

# Team CVD 2成分系減圧沸騰噴霧を用いた CVD 新気化供給法の構築

研究担当者

大嶋 元啓 (M1) 奥野 白馬 (B4) 松井 祐樹 (B4)

2003 研究概要

## 1. 研究背景および目的

CVD (Chemical Vapor Deposition) 法は半導体の成膜生成プロセスとして注目されている方法である。本方式では成膜材料を気化器によってガス状にさせた後、輸送ラインにより反応室内に誘導される。一般に成膜材料は分解温度と気化温度の近いものが多く、輸送ライン中でパーティクルの析出および付着を起こし、閉塞および成膜不良を招く。この問題を防ぐため、輸送ラインの定期的な洗浄・交換が必要である。そこで、気化器を反応室内に直接、取り付け成膜を行う方法がもっとも有効であると考えられる。上記の方法を実現するため、本研究では減圧沸騰を用いた直接噴霧による新気化供給法を提案する。しかし、一般に成膜材料は飽和蒸気圧が低い場合、高沸点材料である成膜材料に低沸点材料を混合した混合成膜材料を上記方法に適用する。

本研究では提案方式の実現を目指し、空間的なガス均一分散化及びガス濃度分布の均一化を追及している。その第一段階としてシュリーレン撮影法を用い噴霧の巨視的観察を行った。また、ガス濃度分布、空間的均一性を調べるため、LIF法とMie散乱光の同時計測を行った。

## 2. 新気化供給コンセプト

新気化供給コンセプトの概要を図1に示し、以下に示す。

### 2.1. 間欠噴霧の適用

気化器を噴射系に適用し、装置の簡易化および従来方式における諸問題を回避する。また、バッチ処理を行うことで成膜工程の高効率化を可能とする。

### 2.2. 二相領域の形成による成膜材料の低沸点化

高沸点材料である成膜材料と低沸点材料を混合することにより二相領域を形成し、成膜材料の低沸点化を可能とする。

### 2.3. 減圧沸騰による希薄蒸気の形成

減圧沸騰による噴霧蒸気の広域拡散を利用し均一かつ希薄な蒸気濃度の形成を促進させる。

## 3. 実験装置及び実験条件

図2に本研究で用いた実験装置の概略を示す。本装置は枚葉式 CVD 成膜装置を模擬したものである。本装置は装置上部に噴射装置を配置し、直下に設置したサセプタ上に噴射させる形式である。噴射装置とサセプタ上部までの距離は 400mm である。本研

究では正確な噴射量の制御ができ、噴霧の広域拡散が可能であるという理由から、電子制御式のピントル型噴射弁を用いた。材料には高純度化、保守性、安全性の面から TEOS (Tetraethyl Orthosilicate:  $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ , 沸点 441K) を用い、低沸点材料には n-Pentane (沸点 309K) を用いた。混合割合は TEOS に対する n-pentane のモル分率  $X_{\text{C}_5\text{H}_{12}}$  で 0.0, 0.6, 0.8 とした。噴射量は各混合割合において、TEOS の噴射量が 2.25mg 一定になる様に設定した。また、容器内の圧力  $P_{\text{amb}}$  を 3-100Kpa と変化させた。

## 4. 結果及び考察

### 4.1. シュリーレン撮影法による噴霧の巨視的観察

$X_{\text{C}_5\text{H}_{12}}=0.0, 0.6, 0.8$  の  $P_{\text{amb}}=3\text{Kpa}$  における噴霧のシュリーレン撮影画像を図3に示す。 $X_{\text{C}_5\text{H}_{12}}=0.8$  の場合、噴射直後より完全気化が促進されていること

