

# 多元同時イオンビームスパッタ装置の開発

— 次世代の成膜装置 —

## Multi-Source Ion-Beam Cosputtering System

磁気記録膜や高温超電導膜などの機能性薄膜の分野で、多元素を厳密に組成制御することで、合金および化合物薄膜を形成する技術の開発が盛んに行われている。今回これらの要望にこたえるため、従来のイオンビームスパッタ装置の特徴を生かしながら、多元化・多機能化した多元同時イオンビームスパッタ装置を新たに開発した。

この装置は、複数のイオン源を独立制御することにより、多元素薄膜の組成を高精度に制御でき、また装置の構造を最適化することで、大面積でも組成の均一性が得られ、原子層レベルでの組成制御を可能とした。今後、高温超電導膜、光学多層膜など機能性薄膜の形成や、さらには傾斜機能性薄膜の研究・開発に新しい領域を開くものと期待されている。

石川 靖\* *Yasushi Ishikawa*  
 有松啓治\* *Keiji Arimatsu*  
 諫田尚哉\*\* *Naoya Kanda*  
 藤原彰夫\*\* *Akio Fujiwara*  
 下條哲男\*\*\* *Tetsuo Gejō*

### 1 緒 言

スパッタ法による成膜法は、金属や絶縁物を問わず、高機能の薄膜を強い付着力で再現性よく容易に製作できる技術が特徴であり、広い分野で利用されている。なかでもイオンビームスパッタ法は、一般のスパッタ法と異なり薄膜とプラズマが分離されているとともに高真空中で成膜できることから、高エネルギー粒子による薄膜の損傷が少ないこと、膜形成パラメータを個別に独立制御できること、および膜への不純物混入を低減できることなど多くの特徴があり、高機能薄膜を形成できる手法として最近ニーズが高まっている。一方、磁気記録膜や高温超電導膜などの分野で、多元素を厳密に組成制御した合金や化合物薄膜形成技術の開発が進められている。

今回開発した製品は、従来のイオンビームスパッタ装置の特徴を生かしながら、多元素から成る化合物薄膜の組成を高精度に制御できることを目指したものである。以下、装置の構成、仕様、特徴および適用例について述べる。

### 2 イオンビームスパッタ装置

最初に、成膜装置として多くの特徴を持つイオンビームスパッタ装置<sup>1)</sup>の原理について説明する。

原理図を図1に示す。装置内を排気系によって高真空に排気後、スパッタ用ガスを流量調整器(MFC)からイオン源に導入し、イオン源内を所定の圧力とする。イオン源内のフィラ

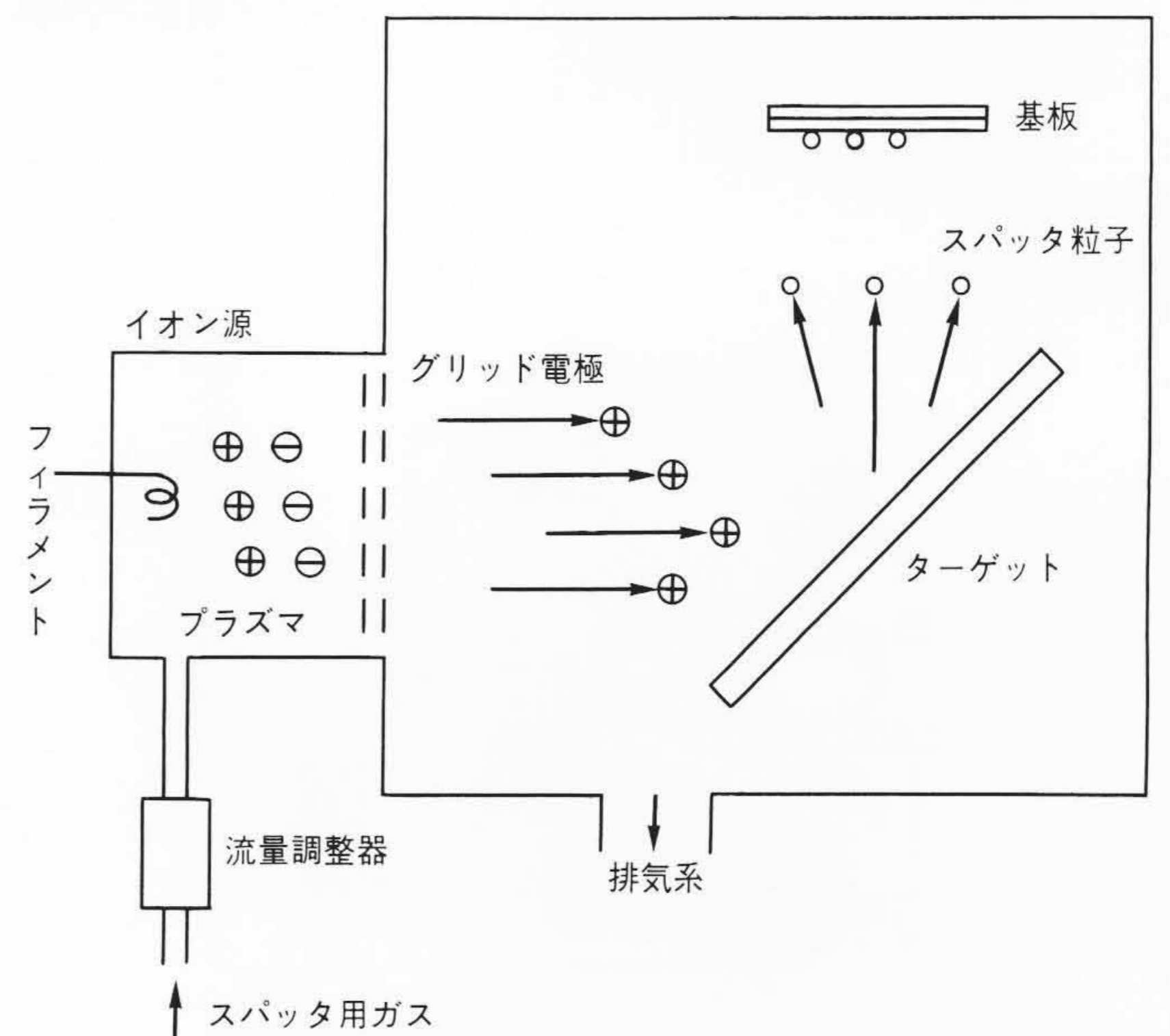


図1 イオンビームスパッタ装置の原理図 従来のスパッタ装置に対し、基板がプラズマにさらされないこと、高真空中で成膜できることなどの特徴がある。

メントから発生した熱電子が、導入したガスと衝突することによってイオン化されプラズマを発生させる。このプラズマをグリッド電極に電界を印加することによってイオンビーム

