

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 3

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

高知工大 シスエ¹, 総研² ルツジャン ヒモンパン¹, 刘 丽¹, 西 美咲¹, 坂本 雅仁¹, 佐藤 翔太¹,

上田 真理子¹, E.K.C. プラディプ², 鄧 太 江², 川原村 敏幸^{1,2}

School of Sys. Eng.¹, Res. Inst.², Kochi Univ. of Tech. Phimolphan Rutthongjan¹, Li Liu¹, Misaki Nishi¹, Masahito Sakamoto¹, Shota Sato¹, Mariko Ueda¹, E.K.C. Pradeep², Giang T. Dang², 〇Toshiyuki Kawaharamura^{1,2}

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

ー 背景 ー

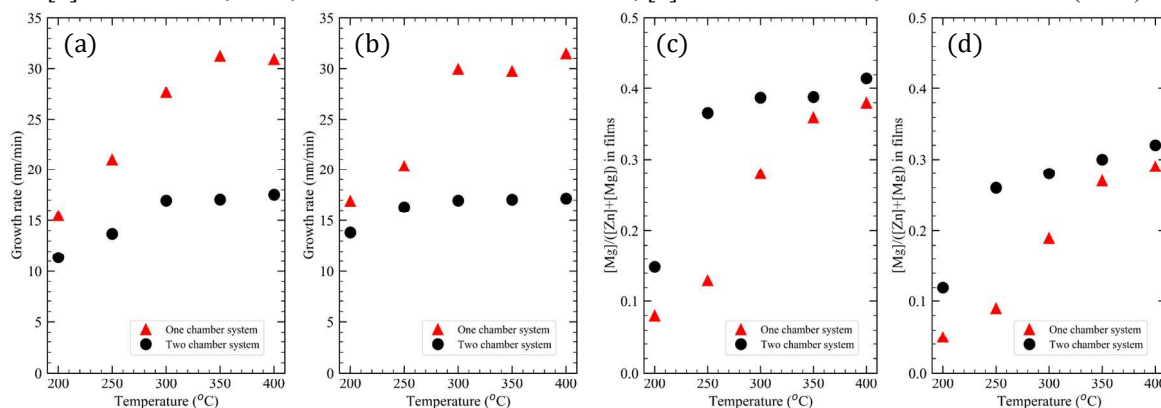
前々回、前回の発表で、ミスト液滴の時間的・空間的な隔たりを利用する事により単相流体中で起こるような予測が困難な複雑な反応を無視し、多元(混晶)系機能膜の成膜速度や組成比を操作できる事を発見し、また実験を通じて本理論が正しい事を示した[1]。この反応制御技術を備えたミスト CVD をこれまでの開発状況から以降第3 世代ミスト CVD と記すが[2]、本発表では第2 世代ミスト CVD を用いて作製した薄膜と比較し、第3 世代ミスト CVD の威力について報告する。

ー 実験と結果 ー

180°C と 270°C で熱分解する Zn 源($\text{Zn}(\text{acac})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$)と Mg 源($\text{Mg}(\text{acac})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)を利用し、石英基板上に ZnMgO 薄膜を作製した。作製した膜の成膜速度は高温では一定となり、低温では低下する。高温では供給された原料が十分に分解され成膜速度が供給量に律速され、低温では原料の熱分解に必要な熱量が得られず成膜速度が低下するためであると考えられる。薄膜内 Mg 混入量は、基本的には Mg 源の熱分解温度前後で分けることができ、低温側では温度上昇に伴い単調に増加する傾向であり、高温側では温度上昇に伴い変化がほとんど無くなる。これは Mg 源を分解するのに必要なエネルギーが高温では充分であるのに対し低温では足りないからであると言える。原料仕込量と成膜速度および組成に関して注目すると、成膜速度はどちらの原料仕込量でも同様である。Mg 仕込量が少ないほどより低温から安定化することがわかる。また組成は原料仕込量との相関がある様子が見られる。これらのことから反応器に到達している総原料量が一定であり、かつ反応炉内原料滞留時間が両原料の熱分解速度に対して充分長いことがわかる。またそのため反応炉に到達しているそれぞれの原料供給比に伴い薄膜内組成比が依存する。最後に成膜速度の変曲温度の違いや組成比の違いから、反応経路が第2 世代および第3 世代のシステムでそれぞれ異なっていることが推測される。第2 世代システムを用いた場合、両原料が溶液中に混合しているため Zn と Mg のイオン化傾向に従い Mg 源の安定化が起こり、充分な熱分解を果たすためにより高温が必要となっているのに対し、第3 世代システムを用いるとその溶液中の原料状態の複雑化が避けられ、Mg 源の熱分解温度よりも高温であれば、原料分解に充分な熱量を得られ、薄膜をどちらのシステムで作製したとして組成比が同等になると説明することが可能である。

これらの結果は自身が提唱した理論の裏付けを示唆する。講演では作製膜の光学特性、結晶性、表面状態などを踏まえより詳細に報告する。

[1] 川原村敏幸, et al., 第 64 回応物春季 17a-502-9, [2] T. Kawaharamura, JJAP 53 05FF08 (2014)



Relationship of growth rate and growth temperature of the ZnMgO films grown by 2nd and 3rd mist CVD system at the Zn:Mg precursor ratio of (a) (1:1) and (b) (3:2). Relationship of Mg composition ratio and growth temperature of the ZnMgO films grown by 2nd and 3rd mist CVD system at the Zn:Mg precursor ratio of (c) (1:1) and (d) (3:2).