

ミスト CVD 法の開発

— 原理 反応系 —

高知工科大学 ナノテクノロジー研究所 助教 川原村 敏幸

大気圧下薄膜成長手法を開発するためには。

化学気相成長(Chemical Vapor Deposition)法において原料は、供給時には安定で反応時には高活性な材料が理想的であるが、実際にはそのような原料は存在しない。真空下の薄膜作製法で用いる原料は活性力の強い材料であり、大気圧下での薄膜成長法に用いるのは難しい。一方で安定な原料は、大気圧下では固体であり搬送が困難である。そこで、材料を溶解して液滴にして反応炉に供給する、溶液手法がとられる。スプレー法が最も代表的な手法である。

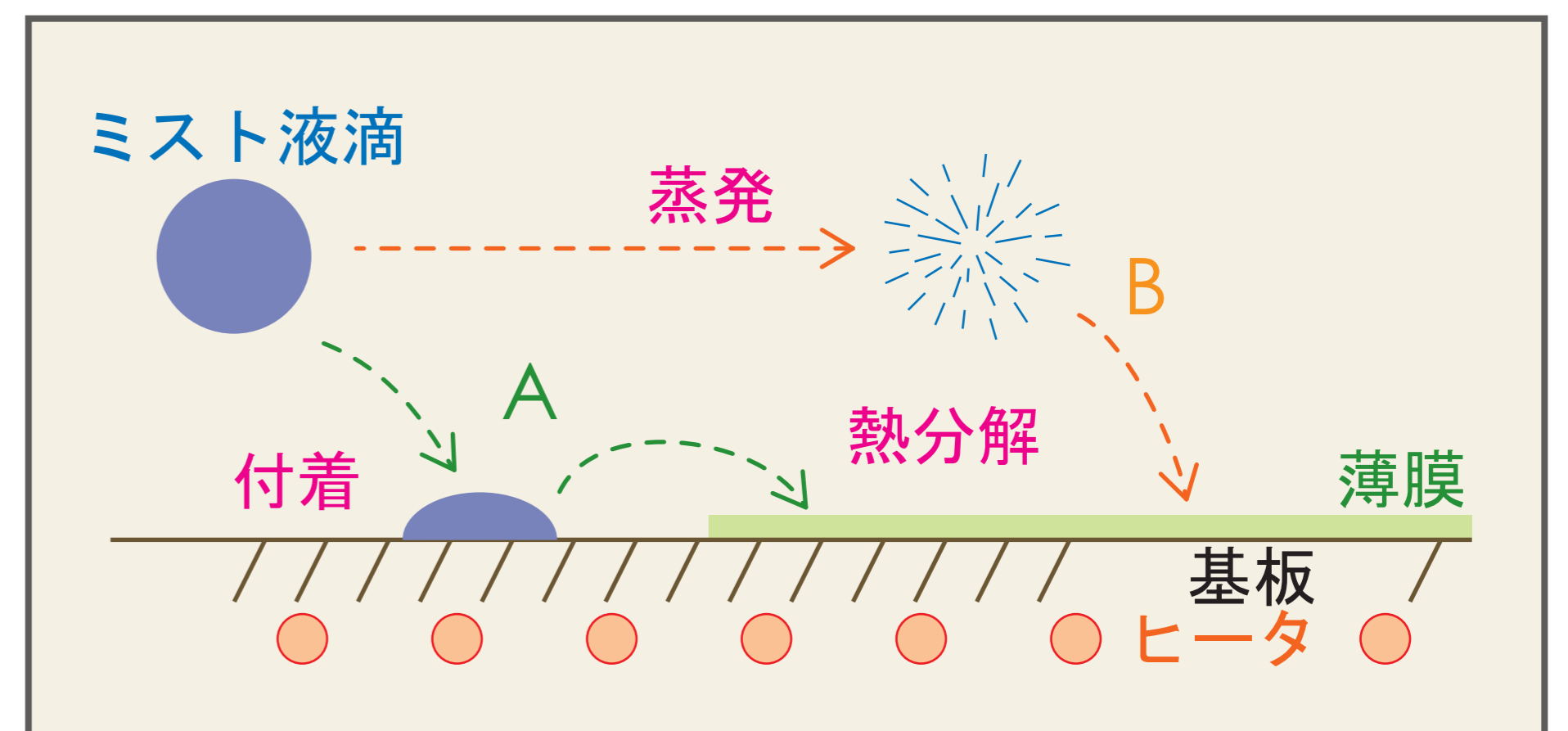
液を用いた薄膜作製手法

液を用いた薄膜作製手法は、大別すると2種類存在する。

A) 原料を液のまま基板に付着させ、熱分解させる手法

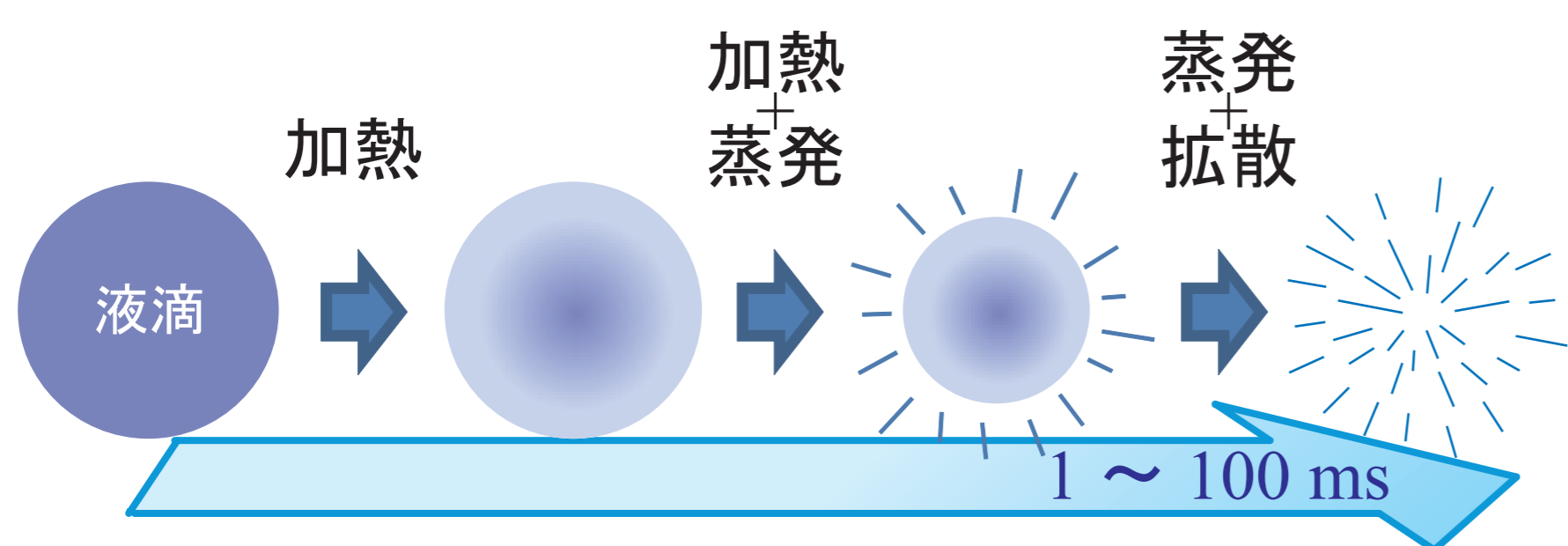
B) 一度原料を気化させ、基板上で熱分解させる手法

前者は反応速度が非常に速いが、ムラや膜内歪みが生じやすく、後者はその逆になる。一般には、前者は有機薄膜に適しており、後者は無機薄膜に適していると言える。本学ではこれまでの研究により、金属酸化物薄膜作製時におけるミストCVD法の反応系について一つの見解を得た。