\* 日立製作所 国分工場 \*\* 日立製作所 生産技術研究所 \*\*\* 日立製作所 機電事業本部 工学博士

として引き出して加速し、ターゲットに衝突させてスパッタを行う。スパッタされた粒子は基板に堆(たい)積し基板上に薄膜を形成する。また、薄膜に直接イオンビームを照射する位置にアシスト用としてイオン源を付加することが一般に行われ、このアシストイオンは成膜前の基板または成膜中に照射することで、膜の電氣的、機械的、光学的あるいは結晶学的性質などを制御することが可能となる。

イオンビームスパッタ装置の特徴として下記があげられる。

- (1) 高真空中( $10^{-3} \sim 10^{-2}$  Pa)でのスパッタ成膜が可能である。
- (2) 高エネルギー(約10 eV)のスパッタ粒子の堆積が可能である。
- (3) 成長膜がプラズマにさらされないことにより、イオンや電子による損傷がない。
- (4) 金属や絶縁物を問わず、高融点物質の薄膜化が可能である。
- (5) 薄膜の成長が低温でできる。
- (6) 成膜前の基板または成膜時にアシスト用のイオン照射あるいはレーザー照射(アシスト用としてレーザー光使用)などが可能である。

### 3 装置構成と仕様

#### 3.1 構成

今回製品化した多元同時イオンビームスパッタ装置の外観

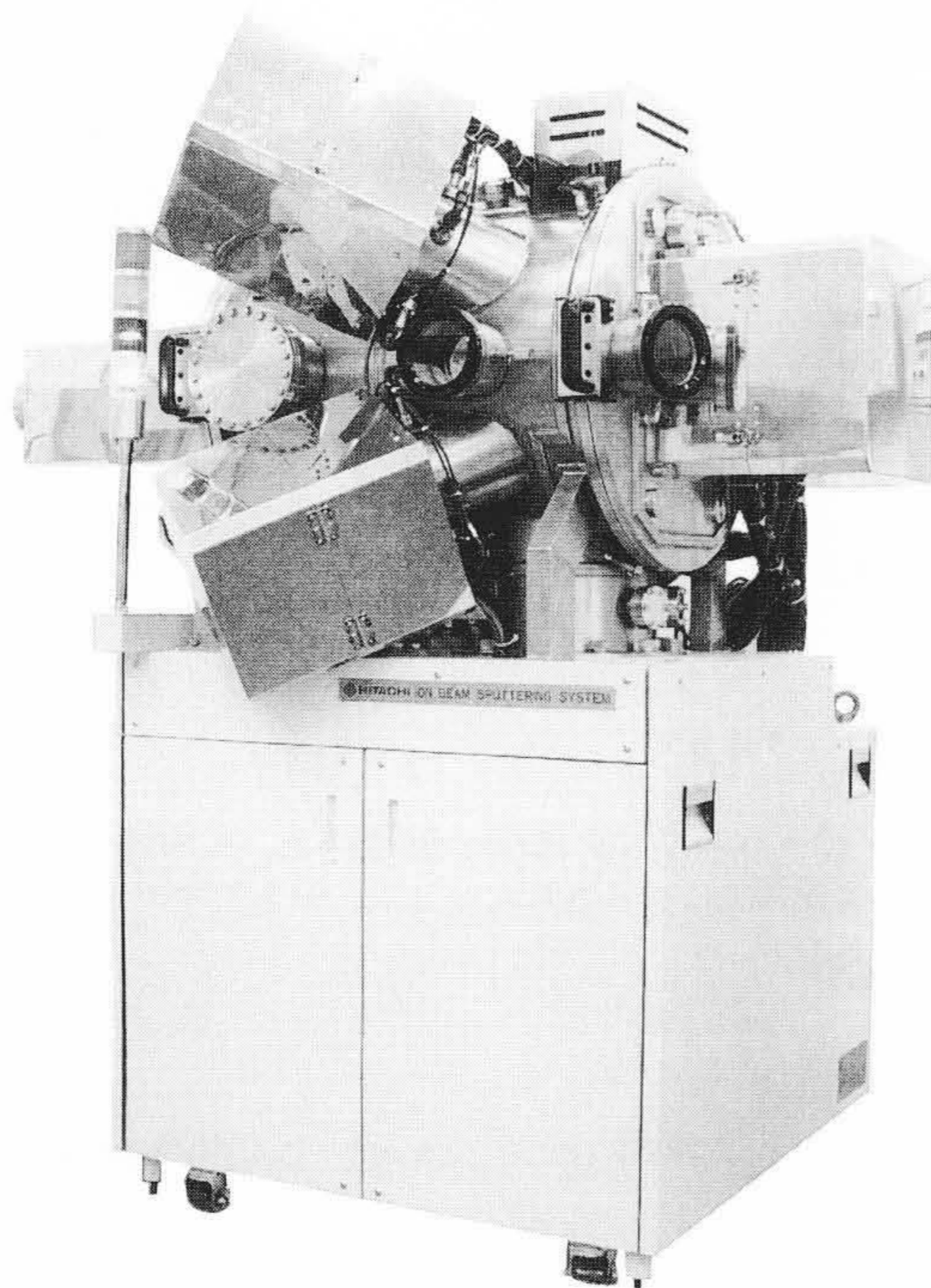


図2 多元同時イオンビームスパッタ装置 高電流密度、低発散角の特徴を持つバケット形イオン源を使用しているため、装置は非常にコンパクトな構成となっている。

を図2に示す。

装置はスパッタ用イオン源4台、対応したターゲットおよび膜厚計各4個、これらのターゲットから等距離の位置にある基板ホルダ、基板ホルダを正面からイオン照射するアシスト用イオン源などで構成されている。引き出し電流の割には小形で低発散角の特徴を持つバケット形イオン源を使用しているため、装置は非常にコンパクトな構造となっている。

#### 3.2 仕様

主な仕様を表1に示す。12インチのクライオポンプを使用し、高真空まで排気するようにしている。組成の均一性は、基板を回転させなくても $\pm 2\%$ 以下を達成することができる。

### 4 装置の特徴

多元同時イオンビームスパッタ装置は、従来のイオンビームスパッタ法の特徴に加えて、多元素から成る化合物薄膜の組成を高精度に制御するため、スパッタ用イオンビーム源4台が独立に制御でき、基板全面に各元素組成が均一に成膜できるような構造となっている。以下に、イオン源、装置構造および制御法について述べる。

#### 4.1 イオン源

イオン源は日立製作所が核融合用イオン源として開発したバケット形イオン源を応用し用いている。イオン源原理図を図3に示す。同図には比較のために一般によく知られているカウフマン形イオン源の原理図も示した。バケット形イオン源は次のような特徴を持っている。