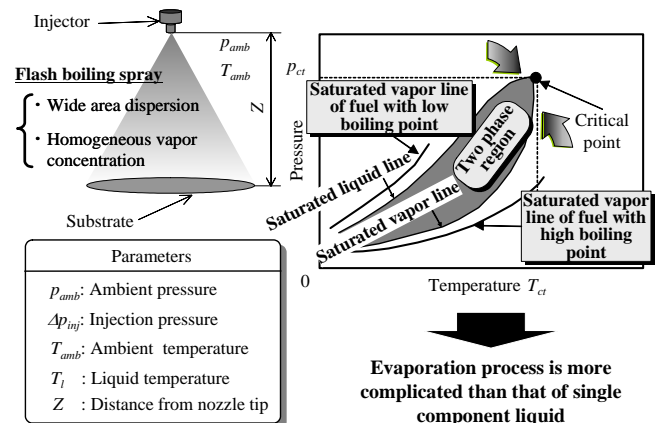


Fig.1 Conceptual image and parameters in this study

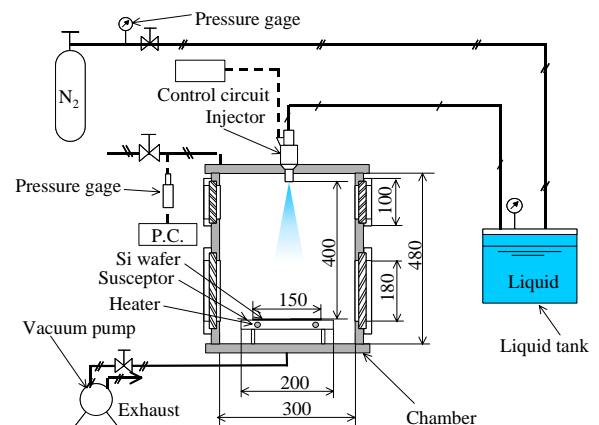


Fig.2 Schematic diagram of injection system and experiment apparatus

が分かる．一方， $X_{C_5H_{12}}=0.6, 0.0$  の場合，液相部を確認することができる．このことより，減圧沸騰効果による蒸気の均一化が可能となることが示唆される．また，この図より求めた噴霧角の時系列変化を図4に示す． $X_{C_5H_{12}}=0.0$  において，噴霧角には大きな変化はない．一方， $X_{C_5H_{12}}=0.6, 0.8$  において， $P_{amb}$  の低下により噴霧角の増大が確認できる．特に20Kpa以下の条件では，噴霧角の増加率は大きい．特に $P_{amb}=3\text{Kpa}$  において，各混合割合を比較すると噴霧角が大きく違うことが分かる．このことより減圧沸騰効果による噴霧の広域拡散が促進されたと考えられることができる

#### 4.2. LIF・Mie同時撮影によるガス均一性評価

LIF・Mieの同時撮影結果よりガス均一性の評価を行った．解析方法は図5に示すとおり画像を0-255の輝度値に変換し，平均輝度値 $\bar{I}$ と輝度値の標準偏差 $S_a$ ，統計力学的エントロピー $S$ を求めた．図5

に $X_{C_5H_{12}}=0.8$ の場合における解析結果を示す．このことより，減圧度を確保することによりガス濃度の均一性が向上していることが分かる．減圧沸騰領域である $P_{amb}=3, 10, 20\text{Kpa}$ と非減圧沸騰領域である $P_{amb}=50, 100\text{Kpa}$ を比較すると，蒸気濃度の均一性に大きな相違が見られる．これは減圧沸騰の影響により噴霧の微粒化が促進されたと考えられる．つまり，蒸気濃度の均一性からも同等の事が言える．特に $P_{amb}=3\text{Kpa}$ においては，均一にガスの分散が十分に確保され，また，濃度の均一性も著しく良好であることが分かる．

#### 4. 結言

- (1)減圧沸騰効果により噴霧の広域拡散が促進される．
- (2)減圧度を大きく確保することにより蒸気濃度の均一化が可能となる．
- (3)低沸点材料を混合することにより減圧沸騰効果は促進される．

#### 5. 今後の予定

- ・加熱状態におけるシャドウグラフ撮影法を用いた噴霧の巨視的観察
- ・加熱状態におけるLIF・Mie同時撮影によるガス均一性の評価
- ・成膜実験による成膜生成評価
- ・減圧沸騰モデルによる気相貫通度の計算

