

# ライデンフロスト効果を利用した ミスト CVD による Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 多重量子井戸の作製 Multiple Quantum Well Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fabricated by Mist Chemical Vapor Deposition based on Leidenfrost effect

高知工大 総研<sup>1</sup>, シスエ<sup>2</sup>, 環境理工<sup>3</sup>, カンタベリー大<sup>4</sup>  
Res. Inst.<sup>1</sup>, Sys. Eng.<sup>2</sup>, Env. Sci. Eng.<sup>3</sup>, Kochi Univ. of Tech., Univ. of Canterbury<sup>4</sup>  
○川原村 敏幸<sup>1,2</sup>, 鄧 太江<sup>4</sup>, 新田 紀子<sup>1,3</sup>, ○Toshiyuki Kawaharamura<sup>1,2</sup>, Giang T. Dang<sup>4</sup>, Noriko Nitta<sup>1,3</sup>

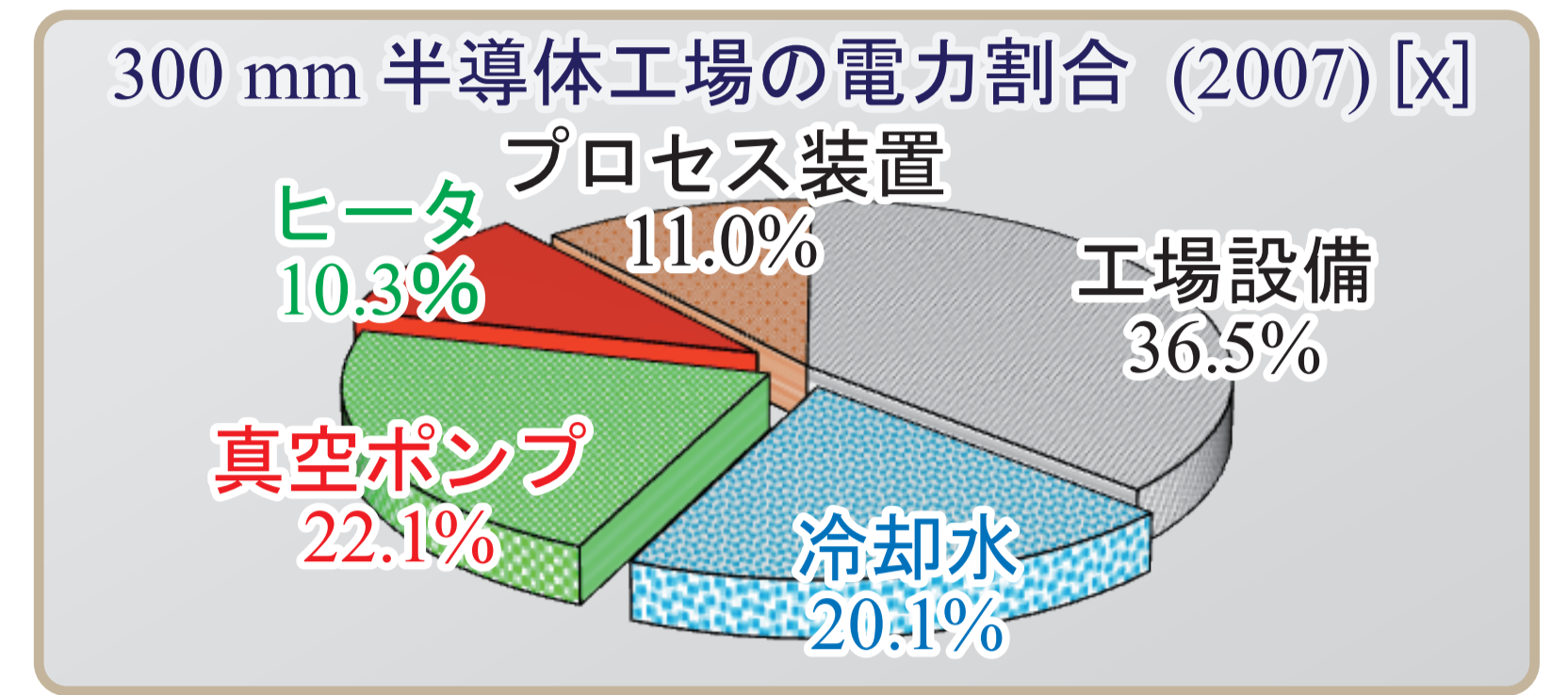
**非真空プロセスで原子層レベルで制御された薄膜の形成が可能に！  
その薄膜の特徴と形成メカニズムは！？**

## - Motivations -

量子井戸やトポロジカルインシュレータ等、次世代デバイスとして量子デバイスの開発は非常に活発である。現在、量子デバイスの作製には、主に、MBE[1]やMOCVD[2]、それらを組み合わせた方法[3]が採用されている。量子デバイスの作製には、原子層レベルで成膜を制御する必要があるため、堆積した原子のマイグレーションがとても重要である。ところが原子のマイグレーション距離は高々 10 nm(@600 °C)である[4,5]。そこで、界面活性剤等を利用して原子マイグレーション距離を向上させる条件の探索が試みられている[6]。