表1 主な仕様 スパッタ用イオン源の短い収束焦点、アシストイオン源の低電圧対応など、バケット形イオン源の特徴を生かしている。

No.	項目	仕様
1	到達真空度	$2.6 \times 10^{-5}$ Pa以下
2	基板装着寸法	$\phi 3$ インチ: 1枚
	基板回転速度	1 ~ 20 r/min
	基板加熱最高温度	$800^\circ\text{C} \pm 10^\circ\text{C}$
	組成均一性	$\pm 2\%$ 以下
3	ターゲット寸法	$\phi 6$ インチ: 4枚
4	スパッタ用イオン源(4台)	バケット形 1.2 kV $\times$ 100 mA 収束焦点: 400 mm
5	膜厚モニタ(4式)	原子吸光式
6	4元同時スパッタ	独立制御
7	アシスト用イオン源	バケット形 100 V ~ 1.2 kV
8	拡張ポート	RHEED用 QMASS用

注: 略語説明 RHEED(反射高速電子回折)  
QMASS(四重極質量分析計)

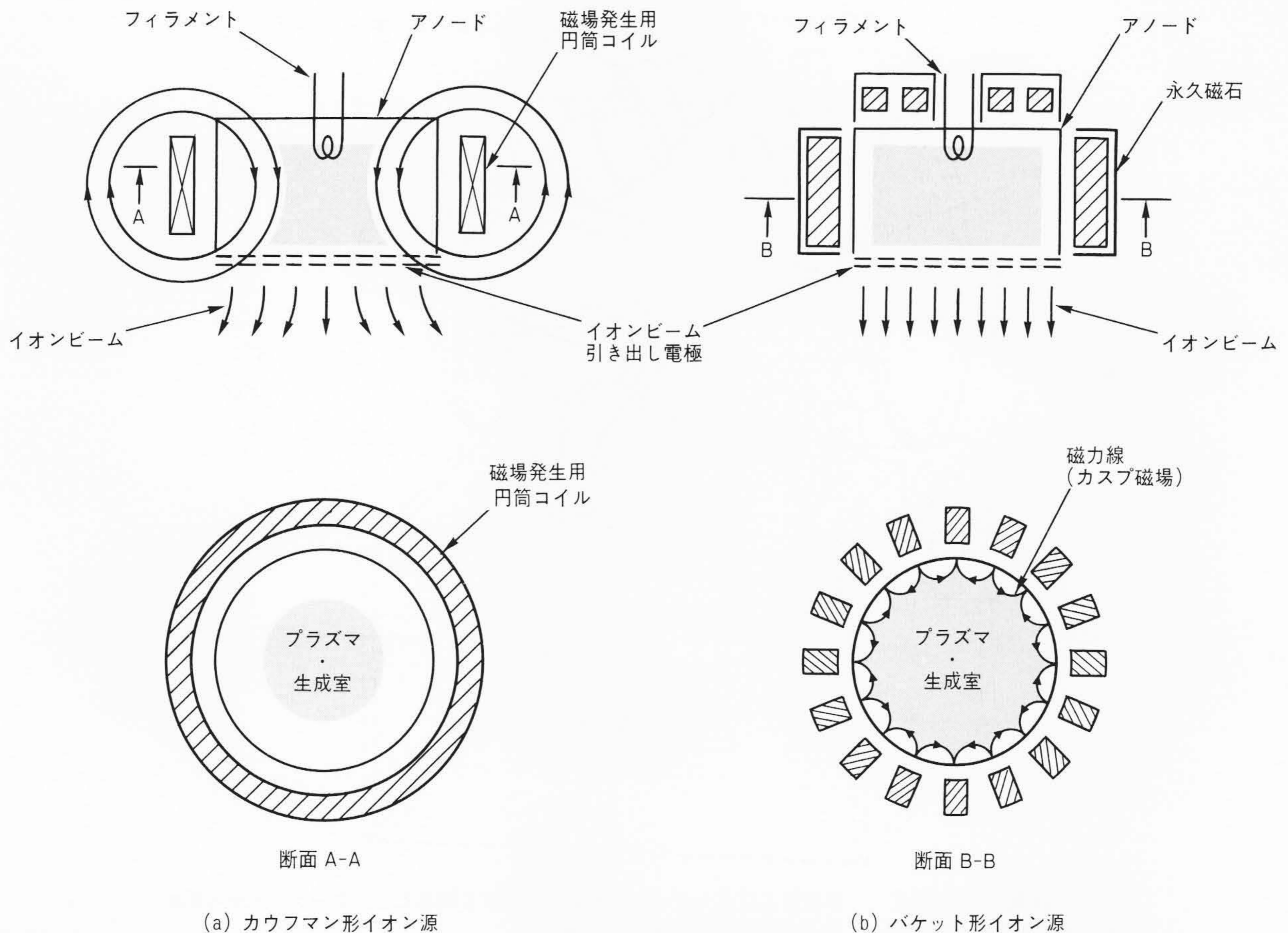


図3 イオン源の原理図 日立製作所のバケット形イオン源は、ビーム発散角が小さいこと、大電流を容易に引き出せること、構造が簡単でフィラメント交換がきわめて容易であることなどの特徴がある。

- (1) 大容量化が容易なため、イオンビームスパッタの高速成膜(ハイレート)化が可能である<sup>1)</sup>。
- (2) バケット形イオン源の大きな特徴であるビーム発散角が小さいことに加え、ビームを収束させる技術を適用することによって、不純物発生が少ない高純度薄膜が得られる。
- (3) イオン源からの外部漏れ磁場がないので、磁性膜などの成膜に有利である。
- (4) 構造が簡単であり、保守が容易である。特にプラズマ室はワンタッチで開放できるため、フィラメントの交換はきわめて容易である。

#### 4.2 装置構造

装置の概略構成を図4に示す。装置の構成にあたっては保守性、機能の拡張性、膜の純度および大面積にわたっての組成の均一性を考慮して、設計製作している。

真空チャンバの扉は保守が容易なように全面扉とし、前後2か所に設け、また計測器としてRHEED(反射高速電子回折)、QMASS(四重極質量分析計)を装着可能としている。基板およびターゲットは垂直に設置した構造とし、ターゲットから高エネルギーを持って飛び出した粒子だけが基板に堆積するようにし、膜への不純物の混入を防いでいる。多元素化

化合物を同時スパッタ法で成膜する場合、複数のターゲットから飛来するスパッタ粒子が、基板面でそれぞれ均一に堆積する必要がある。イオンビームスパッタ法ではスパッタ粒子の角度分布がビームの入射方向やエネルギーに依存するため、この装置の開発にあたりこれらを考慮した膜厚分布高速シミュレータを新たに開発した<sup>3)</sup>。これによりイオン源～ターゲット～基板間の配置を最適化し、3インチ基板上に回転させずに成膜した場合の膜厚分布を2%以下とした。

膜厚分布高速シミュレータでの計算結果例を図5に示す。

#### 4.3 制御法

この装置のイオン源の制御方式を図6に示す。4元素の制御はそれぞれ独立していて、各元素ごとの成膜パラメータを制御装置で独立に設定し、各元素に対応する膜厚計のモニタ値に基づき運転することができる。各元素ごとに独立制御しているため、安定して高精度な組成比で成膜することができ、元素組成比設定値を時間とともに変化させることで自在な組成傾斜薄膜も形成することができる。

