

水晶振動子質量測定による Fe₂O₃ 室温 ALD の表面反応評価

Surface Reactions of Fe₂O₃ RT-ALD Explained by QCM Measurements

山形大院理工¹, 学振特別研究員², 山形大 ROEL³

○(PC)吉田 一樹^{1,2}, 永田 一成¹, 齋藤 健太郎^{1,2}, 三浦 正範³, 鹿又 健作³,
廣瀬 文彦¹

Yamagata Univ.¹, JSPS Research Fellow², ROEL Yamagata Univ.³,

○(PC)Kazuki Yoshida^{1,2}, Issei Nagata¹, Kentaro Saito^{1,2}, Masanori Miura³, Kensaku Kanomata³,
Fumihiko Hirose¹

E-mail: fhirose@yz.yamagata-u.ac.jp

[あらまし] 原子層堆積法(Atomic layer deposition: ALD)は三次元複雑表面にナノ薄膜を均一にコーティングする成膜法である。これまでに薬材へ磁性薄膜をコーティングして磁気誘導型ドラッグデリバリーシステムとして応用することが検討されてきたが、成膜温度が高く実用化には至っていない。酸化鉄(III)(Fe₂O₃)はMRIの造影剤にも用いられる一般的な磁性材料であるが、ALDでは130 °Cでの報告が最低温であった[1]。共同研究者の永田らは酸化ガスをプラズマ励起加湿アルゴン、原料ガスを bis(N, N'-diisopropyl-propionamidinate)iron ((DIPPA)₂Fe)として室温(22 °C)での Fe₂O₃ ALD プロセスを開発した。本研究では水晶振動子マイクロバランス法(QCM)を用いて ALD における質量変化を観察し、成膜モードの確認を行った。さらに質量変化を計算予測することで、表面反応を解析した結果を示す。

[実験方法] 本研究では当研究室で開発した ALD 装置に Inficon 社製の ALD センサ(750-717-G2)を取り付け、成膜中の水晶振動子の質量変化を観察した。水晶振動子は AT カット型で発振周波数 6MHz のもの(750-1058-G10, Inficon)を使用した。本装置における酸化ガスは Ar と水の混合気体に銅板電極を介して 15 kV、15 kHz の電界を印加しプラズマ励起させたプラズマ励起加湿アルゴンであり、原料ガスは (DIPPA)₂Fe を用いた。原料ガス容器及びガス導入ラインを 80 °C に加熱することで原料照射時の圧力を制御した。成膜は原料照射量を 200000 L (1L = 1 × 10⁻⁶ Torr · s)として原料照射 80 秒、排気 300 秒、酸化 600 秒、排気 60 秒を 1 サイクルとして実施した。

[実験結果] 図 1 に Fe₂O₃ ALD を 10 サイクル行った時の質量変化を示す。原料吸着、排気、酸化、排気の 4 つのステップが見られ、ALD モードでプロセスが進行していることが示された。次に Fe₂O₃ ALD 10 サイクル中の最も平均的な 1 サイクルを抜き出し、図 2 に示す。酸化終了時と原料吸着時の質量変化の比から原料吸着時に脱離するリガンドを推定すると、原料ガスのアミジナート基 1 つが脱離して吸着していることが示唆された。当日はこれをもとに成膜時の表面反応についてモデルを提示し議論する。

[謝辞] 本研究は科研費 19H01884 および JP20J10869 の支援の下で行われました。

[1] Jason R. Avila. ACS Appl. Mater. Interfaces, 16138–16142, 2015

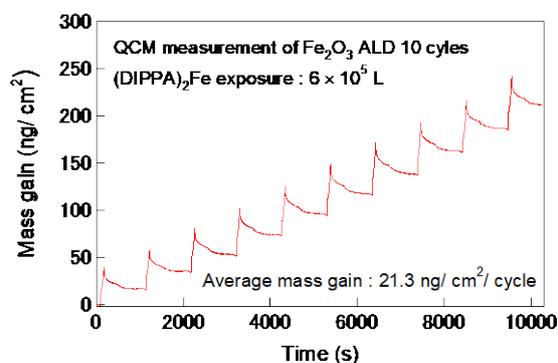


Fig.1 Surface mass balance of quartz crystal in 10 cycles of Fe₂O₃ ALD. We confirm a stepwise surface mass increase according to the process time.

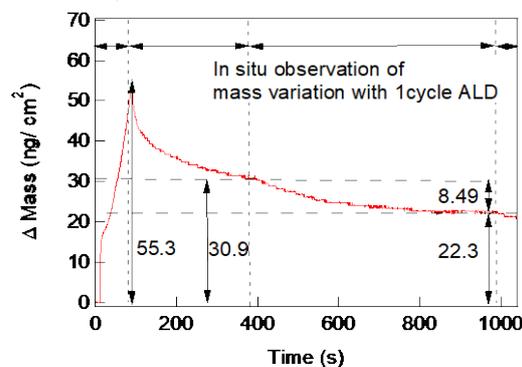


Fig.2 Quartz crystal surface mass balance in the typical 1 cycle of Fe₂O₃ ALD.