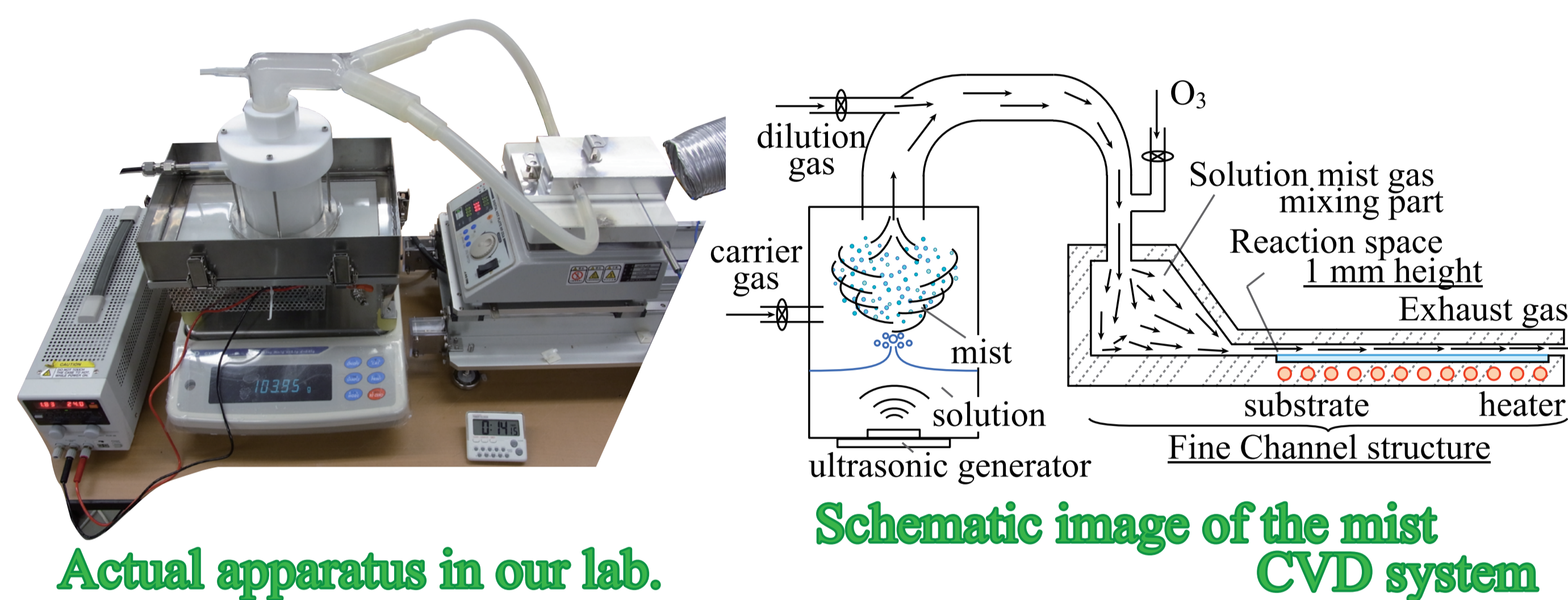
ところで、真空を利用する成膜手法を実プラントで利用すると、**真空維持のため少なくとも 22% ものエネルギーが利用されている**という報告[7]がある。大気開放系のプロセスへの転換は環境負荷を低減させる為、重要な課題である。

機能性の高さを優先する量子デバイスの開発では無視されがちなこれらの問題も、解決する手段があれば言うことはない。そこで、著者はミスト CVD[8]を提案する。ミスト CVD は、開発において非真空プロセスが疎い、**原料流の制御と反応の制御**を積極的に進め、大気圧下で均質な高品質薄膜の作製が可能となってきた機能薄膜作製手法である。特にライデンフロスト状態の液滴[9]を利用する事で原子層レベルでの成膜制御が可能となってきた[10]。



ライデンフロスト状態の液滴を利用した原子マイグレーションが可能であろうと考えられる  
本質的に環境負荷の小さな大気開放系機能薄膜作製手法「ミスト CVD」を用いて  
量子デバイス作製を試みた。

## - Fine-Channel type Mist-CVD system -



Actual apparatus in our lab.

