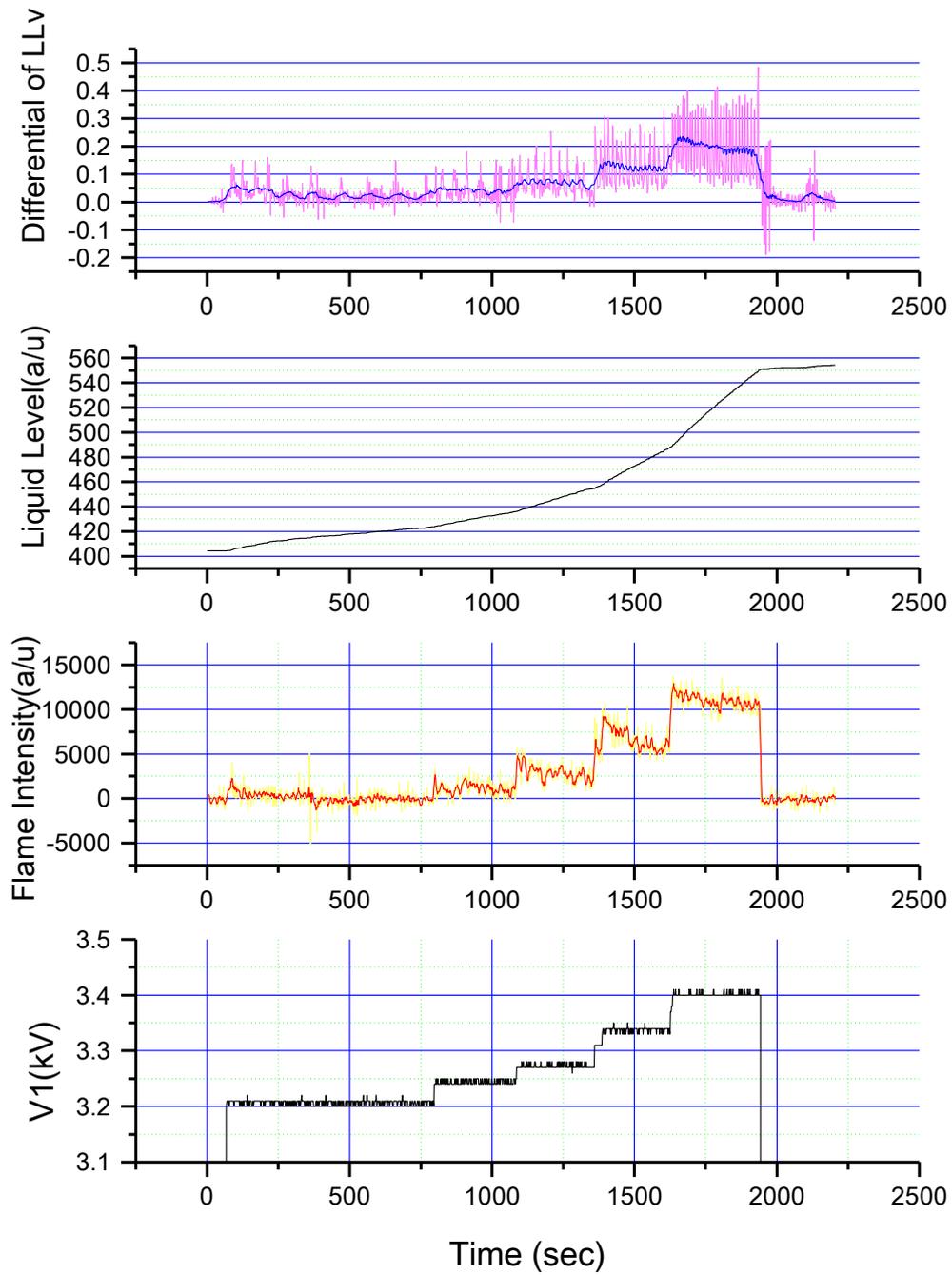


図 1 4 スプレー電圧とスプレーフレーム輝度積分値、スプレー速度との関係

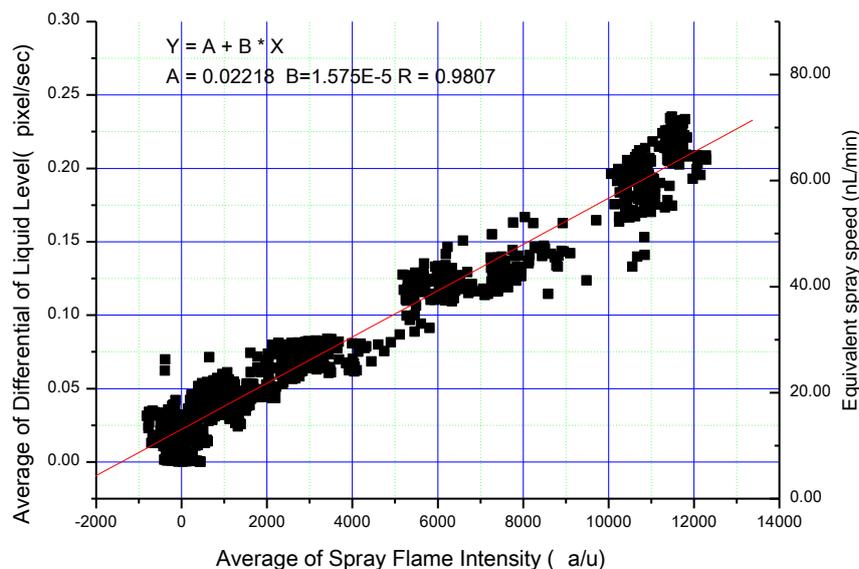


図 1 5 スプレーフレーム輝度積分値とスプレー速度との相関性

### [2]-3 ノズル形状の改良

スプレーの吐出量を増やすためにはノズルの形状が大きく影響することが分かっている。現状では1本のノズルでスプレーを実施しているため、これを複数射出口有するノズルに変え、スプレー速度の増大を図る。図16にESD法高速化のためのマルチノズル開発品の写真を示す。本ノズルには、10本のノズルが装備されており大量のサンプルを高速にスプレーすることが可能である。図18にデポジットされた基材の写真と走査型電子顕微鏡の写真を示す。スプレーヘッドを固定したままスプレー距離100mmにてスプレーした場合、ノズルの配置に対応したドット状にデポジットが形成されている様子が見られる。