ミスト CVD 法における原料溶媒が薄膜成長に及ぼす影響

Influence of Material Solvents on Thin Film Fabrication by Mist CVD

高知工大 [1]，総研 [2] ○坂本 雅仁 [1]，安岡 龍哉 [1]，西 美咲 [1]，刘 丽 [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]，田頭 侑貴 [1]，長谷川 諒 [1]，尾崎 珠子 [1]，鄧 太 江 [1]，
川原村 敏幸 [1,2]
School of Sys. Eng. [1], Res. Inst. [2], Kochi Univ. of Tech.
°Masahito Sakamoto[1], Tatsuya Yasuoka[1], Misaki Nishi[1], Li Liu[1], Phimolphan Rutthongjan[1],
Shota Sato[1], Maraiko Ueta[1], Yuki Tagasihra[1], Ryo Hasegawa[1], Tamako Ozaki[1], Giang T. Dang[1],
Toshiyuki Kawaharamura[1,2]
E-mail: kawaharamura.toshiyuki@kochi-tech.ac.jp

背景

近年、酸化物薄膜作製手法として多くの関心を集める手法の一つに大気圧下で多種多様な機能薄膜を作製可能な「ミスト CVD 法」がある[1]。原料となる元素を含むミストを基板上で熱分解することで機能薄膜を形成する。本研究室では薄膜成長メカニズム・多種多様な機能薄膜およびデバイス作製・新世代(第 3 世代)技術開発を中心に研究に取り組んでいる。今回は、H_2O, MeOH, HCl, NH_3などの原料溶媒の観点から、溶媒が薄膜成長に与える影響について報告する。

内容

本実験では原料溶質となる金属化合物を原料溶媒雰囲気中で熱分析することで得たデータと、実際にミスト CVD 法を用いて作製した酸化物薄膜の特性を比較・考察することで、原料溶媒が成膜に与える影響を調査した。原料溶質として $Ga(acac)_3$, $Zn(acac)_2$を、原料溶媒として H_2O および H_2O に対して HCl や NH_3 などの混合溶媒を用いた。成膜データは Ga_2O_3, ZnO 薄膜を対象とした。熱分析に用いた分析装置は Thermogravimeter - Differentional Thermal Analysis(以下 TG-DTA)を、薄膜作製手法として新世代(第 3 世代)ミスト CVD 法を用いた。

実験結果・考察

図 1(a, b)に H_2O, HCl 溶液を用いた $Ga(acac)_3$の熱分析結果を示す。黒色で示す曲線は溶媒支援なし(以下 Air)での実験結果である。TG 測定結果より Air と比較して溶媒雰囲気中では残量物量が増大しており、雰囲気に含まれる H_2O が影響していることがわかる。DTA 測定結果より HCl 溶液を用いた時には他の条件では確認できない発熱反応が 380 ℃付近で生じている。これは溶液由来の発熱反応が進行していることが推測される。この温度帯で Ga_2O_3薄膜の作製を行ったところ、図 2 に示す結晶性、膜厚、表面粗さの違いが確認できた。また、熱分析においてガスを N_2とし実験を行ったところ、原料溶質が Air とは異なる反応過程を経て酸化物が形成されることが分かった。これは酸化物形成において H_2O, O_2それぞれの反応過程によるものであると推測される。

また、原料溶質として $Zn(acac)_2$を用いたところ NH_3の働きが膜厚などの特性に影響を与えることが熱分析を行うことで明らかになった。当日は、本結果、薄膜作製条件や詳細な熱分析結果を合わせて報告する。

[1] T. Kawaharamura, JJAP 53 05FF08 (2014)

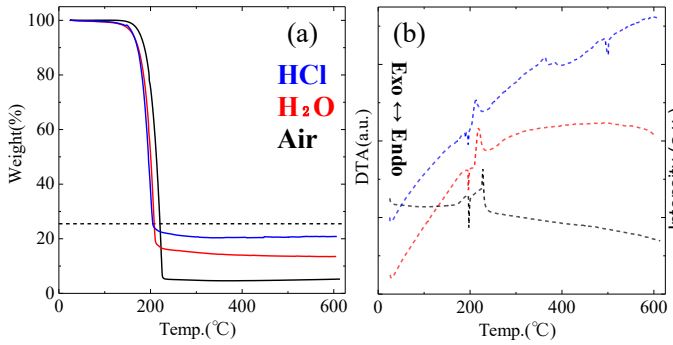

Fig. 1 (a) TG anf (b)DTA curves of $Ga(acac)_3$

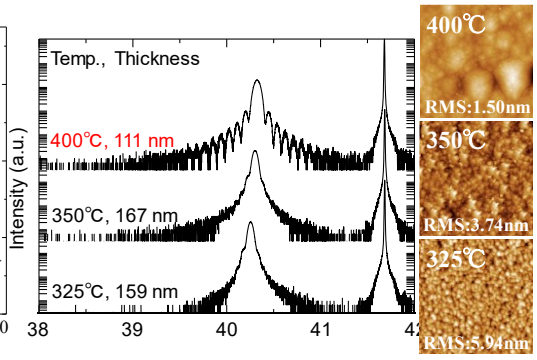

Fig. 2 X-ray diffractions and AFM of Ga_2O_3