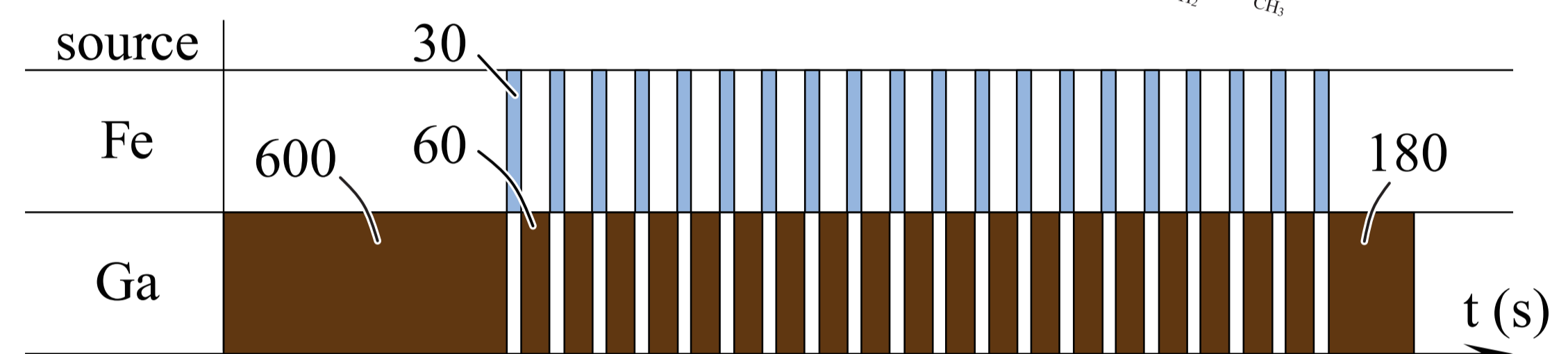
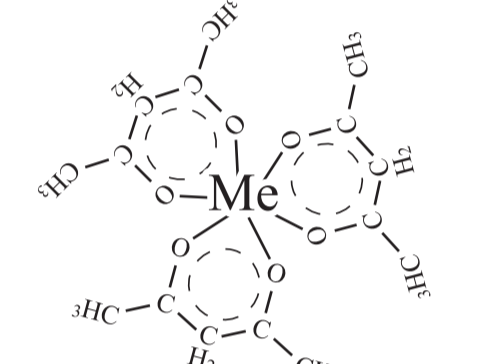
Schematic image of the mist CVD system

Please refer [8]  
"Study on mist CVD and its application to the growth of ZnO thin films"  
T. Kawaharamura, Ph.D. Thesis, Faculty of Engineering, Kyoto Univ., 2008 [in Japanese]  
<http://repository.kulib.kyoto-u.ac.jp/dspace/bitstream/2433/57270/1/26041.pdf>

