室温原子層堆積法を用いた SiO_2 / アルミニウムシリケート周期酸化膜の形成とイオン吸着性評価

RT atomic layer deposition of SiO_2 and aluminum-silicate multiple layers and its application for ion sorption

山形大院理工 [1]，学振特別研究員 [2], 山形大 ROEL[3]

○齋藤 尊 [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 Fellow[2], ROEL Yamagata Univ. [3], ○Takeru Saito[1],

Kentaro Saito[1, 2], Masanori Miura[3], Kensaku Kanomata[3], Fumihiko Hirose[1]

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

[あらまし]　我々はこれまでに室温原子層堆積法(Room temperature atomic layer deposition : RT-ALD)によるアルミニウムシリケートの成膜プロセスを開発し、陽イオンを選択的に吸着する特性を報告した[1]。アルミニウムシリケートは、三価である Al 原子が四つの O 原子に囲まれることで表面が負に帯電し、陽イオンを吸着する。しかし膜内に Al-O-Al 結合が生じると AlO_4 四面体が形成できない問題がある(Loewenstein 則)。そこで、図 1 に示す、アルミニウムシリケートと SiO_2 の積層にすることで、膜縦方向で Al-O-Al 結合を抑制し吸着性能の向上を狙った。

[実験方法]　当研究室で開発した RT-ALD 装置を用いて、p 型 Si(100)基板上に SiO_2 とアルミニウムシリケートの周期酸化膜を成膜した。SiO_2 の原料ガスには tris[dimethylamino]silane (TDMAS)を用いた。アルミニウムシリケートの原料ガスには TDMAS と、trimethylaluminum (TMA)の二つの原料ガスを用いた。酸化ガスにはプラズマ励起加湿 Ar を用いた。陽イオン吸着性は、成膜したサンプルを NaCl、KCl、CsCl 溶液に浸漬させた後に、X 線光電子分光法(XPS)を用いて表面吸着物の組成分析を行うことで観察した。

[実験結果]　室温 ALD を用いて、図 1 に示す条件で Si 基板に成膜した SiO_2 とアルミニウムシリケートの周期酸化膜を CsCl 溶液に浸漬させた。浸漬後、XPS を用いて組成分析を行った結果を図 2 に示す。各元素の原子軌道は固有のエネルギー値を持っているため、結合エネルギーを調べることで試料の組成分析が可能である。本研究では、ALD15 サイクル分の SiO_2 とアルミニウムシリケートを積層し、全体で 10 サイクル成膜した。最表面はアルミニウムシリケートで成膜を終えた。この膜構造はアルミニウムシリケート単層と比較して、高い陽イオン吸着性能を示す[2]。図 2 の結果から、Cs 3d ピークは確認できたが、Cl 2p ピークは確認できなかった。Cs はイオンとして吸着していると考えられ、陽イオン吸着特性を実証した。Cs イオンを選択吸着できる点から、放射性汚染水の浄化膜としての応用が期待できる。

[1]第 81 回応用物理学会秋季学術講演会講演予稿集, 8p-Z26-12, 2020
[2]第 82 回応用物理学会秋季学術講演会講演予稿集, 22a-P04-10, 2021

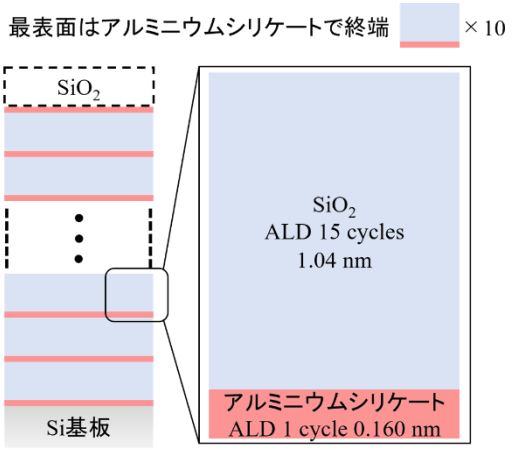

Fig.1 Schematic of SiO_2 and aluminum-silicate multiple layers.

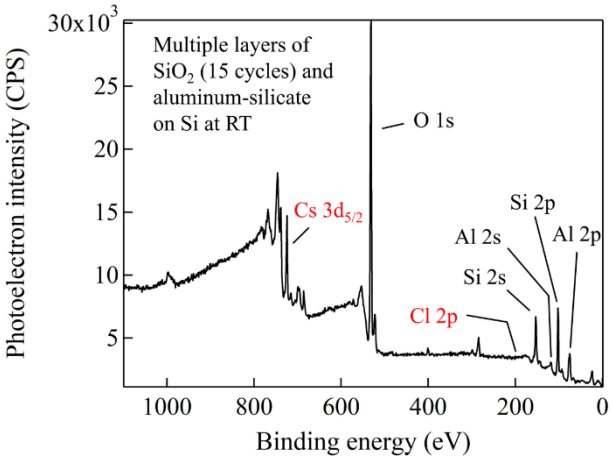

Fig.2 XPS wide scan of multiple layers dipped in CsCl solution (10 mM, 20 mL, 24.0 ℃).