(図17)デポジットの微細構造は、電子顕微鏡写真からわかるように、通常のスプレーノズルで形成されるファイバーと同等のナノ構造を有しており、スプレーが正常に行われていることが推測できる。さらに、従来のノズルでのスプレー速度は10 $\mu$ L/min程度であったが、本開発品では、100 $\mu$ L/min程度とほぼ10倍の高速化を行うことが可能であることも確認できた。更に、スプレーデポジットの均一化を図るため、スプレー距離を150mmとして実験を行ったところ、図19のようにドーナツ状のデポジットが形成された。これらのことから、開発したマルチノズルはサブストレートのステージによるスキャンと同時に使用し、膜厚を均一化する必要があることが判明した。

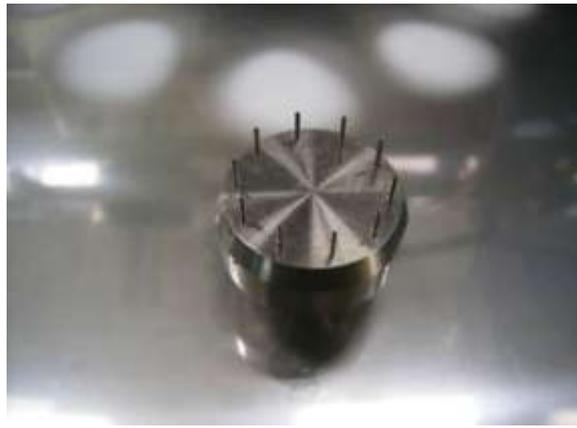


図16 開発したマルチノズルの外観



図17 スプレー距離10cmでのデポジットの様子

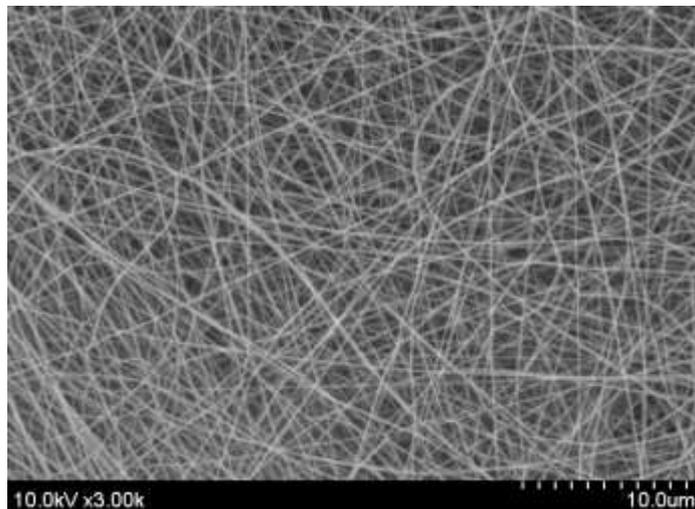
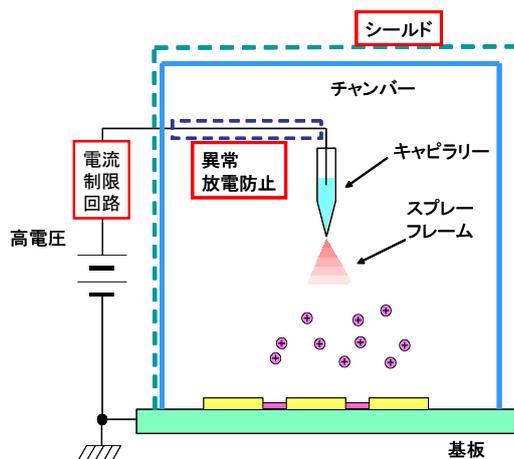