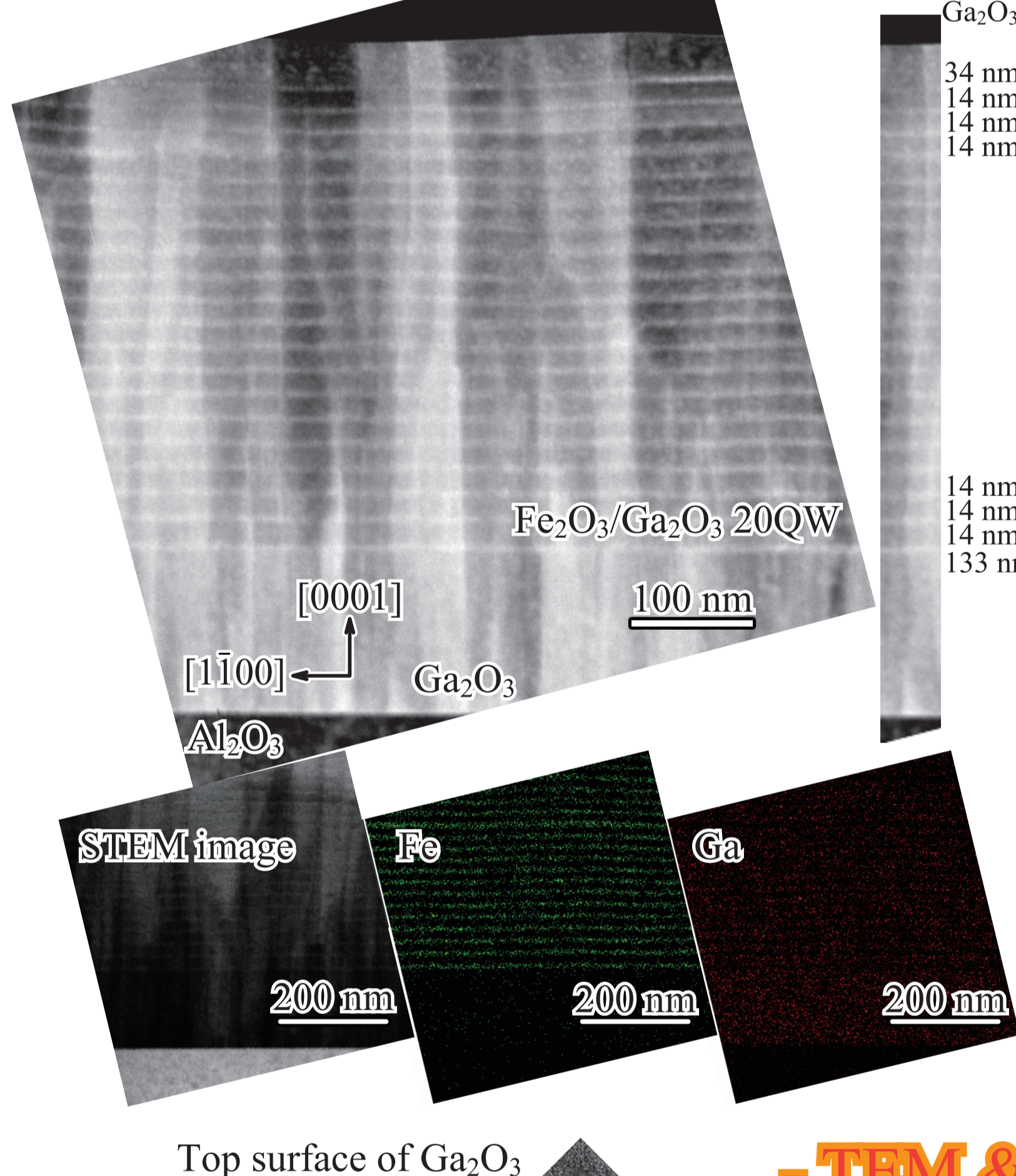
## - Experimental conditions -

Solute	Ga(acac) <sub>3</sub> <sup>b)</sup>	Fe(acac) <sub>3</sub> <sup>c)</sup>
Solvent (Mixing ratio)	DW <sup>d)</sup> , HCl <sup>e)</sup> , H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> <sup>f)</sup> (100 : 1 : 0.5)	DW <sup>d)</sup> , HCl <sup>e)</sup> (100 : 1)
Concentration (mol/L)	0.020	0.020
Temperature (°C)	400	400
Substrate	c-plane sapphire (c-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ) <sup>g)</sup>	
System	Fine-channel type mist CVD system (30 mm ver.) <sup>h)</sup>	
Carrier gas (flow rate)	Air, 2.5 L/min	
Dilution gas (flow rate)	Air, 4.5 L/min	
Ultrasonic transducer <sup>a)</sup>	2.4 MHz, 24 V · 0.6 A, 3 (frequency, power, number)	

a) Honda Electronics HM-2412  
b) Gallium acetylacetonate; 99.99%, Sigma-Aldrich  
c) Iron acetylacetonate;  
d) Distilled water; Wako Pure Chemical Industries  
e) Hydrochloric acid, 35-37%, Wako Pure Chemical Industries  
f) Hydrogen peroxide, 30-35.5%, Wako Pure Chemical Industries  
g) Kyocera  
h) Refs. xx and xx

