

# ミスト CVD 反応炉内におけるミスト液滴の状態

## State of mist droplets in the reactor of mist CVD

高知工大 シスエ<sup>1</sup>, 総研<sup>2</sup>, ○(M2)草下 圭太<sup>1</sup>, (B)梶 亮介<sup>1</sup>, 川原村 敏幸<sup>1,2</sup>

School of Sys. Eng.<sup>1</sup>, Res Inst.<sup>2</sup>, Kochi Univ. of Tech.

°Keita Kusaka<sup>1</sup>, Ryosuke Kaji<sup>1</sup>, Toshiyuki Kawaharamura<sup>1,2</sup>

E-mail: 255032g@gs.kochi-tech.ac.jp, kawaharamura.toshiyuki@kochi-tech.ac.jp

ミスト CVD は溶液から機能薄膜を形成する技術である。例えば金属酸化物を作成する場合、まず金属化合物を溶媒に溶解し、その原料溶液を超音波によって数  $\mu\text{m}$  程度の液滴とし、霧状となった原料ミストをガスによって搬送し、反応炉で熱等のエネルギーを加えて反応させ、基板上に機能薄膜を成長させる。ところで、ミスト CVD では供給する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あまりよくわかっていない。ここで、高温反応炉内で原料を含む液滴がどのように反応しているのか3つの仮定が立てられる。1つ目は液滴が蒸発する前に基板に付着し、液相下で反応が進行する場合。2つ目は液滴が完全に蒸発し、気相下で反応が進行する場合。3つ目は液滴がライデンフロスト状となり気液混相下で反応が進行する場合である。ライデンフロストとは溶液の蒸発温度よりもはるかに高い温度で熱された際、蒸気膜の発生により熱伝達が阻害され蒸発時間が伸びる現象である。過去に特殊な 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は発生しないことが判明している。<sup>[1][2]</sup>また、ミスト CVD における成膜が単純な気相下での反応ではないことを裏付ける結果が報告されてきた<sup>[3]</sup>が、高温反応場内を飛翔する原料液滴を直接に観測したわけではなく、断定するまでには至っていない。そこで2014年から高温場内を飛翔するミスト液滴を直接観測できるシステムの開発を行ってきた。すでに高知工科大学内ではそれらの結果を報告してきた<sup>[4][5]</sup>が、本発表では装置の仕組み、解析システム、純溶媒の挙動などについて報告する。

開発した観測装置の全体図を図1に示す。ミスト流は幅5mm、高さ1mmのFC式反応炉を模した構造の流れ場をもつ流路装置に導入する。この流れ場は両側面を石英ガラスで挟み、その周囲をアルミ合金で囲い、流れ場内の観測を可能にしつつ高温環境を維持できる構造としている。観測は22nsの火花放電が可能なパルス光源とマイクロスコープレズを付けたカメラで行い、高速で流れる数多くの液滴の撮影が可能である。また、観測画像から液滴を自動で認識し、液滴粒径を計測するため、二値化処理や各種補正処理の従来型の処理方法だけでなく、深層学習を導入した。様々な深層学習の物体検出アルゴリズムが開発されているが、本研究ではYOLOv5を採用した。これにより、液滴の識別、ピンボケの識別を可能とし、効率的且つ正確な計測を実現している。代表的な解析結果を図2に示す。また、実験温度100℃、観測地点100mmの超純水の粒径計測結果のヒストグラムを図3に示す。結果より、液滴粒径の分布が確認でき、平均粒径は6.84 $\mu\text{m}$ であった。詳細な実験条件、液滴サイズの分布の仕方、液滴サイズの温度依存や液種依存などに関して詳しく報告する。

[1] T. Kawaharamura, JJAP 53 05FF08 (2014), [2] T. Kawaharamura, T. Hirao, JJAP 51 036503 (2012)  
[3] 第66回春季応用 10p-W241-7 (2019.03.10), [4] 太田垣知輝, “高温環境下にある微小液滴に対するライデンフロスト効果の観測”, 高知工科大学修士論文(2016), [5] 宮地啓太, “流れ場内の微小液滴挙動の観測とそのシステム開発”, 高知工科大学修士論文(2020)

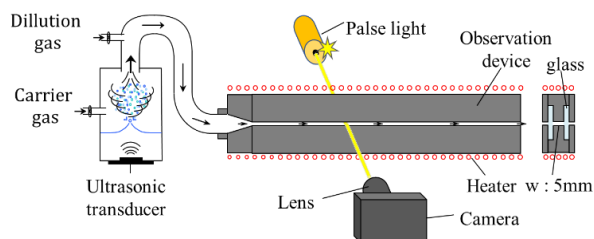


Fig.1 Overall view of the equipment

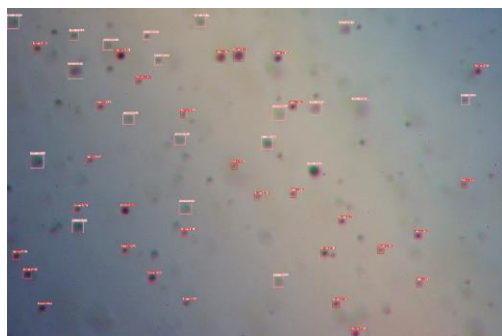


Fig.2 Observation image

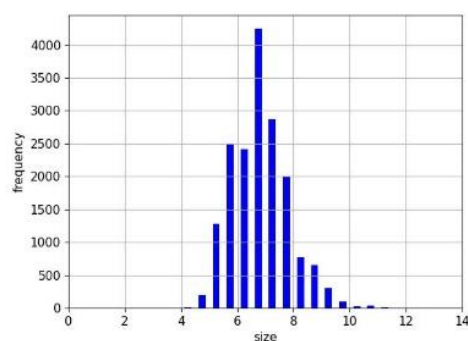


Fig3. H<sub>2</sub>O histogram