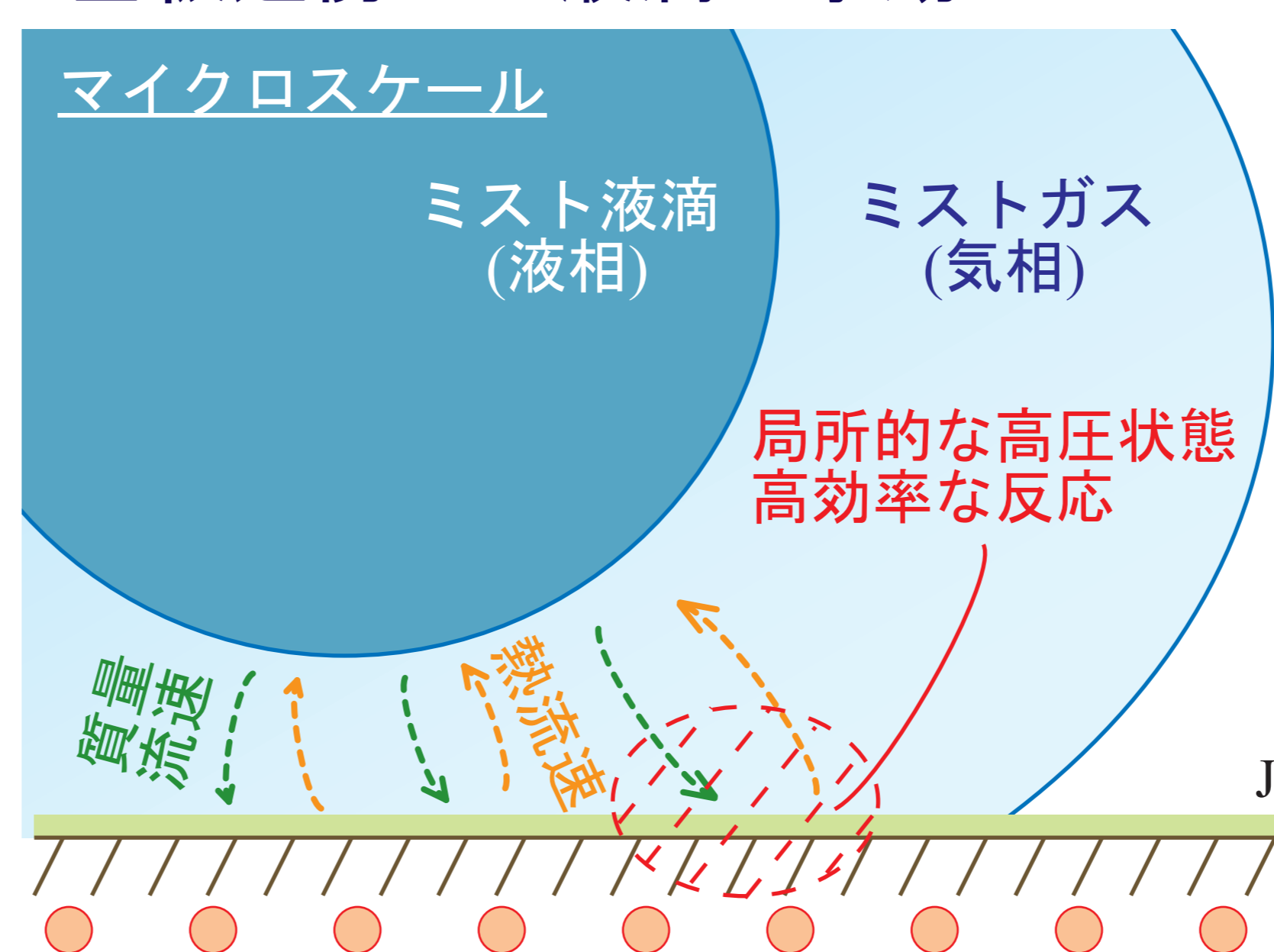


ミスト CVD 法における反応メカニズム

気相中での液滴の挙動



基板近傍での液滴の挙動



加熱基板上ではミスト液滴は瞬時にガス化し液滴が基板に付着せず気相に浮遊する。(ライデンフロスト現象)

J.G. Leidenfrost, Duisburg on Rhine (1756)