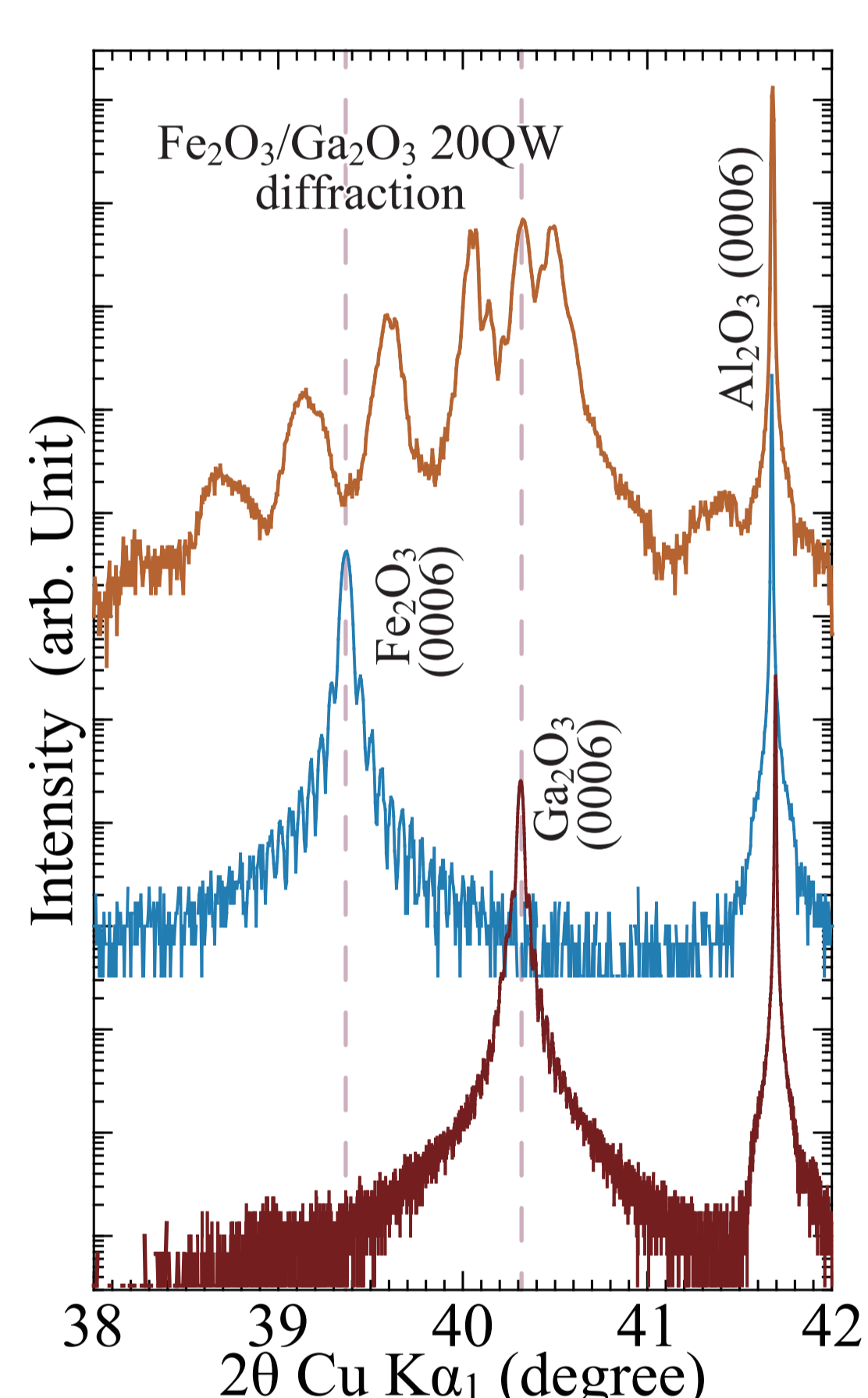


## - STEM & EDS -

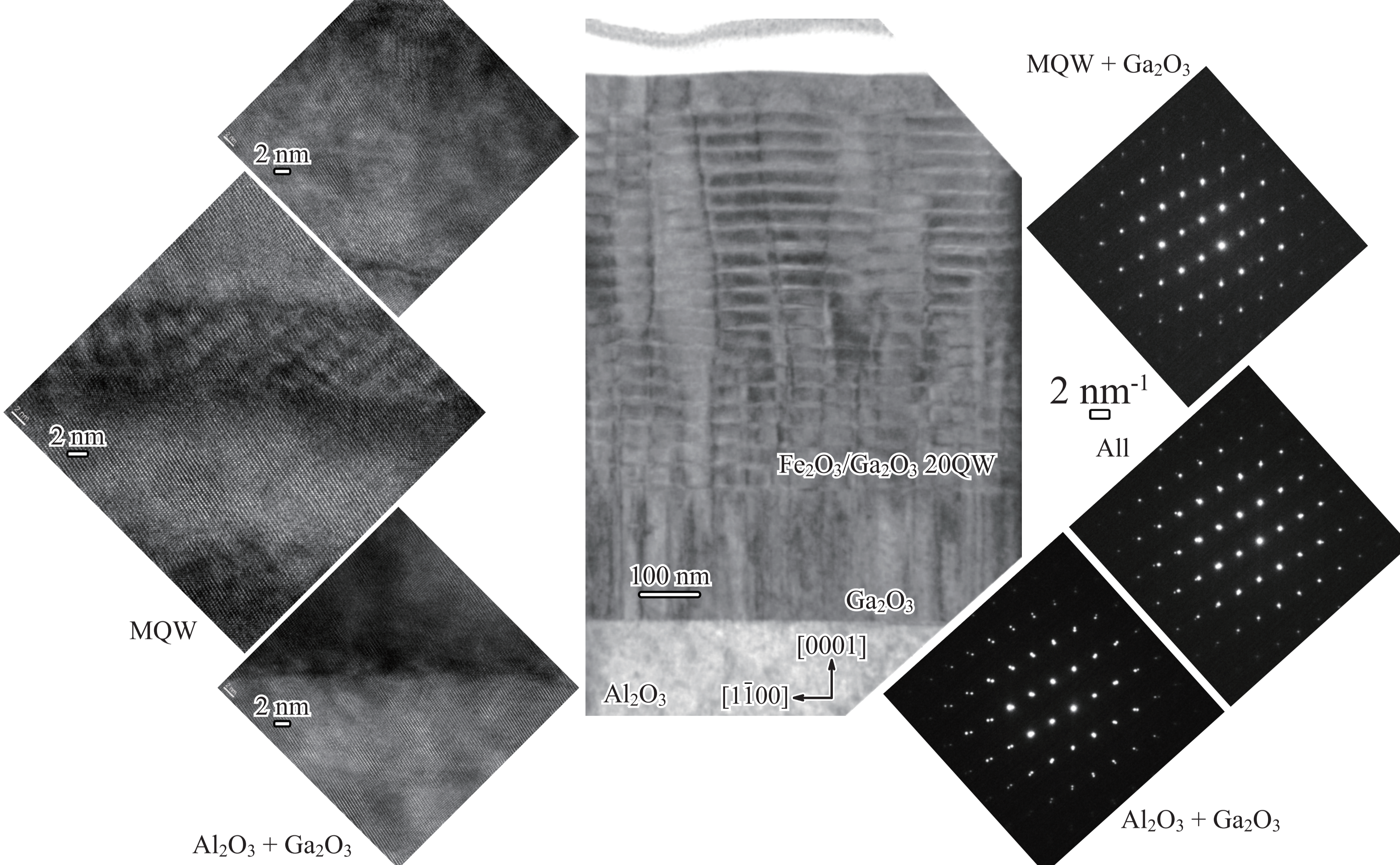


Top surface of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

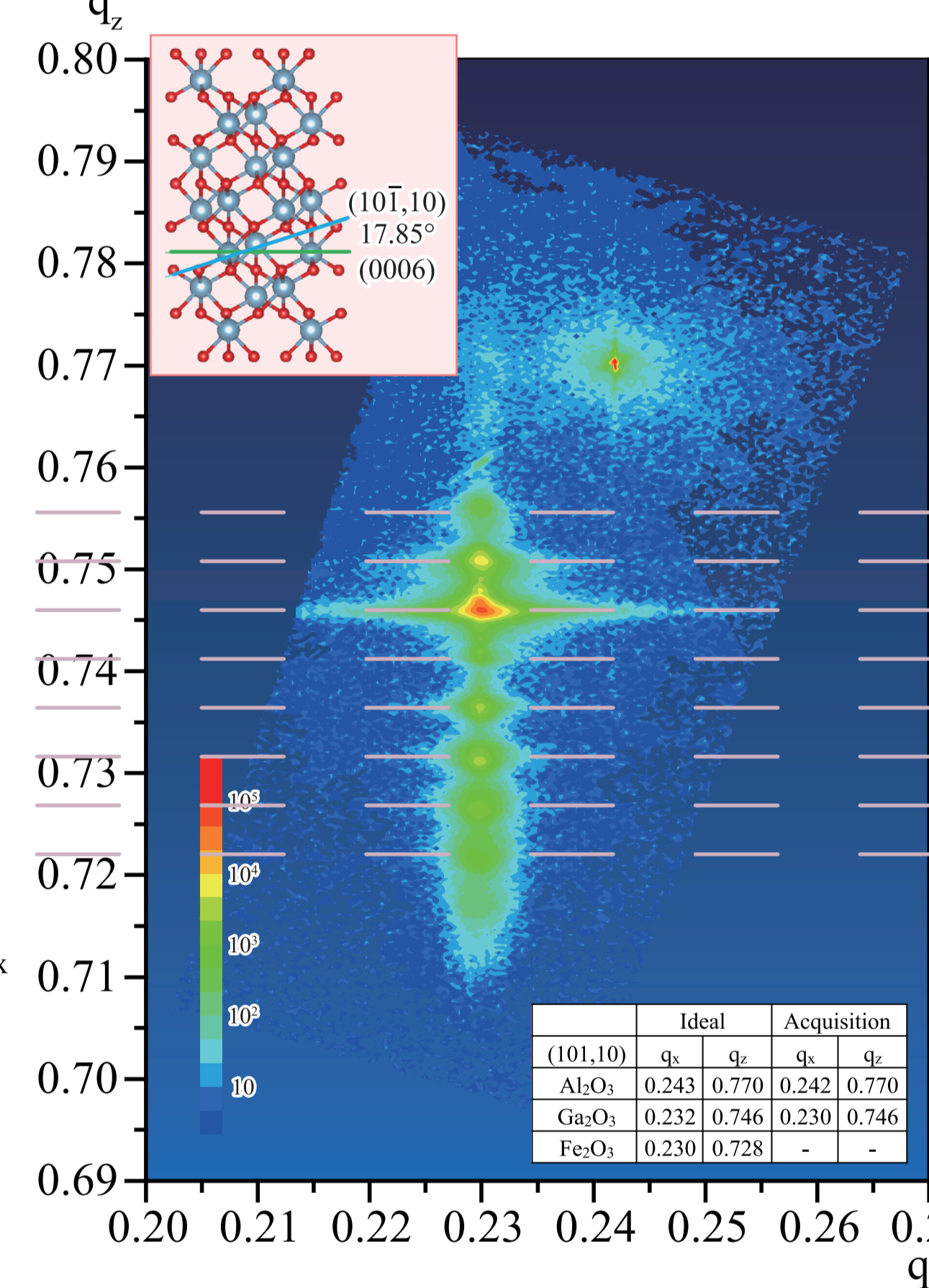
## - XRD -



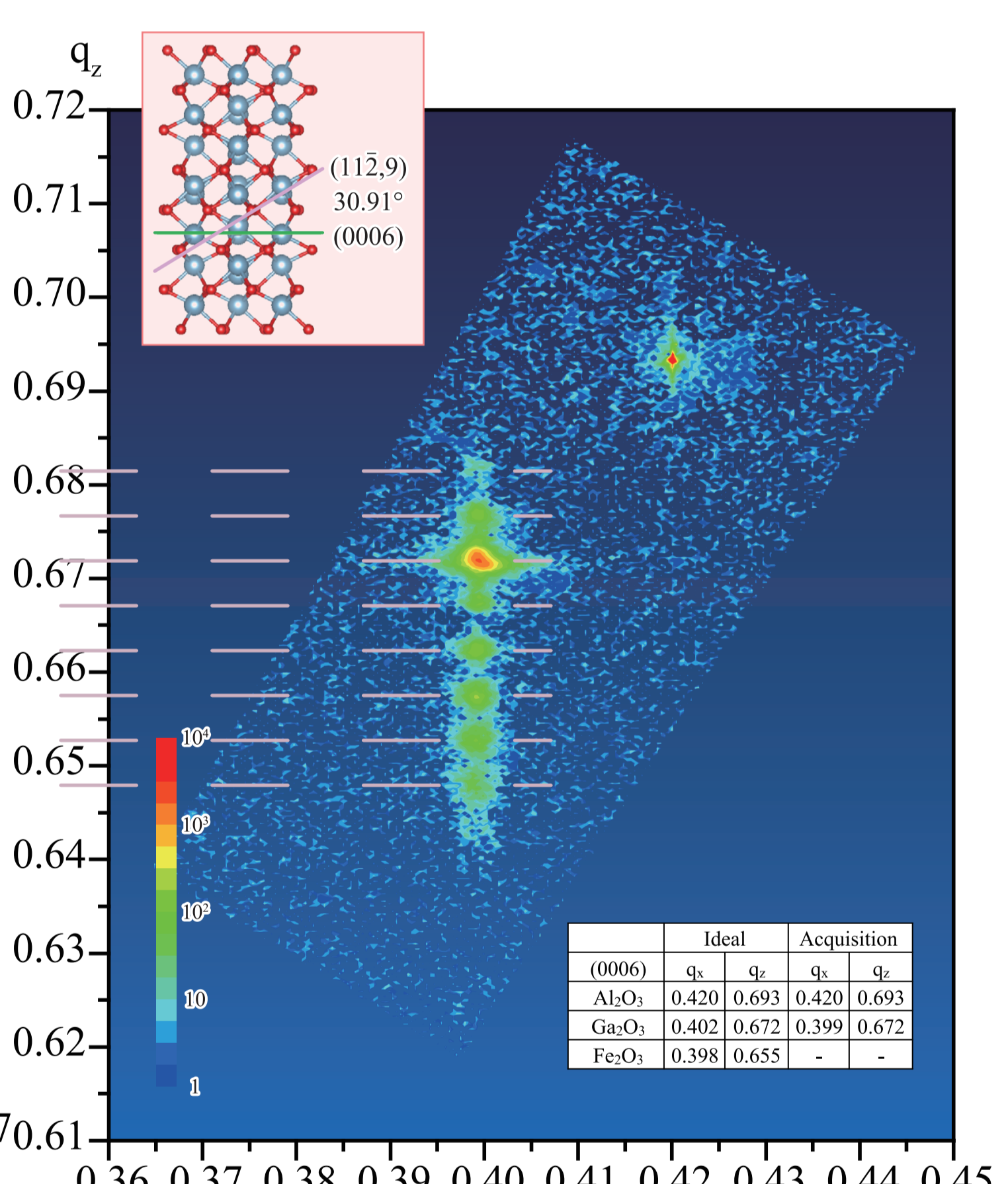
## - TEM & diffraction -



## - RSM -

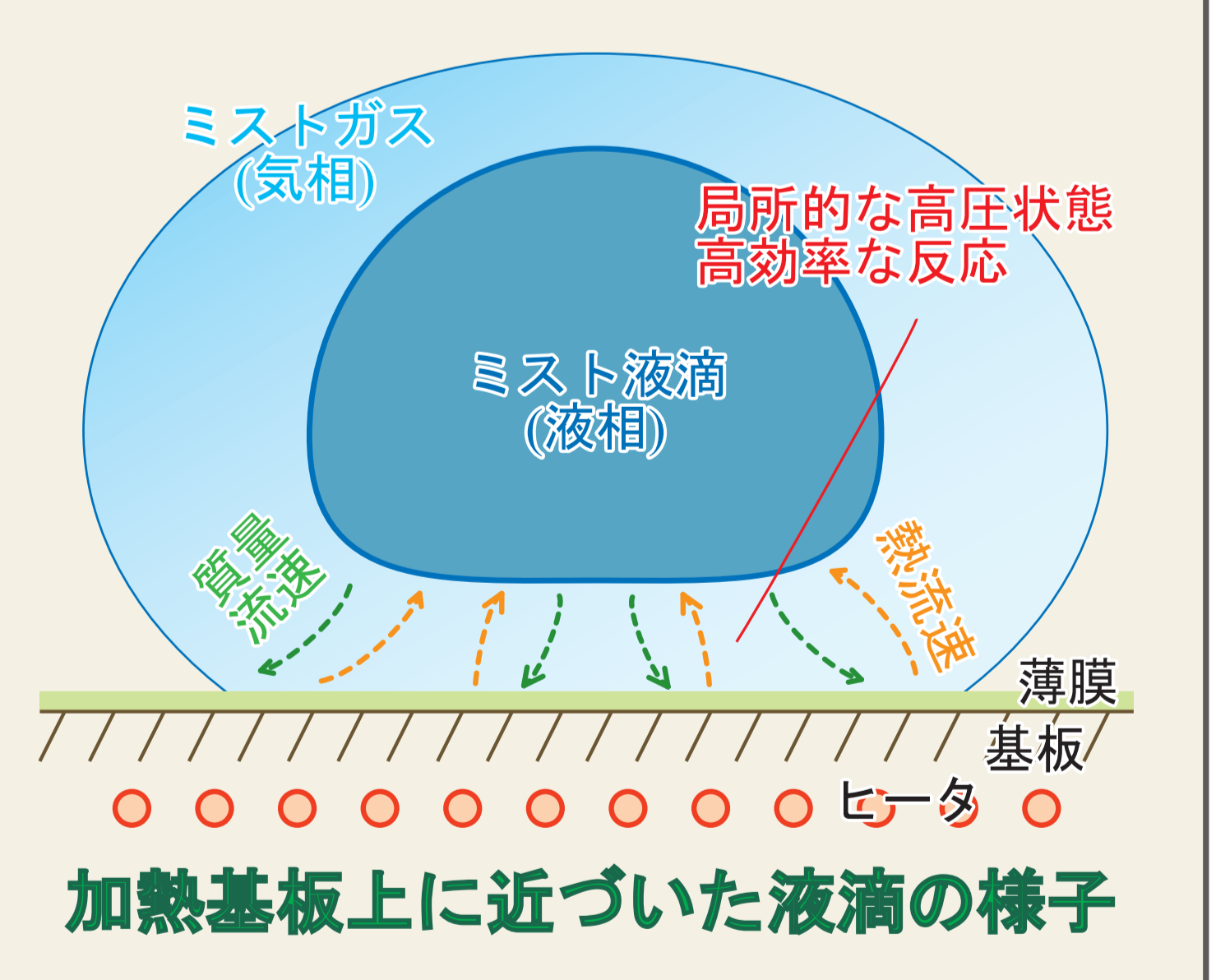


## - Results -



## - Discussions -

液体は気体よりも粘度が高く均質膜の作製には向かない。ましてや原子層レベルでの成膜制御が可能であるとは思われていないのが現状である。