今回適用した膜厚計は、元素固有のスペクトルに基づくセンサを用いているため、他元素による外乱を受けることなく4元素をそれぞれ独立に制御することができる。

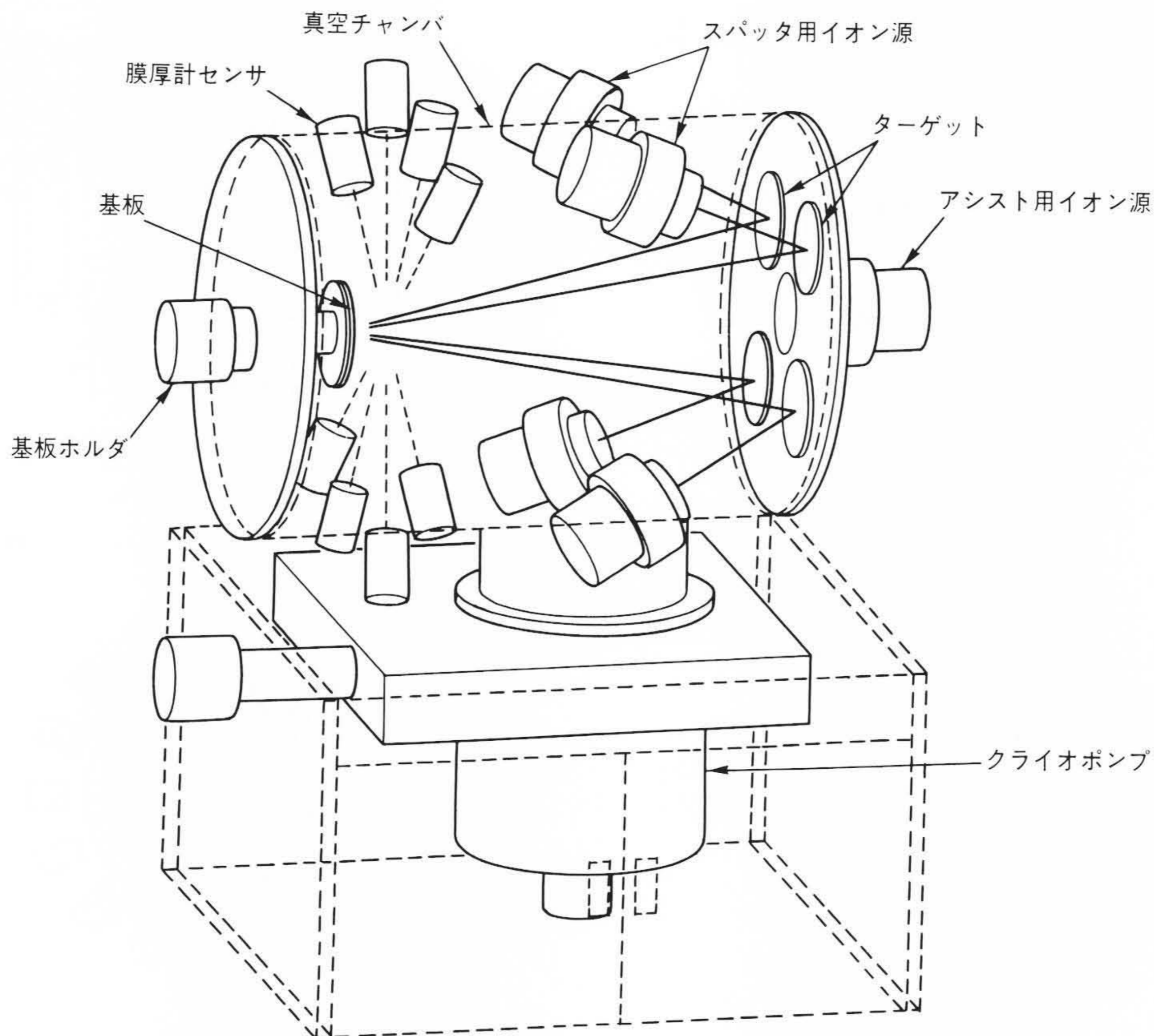


図4 装置の概略構成 基板およびターゲットは垂直に設置する構造とし、ターゲットから高エネルギーを持って飛び出した粒子だけが基板に堆(たい)積する。

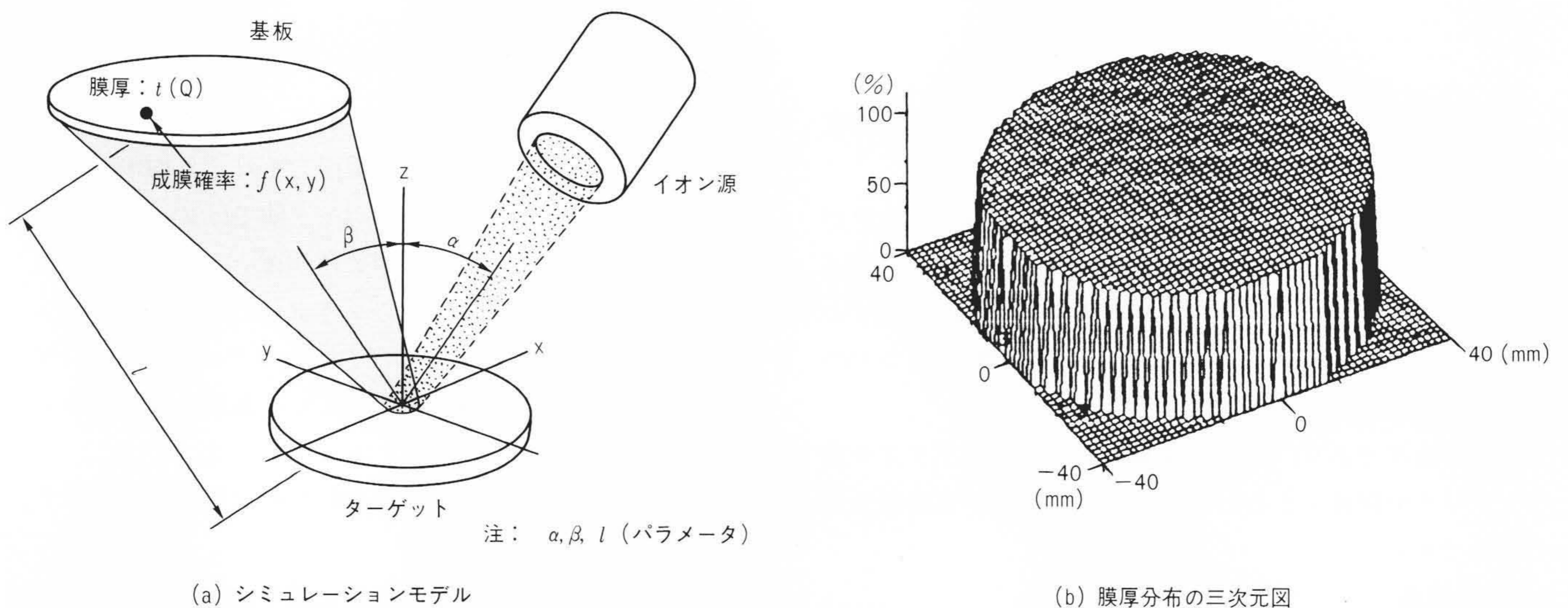


図5 成膜分布シミュレーション 成膜分布シミュレーションの結果を用い、各要素の配置を最適化した(成膜結果との比較例を図8に示す)。