図18 デポジットの微細構造



図19 スプレー距離15cmによるデポジットの様子

### [3] 装置の安定化



#### [3]-1 高電圧ノイズ抑制方法

50KV程度の高電圧を印加すると、異常放電や突発的なコロナ放電が発生し、そのために装置自体が不安定となる可能性がある。このためこうした異常放電を抑止する対策を講じる。具体的には、高電圧が印加される回路の絶縁を厳重に行い、外部の導体との距離を十分確保し、静電容量的な結合を減少させる。さらに、スプレーノズル近傍でスプレーに必要な部分以外を絶縁性樹脂コーティング等により覆い、放電を抑止する。さらに、電氣的に孤立した金属部品等への帯電と放電を抑止するために、必要に応じて帯電防止処理を施した樹脂材料を使用する。これらの対策を組み合わせることで異常放電を防止する。図20に開発したESD装置のチャンバー内部の様子を示す。チャンバー内部には前記のような対策が施されており、安定したスプレーを実現可能となっている。

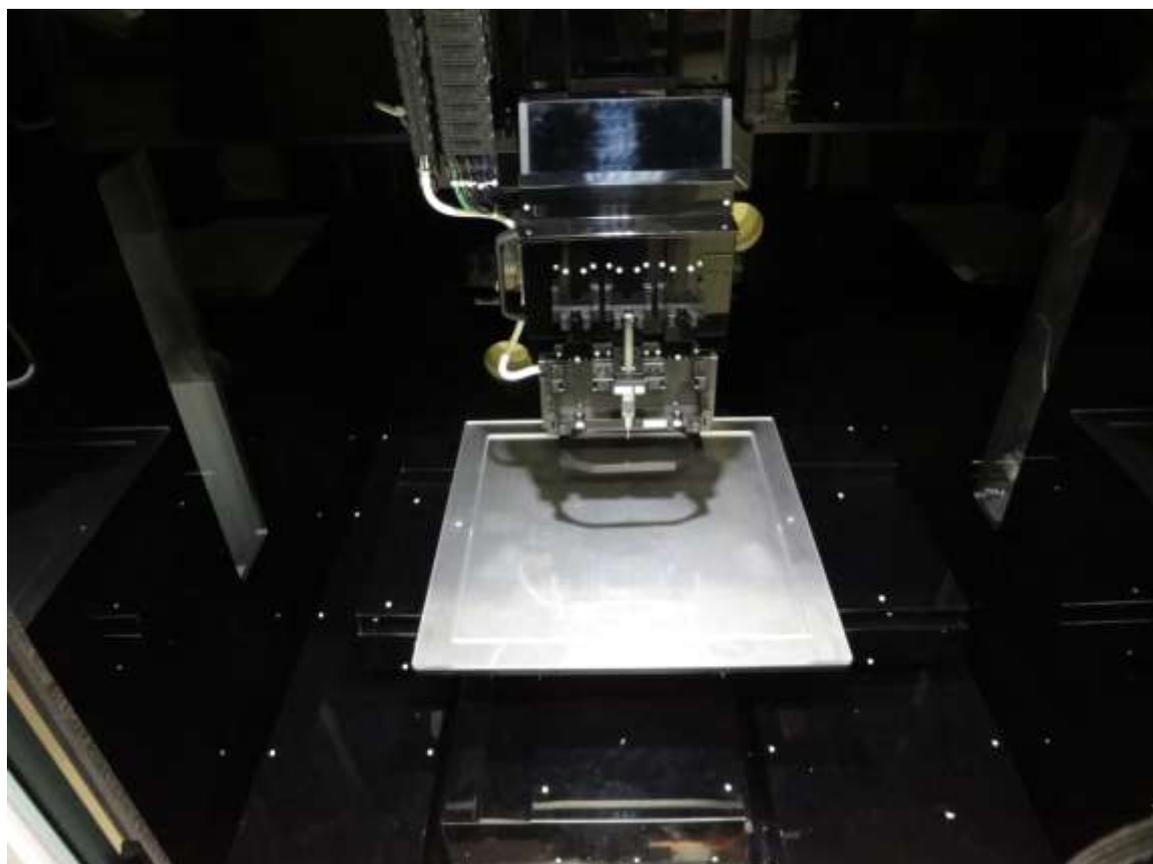


図20 チャンバー内部の様子

更に、安定したスプレーを実現するために高電圧回路の電流制限抵抗も漏電や異常放電の無い異様に対策をおこなった。図は、電流制限抵抗をシリコン系絶縁樹脂にてモールドした様子を示している。電流制限抵抗は、ESD法に必要な微少な電流(数 $\mu$ A~数十 $\mu$ A)を許容し、異常な放電電流を防止するために重要なものであるが、一方で漏電の原因とも成りやすい。このため真空モールドを実施することで、 $\mu$ Aオーダーの極めてわずかな漏電をも防止し、安定なスプレーを実現することができた。



図21 電流制限抵抗の絶縁樹脂によるモールドの様子

### **[3]-2 スプレー電圧制御法の検討**

スプレー電圧の制御は、膜厚の均一性・生産速度にも大きな影響があるが、装置の安定化にも最も重要である。[2]-2に記述したようなレーザー光線とその散乱光を画像処理する技術によりスプレー電圧を制御し、スプレーの安定化も実現する。この際には、スプレー速度は様々な要因で変動するため、こうした変動に対処するための制御手法を検討する。スプレーフレームの輝度が一定となるようにスプレー電圧を制御することで、さまざまな外乱によるスプレー速度の変動を安定化する。

これらの知見に基づき、スプレーフレームの散乱光輝度積分値を用いて、スプレー電圧の制御を行うソフトウェアを開発し、前記のESD装置へ適応した。図22にその制御画面を示す。スプレーフレーム散乱光積分値を用いてスプレー速度の制御が達成されている様子が確認できる。