一方、液滴の状態を上手に制御する事が可能なミスト CVD は、ライデンフロスト状態の液滴を利用して原料溶液をガスとして基板に供給することが出来る。その為、多重量子井戸の形成に成功したと考えられる。



ライデンフロストとは。。。[10]  
沸点以上に加熱された表面に液滴が近づいた時、液滴周りが液滴よりも熱伝導の悪い蒸気膜に覆われ浮遊する現象、もしくはそれに伴い蒸発時間が長くなる現象。

## Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の多重量子井戸の作製に成功した！

Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 界面：格子歪みの緩和が見られる。  
Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層は Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 格子様にコヒーレント成長。  
基板 (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0006) 面) に平行に形成。  
量子井戸の周期は約 20 nm。  
ミスフィット転位が下層より残留・継承。

## - Future vision -

非真空プロセスでの高品質薄膜の作製手段の確立  
量子デバイスの試作  
ライデンフロスト状態の液滴の直接観測

- 1) A.Y. Cho, J. Crystal Growth, 111 (1991) 1.
- 2) K. Furuya, Y. Miyamoto, Int. J. High Speed Electro. 1 (1990) 347.
- 3) W.T. Tsang, J. Crystal Growth, 105 (1990) 1.
- 4) S. Nagata, T. Tanaka, J. Appl. Phys., 48 (1977) 940
- 5) J. H. Neave, et al., Appl. Phys. Lett., 47 (1985) 100.
- 6) F.A. Trumbor, Bell Syst. Tech. J., 39 (1960) 205.
- 7) T. Huang, Solid State Technol. 51 [10] (2008) 30
- 8) T. Kawaharamura, Ph.D. Thesis, Kyoto Univ., 2008 [in Japanese]
- 9) T. Kawaharamura, Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014) 05FF08 (7 pages)
- 10) J. G. Leidenfrost, Duisburg on Rhine, (1756) [in Latin].



川原村 敏幸  
高知工科大学 総研 & シスエ 准教授  
〒782-8502 高知県香美市土佐山田町宮ノ口 185  
Tel: 0887-57-2771, Fax: 0887-57-2714  
E-mail: kawaharamura.toshiyuki@kochi-tech.ac.jp