ミスト CVD における薄膜成長メカニズム

Thin Film Growth Mechanism in Mist CVD

高知工大 システム[1], 総研[2] ○川原村 敏幸[1,2], 西 美咲[1], 刘 丽[1], 坂本 雅仁[1], ﾙﾄﾝｼﾞｬﾝ ﾋﾟﾓﾝﾊﾟﾝ[1],
佐藤 翔太[1], 上田 真理子[1], 安岡 達也[1], 長谷川 諒[1], 田頭 侑貴[1], 尾崎 珠子[1], 鄧 太 江[1]
School of Sys. Eng.[1], Res. Inst.[2], Kochi Univ. of Tech.
○Toshiyuki Kawaharamura[1,2], Misaki Nishi[1], Li Liu[1], Masahito Sakamoto[1], Phimolphan Rutthongjan[1], Shota Sato[1],
Mariko Ueda[1], Tatsuya Yasuoka[1], Ryo Hasegawa[1], Yuki Tagashira[1], Tamako Ozaki[1], Giang T. Dang[1]
e-mail: kawaharamura.toshiyuki@kochi-tech.ac.jp

― 背景 ―

これからの社会に関して必要な社会的要素を見据えると、世界的な安心･安全な生活環境の確立と、超高速･超大容量化する情報化社会への対応等を、地球環境保護を確保して達成させる事が必要不可欠であると考える。そこで、発表者が有する技術を用いて出来うる最善手として、

① 本質的に環境負荷の小さな大気圧下溶液系機能膜形成手法「ミスト CVD」を用いて、
② ナノテクノロジーで利用する機能膜の高品質化手段・性質制御手段を追求し、
③ 機能デバイスの開発

を行っている。今回は発表者が開発を進めているミスト流を利用した機能膜形成技術「ミスト CVD」の薄膜成長メカニズムが判明したので、報告する。

― 内容 ―

ミスト CVD では供給された液滴中に含まれる原料がどのように薄膜形成に寄与しているのか明確にはわかってなかった。つまり、高温である反応炉に原料を含んだ液滴が供給され

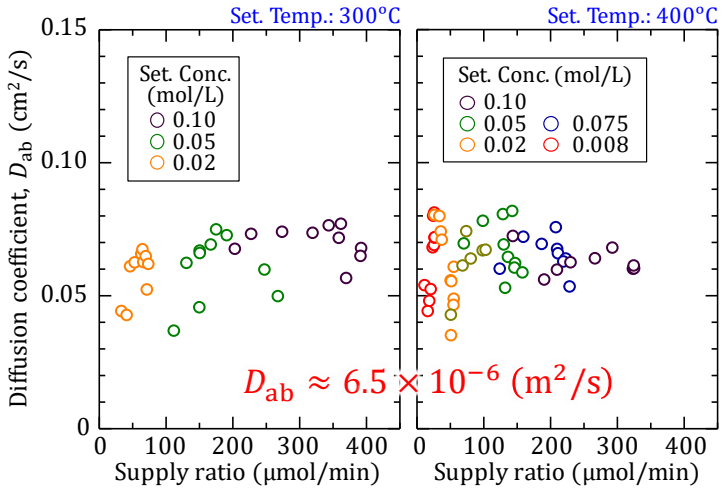
仮定 1： るが、ガス流速が熱伝導より速く液滴が蒸発する前に基材に付着して、液相下
仮定 2： るので、ガス流速に比べ熱伝導が速く液滴は完全に蒸発し、気相下
仮定 3： 、液滴はライデンフロスト状となり、液気混相下

で反応が進行しているなど、考えられる。過去、特殊な FC 式反応炉を利用するミスト CVD では反応炉設定温度が溶媒の蒸発温度よりも多少なりとも高ければ仮定 1 は起こらないことが判明している[1,2]。今回以下に示すような実験を行ったところ、ミスト CVD における成膜が単純な気相下での反応(仮定 2)ではない事を裏付ける結果を得られた。講演では仮定 3 の場合も含め報告する。

― 実験と結果および考察 ―

Zn 源($Zn(acac)_2 \cdot H_2O$)(水蒸気雰囲気下熱分解温度 180°C)を用いて石英基板上にミスト CVD で ZnO 薄膜を作製した。この時 Zn 源を溶解した溶媒のみを供給する噴霧器を別に用いて、反応炉内での原料濃度を制御した。原料仕込み量と成膜温度を変化させ、原料供給速度に対する原料拡散速度を評価した。図 1 は溶液が全て気化して反応が進行している(仮定 2)と仮定し成膜速度から算出した原料拡散速度であるが、分子の一般的な拡散速度よりも一桁以上小さい。また温度依存も見られない。つまり単純に気相下で反応が進行しているという考え(仮定 2)では説明ができない。

[1] T. Kawaharamura, JJAP **53** 05FF08 (2014), [2] T. Kawaharamura, T. Hirao, JJAP **51** 036503 (2012)



気体中拡散係数の温度と圧力との関係

$$D_{ab} = D_{ab0}\left(\frac{T}{T_0}\right)^m \left(\frac{p_0}{p}\right)$$

(一般にm = 1.5 or 2)

unit: cm²/s

in Air	@RT	300 °C	400 °C
H_2O	0.22	0.89	1.21
MeOH	0.13	0.52	0.71
結果	30 %	10 %	5 %

Fig. 1 Diffusion coefficient calculated from the growth rate on an assumption that the reaction progressed under the atmosphere of precursor perfectly evaporated in the reactor

© 2019年 応用物理学会