## 5 適用例

多元同時イオンビームスパッタ装置の特徴を示す適用例について述べる。

### 5.1 成膜の再現性

イオンビームスパッタ装置は、成膜速度をイオン源電源の

出力で電氣的に制御できるので、成膜組成比の制御が精度よく容易である。イオンビームスパッタによる成膜回数と、膜の組成変動を図7に示す。同図から非常に再現性よく膜が形成されていることがわかる。

また、目的とする構成元素以外の不純物は、EPMA法や蛍光X線法の検出感度以下であり、良好な結果を示している。

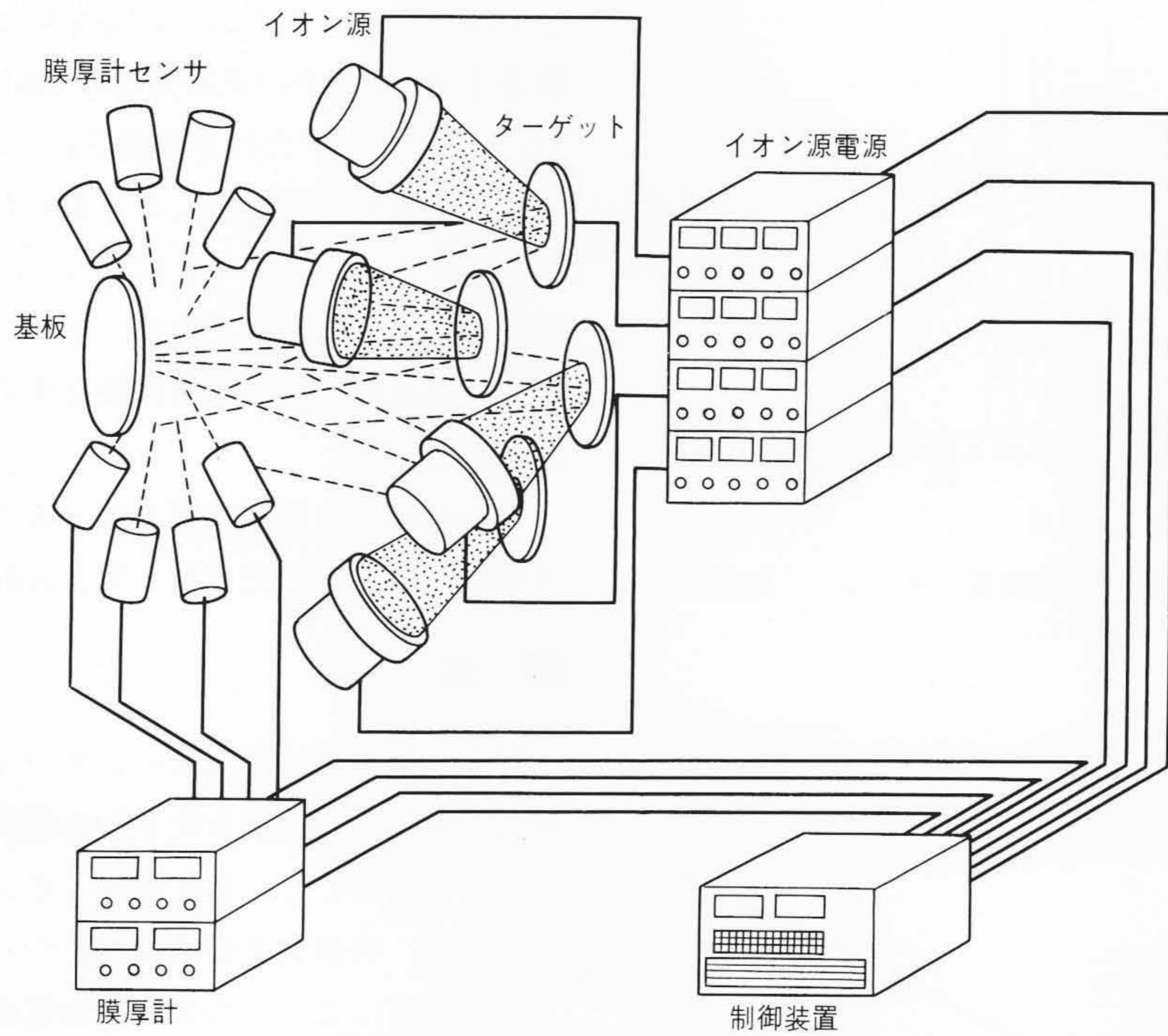
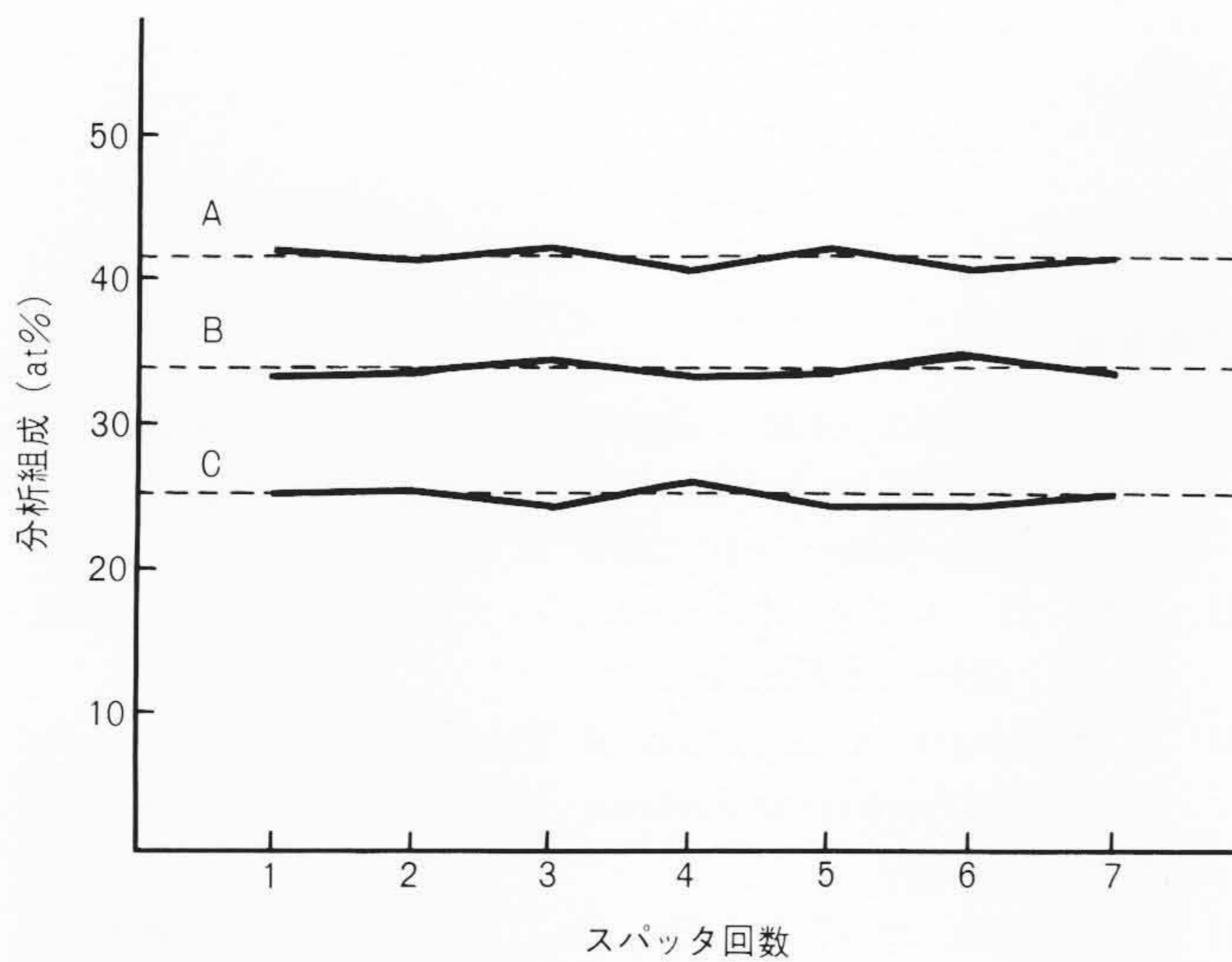