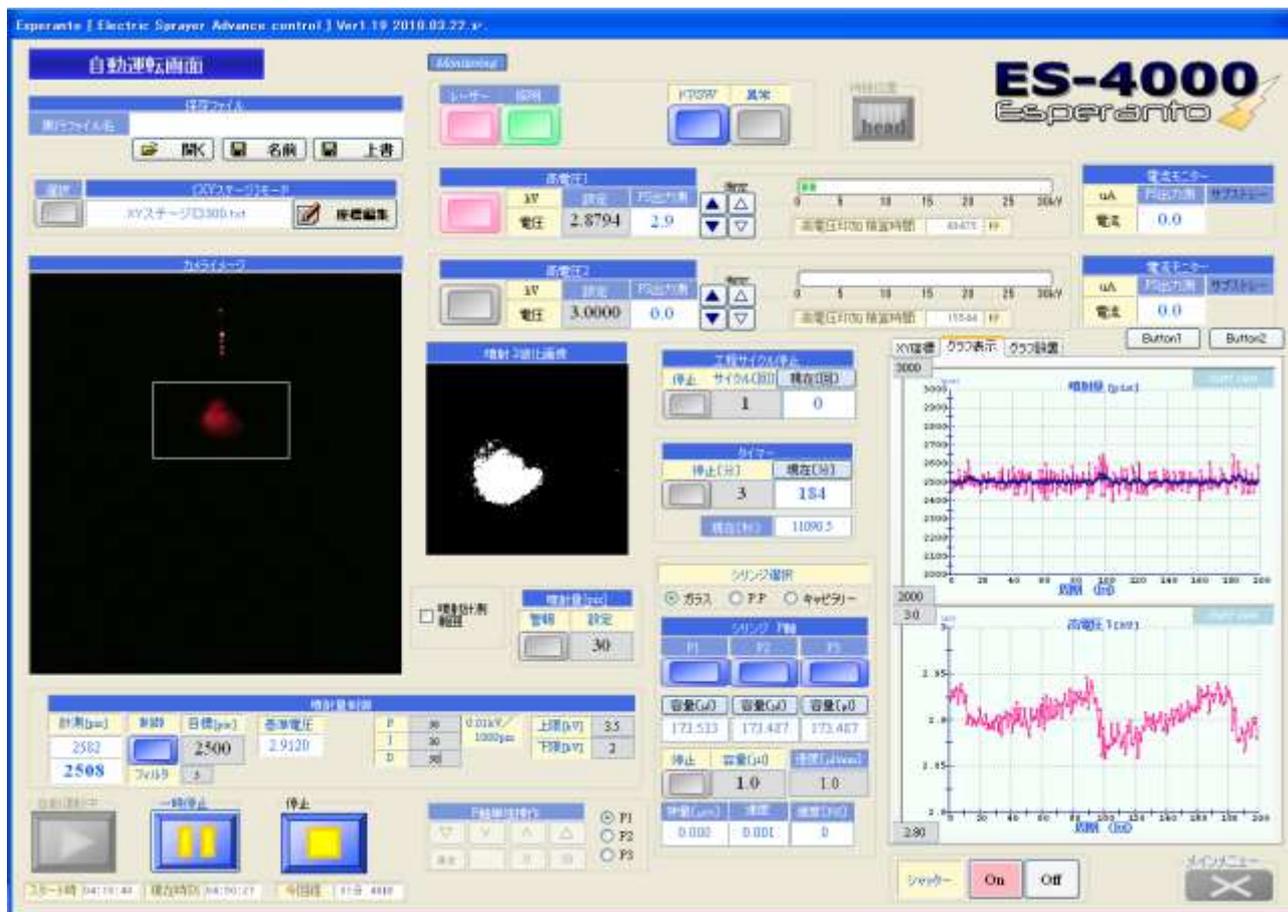


図22 スプレー制御の様子

### [3]-3 EMC 試験

前記のような対策を実施したとしても、高電圧使用による放電を完全になくすことは困難であると考えられる。たとえば、定常的な微弱な放電は、エレクトロスプレーと同時に起こっているとする研究結果もあり、こうした微弱な放電によるノイズは外部へ漏れいさせないと共に、装置本体への影響を防がなければならない。このために、装置本体から放射される電磁ノイズの測定を外部機関によって実施し、装置としての安全性を検証する。

EMC試験を外部機関に委託して実施した結果、電磁ノイズの放射自体は特に問題となるレベルでは無いことが判明した。しかしながら、内部の高電圧線等の取り回しに関しては安全上問題となる可能性がある点が判明したため、修正を行い製品の安全性、安定性の向上を行った。

### 第3章 全体総括

本研究開発課題「エレクトロスプレーデポジション（ESD）装置の数値制御による高精度化技術の研究開発」においては、新規な薄膜等形成技術であるエレクトロスプレー・デポジション法を用いて、有機、無機、金属、等の薄膜を形成し、電子デバイスの実装、有機半導体デバイス、有機ELディスプレイ等への展開を図るため、3点の大きな目標を立てて研究開発を推進した。第1の課題は、薄膜の均一性の向上であり、製造現場では極めて重要な課題であるが、新たに開発されたESD装置により、200mm x 200mmの範囲において均一な薄膜を形成できる見込みが立ち、評価方法もほぼ確立することができた。