

マグネトロンスパッタ法による蛍光体粒子への 薄膜コーティング

菅原智明、山田俊一*、田谷嘉浩

Thin Film Coating on Phosphor Particles by Magnetron Sputtering

Tomoaki Sugawara, Shunichi Yamada* and Yoshihiro Taya

要 旨

蛍光体粒子の表面に保護膜を形成するため、マグネトロンスパッタ法で薄膜コーティングを試験した。アルミニウムターゲットを用い、粒子を攪拌しながら反応性スパッタすることにより、蛍光体粒子表面に窒化アルミニウムを均一に成膜することができた。

蛍光体の応用として、蛍光灯、白色 LED、エレクトロルミネッセンス (EL) 素子などが知られている。中でもシート状の面光源である分散型無機 EL は、蛍光体粒子を合成樹脂に分散させたものを発光層としており、信頼性に優れるという特長から、船舶、航空機、電車の計器用照明、車載用インテリア照明に利用されている。図 1 に分散型無機 EL の断面構造を示す。無機 EL の蛍光体としては、硫化亜鉛 (ZnS) に銅やマンガンを添加したものが主に使われている。分散型無機

EL の作製は、ITO 透明電極フィルム上に ZnS 蛍光体からなる発光層をスクリーン印刷等で塗布形成する。続いて発光層の上にチタン酸バリウム (BaTiO_3) 誘電体層を形成した後、背面電極層としてカーボン等の導電フィラーを積層する。最後に素子の絶縁性と防水性を高めるため、パッケージフィルムでラミネート加工して完成となる。発光については、素子に 50 Hz から 1 kHz 程度の交流電圧を印加すると、ZnS 蛍光体に高電界が加わり、ルミネッセンスが生じる。

分散型無機 EL の課題としては、長寿命化や高輝度化などがある。分散型無機 EL を長時間使用すると、ZnS 蛍光体粒子の表面が酸化して劣化する¹⁾。蛍光体の劣化を抑制するためには、化学的に安定な材料で蛍光体粒子表面を保護することが有効と考えられる。そこで本研究では、蛍光体粒子の劣化抑制のため、スパッタ法による蛍光体粒子への薄膜コーティングについて検討することとした。コーティング材料としては酸化物、窒化物が候補であるが、今回は窒化アルミニウム (AlN) について報告する。

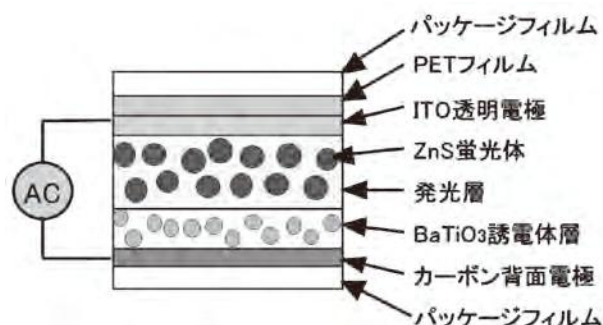


図1 分散型無機 EL の断面構造

* 株式会社セコニック電子

責任著者連絡先 (Tomoaki Sugawara) : sugawara@techakodate.or.jp



図2 スパッタコーティング用真空チャンバの内部構造

薄膜コーティングには高周波マグネトロンスパッタ装置（(株) 菅製作所製 SSP1000）を用いた。この装置には、真空チャンバの縦置き、横置き、斜め置きのいずれの置き方でも成膜が可能という特長がある。実験では真空チャンバを45度傾斜させて使用した。スパッタ用ターゲットには純度99.9 % のアルミニウム、スパッタガスとして窒素を20 % 混合したアルゴンガスを使用し、試料皿に入れた蛍光体粒子を攪拌しながら反応性スパッタを行った。スパッタ条件として、高周波電力を50 W、ガス圧力を0.5 Paとした。蛍光体粒子の攪拌の様子を図2に示す。ステージを回転させると、試料皿の中の蛍光体粒子は上昇し、途中に取り付けられているブレードで下方に押し返され、昇降を繰り返しながら攪拌される。