液滴の熱収支

液滴の昇温に関わる熱収支式

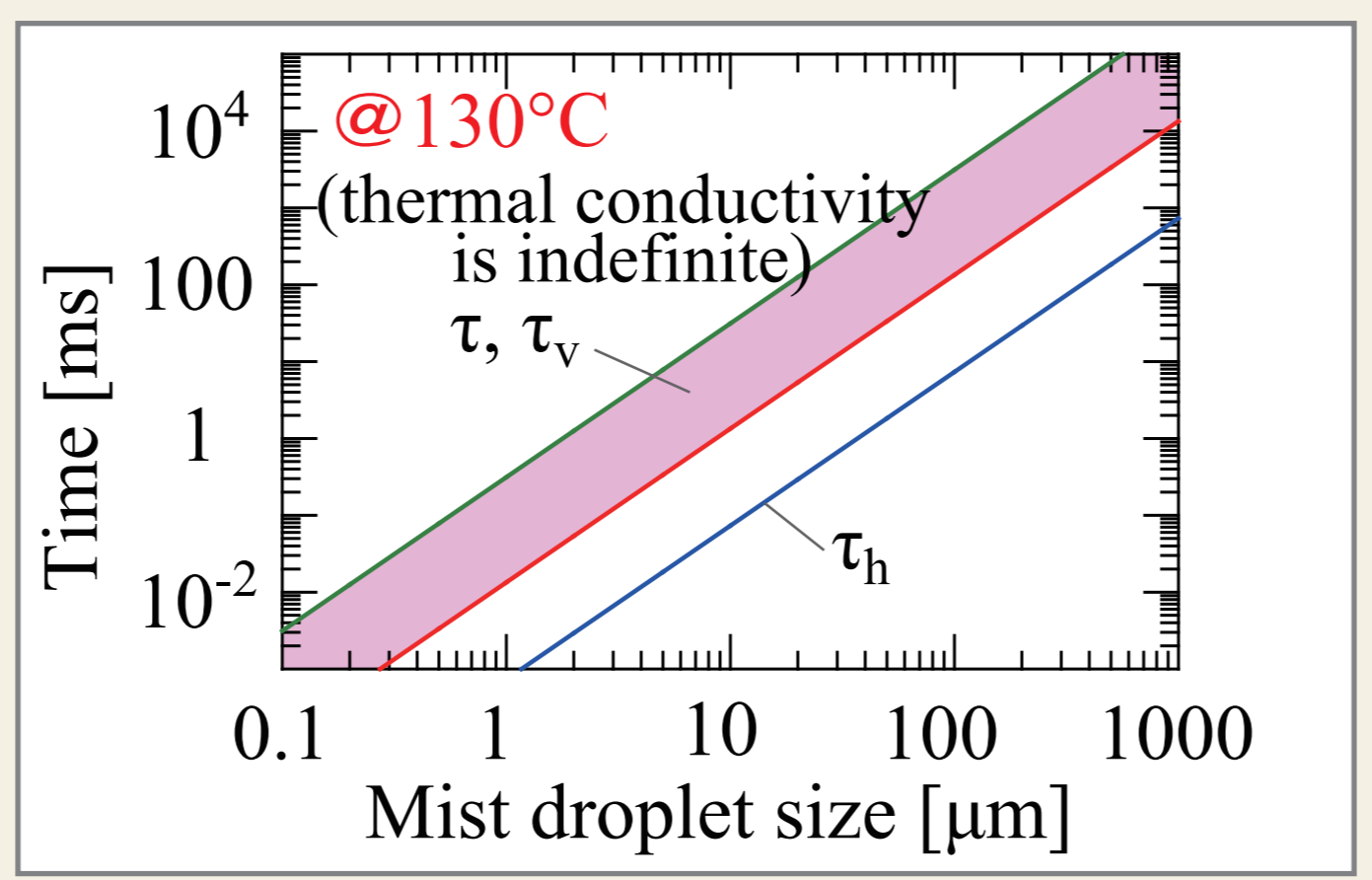
$$C_d \frac{\pi}{6} d_d^3 \rho_d dT_d = h \pi d_d^2 (T_{air} - T_d) dt,$$

$$\tau_h = \frac{C_d \rho_d d_d^2}{12k} \ln \frac{T_{air} - T_{d,0}}{T_{air} - T_{d,b}}$$

液滴の蒸発に関わる熱収支式

$$-d \left(\frac{\pi}{6} d_d^3 \rho_d \Delta H \right) = h \pi d_d^2 (T_{air} - T_{d,b}) dt,$$

$$\tau_v = \frac{d_d^2}{K_0}, K_0 = \frac{8D_{AB}P_{v,S}}{\rho_d R_v T_m} = \frac{8k}{\rho_d \Delta H} (T_{air} - T_{d,b})$$



・ミスト CVD 法の重要な特徴

液滴が速度を持たない。
気化した原料による反応。
液滴が基板上で浮遊。

・ミスト CVD の最大の利点

安易な原料供給制御。
均質膜の作製。
マイクロサイズの分散型原料供給。

液滴の昇温時間は非常に短いですが、液滴の蒸発時間は、気化熱の大きさや蒸気の熱伝達係数の低さなどのため、非常に長くなる。