第2の課題は、スプレー速度の向上であり、生産性を向上し、コストを下げるために、高電圧スプレー（50kV）技術の開発、スプレー電圧の制御法の開発、新たなスプレーノズル形状の開発を行い、速度の大幅な向上が可能であることを確認できた。第3の課題は、スプレーの安定性の向上であり、異常放電等を防止するための筐体、実装技術の開発、スプレー電圧の精密な制御による安定化そしてEMC試験による装置としての安定性の検証を行った。

以上の3点の開発課題を実施したことにより、ESD法は実用的な薄膜生産手法としての完成度が一段と向上し、ESD装置の製品力が大幅に高まったと考えている。

今後は、主にフューエンス社が中心となり様々な分野へのESD装置の販売を進めてゆく方針である。具体的には、有機材料の薄膜のコーティングが必要とされている分野が極めて有望な市場である。例をあげると、液晶ディスプレイ用のカラーフィルター材料の塗布や有機ELディスプレイの発光体の塗布工程などである。今回開発した装置は、本格的な量産設備にはまだ規模が不足であるが、200mm x 200mmのスプレーが可能となったことで、パイロット的な生産レベルでの実証には十分な能力を備えていると考えられ、更なる大型化設備の開発へもつながる技術開発ができたと考えている。また、EMC試験をはじめとする安全性、安定性の試験が実施できたことで、海外市場への展開の可能性も高まっており、国内のみならず海外市場への販売活動も引き続き推進する予定である。