蛍光体粒子へのコーティングに先立ち、石英ガラス基板に成膜し、窒化アルミニウム（AlN）薄膜の組成と結晶構造について分析した。オージェ電子分光分析の結果、AlN 薄膜の組成はAl:N:O=1.00:0.88:0.13であることが分かった。膜に酸素が含まれる理由としては、真空チャンバに残留していた水分や酸素がAlと反応したためと考えられる。図3に、AlN 膜の X 線回折測定結果を示す。X 線回折パターンには強い回折線が見られないことから、配向性はほとんどなく、非晶質な膜であると考えられる。

蛍光体粒子表面へ AlN を240時間スパッタコーティングした試料について、エネルギー分散 X 線分光（EDS）分析を行った。図4に、蛍光体の EDS 元素マッピング結果を示す。EDS 分析では特性 X 線を検出するため、膜が薄い場合は下地の蛍光体も検出される。この図から、アルミニウムと亜鉛のマッピング像は一致しており、蛍光体

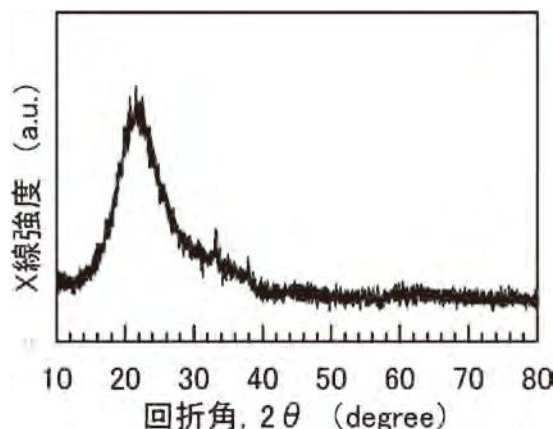


図3 石英基板に成膜した AlN 膜の X 線回折測定結果

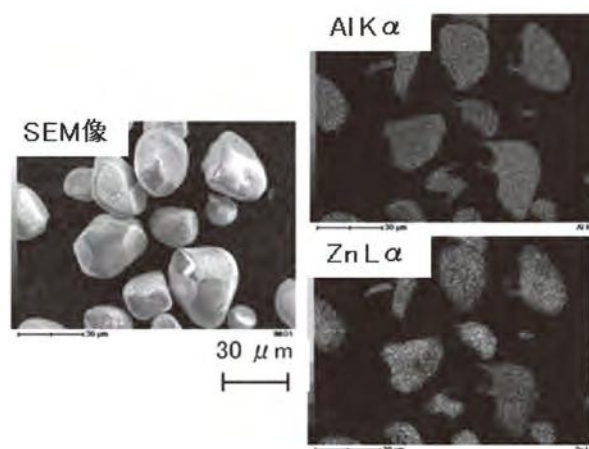


図4 AlN で被膜した蛍光体の EDS 元素マッピング結果

粒子全体にコーティングされていることが分る。表面の元素濃度の斑も見られないことから、膜厚はほぼ均一であると考えられる。

蛍光体粒子表面の AlN 膜だけを分析するため、オージェ電子分光分析を行った。分析の結果、粒子表面にはアルミニウムと窒素の他に酸素が検出されたが、蛍光体由来の亜鉛と硫黄については検出されなかった。このことから、蛍光体粒子の表面は AlN で完全に覆われているが、AlN 膜の極表面の一部は酸化しているものと考えられる。また、オージェ深さ方向分析の結果、コーティングされた AlN 膜の厚さは約130nm であることが分かった。

本報告のまとめとして、反応性スパッタにより、蛍光体粒子の表面に薄膜コーティングを試みた。試験の結果、粒子を攪拌しながらスパッタすることで、AlN 薄膜が均一にコーティングされることを実証した。薄膜コーティングした蛍光体を用

いて分散型無機 EL を試作した結果、劣化抑制に効果が認められた。今後は製品化に向けて最適な膜厚、材質についてもさらに検討したいと考えている。

謝 辞

本研究は経済産業省「ものづくり中小企業・小規模事業者試作開発等支援補助金」により実施した。成膜装置の改良に関してご協力いただいた（株）菅製作所の栗谷川準氏に感謝する。

参考文献

- 1) 菅原智明、山田俊一、下野功：北海道立工業技術センター研究報告、No.5(1998)、P30～34