図6 4元素同時独立制御方式 各元素ごとにスパッタ量を独立制御できるので、高精度な組成比で成膜できる。



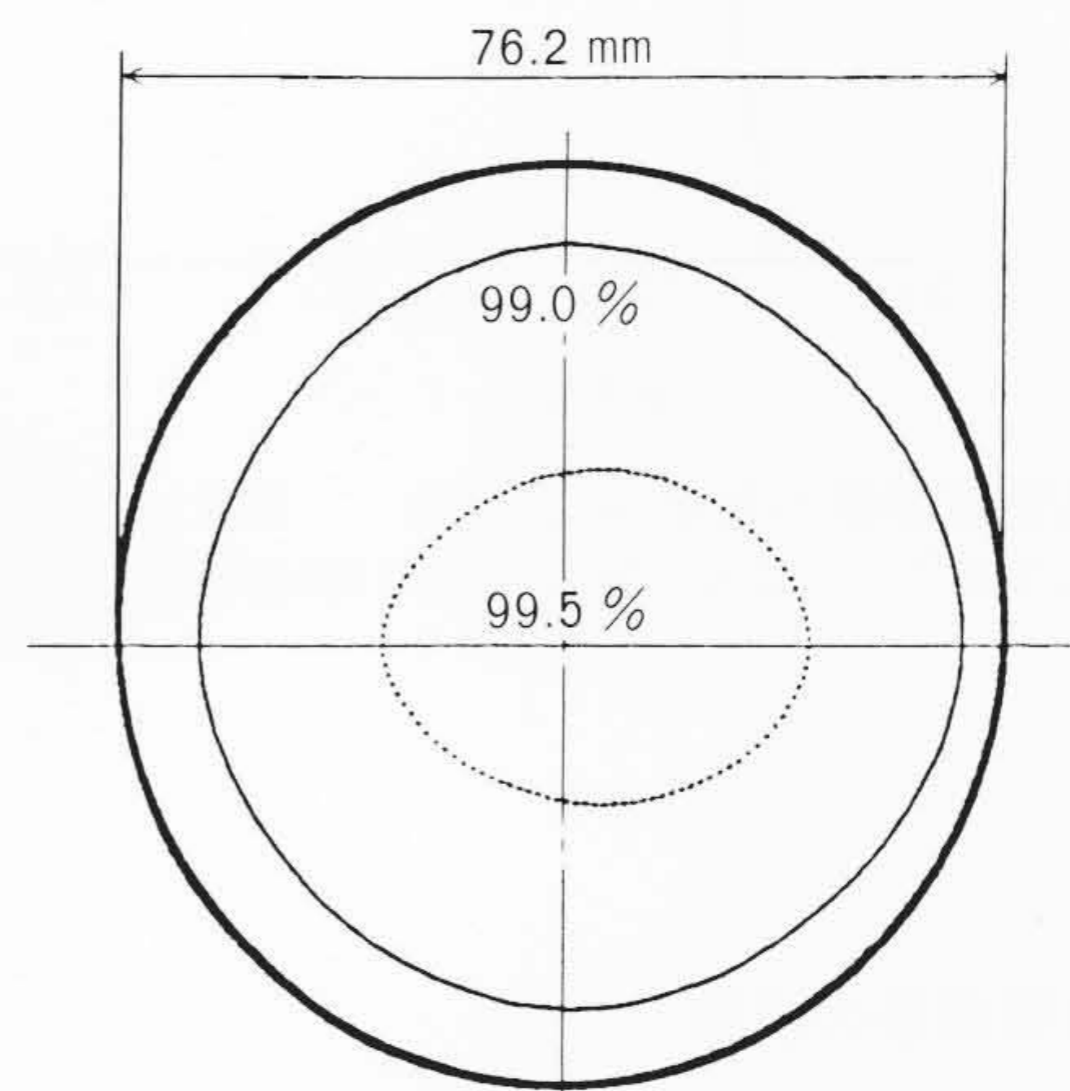
注：----- (目標組成), ——— (成膜組成)

