

2023年度 各務記念材料技術研究所共同研究報告書

研究課題名	次世代 MLCC 応用に向けた 100℃以下溶液プロセスによる金属/セラミックス積層界面
重点課題	Ⅲ-A (省エネルギーとプロセス)
新規・継続	継続
研究代表者	スガハラ トオル
氏名	菅原 徹
所属機関・ 部局・職名	京都工芸繊維大学 材料化学系 教授

研究目的

現在、精密電子デバイスでは、金属、半導体、絶縁体などの材料が物理蒸着法により製造されているが、これらのプロセスが溶液プロセスに置き換われば、20%のコスト削減が見込まれる。本研究の目的は、有機金属分解 (MOD) 法による低温セラミックス成膜技術により、セラミック/金属ナノ薄膜構造を実現することで、省エネ・低コストで電子デバイスのプロセス技術を開発する。そのため、セラミック/金属積層界面での元素の拡散現象や、結晶構造を解析することは非常に重要な研究課題である。

実験内容と研究成果

エタノール系の TiO_x の前駆液で基板上に低温（100℃前後）と高温（600℃）で成膜されたセラミックス(TiO_x) / 金属積層界面を調整した。

低温調整（100℃前後）においては、前駆液の成分比率が異なる2種類を調整し、成膜された TiO_x を XRD で分析・解析した。高温成膜では、 TiO_x の前駆体溶液にそれぞれ Cu, Co, V, Mn を添加した前駆体溶液から基板上に高温（600℃）で成膜された TiO_x 薄膜を、XPS などを活用して各種元素の結合状態を分析・解析した。

表 1 に示したように、エタノール系溶媒を用いた2種類の TiO_x 前駆体溶液を光焼成による低温成膜した。図 1 に XRD 分析の結果と示す。サンプル 1 は弱いアナターゼのピークが、サンプル 2 は強いアナターゼの強いピークと弱いルチルのピークが観察できた。この結果より、光焼成処理で TiO_x が結晶化している可能性が示唆された。また、前駆体溶液 1 と比較して、前駆体溶液 2 が結晶化し易いことが分かった。

図 2 に示したように、高温成膜サンプルの XPS 分析による $Ti\ 2p_{3/2}$ のピークを比較すると、各種元素を添加していない TiO_x 薄膜サンプルに比べて、Co, Cu, Mn を添加した TiO_x 薄膜サンプルは、結合エネルギーが低エネルギー側に若干ピークシフトしていることが分かった。V が添加された TiO_x 薄膜サンプルは、結合状態エネルギーが高エネルギー側へシフトしている。また、V が添加された TiO_x 薄膜サンプルの $O\ 1s$ ピークが2つに分かれており、酸素(O)に2種類の結合状態があることも示唆された。これらのことから、V が添加された TiO_x 薄膜サンプルは、 TiO_x 以外にバナジウム酸化物(V_2O_3)などが出来ている可能性が考えられる。

前駆液	TTIP	酢酸
1	10	1
2	19	1

表 1. エタノール系 TiO_x 前駆液の成分比率

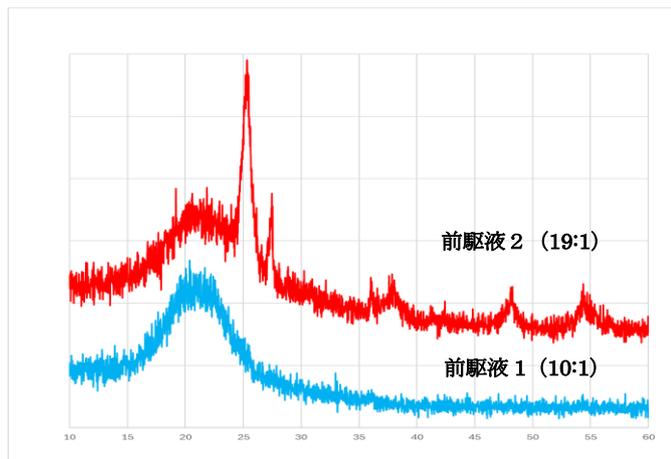


図 1. 光焼成で成膜された TiO_x 薄膜の XRD 分析結果

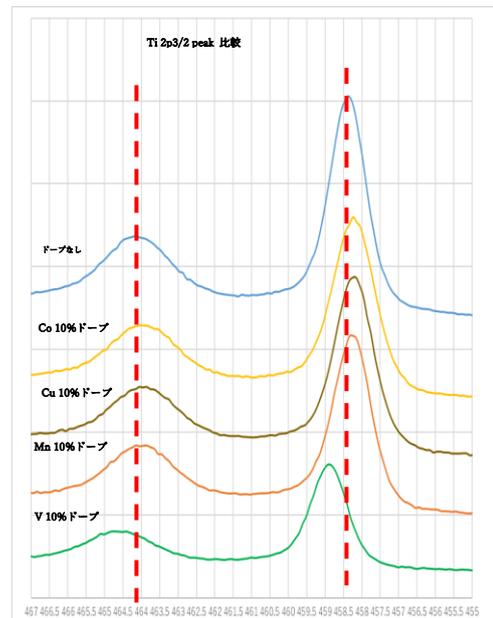


図 2. 600℃で焼成成膜された TiO_x 薄膜の XPS 分析結果

今年度は、前駆体溶液の成分比率を変え、光焼成の条件を見直すことで、光焼成による低温での酸化チタン（アナターゼ、ルチル）結晶の結晶化に成功した。また、光焼成での成分比率を調整することで、結晶化する度合いを制御することも可能となった。さらに、前駆体溶液の Ti モル比率(10%)で Cu, Co, V, Mn 元素を添加した結果、チタン周辺の結合状態が変化していることから、元素ドーピングが成功している可能性が高いと判断した。また、バナジウムを添加した添加された TiO_x 薄膜サンプルは、酸素(O)周りに2つの結合状態が観察され、チタンの結合状態も大きく変化していることから、酸化バナジウム等が生成されている可能性が示唆された。今後は、低温焼成について検討し、フレキシブル基板への成膜や元素添加された TiO_x の低温成膜（光焼成等）に取り組む予定である。

研究成果の公表状況（論文、国際・国内会議、学会発表、特許等の知財）

次年度内での投稿を目指して投稿論文を執筆している。