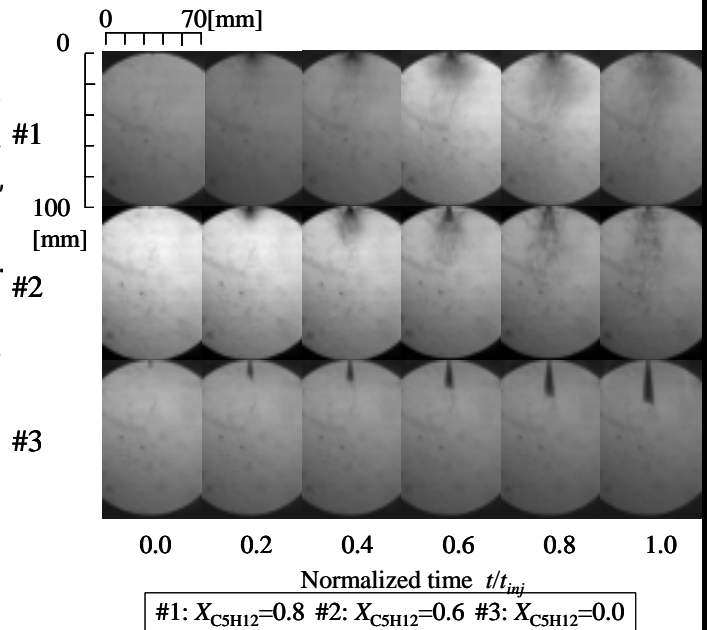


Fig.3 Temporal change in spray pattern by Schlieren photography ( $P_{amb}=3\text{[kPa]}$ )

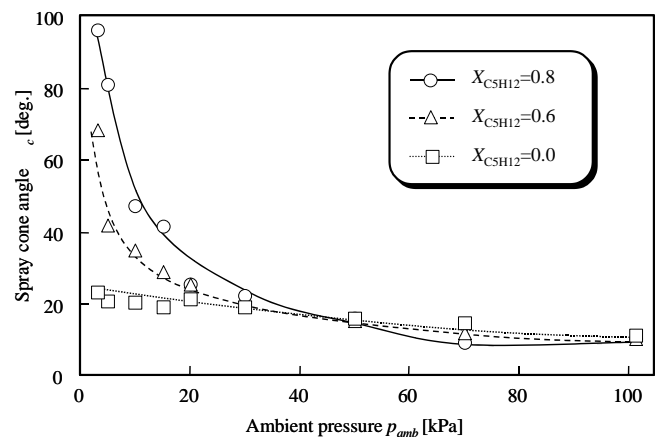


Fig.4 Change in spray cone angle with ambient pressure

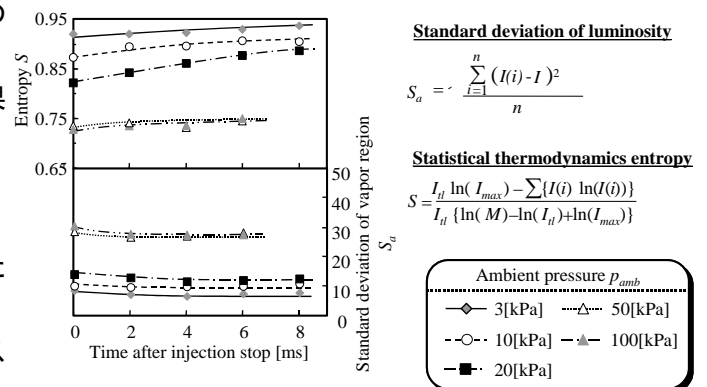


Fig.5 Effect of ambient pressure on statistical thermodynamics entropy and standard deviation of vapor region ( $X_{C_5H_{12}}=0.8$ )

Standard deviation of luminosity

$$S_a = \frac{\sum_{i=1}^n (I(i) - \bar{I})^2}{n}$$

Statistical thermodynamics entropy

$$S = \frac{I_n \ln(I_{max}) - \sum_{i=1}^n I(i) \ln(I(i))}{I_n \{\ln(M) - \ln(I_n) + \ln(I_{max})\}}$$

Ambient pressure  $P_{amb}$

- ◇— 3[kPa]
- -○- - 10[kPa]
- · ·■· · 20[kPa]
- · -△- · 50[kPa]
- - -▽- - 100[kPa]