図7 成膜の再現性 非常に再現性よく膜が形成されていることがわかる。

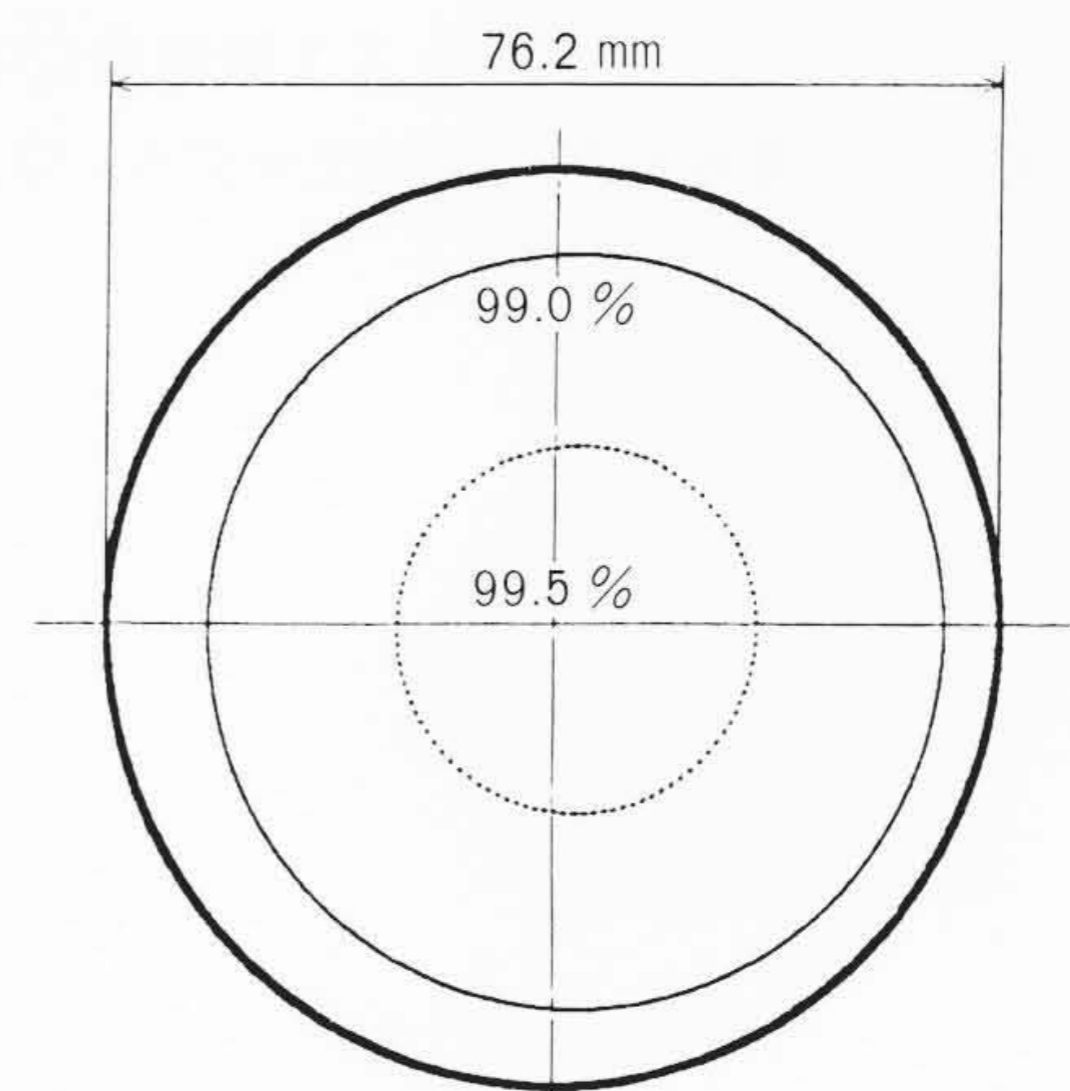
### 5.2 薄膜組成分布

この装置によって、3インチ基板上に基板を回転させることなく成膜した結果、一つのターゲットからの膜厚分布は2%以下であった。高い均一性を示しており、この装置が大面積にわたる厳密な組成制御が可能であることがわかる。

この装置で達成した膜厚の分布、およびシミュレーションによる膜厚分布を図8に示す。同図は最高膜厚を100%として0.5%ごとに等膜厚線を描いた図であり、よく一致していることがわかる。



(a) 実験結果



(b) シミュレーション結果

図8 1ターゲットから堆積した膜の等膜厚線図 最高膜厚を100%として、0.5%ごとに等膜厚線を描いた図であり、達成した膜厚分布とシミュレーション結果がよく一致していることがわかる。

