

時間的・空間的隔たり産み出すミスト流を用いた新反応制御技術の開発

Development of novel reaction control technology for thin film fabrication using mist flow generating spacial & time gap

高知工大¹, シスエ², 環境理工³ ○川原村 敏幸^{1,2}, 鄧 太 江¹, 刘 丽², E.K.C. プラデーブ¹,
龍田 宗孝³, 古田 守³, 須和 祐太², 佐藤 翔太², 中曽根 義晃², 山沖 駿友², 西 美咲²,
小林 勇亮², 坂本 雅仁², ルツジャン ヒモンパン²

Res. Inst.¹, Sys. Eng.², Env. Sci. Eng.³, Kochi Univ. of Tech.

○Toshiyuki Kawaharamura^{1,2}, Giang T. Dang¹, Li Liu², E.K.C. Pradeep¹, Munetaka Tatsuta³,
Mamoru Furuta³, Yuta Suwa², Shota Sato², Yoshiaki Nakasone², Shunsuke Yamaoki², Misaki Nishi²,
Yusuke Kobayashi², Masahito Sakamoto², Phimolphan Rutthongjan²

E-mail: kawaharamura.toshiyuki@kochi-tech.ac.jp

ー 背景 ー

機能膜は、潤滑、不動態化、防湿等のためのコーティングや電子デバイス用途等、我々の生活を支える非常に重要な材料である。この機能膜に関して、人類は近年、要望に応じた特性の良いデバイス利用を目的に、自然界に存在しない特徴的な特性を有する多元系の機能膜を設計し開発・利用してきている。ところで、汎用の平衡反応プロセスを利用して、多元系機能膜を作製するには多数の原料を同時に供給する必要がある。しかし、それぞれの原料の反応速度差や原料同士の複合反応により、成膜速度や組成比を上手に制御できず、設計通りの薄膜を作製することができないという問題が生じる。これは平衡反応系プロセス全般に共通の問題で有り、先送りにされてきた問題である。対し著者は、ミスト CVD が本問題の解決手段と成り得ることに気がつき、その理論を元に構想した実験系を構築し実証したので、本発表にて報告する。

ー ミスト CVD の利用により上記問題が解決する理屈 ー

従来の平衡反応系機能薄膜作製技術は、気相、もしくは、液相下で機能膜を作製する単相のプロセスであった。一方ミスト CVD[1,2]は、ミスト流という気液混相下で機能膜を形成する多相のプロセスであり、単相プロセスに比べ成長に関するプロセスの自由度が一つ高い事がわかる。ミストは気相中に浮遊する液滴であるが、液と気の相界面では原子の移動が制約され、液滴間の原子の相互作用はほとんど皆無であると言える。また本研究で利用している成膜条件(単位体積当たりの液滴数: 約 10^{11} 個/ m^3 、液滴径: 約 $10\ \mu\text{m}$)では液滴が気相中に約 $200\ \mu\text{m}$ 間隔で分布しており、衝突する可能性は限りなくゼロに近い(液滴同士の相対速度: $v_{\text{ave}} \approx 0\ \text{m/s}$ 、平均自由行程: $\lambda \approx 63\ \text{mm}$)。これらの時間的・空間的な隔たりを利用すれば、上述した単相流体中で起こるような予測が困難な複雑な反応を無視し、多元(混晶)系機能膜の成膜速度や組成比を制御できるのではないかと考えた。

ー 実験結果 ー

ミスト CVD により作製した各種機能膜の成膜速度及び組成比について調べた結果を図1にまとめる。単元系材料(AlO_x)の場合、膜厚や組成比は成長温度に対し単調な相関が見られるが、多元系材料(IGZO, YIG, 他)の場合、成膜速度、組成比を全く制御できていない事がわかる。一方、上述理論を元に構築した実験系を利用し作製した多元系材料(AlGaO)では、成膜温度を変更すると、単調に成膜速度が増加している様子が確認され、複雑な反応を抑制できていることが示唆される。

当日は、本理論・実験結果などに関してより詳細に報告する。

[1] T. Kawaharamura, JJAP 53 05FF08 (2014) [2] T. Kawaharamura, et al., APL 109 151603 (2016)

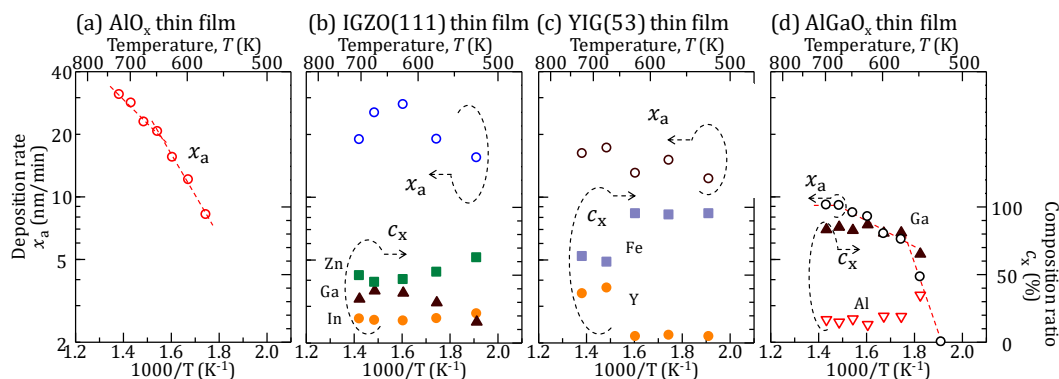


Fig. 1 Temperature dependences of deposition rates and composition ratios in the thin films fabricated by mist CVD.