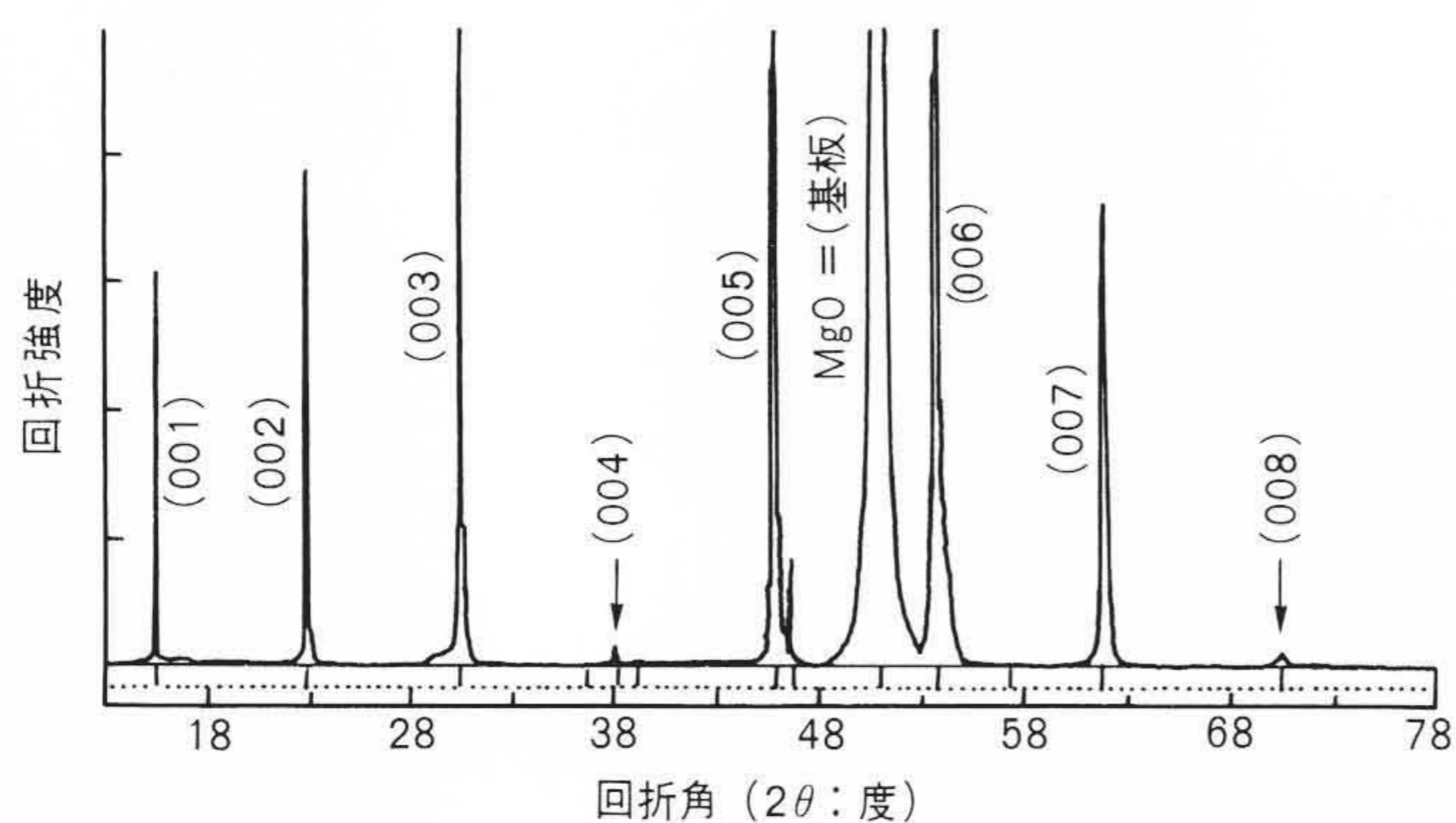


図9 形成したYBC系超電導薄膜のX線回折パターン 薄膜のC軸がMgOの基板に垂直配向して結晶成長した。

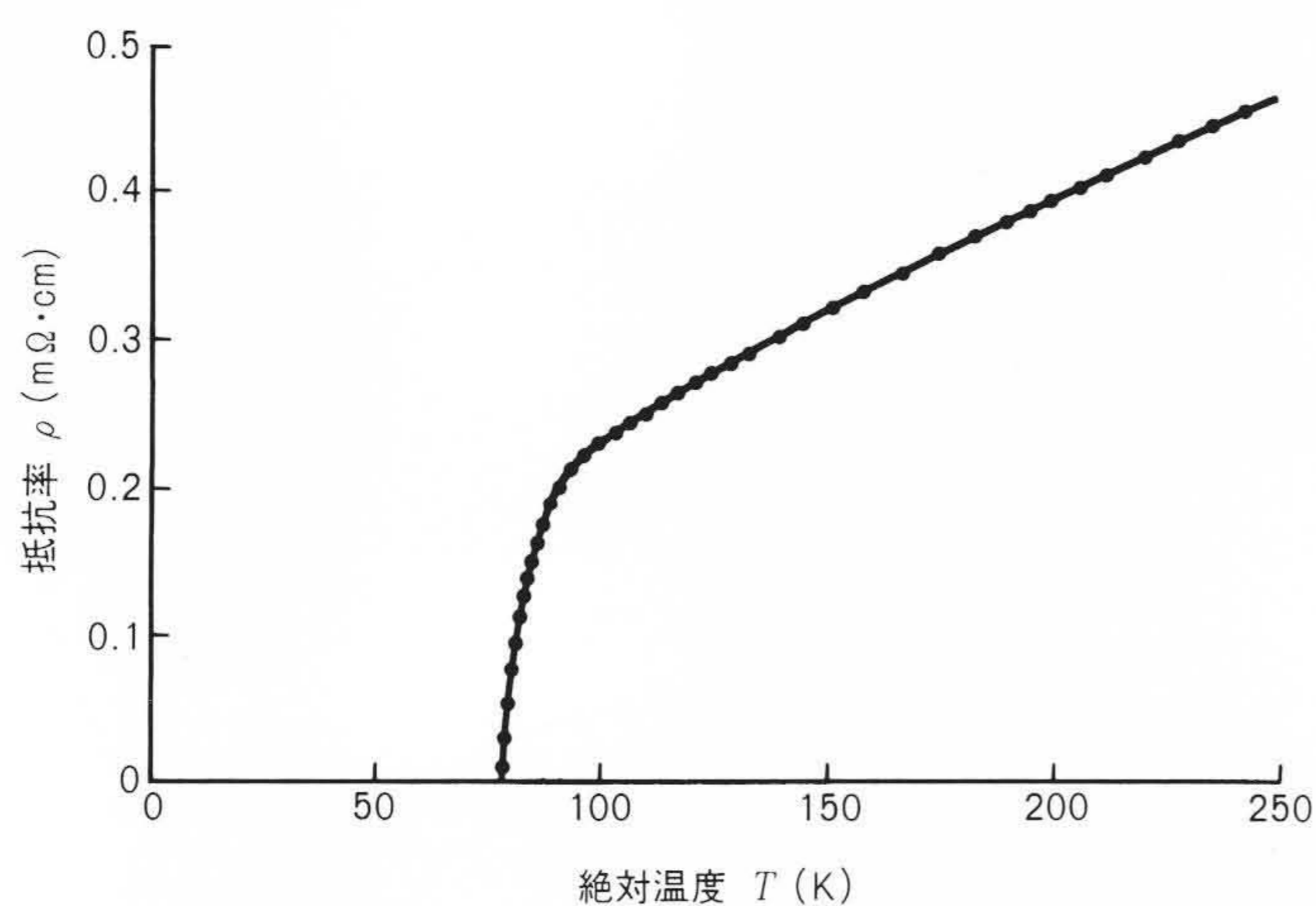


図10 高温超電導薄膜の温度-抵抗特性 形成した薄膜を1気圧酸素中でアニールすることにより、臨界温度74 Kの高温超電導薄膜が得られた。

### 5.3 高温超電導膜の成膜

この装置を用いて成膜したYBC系材料の高温超電導膜の一例について述べる。ターゲットはバリウム-銅複合酸化物を2個、酸化イットリウム、金属銅を各1個使用している。基板温度は580℃とし、基板材料には酸化マグネシウムおよびチ

タン酸ストロンチウム単結晶を用いた。酸化マグネシウム単結晶を用いた場合の成膜直後のX線回折パターンを図9に示す。(00*l*)のピークだけが観測され、C軸が基板面に垂直配向した超電導薄膜が得られたことがわかる。この薄膜を1気圧酸素中でアニールすることによって、図10の臨界温度74 Kの超電導薄膜が得られた。また、チタン酸ストロンチウム単結晶上では、基板の結晶方位に依存する形で結晶性の高い薄膜が得られた。

さらに成膜条件に改善を加えることにより、臨界温度や臨界電流密度を向上できると考えられる<sup>4)</sup>。

## 6 結 言

以上、従来のイオンビームスパッタ装置の特徴を生きしながら、多元素から成る化合物薄膜の組成を高精度に制御できることを目指した、多元同時イオンビームスパッタ装置の構成、仕様、特長および応用例について述べた。

この装置により、今後高温超電導薄膜だけでなく、光学多層膜など機能性薄膜の形成や傾斜機能性薄膜の研究、開発に新しい領域を開くものと考えられる。

### 参考文献

- 1) I. Hashimoto, et al.: Development of a High Deposition Rate Machine by Ion Beam Sputtering, Ion Implantation Technology June, 7-10 (1988)
- 2) 有松, 外: 大口径イオンビームミリング装置の開発, 日立評論, 68, 6, 485~488 (昭61-6)
- 3) A. Fujiwara: Calculation of Thickness Distribution for Ion Beam Sputtering System, Journal of Vacuum Science & Technology
- 4) N. Kanda, et al.: YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> Films Deposited by Multisource Ion Beam Sputtering System, International Conference on Electronic Materials (1990)